

DECKBLATT

Projekt	PSP-Element	Thema	Aufgabe	UA	Lfd Nr.	Rev.
NNA	NNNNNNNNNN	NNAAANN	AA	AA	NNNN	NN
9A	65161000	01STS	LH	BB	0002	00

Kurztitel der Unterlage:
 Beprobung und Analyse von Salzlösungen 2010

Ersteller / Unterschrift
 Brenk Systemplanung

Geprüft: 
 DokId: 

Titel der Unterlage:
Beprobung und Analyse von Salzlösungen 2010
Schachtanlage Asse II

Freigabevermerk:

Freigabedurchlauf

Stabsstelle Qualitätsmanagement und
 Dokumentation:

Datum: *25.5.2011*

Name: 

Unterschrift

Fachbereich: *Strahlenschutz*

Datum: *26.05.2011*

Name: 

Unterschrift

Geschäftsführung Asse-GmbH:

Datum: *27. Mai 2011*

Name: 

REVISIONSBLATT

Projekt	PSP-Element	Thema	Aufgabe	UA	Lfd Nr.	Rev.
NNAA	NNNNNNNNNN	NNAAANN	AA	AA	NNNN	NN
9A	65161000	01STS	LH	BB	0002	/

Revisionsstand 00: 17.05.2011

Kurztitel der Unterlage:

Beprobung und Analyse von Salzlösungen 2010

Rev	Revisionsstand Datum	Verantwortl. Stelle	revidierte Blätter	Kat. *)	Erläuterung der Revision
00	17.05.2011			-	Ersterstellung

*) Kategorie R = redaktionelle Korrektur, Kategorie V = verdeutlichende Verbesserung, Kategorie S = substantielle Änderung. Mindestens bei der Kategorie S müssen Erläuterungen angegeben werden.

Asse-GmbH Gesellschaft für Betriebsführung und Schließung der Schachanlage Asse II	Projekt	PSP-Element	Thema	Aufgabe	UA	Lfd Nr.	Rev.
	NNAA	NNNNNNNNNN	NNAAANN	AA	AA	NNNN	NN
	9A	65110000	01SFA	LL	ET	0001	01
Beprobung und Analyse von Salzlösungen 2010						Blatt: 3	

Inhaltsverzeichnis

Blatt

Deckblatt..... 1
 Revisionsblatt 2
 Inhaltsverzeichnis 3

Verzeichnis der Anlagen

Gutachten Brenk Systemplanung
 Überprüfung der Kalibrierungen des Low-Level-Messplatzes 30 Blatt

Gesamte Blattzahl des Dokumentes..... 33



Bericht

**Beprobung und Analyse von
Salzlösungen 2010
Schachtanlage Asse II**

BS-Projekt-Nr. 1010-02 (AP 2)

erstellt im Auftrag der

Asse-GmbH - Gesellschaft für
Betriebsführung und Schließung der
Schachtanlage Asse II
Am Walde 2
38319 Remlingen

durch die

Brenk Systemplanung GmbH
Heider-Hof-Weg 23
52080 Aachen

Aachen, 17.05.2011

Anmerkung:

Dieses Gutachten gibt die Auffassung und Meinung des Auftragnehmers (BS) wieder und muss nicht mit der Meinung des Auftraggebers (Asse-GmbH) übereinstimmen.



INHALTSVERZEICHNIS

Seite:

1. EINLEITUNG	1
2. BEPROBUNGS- UND MESSPROGRAMM.....	2
3. ERGEBNISSE DER LABORANALYSEN.....	4
3.1. Messergebnisse zu Aktivitätskonzentrationen	4
3.2. Messergebnisse zur chemischen Zusammensetzung	13
4. AUSWERTUNG DER RADIOLOGISCHEN MESSERGEBNISSE	15
4.1. Generelle Anmerkungen zu den aktuellen radiologischen Daten	15
4.2. Vergleich mit Daten aus 2008 und 2009 für künstliche Radionuklide.....	16
4.2.1. Messergebnisse für H-3	17
4.2.2. Messergebnisse für C-14	17
4.2.3. Messergebnisse für Co-60	18
4.2.4. Messergebnisse für Sr-90	18
4.2.5. Messergebnisse für Tc-99.....	18
4.2.6. Messergebnisse für Cs-137.....	19
4.2.7. Messergebnisse für Pu-238 und Pu-239/240.....	19
4.2.8. Messergebnisse für Am-241	20
4.3. Vergleich mit Daten aus 2008 und 2009 für natürliche Radionuklide.....	20
4.3.1. Messergebnisse für Pb-210 und Po-210	20
4.3.2. Messergebnisse für U-238 und U-234.....	21
4.3.3. Messergebnisse für K-40	24
5. ZUSAMMENFASSUNG DER BEWERTUNGEN UND EMPFEHLUNGEN	25
6. LITERATUR	26



Abkürzungen

BfS	Bundesamt für Strahlenschutz
BS	Brenk Systemplanung GmbH
EKG	Erkennungsgrenze
ELK	Einlagerungskammer
IAF	IAF – Radioökologie GmbH Dresden
ICP-MS	Inductively-Coupled-Plasma Mass-Spectrometry (deutsch: Massenspektrometrie mit induktiv gekoppeltem Plasma)
LAW	Low Active Waste (deutsch: schwachaktive Abfälle)
LL-Beta	Low Level Beta Messung
LSC	Liquid Scintillation Counting (deutsch: Flüssigkeitsszintillationsmessung)
MAW	Medium Active Waste (deutsch: mittelaktive Abfälle)
MP	Messpunkt
n. b.	nicht bestimmt
NWG	Nachweisgrenze
StrlSchV	Strahlenschutzverordnung
URA	Zentrales Radionuklidlaboratorium UmweltRadioAktivität, Universität Regensburg
VKTA	Verein für Kernverfahrenstechnik und Analytik Rossendorf e. V.

1. EINLEITUNG

In der Schachanlage Asse II wurde von 1909 bis 1964 Kali- und Steinsalz abgebaut. Der stillgelegte Schacht wurde 1965 vom Bund gekauft und zur Einlagerung von radioaktivem Abfall genutzt. Im Jahr 1965 beauftragte das Bundesministerium für wissenschaftliche Forschung und Technologie (heute: Bundesministerium für Bildung und Forschung) die Gesellschaft für Strahlenforschung (heute: Helmholtz Zentrum München) damit, in der stillgelegten Schachanlage die Endlagerung radioaktiver Abfälle zu erforschen. Nach entsprechenden Umbaubauten begann 1967 die Versuchseinlagerung radioaktiver Abfälle. Von 1967 bis 1978 wurden ca. 126.000 Fässer und Gebinde mit schwach- und mittelradioaktiven Abfällen in der Asse II eingelagert. Die Einlagerung endete 1978, nachdem 1976 das Atomgesetz geändert worden war. Als Voraussetzung für eine weitere Einlagerung radioaktiver Abfälle war nun ein atomrechtliches Planfeststellungsverfahren vorgeschrieben. Rechtsgrundlage für den Betrieb der Schachanlage Asse II blieb jedoch zunächst weiterhin das Bergrecht. Seit dem 1. Januar 2009 betreibt das Bundesamt für Strahlenschutz (BfS) die Schachanlage Asse II unter Atomrecht. Dieses stellt strengere Anforderungen an den Betrieb, die Stilllegung und den Strahlenschutz der Anlage als das Bergrecht [1].

Für den bergbaulichen Betrieb der Schachanlage hat das BfS zum 1. Januar 2009 die Asse-GmbH, Gesellschaft für Betriebsführung und Schließung der Schachanlage Asse II, als eigene Betriebsführungsgesellschaft gegründet. Das BfS ist für die Steuerung und die wissenschaftliche Qualität der Stilllegung verantwortlich. Das BfS erstellt das Konzept für den sicheren Betrieb und die weiteren Schritte der Stilllegung der Schachanlage. Die Asse-GmbH plant und führt nach den Vorgaben des BfS den bergbaulichen Betrieb der Anlage. Die wesentlichen Aufgaben sind die Offenhaltung des Bergwerks bis zur Stilllegung, die Durchführung von Stabilisierungsmaßnahmen, die Planung und Durchführung von Vorsorgemaßnahmen für den Notfall und die Vorbereitung der Stilllegung [2].

In der Schachanlage Asse treten zwei **wesentlich verschiedenartige Salzlösungen** auf, die zum Teil auch radioaktive Kontaminationen aufweisen. Es sind zu unterscheiden:

- (1) **Zutrittslösungen**, die aus dem Nebengestein in das Grubengebäude eintreten, im Umfang von ca. 12 m³/d kontinuierlich auf den Sohlen 658 m, 725 m und 750 m gefasst werden und primär kontaminationsfrei sind, jedoch durch Kontakt mit der Grubenluft in geringem Maße kontaminiert werden können (vorrangig mit H-3). Oberhalb der 700-m-Sohle wird die Zutrittslösung in Speicherbecken auf der 490-m-Sohle gepumpt und extern verwertet. Unterhalb der 700-m-Sohle verbleibt die gefasste Zutrittslösung in der Grube und wird intern verwertet.
- (2) **Kontaminierte Salzlösungen**, die auf der 750-m-Sohle vor Einlagerungskammern (ELK) in Sohlenschlitzen bzw. im Laugesumpf vor der ELK 12 anzutreffen sind. Dabei handelt es sich teilweise um Lösungsrückstände des früheren (nassen) Versatzes von Abbaukammern, insbesondere beim Laugesumpf vor der ELK 12; sie könnten aber z. T. auch durch Eindringen von Zutrittslösungen in (LAW-)ELK bedingt sein.¹ Neben H-3 weisen diese Salzlösungen relativ hohe Konzentration an Cs-137 auf; z. T. wurden weitere Radionuklide identifiziert. Salzlösungen mit hoher Aktivitätskonzentration, die aus betrieblichen Gründen umgelagert werden müssen, werden in Behältern unter Tage zwischengelagert [3].

¹ Dies kann insbesondere die Einlagerungskammern 4, 8 und 10 im südwestlichen Bereich der 750-m-Sohle betreffen.

Für die Freigabe von Zutrittslösungen sowie für die Beurteilung kontaminierter Salzlösungen erfolgte in 2008 durch BS und vier Unterauftragnehmer (IAF, VKTA, URA und FZJ) eine erste umfangreiche Beprobung an mehr als dreißig Messpunkten mit einer kompletten radiologischen und chemischen Analyse der Proben sowie einer radiologischen und strahlenschutzrechtlichen Bewertung der Ergebnisse [4]. Auf Basis der Messergebnisse und der Berechnung von Freigabewerten für potentiell relevante Radionuklide wurde in [4] gezeigt, dass die Kontamination der gefassten Zutrittslösungen unter Beachtung der Summenformel nach StrlSchV § 29(2) i. V. m. Anlage IV Teil A Nr. 2 so gering ist, dass sie ohne Bedenken für die Flutung/Verwahrung der Gruben Mariagluck bzw. Hope, oder Salzdetfurth freigegeben werden können.

In 2009 wurde unter Mitwirkung des BfS und der Unterauftragnehmer IAF, VKTA und URA für die meisten Messpunkte aus dem Jahr 2008 die Beprobung und radiologische Analyse von Salzlösungen wiederholt. Die Untersuchung in 2009 zielte i. W. auf eine vergleichende Bewertung des Zustandes radioaktiver Kontaminationen von Zutrittslösungen sowie kontaminierter Salzlösungen mit den Ergebnissen aus dem Jahre 2008 [5].

Im Dezember 2010 wurde BS durch die Asse-GmbH beauftragt, zusammen mit den Unterauftragnehmern (IAF, VKTA, URA) eine erneute Beprobung, Analyse und Bewertung von kontaminierten Salzlösungen aus dem Nahbereich von Einlagerungskammern vorzunehmen. Im Unterschied zu den Beprobungen aus den Jahren 2008 und 2009 waren nun lediglich Proben von vier Messpunkten zu untersuchen, für die durch Kontakt mit radioaktiven Abfällen der Einlagerungskammern 4, 8 bzw. 12 relativ hohe Aktivitätskonzentrationen vorliegen. Die wesentliche Zielstellung dieser Untersuchung ist der Vergleich des aktuellen Zustandes mit den Messergebnissen aus den Jahren 2008 und 2009.

Im nachfolgenden **Kapitel 2** wird das Beprobungs- und Messprogramm erläutert. Die Ergebnisse der radiologischen und chemischen Laboranalysen sind in **Kapitel 3** zusammengestellt. Die radiologischen Daten werden in **Kapitel 4** ausgewertet und mit Messergebnissen der Jahre 2008 und 2009 verglichen. Aus der vorliegenden Untersuchung resultierende Bewertungen und Empfehlungen werden in **Kapitel 5** zusammengefasst. Zur zitierten Literatur sei auf **Kapitel 6** verwiesen.

2. BEPROBUNGS- UND MESSPROGRAMM

In Abstimmung mit dem Bereich Strahlenschutz der Asse-GmbH wurden vier Messpunkte beprobt: MP-L2 westlich ELK 4, MP-L3 östlich ELK 8, MP-L4 westlich ELK 8 und MP-21 vor ELK 12. Radionuklidanalysen wurden außerdem für weitere vier Proben (Rückstellproben der Asse-GmbH) von den Messpunkten MP-L2, MP-L3 (2 R-Proben) und MP-L4 ausgeführt. Wegen der geringen Mengen der Rückstellproben war für diese nur ein eingeschränktes Analyseprogramm realisierbar.

Die Probenbezeichnungen und das Mengengerüst der Laboranalysen enthält Tabelle 2-1. Hier sind auch angewandte Analyseverfahren sowie Zuständigkeiten der eingebundenen Labore aufgeführt.

Die Probenahme erfolgte am 09.12.2010 durch je einen Mitarbeiter von IAF und der Asse-GmbH. Die Aliquotierung der Proben und der Probenversand an die anderen Labore wurden ebenfalls durch IAF übernommen.



Tabelle 2-1: Mengengerüst der Laboranalysen für die Beprobung von kontaminierten Salzlösungen

Messpunkt	MP-L2		MP-L3			MP-L4		MP-21	
Probenbezeichnung	L2	L2-R	L3	L3-R1	L3-R2	L4	L4-R	L21	
Volumen [Liter]	10	1	10	1	1	10	1	10	
Analysen									Labor
Chemie-Anionen ¹⁾	x		x			x		x	VKTA
Chemie-Kationen ²⁾	x		x			x		x	VKTA
Chemie: Dichte, pH, Leitfähigkeit	x		x			x		x	VKTA
komplette Gamma-Spektrometrie	x	x	x	x	x	x	x	x	IAF
H-3	x	x	x	x	x	x	x	x	IAF
C-14 (beta; ges/anorg.)	x		x			x		x	URA
Sr-90 (beta)	x		x			x		x	VKTA
Tc-99 (beta)	x		x			x		x	VKTA
Po-210 (alpha)	x	x	x	x	x	x	x	x	IAF
Pb-210 (beta)	x	x	x	x	x	x	x	x	IAF
Ra-226/Ra-228 (gamma n. Fällung)	x		x			x		x	IAF
U-Isotope ³⁾ (alpha)	x	x	x	x	x	x	x	x	IAF
Pu-238, Pu-239/240 (alpha)	x		x			x		x	URA
Am-241 (alpha)	x		x			x		x	URA

¹⁾ Hydrogencarbonat, Carbonat, Chlorid, Sulfat, Bromid, Iodid, Fluorid, Phosphat, Nitrat, Nitrit, Sulfid

²⁾ Na, K, Mg, Ca, Mn, Fe, Zn, Co, Sr, Ba, Pb, U, Th

³⁾ U-233/234, U-235, U-236, U-238

3. ERGEBNISSE DER LABORANALYSEN

Radiologische und chemische Laboranalysen der 8 Proben wurden für das in Tabelle 2-1 definierte Mengengerüst durchgeführt. Die Messwerte der radiologischen Analysen werden in Abschnitt 3.1, die Ergebnisse der chemischen Analysen werden in Abschnitt 3.2 dokumentiert.

3.1. Messergebnisse zu Aktivitätskonzentrationen

Bei den Laboranalysen wurden messtechnisch große Anstrengungen unternommen, um die geforderten sehr niedrigen Erkennungsgrenzen zu erreichen.

Zur vollständigen Darstellung der Ergebnisse von Kernstrahlungsmessungen werden verschiedene Parameterwerte zur Quantifizierung von Messunsicherheiten angegeben, die zunächst kurz erläutert werden (zu weiterführenden Grundlagen sei auf [6] verwiesen). Die Parameter beziehen sich immer auf ein bestimmtes Radionuklid.

Die **Erkennungsgrenze (EKG)** ist definiert als der kritische Wert eines statistischen Tests der Nullhypothese "Aktivität des analysierten Radionuklids in der Probe ist gleich Null". Wenn der Messwert größer als die EKG ist, wird die Nullhypothese verworfen. Dabei kann ein Fehler 1. Art (Nullhypothese wird fälschlich verworfen) zur vorgegebenen Irrtumswahrscheinlichkeit² auftreten.

Die **Nachweisgrenze (NWG)** ist über die Irrtumswahrscheinlichkeit für den Fehler 2. Art definiert, bei dem die Nullhypothese fälschlich angenommen wird (es wird keine Aktivität nachgewiesen, obwohl in Wahrheit eine Aktivität des analysierten Radionuklids vorliegt).

Wenn der Messwert über der NWG liegt, kann mit großer Sicherheit davon ausgegangen werden, dass die Nullhypothese nicht gerechtfertigt ist und eine Aktivität des analysierten Radionuklids vorliegt. In diesem Fall wird durch untere und obere Vertrauensgrenzen ein **Vertrauensbereich** charakterisiert, der den wahren Wert der Messgröße bei vorgegebener Irrtumswahrscheinlichkeit einschließt. Vereinfacht wird angenommen, dass die Messunsicherheit durch eine Normalverteilung mit der Standardunsicherheit σ beschrieben werden kann. Der wahre Wert der Messgröße liegt dann für die mit 0,05 angesetzte Irrtumswahrscheinlichkeit im Vertrauensbereich "Messwert $\pm 2 \cdot \sigma$ ".

Die Erkennungsgrenze einer Messung charakterisiert somit jene Schwelle, unter der eine eventuell vorhandene geringe Aktivität nicht erkannt wird. Die Nachweisgrenze ist dagegen jene Grenze, über der die Messwerte mit hoher Sicherheit einer real vorhandenen Aktivität entsprechen. Die Unsicherheit der Messung dieser Aktivität wird durch den Vertrauensbereich charakterisiert.

Für die radiologischen Messwerte sind in den Tabellen 3-1 bis 3-8 sowohl EKG als auch NWG angegeben. Fälle mit Messwerten "< EKG" bzw. "< NWG" (aber größer EKG) sind durch ein "x" in der entsprechenden Spalte gekennzeichnet. Im letztgenannten Fall ist informativ der Messwert aufgeführt, der eine Tendenz bzgl. der Nullhypothese oder einer nicht nachgewiesenen Aktivität zum Ausdruck bringt, jedoch nicht weiter interpretiert wird. Der Vertrauensbereich für Messwerte über der NWG ist durch den Wert von $2 \cdot \sigma$ charakterisiert.

² Für alle statistischen Kenngrößen wurde einheitlich eine Irrtumswahrscheinlichkeit von 0,05 vorgegeben.

Tabelle 3-1: Radiologische Messwerte zum Messpunkt **MP_L2**, Probe **L2-09.12.10**; in Bq/l

Messpunkt	Sohle	Beschreibung				Datum	Zeit	ρ [g/cm ³]	T [°C]
MP_L2	750 m	Sohlenschlitz westlich ELK 4				09.12.10	10:45	1,243	31,3
Probe: L2-09.12.10									
Nuklid	Methode	EKG	NWG	< EKG	< NWG	Wert	2· σ	Labor	
H-3	Beta-LSC	700	1400			2,81E+06	2,94E+05	IAF	
C-14 _{gesamt}	Beta-LSC	0,3	0,5			1050	110	URA	
C-14 _{anorg.}	Beta-LSC	0,04	0,07			3,8	0,4	URA	
K-40	Gamma	0,5	1,0			450	31	IAF	
Co-60	Gamma	0,2	0,4	x				IAF	
Sr-90	Beta-LSC	0,03	0,06	x				VKTA	
Nb-94	Gamma	0,2	0,4	x				IAF	
Tc-99	Beta-LSC	0,05	0,1	x				VKTA	
Ag-108m	Gamma	0,3	0,6	x				IAF	
Sb-125	Gamma	0,4	0,8	x				IAF	
I-129	Gamma	1,5	3,0	x				IAF	
Cs-137	Gamma	0,3	0,6			830	47	IAF	
Ba-133	Gamma	0,3	0,6	x				IAF	
Eu-152	Gamma	1	2	x				IAF	
Eu-154	Gamma	1	2	x				IAF	
Po-210	Alpha	0,002	0,004			0,014	0,004	IAF	
Pb-210	LL-Beta	0,02	0,04			0,15	0,03	IAF	
Ra-226	Gamma ^{*)}	0,01	0,02		x	0,015		IAF	
Ra-228	Gamma ^{*)}	0,015	0,03		x	0,020		IAF	
Th-232	ICP-MS ^{*)}		2E-5			3,1E-3	5,6E-4	VKTA	
U-233/234	Alpha	0,002	0,004			0,080	0,015	IAF	
U-235	Alpha	0,002	0,004	x				IAF	
U-236	Alpha	0,002	0,004	x				IAF	
U-238	Alpha	0,002	0,004			0,038	0,009	IAF	
U-238	ICP-MS ^{*)}		6,2E-5			0,100	0,011	VKTA	
Pu-238	Alpha	0,0007	0,0011			0,012	0,002	URA	
Pu-239/240	Alpha	0,0008	0,0012			0,007	0,002	URA	
Am-241	Alpha	0,002	0,003			0,004	0,002	URA	
Am-241	Gamma	0,4	0,8	x				IAF	

^{*)} nach Fällung; ^{*)} Umrechnung anhand der Messwerte zur (Massen-)Konzentration aus Tabelle 3-9

Tabelle 3-2: Radiologische Messwerte zum Messpunkt **MP_L2**, Probe **L2-R-13.09.10**; in Bq/l

Messpunkt	Sohle	Beschreibung				Datum	Zeit	ρ [g/cm ³]	T [°C]
MP_L2	750 m	Sohlenschlitz westlich ELK 4				13.09.10	08:00	1,243	31,3
Probe: L2-R-13.09.10									
Nuklid	Methode	EKG	NWG	< EKG	< NWG	Wert	2· σ	Labor	
H-3	Beta-LSC	700	1400			2,76E+06	2,86E+05	IAF	
C-14 _{gesamt}	Beta-LSC							n. b.	
C-14 _{anorg.}	Beta-LSC							n. b.	
K-40	Gamma	0,5	1,0			426	30	IAF	
Co-60	Gamma	0,2	0,4	x				IAF	
Sr-90	Beta-LSC							n. b.	
Nb-94	Gamma	0,2	0,4	x				IAF	
Tc-99	Beta-LSC							n. b.	
Ag-108m	Gamma	0,3	0,6	x				IAF	
Sb-125	Gamma	0,4	0,8	x				IAF	
I-129	Gamma	1,4	2,8	x				IAF	
Cs-137	Gamma	0,3	0,6			793	46	IAF	
Ba-133	Gamma	0,3	0,6	x				IAF	
Eu-152	Gamma	0,8	1,6	x				IAF	
Eu-154	Gamma	0,8	1,6	x				IAF	
Po-210	Alpha	0,002	0,004			0,020	0,005	IAF	
Pb-210	LL-Beta	0,02	0,04			0,20	0,03	IAF	
Ra-226	Gamma ^{*)}							n. b.	
Ra-228	Gamma ^{*)}							n. b.	
Th-232	ICP-MS							n. b.	
U-233/234	Alpha	0,002	0,004			0,103	0,028	IAF	
U-235	Alpha	0,002	0,004		x	0,003		IAF	
U-236	Alpha	0,002	0,004	x				IAF	
U-238	Alpha	0,002	0,004			0,053	0,015	IAF	
U-238	ICP-MS							n. b.	
Pu-238	Alpha							n. b.	
Pu-239/240	Alpha							n. b.	
Am-241	Alpha							n. b.	
Am-241	Gamma	0,4	0,8	x				IAF	

^{*)} nach Fällung

Tabelle 3-3: Radiologische Messwerte zum Messpunkt **MP_L3**, Probe **L3-09.12.10**; in Bq/l

Messpunkt	Sohle	Beschreibung				Datum	Zeit	ρ [g/cm ³]	T [°C]
MP_L3	750 m	Sohlenschlitz östlich ELK 8				09.12.10	10:55	1,257	31,9
Probe: L3-09.12.10									
Nuklid	Methode	EKG	NWG	< EKG	< NWG	Wert	2· σ	Labor	
H-3	Beta-LSC	700	1400			2,26E+06	2,36E+05	IAF	
C-14 _{gesamt}	Beta-LSC	0,08	0,13			75	8	URA	
C-14 _{anorg.}	Beta-LSC	0,05	0,08			23	2	URA	
K-40	Gamma	0,5	1,0			520	31	IAF	
Co-60	Gamma	0,2	0,4	x				IAF	
Sr-90	Beta-LSC	0,03	0,06	x				VKTA	
Nb-94	Gamma	0,2	0,4	x				IAF	
Tc-99	Beta-LSC	0,04	0,08	x				VKTA	
Ag-108m	Gamma	0,3	0,6	x				IAF	
Sb-125	Gamma	0,4	0,8	x				IAF	
I-129	Gamma	1,5	3,0	x				IAF	
Cs-137	Gamma	0,3	0,6			4980	380	IAF	
Ba-133	Gamma	0,3	0,6	x				IAF	
Eu-152	Gamma	0,9	1,8	x				IAF	
Eu-154	Gamma	0,9	1,8	x				IAF	
Po-210	Alpha	0,01	0,02			0,26	0,05	IAF	
Pb-210	LL-Beta	0,10	0,20			0,82	0,12	IAF	
Ra-226	Gamma ^{*)}	0,01	0,02	x				IAF	
Ra-228	Gamma ^{*)}	0,015	0,03	x				IAF	
Th-232	ICP-MS ^{†)}		2E-5			1,1E-3	1,4E-4	VKTA	
U-233/234	Alpha	0,002	0,004			0,051	0,010	IAF	
U-235	Alpha	0,002	0,004		x	0,002		IAF	
U-236	Alpha	0,002	0,004	x				IAF	
U-238	Alpha	0,002	0,004			0,078	0,011	IAF	
U-238	ICP-MS ^{†)}		6,2E-5			0,091	0,011	VKTA	
Pu-238	Alpha	0,0005	0,0007			0,002	0,001	URA	
Pu-239/240	Alpha	0,0005	0,0007			0,009	0,001	URA	
Am-241	Alpha	0,002	0,003			0,006	0,002	URA	
Am-241	Gamma	0,4	0,8	x				IAF	

^{*)} nach Fällung; ^{†)} Umrechnung anhand der Messwerte zur (Massen-)Konzentration aus Tabelle 3-9

Tabelle 3-4: Radiologische Messwerte zum Messpunkt **MP_L3**, Probe **L3-R1-06.09.10**; in Bq/l

Messpunkt	Sohle	Beschreibung				Datum	Zeit	ρ [g/cm ³]	T [°C]
MP_L3	750 m	Sohlenschlitz östlich ELK 8				06.09.10	n. b.	1,257	31,9
Probe: L3-R1-06.09.10									
Nuklid	Methode	EKG	NWG	< EKG	< NWG	Wert	2· σ	Labor	
H-3	Beta-LSC	700	1400			2,34E+06	2,44E+05	IAF	
C-14 _{gesamt}	Beta-LSC							n. b.	
C-14 _{anorg.}	Beta-LSC							n. b.	
K-40	Gamma	0,5	1,0			515	31	IAF	
Co-60	Gamma	0,2	0,4	x				IAF	
Sr-90	Beta-LSC							n. b.	
Nb-94	Gamma	0,2	0,4	x				IAF	
Tc-99	Beta-LSC							n. b.	
Ag-108m	Gamma	0,2	0,4	x				IAF	
Sb-125	Gamma	0,3	0,6	x				IAF	
I-129	Gamma	1,3	2,6	x				IAF	
Cs-137	Gamma	0,3	0,6			2410	150	IAF	
Ba-133	Gamma	0,3	0,6	x				IAF	
Eu-152	Gamma	1	2	x				IAF	
Eu-154	Gamma	1	2	x				IAF	
Po-210	Alpha	0,01	0,02			0,46	0,10	IAF	
Pb-210	LL-Beta	0,12	0,24			1,64	0,27	IAF	
Ra-226	Gamma ^{*)}							n. b.	
Ra-228	Gamma ^{*)}							n. b.	
Th-232	ICP-MS							n. b.	
U-233/234	Alpha	0,002	0,004			0,065	0,010	IAF	
U-235	Alpha	0,002	0,004		x	0,003		IAF	
U-236	Alpha	0,002	0,004	x				IAF	
U-238	Alpha	0,002	0,004			0,116	0,015	IAF	
U-238	ICP-MS							n. b.	
Pu-238	Alpha							n. b.	
Pu-239/240	Alpha							n. b.	
Am-241	Alpha							n. b.	
Am-241	Gamma	0,4	0,8	x				IAF	

^{*)} nach Fällung

Tabelle 3-5: Radiologische Messwerte zum Messpunkt **MP_L3**, Probe **L3-R2-28.09.10**; in Bq/l

Messpunkt	Sohle	Beschreibung				Datum	Zeit	ρ [g/cm ³]	T [°C]
MP_L3	750 m	Sohlenschlitz östlich ELK 8				28.09.10	n. b.	1,253	31,3
Probe: L3-R2-28.09.10									
Nuklid	Methode	EKG	NWG	< EKG	< NWG	Wert	2· σ	Labor	
H-3	Beta-LSC	700	1400			2,17E+06	2,26E+05	IAF	
C-14 _{gesamt}	Beta-LSC							n. b.	
C-14 _{anorg.}	Beta-LSC							n. b.	
K-40	Gamma	0,5	1,0			504	29	IAF	
Co-60	Gamma	0,2	0,4	x				IAF	
Sr-90	Beta-LSC							n. b.	
Nb-94	Gamma	0,2	0,4	x				IAF	
Tc-99	Beta-LSC							n. b.	
Ag-108m	Gamma	0,2	0,4	x				IAF	
Sb-125	Gamma	0,3	0,6	x				IAF	
I-129	Gamma	1,3	2,6	x				IAF	
Cs-137	Gamma	0,3	0,6			2740	160	IAF	
Ba-133	Gamma	0,3	0,6	x				IAF	
Eu-152	Gamma	1	2	x				IAF	
Eu-154	Gamma	1	2	x				IAF	
Po-210	Alpha	0,01	0,02			0,60	0,06	IAF	
Pb-210	LL-Beta	0,10	0,20			1,28	0,16	IAF	
Ra-226	Gamma ^{*)}							n. b.	
Ra-228	Gamma ^{*)}							n. b.	
Th-232	ICP-MS							n. b.	
U-233/234	Alpha	0,002	0,004			0,035	0,006	IAF	
U-235	Alpha	0,002	0,004	x				IAF	
U-236	Alpha	0,002	0,004	x				IAF	
U-238	Alpha	0,002	0,004			0,063	0,011	IAF	
U-238	ICP-MS							n. b.	
Pu-238	Alpha							n. b.	
Pu-239/240	Alpha							n. b.	
Am-241	Alpha							n. b.	
Am-241	Gamma	0,4	0,8	x				IAF	

^{*)} nach Fällung

Tabelle 3-6: Radiologische Messwerte zum Messpunkt **MP_L4**, Probe **L4-09.12.10**; in Bq/l

Messpunkt	Sohle	Beschreibung				Datum	Zeit	ρ [g/cm ³]	T [°C]
MP_L4	750 m	Sohlenschlitz westlich ELK 8				09.12.10	11:05	1,292	32,1
Probe: L4-09.12.10									
Nuklid	Methode	EKG	NWG	< EKG	< NWG	Wert	2· σ	Labor	
H-3	Beta-LSC	700	1400			3,19E+06	3,33E+05	IAF	
C-14 _{gesamt}	Beta-LSC	0,05	0,08			13	1	URA	
C-14 _{anorg.}	Beta-LSC	0,04	0,07	x				URA	
K-40	Gamma	0,5	1,0			610	39	IAF	
Co-60	Gamma	0,2	0,4	x				IAF	
Sr-90	Beta-LSC	0,03	0,05	x				VKTA	
Nb-94	Gamma	0,1	0,2	x				IAF	
Tc-99	Beta-LSC	0,04	0,08			0,28	0,12	VKTA	
Ag-108m	Gamma	0,2	0,4	x				IAF	
Sb-125	Gamma	0,3	0,6	x				IAF	
I-129	Gamma	1,3	2,6	x				IAF	
Cs-137	Gamma	0,3	0,6			1240	78	IAF	
Ba-133	Gamma	0,3	0,6	x				IAF	
Eu-152	Gamma	1	2	x				IAF	
Eu-154	Gamma	1	2	x				IAF	
Po-210	Alpha	0,02	0,04			2,38	0,44	IAF	
Pb-210	LL-Beta	0,20	0,40			10,6	0,6	IAF	
Ra-226	Gamma ^{*)}	0,01	0,02	x				IAF	
Ra-228	Gamma ^{*)}	0,015	0,03	x				IAF	
Th-232	ICP-MS ^{*)}		2E-5			3,3E-3	3,6E-4	VKTA	
U-233/234	Alpha	0,002	0,004			0,080	0,011	IAF	
U-235	Alpha	0,002	0,004		x	0,004		IAF	
U-236	Alpha	0,002	0,004	x				IAF	
U-238	Alpha	0,002	0,004			0,074	0,011	IAF	
U-238	ICP-MS ^{*)}		6,2E-5			0,121	0,013	VKTA	
Pu-238	Alpha	0,0004	0,0007			0,003	0,001	URA	
Pu-239/240	Alpha	0,0005	0,0007			0,008	0,001	URA	
Am-241	Alpha	0,0009	0,0014	x				URA	
Am-241	Gamma	0,4	0,8	x				IAF	

^{*)} nach Fällung; ^{*)} Umrechnung anhand der Messwerte zur (Massen-)Konzentration aus Tabelle 3-9

Tabelle 3-7: Radiologische Messwerte zum Messpunkt **MP_L4**, Probe **L4-R-12.10.10**; in Bq/l

Messpunkt	Sohle	Beschreibung				Datum	Zeit	ρ [g/cm ³]	T [°C]
MP_L4	750 m	Sohlenschlitz westlich ELK 8				12.10.10	08:30	1,307	31,6
Probe: L4-R-12.10.10									
Nuklid	Methode	EKG	NWG	< EKG	< NWG	Wert	2· σ	Labor	
H-3	Beta-LSC	700	1400			3,02E+06	3,16E+05	IAF	
C-14 _{gesamt}	Beta-LSC							n. b.	
C-14 _{anorg.}	Beta-LSC							n. b.	
K-40	Gamma	0,5	1,0			605	34	IAF	
Co-60	Gamma	0,2	0,4	x				IAF	
Sr-90	Beta-LSC							n. b.	
Nb-94	Gamma	0,1	0,2	x				IAF	
Tc-99	Beta-LSC							n. b.	
Ag-108m	Gamma	0,2	0,3	x				IAF	
Sb-125	Gamma	0,3	0,6	x				IAF	
I-129	Gamma	1,3	2,6	x				IAF	
Cs-137	Gamma	0,3	0,6			948	52	IAF	
Ba-133	Gamma	0,3	0,6	x				IAF	
Eu-152	Gamma	0,8	1,6	x				IAF	
Eu-154	Gamma	0,8	1,6	x				IAF	
Po-210	Alpha	0,02	0,04			4,59	0,65	IAF	
Pb-210	LL-Beta	0,15	0,30			10,6	0,6	IAF	
Ra-226	Gamma ^{*)}							n. b.	
Ra-228	Gamma ^{*)}							n. b.	
Th-232	ICP-MS							n. b.	
U-233/234	Alpha	0,002	0,004			0,086	0,012	IAF	
U-235	Alpha	0,002	0,004		x	0,004		IAF	
U-236	Alpha	0,002	0,004	x				IAF	
U-238	Alpha	0,002	0,004			0,082	0,011	IAF	
U-238	ICP-MS							n. b.	
Pu-238	Alpha							n. b.	
Pu-239/240	Alpha							n. b.	
Am-241	Alpha							n. b.	
Am-241	Gamma	0,4	0,8	x				IAF	

^{*)} nach Fällung

Tabelle 3-8: Radiologische Messwerte zum Messpunkt **MP_21**, Probe **L21-09.12.10**; in Bq/l

Messpunkt	Sohle	Beschreibung				Datum	Zeit	ρ [g/cm ³]	T [°C]
MP_21	750 m	Laugestelle vor ELK 12				09.12.10	11:30	1,36	30,4
Probe: L21-09.12.10									
Nuklid	Methode	EKG	NWG	< EKG	< NWG	Wert	2- σ	Labor	
H-3	Beta-LSC	700	1400			1,35E+06	1,41E+05	IAF	
C-14 _{gesamt}	Beta-LSC	0,05	0,07			9	1	URA	
C-14 _{anorg.}	Beta-LSC	0,04	0,07			0,6	0,2	URA	
K-40	Gamma	1	2			27	3	IAF	
Co-60	Gamma	0,3	0,6			5,0	0,5	IAF	
Sr-90	Beta-LSC	0,02	0,04			0,16	0,06	VKTA	
Nb-94	Gamma	0,8	1,6	x				IAF	
Tc-99	Beta-LSC	0,04	0,08			5,1	2,1	VKTA	
Ag-108m	Gamma	1,5	3,0	x				IAF	
Sb-125	Gamma	17	35	x				IAF	
I-129	Gamma	14	28	x				IAF	
Cs-137	Gamma	8	16			24020	1500	IAF	
Ba-133	Gamma	8	16	x				IAF	
Eu-152	Gamma	7	14	x				IAF	
Eu-154	Gamma	7	14	x				IAF	
Po-210	Alpha	0,01	0,02			6,76	0,83	IAF	
Pb-210	LL-Beta	0,20	0,40			10,8	0,6	IAF	
Ra-226	Gamma ^{*)}	0,02	0,04	x				IAF	
Ra-228	Gamma ^{*)}	0,03	0,06	x				IAF	
Th-232	ICP-MS ^{*)}		2E-5			7,5E-3	9,0E-4	VKTA	
U-233/234	Alpha	0,013	0,026		x	0,016		IAF	
U-235	Alpha	0,013	0,026	x				IAF	
U-236	Alpha	0,013	0,026	x				IAF	
U-238	Alpha	0,013	0,026		x	0,016		IAF	
U-238	ICP-MS ^{*)}		6,2E-5			0,073	0,008	VKTA	
Pu-238	Alpha	0,0004	0,0006			0,002	0,001	URA	
Pu-239/240	Alpha	0,0010	0,0016			0,006	0,002	URA	
Am-241	Alpha	0,0009	0,0013			0,003	0,002	URA	
Am-241	Gamma	4	8	x				IAF	

^{*)} nach Fällung; ^{*)} Umrechnung anhand der Messwerte zur (Massen-)Konzentration aus Tabelle 3-9

Anmerkung: Die im Vergleich zu den anderen Proben relativ hohen EKG und NWG der α -spektrometrischen Messung der Aktivitätskonzentration der Uranisotope resultierten bei dieser Probe aus einer geringen Ausbeute der radiochemischen Probenaufbereitung (Ionenaustauschprozess, kontrolliert durch Tracer U-232).

Die Tabellen 3-1, 3-3, 3-6 und 3-8 enthalten auch Angaben zur Aktivitätskonzentration für Th-232 und U-238, die aus den Ergebnissen der mittels ICP-MS für die am 09.12.2010 entnommenen Proben bestimmten (Massen-)Konzentrationen berechnet wurden. Die Anwendung der ICP-MS für gesättigte Salzlösungen verlangt eine sehr starke Verdünnung der Proben (Faktor von ca. 1: 100), wonach trotzdem durch den Salzgehalt bedingte methodische Probleme bestehen:

- Signalsuppression durch hohen Energieverbrauch der Ionisation der Matrixelemente Na, Mg, K;
- geringes Verhältnis von Analyt- zu Blindwertsignal bei zu hoher Verdünnung der Probe.

Diese Probleme könnten für die Abweichungen von den Ergebnissen der α -spektrometrischen Messung der U-238-Aktivitätskonzentration verantwortlich sein. Während für die Messpunkte MP_L3 und MP_L4 mit Relationen der ICP-MS-Werte zu den α -spektrometrischen Messwerten von ca. 1,2 bzw. 1,6 eine relativ gute Übereinstimmung vorliegt, weisen die Relationen für die Messpunkte MP_L2 und MP_21 mit Werten von ca. 2,6 bzw. 4,6 auf erhebliche systematische Messunsicherheiten hin. Für die Auswertung der radiologischen Messwerte in Kapitel 4 werden ausschließlich die α -spektrometrischen Messergebnisse herangezogen. Wir halten jedoch genauere methodische Untersuchungen von systematischen Messunsicherheiten besonders für U-238 für wichtig und empfehlen deshalb die Durchführung von Vergleichsmessungen anhand künstlich hergestellter Salzlösungen mit unterschiedlichen Salz- und Urankonzentrationen.

3.2. Messergebnisse zur chemischen Zusammensetzung

Die am 09.12.2010 von den vier Messpunkten MP_L2, MP_L3, MP_L4 und MP_21 entnommenen Proben kontaminierter Salzlösung wurden durch VKTA chemisch analysiert. Der Untersuchungsumfang umfasste gemäß Beprobungs- und Messprogramm (siehe Tabelle 2-1) allgemeine physikochemische Parameter wie pH-Wert und elektrische Leitfähigkeit, die makrochemische Analyse der Gehalte der Kationen (Na, K, Mg, Ca, Mn, Fe) und Anionen (Hydrogenkarbonat, Karbonat, Chlorid, Sulfat, Bromid, Iodid, Fluorid, Phosphat, Nitrat, und Nitrit) sowie die Bestimmung der Gehalte ausgewählter Spurenelemente (Zn, Co, Sr, Ba, Pb, U, Th). Die Ergebnisse der durchgeführten chemischen Analysen der Salzlösungsproben sind in Tabelle 3-9 aufgeführt.

Im Vergleich zu den früheren Messkampagnen sind die Nachweisgrenzen der verwendeten Analyseverfahren i. d. R. deutlich niedriger und die relativen Analysefehler geringer. Die relative Abweichung in der Ionenbilanz (ΔI) der durchgeführten makrochemischen Analysen der Salzlösungen wurde nach der Formel ermittelt:

$$\Delta I = \frac{100 \cdot (\Sigma \text{Kationen}(eq) - \Sigma \text{Anionen}(eq))}{0,5 \cdot (\Sigma \text{Kationen}(eq) + \Sigma \text{Anionen}(eq))}$$

Trotz der hohen gelösten Stoffkonzentrationen (Salinität) der untersuchten Proben liegt die relative Abweichung der Ionenbilanz deutlich unter $\pm 10 \%$.

Die makrochemische Charakteristik der untersuchten Messpunkte entspricht (trotz einiger Abweichungen in den Absolutkonzentrationen; u. a. Anstieg der Mg- und Cl-Konzentration und des Gesamtgehalts der gelösten Inhaltsstoffe am Messpunkt MP_21 um ca. 30 %) weitgehend derjenigen, die in 2008 und 2009 für die entsprechenden Messpunkte ermittelt wurde.

So wird der Lösungsinhalt der an MP_L3, MP_L4 und MP_21 beprobten Salzlösungen i. W. von Mg und Cl dominiert (Anteil an der Kationen- bzw. Anionenäquivalentsumme i. d. R. jeweils größer 85 %). Lediglich die Probe MP_L2 (Sohlenschlitz westl. Kammer 4) weist deutlich höhere Anteile an Na auf (ca. 45 % der Kationenäquivalentsumme). In dieser Probe tritt auch der höchste Sulfatan- teil auf (ca. 15 % der Anionenäquivalentsumme). Bei MP_L3 ist bei relativ konstanter Gesamtmi- neralisation ein Anstieg des Anteils an Na an der Kationenäquivalentsumme von 4,3 % in 2008 auf 20 % in 2010 bei korrespondierender Abnahme der Mg-Äquivalentkonzentration zu beobachten. Zudem erfolgte im Vergleichszeitraum ein - allerdings weniger ausgeprägter - Anstieg des Sulfatan- teils an der Anionensumme.

Tabelle 3-9: Ergebnisse der chemischen Analysen der Salzlösungen

Parameter	Einheit	NWG	MP_L2	MP_L3	MP_L4	MP_21	Var _{max} ^{*)}
pH	-		6,61	6,31	5,72	4,71	
Leitfähigkeit	µS/cm		187.000	158.000	128.000	62.000	
Dichte (23°C)	g/cm ³		1,24	1,26	1,30	1,36	
Na	mg/l	1	68.300	34.100	13.400	1.750	7,5 %
K	mg/l	1	14.500	17.100	19.600	816	7,5 %
Ca	mg/l	1	190	142	23,2	11,8	7,5 %
Mg	mg/l	1	38.100	64.600	89.300	131.000	7,5 %
Fe	mg/l	5E-4	0,33	0,14	0,18	0,49	6,0 %
Mn	mg/l	5E-5	4,46	15,5	91	40	5,5 %
Cl	mg/l	0,3	188.000	210.000	253.000	363.000	1,5 %
Br	mg/l	2	2.290	2.960	3.230	5.900	4,6 %
SO ₄	mg/l	3	44.700	38.400	40.700	29.600	6,4 %
I	mg/l	5	<5	<5	<5	<5	-
NO ₃	mg/l	0,02	203	120	438	790	11,3 %
NO ₂	mg/l	0,01	0,53	0,37	0,41	0,09	10,0 %
o PO ₄	mg/l	0,01	1,31	2,37	1,23	4,19	7,5 %
F	mg/l	5	<5	<5	<5	<5	-
HCO ₃	mg/l	5	357	335	431	407	1,4 %
CO ₃	mg/l	1	< 1	< 1	< 1	< 1	-
ΔI	-		+ 3,4 %	+ 6,8 %	+ 4,8 %	- 0,6 %	
Co	µg/l	0,01	43,3	22,2	94,9	50,1	6,6 %
Zn	µg/l	1	62.700	101.000	179.000	75.200	5,5 %
Sr	µg/l	0,002	6.340	199	20,8	497	5,2 %
Ba	µg/l	0,5	210	7,55	182	144	5,5 %
Pb	µg/l	0,05	7,77	178	6.510	1.550	5,6 %
Th	µg/l	0,005	0,75	0,27	0,82	1,84	9,2 %
U	µg/l	0,005	8,05	7,34	9,73	5,91	6,2 %

^{*)} Zur Charakterisierung der Messunsicherheit wird hier der Variationskoeffizient (Relation der Standardabweichung zum Messwert) verwendet. Angegeben ist der maximale Variationskoeffizient (in Prozent) für die vier Proben.

4. AUSWERTUNG DER RADIOLOGISCHEN MESSERGEBNISSE

Zur Auswertung der in Abschnitt 3.1 aufgeführten radiologischen Messergebnisse für die acht im Rahmen der aktuellen Untersuchung analysierten Proben enthält der Abschnitt 4.1 einige generelle Anmerkungen. Davon ausgehend werden Vergleiche mit Daten aus den in 2008 und 2009 erfolgten Beprobungen auf die in den Salzlösungen identifizierten künstlichen und natürlichen Radionuklide beschränkt. Entsprechende Vergleiche enthält der Abschnitt 4.2. für künstliche und Abschnitt 4.3 für natürliche Radionuklide.

4.1. Generelle Anmerkungen zu den aktuellen radiologischen Daten

Für die am 09.12.2010 an den Messpunkten MP_L2, MP_L3, MP_L4 und MP_21 entnommenen vier Salzlösungsproben wurden Aktivitätskonzentrationen für 26 künstliche bzw. natürliche Radionuklide (oder Nuklidpaare) bestimmt. Für die von der Asse-GmbH bereitgestellten vier Rückstellproben konnten nur 18 Radionuklide (oder Nuklidpaare) analysiert werden. Die hierzu verfügbaren Probenmengen von ca. 1 Liter waren nicht ausreichend, um Aliquote für die Analyse von C-14, Sr-90, Tc-99, Ra-226 und Ra-228 (nach Fällung), Th-232 (mit ICP-MS), Pu-238 und Pu-239/240 abzuzweigen (betrifft auch die ICP-MS von U-238 und die α -spektrometrische Am-241-Analyse).

Bei α -spektrometrischen Messungen kann nicht zwischen den Emissionen der Radionuklide U-233 und U-234 sowie der Radionuklide Pu-239 und Pu-240 unterschieden werden. Für diese beiden Nuklidpaare sind in den Tabellen 3-1 bis 3-8 Summenaktivitätskonzentrationen angegeben. Bzgl. der beiden Uranisotope kann jedoch mit hoher Wahrscheinlichkeit davon ausgegangen werden, dass der jeweilige Wert zumindest maßgeblich dem natürlichen Radionuklid U-234 zuzuschreiben ist.

Zu C-14 wurden jeweils Gesamtaktivitätskonzentrationen sowie deren anorganische Anteile bestimmt. Entsprechende Untersuchungen wurden für einige Messpunkte auch für die in 2008 entnommenen Proben durchgeführt. Eine Bewertung dieser Ergebnisse erfolgt in Abschnitt 4.2.2.

Zu Th-232 und U-238 enthalten die Tabelle 3-1 bis 3-8 auch Angaben zur Aktivitätskonzentration, die aus den mittels ICP-MS bestimmten Massenkonzentrationen berechnet wurden. Wie bereits in Abschnitt 3.1 vermerkt, werden nachfolgend zur Auswertung radiologischer Messergebnisse nur die Ergebnisse der α -spektrometrischen Analyse der U-238-Aktivitätskonzentration herangezogen.

Für einige künstliche Radionuklide ergaben die Messungen für alle 8 untersuchten Salzlösungsproben nur die Aussage "Aktivitätskonzentration $C_i < EKG_i$ ". Es handelt es sich hierbei um die gleichen acht Radionuklide, für die auch in den Salzlösungsproben aus den Jahren 2008 und 2009 keine Überschreitung der jeweiligen Erkennungsgrenzen festgestellt wurde (siehe [4], [5]):

Nb-94, Ag-108m, Sb-125, I-129, Ba-133, Eu-152, Eu-154, U-236.

Für diese 8 Radionuklide erübrigt sich folglich eine weitere Diskussion der aktuellen Messergebnisse. Es sei dazu lediglich noch angemerkt, dass ähnlich kleine EKG wie in den vorangegangenen Jahren erreicht wurden.

Die höchsten Aktivitätskonzentrationen wurden, wie schon in den beiden früheren Messkampagnen, für **H-3** und **Cs-137** festgestellt (mit Werten im Bereich von ca. 1 bis 3 MBq/l für H-3 bzw. von ca.

1 bis 24 kBq/l für Cs-137). Relativ hohe Aktivitätskonzentrationen wurden teilweise auch für **C-14** bestimmt. Eine Diskussion dieser Messergebnisse erfolgt in den Abschnitten 4.2.1, 4.2.2 und 4.2.6.

Mit Messwerten über der jeweiligen Erkennungsgrenze wurden auch die folgenden künstlichen Radionuklide in Salzlösungsproben aus der Nähe von LAW-Kammern identifiziert:

Co-60, Sr-90, Tc-99, Pu-238, Pu-239/240 und Am-241.

Co-60 und Sr-90 wurden nur am Messpunkt MP_21 (Konzentration von 5,0 Bq/l bzw. 0,16 Bq/l) festgestellt. Tc-99 wurde an den Messpunkten MP_L4 und MP_21 identifiziert (Konzentration von 0,28 Bq/l bzw. 5,1 Bq/l). Die Messergebnisse zu diesen drei Radionukliden können den Abschnitten 4.2.3, 4.2.4 und 4.2.5 entnommen werden.

Die Nuklide Pu-238, Pu-239/240 und Am-241 wurden α -spektrometrisch durch URA bestimmt. Es wurden sehr niedrige Nachweisgrenzen erreicht. Geringe Aktivitäten dieser Nuklide wurden mit der aktuellen Beprobung mit Ausnahme von Am-241 am Messpunkt MP_L4 für alle vier Proben identifiziert. Ein Vergleich mit den früheren Messergebnissen erfolgt in den Abschnitten 4.2.7 und 4.2.8.

Zur Auswertung der Messergebnisse für die 9 untersuchten natürlichen Radionuklide sei vorab angemerkt dass **Th-232** nur mittels ICP-MS analysiert wurde und nachfolgend nicht betrachtet wird (die ermittelten Th-232-Aktivitätskonzentrationen sind mit Werten zwischen 1 und 8 mBq/l gering). Für **Ra-226** und **Ra-228** (γ -Spektrometrie nach Fällung) sowie für **U-235** (α -Spektrometrie) resultierten, wie bereits bei der Beprobung 2009, keine Aktivitätskonzentrationen über der EKG bzw. NWG. Deshalb werden die Messergebnisse für diese drei Radionuklide nicht weiter diskutiert.

Die Messergebnisse für **Pb-210** (LL-Beta) und **Po-210** (α -Spektrometrie) werden zusammen in Abschnitt 4.3.1 mit den dbzgl. früheren Daten verglichen.

In Abschnitt 4.3.2 wird auf die mittels α -Spektrometrie bestimmten Aktivitätskonzentrationen von **U-238** und **U-234** eingegangen. Hierzu ist anzumerken, dass die α -spektrometrischen Messungen keine Unterscheidung zwischen der Aktivität des natürlichen Uranisotops U-234 und des künstlichen Uranisotops U-233 ermöglichen. Es erscheint uns jedoch gerechtfertigt, die Messwerte vollständig dem Uranisotop U-234 zuzuschreiben.

Auf die Messergebnisse zu **K-40** wird in Abschnitt 4.3.3 eingegangen. Neben dem Vergleich mit den früheren Ergebnissen der γ -spektrometrischen Bestimmung von K-40 erfolgt auch eine Gegenüberstellung mit den aus chemisch analysierten K-Konzentrationen berechneten K-40-Aktivitäten.

4.2. Vergleich mit Daten aus 2008 und 2009 für künstliche Radionuklide

Nachfolgend werden für die im Rahmen der aktuellen Untersuchung beprobten vier Messpunkte die Ergebnisse der radiologischen Analysen für die künstlichen Radionuklide H-3, C-14, Co-60, Sr-90, Tc-99, Cs-137, Pu-238, Pu-239/240 und Am-241 mit denen der Beprobungen in 2008 und 2009 verglichen. Bei vorliegenden Parallelmessungen werden beide Messwerte angegeben.

4.2.1. Messergebnisse für H-3

Die in Tabelle 4-1 vorgenommene Gegenüberstellung der Messwerte zur Aktivitätskonzentration von H-3 lässt keine signifikanten Veränderungen erkennen.

Tabelle 4-1: Messergebnisse zur Aktivitätskonzentration von H-3, in MBq/l

Probennahme	Labor	MP_L2	MP_L3	MP_L4	MP_21
29.08.2008	IAF		1,3 ± 0,2		1,9 ± 0,2
	VKTA	3,3 ± 0,7	1,5 ± 0,2	3,5 ± 0,7	2,1 ± 0,3
06./07.10.2009	IAF		2,0 ± 0,2		1,2 ± 0,1
	BfS	3,1 ± 0,5	2,5 ± 0,4	3,2 ± 0,5	1,4 ± 0,2
06.09.2010	IAF		2,3 ± 0,2		
13.09.2010	IAF	2,8 ± 0,3			
28.09.2010	IAF		2,2 ± 0,2		
12.10.2010	IAF			3,0 ± 0,3	
09.12.2010	IAF	2,8 ± 0,3	2,3 ± 0,2	3,2 ± 0,3	1,4 ± 0,1

4.2.2. Messergebnisse für C-14

Aus den Angaben von Tabelle 4-2 ist ersichtlich, dass die C-14-Aktivitätskonzentration am Messpunkt MP_L3 weiter signifikant ansteigt, wogegen für die anderen drei Messpunkte die diesjährigen Analysenwerte gut mit den Messergebnissen des Vorjahres übereinstimmen. Bemerkenswert sind die relativ geringen Anteile an anorganischem C-14, insbesondere für den Messpunkt MP_L2. Am Messpunkt MP_L3 wurde mit ca. 31 % ein gegenüber 2008 erhöhter Anteil des anorganisch gebundenen C-14 festgestellt; wogegen sich für MP_L4 und MP_21 geringere C-14_{anorg}-Anteile ergaben.

Tabelle 4-2: Messergebnisse zur Aktivitätskonzentration von C-14

Probennahme	Labor	MP_L2	MP_L3	MP_L4	MP_21
C-14_{gesamt} in Bq/l					
29.08.2008	URA	1070 ± 190	11,8 ± 2,1	6,3 ± 1,1	4,9 ± 0,9
06./07.10.2009	URA	1110 ± 195	29,9 ± 5,2	11,9 ± 2,1	8,9 ± 1,6
09.12.2010	URA	1050 ± 110	75 ± 8	13 ± 1	9 ± 1
C-14_{anorg.} in Bq/l					
29.08.2008	URA	1,1 ± 0,2	1,8 ± 0,3	0,2 ± 0,1	0,7 ± 0,1
06./07.10.2009	URA	n. b.	n. b.	n. b.	n. b.
09.12.2010	URA	3,8 ± 0,4	23 ± 2	< 0,04 ¹⁾	0,6 ± 0,2
C-14_{anorg.}/C-14_{gesamt}					
29.08.2008	URA	0,1 %	15 %	3,2 %	14 %
06./07.10.2009	URA	n. b.	n. b.	n. b.	n. b.
09.12.2010	URA	0,36 %	31 %	< 0,3 %	7 %

¹⁾ EKG

4.2.3. Messergebnisse für Co-60

Für Co-60 wurde, wie bereits in 2009, nur am Messpunkt MP_21 eine Aktivitätskonzentration nachgewiesen. Unter Beachtung der Messunsicherheiten ist aber keine signifikante Veränderung der Höhe der Co-60-Kontamination ersichtlich.

Tabelle 4-3: Messergebnisse zur Aktivitätskonzentration von Co-60, in Bq/l

Probennahme	Labor	MP_L2	MP_L3	MP_L4	MP_21
29.08.2008	IAF	< 0,21 ¹⁾	0,32 ± 0,09	< 0,4 ²⁾	
	VKTA				5,1 ± 0,6
06./07.10.2009	IAF	< 0,15 ¹⁾	< 0,19 ¹⁾	< 0,26 ¹⁾	4,1 ± 0,7
	BfS	< 0,05 ¹⁾	< 0,05 ¹⁾	< 0,05 ¹⁾	4,7 ± 0,7
06.09.2010	IAF		< 0,2 ¹⁾		
13.09.2010	IAF	< 0,2 ¹⁾			
28.09.2010	IAF		< 0,2 ¹⁾		
12.10.2010	IAF			< 0,2 ¹⁾	
09.12.2010	IAF	< 0,2 ¹⁾	< 0,2 ¹⁾	< 0,2 ¹⁾	5,0 ± 0,5

¹⁾ EKG, ²⁾ NWG

4.2.4. Messergebnisse für Sr-90

Die Messergebnisse für Sr-90 ähneln denen von 2009 (für MP_21 Kontamination nachgewiesen).

Tabelle 4-4: Messergebnisse zur Aktivitätskonzentration von Sr-90, in Bq/l

Probennahme	Labor	MP_L2	MP_L3	MP_L4	MP_21
29.08.2008	VKTA	0,10 ± 0,04	0,076 ± 0,046	0,037 ± 0,024	0,11 ± 0,04
	URA		~ 0,012 ²⁾		0,15 ± 0,10
06./07.10.2009	VKTA	< 0,024 ¹⁾	< 0,020 ¹⁾	< 0,023 ¹⁾	0,113 ± 0,054
09.12.2010	VKTA	< 0,03 ¹⁾	< 0,03 ¹⁾	< 0,03 ¹⁾	0,16 ± 0,06

¹⁾ EKG, ²⁾ NWG

4.2.5. Messergebnisse für Tc-99

Die Messergebnisse für Tc-99 ähneln denen von 2009 (Kontamination an MP_L4 und MP_21).

Tabelle 4-5: Messergebnisse zur Aktivitätskonzentration von Tc-99, in Bq/l

Probennahme	Labor	MP_L2	MP_L3	MP_L4	MP_21
29.08.2008	VKTA	< 0,6 ²⁾	1,36 ± 0,48	< 0,6 ²⁾	13,7 ± 4,2
	URA		0,337 ± 0,045		4,80 ± 0,19
06./07.10.2009	VKTA	< 0,02 ²⁾	0,039 ± 0,016	0,148 ± 0,044	8,4 ± 2,0
09.12.2010	VKTA	< 0,05 ¹⁾	< 0,04 ¹⁾	0,28 ± 0,12	5,1 ± 2,1

¹⁾ EKG, ²⁾ NWG

4.2.6. Messergebnisse für Cs-137

Für die beiden Messpunkte MP_L3 und MP_L4 (Sohlenschlitz östlich bzw. westlich der ELK 8) ist aktuell ein signifikanter Anstieg der Cs-137-Aktivitätskonzentration festzustellen. Für den MP_L2 deutet sich ein geringer Anstieg der Cs-137-Kontamination an, wogegen für den Laugensumpf vor der ELK 12 (MP_21) eine gewisse Verringerung der Cs-137-Kontamination festzustellen ist.

Tabelle 4-6: Messergebnisse zur Aktivitätskonzentration von **Cs-137, in kBq/l**

Probennahme	Labor	MP_L2	MP_L3	MP_L4	MP_21
29.08.2008	IAF	0,62 ± 0,04	0,06 ± 0,01	1,13 ± 0,08	54,0 ± 4,0
06./07.10.2009	IAF	0,63 ± 0,04	2,12 ± 0,13	0,15 ± 0,01	31,3 ± 2,0
	BfS	0,68 ± 0,03	2,17 ± 0,10	0,13 ± 0,01	28,0 ± 2,0
06.09.2010	IAF		2,41 ± 0,15		
13.09.2010	IAF	0,79 ± 0,05			
28.09.2010	IAF		2,74 ± 0,16		
12.10.2010	IAF			0,95 ± 0,05	
09.12.2010	IAF	0,83 ± 0,05	4,98 ± 0,38	1,24 ± 0,08	24,0 ± 1,5

4.2.7. Messergebnisse für Pu-238 und Pu-239/240

Für die mittels α -Spektrometrie untersuchten Plutoniumisotope Pu-238 und Pu-239/240 wurden anhand der Beprobung vom 09.12.2010 Aktivitätskonzentrationen nachgewiesen, die zwar relativ gering sind (in der Größenordnung mBq/l), im Vergleich zu den in 2009 untersuchten Proben aber signifikant erhöht sind.

Tabelle 4-7: Messergebnisse zur Aktivitätskonzentration von **Pu-238, in mBq/l**

Probennahme	Labor	MP_L2	MP_L3	MP_L4	MP_21
29.08.2008	FZJ	< 2 ¹⁾	< 6 ¹⁾	< 1 ¹⁾	< 5 ¹⁾
06./07.10.2009	URA	< 0,6 ¹⁾	0,9 ± 0,5	< 0,5 ¹⁾	0,9 ± 0,6
09.12.2010	URA	12 ± 2	2 ± 1	3 ± 1	2 ± 1

¹⁾ EKG, ²⁾ NWG

Tabelle 4-8: Messergebnisse zur Aktivitätskonzentration von **Pu-239/240, in mBq/l**

Probennahme	Labor	MP_L2	MP_L3	MP_L4	MP_21
29.08.2008	FZJ	< 3 ¹⁾	< 4 ¹⁾	< 1 ¹⁾	< 2 ¹⁾
06./07.10.2009	URA	< 0,6 ¹⁾	1,5 ± 0,6	< 0,8 ²⁾	3,1 ± 1,1
09.12.2010	URA	7 ± 2	9 ± 1	8 ± 1	6 ± 2

¹⁾ EKG, ²⁾ NWG

4.2.8. Messergebnisse für Am-241

In der Tabelle 4-9 sind die mittels α -Spektrometrie bestimmten Am-241-Aktivitätskonzentrationen gegenübergestellt. Am-241 kann zwar auch γ -spektrometrisch bestimmt werden; allerdings liegen hier die EKG wesentlich höher (vgl. Tabellen 3-1 bis 3-8). Ähnlich zu den Messergebnissen für die Plutoniumisotope, ist aktuell auch für Am-241 ein auf niedrigem Niveau liegender (Größenordnung mBq/l) signifikanter Anstieg der Aktivitätskonzentration festzustellen (mit Ausnahme von MP_L4).

Tabelle 4-9: Messergebnisse zur Aktivitätskonzentration von **Am-241, in mBq/l**

Probennahme	Labor	MP_L2	MP_L3	MP_L4	MP_21
29.08.2008	FZJ	< 2 ¹⁾	< 4 ¹⁾	< 5 ¹⁾	< 6 ¹⁾
06./07.10.2009	URA	< 0,8 ²⁾	< 2 ¹⁾	< 0,7 ²⁾	1,3 ± 0,7
09.12.2010	URA	4 ± 2	6 ± 2	< 0,9 ¹⁾	3 ± 2

¹⁾ EKG, ²⁾ NWG

4.3. Vergleich mit Daten aus 2008 und 2009 für natürliche Radionuklide

4.3.1. Messergebnisse für Pb-210 und Po-210

Die in Tabelle 4-10 gegenübergestellten Messergebnisse zur Aktivitätskonzentration von Pb-210 zeigen für die einzelnen Messpunkte überwiegend nur relativ geringe Abweichungen zu früheren Messwerten, wobei sich am Messpunkt MP_21 ein allmählicher Anstieg zeigt. Dies könnte auf eine Kontamination durch die ELK 12 hindeuten. Die in 2008 zum Messpunkt MP_L3 ermittelte Aktivitätskonzentration von 11 Bq/l hat sich, wie bereits bei der Beprobung in 2009, nicht bestätigt. Am Messpunkt MP_L4 hat die Pb-210-Aktivitätskonzentration dagegen ein ähnlich hohes Niveau wie in den vergangenen Jahren.

Die in Tabelle 4-11 aufgeführten Messergebnisse für Po-210 sind entsprechend den Pb-210-Werten plausibel. Relativ große Schwankungen, wie z. B. am Messpunkt MP_L4 zwischen den Proben vom 12.10. und 09.12.2010, dürften aus dem Alter der Lösung resultieren (Aufbau von Po-210).

Tabelle 4-10: Messergebnisse zur Aktivitätskonzentration von **Pb-210, in Bq/l**

Probennahme	Labor	MP_L2	MP_L3	MP_L4	MP_21
29.08.2008	IAF ^{γ)}	< 0,1 ¹⁾	11 ± 2	12 ± 2	5,5 ± 1,2
06./07.10.2009	IAF ^{β)}	0,086 ± 0,033	0,80 ± 0,15	12 ± 2	7,8 ± 0,8
	BfS ^{γ)}	< 1,85 ¹⁾	< 3 ¹⁾	12,3 ± 2	< 10 ¹⁾
06.09.2010	IAF ^{β)}		1,64 ± 0,27		
13.09.2010	IAF ^{β)}	0,20 ± 0,03			
28.09.2010	IAF ^{β)}		1,28 ± 0,16		
12.10.2010	IAF ^{β)}			10,6 ± 0,6	
09.12.2010	IAF ^{β)}	0,15 ± 0,03	0,82 ± 0,12	10,6 ± 0,6	10,8 ± 0,6

¹⁾ EKG, ^{β)} LL-Beta, ^{γ)} γ -Spektrometrie

Tabelle 4-11: Messergebnisse zur Aktivitätskonzentration von **Po-210**, in Bq/l

Probennahme	Labor	MP_L2	MP_L3	MP_L4	MP_21
29.08.2008	IAF	0,009 ± 0,003	5,0 ± 1,3	2,6 ± 0,8	2,8 ± 0,9
06./07.10.2009	IAF	0,014 ± 0,003	0,8 ± 0,09	1,37 ± 0,21	2,74 ± 0,22
06.09.2010	IAF		0,46 ± 0,10		
13.09.2010	IAF	0,020 ± 0,005			
28.09.2010	IAF		0,60 ± 0,06		
12.10.2010	IAF			4,59 ± 0,65	
09.12.2010	IAF	0,014 ± 0,004	0,26 ± 0,05	2,38 ± 0,44	6,76 ± 0,83

4.3.2. Messergebnisse für U-238 und U-234

Die aktuellen Messergebnisse zur Aktivitätskonzentration von U-238 und U-234 (streng genommen: U-233/234) sind in den Tabellen 4-12 und 4-13 den entsprechenden Daten der Beprobungen von 2008 und 2009 gegenübergestellt. Am Messpunkt MP_21 liegen die Konzentrationen unter der NWG, was mit den Angaben aus 2008 und 2009 konform ist. Für die anderen drei Messpunkte liegen die ermittelten Aktivitätskonzentrationen im Schwankungsbereich der früheren Messwerte.

Tabelle 4-12: Messergebnisse zur Aktivitätskonzentration von **U-238**, in Bq/l

Probennahme	Labor	MP_L2	MP_L3	MP_L4	MP_21
29.08.2008	IAF	0,013 ± 0,005	0,08 ± 0,02	0,100 ± 0,014	0,007 ± 0,003
06./07.10.2009	IAF	0,022 ± 0,006	0,129 ± 0,011	0,069 ± 0,012	< 0,008 ¹⁾
06.09.2010	IAF		0,116 ± 0,015		
13.09.2010	IAF	0,053 ± 0,015			
28.09.2010	IAF		0,063 ± 0,011		
12.10.2010	IAF			0,082 ± 0,011	
09.12.2010	IAF	0,038 ± 0,009	0,078 ± 0,011	0,074 ± 0,011	< 0,026 ²⁾

¹⁾ EKG, ²⁾ NWG

Tabelle 4-13: Messergebnisse zur Aktivitätskonzentration von **U-234**, in Bq/l

Probennahme	Labor	MP_L2	MP_L3	MP_L4	MP_21
29.08.2008	IAF	0,028 ± 0,009	0,035 ± 0,012	0,130 ± 0,016	0,012 ± 0,004
06./07.10.2009	IAF	0,067 ± 0,01	0,051 ± 0,01	0,081 ± 0,012	< 0,008 ¹⁾
06.09.2010	IAF		0,065 ± 0,010		
13.09.2010	IAF	0,103 ± 0,028			
28.09.2010	IAF		0,035 ± 0,006		
12.10.2010	IAF			0,086 ± 0,012	
09.12.2010	IAF	0,080 ± 0,015	0,051 ± 0,010	0,080 ± 0,011	< 0,026 ²⁾

¹⁾ EKG, ²⁾ NWG

Für die Beurteilung von Aktivitätskonzentrationen der Uranisotope (insbesondere in Grundwässern) ist die für U-234 und U-238 resultierende Relation der Messwerte ein wichtiger Parameter, aus dem ggf. Hinweise zur Ursache von Kontaminationen gewonnen werden können. In natürlichen Systemen wäre eigentlich wegen des gleichen chemischen Verhaltens der beiden Uranisotope keine Fraktionierung zu erwarten. Der radioaktive Zerfall von U-238 über Th-234 und Pa-234m zu U-234 bewirkt jedoch i. d. R. Schäden im Kristallgitter, wodurch U-234 leichter mobilisierbar wird. Der α -Rückstoß-Effekt bewirkt eine räumliche Dislokation des U-234-Atoms, wodurch dieses der Verwitterung stärker ausgesetzt ist als ein U-238-Atom. Daraus resultiert eine Fraktionierung der beiden Uranisotope, weshalb in Grundwässern üblicherweise Aktivitätsverhältnisse von U-234 zu U-238 mit Werten größer als 1 (häufig bei 2, unter speziellen Bedingungen auch deutlich darüber hinaus) beobachtet werden; siehe z. B. [7], [8], [9]. In Gebieten mit hoher Transmissivität werden jedoch auch Aktivitätsrelationen von U-234 zu U-238 unter 1 beobachtet, was vermutlich auf eine frühere verstärkte Freisetzung von U-234 zurückzuführen ist, wonach irgendwann bei fortschreitender Verwitterung das schwerer mobilisierbare U-238 ein Übergewicht gewinnt.

In der Tabelle 4-14 sind die nach [4] und [5] sowie den aktuellen Werten der α -spektrometrischen Analyse der U-234- und U-238-Aktivitätskonzentration an Messpunkten MP_L2, MP_L3, MP_L4 und MP_21 resultierenden Aktivitätsrelationen zusammengestellt. Hierzu wurden Erwartungswerte sowie die 5%- und 95%-Perzentile für die Relation U-234 zu U-238 unter Ansatz von Normalverteilungen für die jeweiligen Messergebnisse berechnet.³ Aus den Angaben von Tabelle 4-14 ist klar ersichtlich, dass die Aktivitätsrelationen an den untersuchten Messpunkten in den beiden letzten Jahren jeweils weitgehend stabil geblieben sind, wobei sich der Messpunkt MP_L3 mit Werten um 0,5 signifikant von den anderen Messpunkten unterscheidet. Die Besonderheit dieses Messpunktes ist auch aus den Abbildungen 4-1 und 4-2 ersichtlich, in denen entsprechende Ergebnisse für alle in 2008 und 2009 beprobten Messpunkte dargestellt sind, für die U-234- und U-238-Konzentrationen über der NWG ermittelt worden waren. Eine dem MP_L3 ähnlich kleine Aktivitätsrelation wurde nur noch für 2008 für den inzwischen trocken gefallenen Messpunkt MP_L6 ermittelt.

Tabelle 4-14: Relation der Aktivitätskonzentrationen U-234 zu U-238 (Erwartungswert, in Klammern Vertrauensbereich definiert durch 5%- und 95%-Perzentil der Verteilung der Relation)

Probennahme	MP_L2	MP_L3	MP_L4	MP_21
29.08.2008	2,25 (1,43 - 3,36)	0,44 (0,30 - 0,61)	1,31 (1,12 - 1,52)	1,81 (1,10 - 2,81)
06./07.10.2009	3,10 (2,39 - 4,02)	0,40 (0,33 - 0,47)	1,18 (0,97 - 1,42)	- *)
06.09.2010		0,56 (0,47 - 0,66)		
13.09.2010	1,98 (1,40 - 2,71)			
28.09.2010		0,56 (0,45 - 0,68)		
12.10.2010			1,05 (0,89 - 1,23)	
09.12.2010	2,14 (1,65 - 2,73)	0,66 (0,53 - 0,79)	1,09 (0,92 - 1,28)	- *)

*) nicht quantifizierbar da Aktivitätskonzentration von U-234 und/oder U-238 "< EKG" oder "< NWG"

³ Das Verhältnis der Erwartungswerte ("Messwerte") der beiden Aktivitätskonzentrationen würde nicht dem Erwartungswert, sondern dem Medianwert der Relation entsprechen, der kleiner als der Erwartungswert ist.

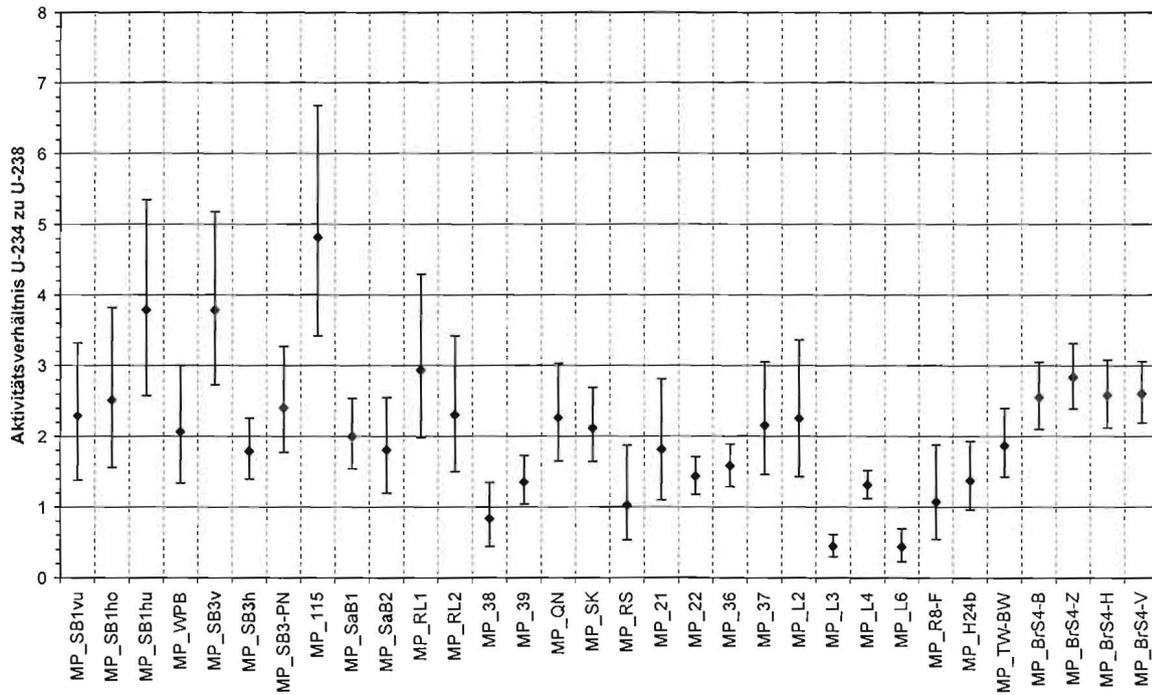


Abbildung 4-1: Relationen der Aktivitätskonzentrationen von U-234 zu U-238 für die in 2008 beprobten Messpunkte (Erwartungswerte sowie 5%- und 95%-Perzentile)

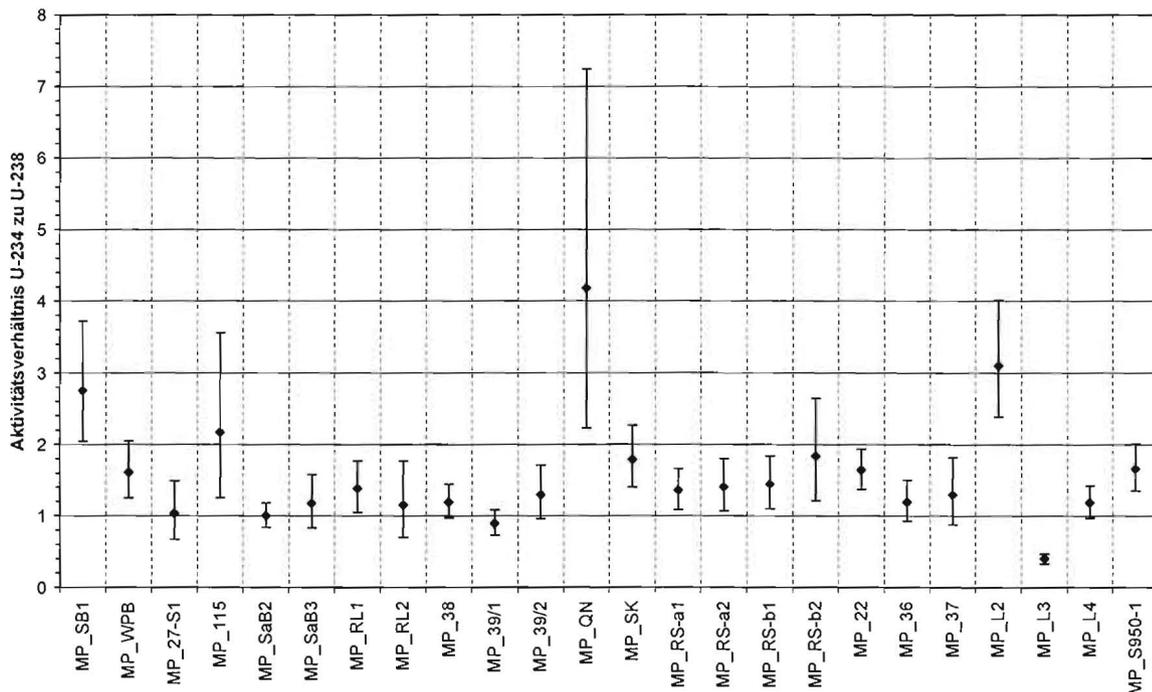


Abbildung 4-2: Relationen der Aktivitätskonzentrationen von U-234 zu U-238 für die in 2009 beprobten Messpunkte (Erwartungswerte sowie 5%- und 95%-Perzentile)

Neben natürlichen Besonderheiten (s. o.) der aus der ELK 8 am Messpunkt MP_L3 austretenden Salzlösung könnte der niedrige Wert der Aktivitätsrelation von U-234 zu U-238 an diesem Messpunkt auch durch eine Freisetzung des in der ELK 8 eingelagerten Urans resultieren, insbesondere dann, wenn hier auch abgereichertes Uran eingelagert wurde. Diese denkbare Ursache lässt sich aus den bekannten Daten zum Aktivitätsinventar der ELK 8 (siehe [9]) zwar nicht entnehmen; ggf. würde aber auch eine geringe Menge von abgereichertem Uran ausreichen, um eine bzgl. U-234 erhöhte Freisetzung von U-238 zu bewirken, wenn zufällig gerade ein solches Gebinde betroffen ist. Aus unserer Sicht bleibt eine Beurteilung möglicher Ursachen des gegenüber den anderen Messpunkten in der SchachanlageASSE für den MP_L3 festgestellten geringen Wertes der Relation von U-234 zu U-238 gegenwärtig spekulativ. Es wird deshalb empfohlen, dieses Phänomen genauer zu untersuchen.

4.3.3. Messergebnisse für K-40

Nach den in Tabelle 4-15 gegenübergestellten Messwerten zur K-40-Aktivitätskonzentration sind für den Messpunkte MP_L2 keine signifikanten Veränderungen festzustellen. Für die Messpunkte MP_L3 und MP_L4 deutet sich bzgl. K-40 ein langsamer Anstieg an, wogegen für den Messpunkt MP_21 ein Reduzierung der K-40-Aktivitätskonzentration in der Salzlösung festzustellen ist.

Tabelle 4-15: Messergebnisse zur Aktivitätskonzentration von **K-40**, in Bq/l

Probennahme	Labor	MP_L2	MP_L3	MP_L4	MP_21
29.08.2008	IAF	395 ± 25	295 ± 25	560 ± 40	176 ± 12
06./07.10.2009	IAF	446 ± 31	461 ± 32	467 ± 33	40 ± 10
	BfS	471 ± 25	457 ± 25	476 ± 25	57 ± 8
06.09.2010	IAF		515 ± 31		
13.09.2010	IAF	426 ± 30			
28.09.2010	IAF		504 ± 29		
12.10.2010	IAF			605 ± 34	
09.12.2010	IAF	450 ± 31	520 ± 31	610 ± 39	27 ± 3

Tabelle 4-16: Vergleich der γ -spektrometrischen Messergebnisse zur Aktivitätskonzentration von **K-40** mit den aus chemisch bestimmten K-Konzentrationen berechneten Aktivitätskonzentrationen für die vier am 09.12.2010 entnommenen Proben, in Bq/l

Methode	Labor	MP_L2	MP_L3	MP_L4	MP_21
γ -Spektrometrie K-40	IAF	450 ± 31	520 ± 31	610 ± 39	27 ± 3
chemische K-Analyse	VKTA	450 ± 67	530 ± 80	608 ± 91	25 ± 4

Der in Tabelle 4-16 dargestellte Vergleich der γ -spektrometrischen Messergebnissen zur Aktivitätskonzentration von K-40 mit den aus chemisch bestimmten K-Konzentrationen berechneten Aktivitätskonzentrationen (basierend auf dem natürlichen K-40-Gehalt in Kalium von 0,012 Gew.-%) zeigt eine sehr gute Übereinstimmung und bestätigt somit die Qualität der dbzgl. Laboranalysen.

5. ZUSAMMENFASSUNG DER BEWERTUNGEN UND EMPFEHLUNGEN

Wie bereits in den früheren Untersuchungen kontaminierter Salzlösungen [4] und [5], wurden für H-3, C-14 und Cs-137 an allen vier Messpunkten relativ hohe Aktivitätskonzentrationen gemessen. Die Bestimmung von **H-3** (aktuelle Messwerte zwischen ca. 1 und 3 MBq/l) und **Cs-137** (aktuelle Messwerte zwischen ca. 1 und 24 kBq/l) als Leitnuklide des Monitoring der Aktivitätsfreisetzung aus Einlagerungskammern ist auch nach den aktuellen Untersuchungsergebnissen gerechtfertigt. Generell ist der relativ geringe anorganische bzw. hohe organische Anteil von **C-14** bemerkenswert.

Abweichend von den früheren Untersuchungen wurden aktuell **Pu-238** und **Pu-239/240** für alle vier Messpunkte identifiziert, **Am-241** mit Ausnahme des Messpunktes MP_L4. Die dbzgl. gemessenen Aktivitätskonzentrationen sind mit Werten im Bereich von ca. 2 bis 12 mBq/l zwar gering; weisen jedoch auf qualitative Veränderungen der Nuklidfreisetzung aus den Einlagerungskammern hin.

Die an allen vier Messpunkten bestimmten Aktivitätskonzentrationen der natürlichen Radionuklide **Pb-210** und **Po-210** zeigen gegenüber den früheren Untersuchungen keine auffälligen Veränderungen. Relativ große Abweichungen der Po-210-Aktivitätskonzentration dürften physikalisch durch das Alter der Salzlösungsproben bedingt sein. Für die Uranisotope **U-238** und **U-234**, die nur am Messpunkt MP_21 Aktivitätskonzentrationen unterhalb der NWG aufwiesen, ist das geringe Verhältnis der Aktivitätskonzentrationen von U-234 zu U-238 am Messpunkt **MP_L3** auffällig. Die Veränderungen der **K-40**-Aktivitätskonzentration korrelieren mit den chemischen Analysenwerten.

Zu den vier Messpunkten resultieren die folgenden speziellen Anmerkungen:

MP_L2: Hier liegt permanent eine sehr hohe C-14-Aktivitätskonzentration vor (ca. 1 kBq/l).

MP_L3: Die Aktivitätskonzentrationen von C-14 und Cs-137 steigen hier deutlich an.

MP_L4: Gegenüber den Vorjahren erhöhte sich die Cs-137-Aktivitätskonzentration. Für Tc-99 kann eine ähnliche Aussage wegen der relativ großen Messunsicherheit noch nicht getroffen werden.

MP_21: Dies ist der einzige Messpunkt, an dem wieder Co-60 und Sr-90 identifiziert wurden (mit 5,0 bzw. 0,16 Bq/l). Aus den Messwerten deutet sich eine Reduzierung der Aktivitätskonzentration von Cs-137 an (noch relativ unsicher auch bzgl. Tc-99).

Aus den Ergebnissen der vorliegenden Untersuchung resultieren die folgenden vier Empfehlungen:

E1: Die beiden Radionuklide H-3 und Cs-137 sollten weiterhin für das Monitoring der Aktivitätsfreisetzung aus Einlagerungskammern genutzt werden.

E2: Die Untersuchung von kontaminierten Salzlösungen sollte Ende 2011 in ähnlichem Umfang wiederholt werden, um Entwicklungstendenzen für relevante Radionuklide zu identifizieren. Chemische Analysen zu DOC könnten zur Interpretation der C-14-Messungen nützlich sein.

E3: Es sollten Vergleichsmessungen mit α -Spektrometrie und ICP-MS zur Aktivitätskonzentration von U-238 in künstlich hergestellten Salzlösungen mit definierter Urankonzentration erfolgen.

E4: Im Rahmen weiterer Untersuchungen sollte versucht werden, die Ursache(n) des auffallend niedrigen Verhältnisses der Aktivitätskonzentrationen von U-234 zu U-238 am Messpunkt **MP_L3** zu klären.

6. LITERATUR

- [1] BUNDESAMT FÜR STRAHLENSCHUTZ
Vom Salzbergwerk zum Atomlager – Die wechselvolle Geschichte der Schachtanlage Asse II
http://www.endlager-asse.de/cln_137/DE/2_WasIst/B_Geschichte/_node.html
Salzgitter, 28.05.2010
- [2] BUNDESAMT FÜR STRAHLENSCHUTZ
Struktur und Aufgabe der Asse-GmbH
http://www.endlager-asse.de/cln_135/DE/2_WasIst/F_Betreiber/asse_gmbh.html
Salzgitter, 24.08.2010
- [3] BUNDESAMT FÜR STRAHLENSCHUTZ
Lösungszutritt vor Kammer 8 erhöht
http://www.endlager-asse.de/cln_135/SharedDocs/Kurzmeldungen/DE/2010/1214_kammer_acht.html
Salzgitter, 16.12.2010
- [4] BRENK SYSTEMPLANUNG GMBH
Standortbezogene Freigabe von Zutrittslösungen aus der Schachtanlage Asse
a) Zwischenbericht zur Freigabe von Zutrittslösungen auf der Basis vollständiger Freigabemessungen
Aachen, 12.10.2008
b) Abschlussbericht, Aachen, 05.05.2010
- [5] BRENK SYSTEMPLANUNG GMBH
Beprobung und Analyse von Salzlösungen 2009 Schachtanlage Asse II
Aachen, 16.12.2009
- [6] MICHEL, R.; KIRCHHOFF, K.
Nachweis-, Erkennungs- und Vertrauensgrenzen bei Kernstrahlungsmessungen
Fachverband für Strahlenschutz e.V., Fortschritte im Strahlenschutz, ISBN 3-8249-0542-6
TÜV-Verlag, Köln, 1999
- [7] IVANOVICH, M.; HARMON, R.S. (EDS.)
Uranium-series Disequilibrium: Applications to Earth, Marine, and Environmental Sciences
Clarendon Press, Oxford, 1992
- [8] MERKEL, B.; SPERLING, B.
Hydrogeochemische Stoffsysteme (Teil II)
Schriftenreihe des Deutschen Verbandes für Wasserwirtschaft und Kulturbau e.V., Heft 117
Wirtschaft- und Verlagsgesellschaft Gas und Wasser mbH, Bonn, 1998
- [9] HELMHOLTZ ZENTRUM MÜNCHEN, ISS
Datenbank "ASSEKAT", Version 9.2. vom Februar 2010