



Bundesamt für Strahlenschutz

Deckblatt

GZ: SW 1.7 -9A 65161000

Projekt	PSP-Element	Aufgabe	UA	Lfd.Nr.	Rev.	 PT024586	Seite: I
NAAN	NNNNNNNNNN	AAAA	AA	NNNN	NN		Stand: 18.11.2011
9A	65161000	LE	RB	0008	00		

Titel der Unterlage:
BEPROBUNG UND ANALYSE VON SALZLÖSUNGEN UND SALZEN 2011 - SCHACHTANLAGE ASSE II

Ersteller:



Projekt	PSP-Element	Thema	Aufgabe	UA	Lfd. Nr	Rev
NNAA	NNNNNNNNNN	NNAAANN	XAAXX	AA	NNNN	NN
9A	65151000	01575	LE	BH	0008	00

Stempelfeld:

Freigabe durch bergrechtlich verantwortliche Person:



Datum und Unterschrift

Freigabe durch atomrechtlich verantwortliche Person:

16.12.11

Datum und Unterschrift

Freigabe im Projekt/Betrieb:

19.12.11

Datum und Unterschrift

Diese Unterlage unterliegt samt Inhalt dem Schutz des Urheberrechts sowie der Pflicht zur vertraulichen Behandlung auch bei Beförderung und Vernichtung und darf vom Empfänger nur auftragsbezogen genutzt, vervielfältigt und Dritten zugänglich gemacht werden. Eine andere Verwendung und Weitergabe bedarf der ausdrücklichen Zustimmung des BfS.



Bundesamt für Strahlenschutz

Revisionsblatt

Projekt	PSP-Element	Aufgabe	UA	Lfd. Nr.	Rev.	Seite: II
NAAN	NNNNNNNNNN	AAAA	AA	NNNN	NN	
9A	65161000	LE	RB	0008	00	

Titel der Unterlage:
BEPROBUNG UND ANALYSE VON SALZLÖSUNGEN UND SALZEN 2011 - SCHACHTANLAGE ASSE II

Rev.	Rev.-Stand Datum	UVST	Prüfer (Zeichn.)	Rev. Seite	Kat. (*)	Erläuterung der Revision

*) Kategorie R = redaktionelle Korrektur
Kategorie V = verdeutlichende Verbesserung
Kategorie S = substantielle Revision
mindestens bei der Kategorie S müssen Erläuterungen angegeben werden

Beprobung und Analyse von Salzlösungen und Salzen 2011

Schachtanlage Asse II

Bundesamt für Strahlenschutz
Fachbereich „Strahlenschutz und Umwelt“
Köpenicker Allee 120 – 130
10318 Berlin



AUTOREN UND DANKSAGUNG

An der Erstellung dieses Gutachtens haben eine Vielzahl von Mitarbeiter/innen der Fachgebiete SW 1.3, SW 1.5, SW 1.7 und SE 4.2 des Bundesamtes für Strahlenschutz sowie Mitarbeiter/innen der Universität Regensburg, der Technischen Universität Clausthal und K-UTEC AG Salt Technologies, Sondershausen, mitgewirkt.

Bundesamt für Strahlenschutz:



Zentrales Radionuklidlaboratorium UmweltRadioAktivität, Universität Regensburg:



K-UTEC AG Salt Technologies, Sondershausen:



Institut für Endlagerforschung, Technische Universität Clausthal:



Bei der Vorbereitung und Durchführung der Probenahme und der Bereitstellung von Messergebnissen erhielten wir Unterstützung durch folgende Mitarbeiter der Asse-GmbH:



Prüfung und Freigabe

Erstellung	Prüfung	Prüfung	Freigabe
 i. A. Unterschrift Projektleitung	 Unterschrift Abteilung SW I	 Unterschrift QB	 Unterschrift Fachbereich SW



INHALTSVERZEICHNIS

	Seite	
1	EINLEITUNG	7
2	ZIELSTELLUNG	9
3	PROBENAHE- UND MESSPROGRAMM	11
4	DURCHFÜHRUNG DER PROBENAHE	14
5	MESSVERFAHREN	16
5.1	Verfahren zur gammaspektrometrischen Bestimmung	16
5.2	Verfahren zur Bestimmung von Radon-222	16
5.3	Radiochemische Messverfahren	17
5.4	Qualitätssicherung	18
6	ERGEBNISSE UND DISKUSSION DER LABORANALYSEN	19
6.1	Erläuterung zu den radiologischen Messwerten	19
6.2	Darstellung der radiologischen Messwerte	20
6.3	Darstellung der chemischen Analysen	26
6.4	Untersuchungen zu Kohlenstoff-14	26
6.5	Untersuchungen zur Radon-222-Aktivitätskonzentration	28
6.6	Bewertung des Einflusses der Probenahme auf die chemischen Messgrößen	31
6.7	Vergleich der Ergebnisse der radiologischen Messungen aus den Jahren 2008, 2009 und 2011	31
7	SCHLUSSFOLGERUNGEN	40
	LITERATUR	42
Anhang A:	Photodokumentation Probenahme	
Anhang B:	Radiologische Messwerte	
Anhang C:	Methoden zur Bestimmung ausgewählter Radionuklide in Salzlösungen aus der Schachtanlage Asse II	
Anhang D:	Ergebnisse des Zentralen Radionuklidlaboratoriums UmweltRadioAktivität (URA) der Universität Regensburg	
Anhang E:	Ergebnisse der chemisch-physikalischen Analytik, Prüfbericht 11-1050-1, K-UTEK AG Salt Technologies	
Anhang F:	Ergebnisse der chemisch-physikalischen Analytik, Prüfbericht 11-1218-1, K-UTEK AG Salt Technologies	



ABKÜRZUNGEN

AtG	Atomgesetz
BfS	Bundesamt für Strahlenschutz
BMBF	Bundesministerium für Bildung und Forschung
BMU	Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit
FP	Folgeprodukte
HMGU	Helmholtz Zentrum München, Deutsches Forschungszentrum für Gesundheit und Umwelt GmbH
ICP-MS	Inductively Coupled Plasma Mass Spektrometry (deutsch: Massenspektrometrie mit induktiv gekoppeltem Plasma)
ICP-OES	Inductively Coupled Optical Mass Spektrometry (deutsch: Optische Emissionsspektrometrie mit induktiv gekoppeltem Plasma)
LAW	Low Active Waste (deutsch: schwachaktive Abfälle)
LBEG	Landesamt für Bergbau, Energie und Geologie, Niedersachsen
LS	Laugensumpf
LSC	Liquid Scintillation Counting (deutsch: Flüssigkeitsszintillationszähler)
MAW	Medium Active Waste (deutsch: mittelaktive Abfälle)
MP	Messpunkt oder Messprobe
NMU	Niedersächsisches Ministerium für Umwelt und Klimaschutz
NWG	Nachweisgrenze
RS	Richtstrecke
StrlSchV	Strahlenschutzverordnung
TM	Trockenmasse
URA	Zentrales Radionuklidlaboratorium UmweltRadioAktivität, Universität Regensburg

1 EINLEITUNG

Die Schachtanlage Asse II ist ein ehemaliges Salzbergwerk in Niedersachsen, in dem in den Jahren 1909 bis 1964 Kali- und Steinsalze abgebaut wurden. Das Bergwerk liegt im gleichnamigen Höhenzug Asse zehn Kilometer südöstlich von Wolfenbüttel.

In den Jahren 1965 bis 1967 wurde die Schachtanlage Asse II zur Erforschung der Einlagerung radioaktiver Abfälle umgebaut. Die als Forschung deklarierte Einlagerung erfolgte im Zeitraum zwischen 1967 und 1978. Im genannten Zeitraum wurden 125.787 Fässer und Gebinde (ca. 47.000 m³) mit schwach- und mittelradioaktiven Abfällen (LAW und MAW) eingelagert [1].

Zwischen 1978 und 1995 wurden Forschungsarbeiten zur Einlagerung durchgeführt, die 1995 ihren Abschluss fanden. Ab dem Jahre 1995 begann man, verbliebene Hohlräume aus dem ehemaligen Salzabbau zu verfüllen. Die Arbeiten konzentrierten sich auf die systematische Verfüllung der Abbaue der Südflanke der Schachtanlage Asse II mit Salz der Halde Ronnenberg. Nach Beendigung dieser Arbeiten schloss sich ab dem Jahre 2004 die Verfüllung des sogenannten Tiefenaufschlusses unterhalb der 775-m-Sohle an [1].

Bis zum 31. Dezember 2008 wurde die Schachtanlage Asse II vom Helmholtz Zentrum München, Deutsches Forschungszentrum für Gesundheit und Umwelt GmbH (HMGU), im Zuständigkeitsbereich des Bundesministeriums für Bildung und Forschung (BMBF) betrieben. Die Aufsicht erfolgte durch das Niedersächsische Ministerium für Umwelt und Klimaschutz (NMU) und das Landesamt für Bergbau, Energie und Geologie (LBEG, Aufsicht nach Bundesberggesetz). Der Strahlenschutz beim Betrieb der Schachtanlage Asse II und die Umgebungsüberwachung wurden durch Anordnungen des NMU nach § 19 Atomgesetz (AtG) geregelt.

Im November 2008 wurde durch Beschluss des Bundeskabinetts entschieden, dass die Schachtanlage Asse II zukünftig als Endlager zu behandeln ist und dass für den Betrieb und die Stilllegung der Schachtanlage die für Anlagen des Bundes nach § 9a Abs. 3 AtG geltenden Vorschriften anzuwenden sind. Dadurch ist der Betrieb der Schachtanlage Asse II zum 1. Januar 2009 vom HMGU auf das für die Endlagerung radioaktiver Abfälle in Deutschland zuständige Bundesamt für Strahlenschutz (BfS) übergegangen. Das BfS ist als neuer Betreiber sowohl für die Schließung der Schachtanlage Asse II im Rahmen eines atomrechtlichen Planfeststellungsverfahrens gemäß § 9b AtG, als auch für den Offenhaltungsbetrieb der Anlage bis zur Stilllegung verantwortlich. Hierzu bedient sich das BfS der im Eigentum des Bundes stehenden Asse-GmbH als Betriebsführerin.

Die atomrechtliche Aufsicht über die Schachtanlage Asse II liegt seit dem 1. Januar 2009 beim Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit (BMU). Die bergrechtliche Aufsicht obliegt weiterhin dem LBEG im Zuständigkeitsbereich des NMU. Für die Überwachung der Einhaltung der Voraussetzungen und Auflagen aus atomrechtlichen Genehmigungsverfahren ist die Endlagerüberwachung im BfS zuständig.

In der Schachtanlage Asse II treten auf verschiedenen Sohlen Salzlösungen auf, die radioaktive Kontaminationen aufweisen können. Die Salzlösungen sind wie folgt zu unterscheiden:

- Zutrittslösung (Deckgebirgslösung), die aus dem Nebengestein an der Südflanke im Abbau 3 der 658-m-Sohle austritt und im Umfang ca. 12 m³ pro Tag kontinuierlich auf den Sohlen 658 m, 725 m und 750 m gefasst wird. Die Salzlösung ist primär kontaminationsfrei und wird erst beim Kontakt mit der Grubenluft durch in der Grubenluft vorhandene Radionuklide, ins-



besondere Tritium (H-3), oder durch den Kontakt mit radioaktiven Kontaminationen in Richtstrecken (RS) und Einlagerungskammern bzw. den Abfällen selbst (nur auf der 750-m-Sohle) kontaminiert.

- Lösungen, die aus den versetzten Kaliabbauen im nördlichen Grubenbereich austreten. Es wird vermutet, dass der Laugensumpf vor der Einlagerungskammer 12 primär von solchen Lösungen gespeist wird.
- Lösung aus dem Tiefenaufschluss. In den mit Salzhauwerk versetzten Tiefenaufschluss wurden ab 2004 insgesamt ca. 12.000 m³ gesättigte (unkontaminierte) MgCl₂-Lösung zur Verringerung des Resthohlraumes eingeleitet, um der Konvergenz des Salzgebirges entgegenzuwirken. Zudem sind seit 2005 ca. 74 m³ kontaminierte Lösung aus dem Sumpf vor Einlagerungskammer 12 der 750-m-Sohle sowie in geringem Umfang kontaminierte Feststoffe (Salzhauwerk und kontaminierte Arbeitsgeräte) in den Tiefenaufschluss verbracht worden. Die ursprünglich unterhalb der 925-m-Sohle eingebrachte Salzlösung wird durch die Konvergenz des Salzgebirges nach oben gedrückt und migriert beim Erreichen der 925-m-Sohle in den noch unverfüllten Füllortbereich der 925-m-Sohle und von dort in den Sumpf des Schachtes 2 auf der 950-m-Sohle.

Die gefasste Zutrittslösung wurde in der Vergangenheit zur Flutung der ehemaligen Salzbergwerke Hope, Mariagluck und Salzdetfurth verwendet, sofern die Kontamination mit den Nukliden H-3 und Cs-137 10 % der Werte der Anlage III Tabelle 1 Spalte 5 Strahlenschutzverordnung (StrlSchV) nicht überstieg. Diese vom LBEG genehmigte Vorgehensweise war nicht konform mit den Regelungen zur Freigabe nach § 29 StrlSchV und wurde Mitte des Jahres 2008 von verschiedenen Seiten hinterfragt. Der damalige Betreiber (HMGU) hat daraufhin die Firma Brenk Systemplanung GmbH beauftragt, für die Verwertung und Entsorgung der Zutrittslösung Freigabewerte zu berechnen. Da die relevanten Nuklide der Salzlösungskontamination zum damaligen Zeitpunkt nicht hinlänglich bekannt waren, wurden die Salzlösungsvorkommen in der Schachanlage Asse II im August 2008 hierzu erstmals umfassend beprobt und radiologisch analysiert. Auf der Basis dieser Daten wurden von der Firma Brenk Freigabewerte abgeleitet und eine den Bestimmungen der StrlSchV entsprechende Vorgehensweise bei der Entsorgung bzw. Verwertung der gefassten Zutrittslösung entwickelt [2, 3]. Es wurde empfohlen, die radiologische Charakterisierung der Salzlösungen in Abständen von zwei Jahren zu wiederholen, um Veränderungen während des Offenhaltungsbetriebes der Schachanlage Asse II rechtzeitig zu erkennen.

Zur Absicherung der Ergebnisse wurde die Beprobung und Analyse der gefassten Salzlösungen zunächst im Jahr 2009 wiederholt. Dabei konnten mit Ausnahme von zwei Messstellen (P 750007 und P 750043) keine signifikanten Veränderungen der Kontaminationssituation gegenüber der Beprobung im Jahr 2008 festgestellt werden [4]. Die bereits im Jahr 2009 beobachteten Veränderungen an den Messstellen P 750007 und P 750043 wurden durch die Routineuntersuchungen der Asse-GmbH in den Jahren 2010 und 2011 [6] sowie durch Detailuntersuchungen der Firma Brenk am Punkt P 750043 im Jahr 2010 [5] bestätigt. Die in [3] ausgesprochene Empfehlung zur Wiederholung der radiologischen Charakterisierungsmessungen im Abstand von zwei Jahren ist weiterhin gültig. Im Zusammenhang mit der Freigabe von Zutrittslösung zur internen Verwendung bei der Herstellung von Sorelbeton hat die Endlagerüberwachung im BfS der Aktualisierung des Untersuchungsberichts im Abstand von zwei Jahren zugestimmt.

Die radiologische Charakterisierung der Asse-Salzlösungen erfolgte im Jahre 2009 bereits unter Beteiligung des BfS. Die aktuelle Charakterisierung wird federführend vom BfS (Fachbereich SW) durchgeführt.



2 ZIELSTELLUNG

Die Untersuchungen an den Salzlösungen der Schachtanlage Asse II wurden im Jahr 2011 mit folgenden Zielstellungen durchgeführt:

- Ermittlung des aktuellen Zustandes der radioaktiven Kontamination der Salzlösungen (vertiefte radiologische Analyse),
- Prüfung der Anwendbarkeit von Leitnukliden bei der Kontaminationsüberwachung im Routinebetrieb und bei Freigaben nach § 29 StrlSchV,
- Vertiefung des Kenntnisstandes zur Bindungsform und Herkunft einzelner Radionuklide.

Die bislang durchgeführten Untersuchungen [2 bis 5] haben gezeigt, dass für die Kontamination der Salzlösungen in der Schachtanlage Asse II kein einheitlicher Nuklidvektor festgelegt werden kann. Die Kontaminationssituation ist von den örtlichen Gegebenheiten abhängig und unterliegt, zumindest in einigen Bereichen der Grube, dynamischen Prozessen. Es ist daher erforderlich, die Kontaminationssituation regelmäßig zu überprüfen.

Die regelmäßige Kontaminationsüberwachung der Salzlösungen ist Gegenstand der Genehmigung 1/2010 für den Umgang mit radioaktiven Stoffen gemäß § 7 StrlSchV in der Schachtanlage Asse II [7]. Art, Umfang und Häufigkeit der Kontaminationskontrolle sind in einer Prüfunterlage zur Genehmigung 1/2010 geregelt [8]. Danach sind an 27 festgelegten Orten in der Grube monatlich Proben zu entnehmen (einige Probenahmestellen sind z. Z. trocken) und gammaspektrometrisch sowie auf Tritium zu analysieren. Diese monatliche Kontaminationsüberwachung ist auf die Bestimmung der Nuklide Cs-137 und Tritium ausgerichtet, die in der Vergangenheit als Leitnuklide identifiziert wurden. Die Durchführung von radiologischen Vollanalysen ist im Routinebetrieb nicht möglich. Dass die Kontaminationsüberwachung im Routinebetrieb auf Leitnuklide fokussiert werden kann, muss allerdings regelmäßig durch Vollanalysen nachgewiesen werden. Nach der Prüfunterlage¹ [8] sind die Salzlösungen in den Lösungsschlitzten vor den Einlagerungskammern 4, 8 und 10 in der 2. südlichen Richtstrecke nach Osten auf der 750-m-Sohle, die Lösung im Sumpf vor der Einlagerungskammer 12 sowie in den sogenannten Reicheltsümpfen im Nordwesten auf der 750-m-Sohle und der Zulauf zum Sammelbehälter im Abbau 3 auf der 658-m-Sohle jährlich vertieft radiologisch zu analysieren. Für die restlichen Salzlösungsvorkommen existieren keine Vorgaben hinsichtlich der vertieften Kontaminationsüberwachung.

Ein Hauptziel der hier durchgeführten radiologischen Vollanalysen für das Jahr 2011 ist daher die Überprüfung der Kontaminationssituation nicht nur in Bezug auf die routinemäßig überwachten Leitnuklide Cs-137 und Tritium (wobei auch andere Gammastrahler wie z. B. Co-60 bei der routinemäßigen Überwachung identifiziert werden, wenn sie in höheren Aktivitätskonzentrationen vorliegen), sondern auf alle relevanten Radionuklide mit möglichst niedrigen Nachweisgrenzen. Die Ergebnisse werden benötigt, um Veränderungen bei der Kontamination der Salzlösungen rechtzeitig zu erkennen und um zu belegen, dass die Fokussierung der Routineüberwachung auf Leitnuklide gerechtfertigt ist. Die Informationen werden auch für Freigaben von

¹ Die nächste Revision der v. g. Prüfunterlage berücksichtigt den Erkenntnisgewinn der radiologischen Untersuchungen, dass regelmäßig alle 2 Jahre Vollanalysen durchgeführt werden.



Salzlösungen nach § 29 StrlSchV zur externen oder internen Verwertung oder Entsorgung benötigt.

Im Jahr 2010 wurde bei Detailuntersuchungen an den Messpunkten P 750029, P 750042, P 750043 und P 750044 festgestellt, dass die erhöhten C-14-Aktivitätskonzentrationen in der Salzlösung an diesen Messpunkten nur zu einem geringen Anteil in anorganischer Form vorliegen, insbesondere am Messpunkt P 750042 [5]. Die Ergebnisse wurden in [5] nicht näher diskutiert. Dieser Befund sollte im Rahmen der diesjährigen Untersuchung für die genannten Messstellen überprüft werden.

In einigen Salzlösungsvorkommen, z. B. am Messpunkt P 750044 (Lösungsschlitz vor der Einlagerungskammer 8), wurden bei früheren Untersuchungen [3, 4] relativ hohe Pb-210-Aktivitätskonzentrationen (ca. 10 Bq/l) trotz sehr geringer Aktivitätskonzentrationen des Mutternuklids Ra-226 (kleiner Erkennungsgrenze von ca. 0,01 Bq/l) festgestellt. Ob die Pb-210-Aktivitäten einem natürlichen Eintrag oder Freisetzungen aus Abfallbinden entstammen, kann nach Brenk 2010 [3] bislang nicht belastbar beurteilt werden. In Brenk 2009 [4] wird aber ausgeführt, dass bislang keine Anhaltspunkte dafür vorliegen, dass die Pb-210-Aktivitäten nicht natürlicher Herkunft sein könnten.

Ein Ziel der diesjährigen Untersuchungen war daher die weitere Klärung der Herkunft des Pb-210. Dieses Radionuklid entsteht beim Zerfall des Edelgases Rn-222. Einerseits ist aus früheren Untersuchungen des ehemaligen Betreibers der Schachanlage Asse II bekannt, dass in den Einlagerungskammern z. T. sehr hohe Rn-222-Aktivitätskonzentrationen (größer 10^5 Bq/m³) in den Kammeratmosphären vorliegen. Wenn in der Einlagerungskammer Lösung vorhanden ist, die mit der Kammeratmosphäre im Kontakt steht, könnte somit Pb-210, das beim Zerfall des Rn-222 entsteht, in die Lösung übergehen und ggf. mit der Lösung aus der Kammer ausgetragen werden. Andererseits könnte auch das sehr mobile Radon aus der Einlagerungskammer entweichen und erst außerhalb der Kammer in die Salzlösung übergehen, bzw. das beim Zerfall des Radons entstehende Pb-210 könnte sich außerhalb der Kammer in der Salzlösung anreichern. Durch Messungen der Asse-GmbH ist belegt, dass die Einlagerungskammern nicht vollständig gasdicht sind und bei fallendem Luftdruck Radon aus den Einlagerungskammern entweicht. Unter diesem Gesichtspunkt sollte bei den diesjährigen Charakterisierungsmessungen geprüft werden, ob in der Nähe von Einlagerungskammern ggf. erhöhte Rn-222-Aktivitätskonzentrationen in den Salzlösungen vorliegen.

Der Parameter Rn-222 wurde bereits bei den Untersuchungen im Jahr 2008 [2, 3] mit bestimmt, damals allerdings gammaspektrometrisch über die kurzlebigen Radonfolgeprodukte. Die Ergebnisse waren aufgrund der Messmethodik (überwiegend Aktivitätskonzentrationen kleiner der Nachweisgrenze) zu hinterfragen. Im Rahmen der diesjährigen Untersuchung sollten die Rn-222-Ergebnisse durch die Bestimmung mit einem anderen Verfahren verifiziert werden.

3 PROBENAHE- UND MESSPROGRAMM

Das Mengengerüst für die Probenahme und das Messprogramm zu den radiologischen und chemischen Laboranalysen wurden unter Berücksichtigung der im Kapitel 2 diskutierten Zielstellungen festgelegt.

Am 10.05.2011 wurde mit den zuständigen Mitarbeitern der Asse-GmbH und mit Mitarbeitern des Bundesamtes für Strahlenschutz der Entwurf eines Programms zur Probenahme und Laboranalyse von gefassten Salzlösungen beraten und abgestimmt. Im Fachbereich SW wurde auf Grundlage des Entwurfs ein Mengengerüst für die Probenahmen und Analysen von Salzlösungen und Feststoffproben für das Jahr 2011 erstellt.

An den im Mengengerüst ausgewiesenen Messpunkten L 574010, P 658005, P 750002, P 750048-O, P 750048-G und P 925001 wurde ein Trockenfallen der Messstellen als möglich erachtet. Die Aufnahme zusätzlicher Probenahmestellen, die sich aus aktuellen Gegebenheiten in der Schachanlage Asse II ergeben könnten, wurde nicht ausgeschlossen.

Die Laboranalysen wurden von den folgenden vier Institutionen durchgeführt:

- Bundesamt für Strahlenschutz, Fachbereich SW,
- Zentrales Radionuklidlaboratorium UmweltRadioAktivität der Universität Regensburg (URA),
- K-UTEC AG Salt Technologies, Sondershausen und
- Institut für Endlagerforschung der Technischen Universität Clausthal.

Aus Tabelle 1 ist ersichtlich, welche Parameter in den einzelnen Institutionen bestimmt wurden.

Tabelle 1: Überblick bezüglich der durchgeführten Analysen der beteiligten Institutionen

Strahlungsart/Nuklid		BfS, SW 1.3	BfS, SW 1.5	URA	K-UTEC	TU Clausthal
Gamma	komplett	●				
Alpha	Po-210		●			
	Rn-222	●				
	Ra-226		●			
	Ra-228		●			
	U-Isotope		●			
	Pu-Isotope		●			
	Am-241		●			
Beta	H-3		●			
	C-14 _{ges.}			●		
	C-14 _{anorg.}		●	●		
	Sr-90		●			
	Tc-99		●			
	Pb-210		●			
Chemische Parameter					●	●



Da neben den radiochemischen Messverfahren auch die komplette Gammaskopie zur Verfügung stand, wurden die Ergebnisse für die Radionuklide Pb-210, Ra-226 über seine Folgeprodukte (FP), Ra-228 und Am-241 redundant ausgewertet. Damit konnte in einigen Fällen, bei Vorliegen von zwei unabhängigen Messwerten oberhalb der Nachweisgrenze (NWG), die Belastbarkeit der Messwerte nachgewiesen werden. Die Ergebnisse stimmten unter Beachtung ihrer Messunsicherheiten überein. Im Anhang B, Tabelle B-1 bis B-30, wird jedoch für jedes Radionuklid nur ein Wert pro Probe angegeben. Im Allgemeinen wurde der Wert mit der geringeren Gesamtmessunsicherheit oder der niedrigeren Nachweisgrenze gewählt.

Analog zu den Charakterisierungsmessungen von 2008 und 2009 [2, 4] wurden ausgewählte Zutrittslösungen und Salzlösungen bezüglich der makrochemischen Hauptkomponenten und ausgewählter Spurenelemente analysiert. Diese chemischen Analysen bieten für das Systemverständnis und damit für die Interpretation der radiologischen Messwerte nützliche Informationen.

Die Tabelle 2 gibt eine Übersicht über die geplanten Laboranalysen für Zutrittslösungen, kontaminierte Salzlösungen und Feststoffe. Hier sind nur die Messstellen aufgeführt, die tatsächlich am 12.07. und 13.07.2011 (vgl. Kapitel 4) beprobt worden sind. Sechs Messstellen (L 574010, P 658005, P 750002, P 750048-O, P 750048-G, P 925001), die zur Beprobung vorgeschlagen wurden, aber aufgrund des Trockenfallens nicht beprobt werden konnten, wurden aus der ursprünglichen Liste gestrichen. Zwei Messstellen wurden dem Mengengerüst zugefügt. Am Messpunkt P 750006 erfolgte die Beprobung sowohl direkt aus dem Laugensumpf (Probe P 750006-1) als auch aus einem Auffangeimer (frische Tropflösung, Probe P 750006-2). Abweichend vom ursprünglichen Vorhaben wurde die Messstelle P 725010 zusätzlich in das Messprogramm aufgenommen, da diese zum aktuellen monatlichen Messprogramm des Bereichs Standortüberwachung der Asse-GmbH gehört und als Einzige dieser monatlich zu beprobenden Messstellen im ursprünglichen Mengengerüst nicht berücksichtigt worden war.

Im Vergleich zur Charakterisierungsmessung im Jahre 2009 wurden die Messstellen P 725010, P 750064, P 750071, P 750023 und P 925005 neu in das Untersuchungsprogramm aufgenommen. Die Messstellen MP_WPB (Waschplatz auf der 490-m-Sohle), P 658005, MP_SaB3 (ein ehemaliger Sammelbehälter auf der 725-m-Sohle), P 750002, P 925001 und P 925002 sind nicht mehr dabei. Zum einen sind diese Messstellen trocken gefallen, zum anderen werden diese Messstellen einer anderen Nutzung zugeführt (MP_SaB3) bzw. sind durch ihre jetzige Nutzung als nicht repräsentativ für den Betrieb der Schachanlage Asse II anzusehen (MP_WPB).



4 DURCHFÜHRUNG DER PROBENAHEME

Am 12.07. und 13.07.2011 erfolgte die Probenahme für die Charakterisierungsmessungen des Jahres 2011. Insgesamt wurden 26 Proben an verschiedenen Probenahmestellen der 490-m- bis 950-m-Sohle entnommen. Neben den Salzlösungen wurden an vier Probenahmestellen (P 750029, P 750042, P 750043, P 750044) ausgefallene Salze mit beprobt. Eine ausführliche Photodokumentation der durchgeführten Probenahme enthält Anhang A. In dieser Photodokumentation sind auch die Messstellen enthalten, die aufgrund ihres Trockenfallens nicht beprobt werden konnten.

Abbildung 1 zeigt beispielhaft die Probenahme an dem Lösungssumpf P 750007 in der Schachtanlage Asse II.



Abbildung 1: Probenahme am Lösungssumpf westlich Abbau 9 auf der 750-m-Sohle P 750007 (MP_37)

In der Regel wurden die Proben an den jeweiligen Messstellen in drei Schritten entnommen und abgefüllt, wobei infolge der Aufgabenstellung unterschiedliche Behälter verwendet wurden. Zuerst erfolgte die monatlich durchzuführende Entnahme der Proben für den Bereich Standortüberwachung der Asse-GmbH. Zur Gewährleistung der Vergleichbarkeit der Daten war es erforderlich, die Proben für die radiologischen und chemischen Untersuchungen zeitgleich zu entnehmen. Die relativ geringen Probenmengen für die chemischen Untersuchungen werden standard-



mäßig mit einer Schlauchpumpe gewonnen. Im Anschluss daran erfolgte die Probenahme für die Rn-222-Analytik im Rahmen der Charakterisierungsmessungen. Dabei wurden spezielle radondichte Glasflaschen mit einem Volumen von 250 ml verwendet, die mit einer Schlauchpumpe entgasungsfrei mit ca. 100 ml Salzlösung befüllt wurden. Zum Abschluss wurde mittels Schöpfer jeweils ein 10-Liter-Kanister mit einer für alle radiologischen Messaufgaben ausreichenden Probenmenge von zumeist 10 Liter befüllt. Die Ermittlung der chemisch-physikalischen Parameter Dichte, Leitfähigkeit, Temperatur und pH-Wert erfolgte vor Ort bei der Probenahme durch den Bereich Standortüberwachung der Asse-GmbH.

Die Rn-222-Proben wurden am Probenahmetag in einer vom BfS mitgeführten Messapparatur (siehe Anhang C, Teil II) über Tage ausgemessen.

Die gefüllten 10-Liter-Kanister wurden in den untertägigen Probenaufbereitungsraum der Schachanlage Asse II gebracht. Dort erfolgte die weitere Aufteilung durch Aliquotierung der Probe gemäß Mengengerüst (vgl. Tabelle 2) in die benötigte Anzahl von Analyseproben zum Transport in die einzelnen Messlabore. Dabei wurde die Ausgangsprobe vor der Aliquotierung durch mehrmaliges, kräftiges Schütteln des 10-Liter-Kanisters homogenisiert und auf Niederschläge kontrolliert.

Die Salze an den vier festgelegten Messstellen (vgl. Tabelle 2) wurden in 300-ml-Kunststoffdosen gefüllt.

Die erforderliche Kennzeichnung kontaminierter Proben nach § 68 StrlSchV wurde von der Asse-GmbH durchgeführt.



5 MESSVERFAHREN

5.1 Verfahren zur gammaspektrometrischen Bestimmung

Das angewendete gammaspektrometrische Verfahren dient der Bestimmung der Aktivitätskonzentrationen von künstlichen und natürlichen Radionukliden in salzhaltigen Lösungen (Salzlösungen) mit einer Dichte von bis zu $1,36 \text{ g/cm}^3$. Damit ist dieses Verfahren geeignet, anfallende Salzlösungen der Schachanlage Asse II zu untersuchen.

Die gammaspektrometrische Bestimmung der Aktivitätskonzentrationen erfolgte mit zwei Reinstgermanium-Detektoren, deren relative Ansprechwahrscheinlichkeiten bezogen auf einen $3'' \times 3''$ NaI(Tl)-Kristall bei 40 % lagen und deren Halbwertsbreiten $1,95 \text{ keV}$ bezogen auf die 1332-keV -Gammalinie des Cobalt-60 (Co-60) betragen. Zur Abschirmung der Detektoren von Umgebungsstrahlung wurden diese innerhalb von Bleiburgen betrieben. Diese beiden Komponenten der Messanordnungen sind in Ultra-Low-Level-Konstruktion ausgeführt. Damit ist ein sehr niedriger Untergrund für die Messung der Gamma-Energielinien gewährleistet. Die verwendeten Detektoren können in einem Energiebereich von 10 keV bis 2 MeV eingesetzt werden.

Die 26 Salzlösungsproben wurden in ihrer Originalzusammensetzung in 1-Liter-Marinelli-Becher gefüllt und gemessen. Für die Bestimmung der vier entnommenen Salzproben wurde eine 250-ml-Polyethylenflasche verwendet. Die Füllhöhen der Salze lagen zwischen $2,0 \text{ cm}$ und $4,0 \text{ cm}$, bzw. die Einwaagen zwischen $42,6 \text{ g}$ Trockenmasse (TM) und $128,5 \text{ g}$ TM. Als Trocknungsfaktor der Salze wurden Werte zwischen $1,16$ und $1,22$ ermittelt. Um die geforderten Nachweisgrenzen zu erreichen, betragen die Messzeiten für Salzlösungen und Salze mindestens 80.000 Sekunden (~ 22 Stunden). Während jeder Messung wurden Zwischenauswertungen an bereits identifizierten Radionukliden vorgenommen, um auf eventuell auftretende Veränderungen der Homogenität der jeweiligen Messprobe im verwendeten Messgefäß reagieren zu können.

Neben den natürlichen Radionukliden Ra-228 und Pb-210 sowie K-40, das in allen Salzlösungen nachgewiesen werden kann, wurden die Salzlösungen bezüglich der langlebigen künstlichen Radionuklide Co-60, Nb-94, Ag-208m, Sb-125, I-129, Ba-133, Cs-137, Eu-152, Eu-154 und Am-241 untersucht.

Ausführlich wird das angewendete Verfahren im Anhang C, Teil I, beschrieben.

5.2 Verfahren zur Bestimmung von Radon-222

Die Methode beruht auf der teilweisen Entemanierung der Zutritts- oder Salzlösungen.

Aus dem zu messenden Wasserreservoir wird das Wasser (hier Salzlösung) in ein Glasgefäß gesaugt und ungefähr zur Hälfte gefüllt. Nach Einstellung des Verteilungsgleichgewichts von Radon zwischen Wasser und Luft in der Flasche wird ein Teil der Luft in eine Lucas-Kammer überführt. Die nach dem festgelegten Schema bestimmte Impulsrate der Lucas-Kammer ist ein Maß für die Radonaktivität in der abgesaugten Luft. Durch Bestimmung des aus der Flasche abgesaugten Anteils der Aktivität und Kenntnis des Verteilungskoeffizienten zwischen Luft und Wasser kann die Radonaktivität im Wasser der Probe sowie mit Kenntnis des Wasservolumens die Aktivitätskonzentration im Wasser bestimmt werden.

Ausführlich wird das angewendete Verfahren im Anhang C, Teil II, beschrieben.

5.3 Radiochemische Messverfahren

Im BfS wurden die Aktivitätskonzentrationen von H-3, C-14_{anorg.}, Sr-90, Tc-99, Pb-210, Po-210, Ra-226, Ra-228, U-234, U-235, U-238, Pu-238, Pu-239/Pu-240 und Am-241 in den Proben entsprechend der Angaben in Tabelle 2 (Mengengerüst) bestimmt. Analysen zu den Parametern C-14_{ges.} und C-14_{anorg.} wurden im URA durchgeführt, wobei die Bestimmung der Aktivitätskonzentration des anorganisch gebundenen C-14 (C-14_{anorg.}) als Maßnahme der Qualitätssicherung für 6 Proben konzipiert wurde. Eine Beschreibung der im URA angewandten Verfahren wurde dem BfS im Zusammenhang mit den Messergebnissen übermittelt (siehe Anhang D).

Eine Übersicht über die im Rahmen der Charakterisierung 2011 angewandten radiochemischen Verfahren, die notwendigen Probevolumina und die erreichbaren Nachweisgrenzen bei der Analyse von Salzlösungen gibt Tabelle 3; detaillierte Methodenbeschreibungen in Form von Messanleitungen sind für die im BfS angewandten Verfahren im Anhang C, Teil III, dokumentiert.

Tabelle 3: Zusammenfassende Darstellung der angewandten radiochemischen Verfahren zur Analyse von Salzlösungen im Rahmen der Charakterisierung 2011

Radionuklid	Bestimmungsmethode (BfS bzw. URA)	Volumen in l	Nachweisgrenze in Bq/l
H-3	Flüssigszintillationsmessung nach Destillation bzw. Extraktionschromatographie	0,050	ca. 7
C-14 _{ges.}	Vollständige Oxidation und Austreiben von CO ₂ im geschlossenen System, Carbonatfällung, Flüssigszintillationsmessung	0,25	ca. 0,08
C-14 _{anorg.}	Austreiben von CO ₂ im geschlossenen System, Carbonatfällung, Flüssigszintillationsmessung	1,0	ca. 0,05
Sr-90	Mitfällung an Calciumsulfat, Low-Level-Betamessung (Y-90)	1,0	ca. 1
Tc-99	Extraktionschromatographie und Flüssigszintillationsmessung	0,10	ca. 0,5
Pb-210 Po-210	Mitfällung an Eisenhydroxid, Extraktionschromatographie, Flüssigszintillationsmessung (Pb-210) Alphaspektrometrie (Po-210)	1,0	ca. 0,01 ca. 0,005
Ra-226 Ra-228	Mitfällung an Bariumsulfat, Emanometrie und Messung der α-Strahlung (Rn-222 und Folgeprodukte) bzw. Extraktionschromatographie und Low-Level-Betamessung (Ac-228)	2,5	ca. 0,002 ca. 0,01
U-234 U-235 U-238	Mitfällung an Calciumphosphat, Extraktionschromatographie, Alphaspektrometrie	0,10	ca. 0,01
Pu-228 Pu-239/240 Am-241	Mitfällung an Eisenhydroxid, Extraktionschromatographie, Alphaspektrometrie	0,10	ca. 0,01



5.4 Qualitätssicherung

Die Qualität der Messergebnisse wurde sichergestellt durch:

- qualifizierte Mitarbeiter,
- sachgerechte Beprobung aller für die Charakterisierung der Asse II notwendigen Messstellen (vergleiche Kapitel 3, Mengengerüst),
- Probenahme gemäß festgelegter Standards (gemäß Strahlenschutzfachanweisung STS-FAW-013: Probenahme [9]),
- Messtechnik und Messverfahren auf dem Stand von Wissenschaft und Technik (Anhang C) und
- rückverfolgbare Dokumentation über jede analysierte Probe.

Im Rahmen von qualitätsbegleitenden Maßnahmen erfolgten im Jahre 2009 Parallelauswertungen durch zwei unabhängige Institutionen für alle geforderten Radionuklide, die gammaspektrometrisch ermittelt werden konnten (jede Probe) und an ausgewählten Proben für die Radionuklide H-3, Ra-226 und Ra-228 [4]. Die Ergebnisse stimmten unter Beachtung der Messunsicherheiten gut überein.

Bei der diesjährigen Charakterisierungsmessung wurden an ausgewählten Proben Parallelauswertungen für C-14_{anorg.} von zwei unabhängigen Institutionen durchgeführt. Zusätzlich erfolgten Wiederholungsmessungen an ausgewählten Proben. Die Ergebnisse werden im Anhang B dargestellt und im Kapitel 6.4 diskutiert.

Um den Einfluss verschiedener Probenahmetechniken auf das Messergebnis bewerten zu können, erfolgte darüber hinaus an den Messstellen aus den Kontroll- und Überwachungsbereichen die Probenahme zum einen über eine Schlauchpumpe und zum anderen mittels eines Schöpfers (siehe Kapitel 4). Die Gegenüberstellung der Ergebnisse und eine Einschätzung bezüglich des Einflusses erfolgt im Kapitel 6.6.

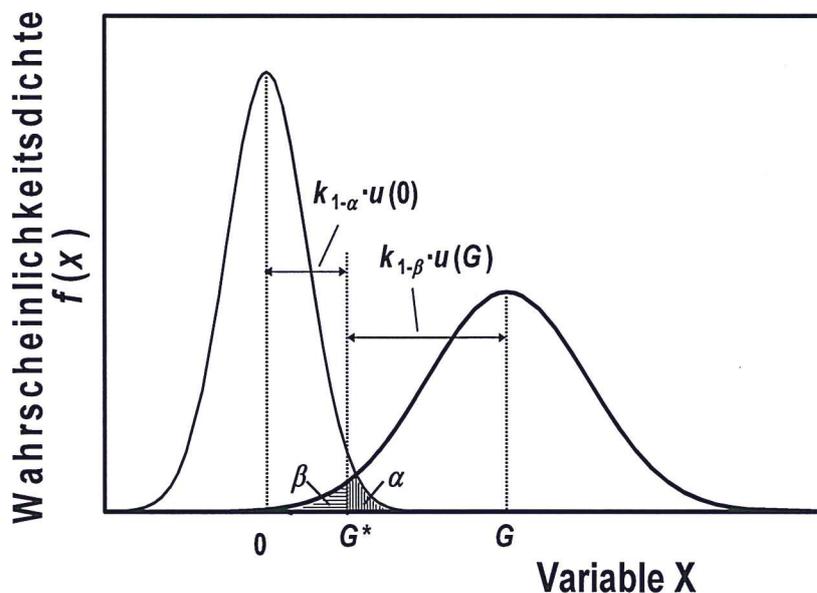
6 ERGEBNISSE UND DISKUSSION DER LABORANALYSEN

6.1 Erläuterung zu den radiologischen Messwerten

Die radiologischen Messwerte für die gemäß Mengengerüst (vgl. Kapitel 3, Tabelle 2) für jede Probe zu ermittelnden Radionuklide sind im Anhang B, Tabellen B-1 bis -30 angegeben. Die Tabellen enthalten die jeweiligen NWG und für Messwerte über der NWG auch die kombinierte Standardmessunsicherheit (2σ). Die kombinierte Standardmessunsicherheit setzt sich zusammen aus der Unsicherheit, die durch die Zählstatistik bedingt ist, sowie aus den Unsicherheiten des Kalibrierfaktors und der chemischen Ausbeute. Keine Berücksichtigung in der kombinierten Standardmessunsicherheit finden eventuell auftretende Inhomogenitäten des Probenmaterials.

In der Kernstrahlungsmesstechnik ist die Nachweisgrenze ein spezieller, berechneter Wert einer Größe (z. B. Aktivitätskonzentration der Salzlösung, spezifische Aktivität der Salze), der mit einem vorgegebenen Richtwert (zum Teil als geforderte Nachweisgrenze bezeichnet) verglichen werden soll, um zu entscheiden, ob ein Messverfahren für einen bestimmten Messzweck geeignet ist.

Die NWG kennzeichnet den kleinsten Wert der Messgröße, zu dem die möglichen Messwerte höchstens mit einer Wahrscheinlichkeit β unterhalb des Wertes der Erkennungsgrenze liegen. Dieser kleinste Wert der Messgröße kann somit mit dem gewählten Messverfahren mit einer statistischen Sicherheit von $1-\beta$ nachgewiesen werden. Abbildung 2 zeigt die schematische Darstellung zur Berechnung der Nachweisgrenze gemäß [10].



G^* Erkennungsgrenze; G Nachweisgrenze; $k_{1-\alpha}, k_{1-\beta}$ Quantile

Abbildung 2: Schematische Darstellung der Berechnung der Nachweisgrenze (vgl. Anhang C)



Im Anhang C werden alle Messverfahren vorgestellt, die für die Ermittlung repräsentativer Messwerte (Anhang B) angewendet worden sind. Die jeweiligen Verfahrensbeschreibungen beinhalten die Diskussion zur Anwendbarkeit des Verfahrens, das Verfahrensprinzip, eine Beschreibung der radiochemischen Trennung, die Beschreibung des Messprinzips, die Berechnung der Analysenergebnisse und deren Gesamtmessunsicherheit sowie die Berechnung erreichbarer Nachweisgrenzen.

6.2 Darstellung der radiologischen Messwerte

Die radiologischen Messwerte sind im Anhang B, Tabellen B-1 bis -30, angegeben. Die Tabelle 4 enthält im Auszug daraus eine Übersicht zu den wichtigsten Messergebnissen der radiologischen Analysen. Vorrangig betrachtet werden Radionuklide, die in den Salzlösungen mehrfach nachgewiesen werden konnten. Dies betrifft die Radionuklide H-3, C-14_{ges.}, C-14_{anorg.}, K-40, Cs-137, Po-210, Pb-210, Rn-222, Ra-226, Ra-228, U-233/U-234, U-235 und U-238. Eine Diskussion zum Radionuklid C-14 erfolgt gezielt im Kapitel 6.4. Separate Ausführung zum Rn-222 ist dem Kapitel 6.5 zu entnehmen.

Die künstlichen Radionuklide Nb-94, Ag-108m, Sb-125, I-129, Ba-133, Eu-152 und Eu-154 wurden in keiner Probe nachgewiesen.

Die künstlichen Radionuklide Co-60, Sr-90 und Tc-99 wurden in Proben der 750-m-Sohle in der Nähe der Kammern 4, 8 und 12 festgestellt. In der Probe P 750029 (MP_21) wurde eine Co-60-Aktivitätskonzentration von $3,7 \pm 0,3$ Bq/l und in der Probe P 750044 (MP_L4) eine Co-60-Aktivitätskonzentration von $0,29 \pm 0,10$ Bq/l ermittelt. Bei allen anderen Proben, auch in den dazugehörigen Salzen beider aufgeführten Proben, lagen die Gehalte an Co-60 unterhalb der NWG.

Die Betastrahler Sr-90 und Tc-99 wurden insgesamt in 12 Salzlösungen bestimmt, wobei Sr-90-Aktivitätskonzentrationen von etwa 0,4 Bq/l lediglich in Proben der Messstellen P 750029 (MP_21) und P 750042 (MP_L2) nachgewiesen wurden. Die weiteren Sr-90-Bestimmungen lieferten Messwerte unterhalb der NWG von etwa 0,05 Bq/l. Tc-99-Aktivitätskonzentrationen oberhalb der NWG von etwa 0,5 Bq/l ergaben sich mit einem Maximalwert von ca. 16 Bq/l an der Messstelle P 750029 (MP_21) und mit Werten zwischen 1 Bq/l und 3 Bq/l an den Probenahmeorten P 750042 (MP_L2), P 750043 (MP_L3) und P 750044 (MP_L4). Eine kritische Diskussion der ermittelten Tc-99-Messwerte sowie ein Vergleich mit den Vorjahreswerten erfolgt gesondert im Kapitel 6.7.

In 10 von 26 Salzlösungen wurde das künstliche Radionuklid Cs-137 nachgewiesen (siehe Tabelle 4). Der höchste Wert der Cs-137-Aktivitätskonzentration von 20.300 ± 1.200 Bq/l lag bei der Probe von der Probenahmestelle P 750029 (MP_21) vor. Mit einer Cs-137-Aktivitätskonzentration von 10.440 ± 550 Bq/l wies auch die Probe vom Probenahmeort P 750043 (MP_L3) eine hohe Kontamination auf, die um den Faktor 5 höher lag als in einer Probe von der gleichen Messstelle aus dem Jahre 2009 [4] (vgl. Kapitel 6.7).

In den abgelagerten Salzen der vier Probenahmestellen P 750029_F, P 750042_F, P 750043_F und P 75004_F wurde das künstliche Radionuklid Cs-137 nachgewiesen. Die höchste spezifische Aktivität von Cs-137 wurde mit 470.000 ± 25.000 Bq/kg TM erneut am Messpunkt P 750029 (MP_21) erhalten. An den drei anderen Messpunkten wurden deutlich niedrigere Werte der spe-



zifischen Aktivitäten für Cs-137 von 15.000 ± 800 Bq/kg TM (P 750044), 2.500 ± 140 Bq/kg TM (P 750043) und 238 ± 14 Bq/kg TM (P 750042) ermittelt.

Insgesamt niedrige Aktivitätskonzentrationen im Bereich von etwa 0,005 Bq/l bis 0,5 Bq/l ergaben sich für die natürlichen Radionuklide Ra-226 und Ra-228. Übereinstimmend mit den Untersuchungsergebnissen aus dem Jahr 2009 wurden die höchsten Aktivitätskonzentrationen von etwa 0,2 Bq/l (Ra-226) und 0,5 Bq/l (Ra-228) in Proben von Messstellen der 490-m- (MP_SB1) und 658-m-Sohle (L 658008, L 658008-S1) bestimmt.

An den Messstellen L 658008 und L 658008-S1 wurden mit $1,15 \pm 0,37$ Bq/l und $0,24 \pm 0,08$ Bq/l auch die höchsten Rn-222-Aktivitätskonzentrationen gemessen. Für die übrigen Messstellen ergaben sich Rn-222-Aktivitätskonzentrationen zwischen kleiner NWG (ca. 0,05 Bq/l) und 0,15 Bq/l. Die insgesamt sehr niedrigen Rn-222-Aktivitätskonzentrationen korrespondieren mit den insgesamt niedrigen Ra-226-Aktivitätskonzentrationen und bestätigen die Befunde aus dem Jahr 2008 [2]. Details der Rn-222-Ergebnisse werden im Kapitel 6.5 diskutiert.

Ebenfalls niedrige Aktivitätskonzentrationen mit Werten unterhalb von 0,1 Bq/l in sämtlichen Proben wurden für die natürlichen Uranisotope U-234, U-235 und U-238 ermittelt. Wie in den vorangegangenen Untersuchungen wurde ein auffällig niedriges Aktivitätsverhältnis U-234/U-238 von etwa 0,7 am Messpunkt P 750043 (MP_L3) festgestellt. Da die Aktivitäten des U-234 und des künstlichen Uranisotops U-233 bei der alphaspektrometrischen Messung nicht unterschieden werden können, sind die entsprechenden Messwerte stets als Summe in Form von „U-233/U-234“ angegeben.

Für das natürliche Radionuklid Pb-210 wurde ein Maximalwert der Pb-210-Aktivitätskonzentration von 18 ± 4 Bq/l an der Messstelle P 750044 (MP_L4) ermittelt. Dieser Wert und die Pb-210-Aktivitätskonzentrationen aller anderen Messstellen korrespondieren weitgehend mit den Analysenwerten aus dem Jahre 2009 [4]. Eine Ausnahme bildet die Messstelle P 750009 (MP_RS-b), bei der im Jahre 2011 in der Probe eine Aktivitätskonzentration von Pb-210 von $0,30 \pm 0,04$ Bq/l ermittelt wurde, die erheblich niedriger ist als der im Jahre 2009 ermittelte Wert von $5,9 \pm 0,7$ Bq/l. Niedrige Aktivitätskonzentrationen mit Werten unterhalb von etwa 0,03 Bq/l ergaben sich für Salzlösungen an den Messstellen der 490-m-Sohle (MP_SB1), der 658-m-Sohle (L 658008) und der 750-m-Sohle (P 750006-1), die letztlich nur ermittelt werden konnten, weil mit dem im BfS angewendeten Verfahren niedrigere Nachweisgrenzen gegenüber den vorangegangenen Jahren erreicht wurden.

Analog zur Charakterisierungsmessung aus dem Jahre 2009 wurde die höchste Po-210-Aktivitätskonzentration von $4,58 \pm 0,66$ Bq/l an der Messstelle P 750029 ermittelt (2009: $2,74 \pm 0,22$ Bq/l). Werte deutlich oberhalb der Nachweisgrenze für Po-210 wurden auch an allen Messstellen des Reicheltsumpfes (P 750009, P 750010, P 750061, P 750064) festgestellt. Diese Werte sind insgesamt vergleichbar mit den im Jahre 2009 ermittelten Po-210-Aktivitätskonzentrationen [4].

Alphaspektrometrische Bestimmungen der Plutoniumisotope Pu-238 und Pu-239/Pu-240 sowie vom Am-241 wurden nur an Salzlösungen der Messstellen P 750029 (MP_21), P 750042 (MP_L2), P 750043 (MP_L3) und P 750044 (MP_L4) durchgeführt. Sämtliche Messwerte lagen unterhalb der NWG von 0,01 Bq/l. Diese Aktivitätskonzentrationen sind aus radiologischer Sicht nicht relevant.



Tabelle 4: Übersicht der Messergebnisse der Aktivitätskonzentration in Salzlösungen in Bq/l

Messstelle	Sohle	H-3	C-14 _{ges.}	C-14 _{anorg.}	Cs-137
			URA	BfS	
MP_SB1	490	< NWG	< NWG	< NWG	< NWG
L 658008-S1	658	< NWG	n. b.	n. b.	< NWG
L 658008	658	< NWG	< NWG	< NWG	< NWG
L 725005	725	1.590 ± 176	0,16 ± 0,04	< NWG	< NWG
L 725006	725	97 ± 12	< NWG	< NWG	< NWG
P 725004	725	93 ± 11	< NWG	0,06 ± 0,02	< NWG
P 725007	725	1.330 ± 150	< NWG	0,07 ± 0,03	0,60 ± 0,06
P 725010	725	870 ± 96	0,85 ± 0,24	0,73 ± 0,11	< NWG
P 750049	750	42 ± 6	0,21 ± 0,04	< NWG	< NWG
P 750040	750	118 ± 14	n. b.	n. b.	< NWG
P 750061	750	169 ± 20	n. b.	n. b.	< NWG
P 750064	750	86 ± 11	< NWG	< NWG	< NWG
P 750009	750	171 ± 20	< NWG	< NWG	< NWG
P 750010	750	113 ± 13	n. b.	n. b.	< NWG
P 750039	750	304 ± 33	n. b.	n. b.	< NWG
P 750029	750	1.130.000 ± 170.000	31,2 ± 3,3	3,85 ± 0,56	20.300 ± 1.200
P 750006-1	750	2.410 ± 270	0,36 ± 0,23	0,17 ± 0,04	0,22 ± 0,06
P 750006-2	750	2.360 ± 260	0,66 ± 0,23	0,63 ± 0,10	< NWG
P 750007	750	170.000 ± 18.700	0,36 ± 0,24	< NWG	< NWG
P 750042	750	2.910.000 ± 440.000	1.030 ± 109	32,2 ± 4,6	707 ± 30
P 750043	750	2.460.000 ± 369.000	341 ± 36	61,1 ± 8,7	10.400 ± 550
P 750044	750	3.210.000 ± 481.000	78 ± 8	0,58 ± 0,09	2.090 ± 70 *)
P 750071	750	339 ± 38	< NWG	< NWG	7,5 ± 0,4
P 750023	750	1.810 ± 200	0,09 ± 0,04	< NWG	0,08 ± 0,03
P 925005	925	4.070 ± 720	< NWG	< NWG	9,8 ± 0,6
P 950001	950	7.820 ± 1.260	0,35 ± 0,24	0,09 ± 0,03	55 ± 3

NWG: Nachweisgrenze
n. b.: nicht bestimmt

*) Probenahme 03.11.2011



Tabelle 4: Übersicht der Messergebnisse der Aktivitätskonzentration in Salzlösungen in Bq/l (Fortsetzung)

Messstelle	Sohle	K-40	Po-210	Pb-210	Rn-222	Ra-226
MP_SB1	490	91 ± 6	0,005 ± 0,002	0,031 ± 0,006	0,09 ± 0,03	0,23 ± 0,03
L 658008-S1	658	100 ± 7	n. b.	0,019 ± 0,006	0,24 ± 0,08	0,24 ± 0,03
L 658008	658	91 ± 6	< NWG	0,030 ± 0,006	1,15 ± 0,37	0,23 ± 0,03
L 725005	725	32,6 ± 2,6	n. b.	< NWG ^{*)}	n. b.	0,006 ± 0,002
L 725006	725	203 ± 12	n. b.	< NWG ^{*)}	n. b.	0,016 ± 0,002
P 725004	725	215 ± 14	n. b.	< NWG ^{*)}	n. b.	0,016 ± 0,002
P 725007	725	830 ± 40	n. b.	< NWG ^{*)}	n. b.	0,005 ± 0,001
P 725010	725	375 ± 20	n. b.	< NWG ^{*)}	n. b.	0,008 ± 0,002
P 750049	750	248 ± 16	0,049 ± 0,009	0,38 ± 0,05	n. b.	0,009 ± 0,002
P 750040	750	79 ± 5	n. b.	< NWG ^{*)}	n. b.	0,010 ± 0,003
P 750061	750	195 ± 12	1,26 ± 0,18	5,6 ± 0,6 ^{*)}	0,08 ± 0,03	0,007 ± 0,002
P 750064	750	189 ± 12	0,055 ± 0,012	0,43 ± 0,06	0,09 ± 0,04	0,12 ± 0,01
P 750009	750	64 ± 5	0,08 ± 0,015	0,30 ± 0,04	0,07 ± 0,03	0,011 ± 0,002
P 750010	750	89 ± 6	0,50 ± 0,08	2,9 ± 0,5 ^{*)}	n. b.	0,046 ± 0,006
P 750039	750	35,6 ± 2,6	n. b.	< NWG ^{*)}	n. b.	n. b.
P 750029	750	44,1 ± 3,2	4,58 ± 0,66	< NWG ^{*)}	0,15 ± 0,06	< NWG ^{*)}
P 750006-1	750	520 ± 30	0,009 ± 0,003	0,026 ± 0,006	0,08 ± 0,03	0,014 ± 0,005
P 750006-2	750	439 ± 26	0,011 ± 0,003	0,040 ± 0,007	n. b.	0,009 ± 0,003
P 750007	750	96 ± 6	0,34 ± 0,05	1,4 ± 0,2	< NWG	0,010 ± 0,002
P 750042	750	379 ± 24	0,008 ± 0,002	0,38 ± 0,05	0,11 ± 0,04	0,015 ± 0,002
P 750043	750	509 ± 25	0,24 ± 0,04	0,66 ± 0,09	0,07 ± 0,03	0,010 ± 0,002
P 750044	750	700 ± 30 ^{**)}	2,0 ± 0,29	13 ± 4 ^{*)}	< NWG	0,019 ± 0,003
P 750071	750	24,0 ± 1,8	0,23 ± 0,03	0,79 ± 0,11	0,11 ± 0,04	0,039 ± 0,005
P 750023	750	68 ± 5	0,013 ± 0,004	0,066 ± 0,011	< NWG	0,011 ± 0,002
P 925005	925	18,0 ± 1,6	0,11 ± 0,02	0,22 ± 0,03	0,10 ± 0,04	0,022 ± 0,003
P 950001	950	23,5 ± 2,0	0,26 ± 0,04	0,36 ± 0,05	0,09 ± 0,04	0,010 ± 0,002

NWG: Nachweisgrenze ^{*)} Gammaspektrometrie ^{**)} Probenahme 03.11.2011
n. b.: nicht bestimmt



Tabelle 4: Übersicht der Messergebnisse der Aktivitätskonzentration in Salzlösungen in Bq/l (Fortsetzung)

Messstelle	Sohle	Ra-228	U-233/U-234	U-235	U-238	Am-241
MP_SB1	490	0,54 ± 0,08	< NWG	< NWG	< NWG	< NWG ^{*)}
L 658008-S1	658	0,54 ± 0,08	< NWG	< NWG	< NWG	< NWG ^{*)}
L 658008	658	0,50 ± 0,08	< NWG	< NWG	< NWG	< NWG ^{*)}
L 725005	725	< NWG	< NWG	< NWG	< NWG	< NWG ^{*)}
L 725006	725	0,034 ± 0,007	0,016 ± 0,006	< NWG	< NWG	< NWG ^{*)}
P 725004	725	0,017 ± 0,006	0,027 ± 0,008	< NWG	0,022 ± 0,007	< NWG ^{*)}
P 725007	725	< NWG	< NWG	< NWG	< NWG	< NWG ^{*)}
P 725010	725	< NWG	0,014 ± 0,006	< NWG	< NWG	< NWG ^{*)}
P 750049	750	< NWG	0,014 ± 0,005	< NWG	0,009 ± 0,004	< NWG ^{*)}
P 750040	750	< NWG	0,016 ± 0,006	< NWG	0,010 ± 0,005	< NWG ^{*)}
P 750061	750	0,085 ± 0,014	0,036 ± 0,010	< NWG	0,025 ± 0,008	< NWG ^{*)}
P 750064	750	0,092 ± 0,016	0,021 ± 0,007	< NWG	< NWG	< NWG ^{*)}
P 750009	750	< NWG	0,020 ± 0,007	< NWG	< NWG	< NWG ^{*)}
P 750010	750	0,13 ± 0,02	0,039 ± 0,010	< NWG	0,011 ± 0,005	< NWG ^{*)}
P 750039	750	n. b.	n. b.	n. b.	n. b.	< NWG ^{*)}
P 750029	750	< NWG ^{*)}	0,024 ± 0,008	< NWG	0,013 ± 0,006	< NWG
P 750006-1	750	< NWG	0,066 ± 0,014	< NWG	0,038 ± 0,010	< NWG ^{*)}
P 750006-2	750	< NWG	0,062 ± 0,015	< NWG	0,040 ± 0,012	< NWG ^{*)}
P 750007	750	< NWG	0,014 ± 0,006	< NWG	0,011 ± 0,005	< NWG ^{*)}
P 750042	750	0,077 ± 0,014	0,066 ± 0,016	< NWG	0,039 ± 0,011	< NWG
P 750043	750	< NWG	0,036 ± 0,008	< NWG	0,052 ± 0,011	< NWG
P 750044	750	< NWG	0,078 ± 0,017	< NWG	0,047 ± 0,012	< NWG
P 750071	750	0,050 ± 0,009	0,012 ± 0,005	< NWG	< NWG	< NWG ^{*)}
P 750023	750	< NWG	0,026 ± 0,008	< NWG	0,014 ± 0,005	< NWG ^{*)}
P 925005	925	0,097 ± 0,016	< NWG	< NWG	< NWG	< NWG ^{*)}
P 950001	950	< NWG	0,037 ± 0,009	< NWG	0,021 ± 0,006	< NWG ^{*)}

NWG: Nachweisgrenze

^{*)} Gammaskpektrometrie

n. b.: nicht bestimmt



Tabelle 5: Ergebnisse der chemischen Analysen der Salzlösungen *)

Messtelle	P 750029	P 750029	P 750042	P 750042	P 750042	P 750043	P 750043	P 750044	P 750044	P 750044	P 750007	P 750007	P 750007	P 750071	P 950001
Datum	13.07.11	13.07.11	13.07.2011	13.07.2011	13.07.2011	13.07.2011	13.07.2011	13.07.2011	13.07.2011	13.07.2011	12.07.2011	28.10.2011	13.07.2011	13.07.2011	
Ident.-Nr. (Chemie)	383	389	376	392	377	390	381	391	391	391	–	–	382	373	
Probenahmegerät	1	2	1	2	1	2	1	2	2	2	1	1	1	1	
Na g/l	2,03	2,29	69,0	73,3	30,1	30,2	11,5	12,3	12,3	12,3	3,52	3,70	1,50	1,64	
K g/l	1,45	1,66	13,2	12,4	17,9	17,9	21,9	22,3	22,3	22,3	3,47	3,83	0,86	0,991	
Ca g/l	0,129	0,141	0,253	0,266	–	–	0,087	0,133	0,133	0,133	0,42	0,23	0,143	0,090	
Mg g/l	121	118	35,3	32,3	64,2	64,4	86,4	85,1	85,1	85,1	112	118	123	125	
Cl g/l	331	325	195	194	221	220	265	263	263	263	310	326	350	344	
SO ₄ g/l	29,1	30,0	40,5	37,5	37,9	39,0	39,3	39,1	39,1	39,1	37,5	36,1	12,1	30,1	
Li mg/l	7,9	7,6	5,2	4,7	8,2	8,4	2,4	2,2	2,2	2,2	11,3	11,5	15,1	6,5	
B mg/l	104	105	44	41	62	63	69	66	66	66	100	98	48	62	
Al mg/l	< 1,4	< 1,4	< 1,3	< 1,3	< 1,3	< 1,3	< 1,3	< 1,3	< 1,3	< 1,3	< 1,3	< 1,4	< 1,4	< 1,4	
PO ₄ mg/l	< 10	< 10	< 9	< 9	–	–	< 9	< 9	< 9	< 9	< 10	< 10	< 10	< 10	
Fe mg/l	< 14	< 14	21	< 13	< 13	< 13	< 13	< 13	< 13	< 13	92	26	< 14	< 14	
Mn mg/l	40	38	5,5	4,8	11	11	85	82	82	82	11,8	9,2	3,4	3,0	
Cu mg/l	3,6	1,9	0,51	0,62	1,8	1,8	2,2	2,5	2,5	2,5	3,2	3,3	1,21	1,1	
Zn mg/l	67	64	49	51	74	74	148	145	145	145	29	29	28	92	
Br mg/l	5,688	5,478	2,261	2,122	3,026	3,037	3,338	3,358	3,358	3,358	5,39	5,76	8,773	6,397	
Rb mg/l	0,52	0,57	14,2	12,8	18,8	19,0	21,5	23,3	23,3	23,3	2,63	3,01	0,30	0,23	
Sr mg/l	0,35	0,33	5,93	8,66	0,115	0,112	0,053	0,036	0,036	0,036	0,13	0,13	0,37	0,46	
Cd mg/l	< 0,003	< 0,003	< 0,003	< 0,003	< 0,003	< 0,003	< 0,003	< 0,003	< 0,003	< 0,003	< 0,006	< 0,006	< 0,003	< 0,003	
Cs mg/l	0,030	0,029	0,323	0,293	0,155	0,154	0,664	0,782	0,782	0,782	0,085	0,094	0,007	0,035	
Ba mg/l	< 0,007	< 0,007	0,013	0,020	< 0,013	< 0,013	< 0,007	< 0,007	< 0,007	< 0,007	< 0,03	< 0,03	0,178	< 0,007	
Pb mg/l	3,42	3,55	0,04	< 0,03	0,77	0,77	5,88	5,12	5,12	5,12	2,12	1,43	1,64	1,61	
U mg/l	0,0006	0,0007	0,0025	0,0045	0,0034	0,0031	0,0043	0,0041	0,0041	0,0041	< 0,002	< 0,002	0,0007	0,0009	

Probenahmegerät: 1 = Schöpfer 2 = Schlauchpumpe *) TU Clausthal



6.3 Darstellung der chemischen Analysen

Die chemisch-physikalischen Untersuchungen erfolgten für alle am 12.07.2011 entnommenen Proben durch das akkreditierte Labor K-UTECH AG Salt Technologies Sondershausen. Die Ergebnisse sind im Prüfbericht 11-1050-1 (siehe Anhang E) für die Messpunkte P 750061 und P 750064 und im Prüfbericht 11-1218-1 (siehe Anhang F) für weitere 14 Messpunkte dargestellt.

Die Lösung aus dem Messpunkt P 750064, einer der sogenannten Reicheltsümpfe, ist gegenüber den vorangegangenen Analysen in 2009 chemisch verändert. Der Anteil an Calcium ist deutlich gestiegen, während der Anteil an Magnesium gesunken ist. Diese Veränderung ist zurückzuführen auf Reaktionen der Salzlösung mit dort eingebrachten Baustoffen, im Wesentlichen Kalksandstein. Das Material entzieht dabei der Lösung das Sulfat (Rückgang der Konzentration von Magnesiumsulfat) und reagiert mit dem Calcium aus dem Baustoff zu Gips (Calciumsulfat). Die Reaktion läuft solange ab, bis das Sulfat in der Lösung aufgebraucht ist. Die Kalksandsteinmauer wurde in 2007 errichtet, um die dort befindliche Strecke mit Sorelbeton zu verfüllen.

Die chemisch-physikalischen Untersuchungen für die höher kontaminierten Proben P 750029 (MP_21), P 750042 (MP_L2), P 750043 (MP_L3) und P 750044 (MP_L4) wurden von der Universität Clausthal durchgeführt (siehe Tabelle 5). Gegenüber dem Beginn der Überwachung des Messpunktes P 750043 in 2008 hat sich die chemische Zusammensetzung verändert. Der bereits in 2009 festgestellte Trend der Abnahme der $MgCl_2$ -Gehalte und der Zunahme der $NaCl$ -Gehalte hat sich bestätigt bzw. fortgesetzt. Die jetzt vorliegende chemische Zusammensetzung scheint konstant zu sein und ist, wie insbesondere auch am Messpunkt P 750042, der Deckgebirgslösung zu zuordnen. Weitere Änderungen an den Messpunkten gegenüber den Analysen aus 2009 konnten nicht festgestellt werden. Vorliegende Abweichungen liegen innerhalb der Schwankungsbreite bzw. sind durch Verdunstung verursacht.

Um den Einfluss verschiedener Probenahmemethoden auf das Messergebnis bewerten zu können, erfolgte an diesen Messstellen die Probenahme mittels einer Schlauchpumpe und eines Schöpfers (siehe Kapitel 4). Im Kapitel 6.6 erfolgt eine separate Gegenüberstellung und Diskussion der Ergebnisse. Neben den höher kontaminierten Proben wurden darüber hinaus chemisch-physikalische Untersuchungen an weiteren drei Salzlösungen durchgeführt. Die Ergebnisse sind gleichfalls in der Tabelle 5 dargestellt.

6.4 Untersuchungen zu Kohlenstoff-14

Es wurden 21 Proben hinsichtlich ihres Gehaltes an C-14 untersucht (siehe Tabelle 4 und Anhang B). Dabei wurde zum ersten Mal sowohl der Gesamt-C-14-Gehalt als auch der Anteil des anorganisch gebundenen C-14 bestimmt. Aus der Differenz kann der Gehalt an organisch gebundenem C-14 ermittelt werden, der ggf. Rückschlüsse auf die Herkunft des Radionuklids zulässt.

Der Gesamt-C-14-Gehalt wurde durch das Zentrale Radionuklidlaboratorium der Universität Regensburg bestimmt, der anorganisch gebundene C-14-Anteil wurde im radiochemischen Labor SW 1.5 des BfS ermittelt. Die Vorgehensweise sowie die genauen Daten sind den entsprechenden Anhängen zu entnehmen.

In 12 der untersuchten 21 Proben wurde ein Gesamt-C-14-Gehalt oberhalb der Nachweisgrenze festgestellt, die Proben P 750029, P 750042, P 750043 und P 750044 wiesen deutliche Gehalte oberhalb 10 Bq/l auf. Der höchste Gehalt von 1.030 ± 109 Bq/l wurde wie in den Jahren zuvor in



einer Probe des Messpunktes P 750042 (Sohlenschlitz westlich Kammer 4) gemessen. Tabelle 6 stellt die Gesamt-C-14-Gehalte der Jahre 2008 bis 2011 einander gegenüber. Dabei zeigt sich, dass der Gesamt-C-14-Gehalt der Proben P 750029, P 750043 und P 750044 deutlich und stetig zugenommen hat, der der Probe P 750042 zwar hoch, aber stabil ist.

In 10 der untersuchten Proben wurde ein Gehalt an anorganisch gebundenem C-14 oberhalb der Nachweisgrenze festgestellt, die Proben P 750029, P 750042 und P 750043 wiesen deutliche Gehalte oberhalb 1 Bq/l auf. In Tabelle 7 sind die Gehalte an anorganisch gebundenem C-14, sofern sie oberhalb der Nachweisgrenze liegen, inklusive Wiederholungsmessungen zur Qualitätssicherung und Vergleichsmessungen mit dem URA dargestellt.

Die Wiederholungsmessungen wurden vier bis sechs Wochen nach den ersten Messungen durchgeführt und stimmen sehr gut mit den Originalauswertungen überein.

Tabelle 6: Gesamt-C-14-Gehalte in Bq/l

Messstelle	2008 [2]	2009 [4]	2010 [3]	2011
P 750029	4,9 ± 0,9	8,89 ± 1,56	9 ± 1	31,2 ± 3,3
P 750042	1.070 ± 190	1.110 ± 195	1.050 ± 110	1.030 ± 109
P 750043	11,8 ± 2,1	29,9 ± 5,2	75 ± 8	341 ± 36
P 750044	6,3 ± 1,1	11,9 ± 2,1	13 ± 1	78 ± 8

Tabelle 7: Gehalte von anorganisch gebundenem C-14 in Bq/l

Messstelle	C-14 _{anorg.} SW 1.5	C-14 _{anorg.} ^{*)} SW 1.5	C-14 _{anorg.} URA
P 725004	0,06 ± 0,02		
P 725007	0,07 ± 0,03		
P 725010	0,73 ± 0,11	0,71 ± 0,12	
P 750029	3,85 ± 0,56	3,60 ± 0,53	2,9 ± 0,4
P 750006-1	0,17 ± 0,04	0,14 ± 0,04	
P 750006-2	0,63 ± 0,10	0,52 ± 0,09	
P 750042	32,2 ± 4,6	30,1 ± 4,3	18,9 ± 2,4
P 750043	61,1 ± 8,7	62,9 ± 9,0	72 ± 9
P 750044	0,58 ± 0,09	0,72 ± 0,11	
P 950001	0,09 ± 0,03		

*) Wiederholungsmessung

Für sechs höher kontaminierte Proben wurden Vergleichsmessungen mit dem URA durchgeführt. Bei drei der Proben lag der Gehalt an anorganisch gebundenem C-14 jeweils unterhalb der Nachweisgrenze. Die Ergebnisse von zwei Proben stimmen unter Berücksichtigung der erhaltenen Gesamtmessunsicherheiten überein, bei der dritten Probe liegen die Ergebnisse des URA's etwas niedriger.



Aufgrund des deutlichen Unterschiedes zwischen den Gehalten an Gesamt-C-14 (Tabelle 6) und anorganisch gebundenem C-14 (Tabelle 7) in den Proben P 750029, P 750042, P 750043 und P 750044 muss hier ein großer Anteil des C-14 in organisch gebundener Form vorliegen.

Für die jeweils sehr unterschiedlichen Anteile von organisch und anorganisch gebundenem C-14 werden als mögliche Ursache unterschiedliche Freisetzungsmechanismen diskutiert. So entsteht z. B. durch mikrobielle Zersetzung von zellulosehaltigen radioaktiven Abfallmaterialien C-14 in Form von Kohlendioxid. Das Kohlendioxid wird von der Salzlösung aufgenommen und steht mit dem in der Salzlösung vorliegenden Hydrogencarbonat im Gleichgewicht. Der unterschiedliche anorganische C-14-Anteil in Salzlösungen ist demnach stark von der Intensität des C-14-Quellterms (Luftpfad) in der Einlagerungskammer abhängig.

Der organisch gebundene C-14-Anteil in der Salzlösung ist dagegen auf die Zersetzung zellulosehaltiger Materialien zurückzuführen. Diese werden von der Salzlösung als ungelöste Teilchen aufgenommen (Lösungspfad), z. B. indem die Salzlösung mit den Abfällen in Kontakt tritt, und mit der Lösung außerhalb der Einlagerungskammer transportiert.

Der stetige Anstieg des Gehaltes an Gesamt-C-14 in den Proben P 750029, P 750043 und P 750044 deutet darauf hin, dass Salzlösungen mit organischem Material aus Einlagerungskammern freigesetzt werden. Bei der Messstelle P 750029 kann der Anstieg der Gesamt-C-14-Aktivitätskonzentration im Gegensatz dazu auch durch physiko-chemische Prozesse bedingt sein.

Der nahezu konstante Gehalt an Gesamt-C-14, Tritium und Cs-137 in der Probe P 750042 legt den Schluss nahe, dass in den letzten Jahren durch Salzlösungen keine nennenswerte Freisetzung aus der Einlagerungskammer erfolgte.

Für eine Interpretation der stofflichen Zusammensetzung der organischen Anteile werden weiterführende Untersuchungen empfohlen, damit geklärt werden kann, inwieweit Anteile der mikrobiellen Zersetzung von zellulosehaltigen Materialien bzw. andere organische Stoffe vorliegen.

6.5 Untersuchungen zur Radon-222-Aktivitätskonzentration

Es wurden 16 Salzlösungsproben bezüglich ihrer Rn-222-Aktivitätskonzentration untersucht. Das analytische Verfahren ist im Anhang C beschrieben. Im Vordergrund standen dabei die Fragen, ob die Rn-222-Aktivitätskonzentration in den Salzlösungen des Nahbereichs der Einlagerungskammern ggf. erhöht ist und ob damit die erhöhten Pb-210-Aktivitätskonzentrationen in einigen Salzlösungsvorkommen erklärt werden können. Die Messergebnisse sind im Anhang B und zusammenfassend in Tabelle 4 dargestellt.

Die Rn-222-Aktivitätskonzentrationen variieren zwischen kleiner 0,05 Bq/l und 1,15 Bq/l, der Mittelwert beträgt 0,14 Bq/l (Median 0,09 Bq/l). Die höchsten Messwerte wurden dabei nicht im Nahbereich der Einlagerungskammern, sondern in der Lösung, die aus dem Nebengestein in das Grubengebäude eintritt und im Abbau 3 auf der 658-m-Sohle gefasst wird (L 658008), gemessen. Der Rn-222-Wert beträgt hier in der frischen Zutrittslösung $1,15 \pm 0,37$ Bq/l und im Zwischenspeicherbecken (40 m^3) auf der 658-m-Sohle $0,24 \pm 0,08$ Bq/l. Im restlichen Grubenbereich ist die Rn-222-Aktivitätskonzentration der Salzlösung kleiner gleich 0,15 Bq/l.

Die an der Messstelle L 658008 gemessene Rn-222-Aktivitätskonzentration korrespondiert mit Messwerten für das Grundwasser im Nebengestein der Schachanlage Asse II. Eine Grundwasserprobe aus der südsüdöstlich der Schachanlage abgeteufte Bohrung Remlingen 8 aus 600 m



Tiefe ergab eine Rn-222-Aktivitätskonzentration von 0,7 Bq/l [3], also in der gleichen Größenordnung wie an der Messstelle L 658008.

Das Aktivitätsverhältnis von Rn-222 zu seinem Mutternuklid Ra-226 schwankt insgesamt zwischen 0,39 im Speicherbecken 1 auf der 490-m-Sohle und 11,4 an der Messstelle P 750061 (Reicheltsumpf). Werte kleiner 1 wurden außer beim Speicherbecken 1 nur an der Messstelle P 750064 (0,75) gemessen.

Die insgesamt niedrigen Rn-222-Aktivitätskonzentrationen in den Salzlösungen, auch im Bereich der zweiten südlichen Richtstrecke nach Westen vor den Einlagerungskammern 4 und 8, korrespondieren mit den insgesamt relativ niedrigen Rn-222-Aktivitätskonzentrationen in den Grubenwettern der Schachanlage Asse II. In der zweiten südlichen Richtstrecke nach Westen wurden beispielsweise im Jahr 2010 Monatsmittelwerte der Rn-222-Aktivitätskonzentration von lediglich 18,4 Bq/m³ bis 30,4 Bq/m³ in der Grubenluft gemessen [11].

Für einen Vergleich von Rn-222-Aktivitätskonzentrationen mit den Ra-226-Aktivitätskonzentrationen eignet sich die Salzlösung (frische Zutrittslösung) aus der Probenahmestelle L 658008. An dieser Probenahmestelle handelt es sich um eine Salzlösung, die aus dem Deckgebirge über die desintegrierte Steinsalzbarriere dem Grubengebäude Zutritt. Von den eindringenden Lösungsmengen wird in dem Abbau 3/658 ca. 10 m³ pro Tag aufgefangen und im 40-m³-Sammelbehälter zwischengespeichert, anschließend auf die 490-m-Sohle gepumpt und im Speicherbecken 1 (SB 1) gelagert.

Tabelle 8: Rn-222- und Ra-226-Aktivitätskonzentrationen der Probe 658008 an verschiedenen Standorten in der Asse II

Messstelle	Beschreibung	Rn-222-Aktivitätskonzentration in Bq/l	Ra-226-Aktivitätskonzentration in Bq/l
L 658008	frische Zutrittslösung vor Abbau 3 auf der 658-m-Sohle	1,15 ± 0,37	0,23 ± 0,03
L 658008-S1	Sammelbehälter 1 (40 m ³) auf der 658-m-Sohle	0,24 ± 0,08	0,24 ± 0,03
SB1	Speicherbecken 1 auf der 490-m-Sohle	0,09 ± 0,03	0,21 ± 0,03

In Auswertung der in Tabelle 8 dargestellten Messwerte an den verschiedenen Stellen im Grubengebäude können folgende Schlüsse gezogen werden:

- Nachdem die Zutrittslösung an der Messstelle L 658008 ausgetreten ist, findet keine weitere Anreicherung von Rn-222 statt, da in der Salzlösung im abgedeckten Sammelbehälter (40 m³) auf der 658-m-Sohle nahezu radioaktives Gleichgewicht zwischen Rn-222 und seinem Mutterradionuklid Ra-226 festgestellt wurde.
- Eine erkennbare Emanation von Rn-222 aus der Salzlösung im abgedeckten Sammelbehälter (40 m³) auf der 658-m-Sohle kann nicht festgestellt werden, da bei Emanation von Rn-222 aus dem Sammelbehälter der Wert der Rn-222-Aktivitätskonzentration signifikant unterhalb der Aktivitätskonzentration vom Ra-226 liegen würde.



- c) Beim Umschlag der Zutrittslösung von der 658-m-Sohle auf die 490-m-Sohle wird ein Teil des Rn-222 aus der Salzlösung ausgetrieben, die Aktivitätskonzentration von Rn-222 liegt deshalb im Speicherbecken auf der 490-m-Sohle unter dem Wert vom Ra-226. Da das Pumpen täglich stattfindet, kann es keine Gleichgewichtseinstellung in den Speicherbecken geben. Dies ist nur möglich, wenn in einem Zeitraum von 3 Wochen (bestimmend ist die Halbwertszeit von Rn-222 mit 3,8 Tagen) keine Zutrittslösung von der 658-m-Sohle auf die 490-m-Sohle gepumpt wird.

Gestützt werden diese Schlussfolgerungen durch den Vergleich der Messwerte in Tabelle 9. Hier wird nur die frische Zutrittslösung, die am 12.07. entnommen wurde, betrachtet. Nach einem Zeitraum von weniger als 13 Tagen befinden sich die Rn-222-Folgeprodukte (FP) Pb-214 und Bi-214 und somit auch Rn-222 bereits im radioaktiven Gleichgewicht mit dem Mutterradionuklid Ra-226. Die Feststellungen a) und b) finden erneute Bestätigung. Die Verringerung der Aktivitätskonzentration vom Rn-222 nach der Probenahme kann hinreichend durch den radioaktiven Zerfall des überschüssigen Rn-222 bezogen auf Ra-226 in der frischen Zutrittslösung erklärt werden.

Tabelle 9: Veränderung der Rn-222-Aktivität der Probe L 658008 (frischen Zutrittslösung) in Abhängigkeit von der Zeit

Radionuklid	Messzeitpunkt/Messverfahren	Rn-222-Aktivitätskonzentration in Bq/l
Rn-222	12.07.2011 (unmittelbar nach der Probeentnahme, Brutto-Alphaessung)	1,15 ± 0,37
Rn-222-FP		
Pb-214	25.07.2011 (Gammasspektrometrie)	0,19 ± 0,06
Bi-214	25.07.2011 (Gammasspektrometrie)	0,22 ± 0,07
Ra-226	04.08.2011 (Emanometrie)	0,23 ± 0,03

Folgender Schluss kann aus dem Vergleich der Rn-222-Aktivitätskonzentrationen der frischen Zutrittslösungen der Probenahmestelle L 658008 an den verschiedenen Stellen im Grubengebäude und zu den verschiedenen Messzeitpunkten gewonnen werden:

Nach Austritt der Salzlösung ins Grubengebäude stellt sich spätestens nach fünf Halbwertszeiten des Rn-222 (nach ca. 21 Tagen) radioaktives Gleichgewicht zwischen Rn-222 und seinem Mutterradionuklid Ra-226 in einer ruhenden Salzlösung ein. Eine nennenswerte Emanation aus den Salzlösungen findet nicht statt. Ruhende Salzlösungen stellen keine nennenswerte Quelle von Rn-222 in Grubenwettern dar.

Die Bestimmung der Rn-222-Aktivitätskonzentration kann zur Plausibilisierung der ermittelten Ra-226-Aktivitätskonzentration an ausgewählten Messstellen genutzt werden. Da dies deutlich einfacher durch gammasspektrometrische Ermittlung der Radonfolgeprodukte an ausgewählten Messstellen durchgeführt werden kann, wird empfohlen, bei zukünftigen Charakterisierungsvorhaben auf die Bestimmung der Rn-222-Aktivitätskonzentration zu verzichten. An den Probenahmestellen L 658008 (Zutrittsstelle), L 658008 (Sammelbehälter) und Speicherbecken auf der 490-m-Sohle sollten jedoch zukünftig die Rn-222-Bestimmungen weiter durchgeführt werden, um die oben genannten Annahmen noch besser verifizieren zu können.



6.6 Bewertung des Einflusses der Probenahme auf die chemischen Messgrößen

Bei der diesjährigen Beprobung wurde u. a. geprüft, welchen Einfluss das Probenahmeverfahren (Schöpfer oder Schlauchpumpe) auf das Analysenergebnis hat. Dazu wurden an vier Messstellen, die aufgrund vermuteter Dichteschichtungen und anderer Faktoren als kritisch hinsichtlich der Probenahme angesehen wurden, Vergleichsmessungen bei den chemischen Parametern durchgeführt. Untersucht wurde jeweils eine Probe, die mit dem bei der Asse-GmbH üblichen Probenahmeverfahren für größere Probenmengen gewonnen wurde (Entnahme einer größeren Lösungsmenge mittels eines Schöpfers und anschließende Aliquotierung im untertägigen Probenaufbereitungsraum in die jeweils benötigten Probenmengen) und eine Probe, die mit dem bei der Asse-GmbH üblichen Probenahmeverfahren für kleinere Probenmengen (Befüllung des Probengefäßes unmittelbar vor Ort mittels einer Schlauchpumpe ohne anschließende Aliquotierung) gewonnen wurde. Die Ergebnisse der chemischen Vergleichsmessungen sind in Tabelle 5 dargestellt.

Die Gegenüberstellung zeigt, dass die Messergebnisse an den mit unterschiedlichen Verfahren gewonnenen Proben trotz der vermuteten kritischen Beprobungssituation bei Berücksichtigung der üblichen Fehlergrenzen der analytischen Verfahren gleich sind. Größere Abweichungen sind nur beim Spurenelement Kupfer an der Messstelle P 750029 und beim Spurenelement Blei an der Messstelle P 750044 zu verzeichnen und nicht systematisch für den Messvergleich. Es ist festzustellen, dass beide Probenahmeverfahren redundante Messergebnisse liefern. Im Routinebetrieb sollte das Probenahmeverfahren dennoch an den jeweiligen Messstellen nicht variiert werden, um die Vergleichbarkeit der Daten nicht zu gefährden.

6.7 Vergleich der Ergebnisse der radiologischen Messungen aus den Jahren 2008, 2009 und 2011

Nachfolgend werden die Ergebnisse der K-40-, H-3- und Cs-137-Bestimmungen aller Messpunkte der aktuell durchgeführten Charakterisierungsmessung mit den Ergebnissen der Charakterisierungsmessungen aus den Jahren 2008, 2009 und 2010 verglichen [2, 3, 4]. Dabei werden in den nachfolgenden Tabellen 10 bis 12 auch die Messpunkte aufgeführt, die bei vorangegangenen Charakterisierungsmessprogrammen nicht vorhanden waren. Diese Messpunkte besitzen an den betreffenden Stellen für die Jahre 2008 und/oder 2009 den Vermerk „n. b.“ (nicht bestimmt). Sofern sich Abweichungen an den einzelnen Messstellen über den genannten Zeitraum von 2008 bis 2011 für die Radionuklide Sr-90, Tc-99, Ra-226, Ra-228, Pb-210 oder Po-210 ergeben haben, werden diese im Anschluss diskutiert; für das Radionuklid C-14 enthält Kapitel 6.4 Angaben über festgestellte Änderungen der Aktivitätskonzentrationen.

Die Aktivitätskonzentration von K-40 der Jahre 2008, 2009 und 2011 ist in der Tabelle 10 angegeben. Die K-40-Aktivitätskonzentration spiegelt den natürlichen Anteil am Element Kalium in den Salzlösungen wider. Radiologisch ist K-40 ohne Bedeutung. Veränderungen der K-40-Aktivitätskonzentrationen können aber ein Indiz für veränderte Wege der Zutrittslösungen an den betreffenden Messpunkten sein. Bei der Charakterisierung von Probenahmestellen mit geringem Zufluss, insbesondere auf der 725-m-Sohle und 750-m-Sohle, muss aber berücksichtigt werden, dass die gemessene Aktivitätskonzentration ggf. abhängig ist vom Zeitpunkt des letztmaligen Leerpumpens eines Laugensumpfes oder dem durchgeführten Laugenmanagement.



Tabelle 10: Vergleich der Ergebnisse der K-40-Messung aus den Jahren 2008, 2009 und 2011, Angabe der Aktivitätskonzentration in Bq/l

Messstelle	Sohle	2008 [2]	2009 [4]		2011
			BfS	IAF	
MP_SB1	490	102 bis 115	140	138	91
L 658008-S1	658	n. b.	93	95	100
L 658008	658	91	88	94	91
L 725005	725	184	23	33	32,6
L 725006	725	168	170	169	203
P 725004	725	256	253	253	215
P 725007	725	850	920	900	830
P 725010	725	n. b.	n. b.	n. b.	375
P 750049	750	420	278	306	248
P 750040	750	94	59	75	79
P 750061	750	Messstellen Reicheltsumpf 96	360	424	195
P 750064	750		n. b.	n. b.	189
P 750009	750		164	185	64
P 750010	750		55	42	89
P 750039	750	n. b.	28	28	35,6
P 750029	750	176	40	57	44,1
P 750006-1	750	470	557	584	520
P 750006-2	750				439
P 750007	750	415	154	124	96
P 750042	750	395	471	446	379
P 750043	750	295	457	461	509
P 750044	750	560	476	467	700 ^{*)}
P 750071	750	n. b.	n. b.	n. b.	24,0
P 750023	750	n. b.	n. b.	n. b.	68
P 925005	925	n. b.	n. b.	n. b.	18,0
P 950001	950	n. b.	23	31	23,5

n. b.: nicht bestimmt

^{*)} Probenahme 03.11.2011



Tabelle 11: Vergleich der Ergebnisse der H-3-Messung aus den Jahren 2008, 2009 und 2011, Angabe der Aktivitätskonzentration in Bq/l

Messstelle	Sohle	2008 [2]	2009 [4]		2011
			BfS	IAF	
MP_SB1	490	144 bis 254	108	118	< NWG
L 658008-S1	658	14	< NWG	n. b.	< NWG
L 658008	658	< NWG	< NWG	< NWG	< NWG
L 725005	725	1.770	1.270	n. b.	1.590
L 725006	725	143	109	n. b.	97
P 725004	725	160	119	n. b.	93
P 725007	725	1.900	1.910	n. b.	1.330
P 725010	725	n. b.	n. b.	n. b.	870
P 750049	750	131	61,3	58	42
P 750040	750	432	263	n. b.	118
P 750061	750	Messstellen Reicheltsumpf 295	58,5	61	169
P 750064	750		n. b.	n. b.	86
P 750009	750		130	n. b.	171
P 750010	750		n. b.	n. b.	113
P 750039	750	n. b.	504	n. b.	304
P 750029	750	1.900.000	1.400.000	1.240.000	1.130.000
P 750006-1	750	2.220	1.270	1.230	2.410
P 750006-2	750				2.360
P 750007	750	3.290	75.700	79.000	170.000
P 750042	750	3.300.000	3.120.000	n. b.	2.910.000
P 750043	750	1.300.000	2.470.000	1.960.000	2.460.000
P 750044	750	3.500.000	3.230.000	n. b.	3.210.000
P 750071	750	n. b.	n. b.	n. b.	339
P 750023	750	n. b.	n. b.	n. b.	1.810
P 925005	925	n. b.	n. b.	n. b.	4.070
P 950001	950	n. b.	5.110	4.250	7.820

n. b.: nicht bestimmt
 NWG: Nachweisgrenze



Tabelle 12: Vergleich der Ergebnisse der Cs-137-Messung aus den Jahren 2008, 2009 und 2011, Angabe der Aktivitätskonzentration in Bq/l

Messstelle	Sohle	2008 [2]	2009 [4]		2011
			BfS	IAF	
MP_SB1	490	< NWG	< NWG	< NWG	< NWG
L 658008-S1	658	< NWG	< NWG	< NWG	< NWG
L 658008	658	< NWG	< NWG	< NWG	< NWG
L 725005	725	< NWG	< NWG	< NWG	< NWG
L 725006	725	< NWG	< NWG	< NWG	< NWG
P 725004	725	< NWG	< NWG	< NWG	< NWG
P 725007	725	< NWG	0,41	0,46	0,60
P 725010	725	n. b.	n. b.	n. b.	< NWG
P 750049	750	4,9	< NWG	< NWG	< NWG
P 750040	750	< NWG	< NWG	< NWG	< NWG
P 750061	750	Messstellen Reicheltsumpf < NWG	< NWG	< NWG	< NWG
P 750064	750		n. b.	n. b.	< NWG
P 750009	750		< NWG	< NWG	< NWG
P 750010	750		< NWG	< NWG	< NWG
P 750039	750	n. b.	< NWG	< NWG	< NWG
P 750029	750	54.000	28.000	31.330	20.300
P 750006-1	750	< NWG	0,15	0,19	0,22
P 750006-2	750				< NWG
P 750007	750	< NWG	< NWG	< NWG	< NWG
P 750042	750	620	681	625	707
P 750043	750	58	2.170	2.120	10.440
P 750044	750	1.130	134	150	2.090 ^{*)}
P 750071	750	n. b.	n. b.	n. b.	7,5
P 750023	750	n. b.	n. b.	n. b.	0,08
P 925005	925	n. b.	n. b.	n. b.	9,8
P 950001	950	n. b.	32	36	55

n. b.: nicht bestimmt^{*)} Probenahme 03.11.2011
 NWG: Nachweisgrenze



Im Vergleich zu den Jahren 2008 und 2009 kann festgestellt werden, dass die K-40-Aktivitätskonzentration an der überwiegenden Anzahl der Messstellen in der gleichen Größenordnung liegt. Abweichungen wurden lediglich an nachfolgenden Messstellen festgestellt:

- L 725005 (MP_RL1): Die Aktivitätskonzentration von K-40 ist deutlich niedriger als im Jahr 2008; vergleichbar mit dem Ergebnis aus dem Jahre 2009.
- P 750049 (MP_QN): Die Aktivitätskonzentration von K-40 ist niedriger als im Jahr 2008 und 2009; mit fallender Tendenz.
- P 750029 (MP_21): Die Aktivitätskonzentration von K-40 ist deutlich niedriger als im Jahr 2008; vergleichbar mit dem Ergebnis aus dem Jahre 2009.
- P 750007 (MP_37): Die Aktivitätskonzentration von K-40 ist niedriger als im Jahr 2008 und 2009; mit fallender Tendenz.
- P 750043 (MP_L3): Die Aktivitätskonzentration von K-40 ist höher als im Jahr 2008 und 2009; mit steigender Tendenz.

In den Tabellen 11 und 12 werden die Werte beider Leitnuklide H-3 und Cs-137 gegenübergestellt. Beim H-3 ist zu beachten, dass Änderungen der Aktivitätskonzentration in den Salzlösungen auch auf Veränderungen in der Bewetterung zurückgeführt werden können.

Bei der überwiegenden Anzahl der Messstellen wurden vergleichbare oder in ihrer Tendenz fallende H-3-Aktivitätskonzentrationen bezogen auf die Jahre 2008 und 2009 festgestellt. Ausnahmen bilden nachfolgende zwei Messstellen:

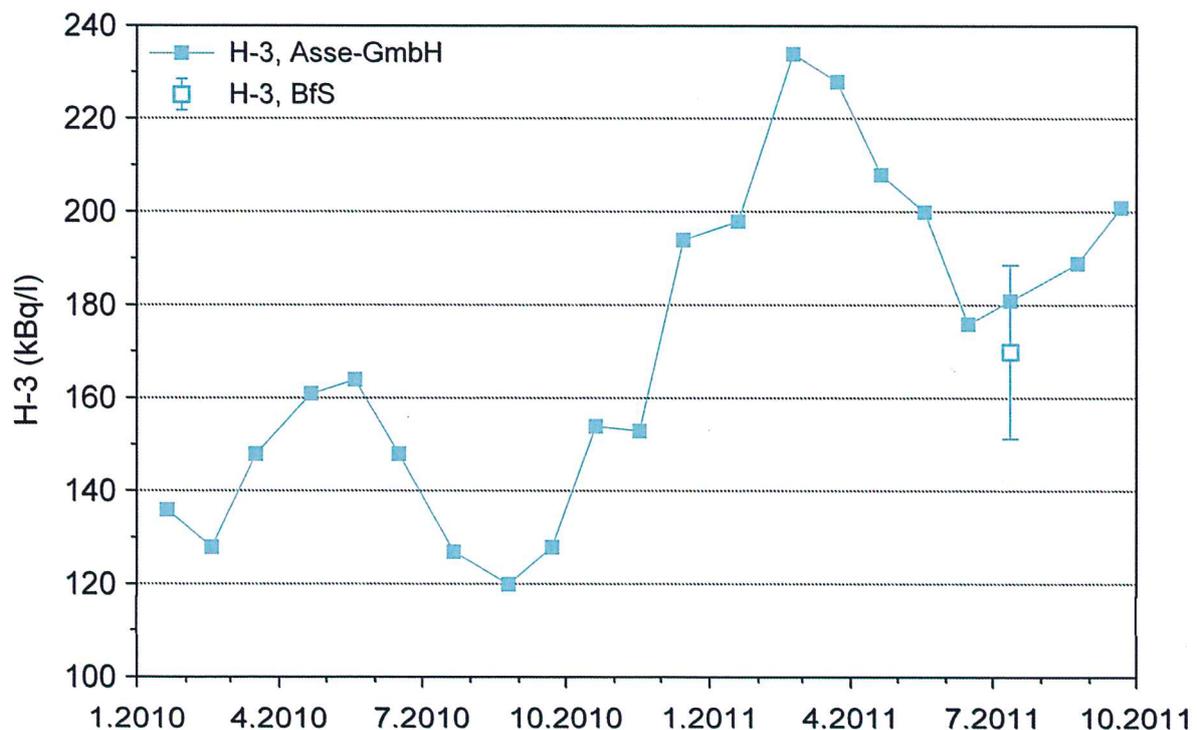


Abbildung 3: Zeitlicher Verlauf der H-3-Aktivitätskonzentration an der Messstelle P 750007



- P 750007 (MP_37): Die H-3-Aktivitätskonzentration ist deutlich ansteigend, bezogen auf das Jahr 2008 um den Faktor 50, bezogen auf das Jahr 2009 um mehr als den Faktor 2. In Abbildung 3 ist der Verlauf des Aktivitätsanstiegs seit dem 01.01.2010 dargestellt. Die Messwerte wurden von der Asse-GmbH zur Verfügung gestellt. Der Anstieg der Tritiumkonzentration in der Salzlösung ist nicht mehr über eine Anreicherung tritiumhaltiger Grubenluft erklärbar. Vielmehr ist zu vermuten, dass sich mit der Verfüllung von Abbau 9 die ursprünglichen Fließwege im Abbau verändert haben. Dadurch stehen die Salzlösungen über Luftaustausch mit dem Tritium aus der Einlagerungskammer 10 in Kontakt.
- P 950001 (MP_S950-1): Die H-3-Aktivitätskonzentration ist höher als im Jahre 2009. Es darf davon ausgegangen werden, dass auch die Probenahmestellen auf der 925-m-Sohle aufgrund veränderter Wetterführung im Trend steigende H-3-Aktivitätswerte aufweisen und zukünftig aufweisen werden.

Cs-137-Aktivitätskonzentrationen wurden an 10 Messstellen nachgewiesen (vgl. Tabelle 12). Die im Jahre 2009 ermittelten geringfügigen Kontaminationen der Messstellen P 725007 (MP_39/1) und P 750006 (MP_36) wurden bestätigt, wobei diese Kontamination an der Messstelle P 750006 nur im Laugensumpf, nicht aber in der frischen Zutrittslösung ermittelt wurde.

Die im Jahre 2008 ermittelte Cs-137-Kontamination der Messstelle P 750049 (MP_QN) wurde analog zum Jahre 2009 nicht mehr festgestellt.

Für die drei Messstellen aus dem Überwachungsbereich P 750042 (MP_L2), P 750043 (MP_L3) und P 750044 (MP_L4) ergaben sich unterschiedliche Tendenzen.

- P 750042: An dieser Messstelle wurden keine größeren Veränderungen der Cs-137-Aktivitätskonzentration in den letzten drei Jahren festgestellt. In Abbildung 4 ist der zeitliche Verlauf der Cs-137-Aktivitätskonzentration seit Januar 2009 dargestellt. Sie schreibt den in [4] bereits dargestellten zeitlichen Verlauf dieser Messstelle fort. Parallel dazu gibt diese Abbildung 4 auch den Verlauf der H-3-Aktivitätskonzentration seit dieser Zeit wieder².
- P 750043: An dieser Messstelle wurde ein sehr starker Anstieg der Cs-137-Aktivitätskonzentration registriert. Aktuell erhöhte sich die Cs-137-Aktivitätskonzentration gegenüber dem Jahre 2008 um den Faktor 180, gegenüber dem Jahr 2009 um den Faktor 4,8, auf eine Aktivitätskonzentration von 10.440 ± 550 Bq/l. In Abbildung 5 ist auch für diese Messstelle der zeitliche Verlauf der H-3- und Cs-137-Aktivitätskonzentrationen seit Januar 2009 dargestellt². Der tendenzielle Anstieg deutete sich bereits bei dem in [4] dargestellten zeitlichen Verlauf für diese Messstelle an.
- P 750044: An dieser Messstelle wurden für Cs-137 sehr unterschiedliche Messwerte von der Asse-GmbH und dem BfS ermittelt, deren Ursache in der von der monatlichen Routinebe-
probung der Asse-GmbH abweichenden Beprobung für die Charakterisierungsmessung vermutet wurde. Zur Ermittlung der Aktivitätskonzentrationen an dieser Messstelle wurden durch den betrieblichen Strahlenschutz der Asse-GmbH zunächst 2 Liter Salzlösung entnommen. Anschließend erfolgte wie auch an anderen Messstellen die Entnahme von bis zu 13 Liter Lösung für das BfS. Aufgrund möglicherweise unterschiedlicher Dichten in den zufließenden Salzlösungen der Messstelle könnten sich Dichteschichtungen an der Messstelle einstellen. Bei einer Beprobung von größeren Mengen besteht dabei die Möglichkeit einer instantanen

² Die Ergebnisse wurden von der Asse-GmbH zur Verfügung gestellt.



Vermischung der Lösung im 10-Liter-Probenbehälter und es kann zu Salzausfällungen kommen. Für die Charakterisierung der Salzlösungen wurde von BfS und Asse-GmbH an der Messstelle eine Cs-137-Aktivitätskonzentration von 358 ± 20 Bq/l bzw. 1.980 Bq/l ermittelt. Aufgrund dieser Diskrepanz wurde am 03.11.2011 diese Messstelle erneut beprobt, wobei die geschöpfte Menge von ca. 15 Liter in 1-Liter-Flaschen abgefüllt wurde. Die Bestimmung der Aktivitätskonzentrationen erfolgte durch BfS und Asse-GmbH an der ersten (aliquotierten) 1-Liter-Probe. Die Cs-137-Auswertungen ergaben für beide Messlabore (BfS: 2.090 ± 70 Bq/l und Asse-GmbH: 2.050 Bq/l) eine gute Übereinstimmung der Ergebnisse. Um eine mögliche Verdünnung der Salzlösungen während der Probenahme zu erkennen, wurden noch 3 weitere Proben, darunter der letzte entnommene Liter, von der Asse-GmbH ausgemessen. Eine Änderung der Cs-137-Aktivitätskonzentrationen innerhalb der Messunsicherheiten konnte dabei nicht festgestellt werden. Im weiteren Verlauf dieser Berichterstellung konnte die ursprüngliche Abweichung letztlich nicht reproduziert werden.

An der Messstelle P 750029 im Kontrollbereich wurde der höchste Wert der Cs-137-Aktivitätskonzentration mit 20.300 ± 1.200 Bq/l ermittelt. Verglichen mit den Charakterisierungsmessungen aus den Jahren 2008 und 2009 deutet alles auf eine fallende Tendenz hin. Bei der Interpretation der Messergebnisse kann aber nicht ausschließlich auf die Erhebungsmessungen aus den Jahren 2008 und 2009 zurückgegriffen werden. Diese Messstelle weist einen deutlichen Jahresgang der Cs-137-Aktivitätskonzentration auf, so dass voneinander abweichende Ergebnisse nicht einfach als Trend zu bewerten sind. In Abbildung 6 ist auch für diese Messstelle der zeitliche Verlauf der H-3- und Cs-137-Aktivitätskonzentrationen seit Januar 2009 dargestellt².

Die Aktivitätsänderung ist ggf. auf die Auflösung bzw. Rücklösung von Mineralphasen zurückzuführen, die durch die Wetterfeuchte verursacht wird. Es ist bekannt, dass in einem Kalibergwerk Feuchtigkeit aus der Luft in den Sommermonaten vom Gebirge aufgenommen und in den Wintermonaten wieder abgegeben wird. Dieser Trend spiegelt sich auch in den Aktivitätsänderungen wider.

An der Messstelle P 950001 wurden leicht erhöhte Cs-137-Aktivitätskonzentrationen von 55 ± 3 Bq/l im Jahre 2011 gegenüber ca. 30 Bq/l im Jahre 2009 ermittelt.

Die ermittelten Aktivitätskonzentrationen der Uranisotope, der Radiumisotope sowie von Pb-210 und Po-210 entsprechen weitestgehend den Analysenergebnissen aus dem Jahr 2009 (siehe auch Kapitel 6.2).

Messwerte oberhalb der NWG wurden für Sr-90 bei den Charakterisierungsmessungen 2009 [4] und 2010 [3] lediglich an Proben vom Laugensumpf vor Kammer 12 auf der 750-m-Sohle (P 750029, MP_21) nachgewiesen. Mit einer 2011 ermittelten Sr-90-Aktivitätskonzentration von $0,35 \pm 0,06$ Bq/l ergab sich gegenüber dem Vorjahr ein Anstieg um den Faktor 2 und damit eine gegenläufige Tendenz zu dem oben diskutierten, zeitlichen Verlauf der Cs-137-Aktivitätskonzentrationen an dieser Stelle [3]. Allerdings sind hier (P 750029) 2011 auch deutlich angestiegene C-14- und Tc-99-Aktivitätskonzentrationen festgestellt worden. Im Unterschied zu den Vorjahren (NWG: 0,02 bis 0,03 Bq/l) wurde 2011 auch an der Messstelle P 750042 (MP_L2) eine nachweisbare Sr-90-Aktivitätskonzentration von $0,44 \pm 0,07$ Bq/l ermittelt.

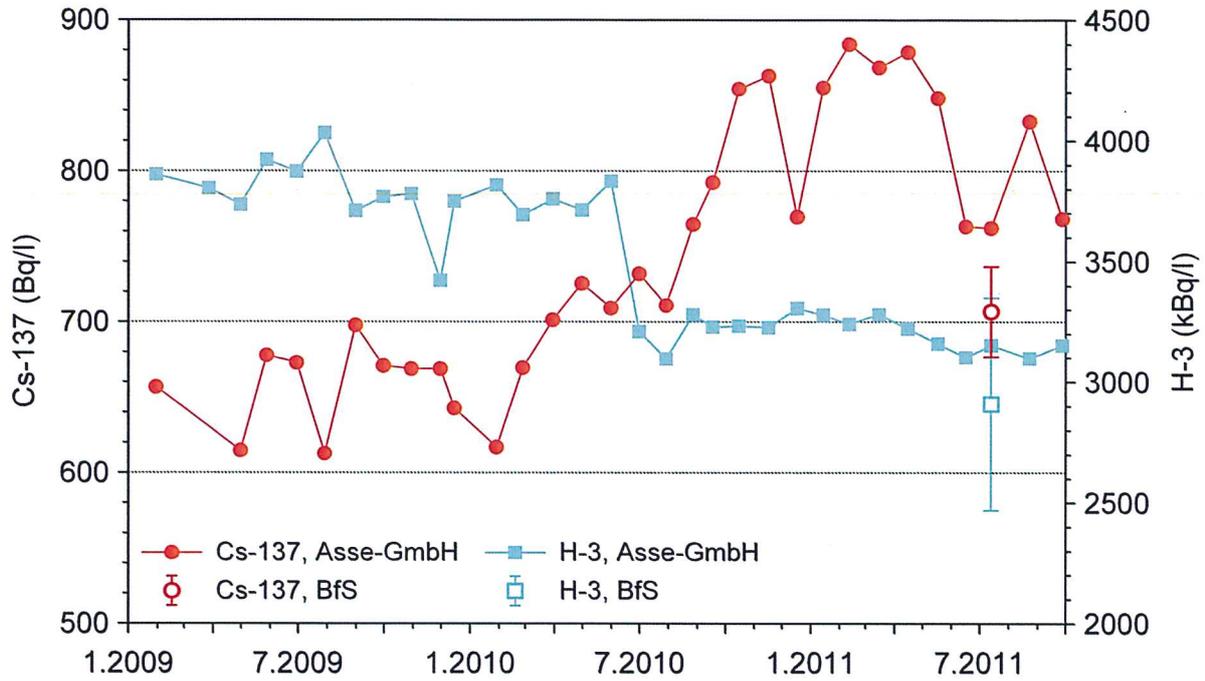


Abbildung 4: Zeitlicher Verlauf der H-3- und Cs-137-Aktivitätskonzentrationen an der Messstelle P 750042

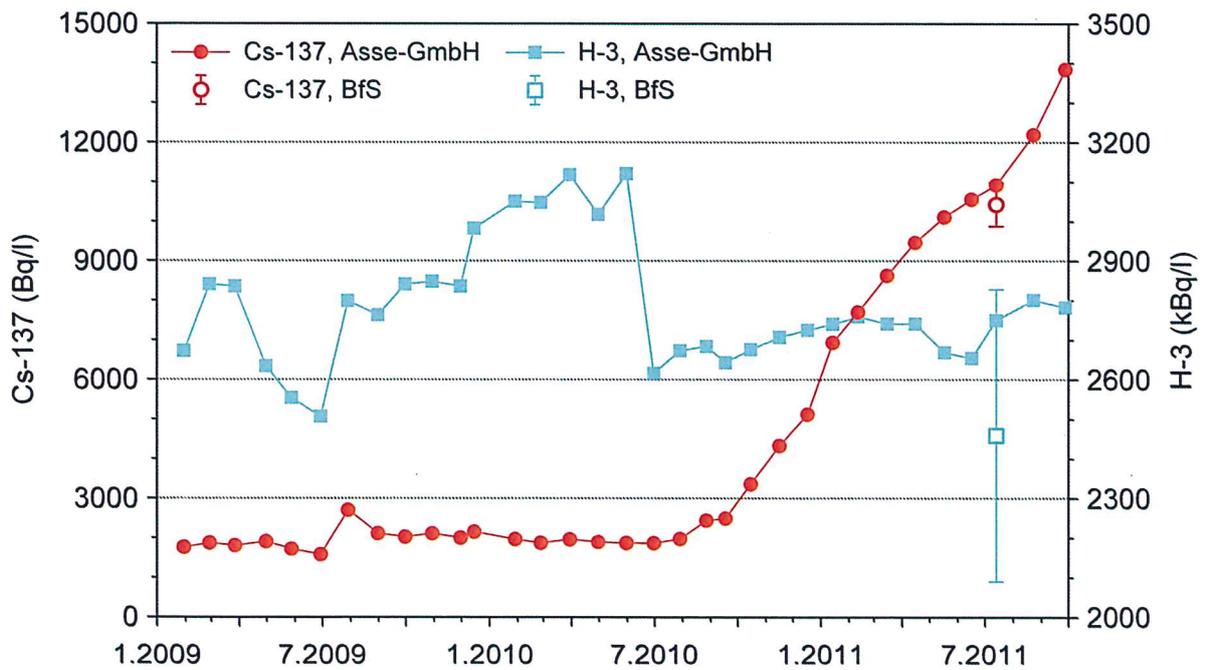


Abbildung 5: Zeitlicher Verlauf der H-3- und Cs-137-Aktivitätskonzentrationen an der Messstelle P 750043



7 SCHLUSSFOLGERUNGEN

Die vom BfS 2011 durchgeführten radiologischen Analysen an festgelegten Messstellen zur Charakterisierung von Salzlösungen in der Schachtanlage Asse II zeigen mit Ausnahme der Messstellen P 750043, P 740044 und P 750007 keine signifikanten Abweichungen der Aktivitätskonzentrationen der verwendeten Leitnuklide (Cs-137, H-3) gegenüber den Vorjahren. Die Cs-137-Aktivitätskonzentration bezogen auf das Jahr 2009 erhöhte sich für die Messstelle P 750043 um den Faktor 5. Die Messstelle P 750044 weist in den letzten Jahren ein sehr indifferentes Verhalten auf. Im Jahre 2008 wurde eine Cs-137-Aktivitätskonzentration von 1.130 Bq/l, im Jahre 2009 ca. 150 Bq/l und im Jahre 2011 2.090 Bq/l erhalten (vgl. Kapitel 6.7 Tabelle 12). Bei der Messstelle P 750007 wurde eine Erhöhung der H-3-Aktivitätskonzentration um den Faktor 2 registriert.

Durch das vom BfS eingeführte Lösungsmanagement ist es gelungen, die Tritiumkonzentration in den Zutrittslösungen auf der 658-m-Sohle auf weniger als 10 Bq/l zu reduzieren. Diese Lösungen werden in Speicherbecken auf der 490-m-Sohle gepumpt.

Es wurden niedrige Aktivitätskonzentrationen für die natürlichen Uranisotope U-234, U-235 und U-238 mit Werten unterhalb von 0,1 Bq/l in sämtlichen Proben unterhalb der 700-m-Sohle ermittelt. Wie bei den vorangegangenen Untersuchungen wurde ein auffällig niedriges Aktivitätsverhältnis U-234/U-238 von etwa 0,7 am Messpunkt P 750043 (MP_L3) bestimmt. Aktivitätsverhältnisse unter 1 treten erfahrungsgemäß in Wässern nicht auf und sind auch in Salzlösungen der Asse-GmbH ansonsten nicht beobachtet worden. Dies legt die Vermutung nahe, dass dieses Verhältnis der Aktivitätskonzentrationen durch den Austrag von Uranisotopen aus der Einlagerungskammer 8 verursacht wurde. Für die übrigen Messstellen ergeben sich für U-234 und U-238 Verhältnisse von 1 bis 2 (maximal 3,6).

Die oberhalb der 700-m-Sohle gemessenen Aktivitätskonzentrationen von Radionukliden der Thorium- und Uran-Radium-Zerfallsreihe sind natürlichen Ursprungs. Die Aktivitätskonzentrationen von Ra-226 und Ra-228 liegen in der frischen Zutrittslösung bei 0,2 Bq/l bzw. 0,5 Bq/l. Für U-234 und U-238 liegen in der Zutrittslösung die Aktivitätskonzentrationen unterhalb der Nachweisgrenzen.

Infolge der Weiterentwicklung der analytischen Verfahren verbesserte sich die Nachweisgrenze für die Aktivitätskonzentration von Pb-210 auf 0,007 Bq/l. Im Gegensatz zu den Vorjahren konnte somit eine Pb-210-Aktivitätskonzentration von etwa 0,03 Bq/l in der Zutrittslösung auf der 658-m-Sohle gemessen werden. Die in Salzlösungen unterhalb der 700-m-Sohle gemessenen Pb-210-Aktivitätskonzentrationen ergeben kein einheitliches Bild. Die maximale Aktivitätskonzentration von 18 ± 4 Bq/l wurde dabei an der Messstelle P 750044 (MP_L4) bestimmt. Für das an der Messstelle ausgefallene Salz (Bodensatz) konnte eine spezifische Pb-210-Aktivität von 45 ± 8 Bq/kg ermittelt werden. Diese Werte entsprechen den Messergebnissen aus den Vorjahren. Allerdings wurde an der Messstelle P 750061 (MP_RS-a), die durch Zufluss von nicht kontaminierten Salzlösungen aus den nördlichen Kaliabbauen gespeist wird, für 2011 eine Pb-210-Aktivitätskonzentration von $5,6 \pm 0,6$ Bq/l ermittelt. In den Vorjahren schwankte diese im Bereich von 6,2 Bq/l bis 11,8 Bq/l. Eine Abnahme der Aktivitätskonzentration von Pb-210 zeigte die Messstelle P 750009 (MP_RS-b) von 6 Bq/l (2009) auf 0,3 Bq/l (2011). Die starke Variabilität der Pb-210-Aktivitätskonzentration an den unterschiedlichen Messstellen deutet auf

physiko-chemische Prozesse in den Salzlösungen hin. Es ist davon auszugehen, dass die ermittelten Pb-210-Aktivitäten natürlichen Ursprungs sind. Eine Anreicherung von Pb-210 in den Salzlösungen über Rn-222 aus der Grubenluft ist nicht feststellbar (vgl. Kapitel 6.5).

An den Messstellen P 750029, P 750043 und P 750044 ist ein Anstieg der Gesamt-C-14-Aktivitätskonzentration in Salzlösungen vor den Einlagerungskammern zu verzeichnen. Durch die Messungen konnte festgestellt werden, dass dieser im Wesentlichen durch organisch gebundenes C-14 verursacht wird. Es wird empfohlen, die stoffliche Zusammensetzung der organischen Inhaltsstoffe der Lösungen zu untersuchen.

Zusammenfassend kann festgestellt werden:

- Die Situation an den Messstellen der 490-m-, der 658-m- und der 725-m-Sohle hat sich bezogen auf 2008 und 2009 [3, 4] nicht verändert. Die Kriterien bezüglich der Freigabe von Salzlösungen nach § 29 StrlSchV gemäß [3] sind weiterhin erfüllt.
- Die interne Verwertung der Zutrittslösung an Messorten unterhalb der 700-m-Sohle kann weiterhin wie bisher erfolgen, da die zugehörigen Freigabewerte nach [12], mit Ausnahme der Messstelle P 750007, nicht überschritten werden. An dieser Stelle überschreitet die Tritium-Aktivitätskonzentration den Freigabewert (siehe Kapitel 6.7). Aufgrund der geringen Mengen gesammelter Salzlösungen an der Messstelle P 750007 sollte eine Freigabefähigkeit dieser Lösungen [12] für eine interne Verwertung (z. B. Herstellung von Sorelbeton) überprüft werden.
- Die Auswertung der im Rahmen der hier vorgestellten Untersuchung erhaltenen Messergebnisse ergab keine Hinweise darauf, dass die bisherige Empfehlung zur Verwendung der Radionuklide Cs-137 und H-3 [3] als Leitnuklide modifiziert werden muss.
- Zur Vertiefung des Kenntnisstandes zur Bindungsform und Herkunft von C-14 und Tc-99 werden weitere Untersuchungen (ggf. in kürzeren Zeitabschnitten) als erforderlich angesehen.



LITERATUR

- [1] BUNDESAMT FÜR STRAHLENSCHUTZ: Endlager>Asse>Geschichte: Vom Salzbergwerk zum Atomlager. http://www.endlager-asse.de/DE/2_WasIst/B_Geschichte/_node.html, Stand 22.03.2011
- [2] BRENK SYSTEMPLANUNG GMBH: Standortbezogene Freigabe von Zutrittslösungen aus der Schachanlage Asse – Zwischenbericht zur Freigabe von Zutrittslösungen auf der Basis vollständiger Freigabemessungen. Aachen, 12.10.2008
- [3] BRENK SYSTEMPLANUNG GMBH: Standortbezogene Freigabewerte von Zutrittslösungen aus der Schachanlage Asse – Abschlussbericht. Aachen, 05.05.2010
- [4] BRENK SYSTEMPLANUNG GMBH: Beprobung und Analyse von Salzlösungen 2009, Schachanlage Asse II – Endbericht. Aachen, 16.12.2009
- [5] BRENK SYSTEMPLANUNG GMBH: Beprobung und Analyse von Salzlösungen 2010, Schachanlage Asse II. Aachen, 17.05.2011
- [6] ASSE-GMBH: Überwachung der Salzlösungen auf Kontamination aus dem Bereich der südlichen Richtstrecke und vor Kammer 12 auf der 750-m-Sohle sowie im Tiefenaufschluss im Rahmen des betrieblichen Strahlenschutzes. 1. Berichtshalbjahr 01.01.2011 bis 30.06.2011. Remlingen, 16.09.2011
- [7] NIEDERSÄCHSISCHES MINISTERIUM FÜR UMWELT UND KLIMASCHUTZ: Genehmigungsbescheid für die Schachanlage Asse II, Bescheid 1/2010, Umgang mit radioaktiven Stoffen gemäß § 7 Strahlenschutzverordnung (StrlSchV). Hannover, 08.08.2010
- [8] ASSE-GMBH: Anweisung über Art, Umfang und Häufigkeit der Kontaminationskontrolle von Salzlösungen in Probenahmestellen, Stand 11.05.2009 (Prüfunterlage /P55/ zum Genehmigungsbescheid 1/2010)
- [9] ASSE-GMBH: Strahlenschutzfachanweisung STS-FAW-013: Probenahme. 2009
- [10] Norm DIN 25482 Teil 1. Nachweisgrenze und Erkennungsgrenze bei Kernstrahlungsmessungen; Zählende Messungen ohne Berücksichtigung des Probenbehandlungseinflusses. 1989-04
- [11] ASSE-GMBH: Radiologische Überwachung der Grubenwetter der Schachanlage Asse II – Jahresbericht 2010. Remlingen, 08.02.2011
- [12] BRENK SYSTEMPLANUNG GMBH: Freigabewerte für die Nutzung von Zutrittslösung innerhalb der Schachanlage Asse. Aachen, 24.09.2009 (Revision 1)