



Bundesministerium  
für Umwelt, Naturschutz  
und Reaktorsicherheit

# Methodische Weiterentwicklung des Leitfadens zur radiologischen Untersuchung und Bewertung bergbaulicher Altlasten und Erweiterung des Anwendungsbereichs (Bericht I)

BMU - 2007 - 697



**BMU – 2007-697**

**„Methodische Weiterentwicklung des Leitfadens zur  
radiologischen Untersuchung und Bewertung  
bergbaulicher Altlasten und Erweiterung des  
Anwendungsbereichs –Teil B: Erweiterung des  
Anwendungsbereichs auf NORM-Rückstände“**

Bietergemeinschaft  
(GbR) Hydrogeologie GmbH  
IAF Radioökologie GmbH und GRS mbH  
Postfach 10 03 64  
99723 Nordhausen

## **IMPRESSUM**

Dieser Band enthält einen Abschlussbericht über ein vom Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit (BMU) gefördertes Vorhaben. Verantwortlich für den Inhalt sind allein die Autoren. Das BMU übernimmt keine Gewähr für die Richtigkeit, die Genauigkeit und Vollständigkeit der Angaben sowie die Beachtung privater Rechte Dritter. Der Eigentümer behält sich alle Rechte an der weiteren Nutzung oder Vervielfältigung des Berichts vor.

Der Bericht gibt die Auffassung und Meinung des Auftragnehmers wieder und muss nicht mit der des BMU übereinstimmen.

### **Herausgeber:**

Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit

Referat RS I 2

Postfach 12 06 29

53048 Bonn

ISSN 1612-6386

Erscheinungsjahr: 2007

Arbeitsgemeinschaft

**HGN** Hydrogeologie GmbH  
Magdeburg

**IAF** - Radioökologie GmbH  
Dresden

**GRS** mbH  
Köln

---

Auftraggeber:

Bundesminister für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit  
vertreten durch das  
Bundesamt für Strahlenschutz

- *HGN* Hydrogeologie GmbH  
Niederlassung Magdeburg  
Lübecker Straße 53 - 63  
D-39124 Magdeburg  
Tel.: 0391 - 24 47 28-0  
Fax: 0391 - 24 47 28-9  
E-Mail: [magdeburg@hgn-online.de](mailto:magdeburg@hgn-online.de)  
Internet: [www.hgn-online.de](http://www.hgn-online.de)
- IAF - Radioökologie GmbH  
Karpatenstraße 20  
D-01326 Dresden
- Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH  
Schwertnergasse 1  
D-50667 Köln

## **Abschlussbericht zum Vorhaben StSch 4416**

### **Methodische Weiterentwicklung des Leitfadens zur radiologischen Untersuchung und Bewertung bergbaulicher Altlasten und Erweiterung des Anwendungsbereichs**

#### **Teil B: Erweiterung des Anwendungsbereichs auf NORM-Rückstände**

#### **Bericht I: Vorkommen und Entstehung von radiologisch relevanten Boden- kontaminationen aus bergbaulichen und industriellen Prozessen**

(StSch 4416 Leitfaden NORM-Rückstände, Teil B, Komm.-Nr. 5.18.001.3.1)

**Magdeburg**  
HGN Hydrogeologie GmbH

**Dresden**  
IAF Radioökologie GmbH

**Köln**  
GRS Gesellschaft für  
Anlagen- und Reaktorsicherheit mbH

den 06.10.2006

Dr. Rainer Gellermann  
Projektleiter

Dr. Hartmut Schulz  
Projektverantwortlicher IAF

Dr. Dietmar Weiß  
Projektverantwortlicher GRS

---

Dieser Bericht gibt die Auffassung und Meinung des Auftragnehmers wieder und muss nicht mit der Meinung des Auftraggebers (Bundesminister für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit) übereinstimmen.

## **Abschlussbericht zum Vorhaben StSch 4416**

### **Methodische Weiterentwicklung des Leitfadens zur radiologischen Untersuchung und Bewertung bergbaulicher Altlasten und Erweiterung des Anwendungsbereichs**

#### **Teil B: Erweiterung des Anwendungsbereichs auf NORM-Rückstände**

##### **Bericht I:**

Vorkommen und Entstehung von radiologisch relevanten Boden-  
kontaminationen aus bergbaulichen und industriellen Prozessen

Projektverantwortlicher: Dr. Rainer Gellermann (HGN Hydrogeologie GmbH)

Bearbeitungsteam: Dr. Hartmut Schulz (IAF - Radioökologie GmbH)  
Astrid Schellenberger (IAF - Radioökologie GmbH)  
Dr. Dietmar Weiß (GRS Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit mbH)  
Alexandra Müller (HGN Hydrogeologie GmbH)

Text: 222 Seiten

Anlagen: 2 Anhänge

Verteiler: 6x Auftraggeber  
1x HGN Hydrogeologie GmbH  
1x IAF - Radioökologie GmbH  
1x GRS Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit mbH

## Inhaltsverzeichnis

1	Veranlassung und Aufgabenstellung .....	14
1.1	Veranlassung.....	14
1.2	Aufgabenstellung.....	14
1.3	Gliederung des Berichtes .....	16
2	Grundlagen und Begriffe.....	16
2.1	Vorbemerkung .....	16
2.2	Definitionen von Begriffen .....	17
3	Derzeitiges und früheres Aufkommen überwachungsbedürftiger Rückstände in Deutschland .....	19
3.1	Vorbemerkungen .....	19
3.2	Rückstände der Gewinnung von Erdöl- und Erdgas .....	19
3.2.1	Generell mögliche Rückstände .....	19
3.2.2	Regionale Schwerpunkte .....	20
3.2.3	Mengen und Aktivitäten .....	25
3.3	Rückstände der Verarbeitung von Rohphosphat und Aufbereitung von Phosphogipsen.....	27
3.3.1	Generell mögliche Rückstände .....	27
3.3.2	Regionale Schwerpunkte .....	28
3.3.3	Mengen und Aktivitäten .....	30
3.4	Rückstände der Gewinnung und Aufbereitung von Erzen und Mineralien .....	33
3.4.1	Generell mögliche Rückstände .....	33
3.4.2	Regionale Schwerpunkte .....	34
3.4.2.1	Gewinnung und Aufbereitung von Bauxit .....	34
3.4.2.2	Gewinnung und Aufbereitung von Columbit, Pyrochlor, Mikrolith und Euxenit.....	35
3.4.2.3	Gewinnung und Aufbereitung von Kupferschiefererz.....	36
3.4.2.4	Gewinnung und Aufbereitung von Zinnerz .....	37
3.4.2.5	Gewinnung und Aufbereitung von Erzen der Seltenen Erden .....	38
3.4.2.6	Gewinnung und Aufbereitung von Uranerz .....	38
3.4.3	Mengen und Aktivitäten .....	41
3.4.3.1	Gewinnung und Aufbereitung von Bauxit .....	41
3.4.3.2	Gewinnung und Aufbereitung von Columbit, Pyrochlor, Mikrolith und Euxenit.....	46
3.4.3.3	Gewinnung und Aufbereitung von Kupferschiefererz.....	46
3.4.3.4	Gewinnung und Aufbereitung von Zinnerz .....	48
3.4.3.5	Gewinnung und Aufbereitung von Erzen der Seltenen Erden .....	49
3.4.3.6	Gewinnung und Aufbereitung von Uranerz .....	49
3.5	Rückstände der Weiterverarbeitung von Konzentraten oder Rückständen der Erze und Mineralien nach Anlage XII Teil A Nr. 3a StrlSchV .....	50
3.5.1	Generell mögliche Rückstände.....	50
3.5.2	Regionale Schwerpunkte .....	51
3.5.2.1	Weiterverarbeitung von Konzentraten und Rückständen aus Columbit, Pyrochlor, Mikrolith und Euxenit.....	51
3.5.2.2	Weiterverarbeitung von Konzentraten oder Rückständen aus Kupferschiefererz .....	52
3.5.2.3	Weiterverarbeitung von Konzentraten oder Rückständen aus Zinnerz.....	53
3.5.2.4	Weiterverarbeitung von Konzentraten oder Rückständen aus Erzen der Seltenen Erden.....	53
3.5.2.5	Weiterverarbeitung von Konzentraten oder Rückständen aus Uranerz.....	54
3.5.3	Mengen und Aktivitäten .....	54
3.5.3.1	Weiterverarbeitung von Konzentraten oder Rückständen aus Columbit, Mikrolith, Euxenit und Pyrochlor.....	54

3.5.3.2	Weiterverarbeitung von Konzentraten oder Rückständen aus Kupferschiefererz .....	55
3.5.3.3	Weiterverarbeitung von Konzentraten oder Rückständen aus Zinnerz.....	57
3.5.3.4	Weiterverarbeitung von Konzentraten oder Rückständen der Seltenen Erden .....	58
3.5.3.5	Weiterverarbeitung von Konzentraten oder Rückständen aus Uranerz.....	59
3.6	Rückstände der Gewinnung und Aufbereitung anderer Rohstoffe .....	62
3.6.1	Generell mögliche Rückstände .....	62
3.6.2	Regionale Schwerpunkte .....	63
3.6.2.1	Gewinnung und Aufbereitung von Hartgesteinen.....	63
3.6.2.2	Gewinnung und Aufbereitung von Kaolin .....	67
3.6.2.3	Gewinnung und Aufbereitung von Feldspat .....	68
3.6.2.4	Gewinnung und Aufbereitung anderer Erze oder Mineralien .....	69
3.6.2.5	Titandioxid-Produktion.....	73
3.6.2.6	Gewinnung von Steinkohle.....	74
3.6.3	Mengen und Aktivitäten .....	74
3.6.3.1	Gewinnung und Aufbereitung von Hartgesteinen.....	74
3.6.3.2	Gewinnung und Aufbereitung von Kaolin .....	78
3.6.3.3	Gewinnung und Aufbereitung von Feldspat .....	79
3.6.3.4	Gewinnung und Aufbereitung anderer Erze oder Mineralien .....	79
3.6.3.5	Titandioxid-Produktion.....	80
3.6.3.6	Gewinnung von Steinkohle.....	81
3.7	Rückstände der Rauchgasreinigung der Primärverhüttung .....	82
3.7.1	Generell mögliche Rückstände .....	82
3.7.2	Regionale Schwerpunkte .....	83
3.7.2.1	Primärverhüttung von Roheisen .....	83
3.7.2.2	Primärverhüttung von Nichteisenmetallen.....	83
3.7.3	Mengen und Aktivitäten .....	86
3.7.3.1	Primärverhüttung von Roheisen .....	86
3.7.3.2	Primärverhüttung von Nichteisenmetallen.....	90
3.7.3.3	Sonderfall DK Recycling.....	95
3.8	Rückstände bei der Sanierung von Hinterlassenschaften .....	95
3.8.1	Generell mögliche Rückstände .....	95
3.8.2	Regionale Schwerpunkte .....	96
3.8.3	Mengen und Aktivitäten .....	97
4	Andere Materialien.....	98
4.1	Vorbemerkung, Materialgruppen.....	98
4.2	Schlämme und Ablagerungen mit Radionukliden aus Wässern .....	99
4.2.1	Entstehung und Art von Materialien.....	99
4.2.2	Regionale Schwerpunkte .....	99
4.2.3	Mengen und Aktivitäten .....	102
4.3	Stäube, Schlacken und Aschen von Verbrennungsprozessen .....	104
4.3.1	Entstehung und Art von Materialien.....	104
4.3.2	Regionale Schwerpunkte .....	107
4.3.3	Mengen und Aktivitäten .....	109
4.4	Schlämme, Sande, Schlacken und Stäube aus der Weiterverarbeitung anderer als in Anlage XII Teil A Nr. 3a benannter Erze .....	111
4.5	Rückstände der Gewinnung und Aufbereitung nichtmetallischer Erze/Minerale .....	112
4.5.1	Entstehung und Art von Materialien.....	112
4.5.2	Regionale Schwerpunkte .....	113
4.5.3	Mengen und Aktivitäten .....	113

4.6	Stäube und Schlämme der Rauchgasreinigung bei Hochtemperaturprozessen außer der Primärverhüttung .....	114
4.6.1	Entstehung und Art von Materialien .....	114
4.6.2	Regionale Schwerpunkte .....	114
4.6.3	Mengen und Aktivitäten .....	116
4.7	Mineralische Produkte mit erhöhter natürlicher Radioaktivität .....	116
4.7.1	Entstehung und Art von Materialien .....	116
4.7.2	Verarbeitung von Zirkonsanden .....	117
4.7.3	Mengen und spezifische Aktivitäten .....	117
4.8	Materialien mit chemisch abgetrenntem Uran oder Thorium .....	119
4.8.1	Entstehung und Art von Materialien .....	119
4.8.2	Regionale Schwerpunkte .....	120
4.8.3	Mengen und Aktivitäten .....	120
4.9	Materialien früherer Tätigkeiten und Arbeiten .....	121
4.9.1	Entstehung und Art von Materialien .....	121
4.9.2	Regionale Schwerpunkte .....	121
4.9.3	Mengen und Aktivitäten .....	122
5	Technologische Prozesse der Radionuklidanreicherung .....	123
5.1	Phänomenologisches Modell von TENORM bildenden Prozessen .....	123
5.2	Prozesse der Radionuklidanreicherung aus Wässern .....	125
5.2.1	Beschreibung der Prozesse der Radionuklidanreicherung bei der Erdgas-, Erdölgewinnung .....	125
5.2.2	Ermittlung von Prozessparametern für die mittlere Scalebildung bei der Erdgas-, Erdölgewinnung .....	127
5.2.3	Ermittlung von Prozessparametern für eine Erdgassonde .....	130
5.2.4	Begleitende Anreicherungen anderer Schadstoffe bei der Erdgas-, Erdölgewinnung .....	132
5.2.5	Radionuklidanreicherungen bei der Geothermie .....	132
5.2.6	Radionuklidanreicherungen im Steinkohlenbergbau .....	133
5.2.7	Radionuklidanreicherungen in der Wasserwirtschaft .....	134
5.3	Prozesse der Radionuklidumverteilung bei der Verarbeitung von Rohphosphat .....	136
5.3.1	Beschreibung der Prozesse der Radionuklidanreicherung .....	136
5.3.2	Ermittlung von Prozessparametern .....	137
5.3.3	Begleitende Anreicherungen anderer Schadstoffe .....	139
5.4	Prozesse der Radionuklidumverteilung bei der Gewinnung und Aufbereitung von Mineralen .....	140
5.4.1	Beschreibung der Prozesse der Radionuklidanreicherung .....	140
5.4.2	Ermittlung von Prozessparametern .....	141
5.5	Prozesse der Radionuklidumverteilung bei der Verarbeitung von Bauxit .....	143
5.5.1	Beschreibung der Prozesse der Radionuklidanreicherung .....	143
5.5.2	Ermittlung von Prozessparametern .....	143
5.6	Prozesse der Radionuklidumverteilung bei der Verhüttung von Erzen/Erzkonzentraten .....	144
5.6.1	Beschreibung der Prozesse der Radionuklidanreicherung .....	144
5.6.2	Ermittlung von Prozessparametern .....	146
5.6.3	Begleitende Anreicherungen anderer Schadstoffe .....	148
5.7	Andere Rohstoffe: Titandioxid-Pigmentproduktion .....	149
5.7.1	Prozesse der Radionuklidumverteilung .....	149
5.7.2	Ermittlung von Prozessparametern .....	153
5.8	Radionuklidumverteilung bei Verbrennungsprozessen .....	154
5.8.1	Beschreibung der Prozesse .....	154
5.8.2	Ermittlung von Prozessparametern .....	155
5.8.3	Begleitende Anreicherungen anderer Schadstoffe .....	157
5.8.4	Aufbereitung von Steinkohlen .....	157

5.9	Andere Hochtemperaturprozesse .....	159
5.10	Radionuklidanreicherungen beim Quecksilberrecycling .....	159
5.11	Zusammenfassung .....	160
6	Ermittlung repräsentativer Nuklidvektoren .....	164
6.1	Methodische Grundlagen .....	164
6.1.1	Festlegung von zu berücksichtigenden Nukliden .....	164
6.1.2	Darstellung von Nuklidvektoren .....	165
6.2	Nuklidvektoren für Rückstände und andere Materialien .....	169
6.2.1	Materialien aus Prozessen der Radionuklidanreicherung durch Mitfällung oder Sorption aus Wasser .....	169
6.2.2	Mechanische Aufbereitung von Gesteinen/Erzen.....	175
6.2.3	Chemische Aufbereitung von Gesteinen/Erzen.....	177
6.2.4	Thermische Verarbeitung von Mineralen/Erzen .....	185
6.3	Nuklidvektoren für andere Materialien.....	189
6.4	Detailanalyse von Nuklidvektoren bei der Erdgas-, Erdölgewinnung .....	190
6.4.1	Allgemeines.....	190
6.4.2	Datenbasis .....	190
6.4.3	Zeitliche Veränderungen.....	192
6.5	Repräsentative Nuklidvektoren für Materialtypen .....	194
7	Verwertungs- und Beseitigungswege .....	199
7.1	Vorbemerkung .....	199
7.2	Entsorgungswege für Rückstände nach Anlage XII StrlSchV.....	199
7.2.1	Erdöl-/Erdgas .....	199
7.2.2	Phosphatindustrie .....	200
7.2.3	Rückstände der Gewinnung und Aufbereitung von Erzen und Mineralien.....	201
7.2.4	Weiterverarbeitung von Konzentraten oder Rückständen.....	202
7.2.5	Rückstände aus der Rauchgasreinigung der Primärverhüttung.....	203
7.3	Entsorgungswege für sonstige Materialien .....	204
7.3.1	Wasserwerksschlämme .....	204
7.3.2	Feuerfestmaterial, Strahlsande.....	206
7.3.3	Verbrennungsrückstände, Aschen.....	206
7.3.4	Verwendung von Produkten mit Radioaktivität .....	207
7.4	Unbeabsichtigte Ablagerungen .....	207
8	Zusammenfassung .....	208
9	Empfehlungen .....	210
10	Zitierte Quellen.....	211

**Anhang A** : Zeitlich Veränderungen der Nuklidvektoren in Ablagerungen

**Anhang B** : Industrielle Hinterlassenschaften: Phosphat verarbeitende Industrie

## Abbildungsverzeichnis

Abbildung 2-1:	Die natürlichen Zerfallsreihen inkl. wichtiger Nebenreihennuklide .....	17
Abbildung 3-1:	Standorte der 10 wichtigsten Erdgasfelder in Deutschland und Darstellung der geologischen Verhältnisse /NLfB 03/ .....	22
Abbildung 3-2:	Standorte der Erdölförderung in Deutschland und Darstellung der geologischen Verhältnisse /NLfB 03/ .....	24
Abbildung 3-3:	Bohrleistung in der Erdöl- und Erdgasindustrie seit 1991 /WEG 05/ .....	25
Abbildung 3-4:	Anlagen des Uranerzbergbaus und der Uranerzaufbereitung in Deutschland .....	39
Abbildung 3-5:	Altstandorte der WISMUT nach /GRS 99/ auf der Basis von /LIB 05/ .....	40
Abbildung 3-6:	Deutscher Außenhandel mit Bauxit 1970-97 /SCH 99/ .....	42
Abbildung 3-7:	Rotschlammdeponien am Standort Schwandorf (Bayern). Foto aus /OST 05/ .....	43
Abbildung 3-8:	Histogramm der spezifischen Aktivität von oberflächennahen Proben Bergematerial im Raum Hettstedt .....	47
Abbildung 3-9:	Histogramm der spezifischen Aktivitäten von Halden und IAA des Zinnerzbergbaus im Raum Altenberg/Zinnwald (Sachsen) .....	48
Abbildung 3-10:	Karte der terrestrischen ODL /BfS 04/ .....	64
Abbildung 3-11:	Herstellung gattergerechter Granitblöcke im Steinbruch Eitzing, Bayerischer Wald (aus /BSW 02/) .....	75
Abbildung 3-12:	Messergebnisse an Bayrischen Graniten und Filterstäuben (OW - Oberpfälzer Wald; FG - Fichtelgebirge; BW - Bayerischer Wald) /MAL 05/ .....	76
Abbildung 3-13:	Messergebnisse an Schlämmen (OW - Oberpfälzer Wald; FG - Fichtelgebirge; BW - Bayerischer Wald) /MAL 05/ .....	77
Abbildung 3-14:	Spezifische Aktivität von Feinfraktionen aus Granitbruch /IAF 95/ .....	78
Abbildung 3-15:	Spezifische Aktivität von Rückständen der Kaolin- und Feldspatgewinnung /MAL 05/ .....	79
Abbildung 3-16:	Standorte von Blei-, Zink und Kupferhütten in Deutschland Mitte der 1990er Jahre /REN 99/ .....	85
Abbildung 3-17:	Standorte von Unternehmen der Zinkindustrie in Deutschland. Quelle: Initiative Zink /IZ 05a/ .....	86
Abbildung 3-18:	Massenbilanz einer Sinteranlage (nach /REN 99/) .....	87
Abbildung 3-19:	Prozessabläufe einer Hochofenanlage zur Roheisengewinnung und Ausbringungsmengen /REN 99/ .....	88
Abbildung 3-20:	Histogramm der spezifischen Aktivität. Aktivitätsklassen benannt nach jeweiliger unterer Klassengrenze (Datenbasis: HGN/IAF) .....	88
Abbildung 3-21:	Schmelzflusselektrolyse von Aluminium (T. Seilnacht /SEI 05/) .....	90
Abbildung 3-22:	Flussbild Pb-Zn Verhüttung nach Imperial Smelting Verfahren /REN 01/ .....	91
Abbildung 3-23:	Flussbild Pb Verhüttung in einer Sirosmelt-Anlage /REN 99/ .....	91
Abbildung 3-24:	Flussbild Pb-Zn Verhüttung in einer QSL-Anlage /REN 99/ .....	91
Abbildung 3-25:	Häufigkeitsverteilung der spezifischen Aktivität von Pb-210 in Theisenschlämmen .....	94
Abbildung 3-26:	Fließbild der Prozessabläufe im Unternehmen DK Recycling /REN 01/ .....	95
Abbildung 4-1:	Schema des Massenflusses durch ein Kohlekraftwerk /REN 02/ .....	105
Abbildung 4-2:	Standorte der 30 größten deutschen Kohlekraftwerke /WWF 05/ (*) .....	107

Abbildung 4-3:	Heizwerke und Heizkraftwerke auf Biomassebasis in Bayern, Stand 01.01.2004. Aus: /LWF 05/ .....	108
Abbildung 4-4:	Messergebnisse von Aufbereitungsrückständen einer Flussspatgrube /MAL 05/ .....	113
Abbildung 4-5:	Standorte von Stahlwerken in Deutschland /STA 05/ .....	115
Abbildung 5-1:	Schematische Darstellung des Elementarprozesses der TENORM Bildung .....	124
Abbildung 5-2:	Spezifische Aktivität der relevanten Radionuklide in Scales einer ca. 5 km langen Sonde der Erdgasförderung (Musteruntersuchung) .....	131
Abbildung 5-3:	Verhältnis der spezifischen Aktivitäten von Ra-226 und Ra-228 sowie Ra-226 und Pb-210 in Abhängigkeit von der Tiefe (s.a. Abbildung 5-2) .....	131
Abbildung 5-4:	Abhängigkeit der Dicke der Scaleschicht und der Scaledichte von der Sondentiefe .....	131
Abbildung 5-5:	Berechnete Anreicherungsfaktoren für Granitstaub. Daten nach /MAL 04/ .....	142
Abbildung 5-6:	Berechnete Anreicherungsfaktoren für Granitschlämme (bezogen auf Stäube). Daten nach /MAL 04/ .....	142
Abbildung 5-7:	Flussbild zur Titandioxidherstellung nach dem Sulfatverfahren (Quelle: Kronos) .....	149
Abbildung 5-8:	Flussbild zur Titandioxidherstellung nach dem Chloridverfahren (Quelle: Kronos) .....	151
Abbildung 6-1:	Beispieldarstellung. Ergebnisse einer Untersuchung Ra-226 kontaminierter Böden- und Sedimente .....	166
Abbildung 6-2:	Mögliche Darstellung von kompletten Nuklidvektoren durch 4 verschachtelte PIPER-Diagramme .....	167
Abbildung 6-3:	Nuklidvektoren von Rückständen der Erdöl-/Erdgasgewinnung (Einzeldatensätze) .....	169
Abbildung 6-4:	Aggregierte Nuklidvektoren für Rückstände der Erdöl-, Erdgasgewinnung .....	170
Abbildung 6-5:	Nuklidvektoren von Materialien eines Geothermiekraftwerkes (Einzeldatensätze). Datenquelle: /KÖH 03/ .....	171
Abbildung 6-6:	Nuklidvektoren von Materialien eines Geothermiekraftwerkes (aggregierte Daten). Datenquelle: /KÖH 03/ .....	171
Abbildung 6-7:	Diagramme von Nuklidvektoren der Sedimente im Gewässersystem Fossa- Eugeniana / Rheinberger Altrhein .....	172
Abbildung 6-8:	Diagramme von Nuklidvektoren von Böden im Gebiet Rheinberger Altrhein. Oben: Einzeldatensätze. Unten: Nuklidvektoren für kontaminierte Böden .....	173
Abbildung 6-9:	Nuklidvektoren von Wasserwerksschlämmen (Messdaten IAF) .....	174
Abbildung 6-10:	(Unvollständige) Nuklidvektoren für Sedimente der Weißen Elster (Daten s. Tabelle 4-2) .....	175
Abbildung 6-11:	Normierte Nuklidanteile von einheimischen und importierten Graniten sowie Filterstäuben und Schlämmen der Granitverarbeitung .....	176
Abbildung 6-12:	Diagramm der aggregierten Nuklidvektoren von Zirkonsanden. Weiße Säulen: als Aktivitätsgleichgewicht angenommen, da keine Messdaten vorlagen .....	176
Abbildung 6-13:	Nuklidvektoren von Rohphospaten (Phosphorit, Apatit (Kola)) sowie von zugehörigen Phosphogipsen als Einzeldatensätze (Erläuterungen s. Text) .....	177
Abbildung 6-14:	Aggregierte Nuklidvektoren von Rohphospaten (Phosphorit, Apatit (Kola)) sowie von zugehörigen Phosphogipsen (Erläuterungen s. Text) .....	177
Abbildung 6-15:	Aggregierte Darstellung der Nuklidvektoren von Bauxit, Rotschlamm und Strahlmitteln auf Bauxitbasis. Weiße Säulen: als Aktivitätsgleichgewicht angenommen, da keine Messdaten vorlagen .....	178
Abbildung 6-16:	Nuklidvektoren von Uranerztailings bei alkalischem Erzaufschluss (Messergebnisse IAF. Daten s. Tabelle 3-28) .....	179

Abbildung 6-17:	Nuklidvektoren von Materialien am Standorte einer ehemaligen Radiumfabrik.....	180
Abbildung 6-18:	Nuklidvektoren von Bodenproben aus dem Stadtgebiet Oranienburg .....	182
Abbildung 6-19:	Nuklidvektoren für den Materialtyp „Rohstoffe“.....	183
Abbildung 6-20:	Nuklidvektoren für Aufbereitungsrückstände von Uranerzen (oben) sowie gealtertem Th-Produkt (Diagramme Mitte und unten) .....	183
Abbildung 6-21:	Nuklidvektor von einer Bodenkontamination durch „Uran-Produkt“.....	184
Abbildung 6-22:	Darstellung der Nuklidvektoren von Eisenhüttenschlacken. Weiße Säulen: als Aktivitätsgleichgewicht angenommen, da keine Messdaten vorlagen.....	185
Abbildung 6-23:	Darstellung der Nuklidvektoren von Kupferschieferschlacke. Weiße Säulen: als Aktivitätsgleichgewicht angenommen, da keine Messdaten vorlagen.....	185
Abbildung 6-24:	Nuklidvektoren von Rückständen der Roheisenverhüttung.....	187
Abbildung 6-25:	Nuklidvektoren für Theisenschlamm und Filterstaub der Aluminiumverhüttung.....	188
Abbildung 6-26:	Nuklidvektor von Flugstäuben aus der thermischen Behandlung von Zirkonsanden (Brennen im Elektroofen). Daten aus /SMI 98, HIP 97/ .....	188
Abbildung 6-27:	Aggregierte Nuklidvektoren von Bodenproben mit Kontaminationen thoriumhaltiger Produkte .....	189
Abbildung 6-28:	Häufigkeitsverteilung der normierten Nuklidanteile $a_{Ni}$ von Ra-226 und Pb-210 der Schlämme .....	191
Abbildung 6-29:	Häufigkeitsverteilung der normierten Nuklidanteile $a_{Ni}$ von Ra-226 und Pb-210 der Scales.....	191
Abbildung 6-30:	Normierte Nuklidanteile $a_{Ni}$ der Schlämme (204 Werte je Nuklid) in Abhängigkeit vom Anteil von Ra-226.....	192
Abbildung 6-31:	linkes Bild: Normierte Nuklidanteile $a_{Ni}$ der Schlämme in Abhängigkeit vom Anteil von Ra-226 nach einer Lagerungszeit von 30 Jahren. rechtes Bild: Häufigkeitsverteilung der normierten Nuklidanteile $a_{Ni}$ von Ra-226 und Pb-210 der Schlämme nach einer Lagerungszeit von 30 Jahren.....	192
Abbildung 6-32:	Normierte Nuklidanteile $a_{Ni}$ der Scales (94 Werte je Nuklid) in Abhängigkeit vom Anteil von Ra-226.....	193
Abbildung 6-33:	linkes Bild: Normierte Nuklidanteile $a_{Ni}$ der Scales in Abhängigkeit vom Anteil von Ra-226 nach einer Lagerungszeit von 30 Jahren. Rechtes Bild: Häufigkeitsverteilung der normierten Nuklidanteile $a_{Ni}$ von Ra-226 und Pb-210 der Scales nach einer Lagerungszeit von 30 Jahren. ....	193
Abbildung 6-34:	Übersicht über typische Nuklidvektoren von Materialien (Erläuterungen s. Text).....	194

## Tabellenverzeichnis

Tabelle 3-1:	Angaben zur deutschen Erdöl- und Erdgasförderung /WEG 04/.....	20
Tabelle 3-2:	Erdgasförderung aufgelistet nach Bundesländern /WEG 05/.....	21
Tabelle 3-3:	Erdölförderung aufgelistet nach Bundesländern /WEG 05/.....	21
Tabelle 3-4:	Die ergiebigsten 10 deutschen Erdgasfelder / NLfB 01/.....	23
Tabelle 3-5:	Die förderstärksten 10 deutschen Erdölfelder (Stand: 2001) /NLfB 01/.....	23
Tabelle 3-6:	Mengenaufkommen an NORM-Rückständen aus der deutschen Erdöl- /Erdgasindustrie /HGN 03a/.....	26
Tabelle 3-7:	Hochgerechnetes Mengenaufkommen an NORM-Rückständen aus der Erdgasindustrie nach Angaben der GMR Leipzig für das Jahr 2002.....	26
Tabelle 3-8:	Aktivitätsdifferenziertes Mengenaufkommen an NORM-Rückständen aus der Erdöl- Erdgasindustrie nach Auswertung von Radionuklidanalysen durch IAF - Radioökologie GmbH für unterschiedliche Auftragnehmer aus der Erdgasindustrie.....	27
Tabelle 3-9:	Ausgewählte Altablagerungen und Deponien am Standort Bitterfeld-Wolfen /TÜV 04a/.....	30
Tabelle 3-10:	Spezifische Aktivitäten des Rohphosphates (Ausgangsstoff).....	32
Tabelle 3-11:	Spezifische Aktivitäten des Phosphogipses (Rückstand).....	32
Tabelle 3-12:	Spezifische Aktivitäten des Bauxits (Ausgangsstoff).....	43
Tabelle 3-13:	Spezifische Aktivitäten in Deutschland verarbeiteten Bauxits (Ausgangsstoff).....	44
Tabelle 3-14:	Spezifische Aktivitäten des Rotschlammes (Rückstand).....	44
Tabelle 3-15:	Spezifische Aktivitäten von Rotschlamm aus aktueller Produktion in Deutschland.....	45
Tabelle 3-16:	Spezifische Aktivitäten des Rotschlammes (Messungen IAF).....	45
Tabelle 3-17:	Spezifische Aktivität von Strahlmitteln und Feuerfestmaterial (Gießerei) auf Basis Bauxit (Messungen IAF, Produktbezeichnung anonymisiert).....	46
Tabelle 3-18:	Halden des Uranbergbaus in den alten Bundesländern.....	50
Tabelle 3-19:	Spezifische Aktivitäten der Mansfelder Kupferschlacke (Rückstand).....	56
Tabelle 3-20:	Spezifische Aktivitäten der Mansfelder Kupferschlacke (Messungen IAF).....	56
Tabelle 3-21:	Spezifische Aktivitäten von Kupfererzkonzentraten (Ausgangsstoff).....	57
Tabelle 3-22:	Spezifische Aktivitäten der Kupferschlacke der Norddeutschen Affinerie.....	57
Tabelle 3-23:	Spezifische Aktivitäten der Zinnschlacke (Rückstand).....	58
Tabelle 3-24:	Spezifische Aktivität von Bodenproben aus Oranienburg /HGN 01/.....	58
Tabelle 3-25:	Rückstandsmengen der Uranerzverarbeitung in Absetzanlagen. Daten aus /WIS 99/, /DIE 03/, /MUG 88/.....	59
Tabelle 3-26:	Spezifische Aktivitäten der Rückstände der Uranerzverarbeitung /SMU 99/.....	60
Tabelle 3-27:	Spezifische Aktivitäten der Tailingsmaterialien in Absetzanlagen.....	60
Tabelle 3-28:	Messergebnisse von Proben aus Uranerztailings (Messungen: IAF Radioökologie).....	61
Tabelle 3-29:	Spezifische Aktivität von kontaminierten Böden, Mauerwerk und Prozessrückständen am Standort Dresden-Coschütz (Gittersee) /SMU 99/.....	61
Tabelle 3-30:	Zusammenstellung von Gesteinen mit erhöhtem Strahlungspegel /MÜL 04/.....	64
Tabelle 3-31:	Spezifische Aktivität von Gesteinen in Deutschland.....	66

Tabelle 3-32:	Kaolingewinnung in Deutschland im Jahr 2000 und 2003 /BMW 01/, /BMW 04/ .....	67
Tabelle 3-33:	Feldspatgewinnung in Deutschland im Jahr 2000 und 2003 /BMW 01/, /BMW 04/ .....	68
Tabelle 3-34:	Abbau von Erzen und mineralischen Rohstoffen in Deutschland im Jahr 2003 /BMW 04/ .....	69
Tabelle 3-35:	Historische Bergbauregionen mit abgebauten Erzen, Mineralen und Gesteinen.....	71
Tabelle 3-36:	Titandioxid-Hersteller in Deutschland nach /UBA 01/ .....	73
Tabelle 3-37:	Halden der Gewinnung und Aufbereitung „anderer Erze“ mit erhöhter natürlicher Radioaktivität in Baden-Württemberg /SCH 83/, /FRI 96/.....	80
Tabelle 3-38:	Spezifische Aktivitäten der Ausgangsstoffe der Titandioxidproduktion (Daten: IAF).....	81
Tabelle 3-39:	Spezifische Aktivitäten der Rückstände der Titandioxidproduktion (Daten IAF) .....	81
Tabelle 3-40:	Messwerte der natürlichen Radioaktivität des Steinkohlenbergbaus aus dem Raum Stadthagen /SCH 85/ .....	82
Tabelle 3-41:	Standorte der Primärverhüttung von Aluminium sind (Stand 1996 /SCH 99/).....	83
Tabelle 3-42:	Folgende Aluminiumhütten wurden zwischen 1970 und 1996 stillgelegt /SCH 99/.....	84
Tabelle 3-43:	Produktion von Roheisen und Rohstahl in Deutschland /SBA --/ .....	87
Tabelle 3-44:	Messergebnisse an Materialien der Roheisenverhüttung und Angaben zur Entsorgung der Abfälle (Quelle: VDEh, s. /HGN 03b/) .....	89
Tabelle 3-45:	Jahresproduktion von NE-Metallen durch Primärverhüttung in Deutschland /WVM 03/ .....	90
Tabelle 3-46:	Spezifischen Abfallmengen bei der Primärverhüttung von Aluminium /STR 94/ .....	92
Tabelle 3-47:	Filterstaubmengen von untersuchten Einzelanlagen der Pb-Zn Verhüttung in Deutschland /REN 99/.....	92
Tabelle 3-48:	Spezifische Aktivitäten von Theisenschlamm aus dem Mansfelder Land (Messungen IAF).....	93
Tabelle 3-49:	Sanierungen von radioaktiv kontaminierten Böden oder Gebäuden seit 1990 .....	96
Tabelle 3-50:	Mengenaufkommen und Aktivitäten bei der Sanierung von radioaktiven Hinterlassenschaften.....	97
Tabelle 4-1:	Übersicht: Geothermische Heizwerke, Wärmeversorgungen mit hydrothermalen Geothermie und tiefe Erdwärmesonden in Deutschland /BMU 04/ .....	100
Tabelle 4-2:	Deutsche Flüsse mit lokal vorkommenden Anreicherungen natürlicher Radionuklide in Sedimenten > 0,2 Bq/g. Angabe der Maximalwerte.....	102
Tabelle 4-3:	Bodenkontaminationen an Gewässern mit Grubenwasserableitungen .....	103
Tabelle 4-4:	Aktivitäts-Mengen-Relation für Schlämme der Wasseraufbereitung in Deutschland /HGN 03a/ .....	103
Tabelle 4-5:	Spezifische Aktivität von Quellsintern aus Heilbädern.....	104
Tabelle 4-6:	Radium-226 in Sedimenten und Inkrustierungen des Steinkohlenbergbaus /DSK 96/ ....	104
Tabelle 4-7:	Aufkommen und Verwertung von Nebenprodukten aus kohlebefeuernden Kraftwerken in Deutschland im Jahr 2004 /VGB 05/.....	109
Tabelle 4-8:	Spezifische Aktivität von Aschen und Verbrennungsprodukten aus deutschen Kohlekraftwerken /BER 96/, /PUC 97/, /PUC 05/, /LEH 96/ .....	110
Tabelle 4-9:	Messergebnisse von Aschen und Schlacken der Holzverbrennung (Messungen IAF)....	110
Tabelle 4-10:	Untersuchungsergebnisse von Halden mit Verbrennungsrückständen aus Kraftwerken in Niedersachsen /SCH 85/ .....	111

Tabelle 4-11:	Messergebnisse an Gießereiabfällen (Messungen IAF).....	112
Tabelle 4-12:	Spezifische Aktivitäten der in Deutschland verwendeten Zirkonsande (Messungen IAF).....	118
Tabelle 4-13:	Messergebnisse an Zirkonsanden (Messungen IAF) .....	118
Tabelle 4-14:	Spezifische Aktivitäten von zirkonhaltigen Produkten /BLA 03/.....	119
Tabelle 4-15:	Mengen und Aktivitäten von Abfällen mit chemisch abgetrenntem Uran oder Thorium (nach /HGN 03a/.....)	120
Tabelle 5-1:	Aktivitätskonzentrationen von Ra-226 und Ra-228 in Wässern aus der Erdgas- und Erdölförderung /KOL 85/ .....	128
Tabelle 5-2:	Nuklidspezifische Modellparameter für Wasseraufbereitung.....	135
Tabelle 5-3:	Aktivitätstrennfaktoren für verschiedene Methoden der Radionuklidabtrennung aus Wasser /AKK 99/.....	135
Tabelle 5-4:	Prozessspezifische Faktoren für Phosphogips (Rückstand) beim Aufschluss von Rohphosphat mit Schwefelsäure .....	138
Tabelle 5-5:	Prozessspezifische Faktoren für Calciumsilikatschlacke und Filterstaub (Rückstände) beim thermischen Verfahren .....	139
Tabelle 5-6:	Temperaturen von Verhüttungsprozessen.....	145
Tabelle 5-7:	Massenbilanzen für die Roheisenproduktion in Deutschland (Jahr: 1995). Daten aus /REN 99/.....	147
Tabelle 5-8:	Modellgrößen der Radionuklidumverteilung für die Roheisenproduktion .....	147
Tabelle 5-9:	Anreicherungsfaktoren (EF) Kupferschiefer → Theisenschlamm (berechnet nach Daten von /DES 99/ .....	148
Tabelle 5-10:	Berechnete Anreicherungsfaktoren für Materialien der Titandioxidproduktion.....	153
Tabelle 5-11:	Aschegehalte einiger Brennstoffe .....	155
Tabelle 5-12:	Aktivitäts- und Massenbilanzen für ein Steinkohlenkraftwerk mit Trockenfeuerung und daraus abgeleitete Modellgrößen der Radionuklidumverteilung (ohne Pb-210, Po-210).....	156
Tabelle 5-13:	Schwermetallbilanzen in kohlebefeuernden Kraftwerken /REN 02/ .....	157
Tabelle 5-14:	Mögliche Verminderung der Schwermetallgehalte in Kohlen durch Aufbereitung in technischen Kohleaufbereitungsanlagen [KIRCHARTZ 1995] (zitiert aus /REN 02/.....)	158
Tabelle 5-15:	Radionuklide in Zirkon-Ausgangsmaterial sowie in Flugstäuben beim Brennen dieser Rohstoffe .....	159
Tabelle 5-16:	Ermittelte Parameter von TENORM-bildenden Prozessen.....	161
Tabelle 6-1:	Expositionseigenschaften von Materialtypen.....	198
Tabelle 7-1:	Entsorgungswege für Rückstände der Rohphosphatverarbeitung in Deutschland .....	201
Tabelle 7-2:	Verwertung und Beseitigung von Wasserwerksrückständen in Deutschland (1998).....	205

## Abkürzungsverzeichnis

AP	Arbeitspaket
ATF	Aktivitätstrennfaktor
AtG	Gesetz über die friedliche Verwendung der Kernenergie und den Schutz gegen ihre Gefahren
BBodSchG	Bundesbodenschutzgesetz
BfS	Bundesamt für Strahlenschutz
BMU	Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit
DBVOAS	Durchführungsbestimmung zur Verordnung über die Gewährleistung von Atomsicherheit und Strahlenschutz" (DB zur VOAS) vom 11. Oktober 1984
EF	Anreicherungsfaktor
IAA	Industrielle Absetzanlage
KrW-/AbfG	Gesetz zur Förderung der Kreislaufwirtschaft und Sicherung der umweltverträglichen Beseitigung von Abfällen
MTF	Massentrennfaktor
NORM	naturally occurring radioactive materials
StrlSchV	Strahlenschutzverordnung
TENORM	technologically enhanced naturally occurring radioactive materials
VOAS	Verordnung über die Gewährleistung von Atomsicherheit und Strahlenschutz vom 11. Oktober 1984. GBl. der DDR Teil I Nr. 30 (1984) S. 341
ZF	Korrekturfaktor zu Berücksichtigung der Eigenaktivität von Zuschlagstoffen in Prozessen (Zuschlagfaktor)

# 1 Veranlassung und Aufgabenstellung

## 1.1 Veranlassung

Die Umsetzung des geplanten Gesetzes zu radioaktiven Altlasten sowie die zugehörige Verordnung erfordern die Prüfung und Bewertung von Situationen, bei denen Kontaminationen von Böden, Gewässersedimenten oder Altablagerungen mit Rückständen oder anderen Materialien erheblich erhöhter natürlicher Radioaktivität im Sinne des Teil 3 Kapitel 3 der derzeitigen StrlSchV /BMU 01a/ aus früheren Tätigkeiten oder Arbeiten vorliegen. Um zu sichern, dass die dazu erforderlichen Einzelnachweise auf einer einheitlichen Grundlage ausgeführt werden, beabsichtigt das BfS Richtlinien und Leitfäden zu erstellen. Hierfür soll auf Bewertungsgrundsätze und -verfahren zurückgegriffen werden, die im „Leitfaden zur radiologischen Untersuchung und Bewertung bergbaulicher Altlasten“ /GRS 03/ speziell für Hinterlassenschaften des Alt- und Uranbergbaus in den neuen Bundesländern entwickelt wurden. Die Richtlinien sollen soweit sachlich geboten auch mit entsprechenden Richtlinien zur Umsetzung von Anlage XII Teil D StrlSchV kompatibel sein.

## 1.2 Aufgabenstellung

Mit dem Vorhaben sollen Daten und Informationen aktualisiert und erweitert werden, die für die Schaffung von Regelungen zur Ermittlung der Strahlenexposition bei der Prüfung und Beurteilung von Bodenkontaminationen mit Rückständen im Sinne der StrlSchV erforderlich sind. Kenntnislücken im Bereich der radioaktiven Bodenkontaminationen aus früheren bergbaulichen und industriellen Tätigkeiten oder Arbeiten sollen geschlossen werden und nach Abschluss des Vorhabens ein belastbarer Kenntnisstand zu Expositionsbedingungen und Parametern für Altablagerungen mit den in Anlage XII Teil A genannten überwachungsbedürftigen Rückständen vorliegen, der deutlich über den bisherigen Kenntnisstand hinausgeht. Die geforderte Aktualisierung und Ergänzung der Datenbasis soll vorrangig durch weiterführende Recherchen und eigene Messungen erfolgen. Die zielgerichtete Zusammenstellung von Untersuchungsergebnissen aus vorhandenen Gutachten und Veröffentlichungen ist zur Erfüllung der Aufgabenstellung erforderlich, aber für sich allein nicht ausreichend. Im Einzelnen sind folgende Aufgaben zu bearbeiten:

- A1 Für die in Anlage XII Teil A der StrlSchV aufgeführten überwachungsbedürftigen Rückstände ist darzustellen, welche technologischen und verfahrenstechnischen Prozesse die Nuklidanreicherungen verursachen und in welchen Betrieben der Bundesrepublik Deutschland gegenwärtig solche Rückstände anfallen bzw. in der Vergangenheit angefallen sind.
- A2 Durch Recherchen und eigene Messungen sollen für die in Anlage XII Teil A der StrlSchV genannten Rückstände repräsentative Nuklidvektoren ermittelt werden. Auf radioaktive Ungleichgewichte und zeitabhängige Veränderungen der spezifischen Aktivitäten ist besonders einzugehen.
- A3 Für die in Anlage XII Teil A der StrlSchV aufgeführten Rückstände sind die früheren und heute üblichen und absehbaren Verwertungs- und Beseitigungswege darzustellen.
- A4 Für bergbauliche Ablagerungen und Bodenkontaminationen der in Anlage XII Teil A der StrlSchV aufgeführten Rückstände sind die spezifischen Expositionsszenarien und Expositionspfade bei unter-

schiedlicher Nutzung der Flächen darzustellen. Sowohl für realistische als auch konservative Expositionsabschätzungen sind jeweils geeignete Expositionsparameter abzuleiten.

- A5 Anhand realer Beispiele ist zu prüfen, ob die im „Leitfaden zur radiologischen Untersuchung und Bewertung bergbaulicher Altlasten“ empfohlenen Verfahrensweisen bei der Ermittlung der Strahlenexposition auf andere Altstandorte übertragbar sind.

Die Aufgabenstellung ist entsprechend der Gliederung von Anlage XII Teil A StrlSchV in vier Arbeitspaketen (abgekürzt als „AP“) zu bearbeiten:

- AP 1: Rückstände entsprechend Anlage XII Teil A StrlSchV Nr. 1:  
Schlämme und Ablagerungen aus der Gewinnung von Erdöl und Erdgas.
- AP 2: Rückstände entsprechend Anlage XII Teil A StrlSchV Nr. 2:  
nicht aufbereitete Phosphogipse, Schlämme aus deren Aufbereitung sowie Stäube und Schlacken aus der Verarbeitung von Rohphospat.
- AP 3: Rückstände entsprechend Anlage XII Teil A StrlSchV Nr. 3:  
Nebengestein, Schlämme, Sande, Schlacken und Stäube aus der Gewinnung und Aufbereitung von Bauxit, Columbit, Pyrochlor, Mikrolyth, Euxenit, Kupferschiefer-, Zinn-, Seltene-Erden- und Uranerzen sowie aus der Weiterverarbeitung von Konzentraten und Rückständen, die bei der Gewinnung und Aufbereitung dieser Erze und Mineralien anfallen (3a) und die bei der Gewinnung und Aufbereitung anderer Rohstoffe (dieser Erze) (3b) anfallen.
- Ausgenommen aus dieser Studie sind Hinterlassenschaften des Uranbergbaus in Sachsen und Thüringen, die als Bundesaufgabe von der Wismut GmbH saniert werden.
- AP 4: Rückstände entsprechend Anlage XII Teil A StrlSchV Nr. 4:  
Stäube und Schlämme aus der Rauchgasreinigung bei der Primärverhüttung in der Roheisen- und Nichteisenmetallurgie.

Die im Folgenden genannten und in Kapitel 2 näher beschriebenen Rückstände gemäß den Ziffern a, b und c der Anlage XII Teil A StrlSchV sind in die genannten Arbeitspakete in geeigneter Weise zu integrieren. Es handelt sich um:

- a) Materialien, deren Anfall zweckgerichtet ist,
- b) Formstücke und
- c) ausgehobener oder abgetragener Boden und Bauschutt aus dem Abbruch von Gebäuden oder sonstigen baulichen Anlagen, wenn diese Rückstände nach den Nummern 1ff enthalten und gemäß § 101 StrlSchV nach der Beendigung von Arbeiten oder gemäß § 118 Abs. 5 StrlSchV von Grundstücken entfernt werden.

### 1.3 Gliederung des Berichtes

Ausgehend von der Aufgabenstellung und einer ersten Sachanalyse zu Kenntnisstand und Kenntnislücken wurde der Bericht in zwei relativ eigenständige Teile gegliedert:

**Teil I: Art und Aufkommen von altlastenrelevanten Rückständen und analogen Materialien in Deutschland**

- Untersuchung derzeitiger und früherer Aufkommen der in Kapitel 1.2 benannten Rückstände und Charakterisierung von Art und Nuklidzusammensetzung der dabei auftretenden Materialien,
- Bewertung der radiologischen Relevanz der Rückstände,
- Zusammenstellung von Kenngrößen der Rückstände und Prozesse, die in Hinblick auf Expositionsbewertungen von Altstandorten bedeutsam sein können und
- Ableitung von typischen Nuklidvektoren für Altablagerungen und Berücksichtigung von Zerfall bzw. Nachwachsen von Tochternukliden.

**Teil II: Prüfung der Anwendbarkeit der Berechnungsgrundlagen Bergbau zur Ermittlung von Expositionen**

- Prüfung von spezifischen Expositionsszenarien und Expositionspfaden gemäß der Berechnungsgrundlagen Bergbau bei unterschiedlicher Nutzung der Flächen,
- Bewertung der Anwendbarkeit sowohl für realistische als auch konservative Expositionsabschätzungen und
- ggf. Ermittlung geeigneter Expositionsparameter für spezifische Standortbedingungen.

## 2 Grundlagen und Begriffe

### 2.1 Vorbemerkung

Die StrlSchV vom 20.07.2001 regelt den Schutz des Menschen und der Umwelt vor schädlicher Wirkung ionisierender Strahlung und legt Grundsätze und Anforderungen für Vorsorge- und Schutzmaßnahmen fest, die bei der Nutzung und Einwirkung radioaktiver Stoffe und ionisierender Strahlung zivilisatorischen und natürlichen Ursprungs anzuwenden sind. Die aus radiologischer Sicht wichtigsten natürlichen Radionuklide gehören zu den drei natürlich vorkommenden Zerfallsreihen (s. Abbildung 2-1).

Abbildung 2-1: Die natürlichen Zerfallsreihen inkl. wichtiger Nebenreihennuklide

	U-238 Reihe						Th-232 Reihe				U-235 Reihe					
<b>U</b>	238		234									235				
<b>Pa</b>		234											231			
<b>Th</b>	234		230				232		228			231		227		
<b>Ac</b>								228					227			
<b>Ra</b>			226				228		224					223		
<b>Fr</b>												(223)				
<b>Rn</b>			222						220					219		
<b>At</b>																
<b>Po</b>			218		214	210			216		212			215	(211)	
<b>Bi</b>				214		210				212					211	
<b>Pb</b>			214		210	206			212		208			211		207
<b>Tl</b>										208					207	

## 2.2 Definitionen von Begriffen

In diesem Abschnitt werden die in diesem Bericht benutzten Begrifflichkeiten durch kurze Erklärungen unteretzt.

**Materialien** sind Stoffe, die natürlich vorkommende Radionuklide enthalten oder mit solchen Stoffen kontaminiert sind. Natürliche und künstliche Radionuklide aus Tätigkeiten im Sinne des § 2 StrlSchV oder Ereignissen (Kernwaffenversuche und kerntechnische Unfälle) bleiben unberücksichtigt.

Die international übliche Kurzbezeichnung für Materialien im Sinne der StrlSchV ist **NORM** (Naturally Occurring Radioactive Materials). Radiologisch relevant sind NORM erst, wenn die spezifische Aktivität der Radionuklide die geogenen Hintergrundwerte beträchtlich übersteigt. Das kann sowohl bei natürlichen Rohstoffen, z.B. Uran- und Thoriumerzen oder Schwermineralien (Zirkonsande) als auch bei natürlichen Radionuklidakkumulationen, z.B. in Sedimenten, Quellsintern u.ä. der Fall sein. Wurden die Radionuklide durch technologische Prozesse angereichert, so spricht man von **TENORM** (Technologically Enhanced Naturally Occurring Radioactive Materials).

**Überwachungsbedürftige Rückstände** im Sinne der StrlSchV sind Materialien, die bei den in Anlage XII Teil A StrlSchV genannten Prozessen anfallen, deren spezifische Aktivität für Radionuklide der Nuklidketten über 0,2 Bq/g liegt und die nicht in den genannten Prozessen als Rohstoffe eingeführt werden. Für die Rückstände kann der Überwachungsbedarf nach § 97 StrlSchV entfallen und damit die Eigenschaft radioaktiver Stoffe im Sinne von § 2 AtG /BMU 00/, sofern die Überwachungsgrenzen nach Anlage XII Teil B StrlSchV nicht überschritten werden.

Überwachungsbedürftige Rückstände können nach § 98 StrlSchV durch die zuständige Behörde aus der Überwachung entlassen werden. Sie können dann als (konventionelle) **Abfälle** nach dem KrW-/AbfG /KRW 04/ verwertet oder auf konventionellen Deponien beseitigt werden.

Die charakteristische physikalische Größe zur Quantifizierung der Radioaktivität, die Aktivität bzw. spezifische Aktivität, wird in dieser Studie (soweit nicht explizit erläutert) stets unter Bezug auf die StrlSchV benutzt. Dabei ist wichtig, dass die Größen auf **ein Referenznuclid** bezogen werden. Dieses Referenznuclid ist in der Regel das Nuklid der U-238- bzw. Th-232-Reihe mit der größten Aktivität ( $U_{238,max}$ ,  $Th_{232,max}$ ).

**Radiologische Altlasten** sind gemäß /BMU 05/ Grundstücke oder Teile von Grundstücken, Grubenbaue, Gewässer und Gewässerbetten, bei denen in Folge von früheren Tätigkeiten oder Arbeiten Verunreinigungen durch radioaktive Stoffe bestehen, von denen gegenwärtig oder zukünftig nicht unerhebliche Strahlenexpositionen ausgehen oder ausgehen können oder die wesentlich hierzu beitragen oder beitragen können.

**Unter radiologischen Altlastenverdachtsflächen** sollen im Weiteren Grundstücke oder Teile von Grundstücken, Grubenbaue, Gewässer und Gewässerbetten verstanden werden, bei denen der Verdacht besteht, dass eine radiologische Altlast vorliegt.

Als **Hinterlassenschaften** früherer Tätigkeiten oder Arbeiten im Sinne des § 118 StrlSchV werden in dieser Studie sowohl radiologische Altlasten als auch Gebäude, bauliche Anlagen oder sonstige auf einem Grundstück befindliche Anlagen und Anlagenteile verstanden.

Das unter Anlage XII Teil A StrlSchV Ziffer a) benannte „**zweckgerichtete Anfallen**“ der unter Ziffer 1 bis 4 benannten Materialien erweitert den Rückstandsbegriff im Vergleich zum Abfallbegriff, in dem er auch sog. Koppel- und Nebenprodukte erfasst, die nicht dem Abfallrecht unterliegen (vgl. Begründung zur StrlSchV /BMU 01b/). Das tatsächliche Anfallen solcher Materialien ist bisher allerdings nicht bekannt.

Durch die Einbeziehung von „**Formstücken**“ in die Anlage XII Teil A gemäß Ziffer b) wird darauf hingewiesen, dass Rückstandsregelungen unabhängig davon gelten, ob die im Teil A genannten Materialien im ungeformten Zustand oder als Formstücke (z.B. Steine aus Mansfelder Kupferschlacke) vorliegen (vgl. Begründung zur StrlSchV /BMU 01b/). Eine Begriffsspezifikation wird bisher weder in der StrlSchV noch in der Begründung zur StrlSchV gegeben. Entscheidendes Kriterium für die Zuordnung von geformten Materialien („Formstücke“) zur Kategorie „Rückstände“ ist daher die Entsorgungsabsicht und der Bezug zu den direkt benannten Rückstandsmaterialien. Für die Bewertung von Altlasten/Altlastenverdachtsflächen ist allerdings dieser rechtliche Hintergrund von untergeordneter Bedeutung, da hier die situationsbedingte (potentielle) Strahlenexposition die entscheidende Bewertungsbasis ist.

Bezüglich des als Nr. c benannten **Bodenaushubs und Bauschutts** sind Rückstände im hier betrachteten Sinne solche Materialien, die beim Beenden von Arbeiten und der Beräumung von Grundstücken (§ 101 StrlSchV) oder der Sanierung von Hinterlassenschaften aus früheren Tätigkeiten oder Arbeiten (§ 118 Abs. 5 StrlSchV) anfallen. Das schließt prinzipiell auch Hinterlassenschaften ein, die andere Materialien enthalten als derzeit in Anlage XII Teil A StrlSchV definiert. Für diese Materialien gibt Kapitel 3.8 eine Kurzbewertung verschiedener Sachbereiche in Bezug auf das mögliche Vorkommen eines relevanten (früheren oder aktuellen) Anfalls von TENORM.

### 3 Derzeitiges und früheres Aufkommen überwachungsbedürftiger Rückstände in Deutschland

#### 3.1 Vorbemerkungen

Im Zeitraum zwischen der Erarbeitung der Gutachten /BSP 99/ und /BSP 00/ bis Mitte 2004 haben sich einige Sachverhalte und Annahmen, die der Konzeption der StrlSchV zugrunde lagen, wesentlich verändert. Im Folgenden wird daher zunächst geprüft, welche der einzelnen in Anlage XII Teil A StrlSchV benannten Rückstände in Deutschland derzeit nicht oder nicht mehr anfallen und welche derzeit als Rückstände deklarierten Materialien aus früheren Tätigkeiten oder Arbeiten mit in die Untersuchung einbezogen werden müssen. Weiterhin wird geprüft, welche Materialien, die nicht in Anlage XII Teil A StrlSchV benannt sind, in die Studie aufgenommen werden müssen.

Für die in dieser Studie bearbeitete Aufgabe wird die Herkunft überwachungsbedürftiger Rückstände vor allem unter dem Aspekt der Klärung von regionalen Bezügen, Mengenschätzungen und der Aktivität der Rückstände benutzt, die zu altlastenrelevanten Grundstückskontaminationen geführt haben können. Von einer für Deutschland flächendeckenden Einzelrecherche hinsichtlich der Standorte, auf denen Rückstände angefallen sein können, wurde aus Gründen der Verhältnismäßigkeit Abstand genommen. Einzelne Standorte wurden jedoch in den folgenden Kapiteln genannt und zum Teil näher spezifiziert.

**Es ist darauf hinzuweisen, dass der Begriff „Rückstand“ bzw. „überwachungsbedürftiger Rückstand“ in diesem Zusammenhang nicht im rechtlichen Sinne benutzt wird, da früher angefallenes Material nicht den Regelungen des Teil 3 StrlSchV unterliegt.** Soweit Materialien aber von Art, Herkunft und Aktivität den in der StrlSchV spezifizierten Materialien entsprechen, wird zur vereinfachten Charakterisierung der Rückstands begriff verwendet.

#### 3.2 Rückstände der Gewinnung von Erdöl- und Erdgas

##### 3.2.1 Generell mögliche Rückstände

Nach Anlage XII Teil A Nr. 1 StrlSchV sind Ablagerungen und Schlämme der Gewinnung von Erdöl bzw. Erdgas die zu berücksichtigenden Rückstände. Die gleichen Materialien, die bei der Exploration anfallen, gelten nicht als Rückstände.

**Schlämme** sind nicht verfestigte Ablagerungen in Anlagenteilen (Tanks, diverse Behälter) sowie schlammartige Rückstände, die in den unterschiedlichen Stufen des Aufbereitungs-, Reinigungs- und Produktionsprozesses der Erdöl- und Erdgasgewinnung anfallen. Die Schlämme besitzen meist hohe Wasseranteile und auch signifikante Anteile an Kohlenwasserstoffen (Öl).

Schlämme diverser Konstitution entstehen vor allem als Ergebnis der Mitförderung von Lagerstättenwasser, das gelöste und ungelöste Salze sowie Gesteinspartikel enthält. Sie setzen sich in allen Leitungen und Anlagenteilen, in denen dieses Lagerstättenwasser durchgeleitet oder aufgefangen wurde ab. Bei der Abtren-

nung dieser wässrigen Komponente in der Öl- und Gasreinigung fallen dadurch schlammige Reinigungsrückstände an.

**Scales** (dt. Kesselstein) sind festhaftende Ablagerungen in Rohren und Anlagenteilen. Sie entstehen durch Ausfällungen und Ablagerungen sulfatischer Barium-/Strontium- Verbindungen oder von elementarem Blei aus Lagerstättenwasser.

Bei der Bildung der Schlämme und Scales kommt es zu einer Anreicherung der natürlichen Radionuklide Ra-226 und Ra-228 oder auch Pb-210. Die primordialen Nuklide Uran oder Th-232 werden nicht mit angereichert.

Scales kommen als Rückstände hauptsächlich in zwei Formen vor:

- Anlagenteile mit Ablagerungen, die vor der Entsorgung nicht dekontaminiert wurden. In dem Fall bestimmen vor allem die anhaftenden Scales und Inkrustationen sowie auch diverse Schlammreste die radiologischen Kenngrößen.
- Reinigungsrückstände, die bei der Reinigung von Rohren und Anlagenteile anfallen. Die dabei entstehenden Reinigungsgemische bestehen technologisch bedingt aus zerriebenen Scales und Wasser, aus Sandstrahlgut und Scales oder auch aus Schlamm-Scale-Gemischen.

Koppelprodukte im Sinne zweckgerichtet erzeugter Materialien und Formstücke werden dabei nicht erzeugt. Ein Anfall von Bodenaushub oder Bauschutt ist prinzipiell bei der Beräumung von Grundstücken oder dem Rückbau von Anlagen möglich. Einen Sonderfall stellen die zum Quecksilberrecycling verarbeiteten Rückstände dar (s. Kapitel 5.10).

### 3.2.2 Regionale Schwerpunkte

In der Tabelle 3-1 sind Angaben zur deutschen Erdöl- und Erdgasförderung, d.h. zur Fördermenge im Inland, zu Bohrleistungen insgesamt und den Reserven an Erdöl und Erdgas aufgelistet. Vom Beginn der regelmäßigen Produktion im Jahr 1873 bis Ende 1999 wurden in Deutschland insgesamt 245 Mio. t Erdöl gefördert. Die Erdgasproduktion belief sich von 1912 bis Ende 1999 insgesamt auf rund 768 Mrd. m<sup>3</sup> /WEG 00/.

Tabelle 3-1: Angaben zur deutschen Erdöl- und Erdgasförderung /WEG 04/

	1997	1998	1999	2000	2001	2002	2003
<b>Erdgasförderung (Mrd. m<sup>3</sup>)</b>	20,4	19,9	21,2	20,1	20,3	20,2	21,1
<b>Erdölförderung (Mio. t)</b>	2,8	2,9	2,7	3,1	3,4	3,7	3,8
<b>Bohrleistung im Inland (km)</b>	82,8	85,9	68,2	41,4	54,0	56,8	29,9
<b>Reserven im Inland</b>							
- Erdgas (Mrd. m <sup>3</sup> )	347,5	339,5	325,6	342,3	319,8	305,7	279,1
- Erdöl (Mio. t)	53,0	48,7	51,8	49,7	46,7	60,3	53,8

Eine Aufschlüsselung der Erdgas- und Erdölförderung auf die einzelnen Bundesländer ist in den Tabellen 3-2 und 3-3 gegeben. Aus diesen Angaben folgt, dass sich nahezu die gesamte Erdgasförderung gegenwärtig auf Niedersachsen konzentriert (89,2 %), während zur Erdölförderung Schleswig-Holstein 58 % und Niedersachsen mit 38 % hauptsächlich beitragen.

Angaben zu den wichtigsten deutschen Erdgasfeldern sind in der Tabelle 3-4 und Abbildung 3-1 zusammengestellt. Die ergiebigsten Gasfelder befinden sich in Niedersachsen zwischen den Flüssen Elbe, Weser und Ems. Die profitabelsten Gasfelder liegen dabei im Rotliegenden (42 %) und im Zechstein (41 %). Des Weiteren ist bekannt, dass im Ostteil von Niedersachsen ein großes Potential vorhanden ist, das mit der gegenwärtigen Technologie noch nicht ausgebeutet werden kann. Einen Überblick über die entsprechenden Standorte und die geologischen Formationen gibt die Abbildung 3-1.

Tabelle 3-2: Erdgasförderung aufgelistet nach Bundesländern /WEG 05/

	2003		2002		2001	
	m <sup>3</sup>	%	m <sup>3</sup>	%	m <sup>3</sup>	%
Bayern	35.079.361	0,17	24.958.887	0,12	15.626.685	0,08
Brandenburg	8.643.402	0,04	8.197.523	0,04	7.928.864	0,04
Hamburg	617.708	0	741.115	0	724.410	0
Mecklenburg-Vorpommern	2.921.515	0,02	2.920.686	0,02	3.534.872	0,01
Niedersachsen	19.208.494.129	91,21	18.042.215.475	89,18	18.003.461.913	88,76
Nordrhein-Westfalen	5.237.047	0,02	17.963.695	0,09	64.020.571	0,32
Rheinland-Pfalz	2.564.357	0,02	2.762.824	0,01	3.194.279	0,02
Sachsen-Anhalt	516.341.465	2,45	597.533.261	2,95	641.430.973	3,16
Schleswig-Holstein	1.247.522.940	5,92	1.500.468.604	7,42	1.511.036.307	7,45
Thüringen	31.265.045	0,15	32.359.742	0,16	32.213.671	0,16
<b>Insgesamt</b>	<b>21.058.686.969</b>	<b>100</b>	<b>20.230.121.812</b>	<b>100</b>	<b>20.283.172.545</b>	<b>100</b>

Tabelle 3-3: Erdölförderung aufgelistet nach Bundesländern /WEG 05/

	2003		2002		2001	
	t	%	t	%	T	%
Baden-Württemberg	446	0,01	996	0,03	1.262	0,04
Bayern	35.121	0,92	40.319	1,09	36.980	1,07
Brandenburg	20.861	0,55	20.312	0,55	20.632	0,60
Hamburg	27.186	0,72	30.610	0,83	29.957	0,87
Mecklenburg-Vorpommern	9.600	0,25	9.754	0,26	10.126	0,29
Niedersachsen	1.328.010	34,94	1.403.407	37,90	1.491.733	43,31
Nordrhein-Westfalen	141	0	455	0,01	1.792	0,05
Rheinland-Pfalz	54.221	1,43	59.359	1,60	65.761	1,91
Schleswig-Holstein	2.325.975	61,18	2.137.997	57,73	1.786.057	51,86
<b>Insgesamt</b>	<b>3.801.561</b>	<b>100</b>	<b>3.703.209</b>	<b>100</b>	<b>3.444.300</b>	<b>100</b>

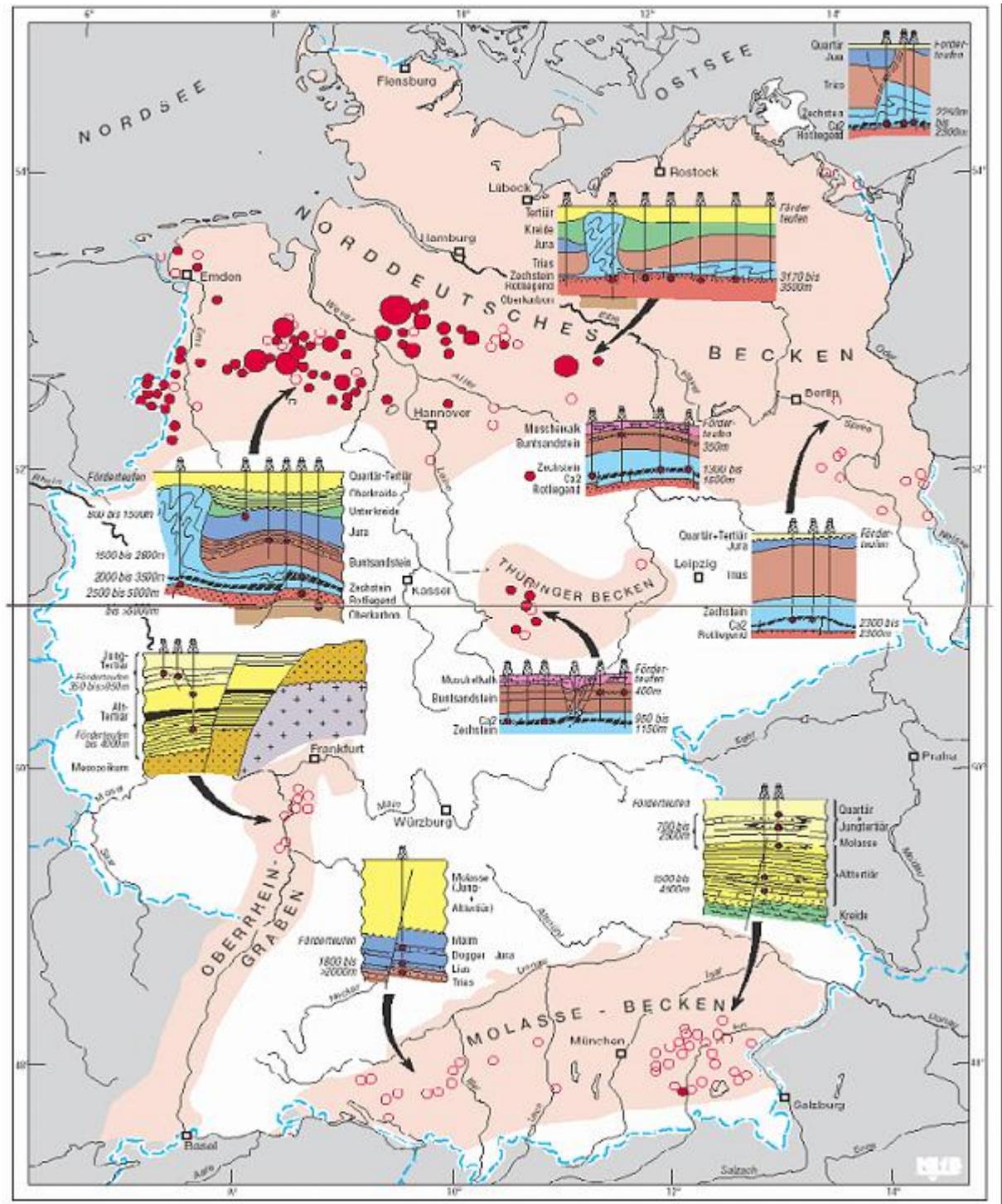


Abbildung 3-1: Standorte der 10 wichtigsten Erdgasfelder in Deutschland und Darstellung der geologischen Verhältnisse /NLfB 03/

Tabelle 3-4: Die ergiebigsten 10 deutschen Erdgasfelder / NLfB 01/

Bundesland	Standort	Erdgasförderung						Anzahl der Bohrungen
		2000		2001		Kumulativ		
		[1.000 m <sup>3</sup> V <sub>n</sub> ]	[%]	[1.000 m <sup>3</sup> V <sub>n</sub> ]	[%]	[1.000 m <sup>3</sup> V <sub>n</sub> ]	[%]	
NI	Rotenburg-Taaken	2.769.468	12,8	2.305.674	10,7	31.486.105	4,0	29
NI	Goldenstedt/Visbek	2.024.190	9,4	2.085.831	9,7	42.790.632	5,4	20
ST	Salzwedel	1.739.921	8,1	1.762.073	8,2	200.636.792	25,5	194
NI	Söhlingen	1.856.214	8,6	1.730.161	8,0	27.346.647	3,5	19
NI	Hemmelte / Kneheim / Vahren	1.684.133	7,8	1.605.461	7,5	21.601.501	2,7	10
SH	Nordsee A6/B4	- / -	- / -	1.221.461	5,7	1.552.545	0,2	3
NI	Völkersen	748.502	3,5	1.117.367	5,2	4.803.687	0,6	9
NI	Siedenburg-West / Hesterberg	864.211	4,0	1.005.748	4,7	19.163.782	2,4	9
NI	Hengstlage	1.231.269	5,7	874.472	4,1	57.167.327	7,3	14
NI	Walsrode / Idsingen	895.741	4,2	860.596	4,0	4.414.855	0,6	9

Die ergiebigsten 10 deutschen Erdölfelder sind in der Tabelle 3-5 aufgeschlüsselt /NLfB 01/. Einen Überblick über diese Standorte und eine Darstellung der geologischen Verhältnisse gibt die Abbildung 3-2.

Tabelle 3-5: Die förderstärksten 10 deutschen Erdölfelder (Stand: 2001) /NLfB 01/

Bundesland	Standort	Erdölförderung						Anzahl der Bohrungen
		2000		2001		Kumulativ		
		[t]	[%]	[t]	[%]	[t]	[%]	
SH	Mittelplate	1.294.684	41,5	1.632.637	47,4	7.806.021	3,0	18
NI	Rühle	335.777	10,8	321.109	9,3	31.311.470	12,1	197
NI	Bramberge	267.556	8,6	247.803	7,2	17.911.473	6,9	46
NI	Georgsdorf	169.276	5,4	162.616	4,7	17.407.268	6,7	147
NI	Emlichheim	172.966	5,5	160.931	4,7	8.433.125	3,3	90
NI	Hankensbüttel	69.838	2,2	61.529	1,8	14.584.113	5,7	31
NI	Meppen	65.519	2,1	57.132	1,7	2.823.680	1,1	22
NI	Scheerhorn	61.168	2,0	55.614	1,6	8.398.733	3,3	61
NI	Barenburg	56.207	1,8	53.798	1,6	6.566.956	2,5	31
NI	Rühme	42.814	1,4	38.844	1,1	1.876.684	0,7	34

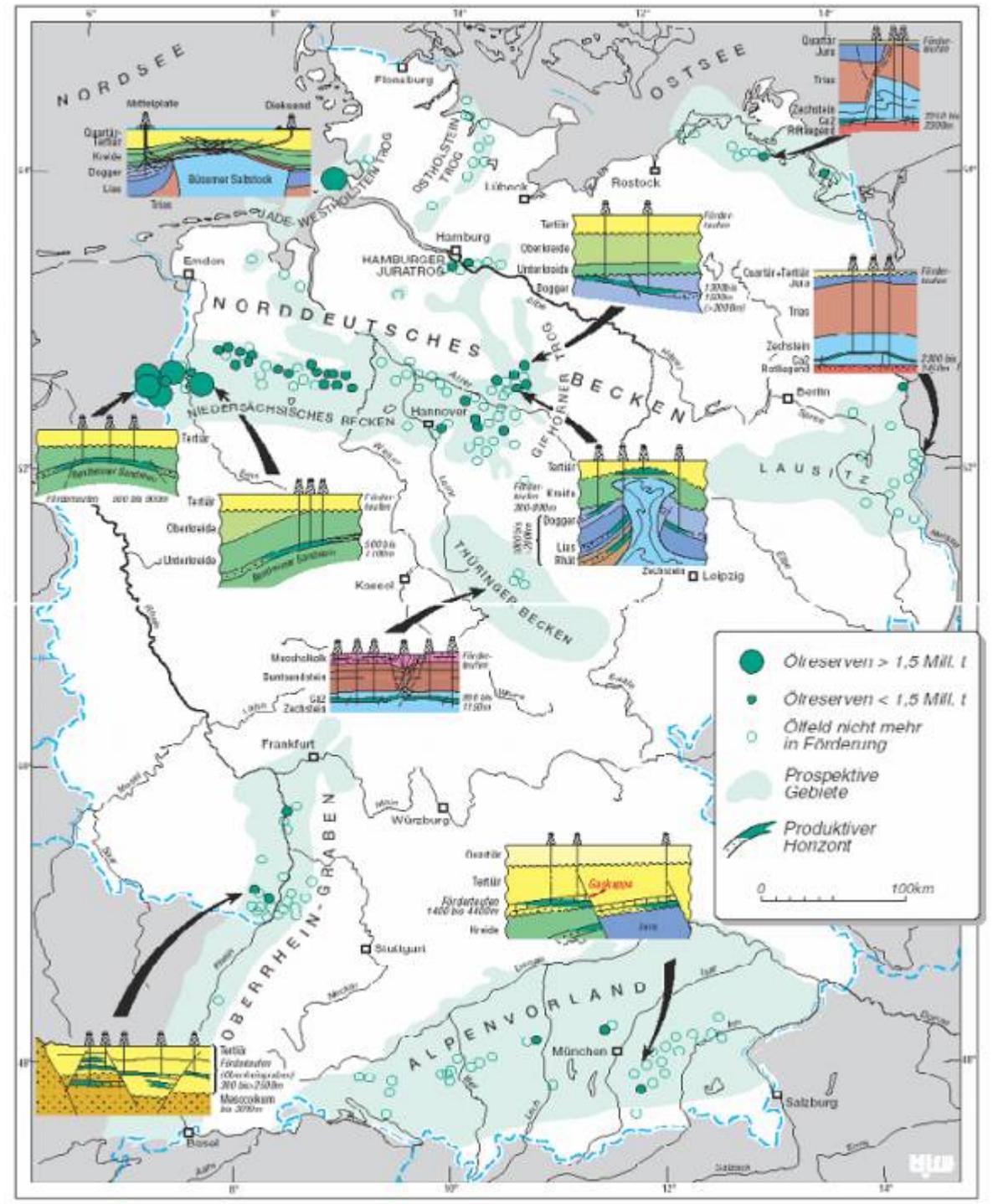


Abbildung 3-2: Standorte der Erdölförderung in Deutschland und Darstellung der geologischen Verhältnisse /NLfB 03/

### 3.2.3 Mengen und Aktivitäten

Um eine Abschätzung der Gesamtmenge von mit Scales kontaminierten Sondenrohren („Tubings“) zu erhalten, kann die Gesamtbohrleistung im Zusammenhang mit Exploration und Gewinnung herangezogen werden. Die Abbildung 3-3 verdeutlicht, dass diese Bohrleistung seit dem Jahr 2000 auf unter 60 km pro Jahr zurückgegangen ist. Bei einer Bohrerfolgsbilanz von 50 %, die fündig und zu Produktionsbohrungen ausgebaut wird, sind allein seit 1990 ca.  $15 \times 30 = 450$  Förderbohrungen in Betrieb gegangen. In diesen Bohrungen befinden sich Fördersonden, die bei Rückbau der Bohrung gezogen und entsorgt werden müssen.

Bei einer Dichte der Scales im Bereich von  $(2 - 4) \text{ g/cm}^3$  und mittleren Scaleschichtdicken von  $(0,25 - 2,0) \text{ mm}$  beträgt die Masse der Scales in einem Steigrohr von 10 m Länge und 10 cm Durchmesser somit mehrere kg. Geht man davon aus, dass durchschnittlich 2 kg an Inkrustationen (Scales) an ca. 10 m langen Tubings anhaften, können ca. 20 t Scales pro 100 km Sondenlänge als Schätzgröße für die Scalemenge an Fördersonden veranschlagt werden.

Diese Menge führt nur infolge von Rohrreinigungsmaßnahmen zu einem Aufkommen an Scales. Bei der Wasserstrahl-Hochdruckreinigung einer Fördersonde von 5 km Länge fallen folglich  $(3 - 5) \text{ t}$  scaleartige Rückstände an.

Bei einer Sandstrahlreinigung erhöht sich die Menge an zu entsorgenden Rückständen, es reduziert sich aber die mittlere spezifische Aktivität in Abhängigkeit von der eingesetzten Menge des Sandstrahlgutes. Erste Untersuchungen bei IAF - Radioökologie GmbH zeigten, dass die mittlere spezifische Aktivität bei lediglich  $2 \text{ Bq/g}$  lag und relativ stark schwanken kann.

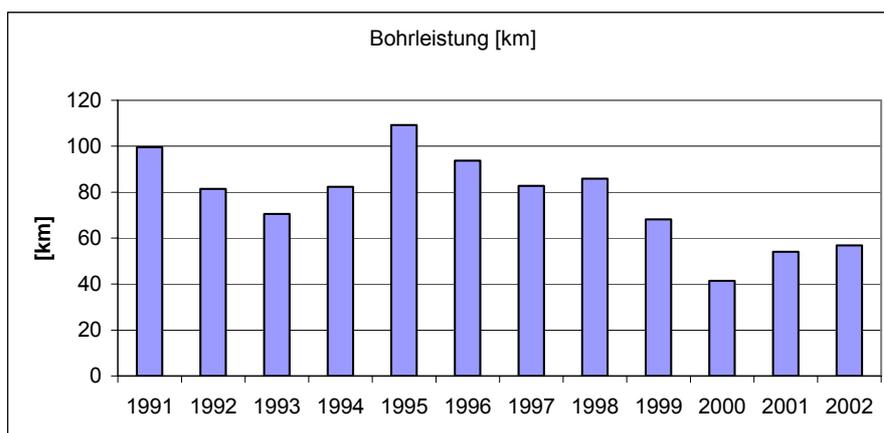


Abbildung 3-3: Bohrleistung in der Erdöl- und Erdgasindustrie seit 1991 /WEG 05/

In der Tabelle 3-6 ist der Kenntnisstand zum Mengenaufkommen mit unterschiedlicher spezifischer Aktivität für NORM-Rückstände aus der Erdöl-/Erdgasindustrie zusammenfassend dargestellt /HGN 03a/. Die Angaben für die Schlämme korrespondieren mit den Angaben der GMR Leipzig (s. Tabelle 3-7). In dieser Firma werden quecksilberhaltige Schlämme, die bei den deutschen Erdgasproduzenten anfallen, rezykliert.

Tabelle 3-6: Mengenaufkommen an NORM-Rückständen aus der deutschen Erdöl-/Erdgasindustrie /HGN 03a/

<b>NORM-Rückstände</b>	<b>pro Jahr anfallende Mengen</b>	<b>Spezifische Aktivitäten</b>
Produktionsschlämme (Nach Abzug der flüssigen Phase und Reinjektion der flüssigen Phase in die Lagerstätte)	50 - 250 t	50 - 100 Bq/g 30% (*) 20 - 50 Bq/g 20% < 20 Bq/g 50%
Trockene reine Scales	20 - 60 t	Mittelwert: 100 – 200 Bq/g, max. 400–920 Bq/g
Anlagenteile mit Scales	20 400 t	Mittelwert (Scale plus Anlagenteile): < 10 Bq/g Mittelwert: Scale 100 - 200 Bq/g

(\*) Massenanteil in %

Die untere Grenze von 20 t gemäß Tabelle 3-6 ist als ein absolutes Minimum des Massenaufkommens zu betrachten, das allein bei Routinereparatur- und Wartungsarbeiten anfallen kann (z.B. Auswechseln von radioaktiv kontaminierten Ventilen und Schiebern in Steig- und Transportrohren). Tatsächlich wird der Anfall eher deutlich höher liegen. Auch die angegebene obere Grenze von 400 t ist eher als Orientierungsgröße zu betrachten. Falls z.B. Stränge von mehreren km Länge gezogen werden, kann das Stahlaufkommen mehrere hundert Tonnen betragen. Insbesondere ist die angegebene obere Grenze zu relativieren, wenn großflächig Fördersonden zurückgebaut werden.

Tabelle 3-7: Hochgerechnetes Mengenaufkommen an NORM-Rückständen aus der Erdgasindustrie nach Angaben der GMR Leipzig für das Jahr 2002

<b>NORM-Rückstände</b>	<b>pro Jahr anfallende Mengen</b>	<b>Spezifische Aktivitäten</b>
angelieferte Produktionsschlämme, enthalten neben Quecksilber auch zum Teil die flüssige Phase	50 - 250 t	50 – 100 Bq/g 4% 20 – 50 Bq/g 10% < 20 Bq/g 86% Mittelwert: 10 Bq/g

Zu diesen Rückständen der Erdöl- und Erdgasindustrie sind nachfolgenden Anmerkungen zu beachten.

Schlämme aus Erdöl-/Erdgasförderanlagen fallen quasi kontinuierlich an. Das Mengenaufkommen von Scales hängt dagegen entscheidend vom Rückbau von Altanlagen ab. Aber auch durch Wartungs- und Reparaturarbeiten fallen diskontinuierlich kleinere Mengen an. Die Hauptphase des Rückbaus der Fördereinrichtung

gen wird für die Zeit bis 2015 erwartet. Ein kontinuierliches Aufkommen von Scales betrifft nur den regelmäßigen Ersatz von Anlagenteilen während des Förderbetriebes.

Ein erheblich höheres Aufkommen an Schlämmen als in Tabelle 3-6 angegeben, wurde in /HGN 03a/ abgeschätzt. Mit den folgenden Annahmen wird ein Mengenaufkommen von ca. 20.000 t pro Jahr geschätzt:

- Erdöl: 10 m<sup>3</sup>/a (On-Shore) bzw. 80 m<sup>3</sup>/a (Off-Shore) je Fördereinrichtung, 1.153 Erdölfördereinrichtungen (On-Shore)
- Erdgas: 1 m<sup>3</sup>/a (On-Shore) bzw. 8 m<sup>3</sup>/a (Off-Shore) je Fördereinrichtung, 575 Erdgasfördereinrichtungen (On-Shore), 3 Erdgasfördereinrichtungen (Off-Shore)

Der mit diesen Angaben beschriebene jährliche Massenstrom enthält aber wahrscheinlich alle anfallenden Materialien. Es ist davon auszugehen, dass es sich hierbei zu großen Teilen um Materialien handelt, die aufgrund geringer Aktivität keine überwachungsbedürftigen Rückstände darstellen.

Die in Tabelle 3-6 angegebenen spezifischen Aktivitäten für reine Scales und Anlagenteile sind in guter Übereinstimmung mit Werten, die bei IAF - Radioökologie im Zuge von Radionuklidanalysen für unterschiedliche Auftraggeber erhalten wurden (s. Tabelle 3-8).

Tabelle 3-8: Aktivitätsdifferenziertes Mengenaufkommen an NORM-Rückständen aus der Erdöl- Erdgasindustrie nach Auswertung von Radionuklidanalysen durch IAF - Radioökologie GmbH für unterschiedliche Auftragnehmer aus der Erdgasindustrie

NORM-Rückstände	pro Jahr anfallende Mengen	Spezifische Aktivitäten
Scales plus anderweitige Inkrustationen nach Rohrreinigung	20 t (Schätzwert für ca. 10 km Rohre)	Mittelwert: 50 Bq/g, maximal bis 500 Bq/g
Anlagenteile mit Scales	20 - 400 t	Mittelwert (Scale plus Anlagenteile): < 10 Bq/g Mittelwert: Scales 100 - 200 Bq/g

### 3.3 Rückstände der Verarbeitung von Rohphosphat und Aufbereitung von Phosphogipsen

#### 3.3.1 Generell mögliche Rückstände

Rückstände der Verarbeitung von Rohphosphat und der Aufbereitung von Phosphogipsen<sup>1</sup> nach Anlage XII Teil A Nr. 2 StriSchV sind Stäube und Schlacken aus der Verarbeitung von Rohphosphat, Schlämme aus der Aufbereitung von Phosphogipsen sowie unaufbereiteter Phosphogips.

Bei der Gewinnung von Rohphosphat kann nicht zu verwertender Abraum (**Bergematerial**) anfallen. Bei der Verarbeitung des Rohphosphates besteht die Möglichkeit der Entstehung von unaufbereiteten **Phospho-**

<sup>1</sup> Klassische Schreibweise „Phosphogips“ (auch in StriSchV); in aktuellen Schriften häufig auch „Phosphorgips“.

**gipsen, Filterstäuben** und **Silikatschlacken**. Weiterhin können bei der Verarbeitung von Rohphosphaten auch Scales in Anlagenteilen, Filtermatten und Schlämme anfallen. Diese werden in Anlage XII, Teil A der StrlSchV jedoch nicht genannt. Scales, Schlämme, Filtermatten und Filterstäube können auch bei der Weiterverarbeitung von ungereinigter Phosphorsäure anfallen. Bei der Aufbereitung der Phosphogipse zu Synthese- oder Baugips können **Schlämme** anfallen.

Sofern Phosphogipse genutzt und nicht direkt entsorgt werden, können sie als Koppel- und Nebenprodukte mit erhöhter natürlicher Radioaktivität angesehen werden. Da sie aber bereits in der Aufzählung zur Anlage XII Teil A direkt benannt sind, ist die Frage, inwieweit es sich hier um zweckgerichtet herbeigeführten Anfall von Rückständen handelt, von nachrangiger Bedeutung.

Rückstände können weiterhin in Form von **Bodenaushub** bzw. **Bauschutt** bei der Stilllegung von Gebäuden und Anlagen bzw. der Beräumung von Grundstücken entstehen, in denen Materialien hergestellt, gelagert bzw. umgeschlagen wurden. Dazu gehören auch Anlagenteile mit Scalebildungen.

Weitere Rückstände können als **Bauschutt** beim Abbruch von Gebäuden und Anlagen anfallen, in denen geformte Baustoffe (= **Formstücke**, z.B. Platten), die aus Phosphogips bestehen bzw. Phosphogips als Zuschlagsstoff enthalten, verbaut worden sind.

### 3.3.2 Regionale Schwerpunkte<sup>2</sup>

Gemäß /TÜV 05a/ wurden in Deutschland im Lahn-Dill-Gebiet (Hessen) im Zeitraum von 1865 – 1921 mindestens ca. 750.000 t Rohphosphat gewonnen und aufbereitet. In der Arbeit /FRI 89/ ist darüber hinaus als Phosphatgrube die Grube „Kleiner Johannes“ bei Pegnitz (Oberpfalz) aufgeführt. Die in Deutschland bis in die 1990er Jahre hauptsächlich verarbeiteten Erze wurden aus den USA, Nordafrika (Marokko und Algerien), Russland und Israel importiert und in den Herkunftsländern bereits aufbereitet /BSP 99/.

Das Rohphosphat wurde in der Vergangenheit im Wesentlichen zur Herstellung von Phosphorsäure, Phosphor und Düngemitteln verwendet. Phosphorsäure wurde durch das nasschemische Verfahren (wesentlicher Rückstand: Phosphogips) und Phosphor durch das thermische Verfahren (wesentlicher Rückstand: Filterstaub und Silikatschlacke) hergestellt.

Nach /TÜV 04a/ erfolgte die Herstellung von elementarem Phosphor bei Anwendung des thermischen Verfahrens vor dem 2. Weltkrieg insbesondere durch die I.G. Farbenindustrie AG an den Betriebsorten Piesteritz und Bitterfeld. Nach dem 2. Weltkrieg erfolgte die Produktion von Elementar-Phosphor noch am Standort Piesteritz und insbesondere auch in Knapsack, wo zeitweise der größte Phosphorofen der Welt betrieben wurde. An den Standorten wurden keine größeren Aufhaldungen von Rückständen nachgewiesen.

Die Herstellung von Phosphorsäure mittels nasschemischer Verfahren (Aufbereitung von Rohphosphat mit  $H_2SO_4$ ) konzentrierte sich vor dem 2. Weltkrieg nach /TÜV 04a/ auf die Standorte Mainz (Chemische Fabrik

---

<sup>2</sup> Eine Zusammenstellung von Rechercheergebnissen zu Einzelstandorten der Phosphatindustrie enthält Anhang B

Budenheim und Chemische Werke vorm. H. & E. Albert) und Piesteritz (I.G. Farben). Weiterer Produktionsort war auch noch nach dem 2. Weltkrieg Hürth (Hoechst AG). Weitere Werke mit nasschemischer Produktion befanden sich in Biebrich, Duisburg und Dillingen (Chemischen Werken vorm. H. & E. Albert). In der Chemischen Fabrik Wülfel Just & Dittmar wurden vor und während des 2. Weltkrieges in Hannover-Wülfel zeitweise Phosphorsäure und phosphorsaure Salze für die Nahrungsmittel- und Arzneimittelindustrie hergestellt /TÜV 04a/.

Die Gipswerke Lüneburg firmieren heute nach /TÜV 04a/ unter dem Namen „Gipswerke Embsen“ und gehören zur Knauf Gips KG, Iphofen. Laut Auskunft des Werkes fällt heute kein Phosphat-Gips während der Produktion an. Es wurde aber eingeräumt, dass es früher zeitweise eine Phosphorsäure-Produktion mittels Schwefelsäureaufschluss gab. Der dabei entstandene Phosphogips wurde auf die hauseigene Deponie, die als „Rohstoff-Aufhaltung“ bezeichnet wird, entsorgt. Diese Aufhaltung dient als Rohstoff-Zwischenlager. Das aufgehaltete Material wird ständig recycelt und in die aktuelle Putzgips-Produktion mit eingebunden, so dass keine Altlasten vorhanden sind. Über auf dem Gelände durchgeführte Messungen ist nichts bekannt.

Die Verarbeitung von Rohphosphat zu Phosphor, bei der Rückstände in Form von Filterstäuben und Silikatschlacken entstehen, wird nach /BSP 00/ seit Mitte der 1990er Jahre in Deutschland nicht mehr durchgeführt. Die industrielle Phosphorsäureproduktion mit unaufbereiteten Phosphogipsen als Rückständen gibt es nach /BSP 00/ seit Ende der 1990er Jahre ebenfalls nicht mehr. Im Jahr 1995 wurden ca. 264.000 t ungemahlene und ca. 25.000 t gemahlene Rohphosphate eingeführt /TÜV 05a/. Die Hauptlieferländer waren Israel, USA, Russland und Algerien.

Nach Angaben aus /TÜV 05a/ wurden im Jahr 2003 Rohphosphate in der Größenordnung von 100.000 t importiert. Diese Menge korrespondiert gut mit Angaben nach /BRU 04/, nach denen nasschemische Aufbereitung importierter Rohphosphate in einem Werk der Fa. AMFERT (Amsterdam Fertilizers) in Ludwigshafen durchgeführt wird. Pro Jahr werden in diesem Werk 100.000 - 110.000 t Rohphosphat aus Israel nach einem speziellen Vollaufschlussverfahren zu Komplexdüngern (PS- bzw. KPS-Dünger) verarbeitet, bei dem keine Rückstände (Phosphogips) anfallen, d.h. die Schwefelfraktion (Gips) ist Bestandteil des Düngers.

Weiterhin wird in Krefeld Rohphosphat zur Herstellung von NPK-Düngern bei der Fa. Compo, einem Unternehmen der K+S AG, verarbeitet /BÄD 04/. Dabei fallen ebenfalls keine Rückstände an, da das Phosphat nur gemahlen und anschließend mit den anderen Dünger-Bestandteilen (Kalisalze, Ammonium) gemischt wird. Da bei der Herstellung von Düngemitteln die natürlichen Radionuklide im Produkt verbleiben und somit keine Rückstände anfallen, wird die Herstellung von Düngemitteln im Weiteren nicht diskutiert.

Nach Angaben in /EU 05/ wurde bis 2001 auch durch die Chemischen Werke Piesteritz (CWP) noch Phosphorsäure und Folgeprodukte nach dem thermischen Verfahren hergestellt. Die Anlagen zur Phosphatproduktion wurden im Februar 2001 verkauft. Eine Umstellung auf Nassverfahren war vorgesehen, war/ist aber wohl schwierig. In /EU 05/ wird erwähnt, dass im Jahr 2000 als Koppelprodukt ein „hochtoxisches“ Raffinat angefallen ist.

Nach einer aktuellen Recherche existieren in Deutschland noch zwei Unternehmen mit diversen Produktionsstandorten, die Phosphorsäure in der Größenordnung von einigen 10.000 t/a herstellen. Dabei wird importierte „technische“ Phosphorsäure gereinigt (Chemische Fabrik Budenheim KG /VOI 04/) oder Poly-

Phosphorsäure aus gelbem Phosphor hergestellt (Clariant GmbH /SCH 04/). Vor allem bei der Reinigung technischer Phosphorsäure können Reinigungsrückstände anfallen, für die mit erhöhten Urangelhalten gerechnet werden muss (s. Kap. 3.3.3).

Die Aufbereitung von Phosphogipsen zu Bau- oder Synthesegips mit Schlämmen als relevanten Rückständen wurde in Deutschland bisher nicht ausgeführt, da die Gipse nach /BSP 99/ ausschließlich als unaufbereitete Phosphogipse zur Beseitigung auf betriebseigenen Deponien aufgehaldet worden sind. Eine Verwertung der Phosphogipse wäre zwar grundsätzlich möglich, jedoch aufgrund des in großen Mengen zur Verfügung stehenden Naturgipses nicht wirtschaftlich. Möglich ist jedoch, dass Formstücke wie z.B. Gipsplatten, in denen Phosphogips verarbeitet wurde, nach Deutschland importiert werden oder importiert worden sind.

Am Standort Bitterfeld-Wolfen befinden sich nach /TÜV 04a/ diverse Altablagerungen und Deponien. Nach der Übersicht der Altablagerungen und Deponien sind aber nur für eine Sonderdeponie („Freiheit IV“) Phosphorverbindungen explizit genannt. Für andere Deponien, z.B. Sonderdeponie „Freiheit III“, sind nur allgemein „Industrieschlämme“ ausgewiesen, so dass Phosphatrückstände nicht auszuschließen sind. Nachfolgend sind ausgewählte Altstandorte und Deponien aufgeführt, auf denen ggf. Phosphatverbindungen abgelagert waren. Alle Flächen sind bereits oder werden gegenwärtig saniert. Die Abfälle wurden in UTD verwahrt oder die Deponien wurden bzw. werden on-site nach TA Abfall saniert, d.h. sie sind mit einer Mehrschichtabdeckung versehen und haben eine Sickerwasserdrainage.

Tabelle 3-9: Ausgewählte Altablagerungen und Deponien am Standort Bitterfeld-Wolfen /TÜV 04a/

Bezeichnung	Fläche [ha]	Volumen [Mio. m <sup>3</sup> ]	Wesentliche Inhaltsstoffe	Stand der Sanierung
Klärateiche Süd		1,0	Industrieschlämme, PCDD/F, Schwermetalle	abgeschlossen
Sonderdeponie Freiheit III	90	2,0	Industrieschlämme, Asche, Bauschutt, PAK, LHKW	Beendigung Ablagerung 2005; ordnungsgemäßer Deponieabschluss
Sonderdeponie Freiheit IV		10,0	Hg-haltige Asche, Phosphor-Verbindungen	Stilllegung 1996, Vorbereitung zur Nachnutzung
Grube Marie		0,5	Industrieschlämme, Fäkalien	
Spittelwasser			Industrieschlämme, Schwermetalle, PAK, CKW	abgeschlossen

Nach /TÜV 04a/ besitzt die Hoechst AG eine Werksdeponie (Deponie Knappsack) im ehemaligen Braunkohletagebau „Vereinigte Ville“ in Hürth (Nordrhein-Westfalen), auf der Phosphogipse eingelagert wurden.

### 3.3.3 Mengen und Aktivitäten

Nach Angaben des TÜV Süd /TÜV 04a/ wurden am Standort Piesteritz der IG Farbenindustrie AG im Bezugsjahr 1936 17.440 t Elementarphosphor (thermisches Verfahren) und 39.366 t Phosphorsäure (bezogen

auf  $P_2O_5$ ) hergestellt; letztere mittels Schwefelsäureaufschluss. Daraus ergibt sich allein für das Bezugsjahr 1936 eine Rückstandsmenge von ca. 160.000 t bis 200.000 t. Über den Verbleib liegen nur wenige Informationen vor. Nach Angaben der zuständigen MDSE wurden zwar auf der Deponie Griebo Phosphatrückstände abgelagert, sie sind aber nicht wesentlich für das Gesamtschadstoffpotential.

Nach dem 2. Weltkrieg erfolgte die Produktion von Elementar-Phosphor noch am Standort Piesteritz mit 14.000 t im Bezugsjahr 1977 sowie durch die Höchst AG in Hürth mit 80.000 t im Jahre 1977.

Nach Angaben des TÜV Süd /TÜV 04a/ wurde in der Chemischen Fabrik Budenheim im Bezugsjahr 1936 7.038 t Phosphorsäure (bezogen auf  $P_2O_5$ ) mit nass-chemischer Aufbereitung ( $H_2SO_4$ -Verfahren) hergestellt. Für die Zeit vor dem 2. Weltkrieg wird eine Menge von ca. 9.250 t Phosphorsäure (bezogen auf  $P_2O_5$ ) angegeben. Mengenmäßig fallen bei der Verarbeitung von drei Tonnen Rohphosphat zu einer Tonne  $P_2O_5$  ca. 4 – 5 Tonnen Phosphogips an. Folglich ergeben sich für das Bezugsjahr 1936 etwa 28.000 t bis 35.000 t Phosphogips. Hochgerechnet über den gesamten Zeitraum der Rohphosphatverarbeitung von 1918 bis Mitte der 1990er sind schätzungsweise mehr als 2 Mio. Tonnen Phosphogips angefallen, über dessen Weiterverarbeitung oder Deponierung keine Angaben vorliegen. Aus der gegenwärtigen Produktion von Phosphaten aus „technischer“ Phosphorsäure fallen nach Auskunft des Betreibers nur sehr geringe Rückstandsmengen an, die in Fässern verpackt in die Untertagedeponie (UTD) Herfa-Neurode verbracht werden /TÜV 04a/.

In den Chemischen Werken vorm. H. & E. Albert wurden nach Angaben des TÜV Süd /TÜV 04a/ im Bezugsjahr 1936 2.203 t Phosphorsäure (bezogen auf  $P_2O_5$ ) mit nass-chemischer Aufbereitung ( $H_2SO_4$ -Verfahren) hergestellt. Mengenmäßig fallen bei der Verarbeitung von drei Tonnen Rohphosphat zu einer Tonne  $P_2O_5$  ca. 4 – 5 Tonnen Phosphogips an. Folglich ergeben sich für das Bezugsjahr 1936 etwa 8.800 t bis 11.000 t Phosphogips. Über Gesamtmengen an Rückständen (Phosphogips) bzw. über dessen Weiterverarbeitung oder Deponierung liegen keine Angaben vor.

Angaben zum Umfang der Phosphorsäureproduktion in der Chemische Fabrik Wülfel Just & Dittmar und den daraus resultierenden Rückständen liegen nicht vor. Offenbar war die Produktion von Phosphorsäure und phosphorsäuren Salzen von geringer Bedeutung und wurde nach dem 2. Weltkrieg nach Betreiberangaben nicht mehr durchgeführt. Die Fabrik produziert heute hauptsächlich Phosphide, wobei anfallende Reste üblicherweise wieder in den Produktionsprozess eingebunden werden. Sollten dennoch einmal Reste auf die hauseigene Deponie gelangen, wären diese leicht flüchtig, da sie sich unter Luftfeuchtigkeit sehr schnell zersetzen und somit in die Atmosphäre und nicht in den Boden gelangen /TÜV 04a/.

Angaben zu Produktionsmengen der Hoechst AG liegen zwar nicht vor, doch ist bekannt, dass auf der Deponie Knappsack (gehört der Höchst AG) ca. 6,5 Mio. t Phosphogips deponiert wurden. Unter der Annahme, dass der angefallene Phosphogips komplett auf der Deponie Knappsack abgelagert wurde, entspricht das einer Phosphorsäureproduktion an diesem Standort von mindestens 1,2 Mio. t im gesamten Produktionszeitraum.

Zu den aktuellen Mengen von Phosphogipsen, Filterstäuben und Silikatschlacken aus der Verarbeitung von Rohphosphat in Deutschland gibt es keine Angaben. Die Jahresmengen sind auf jeden Fall im Vergleich zu früheren Zeiten deutlich geringer anzusetzen, evtl. fallen auch keine Rückstände mehr an.

Hinsichtlich der spezifischen Aktivität bestehen wesentliche Unterschiede zwischen sedimentären Rohphosphaten (Phosphorit) und Rohphosphaten vulkanischen Ursprungs (Apatit). Nach den Recherchen in /TÜV 04b/ stammten die am Standort Piesteritz der IG-Farben im Jahre 1936 verarbeiteten ca. 132.000 t zum größten Teil, nämlich 128.800 t aus den USA (davon ca. 87.000 t aus Florida) und der Rest kam aus Russland, war jedoch kein aktivitätsarmer Kola-Apatit.

Nach /BEC 91/ weisen die in Deutschland überwiegend verarbeiteten sedimentären Rohphosphate relativ viel Uran und Cadmium, aber wenig Thorium auf. Demgegenüber haben Rohphosphate vulkanischen Ursprungs niedrigere Uran- und Cadmium-, aber höhere Thorium-Gehalte. Die Nuklide beider Zerfallsreihen stehen annähernd im radioaktiven Gleichgewicht /MAZ 99/ bzw. der Uran-Gehalt ist gegenüber Ra-226 leicht erhöht /ICP 02/. Ausgewählte Beispiele enthält nachfolgende Tabelle.

Tabelle 3-10: Spezifische Aktivitäten des Rohphosphates (Ausgangsstoff)

Ausgangsstoff	Herkunft	Quelle	Spezifische Aktivität [Bq/kg]			
			U-238	Ra-226	Th-232	Ra-228
Phosphorit	Marokko	/GRS 02/ UNSCEAR 77/82	1.740	1.702	33	-
Apatit	Kola-Halbinsel	/NRI 02/	64	38	-	115
Phosphorit	Russland (Kola)	/BEC 91/ UNSCEAR 82	-	390	25	-
Phosphorit	Brasilien Brasilien (Olinda)	/MAZ 99/	165 - 1.130	160 - 1.120	270 – 300	270 -300
		UNSCEAR	3367	3552	163	
Phosphorit	Syrien	/MAZ 99/	830	820	-	-

Der in Deutschland aus früherer Phosphorsäureproduktion angefallene Phosphogips enthält nach /BSP 00/ hohe Gehalte an Ra-226, während Thorium nur in geringen Mengen vorkommt. Die relativ hohe Ra-226-Aktivität resultiert aus der hauptsächlichen Verwendung von sedimentärem Rohphosphat (Phosphorit) in Deutschland.

Tabelle 3-11: Spezifische Aktivitäten des Phosphogipses (Rückstand)

Rückstand	Herkunft	Quelle	Spezifische Aktivität [Bq/kg]			
			U-238	Ra-226	Pb-210	Th-232
Phosphogips aus Apatit	k.A.	/BSP 00/		56		18
Phosphogips aus Phosphorit	k.A.	/BSP 00/		518 (max. 1.036)		19
Phosphogips aus Phosphorit	k.A.	/BSP 00/		592		15
Phosphogips Nordenhamm	Florida	/SCH 85/		290	360	k.A.
Phosphogips Pr. 1	nicht genannt	Messung IAF	30	36	34	64
Phosphogips Pr. 2	nicht genannt	Messung IAF	90	115	87	280
Phosphogips Pr. 3	nicht genannt	Messung IAF	85	140	110	280

Die beim thermischen Prozess der Phosphorherstellung auftretenden spezifischen Aktivitäten liegen teilweise deutlich über  $0,5 \text{ Bq/g} = 500 \text{ Bq/kg}$ . Gemäß /ERK 97/ können Werte bis zu  $1.000 \text{ Bq/g}$  bzw.  $1 \text{ Mio. Bq/kg}$  Pb-210 in den Filterstäuben und bis zu  $1 \text{ Bq/g}$  bzw.  $1.000 \text{ Bq/kg}$  U-238 in den Silikatschlacken erreicht werden. Nach Angaben aus /IAE 03/ liegt die spezifische Aktivität von Phosphorofenschlacke in den USA zwischen  $444\text{--}2.027 \text{ Bq/kg}$  U-238,  $407\text{--}1.517 \text{ Bq/kg}$  Ra-226,  $56 \text{ Bq/kg}$  Pb-210,  $31 \text{ Bq/kg}$  Po-210 und  $9\text{--}41 \text{ Bq/kg}$  Th-232. Für Phosphorofenschlacke in Europa werden angegeben:  $1.000\text{--}1.500 \text{ Bq/kg}$  U-238,  $1.000 \text{ Bq/kg}$  Ra-226.

In ungereinigter technischer Phosphorsäure können laut Literaturzusammenstellung in /TÜV 05a/ beachtliche spezifische Aktivitäten vorkommen. Angegeben werden<sup>3</sup>  $650 \text{ Bq/kg}$  U-238 (gereinigte Phosphorsäure:  $5 \text{ Bq/kg}$  U-238, Raffinat  $2.200 \text{ Bq/kg}$  U-238). Für die Rückstände einer solchen Reinigung sind daher vor allem Urananreicherungen zu erwarten.

Hinsichtlich der Rückstände in Form von Bodenaushub und Bauschutt (inkl. der Scalebildung in Anlagenteilen) liegen keine Informationen zu Mengen und Aktivitäten vor.

### 3.4 Rückstände der Gewinnung und Aufbereitung von Erzen und Mineralien

#### 3.4.1 Generell mögliche Rückstände

Rückstände nach Anlage XII Teil A Nr. 3a StrlSchV sind Nebengestein, Schlämme, Sande, Schlacken und Stäube aus der Gewinnung und Aufbereitung von Bauxit, Columbit, Pyrochlor, Mikrolyth, Euxenit, Kupferschiefer-, Zinn-, Seltene Erden- und Uranerzen.

Unter **Gewinnung und Aufbereitung** wird im Folgenden die bergbauliche Gewinnung und die unmittelbar daran anschließende Aufbereitung der Erze oder Minerale durch Zerkleinerungs-, Sortierungs- und Trennprozesse mit dem Ziel der Herstellung mineralischer Konzentrate verstanden.

Bei der Gewinnung der Erze kann als Rückstand nicht zu verwertender Abraum (**Bergematerial**) anfallen. Bei der Aufbereitung der Erze vor Ort können je nach angewandtem Prozess diverse Aufbereitungsrückstände mit Restgehalten an Zerfallsprodukten entstehen.

Zusätzlich zu diesen Materialien muss im Bereich der Erzreviere mit dem **Bauschutt** und **Bodenaushub** aus dem Rückbau von Aufbereitungsanlagen und Nebeneinrichtungen (z.T. Scalebildung) gerechnet werden.

Insbesondere bei der Vermarktung von Nebengesteinen mit erhöhter natürlicher Radioaktivität kann es sich im Einzelfall um Koppelprodukte und damit Rückstände, die zweckgerichtet herbeigeführt werden, handeln. Rückstände in Form von Formstücken können bei der Gewinnung und Aufbereitung von Erzen aus Sicht der Bearbeiter mit hinreichender Sicherheit ausgeschlossen werden.

---

<sup>3</sup> In /TÜV 05a/ zitierte Quelle Proffijn und DeClercke 2003

### 3.4.2 Regionale Schwerpunkte

#### 3.4.2.1 Gewinnung und Aufbereitung von Bauxit

Das Erz Bauxit ist Rohstoff zur Aluminiumerzeugung. Es enthält Aluminium in Form von Trihydroxid ( $\text{Al}(\text{OH})_3$ ) oder Monohydroxid ( $\text{AlOOH}$ ). Aluminium wird in Deutschland im Wesentlichen im Fahrzeugbau sowie im Bausektor eingesetzt. Daneben wird Bauxit auch zur Herstellung von Strahlmitteln verwendet. Als Normalkorund oder unter firmenspezifischen Markennamen wird gebrochene und gemahlene Bauxitschmelze vermarktet. Gesinterte Bauxitprodukte (Sinterkorund) werden ebenfalls verwendet. Wichtige Anwendungsbereiche liegen im herkömmlichen Korrosionsschutz. (Aufbereiteter) Bauxit ist weiterhin ein wichtiger Zuschlagstoff der Feuerfestindustrie und der Keramikherstellung.

Bauxitgewinnung findet in Deutschland derzeit lediglich in einer kleinen Abbaustätte in Hessen statt /BMW 01/. Nach /PHI 04/ erfolgt die Förderung (Tagebau) jedoch nur noch sporadisch in so geringen Mengen, dass Deutschland nicht mehr als Förderland für Bauxit in Europa geführt wird. Eine Aufbereitung im Zusammenhang mit der Förderung in dieser Abbaustätte findet nicht statt.

Wegen der im Wesentlichen fehlenden eigenen Bauxitlagerstätten ist Deutschland zu fast 100 % auf Importe angewiesen. Während 1993 noch 2,24 Mio. t Bauxit importiert wurden, waren es 2002 noch 1,95 Mio. t und 2003 1,91 Mio. t /WVM 03/. Hauptherkunftsländer sind China, Guinea, Guyana und Australien /BSP 00/.

Die aktuelle Recherche ergab, dass eine Aufbereitung (Zerkleinerung) von importiertem Bauxit in Deutschland derzeit mindestens in drei Mineralmahlwerken in Hamm, Wesel und Lübeck stattfindet /SAC 04/. Welche Mengen an Bauxit in diesen Anlagen aufbereitet werden, konnte nicht ermittelt werden. Ob weitere Aufbereitungsanlagen für Bauxit in Deutschland existieren, ist zur Zeit ebenfalls nicht bekannt.

Frühere Abbaustätten von Bauxit lagen im Vogelsberg-Gebiet (Hessen). Dort wurde nach /FRI 89/ bis Anfang 1970er Jahre Bauxit in einigen kleineren Tagebauen als grundeigener Bodenschatz abgebaut. Über Rückstände, die dabei angefallen sind, werden in /FRI 89/ keine Angaben gemacht. Es kann jedoch nach /GES 05/ davon ausgegangen werden, dass Bauxit im direkten Zusammenhang mit der Gewinnung zur Aufkonzentrierung nicht chemisch aufbereitet wurde, sondern lediglich eine mechanische Aufbereitung in Form einer Zerkleinerung des Erzes erfolgte.

Die Verarbeitung von Bauxitkonzentraten ist erster Schritt der Primärverhüttung von Aluminium. Dabei wird aus dem aufbereiteten Bauxit-Konzentrat Tonerde (Aluminiumoxid) gewonnen, die anschließend in einer Schmelzflusselektrolyse zur Herstellung des Metalls eingesetzt wird.

Bei der Tonerdeproduktion fallen als Rückstand Rotschlämme an. Die im Erz enthaltenen natürlichen Radionuklide werden im Wesentlichen im Rotschlamm angereichert, so dass die nachfolgenden Prozessschritte zur Herstellung des Primäraluminiums als weitgehend aktivitätsfrei einzustufen sind. Das Primäraluminium selbst weist nach /BSP 00/ ebenfalls vernachlässigbare spezifische Aktivitäten auf.

In Deutschland wird derzeit (2008) in einem Werk in Stade („Aluminium Oxid Stade“) /AOS 04/ Bauxit nach dem Bayer-Verfahren zu Tonerde verarbeitet.

In Lauta (Sachsen) wurde von 1917 bis 1990 Bauxit für die Aluminiumverhüttung aufbereitet. Weitere Standorte der Bauxitverarbeitung zur Herstellung von  $\text{Al}_2\text{O}_3$  sind das Martinswerk in Bergheim, NRW (seit 1913), in dem Tonerden für die Feuerfestindustrie hergestellt werden und Schwandorf (Bayern), wo bis 1994 das Unternehmen VAW Bauxit verarbeitete. Für diese Standorte ist in /KRÜ 99/ angegeben, dass dort  $\text{AlOOH}$  zur Tonerdeproduktion eingesetzt wird, so dass in diesen Werken kein Rotschlamm als Rückstand angefallen ist. Zumindest für den Standort Schwandorf muss diese Aussage korrigiert werden (s. Abbildung 3-7).

Die vorstehende Aufzählung muss nicht vollständig sein. Da Aluminium allerdings erst im 20. Jahrhundert wirtschaftlich bedeutend wurde, sind ältere Standorte auszuschließen.

Bauxitkonzentrate wurden und werden weiterhin benutzt, um Feuerfestmaterial, Schleifmittel und Sandstrahlmaterial herzustellen. Dabei können auch Formstücke angefertigt werden.

Unternehmen dieses Industriezweiges sind weit verbreitet. Von den 32 Mitgliedsfirmen des Verbandes der Deutschen Feuerfest-Industrie e.V. sind die meisten in Nordrhein-Westfalen (15) und Rheinland-Pfalz (7) ansässig. Aus Bayern sind 4 Firmen im Verband registriert, aus Baden-Württemberg, Hessen und Sachsen je 2. Diese Firmen besitzen aber auch Produktionsstandorte in anderen Bundesländern. Außerdem sind nicht alle Firmen dieses Industriezweigs organisiert. Bezieht man außerdem die Firmen ein, die als Strahl- und Schleifmittelhersteller auch Bauxitkonzentrate verwenden, so muss für die meisten deutschen Bundesländer von einer aktuellen oder zumindest früheren Weiterverarbeitung von Konzentraten aus Bauxit ausgegangen werden.

### 3.4.2.2 Gewinnung und Aufbereitung von Columbit, Pyrochlor, Mikrolith und Euxenit

Die niob- und tantalhaltigen Oxide Columbit, Pyrochlor, Mikrolith und Euxenit werden zur Herstellung von Niob und Tantal genutzt, wobei Columbit und Pyrochlor am häufigsten als Ausgangsstoffe eingesetzt werden. Niob, das nach /KOU 00/ fast ausschließlich aus Pyrochlorerzen gewonnen wird, wird in Deutschland vor allem als Legierungszusatz für rostfreie Stähle, Sonderedelstähle und Nichteisenlegierungen verwendet. Etwa 90% der Niobproduktion wird zu Ferroniob verarbeitet und als Zusatz für mikrolegierte Stähle verwendet. Tantal wird hauptsächlich für sehr kleine Kondensatoren mit hoher Kapazität genutzt. Ebenso wird Tantal zur Herstellung von hochschmelzenden und hochfesten Legierungen eingesetzt /SCH 62/, /WIK 05/.

Columbit ( $\text{Niobit (Fe, Mn, Mg)(Nb,Ta)}_2\text{O}_6$ ) ist das am weitesten verbreitete Niobmineral. Mikrolith ( $\text{(Ca,Na)}_2\text{Ta}_2\text{O}_6(\text{O,OH,F})$ ) ist ein Endglied einer Reihe fester Lösungen zwischen ihm selbst und dem Mineral Pyrochlor. Beide Minerale haben die gleiche Struktur und Eigenschaften, aber Mikrolith ist das tantalreiche Endglied, während Pyrochlor das niobreiche Endglied darstellt. Die genannten Oxide sowie das Mineral Euxenit ( $\text{(Y,Ca,Er,La,Ce,U,Th)(Nb,Ta,Ti)}_2\text{O}_6$ ) enthalten normalerweise akzessorische Mineralkomponenten mit radioaktiven Elementen.

Die Gewinnung der niob- und tantalhaltigen Minerale findet in Deutschland aktuell nicht statt. In der Vergangenheit fiel Columbit im Nebengestein eines Pegmatitabbaus im Bayerischen Wald bei Rabenstein an /OST

04/. Es wurde für die Tantalitbemalung des Nymphenburger Porzellans gesammelt. Eine Aufbereitung des Columbites fand nach jetzigem Kenntnisstand nicht statt.

Da eine Gewinnung der niob- und tantalhaltigen Erze in Deutschland nicht stattfindet, werden Erze importiert. Die Erze werden hauptsächlich in Afrika, Australien und Brasilien abgebaut /SCH 62/, /WIK 05/. Welche Mengen an Erz nach Deutschland eingeführt werden, ist nicht bekannt.

Obwohl Tantal zu Beginn des 20. Jahrhunderts zur Produktion von Glühfäden benutzt wurde, ist bereits für diese Produktion von einem Import auszugehen /SCH 62/. Da Niob erst nach 1940 größere wirtschaftliche Bedeutung erlangte /SCH 62/, sind Abbau- und Aufbereitungsstätten der niob- und tantalhaltigen Minerale in Deutschland praktisch auszuschließen. Das bedeutet nicht, dass es nicht bei der früheren Gewinnung und Aufbereitung anderer Rohstoffe zu Mitförderung von Columbit bzw. der anderen hier untersuchten Mineralien gekommen sein kann. Beim bisherigen Kenntnisstand ist das zumindest für den Pegmatit von Rabenstein (Bayrischer Wald) möglich. Die radiologische Relevanz einer solchen Mitförderung wird als gering eingeschätzt.

### 3.4.2.3 Gewinnung und Aufbereitung von Kupferschiefererz

Kupferschiefererz ist ein spezielles Kupfererz. Es wurde gewonnen und aufbereitet, um reines Kupfer herzustellen, das in vielen Wirtschaftsbereichen unentbehrlich ist.

In Deutschland wurde Kupferschiefererz seit dem Ende des 12. Jahrhunderts am Südostrand des Harzes mit Schwerpunkt im Raum Hettstedt, Mansfeld, Eisleben (jetzt: Sachsen-Anhalt) bis in das Jahr 1990 abgebaut. Der Gesamttraum mit historischem Bergbau reicht am Südrand des Harzes im Westen bis etwa Nordhausen, im Osten bis zur Saale.

Das Erz wurde im Anschluss an die Gewinnung mechanisch aufbereitet (gebrochen) und pyrometallurgisch weiterverarbeitet .

Zwei weitere Gebiete mit ehemals abgebauten Kupferschieferlagerstätten befinden sich in Nordhessen. Hier wurde in Abterode (jetzt Gemeinde Meißner) seit dem 16. Jahrhundert Kupferschiefer abgebaut /GEI 05/. Eine größere Lagerstätte befand sich im Richelsdorfer Gebirge (Nähe Wildeck-Obersuhl), die seit dem 15. Jahrhundert mit Unterbrechungen bis 1955 abgebaut wurde. Neben Kupferschiefer wurde auch Schwerapat gewonnen /MON 05/.

Der Abbau von aus der Unterkarbonezeit stammenden an Schwarz- und Kieselschiefer gebundenen Kupfervorkommen von Marsberg im Östlichen Sauerland (Kupferletten; Letten = schwach verfestigte Schiefertone) geht bis in das 11. Jahrhundert zurück und endete nach dem zweiten Weltkrieg. Die Erzvorräte zählen heute noch zu den großen Kupferlagerstätten Europas /DIE 05/. Die Lagerstätte reichte nach Angaben in /FRI 89/ bis südlich Korbach (Nordhessen). Im Raum Twiste, 10 km nordöstlich von Korbach tritt Kupfer mit Uran im Unteren Bundsandstein auf /FRI 89/.

Die heute in Deutschland verarbeiteten Kupfererzkonzentrate stammen aus porphyrischen Kupferlagerstätten, die vorwiegend im zirkumpazifischen Raum liegen (Anden, Rocky Mountains, Bougainville, Neuguinea). Da diese Erze keine Kupferschiefer darstellen, fallen sie nicht unter die Regelungen der StrlSchV. Sie weisen nach Informationen in /BSP 00/ auch keine erhöhte natürliche Radioaktivität auf.

#### 3.4.2.4 Gewinnung und Aufbereitung von Zinnerz

Zinnerze, vor allem der schwarze Zinnstein (Cassiterit,  $\text{SnO}_2$ ), werden gewonnen und abgebaut, um Zinn herzustellen, das als Legierungsbestandteil vielfältig verwendet wird und mit Kupfer zu Bronze oder anderen Werkstoffen legiert wird.

Die Statistiken des Bundesamts für Wirtschaft und Ausfuhrkontrolle, BAFA /BAF 04/ <sup>4</sup> zur Produktion von NE-Metallen in Deutschland weisen für die Jahre 1999 bis 2003 nur eine (stark rückläufige) Produktion von Zinnlegierungen (incl. Weichlote) zwischen ca. 15.000 t in 1999/2000 und ca. 6.100 t in 2003 auf. In den Statistiken aus /BAF 04/ ist (im Unterschied zu anderen Metallen) eine Primärverhüttung von Zinn nicht ausgewiesen. Eine Gewinnung und Aufbereitung von Zinnerzen findet in Deutschland demnach nicht mehr statt.

Nach den Statistiken des Bundesministeriums für Wirtschaft und Arbeit /BMW 04/ werden derzeit noch an einem Abbau in Hessen Blei-, Zinn-, Zink- u. Bleizinkerze abgebaut. Stillgelegte Abbaue werden für Niedersachsen (Harz, 2 Betriebe), Hessen (2 Betriebe) und Sachsen (4 Betriebe) angegeben. Eine genaue Zuordnung zur Gruppe „Zinnerz“ ist nicht gegeben. Zumindest für die sächsischen Betriebe ist eine frühere Zinnerzgewinnung aufgrund der Lagerstättenbedingungen anzunehmen.

Früher spielte der Abbau von Zinnerzen in bestimmten Regionen eine bedeutende Rolle als Wirtschaftszweig. Zinnerzreviere existierten vor allem vom Erzgebirge bis in das Vogtland hinein. Im Erzgebirge fand der Abbau im Wesentlichen im Westerzgebirge ("Eibenstocker Granit", Schneeberg) im Osterzgebirge (Erzgebirgskamm von Altenberg-Zinnwald bis Seiffen), aber auch an einigen Stellen im mittleren Erzgebirge (Ehrenfriedersdorf) statt. Im Vogtland wurde vor allem in Tannenbergesthal Zinn gewonnen /FAV 05/.

Informationen über weitere Erzreviere, in denen in der Vergangenheit ein Abbau und eine Aufbereitung von Zinnerz in Deutschland stattfand, belegen Abbaue im Fichtelgebirge /FRI 89/, /RAU 05/, /THI 98/. Die Erzvorkommen und Abbaue befanden sich im Bereich des Schneebergmassivs und zwischen den Orten Weißenstadt-Grün-Dürnberg. Der Höhepunkt der Abbaue lag vom 15. bis 17. Jahrhundert. Während der Kriegsjahre 1914/18 wurden durch die Gewerkschaften Wilhelmglück I und II die alten Zinnseifen nochmals angefahren /THI 98/. Aus diesen Bergbauen stammen zahlreiche Halden. Als besonders große Ablagerungen werden in /FRI 89/ die Zinnerzablagerungen und Halden am Seehaus sowie eine Zinnwäscherei am Schneeberg genannt.

---

<sup>4</sup> Das BAFA hat bis einschließlich 2003 bei allen einschlägigen Betrieben der deutschen NE-Metallwirtschaft Daten über Produktions-, Verbrauchs- und Lagermengen erhoben. Im "Gesetz zur Neuordnung der Statistiken der Rohstoff- und Produktionswirtschaft einzelner Wirtschaftszweige" vom 22.12.2003 ist für den Bereich der NE-Metalle keine Fortführung der amtlichen Erhebung vorgesehen. Für diesen Bereich endet daher die amtliche Erhebung mit der Erfassung der letzten Daten für 2003.

### 3.4.2.5 Gewinnung und Aufbereitung von Erzen der Seltenen Erden

Die Seltenen Erden, Lanthan, Cer und anderen Lanthaniden werden hauptsächlich aus Monazit, Bastnäsit, Cerit (Cererden) sowie Gadolinit, Xenotim, Euxenit (Yttererden) gewonnen /SCH 62/. Eine Gewinnung und Aufbereitung dieser Erze findet derzeit in Deutschland nicht statt. Allerdings sind akzessorische Monazitgehalte in Kaolinvorkommen bekannt, die bei der Aufbereitung des Kaolins angereichert werden (s. Kapitel 3.6.2.2).

Da die Seltenen Erden erst im 19. Jahrhundert entdeckt und praktisch erst seit dem 20. Jahrhundert genutzt werden, existieren keine früheren Abbaue. Aus Sicht der Bearbeiter wird derzeit keine Notwendigkeit gesehen, die Gewinnung und Aufbereitung der Seltenen Erden gezielt in die vorliegende Studie einzubeziehen. Es besteht keine Relevanz in Hinblick auf Altlasten und die Ermittlung von Expositionen.

### 3.4.2.6 Gewinnung und Aufbereitung von Uranerz

Der Uranabbau auf dem Gebiet der Bundesrepublik begann am Standort Johanngeorgenstadt (zur Herstellung von Uranfarben) bereits 1819 /JGS 05/. Erst nach 1945 setzte jedoch ein umfassender Abbau von Lagerstätten vor allem in Sachsen und Thüringen ein, der bis 1990 andauerte. Derzeit findet eine Gewinnung und Aufbereitung von Uranerz in Deutschland nicht mehr statt. Im Rahmen der Wasserbehandlung bei der Sanierung des Uranbergbaus Königstein (Sachsen) fallen allerdings Urankonzentrate an, die zur Weiterverarbeitung exportiert werden.

Eine Übersicht über die früheren Standorte der Uranerzgewinnung und -aufbereitung, die gegenwärtig saniert werden bzw. deren Sanierung abgeschlossen ist, zeigt Abbildung 3-4 /OEC 02/. Bei den dargestellten Standorten handelt es sich um WISMUT Standorte und Standorte in den alten Bundesländern.

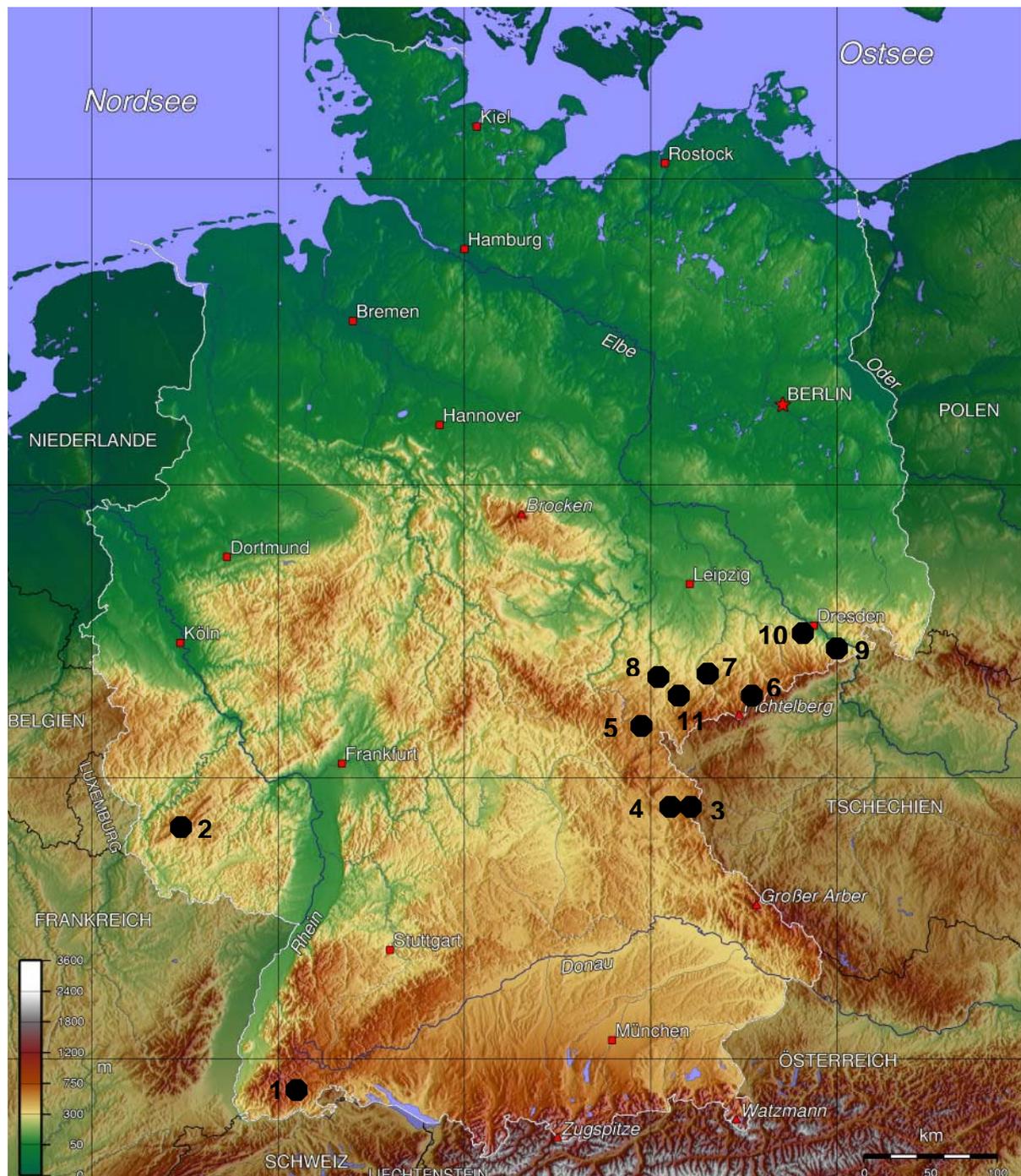


Abbildung 3-4: Anlagen des Uranerzbergbaus und der Uranerzaufbereitung in Deutschland

1 Menzenschwand (Baden-Württemberg), 2 Ellweiler (Rheinland-Pfalz), 3 Wäldel (Bayern), 4 Höhenstein (Bayern), 5 Großschloppen (Bayern), 6 Aue (Sachsen), 7 Crossen (Sachsen), 8 Ronneburg (Thüringen), 9 Königstein (Sachsen), 10 Gittersee (Sachsen), 11 Seelingstädt (Thüringen)

Da die Sanierung des Uranbergbaus in Ostdeutschland als Bundesaufgabe bearbeitet wird, sind Wismut-Betriebe aus dieser Untersuchung ausgenommen. Es wurden jedoch nach /SMU 99/ bergbauliche Hinterlassenschaften von Lagerstätten und Aufbereitungsanlagen, die zum Verantwortungsbereich der Wismut

GmbH gehörten in den 60er Jahren an die Kommunen übergeben, so dass sie in die Betrachtungen dieser Studie einbezogen werden müssen. Es handelt sich um folgende Standorte:

- Lagerstätten:
  - Westerkgebirge: Antonsthal, Seiffenbach und Schneeberg
  - Mittleres und Osterzgebirge: Annaberg, Bärenstein und Marienberg
  - Vogtland: Zobes, Schneckenstein
  - Ostsachsen: Dresden-Coschütz (Heidenschanze)
- Aufbereitungs- und Absetzanlagen:
  - Westerkgebirge: Johannegeorgenstadt, Aue, Schlema
  - Vogtland: Schneckenstein, Lengenfeld
  - Ostsachsen: Freital-Deuben, Dresden-Coschütz

Diese sogenannten Altstandorte der Wismut sind in Abbildung 3-5 dargestellt. Weitere kleinere Abbaustätten in den neuen Bundesländern, die nicht in die Sanierungsaufgabe der Wismut fallen, befanden sich an zahlreichen Orten in Sachsen und Thüringen.

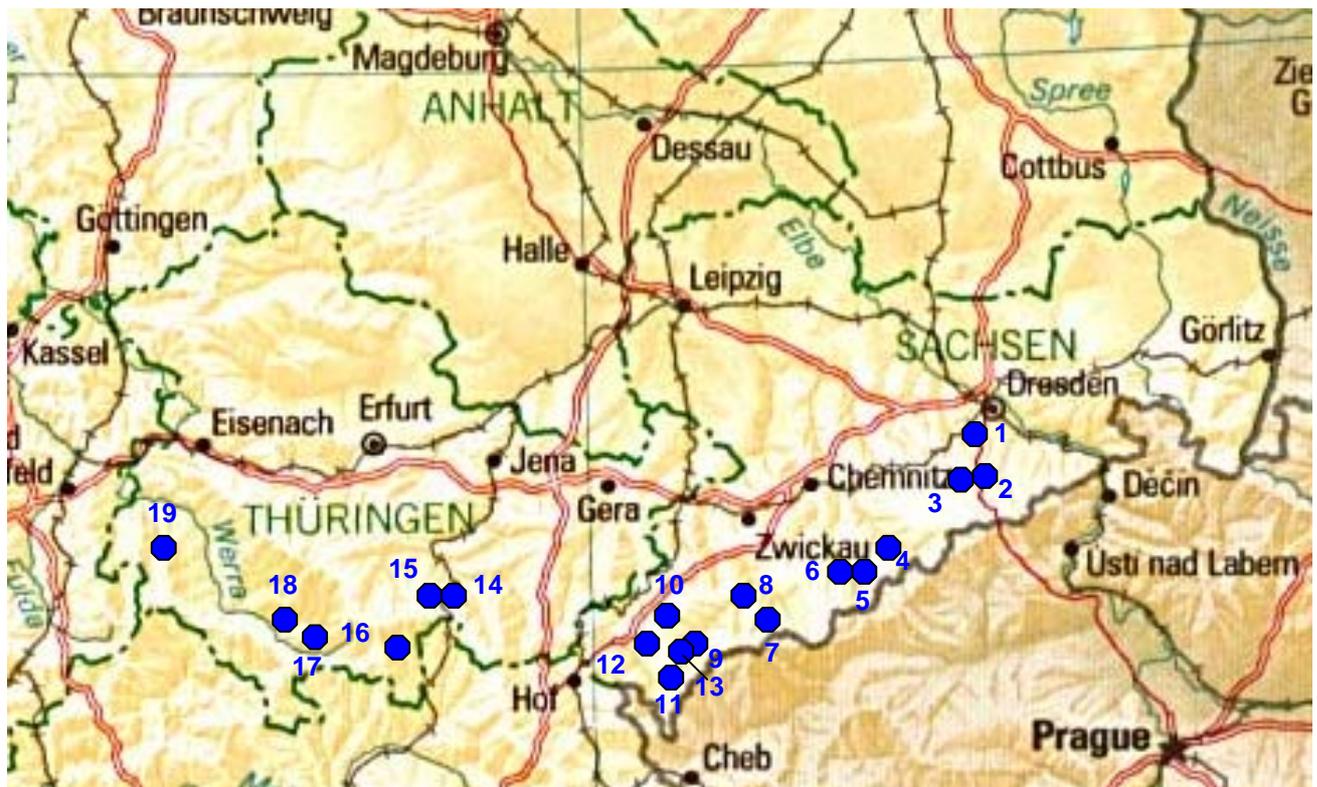


Abbildung 3-5: Altstandorte der WISMUT nach /GRS 99/ auf der Basis von /LIB 05/.

1 Freital, 2 Johnsbach, 3 Niederpöbel, 4 Marienberg, 5 Annaberg, 6 Luchsachtal, 7 Johannegeorgenstadt, 8 Schneeberg, 9 Gottesberg, 10 Lengenfeld, 11 Mechelgrün, 12 Zobes, 13 Schneckenstein, 14 Schaßbach, 15 Dittrichshütte, 16 Steinach, 17 Erlau, 18 Suhl, 19 Ruhla

In den alten Bundesländern waren Menzenschwand (Schwarzwald), das Gebiet um Weißenstadt (Fichtelgebirge) mit der Grube Werra am Rudolphstein und dem Stollen Christa bei Großschloppen, Mähring/Tischenreuth (Oberpfalz/Fichtelgebirge) mit der Schachtanlage Höhenstein/Poppenreuth und Schachtanlage „Wäldel“ sowie Birkenkopf bei Ellweiler und Müllenbach in Rheinland-Pfalz bedeutsame Erzreviere. Nach Diehl /DIE 91/ war Menzenschwand die wichtigste Uranlagerstätte im Westen Deutschlands. Sie wurde 1957 entdeckt und während der 30-jährigen Tätigkeit wurden jährlich zwischen 4.000 und 10.000 t Erz abgebaut.

Wie auch bei der Gewinnung von Erdöl-/Erdgas sind die Hinterlassenschaften der Uranexploration keine Rückstände im Sinne der StrlSchV. Auf das Vorkommen solcher Objekte außerhalb der in Abbildung 3-4 dargestellten Gebiete, so z.B. im Gebiet des Hornburger Sattels (Raum Hettstedt, Sachsen-Anhalt) /WIC 01/ oder bei Nabburg, BY (Erkundungsstollen Schirmberg“) /SCH 95/ sei hingewiesen.

### **3.4.3 Mengen und Aktivitäten**

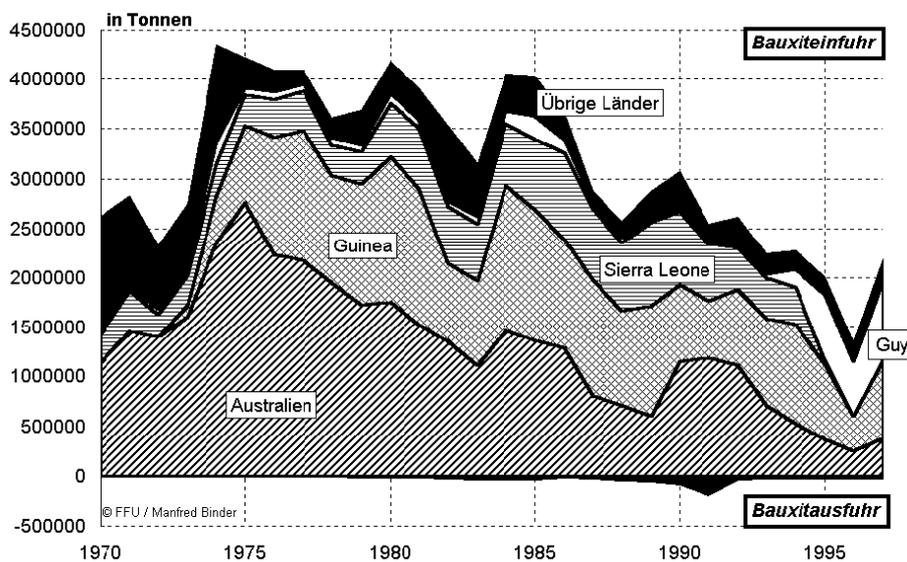
#### **3.4.3.1 Gewinnung und Aufbereitung von Bauxit**

Fördermengen für den derzeit einzigen Bauxitabbau in Deutschland werden in /BMW 01/ und /BMW 04/ mit Hinweis auf den Datenschutz bzw. eine unvollständige Datenbasis nicht angegeben. Analysendaten von Radionukliden des abgebauten Bauxits liegen bisher nicht vor.

In den vergangenen Jahrzehnten wurden allein in die alten Bundesländer bis zu 4 Mio. t Bauxit pro Jahr eingeführt (Abbildung 3-6). Diese Mengen gingen ab 1985 deutlich zurück. Zwischen 1995 und 2005 muss mit Mengen zwischen 1,5 und 2 Mio. t gerechnet werden.

Nach dieser Statistik muss allein für die Zeit zwischen 1970 und 2000 mit einer verarbeiteten Bauxitmenge von 90 Mio. t gerechnet werden. In dieser Menge ist die Verarbeitung in der DDR nicht einbezogen. Geht man davon aus, dass diese Menge vollständig für die Produktion von Aluminiumoxid genutzt wurde, so kann eine Mindestmenge von ca. 40 Mio. t (20 - 30 Mio. m<sup>3</sup>) an Rotschlamm abgeschätzt werden. Berücksichtigt man die frühere Produktion, so muss mit einer Größenordnung von 80 - 100 Mio. t bzw. 40 - 60 Mio. m<sup>3</sup> Rotschlamm gerechnet werden.

Der größte Teil des importierten Bauxits wird derzeit durch die Firma „Aluminium Oxid Stade“ verarbeitet. Nach eigenen Angaben dieses Unternehmens /AOS 04/ wird Tonerde mit einer aktuellen jährlichen Kapazität von 800.000 t Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> hergestellt. Dafür werden ca. 1,6 Mio. t Bauxit benötigt /GDA 04/. Nach /BSP 00/ fallen dabei jährlich ca. 600.000 t Rotschlamm an. Der gesamte Rotschlamm wird auf einer Monodeponie auf dem Betriebsgelände der AOS /AOS 04/ deponiert.



Quelle: Metallstatistik div. Jg.; ab 1991 mit neuen Ländern

Abbildung 3-6: Deutscher Außenhandel mit Bauxit 1970-97 /SCH 99/

In Lauta (Sachsen) wurde von 1917 bis 1990 Bauxit aufbereitet. Die Kapazitäten lagen um 1990 bei 85.000 t  $\text{Al}_2\text{O}_3$  pro Jahr /HIR 93/. Die Produktion erfolgte nach dem Bayerverfahren, wobei die Bauxite in den Anfangsjahren vor allem aus Ungarn stammten /LEI 05/. Die Rotschlammhalden, die eine Fläche von ca. 140 ha umfassen, enthalten auch Ablagerungen von Kraftwerksaschen und Bauschutt. Bis 1995/96 wurde der Rotschlamm in der Ziegelindustrie verwertet. Derzeit werden die Halden saniert /LEI 05/.

Das Martinswerk in Bergheim, NRW verarbeitet seit 1913 Bauxit und stellt derzeit vor allem Tonerden für die Feuerfestindustrie und Schleifmittel her. Mengenangaben zum Rotschlamm konnten für diesen Standort nicht ermittelt werden. Aufgrund der Verarbeitungskapazität muss mit mehreren Mio.  $\text{m}^3$  gerechnet werden.

Am Standort Schwandorf existieren 3 Rotschlammdeponien (s. Abbildung 3-7). Die Deponien sind nach /OST 05/ durch folgende Kenndaten gekennzeichnet:

- Deponie I (1936 - 62): Trockener Einbau des Rotschlammes, ges. Menge: 608 000  $\text{m}^3$
- Deponie II (ab 1972): Rotschlamm wird eingespült; ges. Menge: 1.520.000  $\text{m}^3$
- Deponie III (ab 1974): ges. Menge: 1.510.000  $\text{m}^3$

Diese Deponien werden derzeit abgedeckt und sicher verwahrt. Strahlenschutzfragen spielten nach Auswertung der Veröffentlichung /OST 05/ bei der Planung offensichtlich keine Rolle.



Abbildung 3-7: Rotschlammdeponien am Standort Schwandorf (Bayern). Foto aus /OST 05/

Bauxite weisen Spurengehalte an Uran und Thorium auf. Die Aktivitätskonzentrationen in Bauxit schwanken je nach Herkunftsland erheblich. In Tabelle 3-12 sind Radionuklidgehalte in Bauxiten verschiedener Herkunft zusammengestellt.

Tabelle 3-12: Spezifische Aktivitäten des Bauxits (Ausgangsstoff)

Probe-Nr.	Material	Herkunft	Quelle	Spezifische Aktivität [Bq/kg]				
				U-238	Ra-226	Pb-210	Ra-228	Th-228
1	Zerkleinerte	Weipa (Australien, Guinea)	/TÜV 94/		79		77	82
2	Bauxite	Gondama (S. Leone)	/TÜV 94/		15		8,1	7,7
3	Bauxit	Pijiguagos (Brasilien)	/BSP 00/	90			700	
4	Bauxit	vermutl. Ungarn	/ETT 78/		19 - 150		259 – 440 (*)	
5	Bauxit	nicht bekannt	IAF	130	110	400	175	175
6	Bauxit	nicht bekannt	IAF	90	80	77	160	160
7	Bauxit	China	IAF	390	370	200	400	400

(\*) lt. /ETT 78/ Angabe für Th-232

Messwerte von Radionukliden in Bauxiten, die aktuell in Deutschland verarbeitet werden, wurden durch das BfS ermittelt /BfS 04/. Die gemessenen spezifischen Aktivitäten der Nuklide U-238, Ra-226, Th-232 (Ra-228, Th-228) in Bauxit sind in Tabelle 3-13 zusammengestellt. Auffällig ist gegenüber den Messergebnissen in Tabelle 3-12 ist, dass Pb-210 und Ra-226 und U-238 annähernd im radioaktiven Gleichgewicht sind. Das

bedeutet insbesondere, dass die Radonfreisetzung aus dem Bauxit verhältnismäßig gering ist. Der deutliche Pb-210-Überschuss gegenüber Ra-226 in der 5. Bauxitprobe in Tabelle 3-12 kann nur dadurch erklärt werden, dass bereits Aufbereitungsprozesse durchgeführt wurden, die letztlich zu einer Anreicherung von Pb-210 geführt haben. Bei Probe 7 ist dagegen möglicher Weise prozessbedingt Pb-210 gegenüber Ra-226 stark abgereichert.

Tabelle 3-13: Spezifische Aktivitäten in Deutschland verarbeiteten Bauxits (Ausgangsstoff)

Ausgangsstoff	Herkunft	Quelle	Spezifische Aktivität [Bq/kg]				
			Ra-228	Th-228	Ra-226	U-238	Pb-210
			über Ac-228	über Pb-212	c-Reihe	*)	46,5 keV
Bauxit	Gove (Australien)	/BfS 04/	137 ± 27	135 ± 27	97 ± 20	96 ± 24	78 ± 20
Bauxit	Gove (Australien)	/BfS 04/	136 ± 25	136 ± 25	93 ± 18	89 ± 18	83 ± 18
Bauxit	Boké (Guinea)	/BfS 04/	134 ± 26	130 ± 25	65 ± 13	65 ± 13	61 ± 15
Bauxit	Boké (Guinea)	/BfS 04/	133 ± 25	131 ± 25	65 ± 13	64 ± 13	63 ± 15

\*) bestimmt über Pa-234m bei 1001,03 keV und Th-234 bei 63,28 keV. c-Reihe: Pb-214, Bi-214 (Messung des Probenmaterials erfolgte in gasdichten Messgefäßen)

Die Daten zeigen, dass beim Bauxit mit spezifischen Aktivitäten zwischen 100 und einigen 100 Bq/kg je Zerfallsreihe gerechnet werden muss. In den Zerfallsreihen herrschen in unbehandelten Erzen Aktivitätsgleichgewichte vor.

Im Bayer-Verfahren werden aus 1 t Bauxit mit einem Oxidanteil von 50 % ca. 0,4 t Rotschlamm /KRÜ 99/ gewonnen. Wenn die Aktivität vollständig in den Rotschlamm übergeht, sollte die Anreicherung der Radionuklide im Verhältnis zum Ausgangsmaterial Bauxit daher ca. 2,5 betragen.

Durch die unterschiedlichen spezifischen Aktivitäten in verschiedenen Bauxit-Lagerstätten ergibt sich im Rotschlamm ebenfalls eine große Schwankungsbreite der Aktivität. Die Tabelle 3-14 führt einige aus der Literatur verfügbare Messwerte für Aktivitätskonzentrationen in Rotschlämmen auf.

Tabelle 3-14: Spezifische Aktivitäten des Rotschlammes (Rückstand)

Rückstand	Ort	Quelle	Spezifische Aktivität [Bq/kg]	
			U-238	Th-232
Rotschlamm	nicht bekannt	/BSP 00/	260-537	341-496
Rotschlamm	nicht bekannt	/BSP 00/	<218 (<19-740) (Ra-226)	370 (56-999)
Rotschlamm	nicht bekannt	/BSP 00/	122 (Ra-226)	183 (Ac-228)
Rotschlamm	nicht bekannt	/BSP 00/	210 (70-730)	320 (60-600)
Rotschlamm-Deponiematerial	Stade	/SCH 85/	207 (Ra-226)	k.A.

Spezielle Messwerte für Radionuklide in Rotschlämmen aus der aktuellen Produktion in Deutschland wurden durch das BfS ermittelt /BfS 04/. Die gemessenen spezifischen Aktivitäten der Nuklide U-238, Ra-226,

Th-232 (Ra-228, Th-228) in Rotschlamm sind in Tabelle 3-15 zusammengestellt. Diese Ergebnisse zeigen, dass alle Nuklide der Uran- und Thorium-Reihe im Rotschlamm ca. 3-fach höhere spezifische Aktivitäten als im Bauxit aufweisen (s. Tabelle 3-13). Weiteres Datenmaterial hinsichtlich der Rotschlämme wurde von der IAF - Radioökologie zur Verfügung gestellt (s. Tabelle 3-16).

Über Bodenaushub und Bauschutt (inkl. der Scalebildung in Anlagenteilen) bei der Bauxitverarbeitung nach dem Bayer-Verfahren liegen keine Informationen zu Mengen und Aktivitäten vor.

Tabelle 3-15: Spezifische Aktivitäten von Rotschlamm aus aktueller Produktion in Deutschland

Rückstand	Quelle	Spezifische Aktivität [Bq/kg]				
		Ra-228	Th-228	Ra-226	U-238	Pb-210
		über Ac-228	über Pb-212	c-Reihe	*)	46,5 keV
Rotschlamm	/BfS 04/	361 ± 70	356 ± 64	196 ± 39	198 ± 40	150 ± 30
Rotschlamm	/BfS 04/	390 ± 78	400 ± 80	200 ± 40	193 ± 39	150 ± 30
Rotschlamm	/BfS 04/	403 ± 80	426 ± 85	195 ± 19	194 ± 40	150 ± 30
Rotschlamm	/BfS 04/	358 ± 71	366 ± 73	181 ± 36	192 ± 40	140 ± 30
Rotschlamm	/BfS 04/	358 ± 72	367 ± 73	177 ± 35	189 ± 40	140 ± 30

\*) bestimmt über Pa-234m bei 1001,03 keV und Th-234 bei 63,28 keV. c-Reihe: Pb-214, Bi-214 (Messung des Probenmaterials erfolgte in gasdichten Messgefäßen)

Tabelle 3-16: Spezifische Aktivitäten des Rotschlammes (Messungen IAF)

Ausgangsstoff	Herkunft	Spezifische Aktivität [Bq/kg]					
		U-238	Ra-226	Pb-210	Ra-228	Th-228	K-40
Rotschlamm	Standort 1	210	220	150	430	450	72
Rotschlamm	Standort 1	210	230	150	510	500	23
Rotschlamm	Standort 1	210	250	150	450	450	51
Rotschlamm	Standort 2	300	315	250	285	286	<20
Rotschlamm	Standort 2	270	330	265	290	285	<30
Rotschlamm	Standort 2	320	370	320	275	285	<40

Messergebnisse von Feuerfestmaterial und Strahl-/Schleifmitteln auf der Basis von Bauxit (Korund) enthält Tabelle 3-17. Die Daten zeigen, dass bei einem erheblichen Teil der Proben die spezifische Aktivität der U-238 und Th-232 Zerfallsreihen über 200 Bq/kg (0,2 Bq/g) liegt. Die untersuchten Proben sind allerdings keine Rückstände, sondern Produkte. Ihre Herstellung besteht vielfach in der firmenspezifischen Mischung und Konfektionierung. Daher fallen bei dieser Produktion kaum Rückstände an. Hinzuweisen ist auf die signifikante Abreicherung von Pb-210 in allen untersuchten Proben. Es zeigt sich, dass beim Brennen oder Tempern der Produkte Pb-210 in erheblichem Maße aus den Mineralien ausgetrieben wird und sich im Abgasstaub niederschlagen muss.

Die nach Gebrauch entsorgten Strahlmittelreste aus Bauxit bzw. Korund sind keine Rückstände i.S.d. StrlSchV, da der Gebrauch keine „Weiterverarbeitung“ oder eine andere in Anlage XII Teil A spezifizierte Arbeiten beinhaltet.

Tabelle 3-17: Spezifische Aktivität von Strahlmitteln und Feuerfestmaterial (Gießerei) auf Basis Bauxit (Messungen IAF, Produktbezeichnung anonymisiert)

Material	spezifische Aktivität [Bq/kg]					
	U-238	Ra-226	Pb-210	Ra-228	Th-228	C <sub>U-238,max</sub> + C <sub>Th-232,max</sub>
Strahlmittel GS	8	7	< 10	22	22	< 200
Strahlmittel EK	6	5	6	2	1	< 200
Strahlmittel NK 1	205	210	50	270	270	480
Strahlmittel NK 2	70	70	32	91	90	< 200
Strahlmittel K	230	290	< 20	360	360	650
Strahlmittel	480	500	300	500	510	1.010
Bauxit 1	430	430	190	440	450	880
Bauxit 2	500	510	300	470	450	980
Bauxit 3	270	310	190	390	390	700
Strahlmittel N	18	25	17	16	17	< 200
Strahlmittel S	80	100	28	38	39	< 200
Strahlmittel M	< 10	20	< 10	< 8	< 5	< 200
Strahlmittel HGK	< 15	20	< 15	20	< 10	< 200
Strahlmittel AC	360	360	150	350	360	720
Strahlmittel GM	420	640	80	370		1.010

### 3.4.3.2 Gewinnung und Aufbereitung von Columbit, Pyrochlor, Mikrolith und Euxenit

Da eine industrielle Gewinnung und Aufbereitung von Columbit, Pyrochlor, Mikrolith, Euxenit in Deutschland weder stattfand noch stattfindet, entfallen Angaben über die Mengen und die Aktivitäten der diesbezüglichen Rückstände.

### 3.4.3.3 Gewinnung und Aufbereitung von Kupferschiefererz

Nach /HAR 05/ wurden seit dem Mittelalter im Gebiet um Mansfeld, Eisleben und Sangerhausen insgesamt 2,6 Mio. t Kupferschiefererz zu Tage gefördert, wobei diese Mengen zeitlich extrem unterschiedlich gestaffelt sind.

Als Rückstände der Gewinnung und Aufbereitung sind im Rahmen der hier spezifizierten Begriffe vor allem die Bergehalden anzusehen.

Bei der radiologischen Erfassung, Untersuchung und Bewertung bergbaulicher Altlasten durch das BfS wurde im Raum Hettstedt eine 286 km<sup>2</sup> große Verdachtsfläche (VF 01) abgegrenzt und untersucht /WIC 01/. Auf dieser Fläche wurden ca. 1.300 Bergehalden ermittelt, wobei kleine mittelalterliche Bergehalden die Mehrzahl darstellen. Außerhalb dieser Verdachtsfläche existieren allerdings zahlreiche weitere bergbauliche Objekte des Kupferschieferbergbaus, teilweise weiter östlich im Zentrum der Mansfelder Mulde bis zur Saale, überwiegend jedoch in der Sangerhäuser Mulde am Rande des Südharzes /WIC 01/. Obwohl in /WIC 01/ bei der Mengenaufstellung nicht zwischen Berge- und Schlackehalden unterschieden wird (gesamt: 110 Mio. m<sup>3</sup> Halden), muss allein für die Bergehalden mit einigen 10 Mio. m<sup>3</sup> Material gerechnet werden.

Die Messergebnisse nach /WIC 01/ zu Proben aus oberflächennahen Bereichen (dort Anlage 11.3) ergeben für Bergematerialien die Histogramme nach Abbildung 3-8. Die Darstellung zeigt die Häufigkeit der spezifischen Aktivität des maßgeblichen Nuklids der U-238 Reihe, d.h. des Nuklids mit der jeweils höchsten spezifischen Aktivität. Sie beruht auf einem Datensatz von 590 Messungen für Bergematerial („bergbauliche Folgeprodukte“).

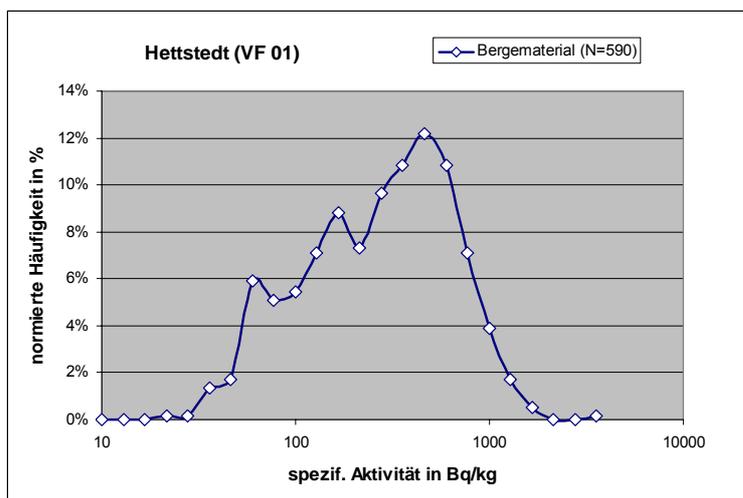


Abbildung 3-8: Histogramm der spezifischen Aktivität von oberflächennahen Proben Bergematerial im Raum Hettstedt

(Klassenbreiten 200 Bq/kg)

Die Abbildung zeigt, dass die spezifische Aktivität von Bergematerial des Kupferschieferbergbaus überwiegend im Bereich zwischen 100 bis 1.000 Bq/kg liegt. Als statistische Kenngrößen für das Bergematerial ergeben sich aus dem analysierten Datensatz:

- 2/3 aller Werte liegen über 200 Bq/kg,
- 1/3 aller Werte liegt über 500 Bq/kg,
- 5 % aller Werte liegen über 1000 Bq/kg,
- der Medianwert liegt bei 325 Bq/kg, der arithmetische Mittelwert bei 417 Bq/kg.

Die mehrgipflige Verteilung der Abbildung 3-8, die offensichtlich keine wirkliche Lognormalform besitzt, kann darauf hinweisen, dass mit 2 (evtl. 3) Typen von Bergematerial zu rechnen ist, von denen das Material mit der höheren Radioaktivität durch spezifische Aktivitäten von ca. 500 Bq/kg (mit Maximalwerten bis ca. 1.500

Bq/kg) gekennzeichnet ist, während die unkontaminierte Komponente spezifische Aktivitäten unter 100 Bq/kg aufweist.

Insgesamt ist aus diesen Daten ein Volumen vom mindestens einigen Mio. m<sup>3</sup> an Bergmaterial des Kupferschieferbergbaus abzuleiten, dessen spezifische Aktivität über 200 Bq/kg (0,2 Bq/g) liegt. Einige Zehntausend m<sup>3</sup> könnten stärker als 1.000 Bq/kg (1 Bq/g) kontaminiert sein.

Für die anderen Gebiete mit Kupferschieferabbau liegen bisher keine verwertbaren Untersuchungen zur Radioaktivität der Rückstände vor.

### 3.4.3.4 Gewinnung und Aufbereitung von Zinnerz

Aus dem früheren Abbau von Zinnerz existieren im Erzgebirge und Fichtelgebirge zahlreiche Halden mit Nebengestein und Aufbereitungsrückständen. In vielen Fällen wurden Altbergwerke im Erzgebirge aber von der Wismut überbaut, so dass für derartige Objekte heute eine Trennung zwischen Zinnerzrückständen und Uranerzrückständen kaum noch möglich ist.

Im Rahmen des Altlastenkatasters des BfS wurden Hinterlassenschaften des Zinnerzbergbaus im Gebiet Altenberg/Zinnwald untersucht. Von den insgesamt 47 in der Datenbank erfassten Objekten sind 26 Halden mit einem Gesamtvolumen von ca. 283.000 m<sup>3</sup> und 7 Absetzanlagen (IAA) mit einem Volumen von ca. 13,4 Mio. m<sup>3</sup>. Der Rest sind Stollen, Schächte oder sonstige Hohlräume und Betriebsflächen. Ein Histogramm der für die Halden und die IAA aus mehreren Einzelanalysen berechneten mittleren spezifischen Ra-226 Aktivitäten zeigt Abbildung 3-9.

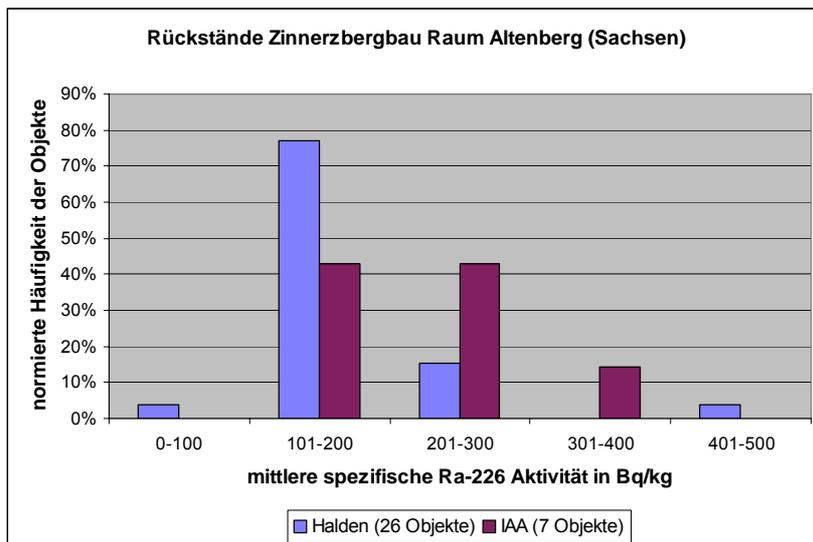


Abbildung 3-9: Histogramm der spezifischen Aktivitäten von Halden und IAA des Zinnerzbergbaus im Raum Altenberg/Zinnwald (Sachsen)

Daraus ist ableitbar, dass ein erheblicher Teil der IAA und etwa 20 % der Halden mittlere spezifische Ra-226 Aktivitäten über 200 Bq/kg (0,2 Bq/g) aufweisen. Im Rahmen des Altlastenkatasters wurden in diesem Gebiet 4 Halden mit einem Volumen von zusammen ca. 162.000 m<sup>3</sup> und 5 Absetzanlagen mit einem Volumen von zusammen ca. 13,4 Mio. m<sup>3</sup> als wahrscheinlich radiologisch relevant eingestuft /GER 05/.

Größere Zinnerz-Rückstandshalden gibt es auch im Gebiet von Ehrenfriedersdorf. Diese wurden im Rahmen des Altlastenkatasters aber nicht erfasst.

Für das Fichtelgebirge werden in /FRI 89/ 6 Mio. t zinnsteinführende Ablagerungen (Zinnerzablagerungen und -halden) am Seehaus im Gebiet Weißenstadt angegeben.

Insgesamt muss daher für Erzgebirge und Fichtelgebirge mit deutlich mehr als 15 Mio. m<sup>3</sup> an bergbaulichen Ablagerungen des früheren Zinnerzbergbaus gerechnet werden, von denen zumindest einige radiologisch relevant sein können.

#### **3.4.3.5 Gewinnung und Aufbereitung von Erzen der Seltenen Erden**

Da eine industrielle Gewinnung und Aufbereitung von Erzen der Seltenen Erden in Deutschland weder stattfand noch stattfindet, entfallen Angaben über die Mengen und die Aktivitäten der diesbezüglichen Rückstände.

#### **3.4.3.6 Gewinnung und Aufbereitung von Uranerz**

Derzeit fällt im Rahmen der Sanierung der ehemaligen Betriebsstätte Königsstein (Sachsen) der WISMUT jährlich eine Menge von ca. 100 t Urankonzentrat (Yellow Cake) an /BMW 04/, die zur Weiterverarbeitung exportiert wird.

In den neuen Bundesländern wurden mögliche radiologisch relevante bergbauliche Hinterlassenschaften in einem Forschungsvorhaben des BfS untersucht und in einem Altlastenkataster erfasst. Die Ergebnisse dieser Arbeiten sind zusammenfassend im Abschlussbericht "Radiologische Erfassung, Untersuchung und Bewertung bergbaulicher Altlasten" /ETT 01/ beschrieben. Das Programm umfasste Verdachtsflächen in den Bundesländern Sachsen, Sachsen-Anhalt und Thüringen. Da in Sachsen-Anhalt keine Gewinnung und Aufbereitung von Uranerz stattfand, sind die Verdachtsflächen in diesem Bundesland auf Hinterlassenschaften des Kupferschieferbergbaus und die zugehörigen Verhüttung ausgerichtet (s. Kap. 3.4.3.3). Im Unterschied dazu lag in den Ländern Sachsen und Thüringen der Schwerpunkt der Untersuchungen auf Hinterlassenschaften der Gewinnung und Aufbereitung von Uranerzen.

Nach Angaben in /ETT 01/ gibt es in Sachsen und Thüringen insgesamt 624 Objekte, die als die als radiologisch relevant eingestuft wurden (Klasse B nach Altlastenkataster, d.h. für diese Objekte besteht zunächst weiterer Untersuchungsbedarf). Diese bergbauliche Altlasten bzw. Altlastenverdachtsflächen nehmen eine Fläche von 1.190 ha und ein Volumen von insgesamt ca. 160 Mio. m<sup>3</sup> ein. Einige der Objekte wurden inzwischen saniert, so dass sich die Gesamtzahl mittlerweile geringfügig verringert hat. Es gibt aber zusätzlich eine große Zahl von Objekten der Klasse 2/2a (> ca. 1.000), die bislang nicht durch Probenahmen, sondern lediglich auf der Basis von ODL-Messungen bewertet wurden und für die der Altlastenverdacht bzw. die radiologische Relevanz bislang nicht ausgeräumt wurde. Alle diese Angaben beziehen sich ausschließlich auf Rückstände, die nicht (mehr) im Zuständigkeitsbereich der Wismut liegen.

Ohne an dieser Stelle eine Einzelanalyse vorzunehmen ist festzustellen, dass in Sachsen und Thüringen eine Vielzahl von radiologisch relevanten oder als Verdachtsflächen einzustufenden Hinterlassenschaften des früheren Uranbergbaus existieren. Das Volumen der in diesen Hinterlassenschaften befindlichen Rückstandsmengen mit spezifischen Aktivitäten über 200 Bq/kg (0,2 Bq/g) ist mit deutlich mehr als 100 Mio. m<sup>3</sup> zu veranschlagen. Damit stellen diese Hinterlassenschaften die wahrscheinlich vom Volumen her größte Gruppe von radiologisch relevanten Altlasten oder Altlastenverdachtsflächen dar.

Eine Übersicht über Halden des Uranbergbaus in den alten Bundesländern enthält Tabelle 3-18. Da abgesehen von der Halde bei Weissenstadt keine Angaben zu den spezifischen Aktivitäten der abgelagerten Materialien in der ausgewerteten Literatur vorhanden waren, wurden Angaben zur gemessenen Direktstrahlung auf den Halden als ergänzende Angaben aufgenommen. Aus den Literaturangaben ist nicht eindeutig ersichtlich, wie diese Werte die Halde charakterisieren (Mittelwerte oder Maximalwerte).

Tabelle 3-18: Halden des Uranbergbaus in den alten Bundesländern

Lit.	Ort	Bezeichnung Halde	Mengenangabe	Ergänzende Angaben (*)
/FRI 89/ /SCH 83/	Menzenschwand, Schwarzwald (BW)	Halde Krunkelbach	15.000 t /FRI 89/ 20.000 t /FRI 96/	Direktstrahlung 11 µSv/h (100 mSv/a)
/SCH 89/	Poppenreuth, Ober- pfalz (BY)	Armerzhalde "Wäldel"	13.000 t	Gelaugte Armerze (< 0,1 % U). Direktstrahlung 2,3 µSv/h (20 mSv/a)
/SCH 83/	Großschloppen bei Weißenstadt (BY)	Halde Grube Christa	400 t	Direktstrahlung 9 µSv/h (80 mSv/a)
/SCH 83/	Schirmdorf (BY)	Halde am Schirmberg (**)	750 t	Direktstrahlung 6,8 µSv/h (60 mSv/a)
/SCH 83/		Diverse Nebengesteins- halden	5.000 bis 20.000 t	Direktstrahlung 0,12 - 0,57 µSv/h (1 - 5 mSv/a)
/SCH 85/	Weissenstadt, Ru- dolfstein (BY)	Maximilianshütte	15.000 t	Nebengestein: Zinngranit Ra-226: 4,1 Bq/g

(\*) Angaben zur Direktstrahlung in der ausgewerteten Literatur in mrem/a bzw. mSv/a. Diese Werte wurden mit einer Zeit von 8.760 h/a in µSv/h umgerechnet. (\*\*) Keine Gewinnung, nur Erkundung.

### 3.5 Rückstände der Weiterverarbeitung von Konzentraten oder Rückständen der Erze und Mineralien nach Anlage XII Teil A Nr. 3a StrlSchV

#### 3.5.1 Generell mögliche Rückstände

Rückstände nach Anlage XII Teil A Nr. 3a StrlSchV sind Nebengestein, Schlämme, Sande, Schlacken und Stäube aus der Weiterverarbeitung von Konzentraten oder Rückständen des Bauxits, Columbites, Pyrochlores, Mikrolyths, Euxenits sowie der Kupferschiefer-, Zinn-, Seltene-Erden- und Uranerze.

Unter **Weiterverarbeitung** soll im Folgenden die metallurgische oder nichtmetallurgische Verarbeitung von Erzkonzentraten oder Mineralien zur Herstellung von Produkten (Baustoffe, Industrie- und Konsumgüter)

verstanden werden. Dabei anfallende Koppel- oder Nebenprodukte können ebenfalls Rückstände im Sinne der StrlSchV sein, sofern die spezifische Aktivität 0,2 Bq/g (200 Bq/kg) übersteigt. Die Produkte selbst sind keine Rückstände, es sein denn, sie fallen beim Abbruch und der Stilllegung von Anlagen oder bei der Räumung von Grundstücken, Lager- und Umschlagplätzen an.

Bei der Weiterverarbeitung von Konzentraten oder Rückständen der genannten Erze fielen in Deutschland insbesondere an:

- **Gips-/Flussspatgemische** und **gelaugte Erze** aus der Weiterverarbeitung von Tantalern (Columbit, Pyrochlor, Mikrolyth und Euxenit) sowie von Zinnschlacke zur Gewinnung von Tantal,
- **Kupferschieferschlacken** und **Theisenschlämme**<sup>5</sup> aus der Weiterverarbeitung von Kupferschiefererzen,
- **Schlacken** und **Stäube** aus der Verhüttung der Zinnerze,
- **Pyrochlorschlacken** aus der Verhüttung von Ferroniob,
- **Aufbereitungsschlämme** (chemisch gelaugte Schlämme sowie Prozesslösungen unterschiedlicher chemisch-radiologischer Zusammensetzung) aus der Weiterverarbeitung von Uranerz zur Urangewinnung,
- **Ablagerungen unterschiedlicher Art** aus der Verarbeitung von Seltenen Erden zur Gewinnung von Thorium oder Selten Erden Verbindungen (vor allem Cer).

Die Rückstände dieser mit Ausnahme der Tantalproduktion nicht mehr stattfindenden Prozesse können als **Bodenaushub** bzw. **Bauschutt** bei der Stilllegung von Gebäuden und Anlagen bzw. der Beräumung von Grundstücken und Flächen anfallen, in denen die Weiterverarbeitung stattfindet (Scalebildung in Anlagenteilen) oder Rückstände bzw. Produkte gelagert bzw. umgeschlagen wurden. Weitere Rückstände, wie z.B. Steine aus Kupferschlacke, können als Bauschutt beim Abbruch im Wasser-, Straßen- oder Landschaftsbau anfallen, in denen **Formstücke** verbaut worden sind. Weiterhin wird nach /BSP 99/ Kupferschlacke in granulierter Form als Strahlmittel eingesetzt. Nach /BSP 99/ wird Rotschlamm im Unterbau von Straßen, als Zuschlagsstoff bei der Ziegel- und Mineralwolle-/Faserherstellung sowie als Zuschlagsstoff für Kunststoffe verwendet.

### 3.5.2 Regionale Schwerpunkte

#### 3.5.2.1 Weiterverarbeitung von Konzentraten und Rückständen aus Columbit, Pyrochlor, Mikrolyth und Euxenit

Konzentrate von Columbit und Mikrolyth sind Ausgangsstoffe zur Produktion von Tantal. Pyrochlor ist wichtiger Ausgangsstoffe für die Gewinnung von Niob. Eine Verarbeitung von Mikrolith- und Euxeniterzkonzentraten findet nach aktueller Recherche in Deutschland nicht statt.

---

<sup>5</sup> Rückstände der Rauchgasreinigung der Primärverhüttung (s. Kap. 3.7)

Die hydrometallurgische Verarbeitung auf der Basis von importierten niob- und tantalhaltigen Erzkonzentraten führt zu Rückständen aus Flussspat ( $\text{CaF}_2$ ), Gips sowie gelaugten Erzen. Da die aus diesem Prozess hervorgehenden Nb-/Ta-Fluoride bzw. Oxide weitgehend aktivitätsfrei sind, werden die weiteren Verarbeitungsschritte nicht verfolgt.

In Deutschland gibt es aktuell nur ein Unternehmen (Fa. H. C. Starck, Goslar), das Tantal, Niob und Ferro-Niob aus Nb/Ta-Erzkonzentraten sowie Zinnschlacke (Import aus Südostasien) herstellt /MAR 04/. Dabei werden im Wesentlichen Columbit und Zinnschlacke als Ausgangsstoffe verwendet und Gips-/Flussspatgemische bzw. gelaugte Erze entstehen als Rückstände /BSP 00/. Von den zwei weiteren, in /HGN 03a/ genannte Unternehmen, verarbeitet eine Firma (Heraeus AG) nur Produkte der Fa. H.C. Starck weiter und die andere Firma (GfE Metalle, Nürnberg) wurde von H. C. Starck übernommen /MAR 04/.

Die Verhüttung von Pyrochlorerzen zu Ferroniob findet überwiegend durch die Unternehmen statt, die diese Nioberze gewinnen. Die brasilianischen Gesellschaften CBMM in Minas Gerais und Companhia Mineracao Catalao de Goias S.A. in Goias sowie die kanadischen Unternehmen Cambior Inc. und Teck Corp. mit ihrer Niobec Mine in Quebec sind gegenwärtig die weltweit bedeutendsten Produzenten von Niob. Brasilien verfügte 1997 über die mit Abstand größte Kapazität für Ferroniob (Standard) in Höhe von 33.500 t (CBMM: 30.000 t, Catalao: 3.500 t). Die Gesellschaft Catalao produziert nur Ferroniob /DIW 99/.

Da in Deutschland nur wenige Firmen auf diesem Sektor tätig sind, werden Daten über die Produktion der Ferrolegerungswerke und anderer Hütten vertraulich gehalten /BGR 04/. Regionale Schwerpunkte dieser Produktion sind daher nicht auszuweisen. In /HGN 03a/ werden zwei Fälle benannt, in denen Pyrochlorerzen vorkamen. Ein Fall stammt aus Bayern, ein anderer aus Nordrhein-Westfalen.

Weitere Standorte in Deutschland, an denen in der Vergangenheit in größeren Mengen Niob-Tantal-Erze weiterverarbeitet wurden, sind nicht bekannt.

### 3.5.2.2 Weiterverarbeitung von Konzentraten oder Rückständen aus Kupferschiefererz

Eine Verhüttung importierter Kupfererze, bei der Kupferschlacke als Rückstand anfällt, findet in Deutschland noch in einer Primärkupferhütte in Hamburg (Norddeutsche Affinerie) statt. Diese Hütte verarbeitet importierte verhüttungsfähige Konzentrate, die allerdings nicht auf der Basis von Kupferschiefer gewonnen wurden.

Bis 1990 wurden Kupferschiefererze im Gebiet Hettstedt, Mansfeld, Eisleben verhüttet. Dabei fiel Kupferschlacke und ein Flugstaub an, der in Theisenwäschern als Schlamm (sog. Theisenschlamm) abgeschieden wurde.

Die im Richelsdorfer Gebirge abgebauten Kupferschiefererze wurden früher in der Richelsdorfer Hütte, später in der „Hessenhütte“ in Sontra verarbeitet. Die Kupferschiefer von Marsberg wurden vor allem in Wrexen (10 km nordöstlich Marsberg) verhüttet.

### 3.5.2.3 Weiterverarbeitung von Konzentraten oder Rückständen aus Zinnerz

Wie im Kapitel 3.4.2.4 beschrieben, ist die Zinnproduktion von 2000 bis 2003 von ca. 15.000 t auf ca. 6.100 t zurückgegangen /BAF 04/. Eine Primärverhüttung wird nicht ausgewiesen. Ein Import von Roherzen zur Gewinnung von Zinn kann daher ausgeschlossen werden.

Nach Angaben aus /BSP 00/ wurden in den 1990-er Jahren noch etwa 20.000 t Zinn pro Jahr nach Deutschland importiert, die in sieben Unternehmen zur Herstellung von Zinnlegierungen verwendet wurden (z.B. Nürnberger Hüttenwerke GmbH).

Größere Zinnhütten existierten im 20. Jahrhundert in Essen (Fa. Degussa, 1899-1929, zeitweilig die zweitgrößte Zinnhütte Europas /DEG 05/), Hamburg-Wilhelmsburg (1902 gegründet) /SHE 35/, /FLA 99/ sowie in Freiberg (Sachsen), 1937-1976 /NAU 89/.

Hüttenwerke, die teilweise auch Zinn produzierten, befanden sich im 20. Jahrhundert in Oranienburg (1906: Errichtung einer Kupfer-, Blei- und Zinnhütte und Lünen (1954: Inbetriebnahme einer Mischzinnhütte der Hüttenwerke Kayser AG /HK 05/). Weitere Standorte sind nicht auszuschließen.

Im Mittelalter ist in den Bergbaugebieten Sachsens, des Vogtlandes und auch des Fichtelgebirges von zahlreichen kleineren Zinnhütten auszugehen.

Weiterhin wird Zinnschlacke aus Südasien importiert, die neben den Konzentraten tantal- und niobhaltiger Erze bei der Herstellung von Tantal bzw. Ferro-Niob verwendet wird (s. Kapitel 3.5.2.1).

### 3.5.2.4 Weiterverarbeitung von Konzentraten oder Rückständen aus Erzen der Seltenen Erden

Die Anwendungsgebiete für Produkte aus der Weiterverarbeitung der Konzentrate der Seltenen Erden sind nach /SCH 62/ die Glas- und Keramikindustrie sowie die Herstellung von Mischmetallen und Zündsteinen. Katalysatoren auf der Basis Ceroxyd, Neodym- und Samariumoxid wurden in der organischen Chemie für Synthesen genutzt /Sch 62/. Für Anwendungen in der Elektronik und Vakuumtechnik, wo nur chemisch reine Lanthaniden zum Einsatz kommen, sind Rückstände nicht zu erwarten.

Nach /HGN 03a/ gibt es in Deutschland keine Produktion von Metallen der Seltenen Erden aus Rohstoffen oder Konzentraten mehr. Frühere Verarbeitungen von Selten Erden Mineralen sind an den Standorten Oranienburg (Herstellung von Thorium, Cerverbindungen) und Wittenberg-Piesteritz (Cerproduktion) bekannt. Ob weitere Standorte existierten, ist nicht bekannt.

Durch die an den Verarbeitungsstandorten benutzten Aufschluss- und Trennverfahren können Rückstände unterschiedlichster Art und Zusammensetzung entstanden sein. Speziell am Standort Oranienburg sind großflächige Bodenkontaminationen unterschiedlicher Nuklidzusammensetzung und mit teilweise deutlich erhöhten spezifischen Aktivitäten bekannt.

### 3.5.2.5 Weiterverarbeitung von Konzentraten oder Rückständen aus Uranerz

Eine Weiterverarbeitung von Konzentraten oder Rückständen aus Uranerz findet in Deutschland nicht mehr statt und ist nach gegenwärtiger Rechtslage auch nicht zu erwarten. Ein Antrag eines sächsischen Unternehmens auf Verwendung von chemischen Uranverbindungen zur Herstellung von Uranglas wurde mit Bezug auf die bestehende Rechtslage (wg. Nutzung von abgereichertem Uran) von der zuständigen Landesbehörde abgelehnt /WEI 04/.

Aus der früheren hydrometallurgischen Aufbereitung von Uranerz zu „yellow cake“ stammen Tailings (chemisch gelaugte Schlämme). Daneben sind Bodenkontaminationen durch Prozesslösungen unterschiedlicher chemisch-radiologischer Zusammensetzung zu beachten.

Bezüglich der früheren Verarbeitung von Uranerzen kann zwischen vor 1945 und nach 1945 unterschieden werden. Vor 1945 gab es die Verarbeitung von Uranerzen (vor allem Pechblende) zum Zwecke der Leuchtfarbenproduktion am Standort Braunschweig (Chemiefabrik Buchler & Co.) und im Rahmen des deutschen Uranprojektes in Oranienburg (Auer Werke) mit der metallurgischen Weiterverarbeitung in Frankfurt a.M. (DEGUSSA) /NAG 02/. Von den Orten Oranienburg und Braunschweig sind entsprechende Bodenkontaminationen bekannt.

Nach 1945 wurden die in Ostdeutschland abgebauten Uranerze zunächst dezentral an verschiedenen Standorten weiterverarbeitet. Nach der Chronik der Wismut /WIS 99/ handelt es sich um die Standorte: Tannenbergesthal (1946 - 1957), Lengenfeld (1947 - 1961), Johanngeorgenstadt (1949 - 1956), Oberschlema (1948 - 1957), Aue (1947 - 1957), Freital (1949 - 1960), Dresden-Gittersee (1952 - 1962), Crossen (1950 - 1989), Seelingstädt (1960 - 1990). An diesen Orten verblieben Tailings und zumeist auch kontaminierte Bodenflächen /GRS 99/.

Eine Betriebsdeponie mit Rückständen der westdeutschen Uranproduktion befindet sich am Standort Ellweiler /MUG 88/.

Ein Sonderfall stellte die frühere Verbrennung von uranhaltiger Kohle aus dem Freitaler Revier dar (s. Kapitel 3.6).

### 3.5.3 Mengen und Aktivitäten

#### 3.5.3.1 Weiterverarbeitung von Konzentraten oder Rückständen aus Columbit, Mikrolyth, Euxenit und Pyrochlor

Bei den Einsatzstoffen zur Herstellung von Niob und Tantal handelt es sich nach /BSP 00/ im Wesentlichen um Columbit und Zinnschlacke. Bedingt durch den Einsatz an Columbit ist nach /BSP 00/ mit einem erhöhten Anteil von Uran und Thorium zu rechnen, da Niob und Tantal wegen ähnlichen Atomradien durch Thorium und Uran im Mineral ersetzt werden können. Das zweite wichtige Einsatzmineral ist Zinnschlacke mit 2-10 %  $\text{Nb}_2\text{O}_5$  und 2-10 %  $\text{Ta}_2\text{O}_5$ , die insbesondere zur Tantalgewinnung eingesetzt wird. Bei der Verarbeitung von Zinnschlacke wird diese zunächst geschmolzen, um die Wertträger in einer Metallphase anzureichern.

Dies führt dazu, dass Niob und Tantal in einer reduzierten Phase auftreten, während Uran und Thorium in der Schlacke verbleiben. Für die Zinnschlacke wird in /BSP 00/ ein Aktivitätsbereich für U-238 und Th-232 von zusammen ca. 7 - 20 Bq/g angegeben.

Der Produktionsumfang der Fa. H. C. Starck macht über 50% der Weltproduktion an Tantal von ca. 1500 t pro Jahr /DIW 04/ aus. Auskunft über die als „signifikant“ bezeichneten Rohstoffmengen wird aus Wettbewerbsgründen nicht erteilt. Lediglich für Zinnschlacke wird eine Menge von  $\geq 10.000$  t/a genannt /MAR 04/.

Nach Angaben in /BGR 04/ wurden im Zeitraum 2000 bis 2003 jährlich zwischen 75.051 t bis 85.178 t Erze und Konzentrate von Niob und Tantal nach Deutschland eingeführt. Niob- und/oder tantalhaltige Rückstände (Zinnschlacken?) wurden zusätzlich in stark unterschiedlichen Mengen (2000: 3.614 t; 2001: 39.212 t; 2002: 2.070 t, 2003: 143 t) eingeführt. Diese Importmengen sagen allerdings für sich genommen noch nichts über die in Deutschland verarbeiteten Erze aus, da offensichtlich ein Großteil davon unverändert wieder ausgeführt wird /NIE 05/.

Detaillierte Angaben zu den spezifischen Aktivitäten der Rückstände aus der Niob-Tantal-Produktion in Deutschland sind nicht verfügbar. In Anbetracht der hohen Aktivitäten in den Eingangsstoffen ist aber davon auszugehen, dass zumindest in Teilströmen der Produktionsrückstände erhöhte spezifische Aktivitäten vorliegen. Nach /HGN 03a/ verbleibt Radium in den gelaugten Erzen, während Uran und Thorium mit den Wertmetallen mitextrahiert werden. Ihre Abtrennung erfolgt dann bei Fällungen und Lösungsextraktion. Bei der anschließenden Neutralisation mit Kalk entstehen als Rückstände Flussspat ( $\text{CaF}_2$ ) und Gips, wobei aufgrund der Massenverhältnisse die spezifische Aktivität gegenüber den eingesetzten Erzen bzw. Konzentraten abnimmt.

Als radiologische Fragestellung ist aus der Vergangenheit in Bezug auf die Weiterverarbeitung von Pyrochlorkonzentraten die Beurteilung und Entsorgung von Pyrochlorschlacken bekannt /HGN 03a/. Die in /HGN 03a/ beschriebenen Fälle des Vorkommens von Pyrochlorschlacken umfassten jeweils Mengen in der Größenordnung von 10 – 30 t mit spezifischen Aktivitäten von ca. 7 – 14 Bq/g U-238 und 15 – 30 Bq/g Th-232.

Eine Ablagerung aus Rückständen von Nb-Ta-Zr-Erzen wird von Fritsche u.a. /FRI 96/ in Murg bei Laufenburg (BW) beschrieben.

Nähere Angaben zu den anfallenden Rückständen, den Mengengerüsten und Aktivitäten bei der Weiterverarbeitung von Columbit, Pyrochlor, Mikrolith und Euxenit sind nicht verfügbar.

### **3.5.3.2 Weiterverarbeitung von Konzentraten oder Rückständen aus Kupferschiefererz**

Nach /BSP 00/ lagern noch etwa 60 Mio. t Kupferschieferschlacke aus der Weiterverarbeitung des Erzes aus dem Mansfelder Revier an Haldenstandorten in Helbra und Eisleben. Diese Schlacke stellt hinsichtlich der natürlichen Radioaktivität einen Sonderfall dar, da sie eine relativ hohe Konzentration an natürlichen Radionukliden aufweist /BSP 00/. Die spezifischen Aktivitäten von U-238 und Ra-226 in der Kupferschieferschlacke aus dem Mansfelder Raum betragen nach /GRS 99/ 0,8 - 1,5 Bq/g. Diese erhöhten Aktivitäten resultie-

ren daraus, dass das Mansfelder Kupferschiefererz nicht zu einem Konzentrat aufbereitet, sondern direkt weiterverarbeitet wurde.

In den folgenden Tabellen sind die Aktivitätskonzentrationen für Kupferschlacken aus der Mansfelder Kupferschieferverhüttung angegeben.

Tabelle 3-19: Spezifische Aktivitäten der Mansfelder Kupferschlacke (Rückstand)

Rückstand	Herkunft	Quelle	Spezifische Aktivität [Bq/kg]	
			U-238	Th-232
Kupferschlacke (alte Produktion)	Mansfelder Revier	/BSP 00/	1.500 (860 – 2.100)	50
Kupferschlacke (neue Produktion)	Mansfelder Revier	/BSP 00/	770 (490 – 940)	50 (40-60)
Kupferschlacke (Haldenrückbau), Pr. 1	Mansfelder Revier	/IAF 03c/	360	40
Kupferschlacke (Haldenrückbau), Pr. 2	Mansfelder Revier	/IAF 03c/	500	50
Kupferschlacke (Haldenrückbau), Pr. 3	Mansfelder Revier	/IAF 03c/	820	50
Kupferschlacke (Haldenrückbau), Pr. 4	Mansfelder Revier	/IAF 03c/	920	52

Tabelle 3-20: Spezifische Aktivitäten der Mansfelder Kupferschlacke (Messungen IAF)

Rückstand	Herkunft	Spezifische Aktivität [Bq/kg]			
		U-238	Ra-226	Pb-210	Th-232
Kupferschlacke, Pr. 1	Mansfelder Revier	680	820	265	52
Kupferschlacke, Pr. 2	Mansfelder Revier	700	720	240	50
Kupferschlacke, Pr. 3	Mansfelder Revier	800	880	420	53
Kupferschlacke, Pr. 4	Mansfelder Revier	830	850	370	50
Kupferschlacke, Pr. 5	Mansfelder Revier	620	860	240	52
Kupferschlacke, Pr. 6	Mansfelder Revier	750	840	380	49
Kupferschlacke, Pr. 7	Mansfelder Revier	790	930	400	50
Kupferschlacke, Pr. 8	Mansfelder Revier	650	780	200	48
Kupferschlacke, Pr. 9	Mansfelder Revier	720	770	230	51
Kupferschlacke, Pr. 10	Mansfelder Revier	670	880	380	49

Welche Mengen an Formstücken bisher im Straßen-, Wege- und Landschaftsbau verarbeitet worden sind, ist nicht bekannt. Bei der Aktivität der Formstücke ist von ähnlichen Werten wie bei den Kupferschlacken auszugehen. Über Rückstände in Form von Bodenaushub und Bauschutt (inkl. der Scalebildung in Anlagenteilen) liegen keine Informationen zu Mengen und Aktivitäten vor.

Über die Radioaktivität von Kupferschieferschlacken aus den Abbauen im Richelsdorfer Gebirge, dem Meißner-Gebiet und der Lagerstätte bei Marsberg liegen keine Angaben vor /KIE 05/.

Zur Einordnung der aktuellen Kupfererzverarbeitung in Deutschland werden im Folgenden einige Angaben zu den Rohstoffen und Schlacken dieser Industrie zusammengestellt (Filterstäube der Verhüttung werden im Kapitel 3.7 behandelt).

Im Gegensatz zum Mansfelder Kupferschiefererz werden die derzeit verarbeiteten Kupfererze aus Lagerstätten gewonnen, die keine begleitende Uranmineralisation besitzen. Typische Werte für die in der Weiterverarbeitung eingesetzten Konzentrate der Kupfererze und der aus dem Prozess resultierenden Kupferschlacken sind nach /BSP 00/ in den folgenden Tabellen zusammengestellt. Sie belegen, dass eine vergleichsweise niedrige natürliche Radioaktivität der Erze auftritt.

Tabelle 3-21: Spezifische Aktivitäten von Kupfererzkonzentraten (Ausgangsstoff)

Ausgangsstoff	Herkunft	Quelle	Spezifische Aktivität [Bq/kg]	
			U-238	Th-232
Kupfererzkonzentrat	Escondida	/BSP 00/	6	6
Kupfererzkonzentrat	Candelaria	/BSP 00/	6	2
Kupfererzkonzentrat	Freeport	/BSP 00/	6	6
Kupfererzkonzentrat	Somincor	/BSP 00/	6	2

Speziell für die Schlacke, die in der Norddeutschen Affinerie anfällt, sind in der folgenden Tabelle Werte für die spezifischen Aktivitäten aufgeführt. Es handelt sich bei den beprobten vier Schlacken um unterschiedlicher Chargen, wobei die Retourschlacken verschiedene metallurgische Arbeiten in der Sekundärhütte charakterisieren und die Proben „Primärschlacken“ Eisensilikaten aus der Primärkupferhütte entnommen wurden. Die Aktivitätswerte zeigen, dass beim Schmelzprozess mit einer Anreicherung der Radionuklidkonzentration in der Schlacke bis zu einem Faktor von ca. 4 zu rechnen ist. Aufgrund der sehr geringen Aktivität der Erzkonzentrate sind auch die Schlacken radiologisch unauffällig.

Tabelle 3-22: Spezifische Aktivitäten der Kupferschlacke der Norddeutschen Affinerie

Rückstand	Herkunft	Quelle	Spezifische Aktivität [Bq/kg]	
			Th-230	Th-232
Retourschlacke	Norddeutsche Affinerie	/BSP 00/	27	11
Retourschlacke	Norddeutsche Affinerie	/BSP 00/	25	11
Primärschlacke	Norddeutsche Affinerie	/BSP 00/	25	15
Primärschlacke	Norddeutsche Affinerie	/BSP 00/	32	17

Die anfallende Schlacke aus der Primärverhüttung der Kupfererzverhüttung der Norddeutschen Affinerie wurde zu über 90% im Wasserbau eingesetzt (Deichbau, Buhnen, Kanalböschungen). Der überwiegende Anteil der verbleibenden Restmenge wird als Strahlmittel für Sandstrahlarbeiten vermarktet.

### 3.5.3.3 Weiterverarbeitung von Konzentraten oder Rückständen aus Zinnerz

Bezüglich der spezifischen Aktivitäten der Schlacken aus der Zinnerzverhüttung, die in Deutschland nicht mehr betrieben wird, liegen aus der Literatur wenige Daten vor (s. Tabelle 3-23). Die Menge der in Deutschland abgelagerten Schlacken ist nicht bekannt.

Tabelle 3-23: Spezifische Aktivitäten der Zinnschlacke (Rückstand)

Rückstand	Quelle	Spezifische Aktivität [Bq/kg]				
		Ra-226			Th-232	
Zinnschlacke	/LEH 96/	1.100 (1.000–1.200)			300 (230 – 340)	
Zinnschmelz-Schlacke	/BSP 00/	1.000 (70–5.400)			4.000 (70 – 15.000)	
Zinn-Verhüttungsschlacke	/BSP 00/	240–5.400 (U-238)			90 – 14.700	
		U-238	Ra-226	Pb-210	Ra-228	Th-228
Schlackesand (1978-1990)	Messung IAF	100	240	140	75	76
Schlackesand (1978-1990)		190	450	230	130	130
Schlackesand (1978-1990)		140	480	210	130	130
Zinnschlacke (1. Hälfte 19. Jhdt.)		300	330	290	21	22
Schlacke aus der Herstellung von Zinnlegierungen (1936-1976)		12	57	60	5	5

Importierte Zinnschlacke wird nach /BSP 00/ als Einsatzstoff zur Gewinnung von Niob/Tantal verwendet. Die Rückstände dieses Prozesses werden bei der Diskussion der tantalhaltigen Erze (Columbit-, Mikrolyth-, Euxenit) behandelt.

### 3.5.3.4 Weiterverarbeitung von Konzentraten oder Rückständen der Seltenen Erden

Durch schwere Bombardements am Ende des 2. Weltkriegs wurde die Verarbeitung von Seltene Erden Erzen am Standort Oranienburg beendet. Die verbliebenen Rohstoffe, Aufbereitungsrückstände und Produkte wurden im Boden-Bauschutt dispergiert und anschließend durch die Verfüllung von Bombentrichtern nochmals umverteilt. Die daraus resultierenden radioaktiven Hinterlassenschaften umfassen eine Fläche von ca. 20-25 ha. Die sich in dieser Fläche befindende Menge an radioaktiv kontaminiertem Boden ist schwer abschätzbar, zumal auch ihre Tiefenverteilung sehr heterogen ist.

Beispielhaft sind in der Tabelle 3-24 die spezifischen Aktivitäten von Böden aus der Stadt Oranienburg zusammengestellt. Sie zeigen eine deutliche Dominanz von Thorium. Die extrem hohe spezifische Aktivität der Probe 2 ist Ergebnis einer gezielten Probenahme am Ort einer ehemaligen Glühstrumpfproduktion.

Es wird eingeschätzt, dass die radioaktiven Bodenkontaminationen von Oranienburg die bedeutendsten radioaktiven Hinterlassenschaften Deutschlands außerhalb des Uranerzbergbaus darstellen.

Tabelle 3-24: Spezifische Aktivität von Bodenproben aus Oranienburg /HGN 01/

Probe Nr.	Th-232 sec [Bq/kg]	U-238 + [Bq/kg]	Ra-226 ++ [Bq/kg]	Probe Nr.	Th-232 sec [Bq/kg]	U-238 + [Bq/kg]	Ra-226 ++ [Bq/kg]
1	4.321	1.092	1.910	7	5.363	369	511
2	213.008	28.241	30.355	8	3.245	535	455
4	1.045	10.868	12.384	9	10.016	885	1.092
5	2.247	114	442	10	15.121	732	235
6	2.116	240	298	11	1.723	165	416

Aus der Verarbeitung von Cererzen in Wittenberg-Pisteritz gibt es keine Untersuchungen zu radioaktiven Rückständen. Als Rückstand dieser Produktion wurden allerdings mehrere Tonnen eingelagertes Th-Oxalat Mitte der 1990er Jahre entsorgt /LSA 97/.

### 3.5.3.5 Weiterverarbeitung von Konzentraten oder Rückständen aus Uranerz

Eine Übersicht über die in industriellen Absetzanlagen vorhandenen Mengen an Rückständen der früheren Uranerzverarbeitung in Deutschland enthält Tabelle 3-25. Die dort aufgeführten Mengen beschreiben allerdings nicht die Gesamtmenge der an den Verarbeitungsstandorten vorhandenen radioaktiven Hinterlassenschaften. Zusätzlich zu diesen relativ gut abgrenzbaren Mengen sind Bodenkontaminationen an Verlade-/Umschlagstellen, Erzlagern und durch versickernde Prozesslösungen an vielen Standorten zu beachten. Klammert man die Anlagen der Wismut-Sanierung und den Sonderfall Ellweiler (strahlenschutzrechtlich genehmigte Anlage) aus, so sind allein für die ehemaligen Wismut-Anlagen insgesamt von deutlich mehr als 10 Mio. t kontaminierten Hinterlassenschaften auszugehen.

In Abhängigkeit von den abgebauten und durch Flotation aufbereiteten Erzen, der Art der Prozessführung und den Nebenprozessen sind nach /SMU 99/ die in der Tabelle 3-26 aufgeführten Kontaminationen zu erwarten. Sie müssen jedoch nicht an allen Standorten vollständig vorhanden sein.

Eine Zusammenstellung von Daten zu den spezifischen Aktivitäten der Aufbereitungsschlämme in Absetzanlagen enthält die Tabelle 3-27. Diese Daten zeigen, dass für Tailings eine spezifische Aktivität von ca. 3 bis 10 Bq/g (3.000 bis 10.000 Bq/kg), bezogen auf Ra-226, als charakteristisch anzusetzen ist. Eine exemplarische Zusammenstellung von nuklidspezifischen Messergebnissen an Proben aus Tailingsmaterial enthält Tabelle 3-28. Einen Überblick über weitere mögliche Kontaminationen und ihre spezifischen Aktivitäten gibt die Tabelle 3-29.

Tabelle 3-25: Rückstandsmengen der Uranerzverarbeitung in Absetzanlagen. Daten aus /WIS 99/, /DIE 03/, /MUG 88/

IAA	Region	Einspülzeit		Fläche (*) [ha]	Mächtigkeit [m]	Masse [Mio t]
		Von	bis			
<b>Ehemalige Wismut-Anlagen</b>						
Schneckenstein 1	Vogtland	1947	- 1957	4,5	14	1,15
Schneckenstein 2	Vogtland	1947	- 1957	1,5	7	0,20
Lengenfeld 1	Vogtland	1947	- 1961	8	5	0,76
Lengenfeld 2	Vogtland	1947	- 1961	4	5	0,38
Johanngeorgenstadt 1	Erzgebirge	1947	- 1956	8	13	1,90
Johanngeorgenstadt 2	Erzgebirge	1947	- 1956	2	5	0,19
Oberschlema	Erzgebirge	1946	- 1949	5	5	0,48
Aue-Hakenkrümme	Erzgebirge	1949	- 1957	6	10	1,07
Dänkriz II	Zwickau	1955	- 1958	6,2	10	1,2
Freital-Deuben 1-4	Dresden	1950	- 1960	10	2	ca. 1
Kaitzbachtal-Coschütz A+B	Dresden	1952	- 1962	18	4	ca. 1
<i>Summe (gerundet)</i>				73		9,3

<b>WISMUT-Anlagen</b>							
Borbachtal	Erzgebirge	1949	-	1956	1,5	7	0,25
Crossen	Zwickau	1951	-	1952	22	2	0,3
Dänkriz I	Zwickau	1952	-	1958	18,9	10	6,6
Helmsdorf	Zwickau	1958	-	1989	200,9	48	48,8
Trünzig A	Ostthüringen	1960	-	1967	66,8	30	13,0
Trünzig B	Ostthüringen	1960	-	1967	48,1	20	6,0
Culmitzsch A	Ostthüringen	1967	-	1991	158,1	65	63,1
Culmitzsch B	Ostthüringen	1967	-	1991	75,8	65	26,9
<i>Summe (gerundet)</i>					592		165
<b>Alte Bundesländer</b>							
Ellweiler, Halde 1-3	Hunsrück	1961	-	1990	2,2		ca. 0,2 (+)

(\*) Flächen ohne Dämme; (+) abgeschätzt aus Betriebsdaten in /MUG 88/

Tabelle 3-26: Spezifische Aktivitäten der Rückstände der Uranerzverarbeitung /SMU 99/

Rückstand	Lokalisierung	Stoffliche Charakteristik	Spezifische Aktivität [Bq/g]
Uranlösung	Prozesswässer der Laugung, Filterpressen	Schwefelsaure oder sodaalkalische wässrige Lösung von U-238, entsteht als Zwischenprodukt bei der Behandlung des zerkleinerten Erzes mit Schwefelsäure oder Soda	bis $10^4$ Bq/l (U-238)
Ionen-austauscherharz	Laugungszechen, Deponien der Aufbereitungsfabriken	Kunstharze auf Kondensations- oder Polymerisationsbasis, Radionuklide adsorptiv oder als sulfatische Krusten auf den Oberflächen gebunden	bis 250 Bq/l (Ra-226)
Tailings (Laugungsrückstände)	Filterpressen, Absetzanlagen, Deponien, Transportwege	Ausgelaugtes Erz und Nebengestein, sandige oder schluffige Aufbereitungsabgänge mit Restanteilen von primären und sekundären Uranmineralen	Tailingsande bis 5 Bq/g Tailingschluffe 10-30 Bq/g

Tabelle 3-27: Spezifische Aktivitäten der Tailingsmaterialien in Absetzanlagen

IAA	Region	Ra-226 [Bq/g]	U-238 [Bq/g]	Erläuterung	Lit.
<b>Ehemalige Wismut-Anlagen</b>					
Schneckenstein 1	Vogtland		2,4		/VIE 94/
Schneckenstein	Vogtland	4 - 6			/TUB 98/
Lengenfeld	Vogtland	5,0	2,3		/VIE 94/
Johanngeorgenstadt 1	Erzgebirge	3,2	1,7		/VIE 94/
Johanngeorgenstadt 2	Erzgebirge		3,4		/VIE 94/
Oberschlema	Erzgebirge	2,4	4,7		/VIE 94/
Aue-Hakenkrümme	Erzgebirge	3,3	1,3		/VIE 94/
Dänkriz II	Zwickau	6			/WIS 93/
Freital-Deuben 1-4	Dresden	ca. 15	2 - 5		/GEL 94/
Kaitzbachtal-Coschütz A+B	Dresden	4,7 - 5,3 24 3 - 19,4	1,3 - 2,8 3 4 - 35	Sand Schluff Rotschlamm*	/ULL 94/

<b>WISMUT-Anlagen</b>					
Dänkriz I	Zwickau	6			/WIS 93/
Helmsdorf	Zwickau	6			/WIS 93/
Trünzig A	Ostthüringen	11			/WIS 93/
Trünzig B	Ostthüringen	7			/WIS 93/
Culmitzsch A	Ostthüringen	12			/WIS 93/
Culmitzsch B	Ostthüringen	12			/WIS 93/
<b>Alte Bundesländer</b>					
Ellweiler, Halde 1-3	Hunsrück	80			/MUG 88/

\* Rückstand bei der alkalischen Uranaufbereitung

Tabelle 3-28: Messergebnisse von Proben aus Uranerztailings (Messungen: IAF Radioökologie)

Proben-Nr.	Th-232	U-238	Th-230	Ra-226	Pb-210	Ac-227	K-40
	Bq/kg	Bq/kg	Bq/kg	Bq/kg	Bq/kg	Bq/kg	Bq/kg
P 106	20	2100	3500	4600	5100	170	390
P107	27	1400	9000	9400	10000	450	490
P 108	30	1000	6000	6600	6800	300	430
P 195	28	2240	3100	3480	3380	150	790
P 196	33	1420	2900	2900	2520	140	710
P 198	40	2800	15000	16000	15000	710	830

Tabelle 3-29: Spezifische Aktivität von kontaminierten Böden, Mauerwerk und Prozessrückständen am Standort Dresden-Coschütz (Gittersee) /SMU 99/

Träger der Kontamination	Spezifische Aktiv. in [Bq/g]	Träger der Kontamination	Spezifische Aktiv. in [Bq/g]
Boden Erzlagerplatz	1 - 30	Ionenaustauscher (verkippt u. überschüttet)	10 - 200
Boden im Gleisbereich der Erztransporte	3 - 10	Mauerwerk der Hallen der nasschemischen Prozessführung	1 - 90
Auf- u. Rückverfüllungen an Bauten	4 - 5	Eingelagerter kontaminierter Bauschutt	2 - 100
Boden unter und an Betriebsanlagen im Werksgelände	1 - 20	Gehängelehm unter sauer verwitterten sandigen Tailings	bis 18
Filtertücher (verkippt und überschüttet)	10 - 150	Abnehmbare Kontamination der Endprodukt-Zeche	2 - 560

Die aus der Verarbeitung von Uranerzen am Standort Oranienburg resultierenden Bodenkontaminationen sind Teil der großräumigen Bodenkontamination, die bereits im Kapitel 3.5.3.4 kurz dargestellt wurden.

Am Standort Braunschweig wurden von HGN/IAF sehr heterogene Ablagerungen mit Aktivitäten bis zu einigen 10 Bq/g (10.000 Bq/kg) mit Spitzenwerten über 100 Bq/g (100.000 Bq/kg) festgestellt, wobei unterschiedliche Nuklide (Th-230, Ra-226, Pb-210) die maximale Aktivität aufwiesen (s. Kapitel 6.2.3). Der Standort wurde im Jahr 2005 vollständig dekontaminiert.

### 3.6 Rückstände der Gewinnung und Aufbereitung anderer Rohstoffe

#### 3.6.1 Generell mögliche Rückstände

Rückstände der Gewinnung und Aufbereitung anderer Rohstoffe nach Anlage XII Teil A Nr. 3b StrlSchV sind den Erzen nach Nr. 3a entsprechende Mineralien, die bei der Gewinnung und Aufbereitung anderer Rohstoffe anfallen. Damit fokussiert die Anlage XII an dieser Stelle auf Materialien, in denen die genannten Erze als Begleitkomponenten enthalten sind und die daher mehr als 0,2 Bq/g Aktivität aufweisen oder in denen bei der Aufbereitung radioaktive Minerale angereichert worden sind, die akzessorisch im Rohstoff enthalten waren. Insgesamt eröffnet die Regelung beträchtliche Interpretationsunsicherheiten, da zum einen auch primär nichtradioaktive Erze (Bauxit, Zinnerz) eingeschlossen werden und die Klärung des konkreten Mineralbestandes bei erhöhter natürlicher Radioaktivität schwierig sein kann.

Um unter diesen Rahmenbedingungen eine praktikable Unterscheidung von Rückständen und anderen Materialien erhöhter natürlicher Radioaktivität treffen zu können, wird im Folgenden von Rückständen ausgegangen, wenn

- bei der Aufbereitung von Rohstoffen Fraktionen anfallen, die die Zerfallsketten im radioaktiven Gleichgewicht enthalten (Indiz für die „entsprechenden Mineralien“),
- bei einer chemischen Aufbereitung von Rohstoffen aus dem Prozessablauf auf die Bildung „entsprechender Mineralien“ geschlossen werden kann. Das ist vor allem bei Uran- oder Thoriumanreicherungen (Th-232), nicht jedoch bei Radiumanreicherungen anzunehmen.

Keine Rückstände im Sinne dieser Regelung sind:

- Radiumscales und -ablagerungen (Ra-226 und Ra-228), da sie nicht die „entsprechenden Mineralien“ enthalten. Das bedeutet insbesondere, dass Schlämme, die bei der Aufbereitung des Rohstoffs Wasser anfallen, d.h. bei gezielter Abreicherung von Radionukliden entstehen, keine Rückstände im Sinne der StrlSchV sind.
- Aschen der früheren Verbrennung von uranhaltiger Kohle aus dem Freitaler Revier (trotz der Uranmineralisation keine „Aufbereitung“ sondern „Verwendung“ eines Rohstoffs),
- Pb-210 haltige Stäube der thermischen Aufbereitung (Brennen, Sintern) von mineralischen Rohstoffen (enthalten nicht die „entsprechenden Mineralien“).

Nach Auswertung der Literatur und eigener Erfahrungen der Bearbeiter dieser Studie verbleiben damit als zu prüfende Prozesse:

- Gewinnung und Aufbereitung von **Kaolin und Feldspat**, da einige Lagerstätten radioaktive Begleitmineralisation enthalten,
- Gewinnung und Aufbereitung von **Hartgesteinen**, insbesondere **Granit**, da in einigen dieser Gesteine bereits als Rohstoff spezifische Aktivitäten über 0,2 Bq/g (200 Bq/kg) enthalten sein können,

- die **Titandioxid-Produktion**. Gerade bei diesem Prozess ist allerdings fraglich, ob es sich um eine „Aufbereitung“ oder „Weiterverarbeitung“ handelt. Da für die Beurteilung radiologisch relevanter Hinterlassenschaften diese Frage weniger wichtig ist, wird die Titandioxid-Produktion in diesem Kapitel mit untersucht.
- Gewinnung und Aufbereitung von **Steinkohle** in bestimmten Gebieten.

Prinzipiell können auch bei der Gewinnung und Aufbereitung anderer als der vorgenannten Erze oder mineralischen Rohstoffe begleitende Anreicherungen radioaktiver Minerale vorkommen. Daher werden verfügbare Unterlagen zu diesem Sachverhalt in die Prüfung einbezogen.

Ein besonderer Fall ist das Mineral Zirkon, chemisch  $ZrSiO_4$ . Dieses Mineral kann Uran- oder Thorium substituiert auf Gitterplätzen des Elements Zirkonium enthalten (chemisch:  $[Zr,Hf,U,Th,Y]SiO_4$ ). Es fällt allerdings nicht unter die in der Anlage XII Teil A Nr. 3a StrlSchV benannten Erze. Daher ist die Aufbereitung von **Zirkonsanden** kein Prozess, der über die Regelungen des § 97 StrlSchV in den Strahlenschutz einzubeziehen ist (vgl. auch Begründung zur StrlSchV /BMU 01b/). Obwohl die spezifische Aktivität dieser Materialien häufig deutlich höher als die von Bauxit ist und sie in ähnlicher Weise für die Herstellung von Feuerfestmaterialien und Strahlmitteln genutzt werden, sind Zirkonsande nur über die Auffangregelung des § 102 in den Strahlenschutz zu integrieren (s. Kapitel 4).

Rückstände können als **Bodenaushub** bzw. **Bauschutt** bei der Stilllegung von Gebäuden und Anlagen in denen die genannten Materialien gewonnen oder aufbereitet werden anfallen. Weiterhin können Rückstände dieser Art bei der Beräumung von Grundstücken und Flächen entstehen, auf denen die Rückstände bzw. Produkte gelagert oder umgeschlagen werden.

### 3.6.2 Regionale Schwerpunkte

#### 3.6.2.1 Gewinnung und Aufbereitung von Hartgesteinen

Generell können natürliche Gesteine bereits spezifische Aktivitäten von mehr als 0,2 Bq/g (200 Bq/kg) aufweisen. Bei der Gewinnung solcher Gesteine anfallende Restmaterialien können Rückstände darstellen, da diese Aktivität durch akzessorische Mineralkomponenten verursacht wird. Unabhängig davon können aufgelassene Tagebaue oder aufgehaldeter Gesteinsbruch früherer Abbaue auch zu Situationen mit erhöhter Strahlenexposition führen, die als radiologische Hinterlassenschaften einzustufen wären.

Eine detaillierte Übersicht über die natürliche Radioaktivität der Gesteine in Deutschland wurde bisher nicht publiziert. Um im Sinne dieser Studie regionale Schwerpunkte auszuweisen, in denen derartige Situationen zu erwarten sind, werden daher im Folgenden Daten in Hinblick auf Gebiete bzw. Lagerstätten mit deutlich erhöhter natürlicher Radioaktivität zusammengestellt.

Oberflächlich anstehende Gesteine mit erhöhter natürlicher Radioaktivität führen zu einer höheren terrestrischen Ortsdosisleistung. Die in Abbildung 3-10 dargestellte Karte der terrestrischen ODL /BfS 04/ zeigt als Gebiete mit erhöhter Strahlung den Raum des südlichen Sachsen (Erzgebirge, Vogtland), das östliche Bay-

ern (Fichtelgebirge, Pfälzer Wald, Bayrischer Wald), weite Gebiete Thüringens, Gebiete Unter- und Mittel-frankens, Teile des Schwarzwaldes sowie von Rheinland-Pfalz.

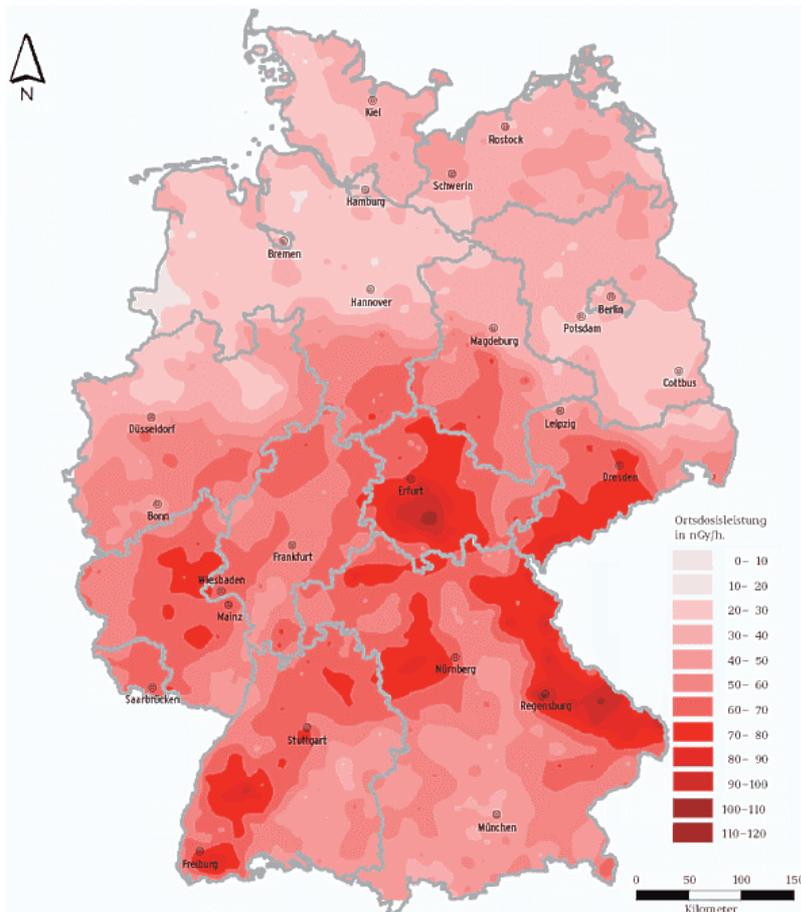


Abbildung 3-10: Karte der terrestrischen ODL /BfS 04/

Zusätzlich zu diesen Gebieten sind aber auch lokale Vorkommen von Gesteinen oder abgedeckte Lagerstätten mit erhöhter Aktivität möglich. Die Karte der Abbildung 3-10 gibt daher eine grobe Orientierung der Gebiete Deutschlands, in denen vor allem mit dem Auftreten von Gesteinen erhöhter Radioaktivität zu rechnen ist. Da die Strahlung der unverritzten Erdoberfläche im Strahlenschutz nicht zu betrachten ist, sind damit zunächst keine Aussagen über radiologisch relevante Situationen in Sinne dieser Studie zu verbinden.

Eine semiquantitative Einstufung der natürlichen Radioaktivität von deutschen Gesteinslagerstätten ermöglichen die Daten von Müller /MÜL 04/. In dieser Arbeit wurde die Sammlung an Naturwerksteinen (Platten von 15 x 30 x 2 cm) der BGR in Berlin mit ODL-Handmessgeräten bemustert. Trotz einiger methodischer Unsicherheiten in dieser Arbeit kann mit den Daten eine generelle Indikation von solchen Gesteinen vorgenommen werden, für die eine signifikante Erhöhung der ODL ermittelt wurde. In Tabelle 3-30 sind die Gesteine mit Herkunft aus Deutschland aufgeführt, für die die Messungen von Müller eine Erhöhung der ODL um mehr als 50 nSv/h über den Hintergrundwert am Messort (130 - 140 nSv/h) erbrachten.

Tabelle 3-30: Zusammenstellung von Gesteinen mit erhöhtem Strahlungspegel /MÜL 04/

Name	Gestein	Herkunft	Land	nSv/h (*)	
Granit Gertelbach	Granit	Nordschwarzwald	BW	198	(a)
Metten gelb	Granit	Niederbayern	BY	195	
Schauerberg	Granit	Tröstau, Fichtelgebirge	BY	190	
Flossenbürg gelbgrau	Granit	Flossenbürg, Oberpfalz	BY	213	
Blauer Granit Kösseine	Granit	Fichtelgebirge	BY	190	(b)
Falkenberg	Granit	Falkenberg (Oberpfalz?)	BY	203	
Gipfelgranit	Granit	Platte / Fichtelgebirge	BY	205	
Thanstein rötlich	Granodiorit	Thanstein, Oberpfalz	BY	263	
Raumünzach rötlich	Granit	Schwarzwald	BW	220	

Raumünzach grau-rosa	Granit	Schwarzwald	BW	203	
Eging	Granit	Niederbayern	BY	198	
Schneeberg	Dachgranit	Schneeberg (Erzgebirge)	SN	203	
Ringelbach	Granit	Schwarzwald	BW	218	
Granit vom Ries	Gneis	Otting / Ries (Schwaben)	BY	220	
Grafenreuth	Granit	Grafenreuth, Fichtelgebirge	BY	195	
Schwarzachtal	Granodiorit	Bei Rötz / Oberpfalz	BY	228	
Redwitz	Granit	Wölsau, Marktrechwitz (Fichtelgebirge)	BY	263	
Fuchsbau Zinngranit	Granit	Fichtelgebirge	BY	193	
Tromm	Granit	Odenwald	HE	205	
Granodiorit Oberkaina	Granodiorit	Oberkaina (Sachsen)	SN	208	
Syenit Plauenscher Grund	Granit	Dresden (Sachsen)	SN	235	
Inselberg	Granit	Inselberg (Thüringen)	TH	200	
Altenberg	Granodiorit	Erzgebirge (Sachsen)	SN	217	
Oberstreit	Granit	Oberstreit (Sachsen)	SN	205	(?)
Granit Strehlen	Granit	Strehlen (Sachsen)	SN	190	
Anemone Grün	Granit	Weinigerode (Harz)	ST	190	(?)
Königsberg	Granit	Schierke (Harz)	ST	235	
Blauenthal	Granit	Eibenstocker Granit	SN	190	(c)
Riesenstein-Granit	Granit	Meißen	SN	203	(?)(d)
St. Quirin Granit	Tonalit	Neustadt am Waldnaab	BY	210	
Rötenbach	Diorit	Schwarzwald	BW	210	
Seussen	Diorit	Fichtelgebirge	BY	203	
Wölsau	Lamporphyr	Marktrechwitz, Fichtelgebirge	BY	210	
Minette Altenstein	Lamporphyr	Altenstein, Erzgebirge	SN	237	(?)
Herrenholz	Granodiorit mit Aplit	Hauzenberg, Niederbayern	BY	200	
Aplit Naundorf	Aplitischer Granit	Naundorf	SN	205	
Aplit Kösseine	Aplit im Kösseine Granit	Schurbach, Fichtelgebirge	BY	190	(?)
Pinitporphyr Kürn	Quarzporphyr	Kürn, Oberpfalz	BY	220	
Bärenstein	Granitporphyr	Erzgebirge	SN	213	
Waldhambach	Melaphyr	Pfalz	RP	210	
Rechenberg	Rhyolith	Erzgebirge	SN	232	
Höchstädt	Rhyolith	Fichtelgebirge	BY	190	
Rhyolit Thüringen	Rhyolith	Trusetal	TH	190	(?)
Würdinghausen	Rhyolith	Kirchhunden, Sauerland	NRW	192	(?)
Brandis	Rhyolith	Brandis	SN	203	
Hammerunterwiesental	Phonolit	Erzgebirge	SN	214	(?)
Hildenbach	Augengneis	Fichtelgebirge	BY	190	
Körneltgneis	Gneis	Cham, Oberpfalz	BY	210	(?)
Maulbronn	Schilfsandstein	Baden-Württemberg	BW	205	
Klaubholz	Mainsandstein	Region Bamberg	BY	193	

(\*) Messergebnisse mit Messgerät HS 036;

(?) – stark unterschiedliche Messergebnisse mit anderem Messgerät in /MÜL 04/

(a) Früher wichtiger Granit in Dt. Heute nur von lokaler Bedeutung /GRA 05/; (b) Einer von weltweit 3 gehandelten blauen Granite /GRA 05/; (c) Herkunft nach /GRA 05/, (d) Roter Meißener Granit /GRA 05/

Die Tabelle 3-30 zeigt, dass vor allem beim Granit mit erhöhter natürlicher Radioaktivität zu rechnen ist (25 von 51 aufgeführten Gesteinen). Die regionalen Schwerpunkte für alle ausgewiesenen Gesteinsarten liegen in Bayern (24 Gesteine) mit Schwerpunkten im Fichtelgebirge (10), der Oberpfalz (7) und in Niederbayern (4), in Sachsen (14 Gesteine) mit Schwerpunkt Erzgebirge und Baden-Württemberg (6 Gesteine, alle Schwarzwald). Je 1 - 2 Gesteine werden für Hessen, Thüringen, Nordrhein-Westfalen, Sachsen-Anhalt und Rheinland-Pfalz ausgewiesen.

Konkrete Angaben zur spezifischen Aktivität von Gesteinen enthält die Tabelle 3-31. Diese Daten zeigen, dass die spezifische Aktivität auch bei solchen Lagerstätten mit deutlich erhöhter Radioaktivität zumeist nur wenig über 200 Bq/kg (0,2 Bq/g) liegt. Nur der Lagergranit des Pferdebergs bei Döbeln hat von den hier aufgeführten Gesteinen eine Summenaktivität beider Zerfallsreihen nach Anlage XII Teil B StrlSchV von über 500 Bq/kg (0,5 Bq/g). Beim Neunburger Granit ist allerdings zu beachten, dass der angegebene Wert von 276 Bq/kg einen Medianwert darstellt und in diesem Gebiet auch deutlich höhere Einzelwerte auftreten können.

Tabelle 3-31: Spezifische Aktivität von Gesteinen in Deutschland

	U-238 [Bq/kg]	Th-232 [Bq/kg]	Datenquelle
Fichtelgebirge	170	55	Medianwerte (!) für Granitareale in Oberbayern. Rückgerechnet aus /SIE 96/ S. 86
Nördliche Oberpfalz	170	55	
Oberviechtaler Granit	66	76	
Neunburger Granit	95	<b>276</b>	
Granite des Passsauer Waldes	76	166	
Lagergranit, Granulitgebirge, Pferdeberg Döbeln, Sachsen	<b>242</b>	<b>393</b>	/LEI 91/
Monzonit, Massiv von Meissen, Sachsen	166	<b>224</b>	/LEI 91/
Granit, Niederbobritzsch, Erzgebirge, Sachsen	196	126	/LEI 91/
Granit, Kirchberg, Sachsen	110	121	/LEI 91/
Granit, Schellerau, Sachsen	96	117	/LEI 91/
Granodiorit, Lausitz, Sachsen	35	40	IAF (27.9.2005)
Flossenbürger Granit, Bayern	<b>460</b>	78	/MAL 04/
Berbinger Granit, Bayern	<b>270</b>	69	/MAL 04/
Granit Hauzenberg, Bayern	160 – 200	37 – 130	/MAL 04/
Granit Bibersberg, Bayern	200	34	/MAL 04/
Katzenbuckel bei Eberbach (Baden-Württemberg)	130	150	/BON 04/

Granite werden und wurden in Deutschland an zahlreichen Abbaustellen gewonnen. Die wichtigsten Vorkommen der Granite befinden sich im Bayerischen Wald, der Oberpfalz und dem Fichtelgebirge, in Sachsen im Erzgebirge sowie bei Hirschberg, Königsbrück bei Dresden, Limbach, Meißen, Mittweida und in der Oberlausitz, weiterhin im Harz, im Odenwald sowie im Schwarzwald und damit in den zuvor genannten Gebieten mit tendenziell erhöhter natürlicher Radioaktivität.

Der beim Granitabbau anfallende Gesteinsbruch wird, soweit er nicht vermarktet werden kann, in der Regel zur Gestaltung und Profilierung im Abbaubereich selbst genutzt. Die Aufbereitung von Hartgesteinen kann zum einen das Brechen und Fraktionieren zum Herstellen von Splitt und Schotter umfassen, zum anderen aber auch die Herstellung von Werksteinblöcken. Die eigentliche, dezentral über ganz Deutschland verbreitete Herstellung von Granitplatten oder Quadern zur Nutzung im Bauwesen sowie Steinmetzarbeiten stellt eine Weiterverarbeitung dar und fällt daher nicht unter die Rückstandsregelungen der StrlSchV. Diese Weiterverarbeitung umfasst zu einem erheblichen Teil auch importierte Gesteine.

### 3.6.2.2 Gewinnung und Aufbereitung von Kaolin

Kaolin ist ein Sammelbegriff für eine Mischung aus Tonmineralen, deren wichtigster Bestandteil Kaolinit ist. Es entsteht bei der Verwitterung feldspathaltiger Gesteine, wie z. B. Granite.

Eine Übersicht über die Kaolingewinnung in Deutschland im Jahr 2000 zeigt Tabelle 3-32. Die bedeutendste Kaolinlagerstätte liegt in Bayern im Hirschau-Schnaittenbacher Revier und wird im Großtagebau abgebaut. Der größte Kaolin-Produzent Deutschlands mit einem Anteil von mehr als 50 % der Gesamtproduktion sind die Kaolinwerke GmbH mit Stammbetrieben in der Oberpfalz und Sachsen.

Tabelle 3-32: Kaolingewinnung in Deutschland im Jahr 2000 und 2003 /BMW 01/, /BMW 04/

	Betriebe mit Förderung	Betriebe ohne Förderung	Untersuchungs- und Aufschlussbetriebe	Bodenschatz als Nebenprodukt	Rohförderung [t]	Verwertbare Förderung [t]
Bayern (2000)	12	1	1	-	3.089.526	2.250.955
(2003)	11	3	0	1	3.041.755	1.933.416
Hessen (2000)	1	2	-	-	27.874	27.874
(2003)	1	2				
Nordrhein-Westfalen (2000)	2	-	-	-	17.969	17.969
(2003)	1	0	0	0	16.154	16.154
Rheinland-Pfalz (2000)	2	-	-	-	20.019	15.026
(2003)	1	0	0	0	7.632	3.053
Sachsen und Sachsen-Anhalt (2000)	11	4	-	-	1.379.944	1.343.286
Sachsen (2003)	9	2	0	0	1.474.398	1.457.523
Sachsen-Anhalt (2003)	3	0	0	0	36.239	31.801
<b>Summe (2000)</b>	<b>28</b>	<b>7</b>	<b>-</b>	<b>1</b>	<b>4.535.332</b>	<b>3.655.110</b>
<b>(2003)</b>	<b>26</b>	<b>7</b>	<b>0</b>	<b>1</b>	<b>4.576.178</b>	<b>3.441.947</b>

Kaolinit wird nach /VFM 05b/ vor allem in der keramischen Industrie - die im Wesentlichen in der Oberpfalz einen wichtigen Wirtschaftszweig darstellt - zur Porzellanherstellung verwendet (Porzellan besteht zu ca. 50% aus diesem Mineral). Weitere Anwendungen sind Papier-Zuschlag und Papier-Strich, Trägersubstanz für biologische Mittel, Arzneimittel, in Zahnpasta und Zuschlagstoff in Kunststoffen.

Im Hirschau-Schnaittenbacher Abbaurevier werden nach /IAF 03a/ kaolinitisierte Feldspatsandsteine und Arkosen abgebaut. In diesen Sedimenten des Bundsandsteines findet sich neben Kaolin/Feldspat, Glimmern und Quarz eine Vielzahl akzessorischer (Schwer)minerale (ca. 0,7 - 0,9 Gew.%), unter anderem auch Monazit. Bei der Aufbereitung der unterschiedlichsten Produkte können diese bis zu einem gewissen Anteil separiert werden und ergeben ein Schwermineralkonzentrat, das auch Monazit enthält. Der Monazitanteil in diesem Konzentrat, dem sog. Monazitsand, kann bis zu 8 Vol% betragen. Radioökologisch relevant sind diese Rückstände, da im Monazit die Th- oder U-Ionen andere Ionen im (Misch-)Kristallgitter ersetzen. Damit

ist beim derzeitigen Kenntnisstand für diese Lagerstätte mit dem Anfall von Rückständen im Sinne der StrlSchV zu rechnen.

### 3.6.2.3 Gewinnung und Aufbereitung von Feldspat

Feldspäte gehören zu den häufigsten Mineralien der Erdkruste. Chemisch sind sie Silikate des Aluminiums und damit primär nicht radioaktiv. Eine Anreicherung von Feldspat zu abbauwürdigen Lagerstätten kommt vor allem als Pegmatit oder Aplit vor. Aufgrund ihrer Bildung aus gasreichen Restschmelzen können sie besondere Mineralbildungen enthalten, wie z.B. Zirkon-, Zinnstein-, Wolframpegmatite /JUB 75/. Eine besondere Gruppe sind Pegmatite der Seltenen Erden, mit Niob, Tantal u.a. Elementen /JUB 75/.

Feldspäte werden als Masserohstoff für die keramische Industrie, als Aluminiumträger bei der Glasherstellung, als Magerungsmittel in der Feuerfestindustrie und zur Schleifmittelherstellung verwendet.

Je nach Art und Umfang der enthaltenen Mineralbildungen aber auch der an die Lagerstätten angrenzenden Gesteine ergibt sich eine unterschiedliche radiologische Situation. Der Überblick über die Feldspatgewinnung in Deutschland (Tabelle 3-33) gestattet daher noch keine Aussage über radiologisch relevante Verhältnisse.

Tabelle 3-33: Feldspatgewinnung in Deutschland im Jahr 2000 und 2003 /BMW 01/, /BMW 04/

	Betriebe mit Förderung	Betriebe ohne Förderung	Rohförderung [t]	Verwertbare Förderung [t]
1. aus Feldspatgruben				
Bayern (2000)	1	-	41.176	41.176
(2003)	1	0	k.A.	k.A.
Rheinl.-Pf., Thür. und Saarland (2000)	11	1	523.711	503.286
(2003)	12	2	k.A.	k.A.
2. aus Kaolinaufbereitung				
Bayern (2000)	3 (*)		(+)	
(2003)	5 (*)			

(\*) als Nebenerzeugnis; (+) in Kaolinförderung enthalten.

Bereits in /TÜV 94/ wurde darauf hingewiesen, dass eine Feldspatgrube (untertägiger Abbau) im nordost-bayrischen Grundgebirge durch sehr hohe Radonexpositionen der Beschäftigten auffiel. Aktuelle Untersuchungsergebnisse /MAL 04/ bestätigen, dass in einem bayrischen Feldspatabbau radiologisch relevante Anreicherungen natürlicher Radionuklide auftreten.

Im Bericht /TÜV 94/ werden als Orte bayrischer Feldspatabbau (alle Orte liegen im Oberpfälzer Wald) genannt:

- Hagendorf Nord (Nördlicher Oberpfälzer Wald): Phosphatpegmatit, Förderung von 1860 – 1937: 220.000 t /WEB 05/,

- Hagendorf Süd (Nördlicher Oberpfälzer Wald): größten Pegmatitstock Mitteleuropas, (Widenauer-Grube, Cornelia-Schacht; Abbau von 1894 - 1883) /WEB 05/,
- Waidhaus: Aplit-Vorkommen; Noch aktiver Abbau "Silbergrube" seit 1938 /MSC 05/,
- Grundweiding (Als eigenständiger Ortsname nicht mehr verzeichnet. Evtl. Teil der Gemeinde Weiding),
- Neustadt an der Waldnaab.

### 3.6.2.4 Gewinnung und Aufbereitung anderer Erze oder Mineralien

Nach den Bergbaustatistiken des Jahres 2003 /BMW 04/ werden derzeit in Deutschland außer den bereits in den vorhergehenden Kapiteln genannten Rohstoffen die in Tabelle 3-34 zusammengestellten Erze und mineralischen Rohstoffe unter Bergaufsicht abgebaut. Unter den aufgeführten Rohstoffen sind, abgesehen von den bereits behandelten Zinnerzen und der Haldenrückgewinnung von Kupferschieferschlacke, keine Rohstoffe enthalten, die aufgrund allgemeiner Vorkenntnisse als radiologisch relevant einzustufen sind. Das bedeutet aber nicht, dass bei den Gewinnungs- und Aufbereitungsprozessen der Rohstoffe generell keine radiologisch relevanten Anreicherungen oder radiologisch relevante Begleitprozesse auftreten. Insbesondere die Bildung von radiumhaltigen Ablagerungen oder Schlämmen z.B. im Steinkohlebergbau ist aus Sicht des Strahlenschutzes zu beachten (s. Kapitel 4).

Tabelle 3-34: Abbau von Erzen und mineralischen Rohstoffen in Deutschland im Jahr 2003 /BMW 04/

	Betriebe mit Förderung in ...	Betriebe ohne Förderung in ...	Untersuchungs- und Aufschlussbetriebe in ...	Gewinnung als Nebenerzeugnis in ...
Steinkohle	NRW, SL	SN		
Braunkohle	BB, HE; NI, NRW; SN, ST	BB, HE, NI, NRW, SN, ST, TH	HE	BY; NI
Ölschiefer	BW	BW, HE		BY
Kalialze	HE, NI, ST, TH	Ni, TH		
Steinsalz	HE, NI, NRW, ST, BW, BY, TH	HE, NI, NRW, ST, BW, BY, TH		
Eisen-, Manganerze	NRW			
Pb, Sn, Zn und Pb-Zn-Erze	HE	NI, HE, SN (*)		
Schwefel- und Magnetkies		NRW, ST		
Graphit	BY			
Flussspat		ST		BW
Schwerspat	BW, NI, NRW		BW	
Speckstein	BY			
Talkschiefer	BY			
Pegmatitsand	BY		BY	

Kalkstein	BW, BY, BB, HE, MV, SL, SN, ST, TH	BW, BY, HE, SL, SN, ST, TH		
Dolomit	RP, SN, TH	SN		
Gips	BW, BY, HE, Ni, RP, TH	BW, BY, Ni	BW, BY, HE	BW
Dachschiefer, Schiefererzeugnisse	BY, NRW, RP, TH	HE, TH		
Haldenrückgewinnung	ST (+)	HE		RP (Dachschiefer)
Asphalt	NI			
Grünsandstein	NRW			
Quarz, Quarzsand	BW, BY, BB, HE, MV, NI, NRW, RP, SL, SN, ST, SH	BW, BY, BB, HE, NI, SN, ST	BY, HE	BW, BY, HE, NI, NRW
Quarzit	HE, RP			HE
Kieselerde	BY	BY	BY	
Klebsand	NRW, RP			NRW
Kieselgur		NI, ST		
Lavasand	RP			
Basaltsand	BY, HE, RP			
Rotschiefer	HE			
Anhydrit	BW			BW, TH
Trass	BW, BY, RP	BY, RP	BW	
Tuffstein	RP			
Lehm	HE, MV, SN, ST, TH	MV, SN, ST, TH		HE, TH
Ocker und Farberden	BY	BY		HE (neben Braunkohle)
Formsand	NRW, RP, SN, TH			
Spezialton	BW, BY, BB, HE, MV, NI, NRW, RP, SL, SN, ST, SH, TH	BW, BY, BB, HE, MV, NI, RP, SL, SN, ST, SH	BY, HE	BB, HE, NRW
Schieferton	HE, NI	HE		HE, NRW
Bentonit	BY, HE	BY, HE	BY	
Kiese und Kiessande	BB, MV, NI, NRW, SN, ST, SH, TH	BE, BB, MV, NI, SN, SH, TH		NI, SN,
Gesteine zur Herstellung von Schotter und Splitt sowie von Werk und Dekosteinen	BB, SN, ST, TH	SN, ST, TH		
Marmor	NRW			
Torf	BB, MV, SN, ST			

(\*) s. Kapitel 3.4.2.4, (+) s. Kapitel 3.5.2.2

Die Tabelle 3-34 enthält auch die stillgelegten Abbaue, die derzeit noch unter Bergaufsicht stehen. Das ist allerdings keine hinreichende Übersicht über den früheren Bergbau in Deutschland. Auf der Grundlage einer Zusammenstellung von Schau- und Besucherbergwerken nach /VLM 05/, Angaben aus /FRI 89/ und ergänzenden Internet-Angaben sind in Tabelle 3-35 historische Bergbauregionen und dort abgebaute Rohstoffe zusammengestellt. Diese Übersicht enthält keine vollständige Auflistung aller Bergbauregionen und Abbaue. Sie konzentriert sich auf die für diese Studie relevanten metallischen und nichtmetallischen Erze. Nicht aufgenommen wurden Erdgas-/Erdöl, Gesteine für die Bauwirtschaft (Sande, Kiese, Steine, Kalk, Gips, usw.) sowie Kali und Steinsalz. Braunkohle oder Steinkohle wurde nur aufgenommen, wenn sie in den hier betrachteten Bergbauregionen abgebaut wurde. Die in dieser Arbeit auch an anderer Stelle beschriebenen Lagerstätten mit radiologischer Relevanz sind **gelb** hervorgehoben.

Tabelle 3-35: Historische Bergbauregionen mit abgebauten Erzen, Mineralen und Gesteinen

Bergbauregion	Abgebaute Erze, Minerale, Gesteine
Aachener Revier	Steinkohle und Blei-Zink-Erze (Galmei-Erze in Stollberg)
Bayerischer Wald	Pb-Ag-Cu bei Bodenmais – Lam; <b>Pegmatit</b> (s. Kapitel 3.4.2.2); Graphit im südöstlichen Teil (Hauzenberg-Wegscheid)
Bayrische Alpen	Pb-Zn-Vererzungen im Wettersteinkalk bei Mittenwald (Abbau vor allem im 19. Jh.)
Bergisches Land	Zinkblende, Bleiglanz und Kupfer (Ende des Bergbaus mit Stilllegung des Bergwerkes Lüderich bei Rösrath 1978); Silber; Eisen
Chiemgauer Alpen	Pb-Zn-Vererzungen im Wettersteinkalk bei Inzell (Abbau vor allem im 17. Jh.). Salz (Bad Reichenhall)
Deister	Steinkohle (Schaumburger Land)
Eifel	Blei-Zink, Mayen und Metternich, Eisenerz, Kupfer, Schiefer
Erzgebirge	Alaun Arsen Baryt Fluorit Lithiumglimmer Schwefel Blei Eisenerz Kobalt Kupfer Nickel Silber <b>Uran</b> Wolfram <b>Zinn</b> Zink <b>Steinkohle</b> (Oelsnitz-Zwickau; <b>Freital</b> )
Fichtelgebirge	<b>Zinn</b> (Schönlind, am Seehaus und bei Weißenstadt); Eisenerz bei Arzberg und Fichtelberg; <b>Uran</b> (Großschloppen), vereinzelt auch Gold Silber
Frankenwald	Kupfer, Pb-Zn (Gebiete um Nordhalben, Naila, Wallenfels, Schwarzenbach); Pyrit, Magnetkies, Magnetit, Zinkblende, Bleiglanz (Kupferberger Revier, östlich Kulmbach); <b>Steinkohle</b> (Stockheim) mit erhöhter Radioaktivität im Nebengestein /REI 06/
Harz	Eisenerz in zahlreichen Orten vom Südharz (Osterode, Wieda, Zorge) bis Nordharz (Bad Harzburg, Elbingerode); Pb-Zn (Claustal und St. Andreasberg, Goslar); Silber Antimon, Arsen und Ni-Co bei St. Andreasberg <b>Kupferschiefer</b> (Ostharz, Mansfeld); Steinkohle (Südharz bei Ilfeld); Flussspat Schwerspat
Harzvorland	Eisenerz im Raum Peine Salzgitter
Hessisches Bergland	Eisenerz Steinkohle Kupfer bei Niedermarsberg; Gold bei Korbach (bis zum 30 jährigen Krieg abgebaut); Cu-Pb-Zn im Kellerwald südöstlich Bad-Wildungen; Schwerspat, Kobalt, <b>Kupferschiefer</b> im Meißner-Gebiet und im Richelsdorfer Gebirge bei Sontra; Braunkohle bei Borken, Frielendorf; Braunkohle im Werra-Meißner-Kreis bei Kaufungen (Großalmerode: letzter Tiefbau auf Braunkohle in Deutschland bis 2003)
Kraichgau	Pb-Zn bei Wiesloch
Mosel/Hunsrück	Schiefer Edelsteine Kupfer Mangan Quecksilber Silber <b>Uran</b>
Oberpfalz	Ag-Pb-Zn bei Erbdorf (Abbau im 16. Jh.); Eisen (Magnetkies, Pyrit) Kupfer – Grube Bayerland bei Waldsassen und diverse Gruben in Eisenerzzone Auerberg – Ambach – Schwandorf; <b>Uran</b> (Poppenreuth, Mähring); <b>Kaolin</b> bei Tischenreuth und Hirschau-Schnaittenbach; <b>Flussspat</b> südlich Nabburg (mit Nebengemengeanteilen Pyrit, Markasit, Kupferkies, Bleiglanz, Zinkblende, Eisenglanz und Pechblende); <b>Phosphat</b> grube „Kleiner Johannes“ bei Pegnitz, <b>Pegmatit</b> , Schmucksteine

Odenwald	Eisenerz, Pb-Ag-Erze; Cu-Erze (bis 1944), Mangan bei Bockenroth und Waldmichelbach; Schwerspat (bis 1931) bei Klein-Umstadt; Co-Cu bei Hochstädten; bei Nieder-Ramstadt im Steinbruch am Wingertsberg: <b>Uran</b> vererzungen
Pfalz	Gips und Kalk; Eisenerz Kupfer Kobalt Roteisen Silber
Rheinisches Schiefergebirge	Pb-Zn
Rhön	Schwerspat (bei Oberbach); Braunkohle (nördlich Bischofsheim)
Ruhrgebiet	Steinkohle; außerdem Pb-Zn, Cu teilweise auch Eisen als Nebengewinnung
Saar	Steinkohle Kupfer Azurit Malachit
Saarpfalz	Steinkohle
Sächsisches Elbland	Ton Kaolin
Sauerland	Pb-Zn bei Ramsbeck; Antimon bei Arnsberg-Wintrop (Hochsauerlandkreis); Eisenerz Kupfer Roteisenstein Schiefer
Schwäbische Alb	Eisenerz bei Wasseralfingen (Nordosten) und Blumberg (Südwesten) Ölschiefer bei Schörzingen (Westen)
Schwarzwald, Nord	Brauneisen-Schwerspat (Neuenbürger Revier); Silberabbau, <b>Vererzung Co-Ni-Ag-Bi-U</b> im Kinzigtal (Wittichen, Heubachtal, Reinerzau); Co-Pb-Ag-Fe (Baden-Baden); Steinkohle (Berghaupten Diersberg)
Schwarzwald, Südwest	Quarz-Fluoritgänge mit Pb-Ag und Zn-Erzen (Untermünstertal, Wiesental); Quarz-Fluoritgänge mit Pb-Erzen im östlichen Südschwarzwald; Quarz-Schwerspatgänge mit Pb-Zn-Erzen im Schauinslandgebiet; Quarz-Schwerspatgänge mit Pb-Zn-Erzen im Münstertal; Quarz-Eisenspat-Schwerspatgänge mit Kupferkies und Zinkblende im Untermünstertal
Schwarzwald, Südost	Pb-Zn, Ni-Fe und <b>U-Fe</b> (Urberg, Horbach, Menzenschwand)
Siegerland	Blei Eisenerz Silber Zink Kobalt Nickel Schiefer (Bergbau um 1960 eingestellt)
Spessart	Oolith-Eisenerz (Raum Bieber); Cu-Ag-Fahlerz, Pyrit, Manganerz, Quarz, Schwerspat bei Huckelheim-Alzenau
Thüringer Wald	Alaunschiefer Gips Schiefer Flussspat Schwerspat Sandstein Kupfer, Brauneisenstein, Eisenerz (z.B. Suhl) Mangan Silber
Vogelsberg	Eisenerze (Tagebaue); Bauxit (bis Anfang 70er Jahre)
Voralpen	Pechkohle
Weserbergland	Eisenerz (letzte aktive dt. Eisenerzgrube: Grube Wohlverwahrt-Nammen)
Westerwald	Braunkohle; Eisenerz in der Dillmulde um Haiger, Dillenburg, Herboren; und der Lahnmulde um Wetzlar, Weilburg; Eisenspat im Wieder Bezirk; Pb-Zn-Cu am Nordrand der Dillmulde und im Gebiet des Ost-Taunus; Cu bei Linz; Pb-Zn Vorkommen im Emser Gangzug; Schwerspat, Ton
Wiehengebirge	Eisenerz bei Osnabrück

Über die Radioaktivität von Halden früherer Bergbaue und Erzaufbereitungen liegen folgende Untersuchungen vor:

- Übersichtsuntersuchungen an Bergbauhalden in Baden-Württemberg /SCH 83/, /FRI 96/
- Übersichtsuntersuchungen an Bergbauhalden in Niedersachsen /SCH 85/ und
- Prüfung der Radioaktivität an bergbaulichen Flächen und Altlasten in Sachsen und Thüringen /GRS 99/.

In diesen Arbeiten werden für frühere Standorte der Gewinnung „anderer Erze und Mineralien“ folgende Halden mit erhöhter Radioaktivität ausgewiesen:

- Uranhaltige Abraumhalden im ehemaligen Bergbaurevier (Co-Ag-Abbau) von Wittichen (Baden-Württemberg).
- Halden einer Schwerspatgrube im Heubachtal (Baden-Württemberg).

Alle Halden früherer Erzbergbau und Erzaufbereitungen in Niedersachsen waren radiologisch unauffällig.

Neben diesen durch die Mineralisation der abgebauten Erze verursachten Radioaktivität sind bergbaubedingte sekundäre Anreicherungen von Radionukliden zu beachten. Durch stark saure Grubenwässer können Uran und ggf. auch Thorium auch aus geringaktiven Gesteinen in erheblichem Maße chemisch gelöst werden. Besonders relevant sind allerdings radiumhaltige saline Tiefenwässer, deren Hebung zu signifikanten Kontaminationen von Sedimenten und Gewässern führen kann. Da es sich in diesen Fällen nicht um die „entsprechenden Mineralien“ handelt, werden diese Anreicherungen im Kapitel 4.2 separat behandelt.

### 3.6.2.5 Titandioxid-Produktion

Standorte der Titandioxid-Pigmentproduktion befinden sich nach /UBA 01/ derzeit in Duisburg-Homberg (Sachtleben Chemie GmbH), Leverkusen und Nordenham (KRONOS TITAN GmbH) sowie in Krefeld-Uerdingen (Kerr McGee GmbH). Die Tabelle 3-36 gibt einen Überblick über die Produktionsstandorte sowie die Produktionskapazitäten der jeweiligen Produzenten.

Tabelle 3-36: Titandioxid-Hersteller in Deutschland nach /UBA 01/

Hersteller	Standort	Produktionskapazität	Verfahren
KRONOS TITAN GmbH & Co.OHG	Leverkusen	30.000 t/a 100.000 t/a	Sulfatverfahren Chloridverfahren
KRONOS TITAN GmbH & Co.OHG	Nordenham	62.000 t/a	Sulfatverfahren
Kerr-McGee Pigments GmbH & Co.KG	Uerdingen	130.000 t/a	Sulfatverfahren
Sachtleben AG	Duisburg	100.000 t/a	Sulfatverfahren

Zur Herstellung von Titandioxidpigmenten, die in Deutschland nach /BMU 05b/ zu rund 60% im Farben- und Beschichtungsmarkt, zu ca. 24 % in der Plastik- und Gummiproduktion und zu ca. 12 % in der Papierindustrie eingesetzt werden, wird titandioxidhaltiges Erz (Ilmenit, Rutil) und Schlacken mit Hilfe des Sulfat- oder des Chloridverfahrens aufgeschlossen. Dabei fallen wegen der verfahrensbedingt unvollständigen Ausbeute Aufschlussrückstände sowie Abbrandrückstände in Form von Schlämmen, Sanden, Eisenoxiden und Koks /BSP 00/ sowie nach den Angaben der Sachtleben Chemie GmbH und der Kerr McGee GmbH Filtertücher an. Da derzeit nach Auskunft der Unternehmen nur Rohstoffe verwendet werden, die aktivitätsarm sind, ist nur über technische Anreicherungsprozesse das Entstehen radiologisch relevanter Rückstände möglich (s. Kapitel 3.6.3.4 und Kapitel 5.7).

### 3.6.2.6 Gewinnung von Steinkohle

Von den in Deutschland geförderten Steinkohlen wiesen die aus der Lagerstätte des Döhlener Beckens bei Freital eine deutlich erhöhte natürliche Radioaktivität auf (s. /LEH 92/). Eine weitere, früher abgebaute Lagerstätte mit uranreicher Steinkohle ist aus Oberfranken bekannt /VAH 05/. Nach Angaben von Reichelt /REI 06/ handelt es sich um die Lagerstätte von Stockheim, bei der vor allem das Nebengestein erhöhte Radioaktivität aufweist.

Bei allen anderen Lagerstätten liegen nach bisher veröffentlichten Messdaten die spezifischen Aktivitäten unter 200 Bq/kg (0,2 Bq/g) (s. /LEH 96/). Bei der Untersuchung von Bergbauhalden in Niedersachsen stellten Schmitz und Klein /SCH 85/ trotzdem fest, dass die Steinkohlenrückstände im Raum Stadthagen (Landkreis Schaumburg) durchweg etwas höhere Radiumgehalte aufweisen. „Die Kohlehalden konnten auch bei der BGR-Befliegung eindeutig als radioaktive Anomalie charakterisiert werden“ (Zitat aus /SCH 85/ S. 12). Nach Angaben aus /SCH 85/ sind als Ursache dieser Erhöhung Nebengesteine des Bergbaus (hier: Schiefer, Sandsteine) zu vermuten.

### 3.6.3 Mengen und Aktivitäten

#### 3.6.3.1 Gewinnung und Aufbereitung von Hartgesteinen

In dem Rohstoffbericht des Bundeswirtschaftsministeriums /BMW 04/ sind spezifische Angaben zum Granitabbau nicht enthalten. Angegeben sind Abbaumengen für „Gesteine zur Herstellung von Schotter und Splitt sowie von Werk und Dekosteinen“. Diese Angaben beziehen sich ausschließlich auf die neuen Bundesländer, da in diesen Ländern der Abbau dieser Gesteine (teilweise) unter Bergaufsicht steht. Für Sachsen werden (einschl. Haldenabtrag) 22.564.113 t Rohförderung und 22.088.900 t verwertbare Förderung im Jahr 2003 angegeben. Die analogen Zahlen für Sachsen-Anhalt sind 11.592.566 t Rohförderung und 11.424.033 t verwertbare Förderung. Der Freistaat Bayern gibt für 1999 eine Gesamtmenge an abgebauten Naturstein von 35 Mio. t an /BSW 02/.

Von diesen Abbaumengen entfällt nur ein geringer Teil auf Granit. Die größeren Anteile davon entfallen auf die Schotter und Splittproduktion. Die Gewinnung von Werksteinen ist von deutlich geringerem Umfang.

Detailliertere Angaben zu Abbaumengen von Granit als Werkstein können aus /BSW 02/ und /GLA 98/ abgeleitet werden. In Bayern sind demnach 110.000 t im Jahr 1999 abgebaut worden. Für Sachsen-Anhalt werden als Mengen an Werk- und Dekosteinen angegeben: 1998: 9.000 t; 1999: 6.000 t, 2000: 6.000 t; 2001: 13.000 t. In diesen Mengen ist der in Sachsen-Anhalt gewonnene Granit aus drei kleineren Abbauen im Brockengebiet enthalten.

Die Gewinnung und Aufbereitung von Hartgesteinen zur Produktion von Schotter und Splitt besteht i. Allg. aus den Schritten Lösen durch Bohr- und Sprengarbeiten, Aufbereitung des Rohmaterials durch Brechen, weiteres Brechen und Klassieren nach Korngrößen. Bei dieser Aufbereitung fallen Schlämme durch Nasssiebung an.

Die Gewinnung von Werksteinen erfolgt durch Spalten oder Sägen des anstehenden Gesteins gefolgt vom Zuschneiden der Rohblöcke (s. Abbildung 3-11) oder maschinelles Spalten des Gesteins z.B. zur Herstellung von Pflastersteinen.



Abbildung 3-11: Herstellung gattergerechter Granitblöcke im Steinbruch Eitzing, Bayerischer Wald (aus /BSW 02/)

Die Bearbeitung von Werksteinen durch Sägen und Schleifen stellt eine Weiterverarbeitung dar und wird daher an dieser Stelle nicht betrachtet.

Die o.g. Prozesse führen zu nicht verwertbaren Resten in Form von Gesteinsbruch und Gesteinsstaub aus der Gewinnung sowie Filterstaub und Schlamm aus dem Brechen oder Zuschneiden sowie dem Klassieren und Separieren. Über die Mengen an nicht verwertbarem Material sind aus den Differenzen zwischen Rohförderung und verwertbarer Förderung Anteile von ca. 1 - 2 % an nicht verwertbarem Restmaterial abzuschätzen.

Mallick gibt für insgesamt untersuchte 22 Steinbrüche und Granitwerke in Bayern Rückstandsmengen von Staub in Höhe von ca. 5 t/a, für Schlamm 3 (300.000?) - 450.000 t/a an /MAL 05/. Diese Zahlen sind in Bezug zum Gesamtabbau von Granit zur Herstellung von Schotter und Splitt zu sehen.

Eine Zusammenstellung von ausgewählten Messergebnissen von Graniten, Filterstaub und Granitschlamm zeigt die Abbildung 3-12.

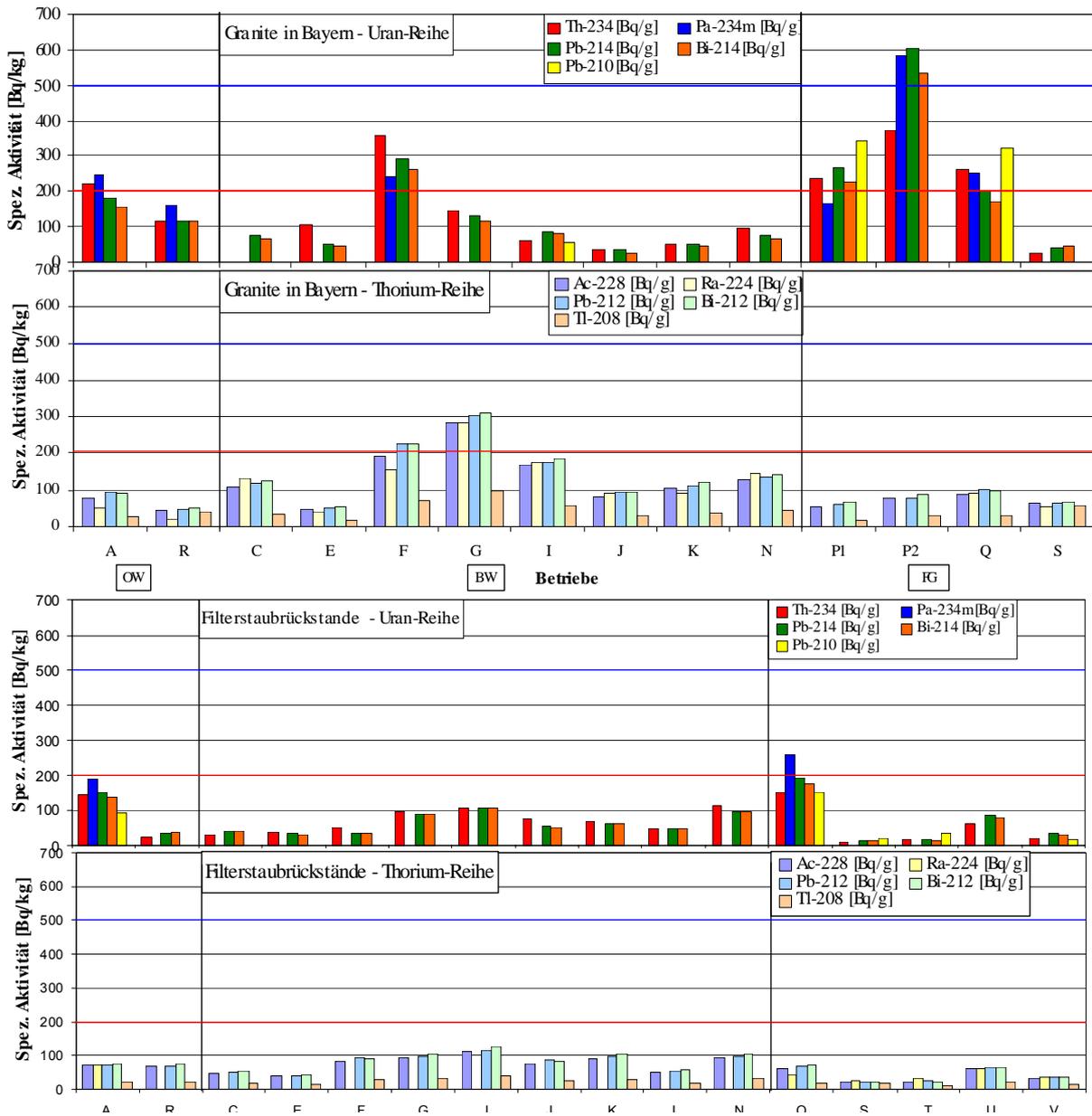


Abbildung 3-12: Messergebnisse an Bayerischen Graniten und Filterstäuben (OW - Oberpfälzer Wald; FG - Fichtelgebirge; BW - Bayerischer Wald) /MAL 05/

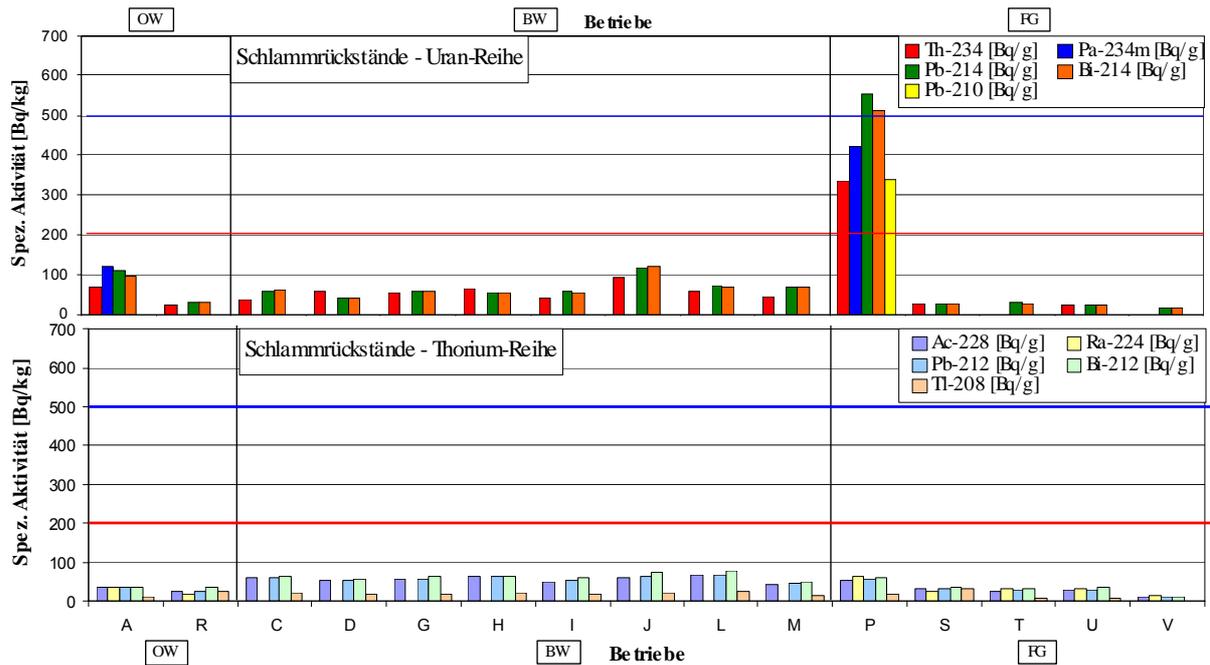


Abbildung 3-13: Messergebnisse an Schlämmen (OW - Oberpfälzer Wald; FG - Fichtelgebirge; BW - Bayerischer Wald) /MAL 05/

Während bei 13 untersuchten Graniten 5 Proben (A, F, P, Q bei der U-238 Reihe und F, G bei der Th-232 Reihe) spezifische Aktivitäten über 200 Bq/kg (0,2 Bq/g) aufweisen, liegt bei den Stäuben und Schlämmen nur die Probe „P“ über diesem Wert. Diese Ergebnisse weisen darauf hin, dass die Staub- und Schlammfraktion gegenüber dem ursprünglichen Gestein in den Radionuklidgehalten tendenziell angereichert sind. Sie unterscheiden sich damit deutlich von früheren Untersuchungen der IAF - Radioökologie /IAF 95/ die in Feinfraktionen von Graniten eine deutliche Nuklidanreicherung feststellten. Als Ausgangsmaterial wurde dabei Grobstaub, der bei der Herstellung von Pflastersteinen und Granitplatten aus Rotem Granit von Meißen anfällt, benutzt. Die in Abbildung 3-14 dargestellten Ergebnisse dieser Untersuchung zeigen, dass vor allem in den Fraktionen unter 10 µm Durchmesser die spezifische Aktivität deutlich ansteigt. Dieser Effekt, der für den Expositionspfad Staub von hoher Bedeutung ist, wirkt sich allerdings auf die Gesamtaktivität von Rückstandsproben im Tagebau kaum aus, da in diesen Proben massenmäßig die gröberen Fraktionen in der Regel dominieren.

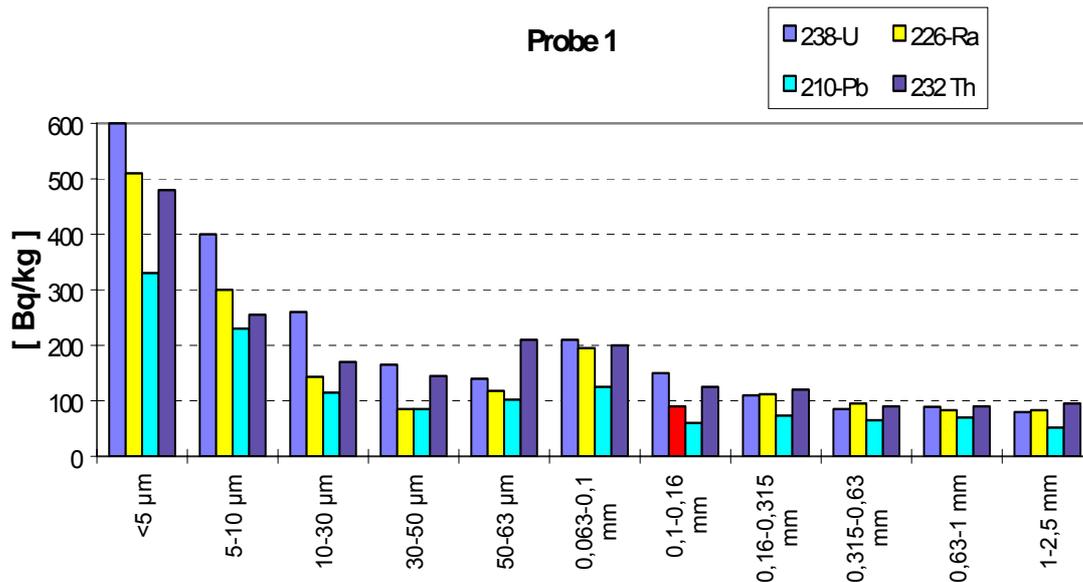


Abbildung 3-14: Spezifische Aktivität von Feinfraktionen aus Granitbruch /IAF 95/

Die Weiterverarbeitung von Hartgesteinen in Steinmetzbetrieben kann zum einen das Brechen und Fraktionieren zum Herstellen von Splitt und Schotter umfassen, zum anderen aber auch die Herstellung von Werksteinen (Granitplatten, Quader) zur Nutzung im Bauwesen. Diese Weiterverarbeitung erfolgt dezentral und ist nicht auf die Gebiete des Abbaus beschränkt. Die Weiterverarbeitung umfasst zu einem erheblichen Teil auch importierte Gesteine. Bei der Bearbeitung von Werksteinen kommt es durch Sägen und Schleifen des Gesteins zur Bildung sehr feinkörniger Fraktionen. Die radiologische Relevanz dieser Fraktion ist derzeit nicht hinreichend bekannt. Eine Überprüfung in Hinblick auf die Notwendigkeit, sie in einem Leitfaden für radiologische Altlasten zu berücksichtigen, wird empfohlen.

### 3.6.3.2 Gewinnung und Aufbereitung von Kaolin

Für Bayern, auf das der Anfall monazithaltiger Rückstände beschränkt zu sein scheint, wird von Mallick /MAL 05/ bei einer Jahresmenge von ca. 400.000 t abgebautem Kaolin (1999, nach Bayerischer Industrieverband Steine und Erden e.V.) eine Menge an Filterstaub und Schlamm der Aufbereitung von 1.000 - 3.000 t/a angegeben.

Messungen der spezifischen Aktivität (s. Abbildung 3-15) zeigen, dass vor allem im Filterstaub Werte über 0,2 Bq/g (200 Bq/kg) vorkommen, wobei die Thoriumreihe dominant ist.

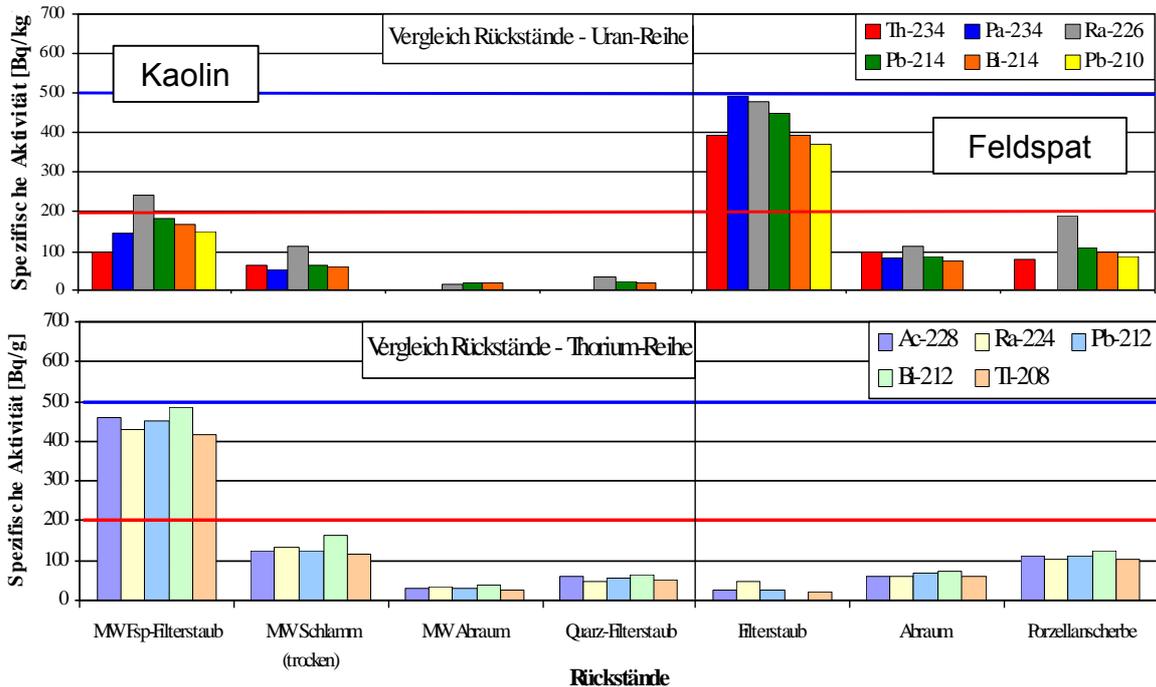


Abbildung 3-15: Spezifische Aktivität von Rückständen der Kaolin- und Feldspatgewinnung /MAL 05/

Über die Verwendung oder Beseitigung des Filterstaubes können derzeit keine Angaben gemacht werden. Nach einer Mitteilung des Bayerischen Geologischen Landesamtes /IAF 03a/ verbleibt der Monazitanteil im Quarzsand, der an die Bauindustrie verkauft wird. Weitere Rückstände in Form von Bergematerial und Tailings im Bereich der Gewinnungs- und Aufbereitungsstätten sind wahrscheinlich.

### 3.6.3.3 Gewinnung und Aufbereitung von Feldspat

Rückstände der Gewinnung und Aufbereitung von Feldspat mit erhöhter natürlicher Radioaktivität wurden bisher nur aus Bayern berichtet. Von Mallick /MAL 05/ wurde 1 Feldspatgrube in Bayern untersucht. Als Rückstandsmengen werden ca. 70 t/a Staub und ca. 20.000 t/a Abraum angegeben.

Eine erhöhte spezifische Aktivität wurde nur im Filterstaub gefunden. Die in Abbildung 3-15 dargestellten Messwerte belegen spezifische Aktivitäten für die Nuklide der U-238 Reihe von ca. 400 - 500 Bq/kg (0,4 - 0,5 Bq/g).

### 3.6.3.4 Gewinnung und Aufbereitung anderer Erze oder Mineralien

Als Halden der Gewinnung und Aufbereitung anderer als der in der Anlage XII Teil A StrlSchV direkt benannter Erze oder Mineralien mit akzessorischer Uranmineralisation wurden aus den Arbeiten /SCH 83/ die in Tabelle 3-37 zusammengestellten Objekte ermittelt.

Tabelle 3-37: Halden der Gewinnung und Aufbereitung „anderer Erze“ mit erhöhter natürlicher Radioaktivität in Baden-Württemberg /SCH 83/, /FRI 96/

Ort	Ablagerung/Halde	Abgebautes Erz	Masse der Halde *)
Müllenb. (bei Baden-Baden)	Halde Kirchheimer St.	U-Ni-Co-As	1.000 t (500 m <sup>3</sup> )
Lichtental (bei Baden-Baden)	Halde Sauersb. St.	U-Ni-Co-As	6.000 m <sup>3</sup>
Heubachtal	Antonstollen	Baryt, Co, Bi, Ni	5.000 m <sup>3</sup>
Lahr	Halde Michael	Pb-Zn-Cu-Fe-As-U	100 t
Wittichen	Halde Sophia	Baryt; Co-Ni-Ag-Bi-U	1.200 t (1.800 m <sup>3</sup> )
	Alte Schmiede		10.000 t (10.000 m <sup>3</sup> )
	Simson		1.000 t (1.100 m <sup>3</sup> )
	Güte Gottes		1.000 m <sup>3</sup>

\*) Masse nach /SCH 83/, Volumen nach /FRI 96/

Angaben zur spezifischen Aktivität des Haldenmaterials enthält die Arbeit /SCH 83/. Dort werden angegeben:

- Abraumhalden im Bergbaurevier Wittichen (Baden-Württemberg) 2,15 Bq/g (2150 Bq/kg) U-238, 1,48 Bq/g (1482 Bq/kg) Ra-226 und 2,04 Bq/g (2038 Bq/kg) Pb-210 sowie 0,12 Bq/g (117 Bq/kg) Th-232.
- Haldenmaterial einer Schwerspatgrube (Antonstollen) im Heubachtal (Baden-Württemberg) mit 0,37 Bq/g (368 Bq/kg) U-238, 0,25 Bq/g (252 Bq/kg) Ra-226 und 0,25 Bq/g (254 Bq/kg) Pb-210 sowie 0,079 Bq/g (76 Bq/kg) Th-232.

Es ist davon auszugehen, dass noch einige weitere Halden oder Ablagerungen der „Gewinnung und Aufbereitung anderer Erze oder Mineralien“ mit Uran- oder Thoriummineralisation über 0,2 Bq/g existieren. Auch dabei dürfte es sich vor allem um kleinere Objekte handeln.

### 3.6.3.5 Titandioxid-Produktion

Die Titandioxidproduktion in Deutschland wird in /BSP 00/ mit 380.000 t/a angegeben. Dafür werden als Ausgangsstoffe 370.000 t/a Schlacke und 445.000 t/a Erze eingesetzt. Bei dieser Produktion fallen nach /BSP 00/ insgesamt 70.000 t Schlämme, 45.000 t/a Sand, 250.000 t/a Eisenoxid und 40.000 t/a Koks an. Da das Eisenoxid als Produkt verwertet wird, sind Angaben des BMU /BMU 05a/, nach denen die Größenordnung der tatsächlich anfallenden Abfallmengen derzeit eher bei 150.000 t/a liegt, plausibel.

Für das Werk Duisburg-Homberg der Sachtleben Chemie GmbH, das mittels Sulfatverfahren Titandioxid herstellt, werden als Massenbilanzen angegeben /SAC 04b/

- 40.000 t/a Aufschlussrückstände, hauptsächlich nicht aufgeschlossenes Erz
- 100.000 t/a Titandioxid (Produkt)
- zusätzlich Dünnsäure.

Ausgangsstoff für die Titandioxidproduktion ist das Titan-Eisenerz Ilmenit ( $\text{FeTiO}_3$ ), das meist mit Magnetit (Eisenoxid) und anderen Begleitmineralien als Gangart vermischt ist. Statt Ilmenit wird manchmal auch das seltenere und weniger eisenhaltige Titanerz Rutil verwendet ( $\text{TiO}_2$ ). Beide Erze können erhöhte Uran- bzw. Thorium-Gehalte aufweisen /LEH 96/.

Derzeit ist nach Auskunft der Firmen durch Auswahl der Erze die spezifische Aktivität der Rohstoffe deutlich niedriger als 0,2 Bq/g (200 Bq/kg). Damit wird nach Eigenauskunft der Unternehmen das Entstehen von überwachungsbedürftigen Rückständen vermieden.

Nach Angaben der Sachtleben Chemie GmbH und der Kerr McGee GmbH ergeben sich für die Ausgangsstoffe und die Rückstände die in den folgenden Tabellen enthaltenen spezifischen Aktivitäten. Diese Daten zeigen, dass es bei der Titandioxidproduktion offensichtlich zu Radiumanreicherungen in Filtertüchern kommt. Diese Anreicherungen sind aber, wie das erhebliche radioaktive Nichtgleichgewicht belegt, nicht auf „entsprechende Minerale“ zurückzuführen. Damit handelt es sich zunächst nicht um Rückstände im Sinne der Anlage XII Teil A Nr. 3b StrlSchV.

Tabelle 3-38: Spezifische Aktivitäten der Ausgangsstoffe der Titandioxidproduktion (Daten: IAF)

Ausgangsstoff	Herkunft	Spezifische Aktivität [Bq/kg]							
		U-238	Th-230	Ra-226	Pb-210	Ra-228	Ra-224	Th-228	K-40
Orissa Ilmenit	Indien	< 5	< 30	32	10	133	136	136	< 8
Orissa-Ilmenit	Indien	16	33	32	15	148	n.b	150	4
Tinfos-Schlacke	Norwegen	15	< 30	15	< 10	49	n.b	48	13
Namakwa Schlacke	Südafrika	30	< 30	47	6	63	63	63	15
Sorel-Schlacke	Kanada	< 5	< 20	4	< 4	3	n.b	4	< 8

Tabelle 3-39: Spezifische Aktivitäten der Rückstände der Titandioxidproduktion (Daten IAF)

Rückstand	Spezifische Aktivität [Bq/kg]							
	U-238	Th-230	Ra-226	Pb-210	Ra-228	Ra-224	Th-228	K-40
Aufschlussrückstand	35	100	60	30	215	130		< 5
Abbrand	14	< 20	9	6	15	n.b	32	52
Filtertücher	< 170	1.500	8.900	1.200	36.000	n.b	2.600	< 100
Filtertücher	< 200	< 1.500	13.500	1.100	61.000	n.b	3.600	< 400
Filtertücher	< 30	< 200	1.900	2.700	8.700	n.b	700	< 100

### 3.6.3.6 Gewinnung von Steinkohle

Für die im Kapitel 3.6.2.6 beschriebene Anomalie im Raum Stadthagen wurden in /SCH 85/ auch Messergebnisse für die Steinkohle mitgeteilt. Diese Werte (s. Tabelle 3-40) sind sämtlich unauffällig, sagen aber für sich nichts über die Radioaktivität des Nebengesteins als Rückstand der Steinkohlengewinnung aus. Es ist

allerdings möglich, dass die im Ackerboden festgestellte erhöhte Ra-226 Aktivität auf Düngung mit Phosphatdünger und nicht auf eine natürliche Anomalie zurückzuführen ist.

Tabelle 3-40: Messwerte der natürlichen Radioaktivität des Steinkohlenbergbaus aus dem Raum Stadt-hagen /SCH 85/

	<b>Ra-226</b>	<b>Pb-210</b>
	<b>[Bq/kg]</b>	<b>[Bq/kg]</b>
Steinkohle Lüdersfeld	56	37
Ackerboden Lüdersfeld	136	15
Steinkohle Georgschacht	50	15
Steinkohle Gelldorf	38	56

### 3.7 Rückstände der Rauchgasreinigung der Primärverhüttung

#### 3.7.1 Generell mögliche Rückstände

Rückstände der Rauchgasreinigung der Primärverhüttung nach Anlage XII Teil A Nr. 4 StrlSchV sind Stäube und Schlämme aus der Rauchgasreinigung bei der Primärverhüttung in der Roheisen- und Nichteisenmetallurgie. Mit dieser Definition sollen solche Materialien in den Strahlenschutz einbezogen werden, die aufgrund von Hochtemperaturprozessen stark mit Pb-210 angereichert sind (s. Kapitel 5). Eindeutig sind dieser Definition Stäube und Schlämme aus der **Reinigung der Hochofengase** (Gichtgas) zuzuordnen, die sowohl bei der Primärverhüttung von Roheisen als auch bei der Primärverhüttung der Nichteisenmetalle anfallen. Nicht eindeutig zuzuordnen sind **Sinterstäube**, da die bei diesem Prozess entstehenden Gase nicht als „Rauchgase“ interpretiert werden müssen. In dieser Studie werden allerdings die Sinterstäube als spezielle Stäube der Primärverhüttung als Rückstände aufgefasst.

Bei der Verhüttung von NE-Metallen sind die genutzten Prozesse sehr unterschiedlich und es werden teilweise Erze und Recyclingmaterialien in einer Anlage verarbeitet. Es wird daher in dieser Arbeit davon ausgegangen, dass bei einer teilweisen Verarbeitung von Erzen Primärverhüttung stattfindet und die Schlämme und Filterstäube aus thermischen Prozessen Rückstände sein können.

Ein Anfallen größerer Mengen von den hier zu betrachtenden Stäuben und Schlämmen als **Bodenaushub** bzw. **Bauschutt** bei der Stilllegung von Gebäuden und Anlagen ist wenig wahrscheinlich. Das bedeutet allerdings nicht, dass keine anderen Materialien erhöhter natürlicher Radioaktivität an Standorten der Metallverhüttung auftreten können. Sowohl Ofenausbruch als auch Schlacken können im Einzelfall erhöhte natürliche Radioaktivität besitzen. Sie fallen aber nicht unter die Rückstandsdefinition und sind folglich gesondert zu betrachten.

### 3.7.2 Regionale Schwerpunkte

#### 3.7.2.1 Primärverhüttung von Roheisen

Derzeit wird in Deutschland in 7 Hüttenwerken Roheisen erzeugt, davon in 6 Hütten durch die Primärverhüttung von Erzen, bei der als Rückstände Schlämme und Stäube anfallen. Die Hüttenwerke der Primärverhüttung befinden sich in Eisenhüttenstadt (Brandenburg), Bremen, Salzgitter (Niedersachsen), Duisburg, Essen (Nordrhein-Westfalen, 3 Standorte) und Dillingen (Saarland). Die Maxhütte in Bergen (Chiemgau, Bayern) wurde im Jahr 2001 stillgelegt.

Die Deckung des deutschen Eisenerzbedarfes erfolgte ausschließlich durch Importe aus Brasilien, Australien, Kanada und Schweden.

Weitere Standorte der industriellen Roheisenverhüttung im 19. und 20. Jahrhundert waren u.a. Oberhausen (bis 1979), Rheinhausen, Dortmund (Hoesch Hüttenwerk Phönix West), Duisburg (Hüttenwerk Meiderich bis 1984), Völklingen/Saar, Hattingen in Westfalen (Henrichshütte, 1854 – 1987) und Lübeck (Metallhütte Lübeck, Roheisenproduktion ab 1907, später verstärkt NE-Metallverhüttung).

Da erst nach Einführung von Filtern zur Gichtgasreinigung Rückstände der Rauchgasreinigung in größeren Mengen angefallen sind, ist erst ab ca. 1900 bis 1910 (Erste Röhrenelektrofilter zur Gichtgasreinigung der Fa. Lurgi: 1913) mit signifikanten Mengen an Stäuben, Schlämmen zu rechnen. Die historischen Eisenhütten, die es in den Gebieten mit Eisenerzgewinnung gab (z.B. Oberpfalz, Bayrischer Wald, Westerwald: Bendorf Hochöfen 1865 stillgelegt), waren nicht mit solcher Technik ausgerüstet.

#### 3.7.2.2 Primärverhüttung von Nichteisenmetallen

Nach Angaben in /WVM 03/ werden in Deutschland folgende Metalle durch Primärverhüttung von Erzen produziert: Aluminium (Hüttenaluminium), Kupfer (Raffiniertes Kupfer aus primären Vorstoffen), Blei (Raffiniertes Blei aus primären Vorstoffen), Primärzink. Die Produktion von Nickel ist seit Anfang der 1990er Jahre eingestellt /WVM 05/. Trotz des zunehmenden Einsatzes von Magnesiumlegierungen in der Technik wird in Deutschland kein Primärmagnesium hergestellt /WVM 05/. Ebenfalls gibt es keine Primärproduktion von Edelmetallen (aber eine Produktion als Beiprodukt der NE-Hütten). Ein Großteil der deutschen NE-Metalle wird durch Sekundärverhüttung /-aufarbeitung von Recyclingmaterial erzeugt. Standorte der Primärverhüttung von Aluminium im Jahr 1996 sind in der Tabelle 3-41 zusammengestellt. Aluminiumhütten, die zwischen 1970 und 1996 stillgelegt wurden, enthält Tabelle 3-42.

Tabelle 3-41: Standorte der Primärverhüttung von Aluminium sind (Stand 1996 /SCH 99/)

	<b>Kapazität</b>
VAW Aluminium AG, Rheinwerk Neuss	210.000 t
Hamburger Aluminium-Werk GmbH Hamburg	120.000 t
Aluminium Essen GmbH Essen (*)	95.000 t
Hoogovens Aluminium GmbH Voerde	78.000 t
VAW Aluminium AG, Elbwerk Stade	70.000 t

(\*) jetzt Trimet Aluminium AG

Tabelle 3-42: Folgende Aluminiumhütten wurden zwischen 1970 und 1996 stillgelegt /SCH 99/:

Werk	Grund der Stilllegung	Kapazität	Jahr der Stilllegung
VAW Aluminium AG Erftwerk Grevenbroich	zu geringe Kapazität, zu hohe Stromkosten	32.000 t	1978
Alcan Aluminiumwerke GmbH Ludwigshafen	Strompreissteigerungen	44.000 t	1987
VAW Aluminium AG Lippewerk Lünen	veraltete Anlage, Energie zu teuer, Kapazität zu gering <sup>11</sup>	47.000 t	1989
Aluminium Hütte Rheinfelden GmbH Rheinfelden (Alusuisse)	sinkende Aluminiumpreise, steigende Produktionskosten	64.000 t	1991
VAW Aluminium AG Innwerk Töging	zu geringe Größe	90.000 t	1996

Folgende Sekundärhütten (Aluminiumschmelzhütten) waren 1997 im Betrieb /SCH 99/:

- Aluminium Rheinfelden GmbH Rheinfelden,
- Aluminiumschmelzwerk Oetinger GmbH Weißenhorn,
- BAS Brinker Aluminium-Schmelzwerk GmbH Hannover,
- Gottschol Aluminium GmbH Ennepetal,
- Karl Konzelmann GmbH Neu-Ulm,
- Metallhüttenwerke Bruch GmbH Dortmund,
- Metallwerke Bender GmbH Krefeld,
- Metallwarenfabrik Stockach GmbH Stockach,
- VAW-IMCO Guss und Recycling GmbH Grevenbroich,
- Wuppermetall GmbH Wuppertal, Aluminium Essen GmbH Essen

Einzigster Standort mit einer Primärverhüttung von Kupfer ist Hamburg (Norddeutsche Affinerie). Kupferrecycling wird an den Standorten Lünen (Hüttenwerk Kayser, Tochterfirma der Norddt. Affinerie), Hettstedt (MKM Mansfelder Kupfer und Messing) und Ennepetal (Siegfried Jacob Metallwerke GmbH & Co. KG) betrieben. Weitere Standorte aus den 1990er Jahren zeigt Abbildung 3-16.



Abbildung 3-16: Standorte von Blei-, Zink und Kupferhütten in Deutschland Mitte der 1990er Jahre /REN 99/

Bleihütten, die auch Erze verarbeiten, befinden sich in Stollberg (Rheinland) (Primärhütte Binsfeldhammer der Fa. Berzelius mit QSL-Verfahren); in Nordenham (früher Preussag, derzeit Metaleurop Weser-Blei GmbH mit Siros melt-Verfahren) und die MIM Hüttenwerke in Duisburg (Imperial Smelting Prozess, ISP). Standorte mit Sekundärverhüttung sind Braubach am Rhein, Buchholz - Krautscheid am Westerwald (seit 1904, jetzt als Varta Recycling GmbH), Hamburg (Norddt. Affinerie), Goslar-Oker (Fa. Harzmetall), Nürnberg (Nürnberger Hüttenwerke), Rommerskirchen bei Köln (Metallhütten- und Recyclinggesellschaft SCHUMACHER mbH & Co.), Freiberg / Sachsen (Fa. Berzelius). Ein stillgelegte Bleihütte, die beträchtliche Mengen an radiologisch relevanten Rückständen (Theisenschlamm) hinterließ, befand sich am Standort Hettstedt (Sachsen-Anhalt).

Metallisches Zink aus Konzentraten wird in Norddeutschland (Nordenham) und im Ruhrgebiet (Duisburg und Datteln) gewonnen. In Dinslaken, Duisburg, Freiberg und Datteln<sup>6</sup> werden Zinkschrotte und zinkhaltige Reststoffe verwertet. Zinkbleche für Fassaden und Dachrinnen werden in Datteln produziert. Verzinkereien sind

<sup>6</sup> nach eigener Internet Recherche auch in Nürnberg (Nürnberger Hüttenwerke)

nahezu gleichmäßig über ganz Deutschland verteilt. Chemische Zinkprodukte werden im Harz und in Duisburg hergestellt (s. Abbildung 3-17 /IZ 05a/).

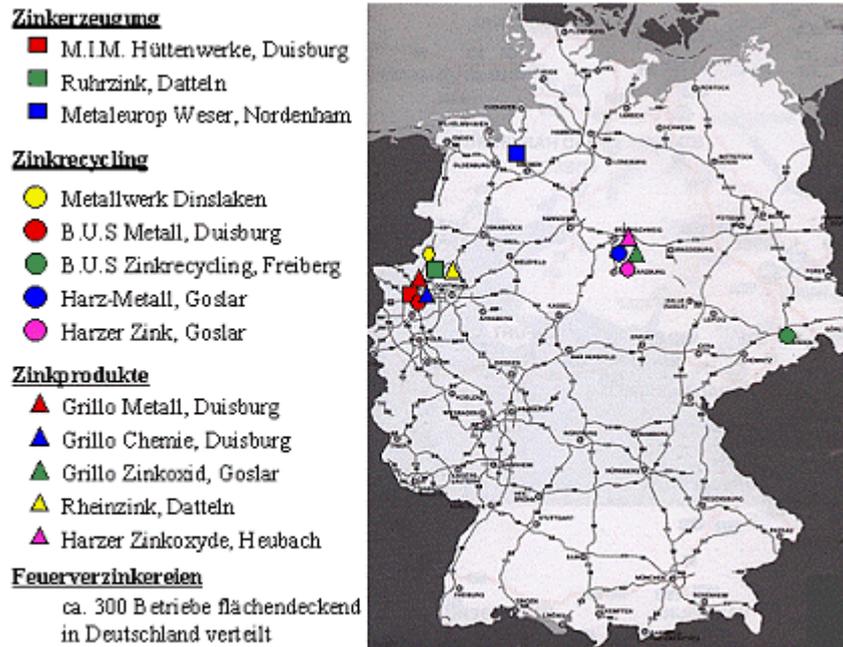


Abbildung 3-17: Standorte von Unternehmen der Zinkindustrie in Deutschland. Quelle: Initiative Zink /IZ 05a/

Weitere, oben nicht genannte und inzwischen stillgelegte Standorte von Hüttenwerken für NE-Metalle gab es u.a. in Stollberg (Rheinland), Lübeck (Schleswig-Holstein). In Stollberg wurde die Zinkverhüttung von 1819 bis 1966 in der Zinkhütte Velau, der Zinkhütte Friedrich Wilhelm, Birkengang, der St. Heinrichshütte, Münsterbusch und der Zinkhütte Steinfurth betrieben /ZHH 05/. Auf dem Gelände der Metallhütte Lübeck befanden sich neben der Roheisenhütte auch eine Zinkhütte, eine Kupferhütte und eine Tonerde-Schmelzzementfabrik /UBA 97/. Die Metallhütte musste 1981 Konkurs anmelden.

Von Mitte der 1950er Jahre bis 1990 arbeitete in St. Egidien bei Hohenstein-Ernstthal (Sachsen) eine Nickelhütte. Weitere Standorte von ehemaligen Nickelhütten sind Schwerte (NRW) und Aue (Sachsen).

### 3.7.3 Mengen und Aktivitäten

#### 3.7.3.1 Primärverhüttung von Roheisen

Die Produktion an Roheisen betrug in den vergangenen 10 Jahren nach Angaben des Statistischen Bundesamtes ca. 29 Mio. t/a (s. Tabelle 3-43). Bei einem Eigengehalt von ca. 50 % im Erz(konzentrat) bedeutet dies eine verarbeitete Gesamtmasse (incl. Koks und Zuschlagstoffen) von deutlich über 60 Mio. t.

Tabelle 3-43: Produktion von Roheisen und Rohstahl in Deutschland /SBA --/

	1995	1996	2002	2003	2004
Roheisen	29,80 Mill. t	27,72 Mill. t	29,42 Mill. t	29,49 Mill. t	30,04 Mill. t
Rohstahl	41,85 Mill. t	39,80 Mill. t	45,00 Mill. t	44,84 Mill. t	46,41 Mill. t

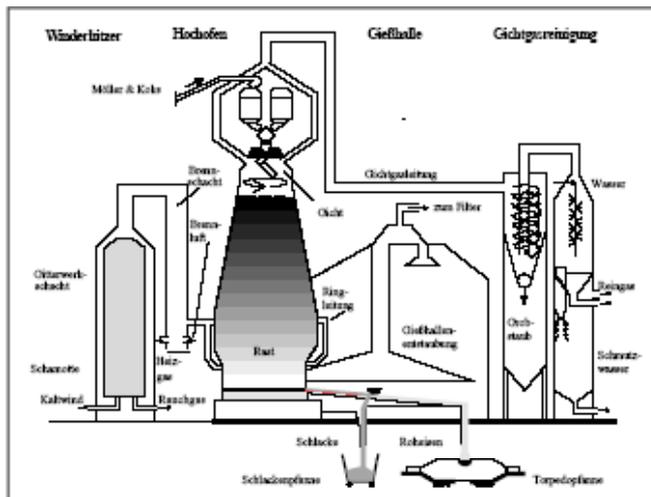
Technologische Prozesse, die zu „Rauchgasen“ und damit Rückständen führen, sind das Sintern und die Verhüttung im Hochofen. Die Massenbilanz einer Sinteranlage zeigt Abbildung 3-18. Danach ist mit ca. 1 kg Gichtstaub/-schlamm je Tonne Fertigsinter zu rechnen. Legt man für die Roheisenproduktion von 30 Mio. t pro Jahr eine Sintermenge von 40 Mio. t zugrunde, so erhält man eine Jahresmenge von ca. 40.000 t Sinterstaub/-schlamm. Diese Menge wird größtenteils in die Produktion zurückgeführt. Sie ist daher kein Rückstand im Sinne der StrlSchV. Die Mengen an entsorgten Sinterstäuben können auf etwa 4.000 bis 5.000 t pro Jahr veranschlagt werden.

Inputs [kg/t Sinter]		Outputs [kg/t Sinter]	
Eisenträger (Feinerze, Rückgut)	853	Fertigsinter	1.000
Zuschläge	154	Rückgut	94
Koksgrus	44	Staub	1
Reststoffe: Gichtstaub	19		
Gichtschlamm	2		
Konverterstaub	22		
Walzzunder	57		
sonst. Kreislaufstoffe	23		

Abbildung 3-18: Massenbilanz einer Sinteranlage (nach /REN 99/)

Die Prozessabläufe einer Hochofenanlage und die spezifischen Mengen des Stoffoutputs einer solchen Anlage enthält Abbildung 3-19.

Nach Auskünften der deutschen Hüttenwerke fielen in den vergangenen Jahren jährlich zwischen 5.000 bis 30.000 t Schlämme aus der Nassreinigung von Hochofengichtgasen an /HGN 03b/. Dies entspricht einem Schlammaufkommen von 2 bis 8 kg Schlamm je Tonne Roheisen und einer Gesamtmenge von ca. 150.000 t pro Jahr. Von Rentz u.a. /REN 99/ wird für 1995 eine Gesamtmenge von 308.000 t Gichtgasstaub pro Jahr bzw. eine spezifische Menge von 10,3 kg/t Roheisen angegeben. Da in einem Hüttenwerk die Schlämme der Gasreinigung mit anderen Stoffen zusammengeführt und zu einem Produkt verarbeitet werden, das als Ausgangsstoff für eine Sekundärverhüttung dient (Kuppelprodukt), kommt es hier zu einer Mengenvergrößerung von ca. 10.000 t/a Primärschlamm auf über 100.000 t/a aufbereiteten Schlamm. Unter Beachtung dieses Effektes sind die Zahlen von Rentz u.a. und die von /HGN 03b/ in guter Übereinstimmung.



Outputs	[Menge/t Roheisen]
Roheisen	1.000 kg
Gichtgas	1.400-1.700 Nm <sup>3</sup>
Gichtgasstaub	7-20 kg
Gichtgasschlamm	3-10 kg
Gießhallenstaub (konventionelle Entstaubung)	ca. 0,5-1 kg
Gießrinnenausbruch	ca. 5 kg
Hochofenschlacke	250-300 kg

Abbildung 3-19: Prozessabläufe einer Hochofenanlage zur Roheisengewinnung und Ausbringungsmengen /REN 99/

In der Primärverhüttung werden aktivitätsarme Rohstoffe (Erze, Kohle, Zuschlagstoffe) eingesetzt, die nur in Ausnahmefällen eine natürliche Aktivität von 0,2 Bq/g erreichen. Durch die große Masse der eingesetzten Rohstoffe wird allerdings immer eine große Gesamtaktivität im Verhüttungsprozess umgesetzt. Die erhöhte natürliche Radioaktivität der Filterstäube/-schlämme ist das Ergebnis eines Umverteilungsprozesses, bei dem wesentliche Anteile des Pb-210 und Po-210 aus den Rohstoffen in den verhältnismäßig kleinen Massenstrom der Filterstäube/-schlämme übergehen und es dadurch zu einer erheblichen Anreicherung kommt (s. Kapitel 5).

Ein Histogramm der spezifischen Aktivität von Hochofenschlamm (HO-S), Sinterstäuben und Koppelprodukten aus deutschen Roheisenhütten zeigt Abbildung 3-20. Die Auswertung beruht auf einem Datensatz von mehr als 200 Messungen aus verschiedenen Hüttenwerken und Materialien.

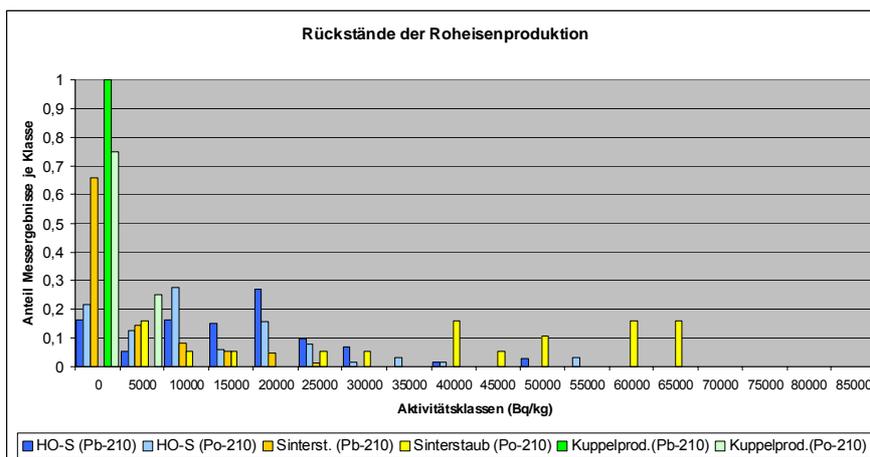


Abbildung 3-20: Histogramm der spezifischen Aktivität. Aktivitätsklassen benannt nach jeweiliger unterer Klassengrenze (Datenbasis: HGN/IAF)

Das Diagramm zeigt, dass Hochofenschlamm überwiegend durch spezifische Pb-210 und Po-210 Aktivitäten zwischen 10.000 und 30.000 Bq/kg (10 - 30 Bq/g) gekennzeichnet sind, wobei auch Werte über 50.000 Bq/kg (50 Bq/g) vorkommen. Bei Sinterstäuben dominieren im Datensatz die (niedrigen) Werte einer

Anlage. Ansonsten sind auch hier Werte zwischen 5.000 bis 20.000 Bq/kg (5 - 20 Bq/g) typisch, wobei prozessbedingt teilweise ein erheblicher Unterschied zwischen Pb-210 und Po-210 festzustellen ist.

Von HGN / IAF untersuchte Koppelprodukte, die in weitere industrielle Verwertungsschritte (sekundärmetallurgisch und als mineralischer Zuschlagstoff) eingebracht werden, sind durch spezifische Aktivitäten unter 5.000 Bq/kg (5 Bq/g) charakterisiert.

Für andere Stäube, die bei der Roheisenverhüttung anfallen, wurde vom VDEh in einer Studie geprüft, welche spezifischen Aktivitäten in Abfallstoffen der aktiven Eisenhütten vorkommen. Die Ergebnisse (vgl. Tabelle 3-44) zeigen, dass die meisten Materialien spezifische Aktivitäten deutlich unter 0,2 Bq/g aufweisen. Als Stoffe mit erhöhten spezifischen Aktivitäten über 0,2 Bq/g wurden nur Hochofen-Schlämme, d.h. Schlämme der Abgasreinigung von Hochofen und Sinterbandstäube ermittelt.

Tabelle 3-44: Messergebnisse an Materialien der Roheisenverhüttung und Angaben zur Entsorgung der Abfälle (Quelle: VDEh, s. /HGN 03b/)

	<b>Anzahl Proben</b>	<b>Th-232 [Bq/g]</b> Min /Mittel / Max	<b>Pb-210 [Bq/g]</b> Min / Mittel /Max	<b>Entsorgung des Abfalls</b>
Sinterbandentstaubung	14	0,003 / 0,006 / 0,012	<0,1 / 1,8 / 7,0	Anlageninterne Staubrückführung (mit 1 Ausnahme)
Gießhallenentstaubung	4	0,002 / 0,005 / 0,007	<0,1 / <0,1 / <0,1	Fe-Rückgewinnung in Sinteranlage
Hochofen-Gasentstaubung	24	0,005 / 0,012 / 0,015	<0,1 / <0,1 / <0,1	Fe-Rückgewinnung in Sinteranlage; Deponie
Nassentstaubung Hochofen	20	0,002 / 0,020 / 0,035	<0,2 / 2,8 / 8,5	Deponie
E-Ofenentstaubung	4	0,001 / 0,005 / 0,007	<0,1 / <0,1 / <0,1	Verschieden

Ein weiterer wichtiger Abfallstrom der Primärverhüttung sind Schlacken. Je Tonne produzierten Roheisens fallen 250 - 300 kg Schlacke an /REN 99/. Durch den Übergang der meisten natürlichen Radionuklide in die Schlacke fällt die spezifische Aktivität der Schlacken höher aus als die der Rohstoffe. Trotzdem sind diese Schlacken in der Regel aktivitätsarm. In Hinblick auf Hinterlassenschaften früherer Produktion ist allerdings nicht völlig klar, welche Aktivitäten früher auftraten. Da Schlacken der Roheisenverhüttung keine Rückstände im Sinne der StrlSchV darstellen, werden sie im Kapitel 4 behandelt.

Durch die Entsorgung von Hochofenschlammern auf Deponien oder in standortnahe Absetzbecken sind Ablagerungen im Umfeld früherer Hüttenwerke entstanden (s. Kapitel 7.2.5). Relevant sind demnach vor allem Standorte, die nach der Einführung der Rauchgasreinigung, also im 20. Jahrhundert betrieben wurden. Ein aktuelles Beispiel, bei dem Arbeiten mit Hochofenschlammern stattfinden, ist die Sanierung der Schlackehalde der Maxhütte in Sulzbach-Rosenberg. Hier sollen u.a. 35.000 Tonnen Gichtgasstaub umgelagert und auf eine Deponie verbracht werden /GEB 06/.

**3.7.3.2 Primärverhüttung von Nichteisenmetallen**

Angaben zu den Jahresproduktionen der hier betrachteten NE-Metalle enthält die Tabelle 3-45.

Tabelle 3-45: Jahresproduktion von NE-Metallen durch Primärverhüttung in Deutschland /WVM 03/

	1993	2002	2003
Aluminium			
Hüttenaluminium	552.000 t	653.000 t	661.000 t
Raffiniertes Kupfer aus primären Vorstoffen	265.000 t	327.000 t	287.000 t
Raffiniertes Blei aus primären Vorstoffen	170.000 t	141.000 t	132.000 t
Primärzink	331.000 t	273.000 t	255.000 t

Die Produktion von Kupfer und Zink erfolgt teilweise hydrometallurgisch durch direkte elektrolytische Raffination von aufgeschlossenen Erzkonzentraten /IZ 05b/. Bei diesen Verfahren stellt nur das Rösten der sulfidischen Erzkonzentrate einen thermischen Prozess dar, der allerdings nicht zwingend als „Verhüttung“ aufzufassen ist.

Schematische Darstellungen der wichtigsten Prozessabläufe der Primärproduktion<sup>7</sup> der hier betrachteten NE-Metalle, die eine thermische Verhüttung einschließen, zeigen Abbildung 3-21 ff. Diese Darstellungen lassen erkennen, dass bei einigen Verfahren (QSL, Sirosmelt) durch Rückführung von Flugstaub in die Einsatzstoffe kaum Stäube der „Rauchgasreinigung“ zu entsorgen sind.

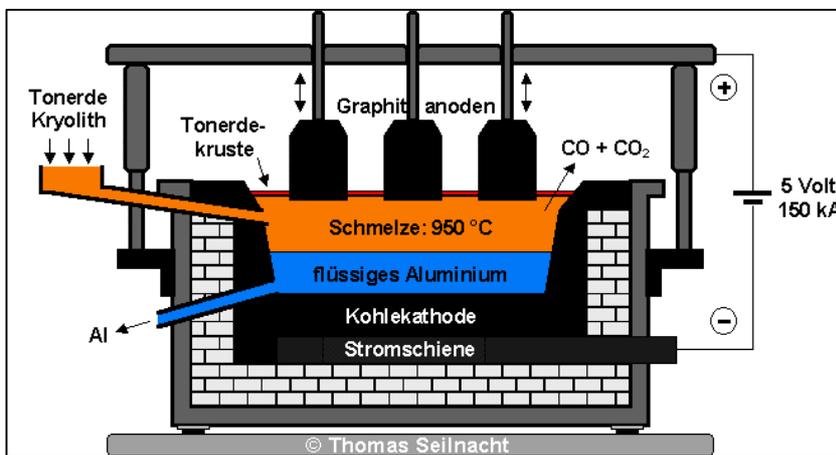


Abbildung 3-21: Schmelzflusselektrolyse von Aluminium (T. Seilnacht /SEI 05/)

<sup>7</sup> Teilweise in Kombination mit Sekundärrohstoffen

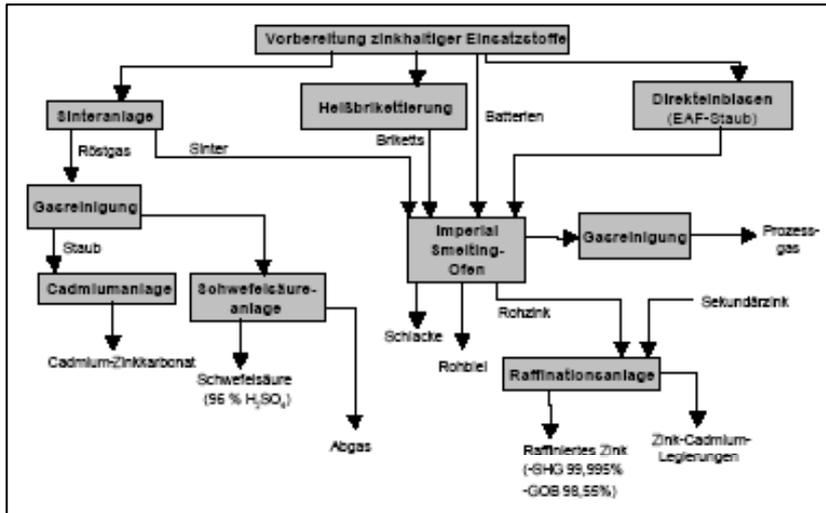


Abbildung 3-22: Flussbild Pb-Zn Verhüttung nach Imperial Smelting Verfahren /REN 01/

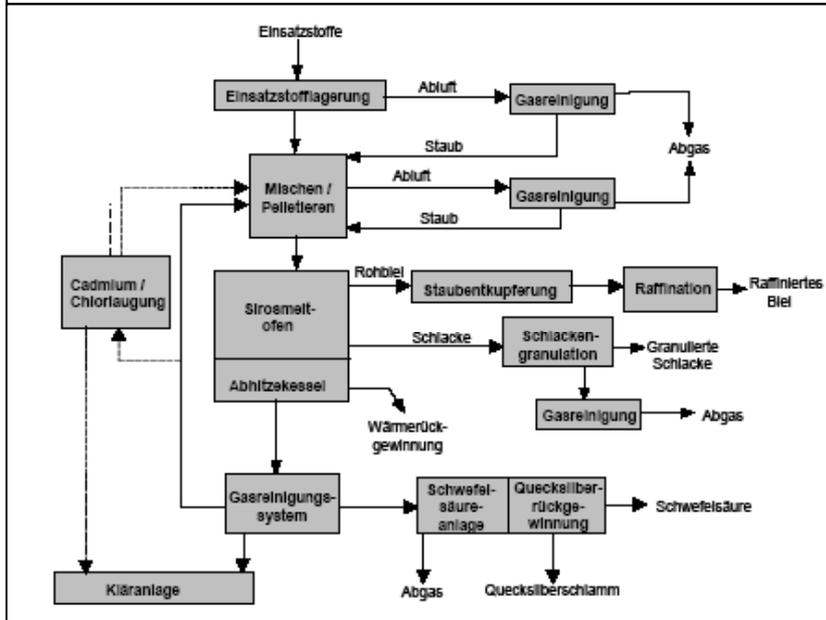


Abbildung 3-23: Flussbild Pb Verhüttung in einer Sirosmelz-Anlage /REN 99/

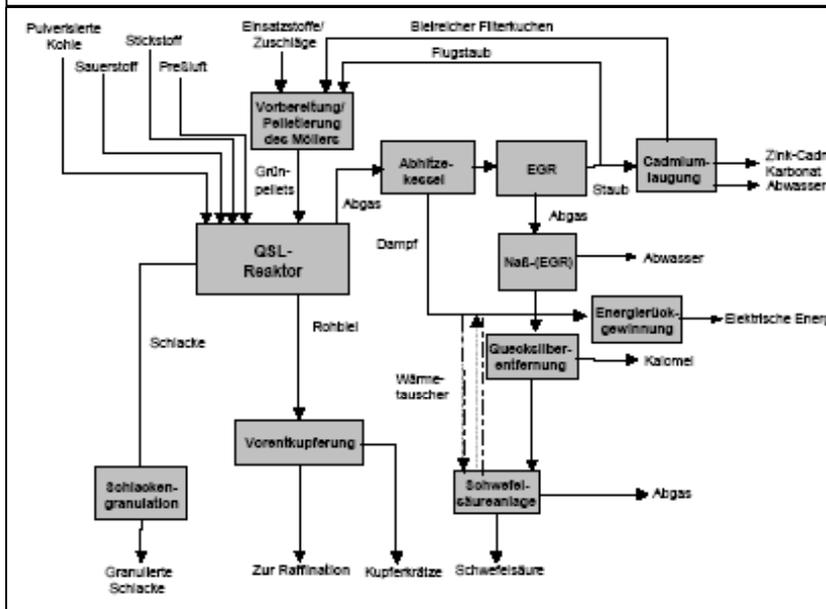


Abbildung 3-24 Flussbild Pb-Zn Verhüttung in einer QSL-Anlage /REN 99/

Für die Aluminiumgewinnung sind in /STR 94/ Angaben zu den spezifischen Abfallmengen bei der Primärverhüttung von Aluminium zusammengestellt (s. Tabelle 3-46). Bei einer spezifischen Mengen an Filterrückständen der Rauchgasreinigung von 50 kg/t Al ist mit 25.000 – 33.000 t Jahresmenge für Deutschland zu rechnen.

Tabelle 3-46: Spezifischen Abfallmengen bei der Primärverhüttung von Aluminium /STR 94/

Reststoff	Anfall / Vermeidung	Menge	Entsorgung bzw. Verwertung (Stand der Technik)
Rotschlamm	Bayer-Prozeß	1 - 2 t/t Al	Entwässerung und Deponie
	Menge abhängig von Zusammensetzung des Gesteins		
Ofenausbruch	Elektrolyseofen	ca. 30 kg/t Al	Laugung und Deponie
	(keine Alternativverfahren zur Herstellung von Al)		
Filterrückstände	nasse Rauchgasreinigung, Elektrolyse	ca. 50 kg/t Al	Konditionierung/ Deponie
	Alternative: trockene Rauchgasreinigung		
Krätze	Schmelzereinigung Gießerei	ca. 20 kg/t Al	Aufmahlen; Al-reiche Fraktion in Sekundär-Produktion; Al-arme Fraktion in Schlackenbehandlung
	(Vermeidung im Herstellungsprozeß nicht möglich)		

Filterstaubmengen von Mitte der 1990er Jahre untersuchten Einzelanlagen der Pb-Zn Verhüttung in Deutschland sind in Tabelle 3-47 zusammengestellt. Diese Tabelle zeigt, dass durch die Rückführung der Stäube in den Verhüttungsprozess oder andere integrale Prozessschritte die Mengen an zu entsorgenden Rückständen gering sind.

Tabelle 3-47: Filterstaubmengen von untersuchten Einzelanlagen der Pb-Zn Verhüttung in Deutschland /REN 99/

Anlage	Jahresmenge	Entsorgung
Sirosmelt-Anlage	34.000 t/a	Internes Recycling zum Reaktor
QSL-Anlage	keine Mengenangabe	Recycling zum Schmelzreaktor, Entfernung von Cadmium und Chlor.
Imperial-Smelting*	15 t/a Kalomel 25 t/a nasser EGR-Schlamm	Entsorgung

\* ... Gasreinigung Sinteranlage

Bezüglich der spezifischen Aktivität von Filterstäuben oder Schlämmen der NE-Primärverhüttung liegen in der Literatur kaum Angaben vor. Da die relevanten Nuklidanreicherungen thermisch verursacht sind (s. Kapitel 5), können orientierende Rückschlüsse aus den Prozesstemperaturen abgeleitet werden. Die genutzten Prozesse laufen bei unterschiedlichen Temperaturen ab, so dass die Bedingungen für die Anreicherung von Pb-210 und Po-210 im Abgas sich deutlich unterscheiden. Prozessschritte mit höheren Temperaturen sind:

- Aluminium: Schmelzflusselektrolyse von  $\text{Al}_2\text{O}_3$  unter Zusatz von Kryolith als Flussmittel bei 950 °C.
- Kupfer: Rösten der Erzkonzentrate (>900 °C), Schmelzen (> 1000 °C).
- Blei: Hochtemperaturesinterung (> 900 °C); Reduktion der Erze im Verblasofen.
- Zink: Rösten der Erzkonzentrate bei über 900°C, Schmelzen im Hochofen (Imperial Smelting Prozess: 1.000 °C im Bereich der Materialaufgabe bis zu ca. 2000°C in der heißesten Zone /IZ 05b/).

Aufgrund der Siedetemperaturen der Elemente ist davon auszugehen, dass die Filterstäube von Erzschnmelzen, die bei Temperaturen unter 1000°C ablaufen eher mit Po-210, die mit höheren Temperaturen als 1000 °C auch mit Pb-210 angereichert sind.

Durch die Entsorgung von Filterstäuben/-schlämmen auf Deponien früherer Hüttenwerke können bisher nicht erfasste Altablagerungen entstanden sein. Bekannt sind die Ablagerungen von Theisenschlämmen im Mansfelder Raum. Aus früheren Untersuchungen von IAF liegen Angaben zu den Radionuklidgehalten der Theisenschlämme vor, die in Tabelle 3-48 aufgeführt sind. Abbildung 3-25 zeigt die Häufigkeitsverteilung der spezifischen Aktivität des Leitnuklids Pb-210 für diese Proben. Es ist ersichtlich, dass die typische spezifische Aktivität für Pb-210 des nicht durch Bodenbestandteile „verdünnten“ Theisenschlamm im Bereich von 5 – 10 Bq/g liegt.

Nach Angaben von /NOE 96/ wurden insgesamt 250.000 m<sup>3</sup> Theisenschlamm deponiert. Zusätzlich gibt es noch zahlreiche Flächen, auf denen Theisenschlämme vermisch mit anderen Ablagerungen vorkommen.

Tabelle 3-48: Spezifische Aktivitäten von Theisenschlamm aus dem Mansfelder Land (Messungen IAF)

Material	spezifische Aktivität [Bq/kg]				
	U-238	Ra-226	Pb-210	Th-232 <sup>a)</sup>	K-40
Theisenschlamm, Pr. 1	80	85	810	25	250
Theisenschlamm, Pr. 2	70	80	1300	17	220
Theisenschlamm, Pr. 3	40	70	1200	12	160
Theisenschlamm, Pr. 4	25	30	5300	14	180
Theisenschlamm, Pr. 5	15	30	9900	8	95
Theisenschlamm, Pr. 6	20	34	8300	8	97
Theisenschlamm, Pr. 7	18	35	7600	7	75
Theisenschlamm, Pr. 8	10	23	4400	7	70

Theisenschlamm, Pr. 9	10	22	8700	6	85
Theisenschlamm, Pr. 10	15	30	7200	8	120
Theisenschlamm, Pr. 11	10	18	5800	3	22
Theisenschlamm, Pr. 12	10	13	9400	3	40
Theisenschlamm, Pr. 13	20	58	9200	7	83
Theisenschlamm, Pr. 14	10	12	7600	3	20
Theisenschlamm, Pr. 15	55	71	1200	14	170
Theisenschlamm, Pr. 16	10	23	7200	6	65
Theisenschlamm, Pr. 17	330	400	13300	15	230
Theisenschlamm, Pr. 18	260	310	10600	10	280
Theisenschlamm, Pr. 19	200	280	9400	8	260
Theisenschlamm, Pr. 20	280	350	11400	8	290

\*) Gemessen als Ac-228 (Ra-228) und Pb-212, Bi-212, Tl-208 (Th-228)

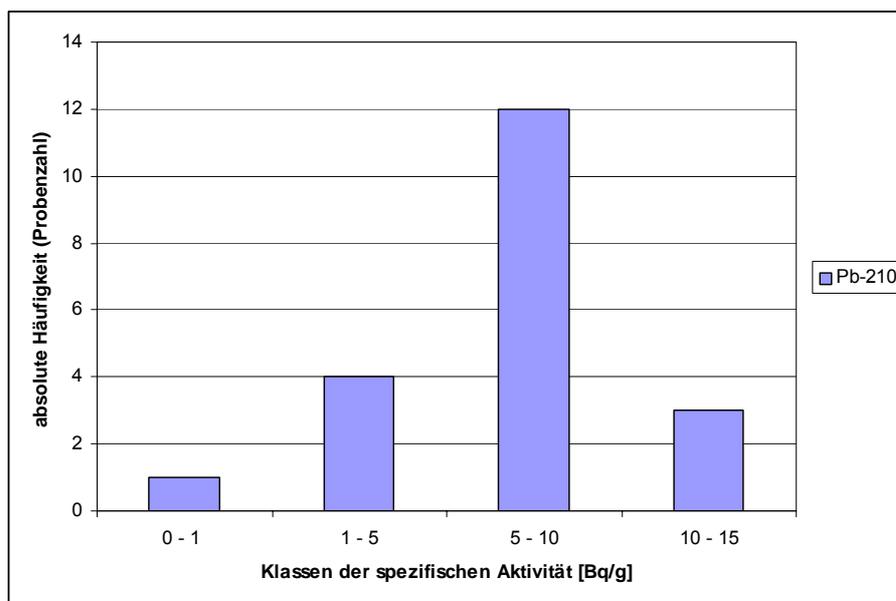


Abbildung 3-25: Häufigkeitsverteilung der spezifischen Aktivität von Pb-210 in Theisenschlamm

### 3.7.3.3 Sonderfall DK Recycling

Bereits in /KRÜ 99/ und /BSP 00/ wird der Sonderfall DK Recycling kurz beschrieben. Das Unternehmen DK Recycling ist eine Roheisenhütte, die Sekundärrohstoffe verarbeitet (s. Abbildung 3-26) und neben Eisen auch Blei gewinnt. Zu den eingesetzten Sekundärrohstoffen gehört auch Gichtgasstaub der Primärverhüttung. Neben dem erzeugten Roheisen und Blei werden Gichtgasschlämme zur Zinkgewinnung abgegeben.

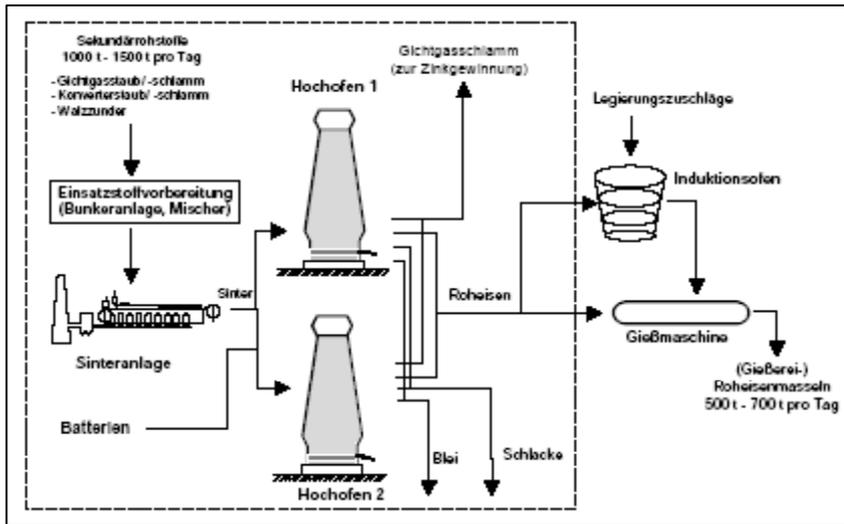


Abbildung 3-26: Fließbild der Prozessabläufe im Unternehmen DK Recycling /REN 01/

Aufgrund der Prozessabläufe sind thermische Pb-210 Anreicherungen in Gichtgasschlamm und Sinterstaub zu erwarten. Von Krüger /KRÜ 99/ wird die Pb-210 Aktivität dieser Materialien mit 50 Bq/g angegeben. Als Betrieb der Sekundärverhüttung fällt DK Recycling allerdings nicht unter die Regelungen der StrlSchV.

## 3.8 Rückstände bei der Sanierung von Hinterlassenschaften

### 3.8.1 Generell mögliche Rückstände

Nach Anlage XII Teil A Buchstabe c StrlSchV sind ausgehobener oder abgetragener Boden und Bauschutt aus dem Abbruch von Gebäuden oder sonstigen baulichen Anlagen Rückstände, wenn sie die in der Anlage XII Teil A Nr. 1 - 4 aufgeführten Materialien enthalten und gemäß § 101 nach der Beendigung von Arbeiten oder gemäß § 118 Abs. 5 von Grundstücken entfernt werden.

Definitionsgemäß umfasst diese Gruppe von Rückständen Boden- oder Gebäudekontaminationen mit Rückständen aus früheren Tätigkeiten oder Arbeiten, die unter strahlenschutzrechtlicher Überwachung saniert werden bzw. wurden. Neben den in dieser Studie nicht zu betrachtenden Hinterlassenschaften des Uranbergbaus gab es in Deutschland in den vergangenen Jahren und Jahrzehnten immer wieder derartige Kontaminationen. Neben den Rückständen nach Kapitel 3.2 - 3.7 gehören hierzu auch Materialien früherer

strahlenschutzrechtlich genehmigter Tätigkeiten, vor allem der Verwendung von natürlich radioaktiven Stoffen (Herstellung von Glühstrümpfen, Th-Katalysatoren, u.a.).

In den vorhergehenden Kapiteln wurde die Möglichkeit von Hinterlassenschaften aus den in der Anlage XII Teil A Nr. 1 - 4 beschriebenen Prozessen bereits allgemein mit beschrieben. Im Folgenden werden ergänzende Angaben zu Sanierungsmaßnahmen zusammengestellt. Damit ist jedoch in Bezug auf mögliche radiologisch relevante Hinterlassenschaften keineswegs Vollständigkeit erreicht. Vielmehr fehlen in dieser Aufstellung mögliche Bodenkontaminationen, Altablagerungen (Altdeponien) und Gebäude / Anlagen, die nicht den Materialien und Prozessen der Anlage XII Teil A zuzuordnen sind. Auf diese Fälle wird im Kapitel 4 eingegangen.

### 3.8.2 Regionale Schwerpunkte

In der Tabelle 3-49 sind bekannte Fälle nach 1990 sanierter Boden- und Gebäudekontaminationen, die nicht zu bergbaulichen Hinterlassenschaften gehörten zusammengestellt. Sie sind zum größten Teil der Chemieindustrie zuzuordnen.

Tabelle 3-49: Sanierungen von radioaktiv kontaminierten Böden oder Gebäuden seit 1990

Ort / Land	Kontamination	Industrieller Verursacher	Referenznuclid	Lit.
Oranienburg / BB (*)	Boden	Chemieindustrie (Verarbeitung von Seltenen Erden Erzen; Herstellung von Th- und U-Verbindungen); Produktion von Glühstrümpfen	Th-232	/HGN 03a/
Schwarzheide /BB (*)	Boden	Chemieindustrie (Nutzung von Katalysatoren)	Th-232	/FEL 94/, /HAH 00/
Braunschweig (*)	Boden	Chemieindustrie (Aufbereitung von Uranerz; Herstellung von Leuchtfarben)	Th-230	
Bad Liebenstein / TH	Gebäude	Konsumgüterproduktion (Herstellung von Glühstrümpfen)	Th-232	
Schweina / TH	Gebäude, Boden	Konsumgüterproduktion (Herstellung von Glühstrümpfen)	Th-232	/LEH 99/
Frankfurt / Main /HE	Bauliche Anlagen	(Nutzung von Leuchtfarben)	Ra-226	/KIE 02/
Berlin (mehrere Standorte) / BE	Boden	Verwendung von Th-Verbindungen	Th-232	/HGN 03a/
Villingen-Schwenningen / BW	Boden	Gerätebau (Uhrenindustrie, Nutzung von Leuchtfarben)	Ra-226	/EIS 00/
Dachau (*)	Boden	Metallverarbeitung	Th-232	

(\*) Projektkenntnisse HGN

Es kann davon ausgegangen werden, dass die bedeutendsten Altlastenfälle in Hinblick auf Aktivität und Masse an Materialien inzwischen bekannt sind und teilweise auch schon saniert wurden. Als der mit Abstand größte radiologische Altlastenfall Deutschlands außerhalb des Uranerzbergbaus ist mit hoher Wahrscheinlichkeit der Standort der ehemaligen Auer Werke in Oranienburg einzustufen.

Direkte regionale Schwerpunkte sind aus diesen Angaben nicht abzuleiten. Generell sind aber Standorte vor allem an früheren Standorten spezieller chemischer Industrien und des Gerätebaus (mit Verwendung von Leuchtfarben) möglich. Auf andere Arten von Hinterlassenschaften mit erhöhter natürlicher Radioaktivität wird im Kapitel 4 eingegangen.

### 3.8.3 Mengen und Aktivitäten

Konkrete Angaben zum Mengenaufkommen an Rückständen aus der Sanierung von radioaktiven Hinterlassenschaften für Deutschland als Ganzes liegen nicht vor. Eine Zusammenstellung von Daten zu den in Tabelle 3-49 aufgeführten Fällen enthält die Tabelle 3-50. Das Mengenaufkommen ist einzelfallbezogen, daher zeitlich diskontinuierlich und räumlich auf bestimmte Objekte konzentriert. Sowohl bei Mengen als auch bei Aktivitäten gibt es erhebliche Unterschiede zwischen den Einzelfällen.

Tabelle 3-50: Mengenaufkommen und Aktivitäten bei der Sanierung von radioaktiven Hinterlassenschaften

Ort / Land	Menge	Aktivität	Referenznuclid	Lit.
Oranienburg /BB <sup>+</sup> )	15 – 18 ha; ca. 200.000 – 250.000 m <sup>3</sup>	> 200 GBq <sup>*)</sup>	Th-232	/HAB 05/
Schwarzheide („Apparatelager“) /BB	5.048 t	22,6 GBq	Th-232	/HAH 00/
Schwarzheide („Kohlagerplatz“) /BB	50.144 t	16,1 GBq	Th-232	(HGN*)
Braunschweig /NI	ca. 5.000 t	ca. 10 GBq	Th-230 (Ra-226, Pb-210)	(HGN/IAF)
Bad Liebenstein /TH	2-3 Fässer	k.A.	Th-232	/EBE 03/
Schweina /TH	120 Fässer.	k.A. (**)	Th-232	/EBE 03/
Frankfurt / Main /HE	ca. 1 t	k.A.	Ra-226	/KIE 03/
Berlin (mehrere Standorte) / BE	> 100 t		Th-232	/HGN 03a/
Villingen-Schwenningen /BW	1000 t <sup>*)</sup>	1 GBq <sup>*)</sup>	Ra-226	/EIS 00/ /LAU 90/
Dachau /BY	5 t	Ca. 5 MBq	Th-232	(HGN)

+ ) Angaben beziehen sich auf 2005 vorhandene Inventare in radioaktiv kontaminierten Flächen, nicht auf bereits sanierte Flächen;

<sup>\*)</sup> eigene Ermittlung bzw. Abschätzung,

(\*\*) spezif. Aktivität im kontaminierten Boden bis maximal 8.000 Bq/kg Th-232 /LEH 99/

## 4 Andere Materialien

### 4.1 Vorbemerkung, Materialgruppen

Die praktische Umsetzung der StrlSchV seit 2001 zeigt, dass die Positivliste der Anlage XII Teil A eine Reihe von Materialien erhöhter natürlicher Radioaktivität nicht berücksichtigt und es bei enger Auslegung zu fachlich schwierig nachzuvollziehenden Einstufungen von Materialien kommt (z.B.: Ablagerungen in Steigrohren der Erdöl-/Erdgaserkundung sind keine Rückstände, die gleichen Materialien der Gewinnung sind Rückstände; Filterstäube der Sekundärverhüttung mit höheren spezifischen Aktivitäten als die der Primärverhüttung sind keine Rückstände). Solche Fälle können bei der aktuellen Rechtslage nur durch Behördenentscheidungen auf der Basis des § 102 StrlSchV in den Strahlenschutz einbezogen werden.

Für die in dieser Studie schwerpunktmäßig zu bearbeitenden Fragen der radioaktiven Hinterlassenschaften ist die genaue Klassifikation in Rückstände und andere Materialien allerdings von nachrangiger Bedeutung, da sich die Beurteilung vorgefundener Situationen stärker an der radiologischen Situation als an der rechtlichen Einordnung der sie (früher) verursachenden Prozesse orientieren muss. Aus diesem Grund werden in diesem Kapitel solche Materialien und (industriellen) Prozesse zusammengestellt, für die ein Auftreten erhöhter natürlicher Radioaktivität bekannt ist. Es wird abgeschätzt, inwieweit nach vorliegenden Untersuchungsergebnissen oder nach Einschätzung der Bearbeiter dieser Studie diese Materialien als radioaktive Hinterlassenschaften für eine Altlastenregelung beachtet werden müssen.

Zur Gliederung werden Materialgruppen soweit möglich in Anlehnung an die Einteilung der Rückstände in Anlage XII Teil A gebildet. Damit ergeben sich folgende Materialgruppen:

**MG1:** Schlämme und Ablagerungen mit Radionukliden, die aus Wässern gefällt oder absorbiert wurden. (Materialien mit radiologisch ähnlichen Eigenschaften wie Rückstände der Erdöl-/Erdgasgewinnung.)

**MG2:** Stäube, Schlacken und Aschen von Verbrennungsprozessen. (Kein Bezug zu Rückständen der Anlage XII Teil A StrlSchV.)

**MG3a:** Schlämme, Sande, Schlacken und Stäube aus der Weiterverarbeitung anderer als in Anlage XII Teil A Nr. 3a benannter Erze. (Materialien in Analogie zu Rückständen der Weiterverarbeitung von Konzentraten und Rückstände der in der StrlSchV benannten Erze und Mineralien.)

**MG3b:** Schlämme, Sande, Schlacken, Stäube aus der Gewinnung und Aufbereitung anderer Rohstoffe, deren erhöhte Radioaktivität nicht auf „entsprechende Minerale“ zurückzuführen ist.

**MG4:** Stäube und Schlämme der Rauchgasreinigung bei Hochtemperaturprozessen außer der Primärverhüttung. (Materialien mit radiologisch ähnlichen Eigenschaften wie Rückstände der Primärverhüttung.)

**MG5:** Mineralische Produkte (incl. Formstücke) mit erhöhter natürlicher Radioaktivität.

**MG6:** Materialien mit zugesetztem, chemisch abgetrenntem Uran oder Thorium.

**MG7:** Materialien früherer Tätigkeiten und Arbeiten.

## 4.2 Schlämme und Ablagerungen mit Radionukliden aus Wässern

### 4.2.1 Entstehung und Art von Materialien

Durch Ausfällung oder Sorption von im Wasser gelösten oder suspendiert transportierten Radionukliden können sich Ablagerungen oder Schlämme mit deutlich erhöhter natürlicher Radioaktivität bilden. Eine detailliertere Beschreibung dieser Prozesse enthält Kapitel 5.2. Die Literaturlauswertung und eigene Erfahrungen belegen signifikante spezifische Aktivitäten für folgende Materialien:

- Scalehaltige Anlagenteile der hydrothermalen Geothermie /KÖH 01/, /KÖH 03/.
- Scalehaltige Anlagenteile der Exploration von Erdöl- und Erdgas.
- Schlämme, Ablagerungen der Grubenentwässerung im Steinkohlenbergbau /Fei 97/, /SCH 01/, /VAH 02/, /DSK 96/, DSK xx/.
- Gewässersedimente in Gebieten mit radioaktiven Ableitungen (insbesondere Bergbauableitungen) /KLÖ xx/, /BAR 98/, /WEI 98/.
- Filtermaterialien, Schlämme und scalehaltige Anlagenteile der Wasserwirtschaft (Trinkwasser, Mineralwasser) /BSP 00/, /HOF 00/, /MAL 05/. Hier ist neben der spontanen Ablagerung von Kesselstein (Scale) und Schlämmen auch die gezielte Abreicherung von Radium und teilweise auch Uran vor allem bei der Produktion von Mineralwasser zu beachten /KUN 02/, /CHR 03/, /TEN 00/.
- Schlämme und Ablagerungen bei der Heilwassernutzung /WIS 02/.
- Anlagenteile aus der Papier- und Zellstoffindustrie mit Inkrustationen /HGN 03a/.
- Anlagenteile der Rohphosphatverarbeitung /BED 04/. Je nach Technologie der Rohphosphatverarbeitung und von Reinigungsprozessen (z.B. bei der Phosphorsäureherstellung) lagern sich verschiedene organische und anorganische Rückstände in Anlagenteilen ab. Einige wesentliche Prozesse werden in /BED 04/ am Beispiel einer gegenwärtig im Rückbau befindlichen britischen Anlage zur Produktion von Phosphorsäure beschrieben. Rückstände (Scales) mit erhöhter natürlicher Radioaktivität wurden insbesondere in der Purifikationsanlage gefunden. Während die Anreicherung von Uran in Prozessströmen mit hohen Fluorid- und Phosphatanteilen erfolgte, wird Radium im wesentlichen in Calciumsulfat-Scales gefunden.

### 4.2.2 Regionale Schwerpunkte

Aufgrund der vielfältigen und sehr unterschiedlichen industriellen Herkunftsbereiche und Materialien ist eine klare Ausweisung regionaler Schwerpunktgebiete für den derzeitigen und früheren Anfall der hier zu betrachtenden Materialien schwierig. Für die einzelnen Herkunftsbereiche können allerdings einige regionale Schwerpunkte aus der Literatur und sonstigen Recherchen abgeleitet werden.

Eine Übersicht über die 2004 genutzten und in Bau befindliche Anlagen der **hydrothermalen Geothermie**, die die Wärme des Tiefenwassers nutzen, enthält Tabelle 4-1. Die regionalen Schwerpunkte für den weiteren Ausbau dieser Energie liegen im Norddeutschen Becken, dem Oberrheingraben und im Süddeutschen Molassebecken /BMU 04/.

Tabelle 4-1: Übersicht: Geothermische Heizwerke, Wärmeversorgungen mit hydrothermaler Geothermie und tiefe Erdwärmesonden in Deutschland /BMU 04/

	Installierte Leistung MW <sub>geo</sub>	Nutzung	Temperatur in °C	Besonderheiten
Baden-Baden BW	0,44	H,S	70	
Bad Urach BW	1	H,S	58	
Bad Waldsee BW	0,44	H,S	30	
Biberach BW	1,17	S	49	
Buchau BW	1,13	H,S	48	
Konstanz BW	0,62	H,S	29	
Birnbach BY	1,4	H,S	70	
Erding BY	9	H	65	2 350 m, keine Dublette
Füssing BY	0,41	H,S	56	
Simbach-Braunau BY	5,4		80,5	Teufe 1 900 m, Dublette, 1 Bohrung abgelenkt
Staffelstein BY	1,7	H,S	54	
Straubing BY	6	H	36	Dublette, 825 m
Unterschleißheim BY	12	H	81	1 700 m, Dublette
Weiden BY	0,2	H,S	26	WP im Parallelbetrieb
Prenzlau BB	0,5	H		2800 m Tiefe Erdwärmesonde
Wiesbaden HE	1,76	H,S	69	
Neubrandenburg MV	10	H	54	2 Dubletten, Umbau zur Wärmeeinspeicherung aus GuD-Kraftwerk
Neustadt-Glewe MV	10,7	H, E	95	Dublette, 2 400 m Stromerzeugung seit Nov. 2003
Waren (Müritz) MV	5,2	H	65	Dublette, 1 500 m
Aachen NRW	0,82	H,S	68	
<b>Im Bau befinden sich:</b>				
Neuruppin BB		H,S	60	1 700 m, Dublette
Weinheim BW	2,3	H	65	ca. 1 000 m, Dublette
Unterhaching BY	16	H, E	bis 120 °C	
München-Riem BY	6-8	H	90	Dublette, 3 300 m
Arnsberg NRW	250 - 350 KW	H		Tiefe Erdwärmesonde ca. 2 900 m
Aachen NRW		H		Tiefe Erdwärmesonde, ca. 2 500 m
Speyer RP	5.4 (elektrisch)	H, E	bis 158 °C	ca. 2 900 m

H – Heizung, S – Sole/Badewasser, E Kraftwerk, BB – Brandenburg, BW – Baden-Württemberg, BY – Bayern, HE – Hessen, MV – Mecklenburg-Vorpommern, NRW – Nordrhein-Westfalen, RP – Rheinland-Pfalz

Scalebildungen können in diesen Anlagen auftreten, wenn hochsalinare Tiefenwässer über eine Bohrung gefördert, übertage genutzt und anschließend wieder infiltriert werden („Dublette“). Das ist vor allem in Norddeutschland z.B. in Waren und Neustadt-Glewe der Fall. Für diese Anlagen ist die Existenz von Scalekontaminationen bekannt /KÖH 01/. Bei tiefen Dubletten in heißen Süßwasser-Aquiferen (z.B. Süddeutsches Molassebecken) ist derzeit nicht bekannt, ob es zur Bildung von Radiumscales kommt.

Erdwärmesonden sind geschlossene Systeme, in denen eine Wärmeträgerlösung umläuft. In diesen Sonden bilden sich daher keine Scales.

Scalehaltige Anlagenteile der **Exploration von Erdöl- und Erdgas** können vor allem in den Gebieten mit bekannten Erdöl- bzw. Erdgaslagerstätten anfallen (Schwerpunkt: Niedersachsen, Schleswig-Holstein). In geringerem Maße können auch in den anderen Bundesländern mit Erdöl- bzw. Erdgaslagerstätten (s. Kapitel 3.2.2) derartige Materialien vorkommen.

Schlämme, Ablagerungen der **Grubenentwässerung** mit erhöhter natürlicher Radioaktivität sind vor allem aus dem Steinkohlenbergbau in NRW bekannt /DSK 96/, /DSK xx/.

**Gewässersedimente und Auenböden** mit Radionuklidanreicherungen in NRW wurden beschrieben für Erft, Emscher, Wupper, Lippe /KLÖ xx/, /VAH 02/ sowie Fossa-Eugeniana und Rheinberger Altrhein /HGN 06/. In Elbe, Mulde und Saale kommen ebenfalls Sedimente mit erhöhter natürlicher Radioaktivität vor /BAR 98/, /WEI 98/. Auch in anderen Gebieten mit bergbaulichen Ableitungen oder erhöhter geogener Hintergrundaktivität sind (lokal) Sedimente und Auenböden mit erhöhter natürlicher Aktivität zu erwarten (z.B. Gebiet Hettstedt /WIC 01/).

Filtermaterialien und Schlämme der **Wasseraufbereitung** aber auch Anlagenteile und Rohre können vor allem dann erhöhte spezifische Aktivitäten besitzen, wenn bereits im Grundwasser / Rohwasser erhöhte Radiumkonzentrationen vorliegen. Daher ist die regionale Verbreitung derartiger Materialien auf Gebiete konzentriert, in denen aus geologischen und/oder hydrogeochemischen Gründen höhere Radiumkonzentrationen im Grundwasser vorkommen. Das betrifft in erster Linie die Bundesländer Sachsen, Bayern, Baden-Württemberg, Hessen, Rheinland-Pfalz. Aber auch in anderen Regionen kommen vereinzelt erhöhte, teilweise auch sehr hohe Radiumkonzentrationen im Grundwasser vor /GEL 02/. In allen diesen Gebieten ist mit Schlämmen und/oder Ablagerungen zu rechnen, die erheblich erhöhte Radiumaktivitäten besitzen.

**Heilbäder** mit bekanntermaßen radiumhaltigen Wässern sind Bad Brambach (Sachsen; 1-4 Bq/l Ra-226 /GEL 83/), Bad Kreuznach (Rheinland-Pfalz; 9-35 Bq/l Ra-226 /WIS 01/), Bad Suderode (Sachsen-Anhalt, 7,7 Bq/l Ra-228 /GEL 02/). Ablagerungen oder Schlämme mit Radionuklidanreicherungen sind aber auch bei anderen Radonbädern zu erwarten. Solche Radonbäder befinden sich in Bayern (Bad Steben, Sibyllenbad-Neualbenreuth, Weißenstadt), Baden-Württemberg (St. Blasien-Menzenschwand, eröffnet 2005), Sachsen (Schlema, Bad Brambach, Altenberg), Sachsen-Anhalt (Bad Schmiedeberg) und Rheinland-Pfalz (Bad Münster am Stein, Bad-Kreuznach).

Anlagenteile aus der Papier- und Zellstoffindustrie mit Inkrustationen wurden bisher vor allem aus Bayern berichtet.

### 4.2.3 Mengen und Aktivitäten

Die bisher berichteten Fälle von kontaminierten Anlagenteilen der **Geothermie** bezogen sich stets auf kleinere Mengen (z.B. eine kontaminierte Pumpe /KÖH 03/). Die spezifische Aktivität der Ablagerungen in der Anlage Neustadt-Glewe wird in /KÖH 01/ mit bis zu 30 Bq/g Ra-226, 100 Bq/g Pb-210 und 10 Bq/g Ra-228 angegeben.

Abtlagerungen und Hinterlassenschaften der Geothermie sind nicht zu erwarten, da diese Energie erst seit wenigen Jahren genutzt wird. Ältester deutscher Standort ist Waren an der Müritz, wo seit 1984 eine Anlage besteht /BMU 04/. Es ist allerdings davon auszugehen, dass bei einem weiteren Ausbau dieser Energienutzung die Zahl der kontaminierten Anlagen und die Menge an zu entsorgenden Materialien zunehmen wird.

Angaben zu Radionuklidgehalten in **Gewässersedimenten** sind in Tabelle 4-2 zusammengestellt. Angegeben sind (bis auf die Daten der Weißen Elster) die jeweiligen Maximalwerte der Nuklidaktivität, die für das Gewässer in den genannten Quellen angegeben sind. Danach sind die durch Ableitungen des Steinkohlebergbaus verursachten Kontaminationen in Erft, Emscher, Lippe und Fossa-Eugeniana radiumdominiert, die durch Ableitungen des Uranbergbaus verursachten Kontaminationen in Elbe, Mulde, Saale, Weiße Elster urandominiert und die von Wupper, Wipper Pb-210 dominiert (Wipper: wahrscheinlich Theisenschlämme als Ursache).

Tabelle 4-2: Deutsche Flüsse mit lokal vorkommenden Anreicherungen natürlicher Radionuklide in Sedimenten > 0,2 Bq/g. Angabe der Maximalwerte

Gewässer	Pb-210, max. [Bq/g]	Ra-226, max. [Bq/g]	Ra-228, max. [Bq/g]	U-238,max. [Bq/g]	Quelle
Erft	0,122	0,232	0,225	0,064	/KLÖ xx/
Emscher	0,133	0,841	0,512	0,008	/KLÖ xx/
Wupper	0,461	0,035	0,038	0,029	/KLÖ xx/
Lippe	0,110	2,087	1,004	0,008	/KLÖ xx/
Fossa-Eugeniana / Rheinberger Altrhein <sup>*)</sup>	0,81	17,6	3,3	0,13	/HGN 06/
Elbe, Mulde, Saale	1,628	ca. 1,0 2,18 3,498	0,234	11,5	/BAR 98/
Weiße Elster <sup>+) Bad Elster</sup>	0,161	0,161	k.A.	0,115	/NIE 98/
Plauen	0,126	0,105		0,075	
Mündung Gölsch	0,114	0,095		0,18	
Gera	0,084	0,494		1,05	
Bad Köstritz	0,316	0,574		2,05	
Leipzig	0,170	0,258		0,506	
Wipper (**)	1,09	0,345	k.A.	0,096	/WIC 01/
Mulde (Medianwerte)	0,095	0,168	0,060	0,230	/BAR 98/

<sup>\*)</sup> Niederrhein, <sup>+) Keine Stationsangaben geordnet stromabwärts geordnet (\*\*)</sup> Raum Hettstedt

Für die Frage der radiologischen Umweltbewertung von Hinterlassenschaften sind die Bodenkontaminationen in Flussauen von besonderer Bedeutung. Kartierungen, die eine Abgrenzung der kontaminierten Areale ermöglichen, wurde in /VAH 02/ und /HGN 06/ mitgeteilt. Danach ist in den Gebieten mit Grubenwasserableitungen lokal mit erheblich ausgedehnten Kontaminationen von mehr als 10 ha Fläche zu rechnen.

Tabelle 4-3: Bodenkontaminationen an Gewässern mit Grubenwasserableitungen

	Fläche	Ra-226	Ra-228	Pb-210	Quelle
Lippe	120 ha	0,287 Bq/g (*)	0,059 Bq/g (*)	0,219 Bq/g (*)	/VAH 02/
Rheinberger Altrhein	10 ha	0,50 Bq/g (+)			/HGN 06/

(\*) Erwartungswert bei logarithmischer Normalverteilung; (+) flächengewogener Mittelwert

Die Aufbereitung von Grundwasser zu **Trink- oder Mineralwasser** schließt vielfach eine Enteisung (örtlich auch Entfernung von Arsen und anderen Spurenelementen) ein. Dabei fallen in Wasserwerken und Aufbereitungsanlagen Filtermaterialien und Schlämme an. Sofern das Grundwasser erhöhte Konzentrationen an Radium aufweist, können diese Materialien eine erhöhte spezifische Aktivität besitzen.

In /HGN 03a/ wurde für Schlämme der Wasseraufbereitung eine Aktivitäts-Mengen-Relation nach Tabelle 4-4 abgeschätzt. Danach ist in Deutschland jährlich mit mehr als 3.000 t an entsorgten Wasserwerkschlämmen mit spezifischen Aktivitäten über 1 Bq/g Ra-226 und ca. 100 t mit Aktivitäten über 10 Bq/g Ra-226 zu rechnen.

Tabelle 4-4: Aktivitäts-Mengen-Relation für Schlämme der Wasseraufbereitung in Deutschland /HGN 03a/

spezifische Ra-226 Aktivität [Bq/g]	Masse [Tonnen pro Jahr]
0 - 0,2	163.900
0,2 - 1	13.000
1 - 10	3.000
10 - 50	100
50 - 100	0
Gesamt	180.000

Zusätzlich zu diesen Mengen sind Schlämme der Wasseraufbereitung und Anlagenteile mit Inkrustationen in **Heilbädern** zu sehen. Hierzu liegen keine Mengenerhebungen für Deutschland vor. Die Gesamtmenge der Schlämme und ggf. inkrustierter Anlagenteile dürfte nicht sehr hoch sein. Zumindest in einigen Anlagen sind die spezifischen Aktivitäten der Schlämme bzw. Anlagerungen hoch (Tabelle 4-5).

Tabelle 4-5: Spezifische Aktivität von Quellsintern aus Heilbädern

	Quelle	Spezifische Aktivität in Bq/g			
		U-238	Ra-226	Pb-210	Ra-228
Sinter 1, Bad Brambach	IAF	< 0,15	94 ± 7	90 ± 9	< 0,02
Sinter 2, Bad Brambach	IAF	0,07 ± 0,03	0,45 ± 0,05	0,41 ± 0,06	0,03 ± 0,01
Rohrinkrustation	/WIS 02/		13 ± 2		9 ± 1,4

Ergebnisse der Untersuchung von Sedimenten und Inkrustierungen des **Steinkohlenbergbaus** wurden in /DSK 96/ mitgeteilt. Die Angaben der Tabelle 4-6 zeigen, dass die spezifischen Aktivitäten im Mittel deutlich über 1 Bq/g liegen. Die Materialien wurden nach /DSK 96/ in der Regel am Herkunftsort, d.h. unter Tage abgelagert. Übertägige Grubenwasserleitungen und andere Anlagen, die im Kontakt mit Grubenwasser standen, können jedoch ebenfalls kontaminiert sein.

Über die Entsorgung solcher Schlämme und Ablagerungen aus früher betriebenen Bergbauen liegen derzeit keine konkreten Angaben vor. Es ist allerdings unwahrscheinlich, dass größere Mengen an derartigen Materialien übertägig entsorgt oder unkontrolliert abgelagert wurden.

Tabelle 4-6: Radium-226 in Sedimenten und Inkrustierungen des Steinkohlenbergbaus /DSK 96/

	Jahr	Ra-226 in Bq/g Trockenmasse			Anzahl der Messungen
		Minimum	Mittelwert	Maximum	
Sedimente	1984	0,02	4,8	28,6	43
Sedimente	1986	0,04	2,9	18,1	35
Sedimente	1987	0,05	2,5	7,7	23
Sedimente	1990	0,05	2,3	5,5	9
Inkrustierungen	1995	2,9	13,4	25,8	4

Aus der **Papierindustrie** wurden an Anlagenteilen spezifische Aktivitäten bis zu 150 Bq/g (evtl. Summenaktivität nach StrlSchV 1989) angegeben /HGN 03a/.

### 4.3 Stäube, Schlacken und Aschen von Verbrennungsprozessen

#### 4.3.1 Entstehung und Art von Materialien

Bei Verbrennungsprozessen von Energieträgern wird der Kohlenstoffanteil der eingesetzten Brennstoffmaterialien in CO<sub>2</sub> umgewandelt und entweicht. In den verbleibenden Aschen und Schlacken reichern sich die nichtflüchtigen Radionuklide (genau wie die Schwermetalle) an. Daher weisen Aschen der Kohlenverbrennung aber auch Aschen der Verbrennung von Torf, Holz oder Stroh deutlich höhere natürliche Radioaktivität auf als die eingesetzten Brennstoffmaterialien.

Für die Kohleverstromung stehen heute im Wesentlichen drei Kraftwerkstypen zur Verfügung /REN 02/:

- Staubgefeuerte Dampferzeuger mit sekundären Umweltschutzanlagen, darunter die Feuerungssysteme Trockenfeuerung (engl. Dry Bottom Boiler, DBB) und Schmelzkammerfeuerung (Wet Bottom Boiler, WBB),
- Kohlevergasung in Kombination mit dem Gas- und Dampfturbinenprozess,
- Wirbelschichttechnik mit den Formen atmosphärische und druckaufgeladene Wirbelschichtfeuerung, zirkulierend und stationär (engl. Atmospheric, Circulating and Pressurised Fluidised Bed Combustion, AFBC, CFBC, PFBC).

Die Rostfeuerung (engl. grate firing) wird hauptsächlich im industriellen Sektor im unteren Leistungsbereich der Großfeuerungen eingesetzt. Durch das breite Brennstoffspektrum, das die Rostfeuerung ermöglicht, wird sie häufig als Misch- oder Mehrstofffeuerung betrieben, z. B. mit Biomasse oder Abfallstoffen als Brennstoff.

Abhängig von der Anlagentechnik fallen verschiedene Arten von Verbrennungsprodukten an. Als wichtige Feststoffe sind zu benennen (s. Abbildung 4-1):

- Schmelzkammergranulat: Glasartiges Produkt, das aus den in Schmelzkammerfeuerungen, bei Temperaturen von 1500 °C als Schmelze abgezogenen und schockartig im Wasserbad abgekühlten unbrennbaren Bestandteilen besteht.
- Kesselasche (Grobasche): Bei Trockenfeuerung im Brennkessel anfallende Verbrennungsrückstände.
- Flugasche: In Elektrofiltern abgeschiedener Staub der Verbrennung.
- Wirbelschichtasche: Aschen aus Wirbelschichtfeuerungsanlagen.
- REA-Gips: Produkt der Abgasentschwefelung durch das Kalkwaschverfahren. Dabei wird SO<sub>2</sub> in einer Suspension aus Kalksteinmehl absorbiert und nach der Oxidation als Gips ausgefällt.
- SAV-Produkt: Produkt der Abgasentschwefelung mittels Sprühabsorptionsverfahren.

Genauere Angaben zur Entstehung und Zusammensetzung dieser Kraftwerksnebenprodukte enthält Box 4.3-1.

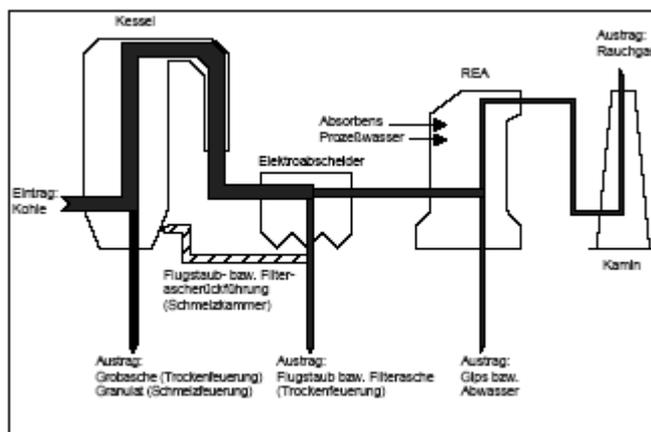


Abbildung 4-1: Schema des Massenflusses durch ein Kohlekraftwerk /REN 02/

**Flugasche:** Rohstoffbasis von Steinkohlenflugasche ist Steinkohle. Steinkohlenflugasche entsteht in den Großfeuerungsanlagen der Kraftwerke. Zu feinem Staub vermahlene Steinkohle wird in den Kessel eingeblasen und bei Temperaturen von mehr als 1200°C verbrannt. Dabei schmelzen die nicht brennbaren mineralischen Staubkörner, die als natürliches Begleitgestein in der Steinkohle enthalten sind, überwiegend oder vollständig auf. Die feinen Mineralstoffpartikel werden im Rauchgasstrom mitgeführt und als Steinkohlenflugasche für den weiteren Einsatz als Baustoff mit Elektrofiltern abgeschieden.

**Flugasche nach DIN EN 450:** Flugasche ist ein feinkörniger Staub, der hauptsächlich aus kugelförmigen, glasartigen Partikeln besteht, bei der Verbrennung feingemahlener Kohle anfällt, puzzolanische Eigenschaften hat und im wesentlichen aus SiO<sub>2</sub> und Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> besteht. Der Gehalt an wirksamen SiO<sub>2</sub>, wie er gemäß ENV 197-1 festgelegt und bestimmt wird, beträgt mindestens 25% Massenanteil. Flugasche wird durch elektrostatische oder mechanische Abscheidung staubartiger Partikel aus Abgasen von Feuerungsanlagen gewonnen, die mit gemahltem Anthrazit oder gemahlener Steinkohle befeuert wird. Anmerkung: Flugasche, die bei der Feuerung mit Braunkohle anfällt, ist auf nationaler Ebene zulässig, wenn der Gesamtgehalt an CaO weniger als 10 % Massenanteil beträgt und die Flugasche alle anderen Anforderungen dieser Norm erfüllt.

**Kesselsand:** Kesselsand wird in den umweltfreundlichen Trockenfeuerungen moderner Steinkohlekraftwerke erzeugt. Beim Verbrennungsprozess bleibt das mineralische nicht brennbare Begleitgestein der Kohle als Verbrennungsrückstand übrig. Der größte Teil der Verbrennungsrückstände wird als staubfeines Produkt durch Elektrofilter dem Rauchgas als Flugasche entnommen (ca. 90 Gew.-%). Die beim Verbrennungsprozess durch Sinterung entstehenden Agglomerate, die auf Grund ihrer Masse nach unten fallen (ca. 10 Gew.-%), werden am Boden des Kessels über einen Wasserbehälter mit einer Kratzvorrichtung nass als Kesselsand abgezogen.

**REA-Gips:** REA-Gips ist ein industriell hergestellter Rohstoff, der in Kohlekraftwerken mittels Kalkwaschverfahren entsteht (Gips aus nassen Rauchgas - Entschwefelungs - Anlagen). Auf europäischer Basis wurde vom Dachverband der europäischen Gipsindustrie EUROGYPSUM eine Definition für REA-Gips erarbeitet, die von allen interessierten Organisationen einstimmig angenommen wurde. Die Definition lautet: „Gips aus Rauchgasentschwefelungsanlagen (REA-Gips, Entschwefelungsgips) ist das feuchte, feinteilige und kristalline Calciumsulfat-Dihydrat (CaSO<sub>4</sub> x 2 H<sub>2</sub>O) mit hoher Reinheit. Es wird bei der nassen Rauchgasentschwefelung mittels des Kalk(stein)waschverfahrens nach Oxidation mit Luft und anschließender Gipsaufbereitung gezielt gewonnen.“

**SAV-Produkte:** In Deutschland sind 90 % der Kohlekraftwerke mit Kalksteinwäschen zur Rauchgasentschwefelung ausgerüstet, wobei REA-Gips gewonnen wird. An zweiter Stelle der Maßnahmen zur Rauchgasentschwefelung steht das Sprühabsorptionsverfahren (SAV), auch halbtrockenes, semitrockenes oder quasitrockenes Verfahren genannt. Beim Sprühabsorptionsverfahren wird Kalkhydrat als Suspension eingedüst. Im Trockensorptionsverfahren wird dagegen das Absorbens trocken eingebracht. Bei beiden Verfahren entstehen trockene, pulverförmige Produkte. Diese werden nachfolgend als SAV-Produkte bezeichnet und bestehen aus Reaktionsprodukten, verbrauchtem Absorbens und ggf. Flugaschen.

**Schmelzkammergranulat:** Schmelzkammergranulat wird bei der Verbrennung von Steinkohle in sogenannten Schmelzkammerfeuerungen gewonnen - das sind Kohlefeuerungen, in denen die schmelzflüssigen, unbrennbaren Bestandteile bei Temperaturen von 1500 °C abgezogen und schockartig im Wasserbad abgekühlt werden. Das Material erstarrt dadurch glasig (amorph) zu Schmelzkammergranulat. Hauptbestandteil sind die mineralischen Beimengungen der Kohle.

**Wirbelschichtasche:** Wirbelschichtaschen entstehen in Wirbelschichtfeuerungsanlagen bei der Verbrennung von Steinkohle, Braunkohle und anderen, z. T. heizwertarmen Stoffen, wie Papier/Holz und Klärschlamm. Bei der kohlestämmigen Verbrennung enthalten die Wirbelschichtaschen zusätzlich unterschiedliche Mengen an Entschwefelungsprodukten und nicht reagiertem Absorbens. Das Grundprinzip der Wirbelschichtfeuerungen besteht darin, dass der Brennstoff über einen Düsenboden mit definierter Luftzufuhr in einem wirbelnden Zustand gehalten wird. Der daraus resultierende hohe Stoffaustausch und die gute Wärmeübertragung ermöglichen auch den Einsatz heizwertarmer Brennstoffe. Aufgrund der Feuerungstechnik ist durch Zugabe von Kalkstein eine Direktentschwefelung in der Feuerung möglich. Verfahrensbedingt fällt im Wirbelbett körnige Bettasche und bei der Entstaubung der Rauchgase staubfeine Wirbelschicht-Filterasche an.

#### Box 4.3-1: Begriffe für Kraftwerksnebenprodukte (aus /BVK 05/)

Die Aschen und Schlacken können vor allem dann radiologisch relevante Aktivitäten besitzen, wenn die Ausgangsstoffe (vor allem Kohlen) bereits erhöhte Radionuklidgehalte besaßen. Zwei in dieser Beziehung extreme Beispiele sind die Steinkohlen des Freitaler Reviers (Döhlener Becken, s. /LEH 92/) und aus Oberfranken (Stockheim, s. /REI 05/).

Bei der Verbrennung von rezenten Biomaterialien (Holz, Stroh, ...) können radiologisch relevante Aktivitäten in den Aschen und Stäuben entstehen, da hier der Kohlenstoffanteil sehr hoch und die Aufkonzentrierung damit sehr stark ist (s. Kapitel 5.8).

### 4.3.2 Regionale Schwerpunkte

Die Standorte der größten deutschen Kohlekraftwerke sind in Abbildung 4-2 dargestellt. Die Abbildung weist als regionale Schwerpunkte den Großraum Rhein-Ruhr, den Rhein-Neckar Raum (Ludwigshafen-Karlsruhe-Stuttgart) und die Lausitz aus. Neben diesen Großkraftwerken existieren jedoch noch weitere Kohlekraftwerke, von Stadtwerken und regionalen Versorgern, so dass insgesamt von einer sehr dezentralen Verbreitung von Kohlekraftwerken auszugehen ist.

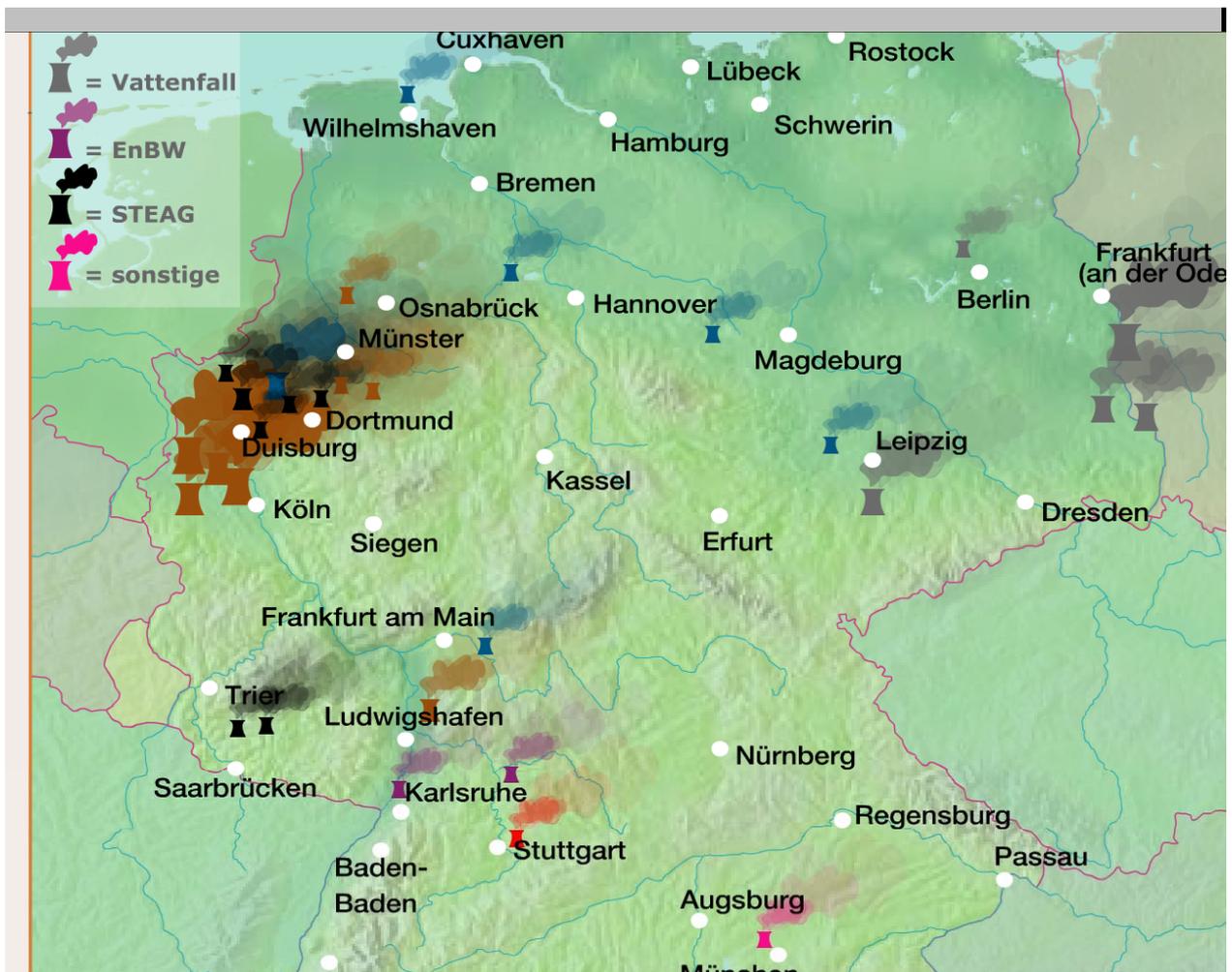


Abbildung 4-2: Standorte der 30 größten deutschen Kohlekraftwerke /WWF 05/ (\*)

(\*) fehlende Legendensymbole: blau: EON; Braun: RWE

Die Großkraftwerke in der Lausitz, im Raum Leipzig-Bitterfeld und Helmstedt verbrennen Braunkohle. Im Rhein-Ruhr-Gebiet werden Braun- und Steinkohlen genutzt, Wilhelmshaven und Minden (Weser) und alle dargestellten Großkraftwerke südlich des Mains nutzen Steinkohle /UBA 04/.

Obwohl die Großkraftwerke in Bezug auf Aschemengen den bedeutendsten Anteil an Materialien erzeugen, sind die in den vergangenen Jahren neu errichteten Biomasse / Holzkraftwerke für die Beurteilung radiologisch relevanter Aschen unbedingt zu beachten. Da nach KrW-/AbfG und der Altholzverordnung (AltholzV) (Alt-)Holz thermisch verwertet werden kann und entsprechend Erneuerbare Energien Gesetz die Gewinnung von Energie aus Biomasse gefördert wird, sind in den vergangenen Jahren zahlreiche Heizwerke aber auch Heizkraftwerke auf Biomassebasis entstanden. Ein weiterer Ausbau dieser Energie ist zu erwarten. Dabei werden in wesentlich stärkerem Maße als bei den Kohlekraftwerken kleinere und dezentrale Anlagen gebaut. Eine Übersicht über die geförderten Heizwerke und Heizkraftwerke auf Biomassebasis in Bayern zeigt Abbildung 4-3. Die dezentralen Strukturen sind gut zu erkennen.



Abb. 1: Geförderte Heizwerke und Heizkraftwerke in Bayern, Stand 1.1.2004

Abbildung 4-3: Heizwerke und Heizkraftwerke auf Biomassebasis in Bayern, Stand 01.01.2004. Aus: /LWF 05/

### 4.3.3 Mengen und Aktivitäten

Angaben zu den Mengen der in deutschen Kohlekraftwerken anfallenden Materialien und den Anteil der Verwertung dieser Stoffe enthält Tabelle 4-7. Danach wurden im Jahr 2004 die 9,7 Mio. t Nebenprodukte aus der Steinkohlenverfeuerung zu 99 % verwertet, während von den 16,5 Mio. t an Nebenprodukten der Braunkohlenverfeuerung 62 % in Tagebaue eingebracht und nur 38 % anderweitig verwertet wurden.

Tabelle 4-7: Aufkommen und Verwertung von Nebenprodukten aus kohlebefeuerten Kraftwerken in Deutschland im Jahr 2004 /VGB 05/

	Steinkohle		Braunkohle		
Kapazität in MW <sub>th</sub>	76.240		64.311		
verfeuerte Kohle , Mill. t	52		173		
Nebenprodukt	Aufkommeng	Verwertung	Aufkommen	Verwertung	
	Mill. t	%	Mill. t	Tagebau	sonstige
	Mill. t	%	Mill. t	%	%
Schmelzkammergranulat	1.95	100	---	---	---
Kesselasche	0.56	94	1.72	87	13
Flugasche	4.45	99	8.72	96	4
Wirbelschichtasche	0.44	100	0.27	87	13
REA-Gips	1.93	100	5.73	13	87 <sup>*</sup>
SAV-Produkt	0.28	100	---	---	---
andere Nebenprodukte	< 0.1	100	0,1	0	100
<b>Gesamt</b>	<b>9,71</b>	<b>99</b>	<b>16,54</b>	<b>62</b>	<b>38</b>

\* davon 34 % auf Rohstoffdepot

Eine Übersicht über die gesamten in Deutschland derzeit anfallenden Mengen an Aschen und Filterstäuben aus Biomasseheizwerken und –heizkraftwerken konnte bei den Recherchen zu dieser Studie nicht gefunden werden. Bezüglich der Massenströme in einem Biomasseheizkraftwerk mit einer Primärleistung von 26,7 MW (Kesselleistung 23,3 MW) sind in /BMH 05/ und /CAR 05/ orientierende Angaben enthalten. Danach fallen bei einem Brennstoffeinsatz von 10,62 t/h und ca. 6700 h Lastbetrieb<sup>8</sup> ca. 87,3 % der Aschen (1.100 t pro Jahr) als Feuerraumaschen und 12,7 % (150 t pro Jahr) als Filteraschen an. In den Feuerraumaschen sind Mineral- und Nährstoffe angereichert, sie enthalten jedoch weniger Schwermetalle, als bei natürlicher Verrottung freigesetzt werden. Sie werden deshalb als Dünger vermarktet. Im Unterschied dazu sind in den Filteraschen die Schwermetalle stark angereichert. Sie müssen als Sonderabfall entsorgt werden.

<sup>8</sup> Abgeschätzt aus 40.000 MWh elektrische Leistung pro Jahr und 6,1 MW<sub>el</sub> Maximalleistung nach /CAR 05/

Zur Aktivität der Verbrennungsrückstände aus Kohlekraftwerken gibt es umfangreiche Daten aus Deutschland und der internationalen Literatur. Die bereits zusammengefassten Daten von Einzeluntersuchungen (s. Tabelle 4-8) besagen, dass derzeit in Deutschland anfallende Aschen und Schlacken der Kohleverbrennung aus radiologischer Sicht kein Problem darstellen. Ergänzende Messungen von IAF an Aschen und Schlacken dreier Holzheizwerke (Tabelle 4-9) weisen für diese Nutzung zumindest bei Flugaschen auf vereinzelt erhöhte Pb-210 Aktivitäten hin.

Tabelle 4-8: Spezifische Aktivität von Aschen und Verbrennungsprodukten aus deutschen Kohlekraftwerken /BER 96/, /PUC 97/, /PUC 05/, /LEH 96/

	Anzahl Messungen	Ra-226 Bq/kg			Th-232 in Bq/kg		
		Min	Mittel	Max	Min	Mittel	Max
Steinkohlenflugasche (vor 1980)	60	80	235	390	44	123	260
Steinkohlenflugasche (nach 1990)	39	51	111	204	59	90	155
Schmelzkammergranulat	33	68	146	245	76	100	170
Kesselasche	> 2	70	Ca. 100	166	40	Ca. 30	120
Kesselschlacke	33	68	146	245	76	100	170
Braunkohlenfilterasche		4	82	200	6	51	150

Tabelle 4-9: Messergebnisse von Aschen und Schlacken der Holzverbrennung (Messungen IAF)

	spezifische Aktivität [Bq/kg]					
	U-238	Ra-226	Pb-210	Th-232	K-40	Cs-137
Kraftwerk 1						
Flugasche	23	88	91	53	2300	60
Flugasche	33	150	128	70	3160	81
Flugasche	17	96	<b>500</b>	59	2180	120
Rostasche	31	75	9	42	1750	44
Kraftwerk 2						
K3, Schlacke	25	43	59	17	570	70
K3, Rauchgaskühler	27	81	85	26	810	130
K3, Rauchgaskühler	27	82	70	26	640	100
Kraftwerk 3						
Kesselasche	34	55	80	28	480	40
Rostasche	44	30	26	22	440	5
Filterasche	23	25	110	15	470	28

Auffällig an den Daten der Tabelle 4-8 ist, dass die Steinkohlenflugaschen vor 1980 signifikant höhere spezifische Aktivitäten aufwiesen als die nach 1990 anfallenden Flugaschen. Nach Erläuterungen in /PUC 97/ ist dieser Befund auf die unterschiedliche Probengewinnung zurückzuführen. In den früheren Untersuchungen

wurde „Reingasasche“ analysiert, um die Emissionen der Kraftwerke zu ermitteln. Damit wurden vor allem die sehr kleinen Aschepartikel erfasst. In den Untersuchungen nach 1980 wurden die in den Elektroabscheidern anfallenden Aschen selbst untersucht, womit automatisch auch gröbere Fraktionen erfasst wurden. Für die Beurteilung der radiologischen Eigenschaften der Aschen ist die letztere Probenahme als repräsentativer als die frühere einzustufen.

Für Hinterlassenschaften mit erhöhter natürlicher Radioaktivität ist allerdings die Frage wesentlich, ob aus der früheren Entsorgung von Aschen aus Kraftwerken Ablagerungen mit erhöhter Radioaktivität zu erwarten sind. Auch ohne die Sonderfälle des Döhlener Beckens und der Lagerstätte von Stockheim/Oberfranken (s. Kapitel 4.3.1 und /LEH 92/) weisen Literaturangaben auf solche Ablagerungen hin (s. Tabelle 4-10). Für die Prüfung von Hinterlassenschaften sind daher Ablagerungen mit Verbrennungsrückständen durchaus zu beachten.

Tabelle 4-10: Untersuchungsergebnisse von Halden mit Verbrennungsrückständen aus Kraftwerken in Niedersachsen /SCH 85/

		Art und Herkunft der Kohle	Ra-226 [Bq/kg]	Pb-210 [Bq/kg]
HKW Herrenhausen	Flugasche		298	15
KW Emden	Granulat		363	44
KW Emden	Flugasche		127	1.980
KW Wilhelmshaven	Flugasche	SK (USA)	232	26
KW Wilhelmshaven	Flugasche	SK (Austral.)	264	44

SK – Steinkohle

#### 4.4 Schlämme, Sande, Schlacken und Stäube aus der Weiterverarbeitung anderer als in Anlage XII Teil A Nr. 3a benannter Erze

Neben den in der Anlage XII Teil A Nr. 3a benannten Erzen werden derzeit und wurden in der Vergangenheit noch weitere Erze von Metallen in Deutschland verarbeitet. Dazu gehören vor allem Eisenerze, Erze der Buntmetalle (Blei, Kupfer<sup>9</sup>, Nickel, Zinn<sup>10</sup> und Zink) aber auch Erze von Chrom, Kobalt, Mangan, Molybdän, Wolfram und Zirkonium/Hafnium /NIE 05/. Die radiologische Relevanz der dabei vorkommenden Schlämme, Sande, Schlacken und Stäube (ohne Filterstäube der Rauchgase) in der aktuellen Produktion wurde in /BSP 00/ als gering bewertet. Das schließt aber weder Einzelfälle mit abweichenden Befunden aus, noch ist eine radiologische Bewertung historischer Verarbeitungen und der daraus resultierenden möglichen Hinterlassenschaften damit geleistet. Letztere Aufgabe wird durch das Forschungsvorhaben StSch 4386: „Erfassung und radiologische Bewertung von Hinterlassenschaften mit NORM-Materialien aus früheren Tätigkeiten und Arbeiten einschließlich der modellhaften Untersuchung branchentypischer Rückstände“ /TÜV 04a/ bearbeitet und daher für diese Studie ausgespart.

<sup>9</sup> In Anlage XII Teil A teilweise als Kupferschiefer enthalten;

Eine Weiterverarbeitung von bereits hergestellten Metallen findet auch in Gießereien statt. Nach /BSP 00/ existierten Ende der 1990er Jahre in Deutschland 161 Eisen-, 44 Stahl-, 193 Leichtmetall- und 56 Buntmetallgießereien. Eine Überprüfung der Radioaktivität von Gießereiabfällen durch Messungen von IAF an verschiedenen Probenmaterialien (s. Tabelle 4-11) erbrachte keine Hinweise auf relevante Nuklidanreicherungen. Ohne mit dieser stichprobenhaften Analytik das Vorkommen von radiologisch relevanten TENORM-Bildungen völlig auszuschließen, wird für diese Studie auf eine vertiefende Untersuchung dieses Industriebereichs verzichtet. Die für Gießereien relevanten Feuerfestmaterialien werden allerdings im Kapitel 4.7 genauer beschrieben. Speziell Arbeitsplätze mit Zirkonsanden bzw. zirkonsandhaltigen Materialien sind in der niederländischen „Regelung zu natürlichen Strahlenquellen“ /REG 04/ als strahlenschutzrelevant benannt.

Tabelle 4-11: Messergebnisse an Gießereiabfällen (Messungen IAF)

<b>Anlage 1 - Probenbez.</b>	<b>spezifische Aktivität [Bq/kg]</b>				
<b>(Endprodukt - Sphäroguß)</b>	<b>U-238</b>	<b>Ra-226</b>	<b>Pb-210</b>	<b>Th-232</b>	<b>K-40</b>
Filterstaub	48	35	52	50	370
Elektroofenschacke	11	25	5	17	110
<b>Anlage 2 - Probenbez.</b>	<b>spezifische Aktivität [Bq/kg]</b>				
<b>Eisen- und NE-Gießerei</b>	<b>U-238</b>	<b>Ra-226</b>	<b>Pb-210</b>	<b>Th-232</b>	<b>K-40</b>
Sand	17	20	20	20	190
Kernknollen	5	6	6	10	21
Konverterschlacke	14	11	8	9	43
Kupolofenschlacke	85	60	20	34	120
Altsand	11	10	12	12	60
Aluminiumkrätze	7	8	17	4	32
Staub	14	17	10	27	140

## 4.5 Rückstände der Gewinnung und Aufbereitung nichtmetallischer Erze/Minerale

### 4.5.1 Entstehung und Art von Materialien

Neben den im Kapitel 3.6 beschriebenen Materialien aus der Gewinnung und Aufbereitung von „anderen Rohstoffen“, deren Radioaktivität durch uran- oder thoriumhaltige Minerale („entsprechende Minerale“ nach StrlSchV) bestimmt wird, sind auch andere Radionuklidanreicherungen möglich. Derartige Materialien sind keine Rückstände nach Anlage XII Teil A. Ein entsprechender Fall wurde von Mallick beschrieben /MAL 05/. Es handelt sich um Aufbereitungsrückstände der Flussspatgewinnung, die als Spülsandhalden mit teilweise stark erhöhter Radioaktivität vorliegen.

Über die genaue Entstehung der Radionuklidanreicherungen bei der Aufbereitung von Flussspat werden in /MAL 05/ keine konkreten Angaben gemacht. Aus der Nuklidzusammensetzung (s. Kapitel 4.5.3) ist jedoch

<sup>10</sup> in Anlage XII Teil A enthalten

zu vermuten, dass es sich teilweise um Radiumausfällungen aus einer gelösten Phase handelt. Der Befund ist wahrscheinlich nicht allgemein auf andere Flussspatgruben zu übertragen, da in der betreffenden Grube (wahrscheinlich) Flussspat und Uranvererzungen vergesellschaftet auftraten (s. Kapitel 4.5.2). Generell ist jedoch einzuschätzen, dass Anreicherungen von Radium auch bei der Aufbereitung anderer Rohstoffe entstehen bzw. entstanden sein können.

#### 4.5.2 Regionale Schwerpunkte

Von Mallick /MAL 05/ wurden keine Angaben zum konkreten Ort der untersuchten Flussspat-Grube gemacht. Die bedeutendsten bayrischen Flussspat-Vorkommen lagen im Gebiet von Wölsendorf südlich von Nabburg. Sie wurden bis in die achtziger Jahre des 20. Jahrhunderts abgebaut und zählten vor allem in der Zeit nach dem Zweiten Weltkrieg zu den ergiebigsten der Welt. Ein weiteres Vorkommen, das abgebaut wurde, liegt in der Nähe von Bach an der Donau, östlich der Walhalla bei Donaustauf. Auch dieses Vorkommen wurde bis in die 1980er Jahre abgebaut, war aber nie so bedeutend wie das Wölsendorfer /GEI 99/.

Derzeit wird Flussspat in Deutschland nur in der Grube Clara in Wolfach/Schwarzwald gewonnen. Die Förderung von Flussspat (roh) betrug im Jahr 2003 nach /BMW 04/ 70.381 t. Die verwertbare Förderung lag bei 33.289 t.

#### 4.5.3 Mengen und Aktivitäten

Die Analysenergebnisse der von Mallick /MAL 05/ untersuchten Aufbereitungsrückstände einer Flussspatgrube sind in Abbildung 4-4 dargestellt. Sie zeigen vor allem beim Spülsand 2 ein deutliches Nichtgleichgewicht zwischen Radium, Uran und Pb-210. Nach diesen Ergebnissen muss der Spülsand 2 als relativ junge Ablagerung (Pb-210 noch nachwachsend) charakterisiert werden, deren Radioaktivität durch Ra-226 dominiert wird.

Die spezifische Aktivität von Ra-226 liegt bei Spülsand 2 in der Größe von 10 Bq/g (10.000 Bq/kg), bei Spülsand 3 in der Größe von ca. 1,5 Bq/g (1.500 Bq/kg).

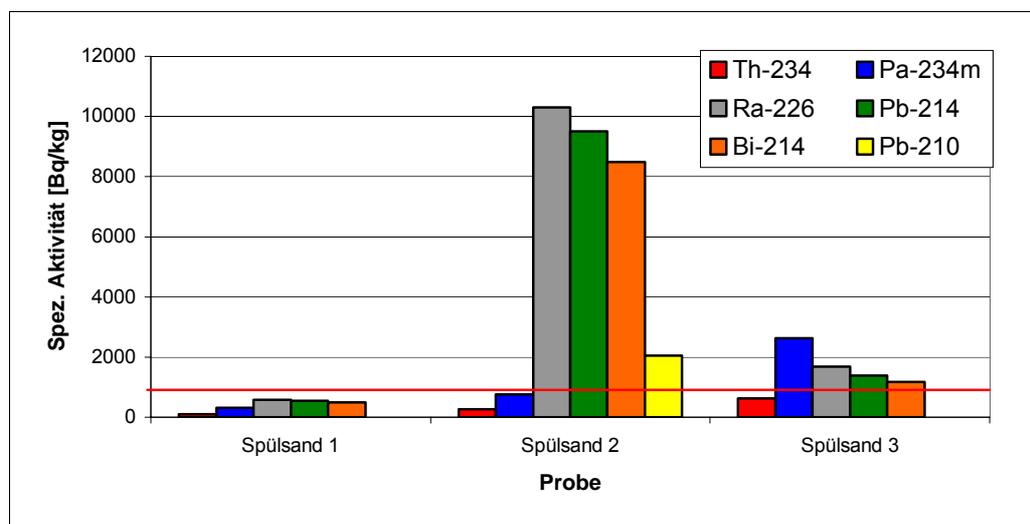


Abbildung 4-4: Messergebnisse von Aufbereitungsrückständen einer Flussspatgrube /MAL 05/

## 4.6 Stäube und Schlämme der Rauchgasreinigung bei Hochtemperaturprozessen außer der Primärverhüttung

### 4.6.1 Entstehung und Art von Materialien

Da ein Ausdampfen von Pb-210 und Po-210 an hohe Temperaturen gebunden ist, tritt es nicht nur bei der Metallverhüttung, sondern auch bei anderen Hochtemperaturprozessen auf. Die Effizienz dieses Prozesses kann auch in der Abreicherung von Pb-210 in den gebrannten oder gesinterten Materialien gut erkannt werden (s. auch Kap. 5). Die Filterung der Abgasstäube führt zum Anfallen von Materialien, für die im Einzelfall erhebliche spezifische Aktivitäten von Pb-210 und Po-210 nicht auszuschließen sind. Als möglicherweise relevante Materialien sind daher anzusehen:

- Filterstäube aus der Sekundärverhüttung und thermischen Weiterverarbeitung von Eisenmetallen (Stahlwerke, Gießereien),
- Filterstäube der Sekundärverhüttung von NE-Metallen, (incl. Fa. Siempelkamp),
- Filterstäube des Röstens von anderen als bisher erfassten Erzen,
- Filterstäube des Sinterns oder Brennens von Zirkonmineralien /SMI 98/.

Weitere Hochtemperaturprozesse, bei denen evtl. Filterstäube mit angereichertem Po-210, Pb-210 anfallen, sind die Glasherstellung (Schmelze bei Temperatur zu 1 000 °C, anschließend Läuterung bei Temperaturen bis ca. 1.500°C), die Zementherstellung (Temperatur im Drehrohrfen > 1.400 °C), das Brennen von Keramiken und das Sintern oder Rösten von mineralischen Stoffen. Über die dort anfallenden Stäube konnten keine Angaben zur Radioaktivität gefunden werden.

### 4.6.2 Regionale Schwerpunkte

Neben den 6 Primärhütten der Roheisengewinnung (s. Kapitel 3.7.2.1) gibt es zahlreiche Stahlwerke, in denen Roheisen oder Schrott zu Stahl veredelt wird. Einen Überblick über die Standorte und die dort vorhandenen Kapazitäten zeigt Abbildung 4-5.

Ein Überblick über Standorte von Sekundärhütten für Aluminium, Blei, Zink und Kupfer ist im Kapitel 3.7.2.2 mit enthalten. Andere Standorte mit zumeist Elektroschmelzöfen sind:

- Aue, Sachsen (Nickelhütte Aue GmbH, recycelt insbesondere Nickel, Kobalt und Kupfer aus NE-metallhaltigen Abfällen).
- Menden, NRW (Siegfried Jost GmbH, arbeitet Messing- oder anderen NE-metallhaltige Krätzen zu Granulat oder Block um).
- Iserlohn-Sümmern, NRW (WINNEN-Metall GmbH & Co KG ehem. Alex Jost produziert mit 4 Schmelzöfen verschiedene Legierungen).

Ein Sonderfall unter den derzeit betriebenen Sekundärhütten ist die Fa. Siempelkamp in Krefeld. Diese Firma verarbeitet in der Schmelzanlage GERTA Schrotte und Metallrückstände mit NORM-Kontaminationen /QUA 02/, /QUA 05/.

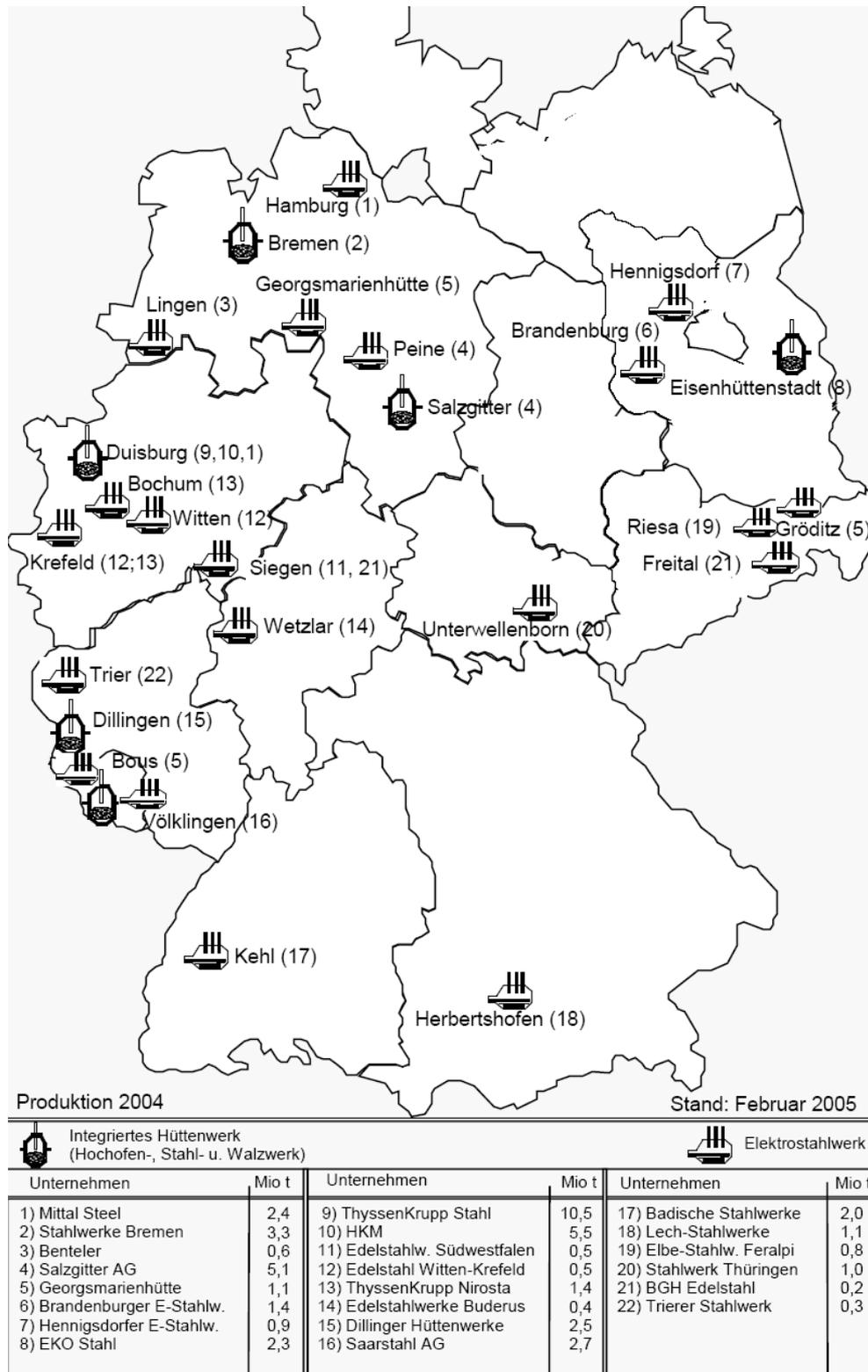


Abbildung 4-5: Standorte von Stahlwerken in Deutschland /STA 05/

In der 1986 stillgelegten Metallhütte Fahlbusch in Rastatt (Baden-Württemberg) wurde Jahrzehnte lang Sekundärverhüttung betrieben. Dabei wurden metallhaltige Abfälle und Altkabel zur Metallrückgewinnung eingesetzt.

Neben den metallurgischen Prozessen können bei Hochtemperaturbearbeitungen von mineralischen Stoffen ebenfalls Radionuklidanreicherungen auftreten. Aus den gesichteten Unterlagen heraus ist nicht ableitbar, ob in Deutschland verarbeitete Zirkonsande neben dem Reinigen und Mahlen auch gebrannt oder gesintert werden. Daher ist eine Einschätzung, inwieweit Filterstäube der Zirkonsandverarbeitung auftreten, derzeit nicht möglich. Die Standorte der Zirkonsandaufbereitung sind im Kapitel 4.7 beschrieben.

Glashütten, Zementwerke und Keramikproduktion befinden sich an sehr vielen Standorten in Deutschland. Da derzeit nicht bekannt ist, ob die Filterstäube dieser Anlagen radiologisch relevant sein können, wird auf eine vertiefende Darstellung dieser Standorte verzichtet.

#### **4.6.3 Mengen und Aktivitäten**

Eine zusammenfassende Übersicht über Mengen an Filterstäuben aus der Sekundärverhüttung wurde in dieser Studie nicht erhoben, da davon auszugehen ist, dass diese Materialien, soweit sie bei früheren Arbeiten anfielen, in ihrer Mehrheit radiologisch nicht relevant sind. In Einzelfällen sind allerdings derartige Materialien auch als Ablagerungen zu erwarten. Eine gezielte Prüfung ist allerdings nur dann erfolgversprechend, wenn die Aufarbeitung historischer Betriebsprozesse entsprechende Hinweise ergibt.

In /SMI 98/ wird die Anreicherung von Pb-210 und Po-210 in einer englischen Anlage für die Verarbeitung von Zirkonsanden beschrieben. Als spezifische Aktivitäten im Filterstaub werden 200 Bq/g Pb-210 und 600 Bq/g Po-210 angegeben. Im Zeitraum von 1991 (Stop der Entsorgung wegen erhöhter Radioaktivität) bis 1995 fielen in dieser Anlage über 100 t Filterstaub an.

Bei der modernen Zementproduktion werden Filterstäube wieder in den Produktionsprozess eingeführt, so dass keine Filterstäube entsorgt werden müssen.

### **4.7 Mineralische Produkte mit erhöhter natürlicher Radioaktivität**

#### **4.7.1 Entstehung und Art von Materialien**

Einige der in Deutschland verwendeten mineralischen Produkte können erhöhte natürliche Radioaktivität aufweisen. Dazu zählen:

- Düngemittel (speziell Triple Superphosphat),
- Zirkonmineralsande, zirkonmineralsandhaltige Produkte,
- Feuerfestmaterial,
- Strahlsande auf Basis Korund, Zirkonkorund,
- Spezielle Keramiken.

Durch die Entsorgung dieser Produkte nach Gebrauch (außer Düngemittel) kann es generell zu Ablagerungen mit erhöhter Radioaktivität kommen. Konkrete Fälle sind bisher nicht bekannt. Die Herstellung und Verwendung von Zirkonsanden in verschiedenen Industriebereichen (Glas, Keramik, Gießereien) ist allerdings in der niederländischen „Regelung zu natürlichen Strahlenquellen“ /REG 04/ ausführlich berücksichtigt. Im Weiteren wird auf Zirkonsand genauer eingegangen.

#### 4.7.2 Verarbeitung von Zirkonsanden

Zirkon wird in Form von Zirkonsanden importiert und nach /BSP 00/ im Wesentlichen als Formsande bei Gießereiprozessen (Gießereisand) sowie als Feuerfestmaterialien in den Industriezweigen Eisen, Stahl, NE-Metalle, Gießereien, Glas, Keramik, Zement und in Verbrennungsanlagen eingesetzt.

Standorte an denen in Deutschland Zirkonsande verarbeitet werden sind Leun, Hessen (Mineralmühle Leun Rau GmbH & Co KG) Lübeck, Schleswig-Holstein (Possehl Erzkontor GmbH) und Wesel, NRW (Mineralmahlwerk C. Welsch GmbH, Tochterfirma der Possehl Erzkontor GmbH) sowie die Kreutz Mahlwerke in Haiger-Langenbach (Rheinland-Pfalz).

Die Anzahl der Unternehmen, in denen Feuerfestmaterial aus Zirkon eingesetzt wird, wurde nicht quantifiziert, sie kann jedoch als sehr groß eingestuft werden. Der Einsatz von zirkonhaltigem Feuerfestmaterial ist jedoch in letzter Zeit besonders aus wirtschaftlichen Gründen stark zurückgegangen und konzentriert sich heute nach /BSP 00/ auf die Industriezweige Eisen, Stahl und Glas.

#### 4.7.3 Mengen und spezifische Aktivitäten

Nach den Angaben in /BSP 00/ werden in Deutschland jährlich etwa 1 Mio. t. Feuerfestmaterialien verbraucht, wobei davon ausgegangen werden muss, dass lediglich 1 % auf der Basis von Zirkon / Baddeleyit ( $ZrO_2$ ) produziert wurde. Die Materialien auf der Basis von Zirkon bzw. Baddeleyit weisen spezifische Aktivitäten von ca. 1-10 Bq/g der Nuklide der U-238-Zerfallsreihe sowie ca. 0,5-1 Bq/g der Nuklide der Th-232-Zerfallsreihe auf.

Bei der Produktion der Feuerfestmaterialien fallen keine Rückstände in nennenswertem Umfang an.

Eines der Haupteinsatzfelder von Feuerfestmaterial sind Gießereien. Es kann davon ausgegangen werden, dass bei etwa 50-100 Gießereien ein Einsatz von Zirkonsand mit einer Gesamtmenge von etwa 5.000 t pro Jahr stattfindet.

Beim Gießereiprozess können, bedingt durch den Einsatz von Zirkonsanden als Formsand, zirkonhaltige Altsande entstehen. In der folgenden Tabelle sind die spezifischen Aktivitäten der zirkonhaltigen Neusande, als Ausgangsstoffe des Gießereiprozesses dargestellt. Diese Werte sind kompatibel mit Ergebnissen von Untersuchungen des Bayr. LA (2003) /BLA 03/.

Tabelle 4-12: Spezifische Aktivitäten der in Deutschland verwendeten Zirkonsande (Messungen IAF)

Ausgangsstoff	Herkunft	Spezifische Aktivität [Bq/kg]					
		U-238	Ra-226	Pb-210	Ra-228	Th-228	K-40
Zirkonsand Südafrika	Werk 1	4.300	4.400	4.000	800	800	< 50
Zirkonsand USA	Werk 2	2.100	2.000	1.900	260	245	< 40
Zirkonsand Australien	Werk 2	3.000	3.100	2.800	650	640	< 100
Zirkonsand Afrika	Werk 2	4.250	4.250	4.200	675	650	< 80
Zirkonsand Australien	Werk 3	3.100	3.400	2.700	730	720	320

Messungen von IAF an Zirkonsanden, die im Rahmen dieses Projektes ausgeführt wurden (s. Tabelle 4-13), bestätigen generell die Ergebnisse nach Tabelle 4-12. Sie zeigen aber auch, dass an Einzelproben deutlich höhere spezifische Aktivitäten bis zu 70 Bq/g auftreten können.

Tabelle 4-13: Messergebnisse an Zirkonsanden (Messungen IAF)

Ausgangsstoff	Spezifische Aktivität [Bq/kg]				
	U-238	Ra-226	Pb-210	Ra-228	Th-228
Zirkonsand, Pr. 1	3700	3800	3400	570	570
Zirkonsand, Pr. 2	70000	60000	60000	130000	130000
Zirkonsand, Pr. 3	70000	50000	50000	100000	100000
Zirkonsand, Pr. 4	3700	3800	3500	600	580
Zirkonsand, Pr. 5	3500	3700	3500	560	550
Zirkonsand, Pr. 6	3900	4000	3800	760	740
Zirkonsand, Pr. 7	3800	3800	3600	600	580
Zirkonsand, Pr. 8	3000	3300	3800	490	490
Zirkonsand, Pr. 9	3000	3000	3000	700	680
Zirkonsand, Pr. 10	3600	3700	3600	580	560
Zirkonsand, Pr. 11	3900	3900	3600	560	560
Zirkonsand, Pr. 12	3400	3400	3400	500	490
Zirkonsand, Pr. 13	4200	4000	3900	570	580
Zirkonsand, Pr. 14	3200	3800	4000	550	550
Zirkonsand, Pr. 15	3800	3800	4000	620	650
Zirkonsand, Pr. 16	2900	3000	2800	640	680
Zirkonsand, Pr. 17	3100	3000	2600	660	700
Zirkonsand, Pr. 18	3000	3300	3200	800	850
Zirkonsand, Pr. 19	3800	3900	3300	600	580

Angaben zur spezifischen Aktivität von Produkten mit Zirkonmineralien enthält Tabelle 4-14.

Tabelle 4-14: Spezifische Aktivitäten von zirkonhaltigen Produkten /BLA 03/

Quelle	Th 232 [Bq/kg]	Th gesamt [Bq/kg]	U 238 [Bq/kg]	U gesamt [Bq/kg]	Th 232 / U 238
Joh 91 (Zirkon)	620 ± 30	-	3.900 ± 300	-	0,17 ± 0,02
Lis 91 (Zirkonoxid)	360 ± 17	-	5.440 ± 310	-	0,07
Rei 93 (Zirkonsand)	-	640 - 720	-	2.480	-
Hau 92 (Zirkonoxid)	1.250 ± 250	-	3.900 ± 800	-	0,32
Zei 92 (Zirkonsilicat)	790	-	-	-	-

Die spezifische Aktivität anderer Formsande (Quarzsand, Chromitsand) liegt gemäß /BSP 00/ unter der Nachweisgrenze von ca. 5 Bq/kg (0,005 Bq/g) und kann deshalb bei Abschätzungen zur spezifischen Aktivität von Altsanden, die eine Mischung aus Zirkonsand und anderen Formsanden darstellen, vernachlässigt werden.

## 4.8 Materialien mit chemisch abgetrenntem Uran oder Thorium

### 4.8.1 Entstehung und Art von Materialien

Folgende Produkte, denen chemisch abgetrenntes Uran oder Thorium zugesetzt wurde oder die aus chemischen Verbindungen von Uran bzw. Thorium bestehen, werden derzeit in Deutschland noch verwendet:

- thorierte Elektroden (Schweißelektroden, Lampenelektroden),
- thorierte Gasglühstrümpfe,
- thorierte Mg-Legierungen,
- thorierte Optiken.

Bei anderen Produkten wie z.B. Uranglas, Uranfarben ist nicht klar, inwieweit neben historischen Produkten auch neuere Produkte in Deutschland verwendet werden.

Eine Verwendung von Uran- oder Thoriumchemikalien zu chemisch-analytischen oder chemisch-präparativen Zwecken findet in Deutschland außer in Forschungseinrichtungen und Laboratorien auch in der Pharmaindustrie statt.

Radiologisch relevante Materialien der Entsorgung fallen vor allem bei der Herstellung thorierte Schweißelektroden an /HGN 03a/. Generell können allerdings bei allen industriellen oder gewerblichen Arbeiten zur Herstellung oder Verwendung dieser Produkte durch Handhabungsverluste, Lagerverluste oder andere technologisch bedingte Dispergierung Gebäudeteile oder auch Böden kontaminiert werden. Bisher ist nicht genau absehbar, ob beim Recycling von bestimmten Produkten (z.B. Lampenrecycling) eine radiologisch relevante Anreicherung durch Abtrennung von Produktteilen (z.B. Elektroden) stattfindet.

Zu früheren Zeiten waren Herstellung und Verwendung von Produkten mit chemisch abgetrenntem Uran, Thorium oder auch Radium wesentlich häufiger als derzeit. Die daraus resultierenden Materialien werden im Kapitel 4.9 beschrieben.

#### 4.8.2 Regionale Schwerpunkte

Wichtige Standorte der Herstellung von o.g. Produkten liegen in Bayern (Schweißelektroden, Lampenelektroden). Die Produktion von thorierten Gasglühstrümpfen in Berlin wurde inzwischen eingestellt. Die Verwendung der o.g. Produkte lässt sich nicht auf Standorte oder Regionen reduzieren.

#### 4.8.3 Mengen und Aktivitäten

Die in /HGN 03a/ abgeschätzten Mengen und Aktivitäten von Materialien, die als Abfälle aus der Herstellung oder Verwendung von Produkten mit chemisch abgetrenntem Uran oder Thorium in Deutschland anfallen, sind in Tabelle 4-15 aufgeführt. Die Herstellung von Gasglühkörpern wurde nicht aufgeführt, da diese Produktion inzwischen beendet ist. Die Mengen sind insgesamt relativ klein.

Tabelle 4-15: Mengen und Aktivitäten von Abfällen mit chemisch abgetrenntem Uran oder Thorium (nach /HGN 03a/)

Aktivitätsklasse in Bq/g →	Ref.-N.	Masse in Tonnen / Jahr				
		1 – 10	10 – 50	50 – 100	> 100	> 500
Arbeiten mit thorierten Schweißelektroden	Th-232	10	1,5	5,2	0,8	
Verwendung von Gasglühkörpern	Th-232	1			0,2	
Chemikalienreste	Th-232		0,1			0,01
Thorierte Legierungen	Th-232				0,1	
Herstellung thorierte Schweißelektroden	Th-232	10 (*)	12			
Lampenproduktion	Th-232	1 (*)			5	
Verwendung von Uranchemikalien	U-238			0,06		
Thorierte Optiken	Th-232		0,001			
Funde (ohne Quellen)	diverse		25	20	5	<<1

(\*) Aufgenommen zur Berücksichtigung von Bauschutt / Dekontaminationsmaterial bei Rück- und Umbauten.

Durch die Verwendung von chemisch abgetrennten Stoffen mit (im Maßstab natürlicher Stoffe) sehr hohen spezifischen Aktivitäten besteht das Potential zu kleinräumigen aber ausgeprägten Kontaminationen in Böden oder Gebäuden. Abwasseranlagen sind dabei ein besonders zu beachtendes Teilsystem.

Bezüglich bereits bestehender Kontaminationen aus der früheren Herstellung oder Verwendung von Materialien mit chemisch abgetrenntem Uran oder Thorium s. das folgende Kapitel.

## 4.9 Materialien früherer Tätigkeiten und Arbeiten

### 4.9.1 Entstehung und Art von Materialien

Die StrlSchV fokussiert in der Anlage XII Teil A stark auf bergbauliche Prozesse („Gewinnung und Aufbereitung“) sowie die unmittelbar daran anschließenden Prozesse der „Weiterverarbeitung“. Die Abfälle aus der Nutzung von radioaktiven Produkten werden daher durch den Rückstandsbegriff kaum erfasst. Bei der Bewertung von Hinterlassenschaften kann diese Eingrenzung auf die vorgenannten Prozesse weitgehend entfallen. Allerdings sind nach den Festlegungen der StrlSchV (§ 118 Abs. 5) nur Materialien als Rückstände zu betrachten, die bei Sanierungsarbeiten anfallen. Diese Gruppe an Rückständen wurde im Kapitel 3.8 beschrieben. Nicht oder noch nicht sanierte Hinterlassenschaften sind im Kapitel 3.8 nicht aufgeführt. Zusätzlich zu den möglichen Altablagerungen aus früheren Produktionsprozessen der im Kapitel 3 und den Kapiteln 4.2 bis 4.8 behandelten Industrien sind mögliche Standorte im Zusammenhang mit folgenden früheren Tätigkeiten oder Arbeiten:

- Forschungseinrichtungen mit Radionuklidlabors und spezielle Entwicklungslabors für chemische Verfahren (z.B. Fischer-Tropsch-Synthese),
- Verarbeitung von Leuchtfarben in der Uhrenindustrie und ggf. Gerätebau,
- Verarbeitung von Thorium für nicht-kerntechnische Zwecke (Herstellung oder Verwendung von Glühstrümpfen, Schweißelektroden, Lampenelektroden, Spezialgläser, Katalysatoren, Legierungen),
- Verarbeitung, Bearbeitung von Uran und Uranverbindungen vor 1945 (z.B. Uranglasherstellung sowie Uranmetallurgie bei der DEGUSSA in Frankfurt a.M. /NAG 02/).

### 4.9.2 Regionale Schwerpunkte

Ein regionaler Schwerpunkt für bekannte Standorte mit nicht sanierten Hinterlassenschaften der vorgenannten früheren Tätigkeiten oder Arbeiten ist Berlin, wo im Jahr 2000 noch mehrere Flächen mit Thoriumkontamination existierten /HGN 03a/. Darüber hinaus ist für Teilflächen in der Stadt Oranienburg evtl. auch eine Zuordnung der radioaktiven Kontaminationen zur hier betrachteten Herkunft aus der Verwendung von Produkten zu treffen.

Als Verdachtsflächen kommen z.B. Standorte in Frage, auf denen Uhren und Messgeräte oder auch thoriierte Schweißelektroden und Glühstrümpfe produziert wurden. Auch die Herstellung von Uranglas kann zu Hinterlassenschaften geführt haben. Darüber hinaus wurden radioaktive Produkte (vor allem Radium) in der ersten Hälfte des 20. Jahrhunderts in der Medizin verwendet und zahlreichen Konsumgütern zugesetzt (s. /SCH 92/), wobei diese Produktion aber aufgrund der hohen Preise speziell für Radium wahrscheinlich nur einen geringen Umfang einnahm.

Ein bekannter, nicht sanierter Standort der Verwendung von metallischem Uran befindet sich auf dem Gelände der ehemaligen Heeresversuchsanstalt Gottow in Brandenburg /NAG 02/.

### 4.9.3 Mengen und Aktivitäten

Konkrete Angaben zu Mengen und Aktivitäten der noch verbliebenen Hinterlassenschaften mit radioaktiven Kontaminationen sind nicht verfügbar, da bisherige Altlastenprogramme diese Art der Kontamination weitgehend aussparten. Man kann aber davon ausgehen, dass die überwiegende Zahl verbliebener Hinterlassenschaften der hier betrachteten Herkunftsbereiche relativ geringe Massen umfasst.

Eine Ausnahme ist der Standort Oranienburg, für den nach /HGN 03a/ eine zu entsorgende Jahresmenge von ca. 1.000 m<sup>3</sup> erwartet wird. Die dort im Jahr 2004 noch verbliebenen Bodenkontaminationen können nach /HAB 05/ zu ca. 200.000 – 250.000 m<sup>3</sup> Gesamtmasse mit einer Gesamtaktivität von über 200 GBq eingeschätzt werden (vgl. Tabelle 3-50).

Am Standort Gottow wurde bei Untersuchungen des BfS eine nur kleinräumige Bodenkontamination in einem Bereich von ca. 15 x 15 m festgestellt. Die Kontamination ist oberflächennah und reicht nur ca. 15 cm in die Tiefe. Als Ursache der Kontamination wurde Natururan ermittelt. Die höchste gemessene spezifische Aktivität lag bei 290 Bq/g (290.000 Bq/kg) für U-238 /BfS 00/.

## 5 Technologische Prozesse der Radionuklidanreicherung

### 5.1 Phänomenologisches Modell von TENORM bildenden Prozessen

Die bisherigen Erhebungen von NORM/TENORM stellten überwiegend empirische Ermittlungen auf der Basis von Messungen ggf. ergänzt durch chemisch–mineralogische Betrachtungen dar. Ein Ergebnis dieser Vorgehensweise unter Beachtung der tatsächlich in Deutschland durchgeführten Arbeiten und Prozesse ist die Positivliste für TENORM der Anlage XII Teil A StrlSchV.

Für eine prognostische Beurteilung der Radioaktivität von Materialien aus diesen Bereichen und Prozessen aber auch von anderen TENORM-bildenden Prozessen ist eine weitergehende Charakterisierung der Prozesse anzustreben. Ziel dieser im Folgenden beschriebenen Prozesscharakterisierung ist es, durch Einführung von prozessbeschreibenden Parametern eine Datenbasis abzuleiten, die es gestattet, auf der Grundlage von Kenntnissen der Ausgangsstoffe eines Prozesses und ggf. weiterer Prozessparameter Aussagen über die spezifische Aktivität von TENORM relevanten Materialbildungen abzuleiten. Zu diesem Zweck sind die Prozesse durch Modelle und Parameter zu beschreiben, die eine diesbezügliche Aussage gestatten.

Auf der Abstraktionsebene einer phänomenologischen Stoff- und Materialbilanz kann ein einfaches und praktikables Modell abgeleitet werden. Folgende Elementarprozesse zur Bildung von TENORM liegen diesem Modell zugrunde (s. Abbildung 5-1):

- Massenströme aus Ausgangsstoffen/Rohstoffen („A“) und Zusatz-/Zuschlagstoffen („Z“) werden im Prozess aufgespalten in Massenströme der Rückstände („R“) und Produkte („P“). Dabei wird zur Vereinfachung angenommen, dass die massenseitig dominierenden Stoffe „Ausgangsstoffe/Rohstoffe“, die sonstigen dem Prozess zugesetzten Stoffe „Zusatz-/Zuschlagstoffe“ sind.
- Beim Prozess kommt es zu Umverteilungen der Aktivitätsinventare mit einer Anreicherung in den Massenströmen der „Rückstände“ und einer entsprechenden Abreicherung in den „Produkten“. (Diese Unterscheidung ist zunächst rein pragmatisch und nicht grundsätzlich. Selbstverständlich sind theoretisch auch Prozesse möglich, bei denen Radionuklide in Produkten angereichert, in Abfällen abgereichert werden.)

Die Ursachen der Radionuklidumverteilung können physikalische (z.B. Korngrößenfraktionierungen, Phasenänderungen u.a.) oder chemische Reaktionen (z.B. Bildung unlöslicher Reaktionsprodukte) sein. Sie werden durch das Modell nicht kausal beschrieben, sondern nur durch geeignete Modellparameter charakterisiert.

Für diesen Elementarprozess gelten die Bilanzgleichungen

$$\text{Massenbilanz} \quad M_A + M_Z = M_R + M_P \quad (1)$$

$$\text{Aktivitätsbilanz} \quad A_A + A_Z = A_R + A_P \quad (2)$$

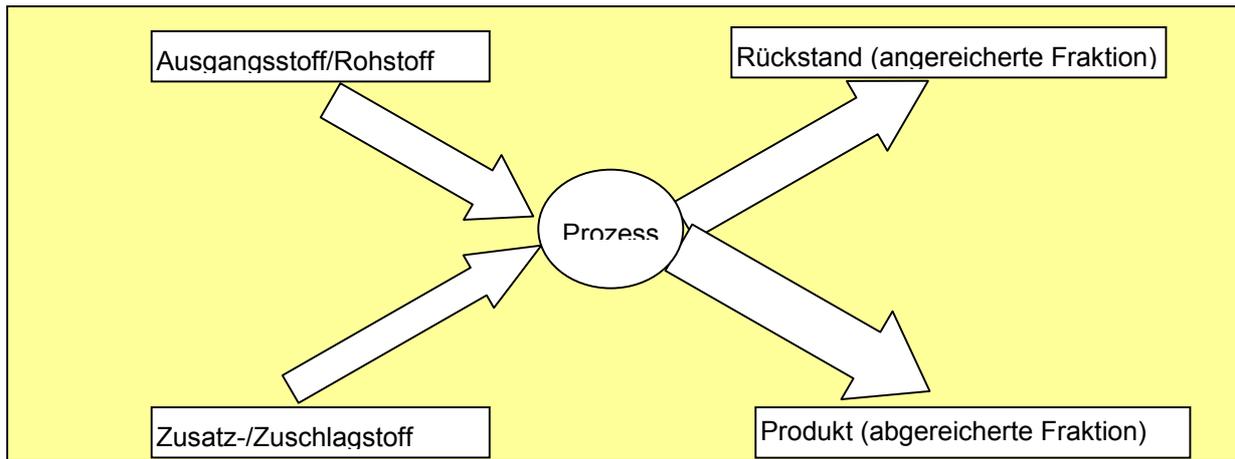


Abbildung 5-1: Schematische Darstellung des Elementarprozesses der TENORM Bildung

Die Umverteilungsprozesse von Radionukliden in den Massenstrom der Rückstände können durch die Parameter

$$\text{Massentrennfaktor} \quad MTF = \frac{M_R}{M_A + M_Z} \quad (3)$$

$$\text{Aktivitätstrennfaktor} \quad ATF = \frac{A_R}{A_A + A_Z} \quad (4)$$

beschrieben werden.

Der Massentrennfaktor ist so gewählt, dass bei großen Werten (Maximalwert 1) die als TENORM zu betrachtende Masse  $M_R$  groß ausfällt. Ein großer Aktivitätstrennfaktor zeigt analog eine weitgehende Übertragung der Gesamtaktivität in den Massenstrom „Rückstände“ an.

Die spezifische Aktivität  $a_R(i)$  jedes Nuklids „i“ im Rückstand ergibt sich zu

$$a_R(i) = \frac{A_R(i)}{M_R(i)} = \left( \frac{ATF(i)}{MTF(i)} \right) \cdot \left( \frac{A_A(i) + A_Z(i)}{M_A(i) + M_Z(i)} \right). \quad (5)$$

Der Anreicherungsfaktor der spezifischen Aktivität zwischen Rückstand und Ausgangsstoff  $EF_{RA}$  ist

$$EF_{RA}(i) = \frac{a_R(i)}{a_A(i)} = \left( \frac{ATF(i)}{MTF(i)} \right) \cdot \left( \frac{1 + A_Z(i)/A_A(i)}{1 + M_Z(i)/M_A(i)} \right). \quad (6)$$

wobei der Faktor

$$\frac{1 + A_Z(i)/A_A(i)}{1 + M_Z(i)/M_A(i)} = ZF_{ZA} \quad (7)$$

einen Korrekturfaktor beschreibt, der das Verhältnis der spezifischen Aktivität des Gemisches Ausgangsstoffe + Zuschlagstoffe zu der spezifischen Aktivität der Ausgangsstoffe berücksichtigt. Werden keine Zuschlagstoffe verwendet, ist dieser Faktor 1, haben die Zuschlagstoffe eine geringere spezifische Aktivität als die Ausgangsstoffe, dann gilt  $ZF_{ZA} < 1$ , ansonsten ist  $ZF_{ZA} > 1$ .

Durch die genannten 3 Kenngrößen kann der Prozess der Aktivitätsfraktionierung zwischen Ausgangsstoffen / Zuschlagstoffen und Rückständen soweit vollständig beschrieben werden, wie es für Aussagen zur Bildung von TENORM erforderlich ist. Hohe spezifische Aktivitäten in Rückständen treten demnach bei hohen  $ATF$  und kleinen  $MTF$  auf, d.h. wenn bei einer Massentrennung eine kleine Rückstandsmasse  $M_R \ll M_A + M_Z$  entsteht und die Gesamtaktivität der  $A_A + A_Z$  zu möglichst großen Teilen auf diese Teilmasse übergeht.

Während der Massentrennfaktor in der Regel gemessen oder abgeschätzt werden kann, ist der Aktivitätstrennfaktor  $ATF$  nicht direkt messbar. Es ist allerdings möglich, diesen Faktor aus dem leicht messbaren Anreicherungsfaktor und dem Massentrennfaktor abzuschätzen, sofern die Zuschlagstoffe nicht entscheidend zur Gesamtaktivität beitragen.

## 5.2 Prozesse der Radionuklidanreicherung aus Wässern

### 5.2.1 Beschreibung der Prozesse der Radionuklidanreicherung bei der Erdgas-, Erdölgewinnung

Die im Zusammenhang mit der Gewinnung von Erdöl- bzw. Erdgas (Prozessbeschreibungen s. Box 5.2-1 und Box 5.2-2) vorkommenden natürlichen Radionuklide stammen primär aus dem Matrixgestein der jeweiligen Lagerstätten. Der Gesteinstyp bestimmt hauptsächlich den Radionuklidinhalt der Reservoirs. Die wichtigsten Öl- und Erdgaslagerstätten befinden sich in karbonathaltigen Ablagerungen, Tongestein, Kalkstein und Kohle. Das mit der Gesteinsformation verbundene Lagerstättenwasser (hydrothermale NaCl-Sole) weist unter den stark reduzierenden Bedingungen der Tiefenwässer durch das Fehlen von Sulfat eine gute Löslichkeit für Barium, Calcium, Strontium und Radium auf. Im Unterschied dazu wird Uran unter reduzierenden Bedingungen nur schlecht gelöst. Thorium ist in diesen Lösungen wegen des neutralen pH-Wertes ebenfalls wenig löslich. Die spezifische Aktivität des Produktionswassers wird daher (neben Radon) hauptsächlich durch Radium dominiert. Dabei können 2 unterschiedliche Typen von Wässern auftreten: Typ-A Wässer sind bariumhaltig und sulfatfrei, während Typ-B Wässer sulfathaltig aber bariumfrei sind /CHA 04/. Die höchsten Radiumkonzentrationen werden nach /CHA 04/ in Typ-A Wässern beobachtet, wobei häufig die Ra-228 Aktivität höher als die von Ra-226 ist.

Durch Fällung gelöster Salze aus den Lagerstättenwässern bei Druck- und Temperaturänderung kommt es in Steigrohren von Förder sonden und allen Anlagenteilen, die mit Lagerstättenwasser in Kontakt kommen, zur Bildung von Ablagerungen (Scales). In Anlagenteilen, in denen sich zusätzlich mitgeförderter Sand und Salzbestandteile abscheiden, bilden sich Schlämme, die auch ausgefällte Salze enthalten können.

Die primären Träger der radioaktiven Kontamination sind die ausgefällten Salze  $Ba/SrSO_4$ ,  $CaCO_3$ ,  $PbS$  bzw. Gemische davon. Untergeordnet und regional begrenzt tritt  $CaF_2(Ra)$  auf /WEG 04/. Diese Minerale

bilden gemeinsam mit Quarz ( $\text{SiO}_2$ ) die Hauptbestandteile der von Scales und die radiologischen relevanten Komponenten von Schlämmen.

#### Box 5.2-1: Gewinnung von Erdöl

Beim Erdöl wird das Bohrloch vor Aufnahme der Förderung ähnlich wie beim Erdgas durch Einbau eines Steigrohres und Perforation im Bereich der Lagerstätte weiter ausgerüstet. In der ersten Phase fließt das Erdöl aufgrund des natürlichen Lagerstättendrucks, der z. B. in 2.500 m Tiefe ca. 250 bar beträgt, selbsttätig zu den Produktionssonden und steigt eruptiv an die Erdoberfläche. Mit dem Absinken des Drucks werden zusätzliche Techniken erforderlich.

Unter günstigen Umständen (starker Wassertrieb, gute Lagerstättenausbildung), kann eine primäre Entölung von über 50 % erreicht werden. In ungünstigen Fällen (unzureichender Lagerstättendruck oder hohe Viskosität des Erdöls), liegen die primären Entölungsgrade bei nur 5 bis 15 % des ursprünglichen Lagerstätteninhalts. In Deutschland beträgt die durchschnittliche Entölung durch Primärverfahren rund 18 %.

Um gute Produktionsbedingungen auch nach der Primärförderung aufrechtzuerhalten, ist es erforderlich, den Lagerstättendruck wieder aufzubauen. Die gebräuchlichste Methode stellt das Wasserfluten dar, bei dem fortlaufend Wasser in das Speichergestein eingepresst wird, um den Druck in der Lagerstätte zu erhöhen oder aufrechtzuerhalten. Damit kann der Entölungsgrad durchschnittlich auf 32 % gesteigert werden. Durch sogenannte tertiäre Gewinnungsverfahren (z.B. Einpressen von heißem Wasser und Dampf) kann der Nutzungsgrad von Erdöllagerstätten auf bis zu 60 % erhöht werden, wobei die Fließbewegung des Erdöls im Porenraum des Speichergestein erhöht wird. Man kann davon ausgehen, dass durchschnittlich ca. ein Drittel des in einer Lagerstätte vorhandenen Erdöls gefördert wird.

Das Erdöl wird vor einer Verarbeitung in einer Raffinerie Übertage aufbereitet. Dabei werden das im Rohöl enthaltene Erdölgas und Verunreinigungen, wie Lagerstättenwasser, Sand und Salz, abgeschieden. Das abgetrennte Wasser wird über Injektionsbohrungen zur Druckerhaltung wieder in die Lagerstätten eingepresst. Das anfallende Erdölgas dient der Wärmeerzeugung.

#### Box 5.2-2: Gewinnung von Erdgas

Erdgas besteht im Normalfall zu etwa 90 % aus Methan ( $\text{CH}_4$ ). Neben Bestandteilen an höheren Kohlenwasserstoffen wie Äthan, Propan und Butan sind fast immer nicht brennbare Bestandteile wie Kohlendioxid ( $\text{CO}_2$ ) und Stickstoff ( $\text{N}_2$ ) vorhanden. Etwa 40 % der inländischen Erdgasreserven enthalten in unterschiedlich hohen Konzentrationen Schwefelwasserstoff ( $\text{H}_2\text{S}$ ).

Zur Förderung von Erdgas wird in das verrohrte und zementierte Bohrloch ein Steigrohr eingebaut, das bis zum tiefsten Punkt der Lagerstätte reicht. Damit das Gas aus der Gesteinsschicht, in der sich das Erdgas befindet, in dieses Rohr eintreten kann, wird sein unterstes Teilstück mit Hilfe kleiner Sprengsätze zur Lagerstätte hin geöffnet. Übertage (obererdig) ist das Bohrloch mit einem Eruptionskrenz verschlossen.

Aufgrund des natürlichen Lagerstättendrucks können im allgemeinen etwa 75 % des Gasinhaltes aus dem Trägergestein gewonnen werden. Dieser günstige Ausbeutegrad beruht darauf, dass Erdgas gute Strömungseigenschaften besitzt und in den Lagerstätten unter vergleichsweise hohem Druck steht.

Reicht der natürliche Druck für eine Einspeisung in das Hochdrucktransportsystem nicht mehr aus, werden zwischen Sonde und Transportnetz Verdichter zur Druckerhöhung installiert. Aus tiefliegenden Erdgaslagerstätten, z. B. in den Formationen des Rotliegenden oder Karbon, können bei sehr gering durchlässigem Gestein oftmals keine für eine wirtschaftliche Produktion erforderlichen Förderraten erzielt werden. Die Durchlässigkeit der Lagerstätte wird durch die Schaffung von künstlichen Fließwegen erhöht. Beim sogenannten Frac-Verfahren wird das Gestein durch Einpressen einer mit Speziands beladenen Flüssigkeit unter hohem Druck aufgebrochen. Ein hydraulischer Druck von rund 1.000 bar erzeugt im Gestein Risse von mehreren 100 m Länge. Diese werden mit einem Stützmittel gefüllt, das aus Speziands besteht. Über die erzeugten Risse werden bessere Fließbedingungen für das Erdgas geschaffen. Frac-Verfahren sind in Deutschland schon vielfach erfolgreich angewendet worden.

Das aus der Tiefe kommende Erdgas wird Übertage in Trocknungsanlagen behandelt. Diese scheiden mitgefördertes Lagerstättenwasser, flüssige Kohlenwasserstoffe und Feststoffe ab. Der noch verbliebene Wasserdampf wird dem Gas unter Verwendung von Glykol entzogen. Das aus der geologischen Formation des Zechsteins geförderte schwefelwasserstoffhaltige Erdgas (Sauergas) erfordert eine spezielle Aufbereitung, wobei in chemisch-physikalischen Waschprozessen der Schwefelwasserstoff entzogen wird. Der Schwefelwasserstoff wird in elementarem Schwefel umgewandelt und dient hauptsächlich der chemischen Industrie als Grundstoff. Die Schwefelproduktion aus der Erdgasgewinnung beträgt in Deutschland rund 1 Million Tonnen pro Jahr /BMW 04/.

In die sulfatischen Minerale wird das Erdalkalielelement Radium aufgrund seiner homologen Eigenschaften eingebaut, in die sulfidischen Minerale das Pb-210. Durch diese Art der Entstehung werden primär nur Ra-226 und Ra-228 und/oder Pb-210 in den Ablagerungen angereichert. Die jeweiligen Tochternuklide, insbesondere Th-228 und Pb-210/Po-210 wachsen nach. Bei Scales mit sulfatischer Zusammensetzung treten daher die höchsten spezifischen Aktivitäten der Radium-Isotope auf. Bei karbonatischen Ablagerungen sind die spezifischen Aktivitäten deutlich geringer. Sobald die Salze nicht an den Anlagenteilen haften oder bei Strömungsprozessen abrasiv entfernt werden, setzen sie sich gemeinsam mit anderen Partikeln als Schlämme ab.

Zusammenfassend ist festzustellen, dass der entscheidende Prozess der Radionuklidanreicherung in den Scales die Mitfällung gelöster Radionuklide (Radium, Pb-210) mit anderen Erdalkalielelementen aus dem Lagerstättenwasser ist.

## 5.2.2 Ermittlung von Prozessparametern für die mittlere Scalebildung bei der Erdgas-, Erdölgewinnung

Zur Anwendung des Modells nach Kapitel 5.1 sind die aus Messungen bekannten Prozessparameter zusammenzustellen, um anschließend die offenen Größen abschätzen und damit den Prozess vollständig charakterisieren zu können. Im Folgenden wird zunächst für die Gesamtmengen der deutschen Erdöl- und Erdgasgewinnung eine derartige Modellanwendung vorgenommen.

Ausgangsstoff („A“) für die Bildung von Ablagerungen ist das Lagerstättenwasser. Zusatz-/Zuschlagstoffen („Z“) werden nicht eingebracht. Die gebildeten Ablagerungen sind die zu bewertenden Rückstände („R“). Als „Produkt“ („P“) verbleibt das geförderte Lagerstättenwasser.

Einen Überblick über Aktivitätskonzentrationen von Wässern aus der Erdöl- und Erdgasindustrie, d.h. des „**Ausgangsstoffes**“ im vorgenannten Sinne, geben Untersuchungen von Kolb und Woicik /KOL 85/. In /KOL 85/ sind die in der Tabelle 5-1 angegebenen mittleren Aktivitätskonzentrationen von Ra-226 und Ra-228 angegeben. Daraus ist ersichtlich, dass der Variationsbereich der Aktivitätskonzentrationen bei den Erdgaswässern größer als bei den Erdölwässern ist. Des Weiteren ist wichtig zu konstatieren, dass in den meisten Wasserproben aus Erdgasfeldern Ra-226 dominiert, während die Wässer aus den Erdölfeldern vorwiegend höhere Konzentrationen an Ra-228 enthalten.

Aus den Untersuchungen von Kolb und Woicik /KOL 85/ folgt, dass bei der Erdgasförderung der Anteil des mitgeführten Wassers zwischen 0 und 5.000 g je m<sup>3</sup> gefördertem Erdgas schwankt. Der Mittelwert beträgt 114 g/m<sup>3</sup>, so dass sich daraus eine jährliche Wassermenge von ca. 2 Mio. m<sup>3</sup> errechnet, wenn eine jährliche Erdgasproduktion von ca. 2 · 10<sup>10</sup> m<sup>3</sup> zugrunde gelegt wird.

Tabelle 5-1: Aktivitätskonzentrationen von Ra-226 und Ra-228 in Wässern aus der Erdgas- und Erdölförderung /KOL 85/

	Medianwert [Bq/l]	Mittelwert [Bq/l]	Maximum [Bq/l]	Anzahl der Werte
<b>Erdgas</b>				
<b>Ra-226</b>	0,23	8,8	217	96
<b>Ra-228</b>	4,4	8,7	41	21
<b>Erdöl</b>				
<b>Ra-226</b>	4,5	6,3	22	76
<b>Ra-228</b>	13	14	37	25

Angaben zu den spezifischen Aktivitäten der Scales als **Rückstände** im Sinne der Prozessanalyse können aus der Auswertung von mehreren hundert Einzelmessungen an Scales durch IAF abgeleitet werden. Diese Datenanalyse führt zu folgenden Befunden:

- Die spezifische Ra-226-Aktivität der Scales erreicht Werte bis 600 Bq/g, im Mittel ist von ca. 30 - 150 Bq/g auszugehen.
- Die Höhe der spezifischen Aktivität ist in den Fördergebieten verschieden.
- Die höchsten spezifischen Pb-210-Aktivitäten lagen im Bereich von 500 Bq/g, im Mittel ist von ca. 30 - 150 Bq/g auszugehen.
- Po-210 ist im radioaktiven Gleichgewicht mit Pb-210.
- Bei nur wenige Jahre alten Steigrohren sind die spezifischen Aktivitäten von Ra-228 und Th-228 etwa um den Faktor 3 geringer als die von Ra-226. Bei älteren Steigrohren dominiert die spezifische Ra-226-Aktivität gegenüber der von Ra-228 und Th-228 noch deutlich stärker.
- Die spezifischen Aktivitäten der primordialen Radionuklide U-238 und Th-232 liegen unterhalb von 1 Bq/g.

Angaben zur spezifischen Aktivität des zutage geförderten Lagerstättenwassers („Produkt“) in Relation zum ursprünglichen Lagerstättenwasser („Rohstoff“) sind nicht verfügbar. Man kann aber davon ausgehen, dass die Fällung der Salze die Massenströme des Lagerstättenwassers praktisch nicht verändert.

Mit den vorgenannten Angaben und den Daten der Tabelle 5-1 erhält man als Prozessparameter bezogen auf eine Jahresmenge und das Referenznuclid Ra-226:

- Mitgeförderte Wassermenge  $V_A = 2E+6 \text{ m}^3$   $M_A = 2,4E+6 \text{ t}$  (bei Dichte 1,2 t/m<sup>3</sup>)
- Gesamtaktivität Ra-226 des mitgeförderten Wassers:  
 $A_A = 8,8E+3 \text{ Bq/m}^3 \times 2E+6 \text{ m}^3$   $A_A = 17,6E+9 \text{ Bq}$
- Scales in Fördersonden:

$$EF = \frac{(30 \text{ bis } 150 \text{ Bq/g})}{(0,23 \text{ bis } 8,8) \text{ Bq/1000g}} = (130 \text{ bis } 17) \cdot 1000 \quad EF(\text{Ra-226}) \text{ ca. } 17.000 - 130.000$$

- $M_Z = 0; A_Z = 0 \quad \rightarrow \quad ZF_{ZA} = 1$
- Bei Annahme, dass 10 % der Ausgangsaktivität in die Scales gelangen  $ATF = 0,1$
- Und  $a_R = 100 \text{ Bq/g} \quad a_R = 100 \text{ MBq/t}$
- folgt  $M_R = ATF \cdot A_A / a_R = 1,76E+3 \text{ MBq/100 MBq/t} \quad M_R = 17,6 \text{ t}$
- und damit  $MTF = M_R / M_A = 17,6 / 2,4E+6 \quad MTF = 7,3E-6$

Die Modellbilanz führt mit der Annahme, dass nur 10 % der Ra-226 Ausgangsaktivität in Förderanlagen abgelagert werden, zu einer Menge von ca. 20 t Scale, die jährlich bei der Erdgasförderung neu gebildet werden. Diese Masse ist nach bisherigen Einschätzungen weitgehend plausibel.

Bei der Erdölförderung ist der Wasseranfall wesentlich höher bei der Erdgasgewinnung. Es ist davon auszugehen, dass ca. 85% des geförderten Nassöls Lagerstättenwasser ist. So mussten 1973 ca. 46 Mio. m<sup>3</sup> Nassöl gefördert werden, um 5,5 Mio. t Erdöl zu gewinnen /KOL 85/. Mit analogen Modelldaten zum Erdgas ergibt sich für die Erdölscales wiederum bezogen auf Ra-226:

- Mitgeführte Wassermenge  $V_A = 40E+6 \text{ m}^3 \quad M_A = 48E+6 \text{ t}$
- Gesamtaktivität Ra-226 des mitgeführten Wassers:  
 $A_A = 6,3E+3 \text{ Bq/m}^3 \times 40E+6 \text{ m}^3 \quad A_A = 252E+9 \text{ Bq}$
- Scales in Fördersonden:

$$EF = \frac{(30 \text{ bis } 150 \text{ Bq/g})}{6,3 \text{ Bq/1000g}} = (5 \text{ bis } 24) \cdot 1000 \quad EF(\text{Ra-226}) = 5.000 \text{ bis } 24.000$$

- $M_Z = 0; A_Z = 0 \quad \rightarrow \quad ZF_{ZA} = 1$
- Bei Annahme, dass 10 % der Ausgangsaktivität in die Scales gelangen  $ATF = 0,1$
- Und  $a_R = 100 \text{ Bq/g} \quad a_R = 100 \text{ MBq/t}$
- folgt  $M_R = ATF \cdot A_A / a_R = 25,2E+3 \text{ MBq/100 MBq/t} \quad M_R = 252 \text{ t}$
- und damit  $MTF = M_R / M_A = 252 / 48E+6 \quad MTF = 5,2E-6$

Nach dieser Abschätzung müssten sich im Bereich der Erdölgewinnung jährlich mehr als 100 t Scales bilden.

Die Kontrolle dieser so abgeschätzten Jahresmengen ist schwierig, da in der Praxis nicht das Aufkommen an primären Scales erfasst wird. Im Zusammenhang mit dem Rückbau von Fördersonden und überträgigen Anlagen der Gewinnung und Aufbereitung von Erdöl / Erdgas haben sich Reinigungen der inneren, kontami-

nierten Oberflächen bewährt. Ziel dieser Reinigung ist es, umweltrelevante Stoffe, insbesondere Quecksilber und Radium von den metallischen Trägermaterialien so zu trennen, dass diese Metalle uneingeschränkt recycelt werden können. Im Ergebnis dieser Reinigung fallen schlammige Rückstände an, die zumeist in Fässern abgefüllt für weitere Entsorgungsschritte bereitgestellt werden. In diesen Schlämmen werden die primären Ablagerungen durch mitgeförderte Partikel und Ölreste verdünnt. Wird darüber hinaus eine Sandstrahlreinigung der Oberflächen vorgenommen, ist eine weitere Abnahme der spezifischen Aktivität durch diesen „Zuschlagstoff“ die Folge.

Als Fazit der radiologischen Untersuchungen von Schlämmen ist zusammenfassend zu konstatieren:

- Die spezifischen Aktivitäten der primordialen Radionuklide U-238 und Th-232 sind bis auf wenige Ausnahmen kleiner als 1 Bq/g, in vielen Fällen < 0,2 Bq/g.
- Sowohl Ra-226 als auch Pb-210 können Leitnuklide der Gemische sein.
- Die spezifische Ra-226-Aktivität erreicht Werte bis etwa 150 Bq/g, im Mittel ist eher von ca. (5 - 20) Bq/g auszugehen. Das entspricht einem Anreicherungsfaktor von ca.  $10.000 / 8 \approx 1.200$ .
- Das Aktivitätsverhältnis von Pb-210 zu Ra-226 kann bis zum Faktor 20 betragen und in Einzelfällen bei geringer Ra-226-Aktivität noch größer sein.
- Die höchsten spezifischen Pb-210-Aktivitäten liegen im Bereich von 500 Bq/g, im Mittel liegen sie wie bei Ra-226 bei ca. (5 - 20) Bq/g.
- Po-210 steht im radioaktiven Gleichgewicht mit Pb-210.
- Die spezifischen Aktivitäten von Ra-228 und Th-228 können Werte bis zu 50 Bq/g erreichen. Im Mittel ist von ca. (2 - 5) Bq/g auszugehen. Die spezifischen Aktivitäten von Ra-228 und Th-228 sind jedoch stark von der Lagerungszeit der Rückstände abhängig.
- Das Aktivitätsverhältnis von Pb-210 zu Ra-226 variiert wegen der kontinuierlichen Ablagerung in den Rohren nicht so stark wie bei den Schlämmen.

### 5.2.3 Ermittlung von Prozessparametern für eine Erdgassonde

Eine Einzeluntersuchung, bei der aus Daten einer Bohrung sowohl die Aktivität, der Nuklidvektor und die physikalisch-chemische Beschaffenheit des Lagerstättenwassers mit den spezifischen Aktivitäten von Ablagerungen in Bezug gesetzt werden kann, wurde bisher nicht publiziert. Eine Detailuntersuchung von IAF an einer Fördersonde zeigt allerdings, dass die im vorhergehenden Abschnitt ermittelten Modellparameter nicht auf Einzelbohrungen übertragbar sind.

Die gemessene spezifische Aktivität der relevanten Radionuklide in Scales einer ca. 5 km langen Erdgassonde ist in Abhängigkeit von der Tiefe in der Abbildung 5-2 dargestellt. Es sind deutlich zwei Trends zu erkennen. Zum einen verringert sich die spezifische Aktivität von Ra-226, Ra-228 und Th-228 annähernd graduell mit der Sondentiefe. Die niedrigsten Aktivitäten treten im Eintrittsbereich in ca. 5 km Tiefe auf. Die spe-

zifischen Aktivitäten von Ra-228 und Th-228 sind in etwa gleich groß und nur um ca. den Faktor 1,3 geringer als die von Ra-226 (s. Abbildung 5-3). Zum anderen weist die spezifische Aktivität von Pb-210 ein Maximum in etwa in der Mitte des Stranges auf. In diesem Bereich ist die spezifische Pb-210-Aktivität annähernd so groß wie die von Ra-226. Oberhalb und unterhalb von ca. 2.600 m ist die spezifische Ra-226-Aktivität immer deutlich höher als die von Pb-210 (s. Abbildung 5-3). Ob dieses Resultat verallgemeinert werden kann, ist nur durch weitere Untersuchungen belegbar.

Diese Ergebnisse zeigen, dass praktisch nicht von konstanten Bedingungen der Nuklidanreicherung in einer Fördersonde auszugehen ist. Durch die sich ändernden Druck- und Temperaturverhältnisse sind die Bedingungen der Scalebildung bereits in einer Fördersonde nicht gleich. Beachtet man allerdings, dass die Dicke der Scaleschicht sich ebenfalls mit der Sondentiefe ändert (s. Abbildung 5-4), so zeigt sich, dass im unteren Bereich der Sonde die Scaleschicht deutlich größer ist als in den oberen Bereichen. Die geringeren Schichtdicken aus dem oberen Bereich der Sonde weisen aber die höchsten spezifischen Aktivitäten (s. Abbildung 5-2). Dieser Befund zeigt deutlich, dass die Anreicherung umso stärker wird, je weniger Masse aus dem Förderstrom abgelagert wird, je kleiner also der Massentrennfaktor MTF wird.

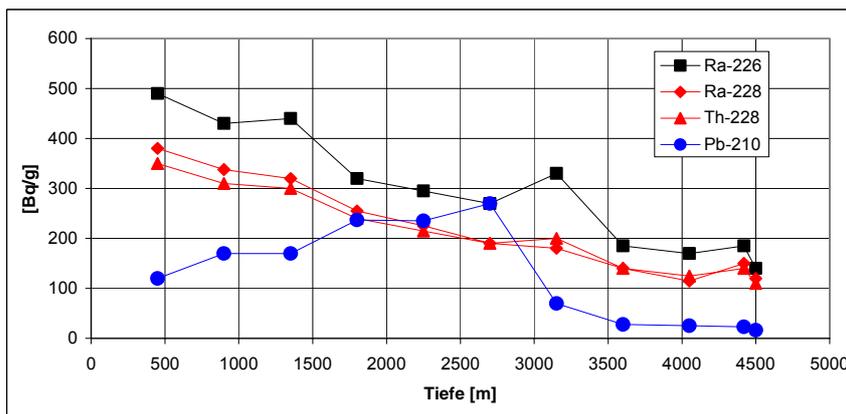


Abbildung 5-2: Spezifische Aktivität der relevanten Radionuklide in Scales einer ca. 5 km langen Sonde der Erdgasförderung (Musteruntersuchung)

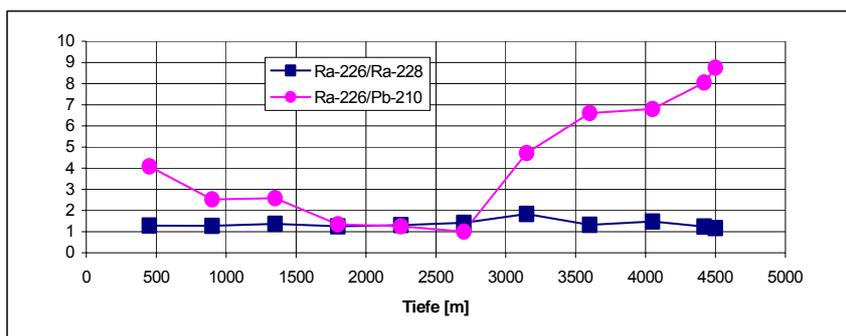


Abbildung 5-3: Verhältnis der spezifischen Aktivitäten von Ra-226 und Ra-228 sowie Ra-226 und Pb-210 in Abhängigkeit von der Tiefe (s.a. Abbildung 5-2)

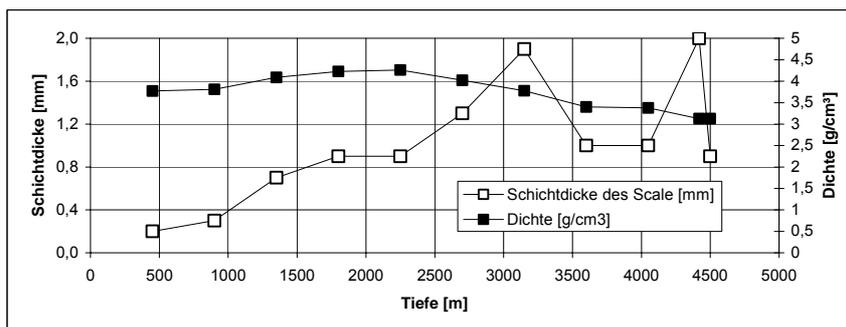


Abbildung 5-4: Abhängigkeit der Dicke der Scaleschicht und der Scaledichte von der Sondentiefe

## 5.2.4 Begleitende Anreicherungen anderer Schadstoffe bei der Erdgas-, Erdölgewinnung

Neben den Radionukliden enthalten die Schlämme teilweise eine beträchtliche Menge (ca. 10 - 15 Masse%) an Quecksilber und Blei (als Sulfitverbindung oder metallisch). Der Quecksilbergehalt der Scales ist in der Regel geringer als der der Reinigungsschlämme. Doch sind auch hier, bedingt durch die verschiedenartigen Förderstätten, große Unterschiede erkennbar. Erste Ergebnisse einer Rezyklierung von ca. 15 t scaleartigen Rückständen, die im Zuge einer Hochdruckreinigung von Sondenrohren erhalten wurden, zeigen, dass von einem Quecksilbergehalt bis ca. 10% auszugehen ist /MOT 03/.

## 5.2.5 Radionuklidanreicherungen bei der Geothermie

Die bisher beschriebenen Radiumablagerungen in Anlagen der Geothermie sind auf saline Tiefenwässer zurückzuführen, deren Wärme genutzt wird. Da sich die Anlagen Waren und Neustadt-Glewe in Norddeutschland befinden ist von ähnlichen hydrogeochemischen Verhältnissen wie bei den Formationswässern der Erdöl-/Erdgasgewinnung auszugehen. Die Radionuklidanreicherung ist auch hier auf die Fällung von Bariumsalzen bei Änderung der Druck- und Temperaturverhältnisse zurückzuführen.

Konkrete Angaben zu den radiologischen Verhältnissen im geothermischen Heizwerk Neustadt-Glewe publizierten Köhler u.a. /KÖH 03/. Das Kraftwerk Neustadt-Glewe gewinnt Wärmeenergie aus 100 C heißem Wasser, welches aus einem 50 bis 100 m mächtigen Sandsteinreservoir in 2.450 m Tiefe gepumpt wird. Um 6,5 MW thermische Leistung bereitzustellen, müssen bis zu 120 m<sup>3</sup> h<sup>-1</sup> durch die Anlage fließen. Neben einer hohen Salzkonzentration von 216 g l<sup>-1</sup> enthält das geförderte Wasser 5,9 Bq l<sup>-1</sup> Ra-226, 1,7 Bq l<sup>-1</sup> Pb-210, 8,2 Bq l<sup>-1</sup> Ra-228 und 2 · 10<sup>4</sup> Bq l<sup>-1</sup> Rn-222. Die Quelle dieser Radionuklide sind die langlebigen Mutternuklide U-238 und Th-232 in den Speichergesteinen, die spezifische Aktivitäten von je 60 Bq kg<sup>-1</sup> aufweisen.

Untersuchte Ablagerungen (Scale) an Pumpen, Rohren und die Filter wiesen Radionuklidaktivitäten von bis zu 10<sup>4</sup> Bq kg<sup>-1</sup> Ra-226, 10<sup>5</sup> Bq kg<sup>-1</sup> Pb-210 und 10<sup>4</sup> Bq kg<sup>-1</sup> Ra-228 auf. Th-228 befindet sich dabei nicht im radioaktiven Gleichgewicht mit dem Vorgängernuklid Ra-228 und wächst mit T<sub>1/2</sub> = 1,9 a nach.

Mit den vorgenannten Angaben erhält man als Prozessparameter bezogen auf die Nuklide Ra-226, Ra-228 sowie Pb-210:

- Geförderte Wassermenge pro Jahr (bei 100 m<sup>3</sup>/h) V<sub>A</sub> = 0,876E+6 m<sup>3</sup>  
bei Dichte 1,2 t/m<sup>3</sup> M<sub>A</sub> = 1,05E+6 t
- Gesamtaktivität des Wassers pro Jahr: A<sub>A</sub>(Ra-226)= 5,2E+9 Bq  
A<sub>A</sub>(Ra-228) = 7,2E+9 Bq  
A<sub>A</sub>(Pb-210) = 1,5E+9 Bq
- M<sub>Z</sub> = 0; A<sub>Z</sub> = 0 → ZF<sub>ZA</sub> = 1

- Scales in Anlagenteilen<sup>11</sup>:
 

$EF(\text{Ra-226}) < 10^4 \text{ Bq/kg} / 4,9 \text{ Bq/kg} = 2,0\text{E}+3$	
$EF(\text{Ra-228}) < 10^4 \text{ Bq/kg} / 6,8 \text{ Bq/kg} = 1,5\text{E}+3$	
$EF(\text{Pb-210}) < 10^5 \text{ Bq/kg} / 1,4 \text{ Bq/kg} = 71\text{E}+3$	
- Bei der analog zur Scalebildung in Erdöl-/Erdgassonden getroffenen Annahme, dass 10 % der Ausgangsaktivität von Ra-226 bzw. Ra-228 in die Scales gelangen, d.h. ATF = 0,1
- und  $a_R = 10 \text{ Bq/g}$  (Ra-226 und Ra-228)  $a_R = 10 \text{ MBq/t}$
- folgt  $M_R = \text{ATF} \cdot A_A / a_R = (0,52 \text{ bis } 0,72)\text{E}+3 \text{ MBq}/10 \text{ MBq/t}$   $M_R = 52 \text{ bis } 72 \text{ t}$
- und damit  $\text{MTF} = M_R / M_A = (52 \dots 72)/1,05\text{E}+6$   $\text{MTF} = (50 \dots 70)\text{E}-6$

Diese Modellbilanz führt zu einer Menge von ca. 50 bis 70 t Scale, die jährlich in Anlagenteilen neu gebildet werden. Bei einer Scaledichte von ca. 3 kg/l entspricht das einem Volumen von ca. 20 m<sup>3</sup>. Dieses Volumen ergibt für zwei ca. 2.500 m tiefen Bohrungen (Förderbrunnen, Schluckbrunnen) bei einem Rohrdurchmesser von 0,5 m eine mittlere Ablagerungsrate von 2,5 mm/a. Diese Rate ist nach bisherigen Einschätzungen tendenziell hoch, was sich auch in einem verglichen mit den Erdöl-scales 10fach höheren MTF widerspiegelt. Von der Größenordnung ist aber das Ergebnis durchaus akzeptabel. Auch wenn die Rate durch geringere ATF- und MTF-Werte ggf. um 1 Größenordnung geringer ausfällt, ist festzuhalten, dass durch die großen geförderten Wassermengen bei der Tiefengeothermie ein beträchtliches Potential an Scalebildung vorhanden ist, das längerfristig zu großen Scalemengen führen kann.

### 5.2.6 Radionuklidanreicherungen im Steinkohlenbergbau

Die Radionuklidanreicherungen aus Grubenwässern des Steinkohlenbergbaus unterscheiden sich von denen der Erdöl-Erdgasgewinnung oder der Geothermie, da einem Grubengebäude meist Wässer verschiedener hydrogeochemischer Typen zusitzen. Selbst Wässer mit erhöhten Radiumkonzentrationen in einem Bergwerk müssen nicht vom gleichen Typ (A-Typ, B-Typ s. Kap. 5.2.1) sein. Das hat zur Folge, dass die bei der Ableitung der Wässer (unbeabsichtigt) auftretenden Mischungen der Wässer zu chemischen Reaktionen und dem Ausfällen von Verbindungen führen können. Dabei spielt dabei offensichtlich neben dem Ausfällen von Bariumsulfaten die Bildung von Eisenhydroxiden durch den Kontakt mit Grubenluft oder sogar gezielte Luftzugabe eine wesentliche Rolle.

Auswertbare Daten zum Gesamtprozess der Radionuklidanreicherung waren für diese Studie nicht verfügbar. Grundsätzlich ist von ähnlichen Modellparametern wie in den anderen Teilen des Kapitels 5.2 beschrieben auszugehen.

<sup>11</sup> Bei Dichte des Tiefenwassers von 1,2 kg/l

### 5.2.7 Radionuklidanreicherungen in der Wasserwirtschaft

Die Anreicherung von Radionukliden in Schlämmen und Ablagerungen der Wasserwirtschaft ist seit längerem bekannt. Ursache dieser Anreicherungen sind zum einen Mitfällungen der Radionuklide mit anderen spontan ausfallenden oder bei technischen Wasserreinigungsprozessen ausgefällten Wasserinhaltsstoffen sowie die Adsorption an oberflächenaktiven Substanzen, wie z.B. Eisen-Mangan-Hydroxiden. Daten, die eine einzelprozessbezogene Auswertung auf der Basis des Modells nach Kapitel 5.1 gestatten, standen für diese Studie nicht zur Verfügung. Als grobe Orientierung wurden daher die Bilanzdaten der deutschen Wasserwirtschaft insgesamt herangezogen.

In Deutschland betrug die Rohwasserförderung zur Wasserversorgung der Bevölkerung im Zeitraum 1995-1998 insgesamt zwischen 6,1 bis 6,5 Milliarden m<sup>3</sup> /SBA 02/). Dabei fielen im Jahr 1998 durch Aufbereitungsprozesse ca. 180.000 t (Trockenmasse) Schlämme und andere Reinigungsrückstände<sup>12</sup> an /WIC04/.

Die Massen und Aktivitäten der zur Wasserreinigung genutzten Zuschlagstoffe (Aluminiumoxid, Eisenhydroxid, Kalk, u.a.) sind nicht statistisch erfasst. Es kann allerdings davon ausgegangen werden, dass ihr Massen- und Aktivitätsanteil bezogen auf die Rohwasserförderung gering ist.

Damit ergibt sich ein Massentrennungsfaktor für die Wasseraufbereitung von  $MTF = 2,8 \cdot 10^{-5}$ .

Die Aktivitätsabtrennung kann aus den Messungen von Radionuklidkonzentrationen in Roh- und Reinwasser von Wasserwerken abgeschätzt werden. Vernachlässigt man die Radioaktivität der zur Aufbereitung eingesetzten Zuschlagstoffe und das Volumen der Aufbereitungsschlämme in Relation zum Wasserdurchsatz (d.h. Volumen Rohwasser = Volumen Reinwasser), dann gilt:

$$A_R = (A_{\text{Rohwasser}} - A_{\text{Reinwasser}})$$

$$ATR = (A_{\text{Rohwasser}} - A_{\text{Reinwasser}}) / A_{\text{Rohwasser}} = 1 - C_{\text{Reinwasser}} / C_{\text{Rohwasser}}$$

Dabei ist allerdings zu berücksichtigen, dass es bei längerem Betrieb von Festbettfiltern zu sekundären Rücklösungen von Radionukliden kommen kann, so dass die gemessenen Konzentrationen im Reinwasser höher als die im Rohwasser ausfallen. In solchen Fällen wird im Modell nach Kapitel 5.1 der Aktivitätstrennfaktor negativ.

Aus unveröffentlichten Daten des Untersuchungsprogramms des BfS sowie von IAF ergeben sich die nuklid-spezifischen Aktivitätstrennfaktoren nach Tabelle 5-2. In dieser Tabelle sind auch die aus den Aktivitätstrennfaktoren ableitbaren Anreicherungsfaktoren und Angaben zur daraus abschätzbaren mittleren spezifischen Aktivität der Wasserreinigungsrückstände enthalten. Diese Daten sind als Orientierungswerte für die Anreicherungsprozesse in der Wasserwirtschaft zu verstehen. Sie können in Einzelanlagen erheblich abweichen.

Hinzuweisen ist auf den nach Datenlage auffälligen Befund für Pb-210. Sowohl die verfügbaren Daten in Roh- und Reinwasser als auch Messbefunde von Wasserwerksschlämmen weisen auf eine relativ geringe

<sup>12</sup> Der Begriff „Reinigungsrückstände“ ist in der Wasserwirtschaft gebräuchlich. Er ist nicht als Hinweis auf Rückstände im Sinne der StrlSchV zu verstehen.

Rückhaltung von Pb-210 bei der Wasseraufbereitung hin. Dieser Befund ist in Anbetracht des ansonsten sehr immobilen Verhaltens von Pb-210 in wässrigen Lösungen nicht einfach zu verstehen.

Tabelle 5-2: Nuklidspezifische Modellparameter für Wasseraufbereitung

	<b>U-238</b>	<b>Ra-226</b>	<b>Pb-210</b>	<b>Ra-228</b>
MTF	2,8E-5	2,8E-5	2,8E-5	2,8E-5
ATF (hier: $1 - C_{\text{Reinwasser}}/C_{\text{Rohwasser}}$ )	0,05 - 0,1	0,2 - 0,8	-1 - 0,3	0,2 - 0,8
EF = ATF / MTF	1.800 - 3.600	7.200 - 28.000	< 1.000 (?)	7.200 - 28.000
$a_{\text{Wasser}}$ (Bq/kg) (*)	0,006	0,005	0,0057	0,004
$a_{\text{Rückstand}}$ (Bq/kg) = $a_{\text{Wasser}} \cdot \text{EF}$	11 - 22	36 - 140	< 6	29 - 112

(\*) Werte nach /BÜN 01/, umgerechnet mit Dichte 1 kg/l

Zu beachten ist auch, dass die Aktivitätstrennfaktoren von Methoden, die speziell auf die Abtrennung von Radionukliden ausgerichtet sind, wesentlich höher als die in Tabelle 5-2 benutzten Werte sein können (s. Tabelle 5-3).

Tabelle 5-3: Aktivitätstrennfaktoren für verschiedene Methoden der Radionuklidabtrennung aus Wasser /AKK 99/

<b>Methode</b>	<b>ATF in %</b>	
	<b>Radium</b>	<b>Uran</b>
Ionenaustauscher	81-99	90 - 100
Umkehrosiose	> 90 - 95	90 - 99
Kalkenthärtung	80 - 92	85 - 99
Flockung und Filtration		80 - 98
Aktiviertes Aluminiumoxid		90
Elektrodialyse	90	
RSC	90 - 99	
Grünsand	25 - 50	
HMO Filter	90	

Von Hofmann u.a. /HOF 00/ wurde abgeschätzt, dass der Anreicherungsfaktor für Radium in Wasseraufbereitungsrückständen ca. 25.000 beträgt. Die hier vorgestellten Abschätzungen sind mit diesem Wert in guter Übereinstimmung. Das Modell zeigt aber auch, von welchen Parametern die Anreicherung wesentlich abhängt. So ist z.B. der Massentrennfaktor bei einer Mitfällung entscheidend von den anderen ausgefallten Stoffen abhängig. Eine Zunahme dieser (nichtradioaktiven) Masse verringert folglich die spezifische Aktivität der gebildeten Materialien.

Die chemischen Prozesse bei der Fällung sind offensichtlich entscheidend für die Selektivität der Anreicherung bezogen auf die Radionuklide. Das zumeist als anionischer (Karbonat-)Komplex vorkommende Uran

wird im „normalen“ Wasseraufbereitung mit Kalkfällung oder Kiesbettfiltern mit sorbierenden Eisen-Mangan-Hydroxiden wesentlich weniger zurückgehalten als Radium. Als stärker sensitiv für Uran sind vor allen Aluminiumoxidfällungen einzuschätzen, die besonders bei der Aufbereitung von Oberflächenwässern genutzt werden.

### 5.3 Prozesse der Radionuklidumverteilung bei der Verarbeitung von Rohphosphat

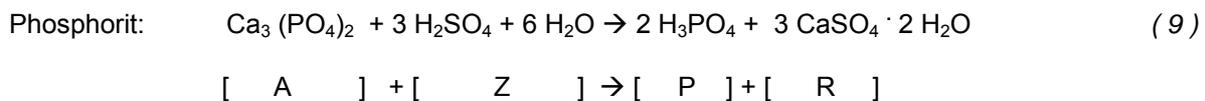
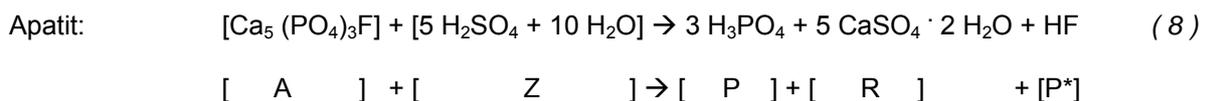
#### 5.3.1 Beschreibung der Prozesse der Radionuklidanreicherung

Die im Rohphosphat enthaltenen Radionuklide sind die Quelle der Radionuklide in den Rückständen. Die Umverteilung dieser Nuklide bei der Verarbeitung von Phosphat ist die Ursache von Anreicherungen. Diese Umverteilung findet bei der Herstellung von Phosphorsäure und der Gewinnung von Phosphor in unterschiedlichen Wegen statt.

##### Herstellung von Phosphorsäure

Die Herstellung von Phosphorsäure mit dem Nassverfahren wird durch Aufschluss von Rohphosphat (Phosphorit, Apatit) mit anorganischen Säuren ausgeführt. Weltweit am häufigsten (90%) wird für den Aufschluss Schwefelsäure verwendet. Untergeordnet kann Salzsäure zum Einsatz kommen. Da der HCl-Aufschluss in Deutschland jedoch nach jetzigem Kenntnisstand bislang nicht angewendet wurde, wird dieser Prozess im Weiteren nicht betrachtet.

Beim Aufschluss wird der Ausgangsstoff („A“) Rohphosphat (Apatit, Phosphorit) mit dem Zuschlagstoff („Z“) Schwefelsäure versetzt und es entsteht das Produkt („P“) Phosphorsäure und der Rückstand („R“) Phosphogips:

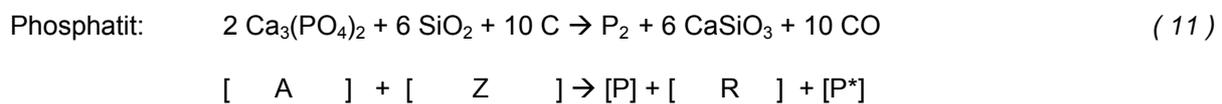
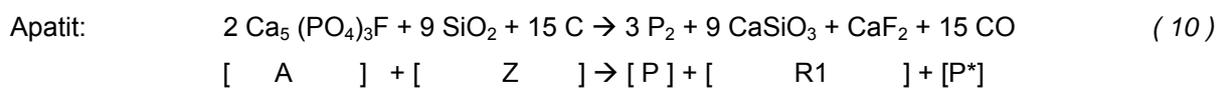


Bei diesem Aufschluss gehen nach /MAZ 99/ 90% Ra-226, Ra-228 und Pb 210, bis 95% Po-210 und 80% der Nuklide der Th-Serie vom Ausgangsstoff Rohphosphat in den Phosphogips über. Demgegenüber verbleiben etwa 90% Uran als Uranylphosphat, -sulfat oder -fluorid-Komplexe in der Phosphorsäurefraktion. Von Garcia u.a. werden folgende Aktivitätsanteile im Phosphogips bezogen auf Rohphosphat für das Phosphorsäurewerk in Huelva (SW-Spanien) angegeben: Uran ca. 15 %, Thorium ca. 40 %, Ra-226 und Po-210  $\geq 80$  % /GAR 98/. Diese Angaben stimmen mit Ausnahme des Thoriums gut überein. Sie zeigen, dass es bei diesem Aufschluss zu erheblichen Fraktionierungen in den Zerfallsreihen kommt, wobei Uran (zunächst) in die Rohphosphorsäure, Radium in den Phosphogips übergeht.

### Gewinnung von Phosphor

Zur Herstellung von Phosphor werden thermische Verfahren angewandt. Das Rohphosphat wird mit Kieselsäure und Koks im elektrischen Widerstandsofen bei 1400 – 1500 °C verschmolzen. Der Phosphor fällt dabei gasförmig an und wird mit den heißen Ofengasen über Elektrofilter geleitet und anschließend mit Wasser kondensiert. Er wird flüssig in Speicher gepumpt und mit Wasser überschichtet. Anschließend wird der Phosphor am Kopf eines Verbrennungsofens verdüst und unter Luftzufuhr zu Phosphorpentoxid verbrannt. Das Phosphorpentoxid wird im Verbrennungsturm unter Zusatz von verdünnter Phosphorsäure verbrannt.

Durch das thermische Verfahren wird der Phosphor nach den folgenden Reaktionsgleichungen hergestellt, wobei Calcium-Silikatschlacke und Filterstäube als Rückstände anfallen.

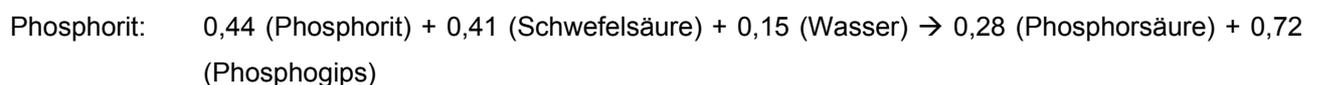
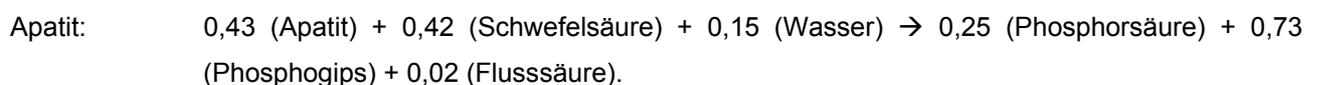


Die Hauptfraktion von Uran und Radium enthält die Sinterschlacke, die über 90% des Urans und Radiums, aber nur ca. 2% des Pb 210 und Po 210 enthält. Der mittels elektrostatischer Filtern abgetrennte Staub enthält die flüchtigen anorganischen und organischen Stoffe. Die Staubmenge zusätzliche Rückstandsmenge aufgefasst werden. Diese Menge ist nach /ERK 97/ mit ca. 1% des anfallenden Rückstandes gering, doch kann die spezifische Pb 210-Aktivität bis 1.000 Bq/g betragen (> 95% Pb 210, Po 210).

### 5.3.2 Ermittlung von Prozessparametern

#### Gewinnung von Phosphorsäure

Aus dem auf 1 normierten stöchiometrischen Verhältnis von (8) und (9) ergeben sich als Massenbilanzen:



und daraus die Massentrennfaktoren  $\text{MTF}_{(\text{Apatit})} = 0,73$  und  $\text{MTF}_{(\text{Phosphorit})} = 0,72$ .

Mit den nuklidspezifischen Aktivitätstrennfaktoren  $\text{ATF}(i)$  nach Kapitel 5.3.1 und einer Vernachlässigung der Aktivität im Zuschlagstoff Schwefelsäure ergeben sich die Anreicherungsfaktoren für den Übergang Ausgangsstoff – Rückstand zu  $\text{EF}(i) = (\text{ATF}(i) / \text{MTF}) * \text{ZF}(i)$ . Die Ergebnisse dieser Betrachtung gerundet auf 2 zählende Ziffern enthält Tabelle 5-4.

Tabelle 5-4: Prozessspezifische Faktoren für Phosphogips (Rückstand) beim Aufschluss von Rohphosphat mit Schwefelsäure

	Ra-226	Ra-228	U-238	Pb-210	Po-210	Th-228	Th-230	Th-232
<b>Rohphosphat = Apatit</b>								
Aktivitätstrennfaktor *	0,90	0,90	0,10	0,90	0,95	0,4 -0,8		
Massentrennfaktor	0,73							
Korrekturfaktor Zuschlagstoff	0,43							
Anreicherungsfaktor	0,53	0,53	0,059	0,53	0,56	0,23-0,47		
<b>Rohphosphat = Phosphorit</b>								
Aktivitätstrennfaktor *	0,90	0,90	0,10	0,90	0,95	0,4 -0,8		
Massentrennfaktor	0,72							
Korrekturfaktor Zuschlagstoff	0,44							
Anreicherungsfaktor	0,55	0,55	0,061	0,55	0,58	0,24 - 0,49		

\*) siehe Kapitel 5.3.1

Bei diesem Prozess kommt es nach den Ergebnissen der Tabelle 5-4 durch die Zuschlagstoffe zu Abreicherungen der spezifischen Aktivität im Rückstand bei Radium auf ca. 50 %, bei Uran auf ca. 10 %. Erhöhte Radioaktivität in Phosphogipsen ist nach dieser Prozessanalyse nur zu erwarten, wenn bereits die Rohstoffe eine erhöhte Aktivität aufwiesen. Die in Tabelle 5-5 ausgewiesene sehr starke Abreicherung von Uran ist nicht durch die Verdünnung durch Zuschlagstoffe bedingt, sondern auf den Aktivitätstrennfaktor zurückzuführen, der auf den signifikanten Übergang von Uran in das Produkt Phosphorsäure hinweist. Die in /GEO 05/ beschriebenen Ergebnisse von Untersuchungen an einem Standort der Phosphatverarbeitung in Rumänien bestätigen die hier abgeleiteten Fraktionierungen weitgehend.

### Gewinnung von Phosphor

Aus dem stöchiometrischen Ansatz der Formeln (10) und (11) ergeben sich die Massenbilanzen:

Apatit:  $0,58 \text{ (Apatit)} + 0,31 \text{ (Siliziumdioxid)} + 0,11 \text{ (C)} \rightarrow 0,11 \text{ (Phosphor)} + 0,24 \text{ (Kohlenmonoxid)} + 0,60 \text{ (Calciumsilikatschlacke + Filterstaub)} + 0,05 \text{ (Calciumfluorid)}$

Phosphorit:  $0,56 \text{ (Phosphorit)} + 0,33 \text{ (Siliziumdioxid)} + 0,11 \text{ (C)} \rightarrow 0,06 \text{ (Phosphor)} + 0,27 \text{ (Kohlenmonoxid)} + 0,67 \text{ (Calciumsilikatschlacke + Filterstaub)}$

mit den Massentrennfaktoren  $MTF^{(Schlacke)}_{(Apatit)} = 0,60$  und  $MTF^{(Schlacke)}_{(Phosphorit)} = 0,67$ . Diese Massentrennfaktoren sind für die Calciumsilikatschlacke direkt verwendbar. Setzt man, wie oben beschrieben, für den Filterstaub 1 % der Schlackenmasse an, betragen die Massentrennfaktoren (gerundet) für den Übergang zum Filterstaub  $MTF^{(Filterstaub)}_{(Apatit)} = 0,006$  und  $MTF^{(Filterstaub)}_{(Phosphorit)} = 0,007$ .

Wird der Korrekturfaktor für die Zuschlagstoffe mit einer spezifischen Aktivität der Zuschläge von 10 % bezogen auf den Rohphosphat veranschlagt, dann ergeben sich, gerundet auf 2 zählende Ziffern die Ergebnisse nach Tabelle 5-5.

Tabelle 5-5: Prozessspezifische Faktoren für Calciumsilikatschlacke und Filterstaub (Rückstände) beim thermischen Verfahren

	Ra-226	Ra-228	U-238	Pb-210	Po-210	Th-228	Th-230	Th-232
<b>Rohphosphat = Apatit</b>								
Aktivitätstrennfaktor Schlacke *	0,90	0,90	0,90	0,02	0,02	k. A.	k. A.	k. A.
Aktivitätstrennfaktor Filterstaub *				0,95	0,95	k. A.	k. A.	k. A.
Massentrennfaktor Schlacke	0,60							
Massentrennfaktor Filterstaub	0,006							
Korrekturfaktor Zuschlagstoff	0,64							
Anreicherungsfaktor Schlacke	0,96	0,96	0,96	0,021	0,021			
Anreicherungsfaktor Filterstaub				101	101			
<b>Rohphosphat = Phosphorit</b>								
Aktivitätstrennfaktor Schlacke *	0,90	0,90	0,90	0,02	0,02	k. A.	k. A.	k. A.
Aktivitätstrennfaktor Filterstaub *				0,95	0,95	k. A.	k. A.	k. A.
Massentrennfaktor Schlacke	0,67							
Massentrennfaktor Filterstaub	0,007							
Korrekturfaktor Zuschlagstoff	0,62							
Anreicherungsfaktor Schlacke	0,83	0,83	0,83	0,019	0,019			
Anreicherungsfaktor Filterstaub				84	84			

\*) siehe Kapitel 5.3.1

Auch dieses Bilanzmodell zeigt, dass es bei der thermischen Phosphorproduktion nicht zu signifikanten Anreicherungen von Radionukliden in der Schlacke kommt, da die Massenbilanzen von Rohstoff und Rückstand sich nicht wesentlich unterscheiden. Im Filterstaub sind allerdings bei den gewählten Parametersätzen Anreicherungen von Pb-210 und Po-210 von ca. 100 zu erwarten. Bei einer spezifischen Aktivität des Rohphosphates von 0,5 Bq/g U-238sec sind extreme spezifische Aktivitäten von 1.000 Bq/g Pb-210 (s. Kapitel 3.3.3) allerdings nur möglich, wenn die MTF noch deutlich kleiner als hier im Modell angenommen ausfallen.

### 5.3.3 Begleitende Anreicherungen anderer Schadstoffe

Über die Anreicherung anderer Stoffe bei der Rohphosphatverarbeitung liegen nur wenig Informationen vor.

Nach /BED 04/ werden wie oben für natürliche Radionuklide ausgeführt auch verschiedene Schwermetalle in Anlagenteilen insbesondere in Prozessen der Phosphorsäure-Purifikation abgelagert. Das betrifft Pb (bis 106 mg/kg), Cu (bis 152 mg/kg), Ni (bis 215 mg/kg), Zn (bis 2.180 mg/kg) und Cr (bis 3.110 mg/kg).

Auf z.T. hohe Cadmiumgehalte in sedimentärem Phosphaterz wurde bereits hingewiesen. Ferner ist auf die Bildung von Flusssäure (HF) hinzuweisen, die beim nassen Aufschluss der Erze entsteht und zum Teil als Fluorid im Phosphogips verbleibt.

## 5.4 Prozesse der Radionuklidumverteilung bei der Gewinnung und Aufbereitung von Mineralen

### 5.4.1 Beschreibung der Prozesse der Radionuklidanreicherung

Die Gewinnung von mineralischen Rohstoffen erfolgt in der Regel<sup>13</sup> durch mechanische Verfahren des Brechens (auch durch Sprengen), des Abbaus und Abtransportes zur Aufbereitung. Diese Prozesse führen für sich genommen zu keiner Radionuklidumverteilung. An- und Abreicherungen können jedoch auftreten, wenn verschiedene Gesteinsarten (Erze und Nebengesteine) getrennt werden oder es zu Kornfraktionierungen kommt und diese Kornfraktionen sich im Mineralbestand unterscheiden. Eine spezielle Art der Umverteilung natürlicher Radionuklide ist die bergbaubedingte Freisetzung von Radon vor allem in Tiefbauen und die Ablagerung von Radontöchtern an Anlagenteilen im Abwetterstrom.

Die geförderten Erze enthalten unterschiedliche Mengen an Gangart, d.h. unerwünschte Mineralien und Gesteine. Damit die Erze zur Weiterverarbeitung eingesetzt werden können, muss die Konzentration des entsprechenden Elements im Erz groß genug sein, damit seine Gewinnung chemisch und verfahrenstechnisch sowie mit vertretbaren Kosten ermöglicht werden kann. Daher werden die gewonnenen Erze vor ihrer Weiterverarbeitung durch Zerkleinerungs-, Sortier- und Trennprozesse aufbereitet, so dass die gewünschte Komponente des Erzes angereichert und Begleitstoffe abgesondert werden können.

Während Zerkleinerungsprozesse (Brechen, Spalten, Mahlen) und Sortierprozesse (Klassieren, Sieben) rein mechanische Prozesse sind, werden zur Trennung der Mineralspezies vor allem die Flotation, die Nasswäsche, die Zentrifugaltrennung (Hydrozyklon, Trennung nach Dichte, Korngröße und Kornform) oder auch die Magnettrennung verwendet. Dabei führt die Zerkleinerung für sich genommen nicht zu einer Nuklidumverteilung, da dabei keine Aufspaltung von Massenströmen erfolgt (Staubbildung als Prozessgröße hier unbedeutend, Radonfreisetzung hier nicht betrachtet). Bei Sortierprozessen können ggf. Kornfraktionierungseffekte auftreten. Bei den Trennprozessen sind Umverteilungen von verschiedenen Mineralfraktionen der technisch beabsichtigte Prozessschritt. Daher ist bei diesem Schritt auch mit signifikanten Umverteilungen von Radionukliden zu rechnen. Art und konkrete Form dieser Umverteilung ist jedoch abhängig vom abgebauten Erz und der Aufbereitungstechnologie.

Neben den beabsichtigten Prozessen der Aufbereitung können Begleitprozesse, wie die Staubbildung, Anbackungen, Materialverluste zu Teilmassen mit spezieller Mineralzusammensetzung und Korngrößenfraktion führen, die genau wegen dieser Entstehung nicht nutzbar sind und als Materialien rückgeführt oder als Rückstände entsorgt werden.

In den Anlagen mit fluidmechanischer Aufbereitung können Radionuklide gelöst und in Anlagenteilen abgelagert werden (Scalebildung).

---

<sup>13</sup> Sonderverfahren wie die schwefelsaure Laugung von Uran sind prinzipiell möglich, spielen aber nur eine untergeordnete Rolle.

### 5.4.2 Ermittlung von Prozessparametern

Kenngößen für die im vorherigem Kapitel beschriebene Umverteilungsprozesse können bisher nicht angegeben werden, da konkrete Datenerhebungen, die sich für eine solche Auswertung eignen, nicht vorliegen. Tendenziell kann man aber angeben:

#### Gewinnung, Abbau:

- Trennung von Gesteinsarten      Abhängig von den Gesteinen
- Kornfraktionierung              In der Regel Anreicherung der Mutternuklide und von Radium in der Feinfraktion. In dieser Feinfraktion aber Abreicherung von Radon-222 und (nach längerer Zeit) den Radontöchtern möglich.

#### Aufbereitung

- Zerkleinerungsprozesse          Keine Umverteilung
- Sortierprozesse                    Anreicherung in der Feinfraktion
- Trennprozesse                      In der Regel Abreicherung von Radionukliden in der Erzfraktion, aber Anreicherung grundsätzlich möglich.

Gezielte Untersuchungen zu den Massen- und Aktivitätsbilanzen von hier betrachteten Prozessen konnten in der Literatur nicht gefunden werden. Ergebnisse von Messungen der Radionuklidanreicherung bei der Fraktionierung von Gesteinen (Granit) enthalten die Arbeiten /IAF 95/ und /MAL 04/. Die Untersuchungen von Mallick (s. Abbildung 3-12) beziehen sich dabei auf Materialien aus tatsächlichen Abbauen, während bei den Untersuchungen von IAF (s. Abbildung 3-14) die Fraktionierung von Granit gezielt herbeigeführt wurde. Eine Auswertung der Messdaten von Mallick in Bezug auf Änderungen der spezifischen Aktivität zwischen ursprünglichem Granit und Filterstaub sowie die Verhältnisse der spezifischen Aktivitäten von Filterstaub und Schlämmen zeigen die Diagramme Abbildung 5-5, Abbildung 5-6. Danach ist einzuschätzen, dass signifikante Anreicherungen der Radionuklide beim Brechen und Klassieren von Granit nicht auftreten. Dabei ist allerdings zu beachten, dass einige der untersuchten Betriebe Granite verarbeitet werden, die aus verschiedenen Abbauen, teilweise auch aus dem Ausland stammen.

Für die an die Hauptmassenströme der Gesteinsaufbereitung gekoppelten Umverteilungen von Radionukliden sind demnach keine oder nur geringe ( $< 2$ ) Anreicherungen von Radionukliden zu erwarten. Aufgrund der relativ geringen radiologischen Relevanz der Hartgesteine sind detailliertere Prozessanalysen nur für konkrete Einzelfälle zu empfehlen.

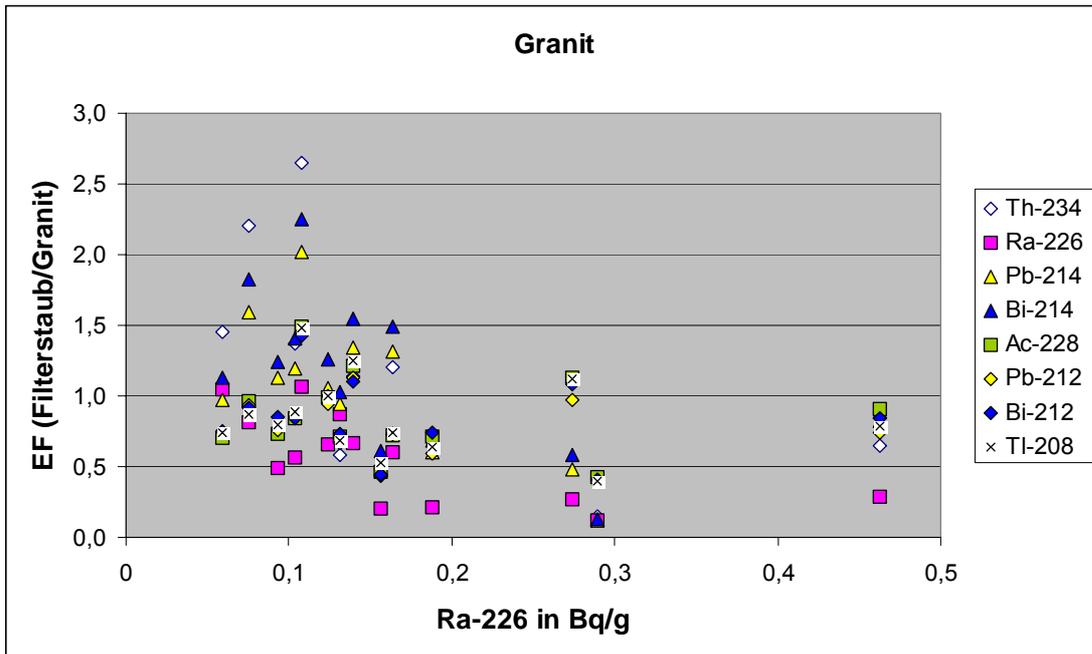


Abbildung 5-5: Berechnete Anreicherungsfaktoren für Granitstaub. Daten nach /MAL 04/

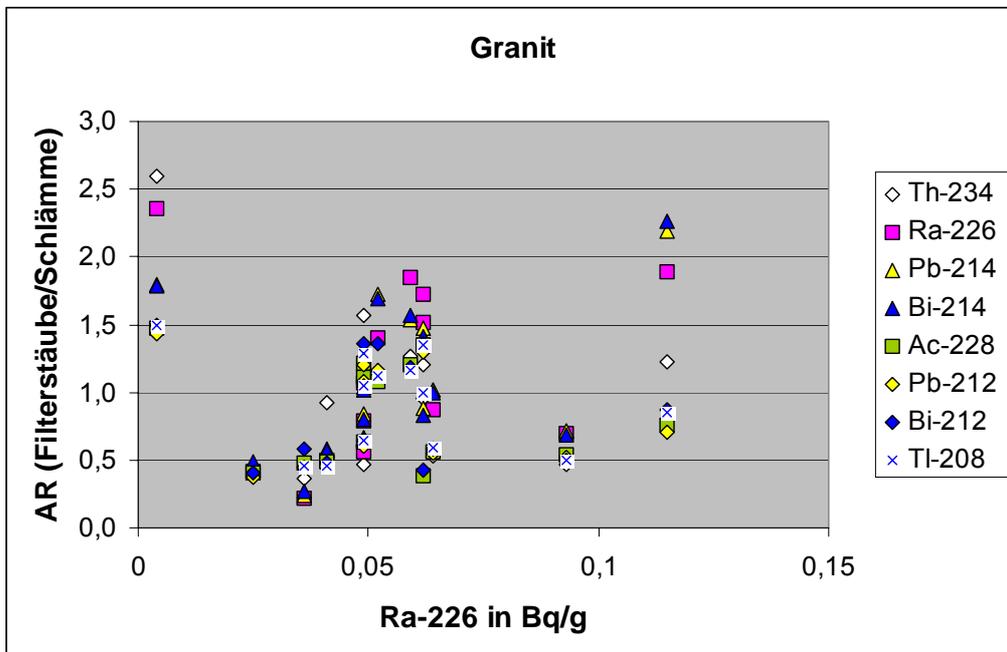
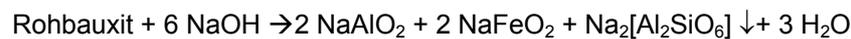


Abbildung 5-6: Berechnete Anreicherungsfaktoren für Granitschlämme (bezogen auf Stäube). Daten nach /MAL 04/

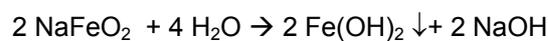
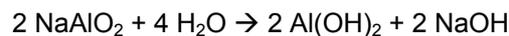
## 5.5 Prozesse der Radionuklidumverteilung bei der Verarbeitung von Bauxit

### 5.5.1 Beschreibung der Prozesse der Radionuklidanreicherung

Im Bayer-Prozess zur Herstellung von Tonerde wird gebrochener und gerösteter Rohbauxit in Kugelmühlen zu Staub vermahlen und anschließend in einem Mischer unter Zugabe von Natronlauge heiß aufgeschlossen. Dabei setzt sich Natriumalumosilikat ab.



Nach Verdünnen des Aufschlusses mit Wasser verschieben sich die Gleichgewichte



und das gelöste Ferrit zerfällt in Natronlauge und schwerlösliches Eisen(III)hydroxid.

Das nach diesem Verfahrensschritt abgetrennte Gemisch aus Natriumalumosilikat und Eisen(III)hydroxid wird als **Rotschlamm** entsorgt. Durch Ausfällen des Aluminiumhydroxids wird NaOH zurückgewonnen und erneut in den Prozess eingeführt. Durch Glühen des ausgefallenen Aluminiumhydroxids im Drehrohrofen wird abschließend  $\text{Al}_2\text{O}_3$  erzeugt.

Radionuklidumverteilungen finden bei diesem Prozess statt, da die Radionuklide wie auch andere Schwermetalle zunächst aufgeschlossen werden und in Lösung gehen, anschließend aber mit dem Eisenhydroxid gefällt bzw. mitgefällt werden.

### 5.5.2 Ermittlung von Prozessparametern

In der Summe kann die Stoffbilanz des Prozesses geschrieben werden als:

Rohbauxit + Natriumhydroxid + Wasser → Aluminiumoxid + Rotschlamm + Natriumhydroxid + Wasser



Dabei wird der Teilrückstand  $\text{R}^*$  wieder in den Prozess zurückgeführt.

Da der Aluminiumgehalt von Bauxit keine stöchiometrische Größe ist, sondern mit dem Mineralbestand variiert, ist der Massentrennfaktor entscheidend vom Aluminiumgehalt abhängig. Benutzt man die im Kapitel 3.4.3.1 aufgeführten Massenströme ergänzt um zunächst willkürlich geschätzte Mengen an Zuschlagstoffen so gilt:

$$[M_A = 1,6 \text{ Mio. t}] + [M_Z = 0,4 \text{ Mio. t}] \rightarrow [M_P = 0,8 \text{ Mio. t}] + [M_R = 0,6 \text{ Mio. t}] + [M_{R^*} = 0,2 \text{ Mio. t}]$$

Der Massentrennfaktor Rückstand - Ausgangsstoff (RA) beträgt

$$\text{MTF}_{\text{RA}} = 0,6 / [1,6 + 0,4] = 0,30$$

Der zugehörige Aktivitätstrennfaktor kann in erster Näherung mit 1,0 für alle Nuklide angesetzt werden, da durch den Aufschluss und die anschließende Fällung praktisch 100 % der Radionuklide in den Rotschlamm übergehen.

Berücksichtigt man weiterhin, dass die Zuschlagstoffe praktisch keine signifikante Aktivität in den Prozess einbringen ( $AZ = 0$ ), dann errechnet sich der Anreicherungsfaktor für den Rotschlamm nach Gl. ( 6 ) zu

$$EF_{RA}(i) = \frac{a_R(i)}{a_A(i)} = \left( \frac{1}{0,3} \right) \cdot \left( \frac{1}{1+0,4/1,6} \right) = 2,66$$

Krüger gab in /KRÜ 99/ eine Anreicherung vom Bauxit zum Rotschlamm um den Faktor 2,5 als typisch für alle Nuklide der Uran- und Thorium-Reihe an. Das ist in guter Übereinstimmung mit dem oben abgeschätzten Wert. Die Anreicherung sinkt, wenn der Aluminiumgehalt des Bauxits sinkt, da dann die Rotschlammmenge entsprechend steigt.

Hinzuweisen ist allerdings auf die in den Daten der Tabelle 3-15 und Tabelle 3-16 erkennbare leichte Abreicherung von Pb-210 in Relation zum Ra-226. Sofern es sich hier nicht um ein Ergebnis der thermischen Vorbehandlung des Bauxits handelt, müsste Pb-210 bei diesem Prozess zumindest teilweise in das Produkt bzw. dessen Vorstufe Aluminiumhydroxid übergegangen sein. In solchem Fall ist ein Verdampfen dieses Pb-210 beim abschließenden Glühen zu erwarten, so dass die Abgase des Drehrohrofens Anreicherungen von Pb-210 aufweisen müssten.

## 5.6 Prozesse der Radionuklidumverteilung bei der Verhüttung von Erzen/Erzkonzentraten

### 5.6.1 Beschreibung der Prozesse der Radionuklidanreicherung

Die pyrometallurgische Gewinnung von Metallen aus Erzen wird als Verhüttung bezeichnet.

Durch Verhüttung werden u.a. gewonnen: Roheisen, Kupfer (aus sulfidischen Erzen), Zinn, Zink, Blei, Aluminium.

In Box 5.6-2ff sind die Prozesse der Verhüttung wichtiger hier betrachteter Metalle kurz beschrieben. Generell können die eigentlichen Verhüttungsprozesse zusammengefasst dargestellt werden als:



Aufgrund unterschiedlicher Schmelztemperaturen laufen die Verhüttungsprozesse bei unterschiedlichen Temperaturen ab.

Für die Umverteilung von Radionukliden bei diesem Prozess ist die Verteilung der Spurenelemente / Radionuklide zwischen metallischer Schmelze, mineralischer Schlacke und Gichtgas entscheidend.

Erdalkalielelemente wie Radium gehen bevorzugt in die mineralische Schlacke über. Uran und Thorium gehen (vermutlich aufgrund ihrer hohen Schmelztemperaturen als Oxide?) ebenfalls in die Schlacke über. Da in

Erzen und Erzkonzentraten ein wesentlicher Massenanteil im Wertmetall liegt, hat die Schlacke eine deutlich geringere Masse und folglich eine höhere spezifische Aktivität als die eingesetzten Erze.

Tabelle 5-6 Temperaturen von Verhüttungsprozessen

	Schmelztemp.	Siedetemp.	Prozesstemperatur
Roheisen	ca. 1.150 °C <sup>14</sup>	2.750 °C	Hochofen: höchste Temperatur in der Schmelzzone bis 1.800 °C
Kupfer	1083 °C	2.595 °C	Schachtofen: bis 1.400 °C
Blei	324 °C	1.737 °C	
Zink	419 °C	907 °C	1.100 bis 1.400 °C
Zinn	232 °C	2.270 °C	
Aluminium	660 °C	2.740 °C	Schmelzflusselektrolyse bei 950 °C

Die schon bei relativ niedrigen Temperaturen schmelzenden Elemente Blei (s. oben) und Polonium ( $T_{\text{Schmelz}} = 251 \text{ °C}$ ,  $T_{\text{siede}} = 959 \text{ °C}$ ) verdampfen und werden mit dem Gichtgas austragen. Sie kondensieren bei Abkühlung an Staubpartikel und werden so angereichert. Die spezifische Aktivität der Stäube wird u.a. auch davon bestimmt, welche anderen flüchtigen Elemente bei der Verhüttung verdampfen.

#### Box 5.6-1: Hüttenprozess: Roheisenerzeugung

Eisenerze bzw. –erzkonzentrate werden durch Sintern in eine für den Hochofen geeignete, grobkörnige Form gebracht (agglomeriert). Das feinkörnige eisenhaltige Material wird dabei zusammen mit Zuschlagstoffen und Brennstoffen soweit erwärmt, dass es oberflächlich anschmilzt und zusammenbackt. Dieser Prozess ist notwendig, da Feinerze und Konzentrate wegen ihrer hohen Schüttdichte und schlechten Durchgasbarkeit im Ursprungszustand nicht in den Hochöfen eingesetzt werden können. Staubhaltige Prozessabgase (Sinterstäube) werden in Elektrofiltern gereinigt /THY 05/.

Nach grobem Brechen, Kühlen und Sieben wird der Sinter zu den Hochöfen transportiert. Im Hochofen wird zur Herstellung von Rohstahl zunächst der im Eisenerz ( $\text{Fe}_2\text{O}_3$ ,  $\text{Fe}_3\text{O}_4$ ) gebundene Sauerstoff reduziert. Dazu werden abwechselnd Schichten von zerkleinerten Eisenerzen + Zuschläge (Kalk oder Sand) und Koks in die obere Öffnung des Ofens geschüttet. Mit dem Winderhitzer wird Luft auf 1300°C erhitzt und anschließend in das Innere des Hochofens gepresst /EIS 05/.

Die hinzugefügte, heiße Luft führt zur Verbrennung der untersten Koksschicht. Der im Koks enthaltene Kohlenstoff reagiert mit dem Sauerstoff zu Kohlenstoffmonoxid. Dieser Vorgang ist exotherm /EIS 05/. Dadurch steigt die Temperatur bis zu 1.600°C an. Das Kohlenstoffmonoxid steigt in die darüber liegende Eisenerzschicht auf und wirkt gegenüber dem Eisenoxid als Reduktionsmittel.



Das entstandene Kohlenstoffdioxid gelangt in die nächste Koksschicht und wird dort wieder zu Kohlenstoffmonoxid reduziert.



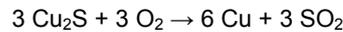
Aus den Verunreinigungen des Eisenoxids und den Zuschlägen, die zusätzlich in den Hochofen gegeben wurden, bildet sich flüssige Schlacke. Das flüssige Eisen sammelt sich im unteren Teil des Hochofens und wird von der spezifisch leichteren Schlacke vor erneuter Oxidation geschützt. Alle 4 bis 6 Stunden wird das flüssige, 1000°C heiße Roheisen, genau wie die Schlacke, abgegossen /EIS 05/.

Das heiße Gemisch aus Kohlenstoffmonoxid, Kohlenstoffdioxid und Stickstoff wärmt die oberen Schichten vor und verlässt als Gichtgas den Hochofen. Das Gichtgas wird zur Reinigung in einen speziellen Konverter abgeführt und ein Teil davon als Luftzufuhr in den Winderhitzer gegeben /EIS 05/.

## Box 5.6-2: Hüttenprozess: Kupfererzeugung

Die zur Verhüttung genutzten Kupfererze sind zumeist Sulfide (Buntkupferkies, Chalkopyrit), die neben Kupfer auch Eisen enthalten. Im ersten Schritt wird der im Erz enthaltene Schwefel durch Abrösten teilweise beseitigt und danach das Röstgut mit Kohle und silikathaltigen Zuschlägen im Schachtofen verschmolzen. Dabei entsteht Kupferstein ( $\text{Cu}_2\text{S} + \text{FeS}$ ), der abgestochen und in einem Konverter bei  $900\text{ }^\circ\text{C}$  durch Einblasen von Luft entschweifelt wird. Zugesehter Quarz verschlackt das zuerst oxidierte Eisensulfid zu Eisensilikat ( $\text{Fe}_2\text{SiO}_4$ ; → Kupferschlacke). Weiteres Verblasen führt zur Umsetzung von entstandenem Kupferoxid mit unverändertem Kupfersulfid unter Bildung von metallischem Kupfer (sog. Schwarzkupfer).

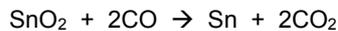
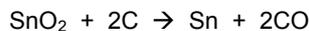
Nach /FRA 05/ lässt sich die Verhüttung mit den folgenden Gleichungen beschreiben.



Durch weiteres Schmelzen und durch Elektrolyse wird das Rohkupfer weiter gereinigt. Bei den abwechselnden oxidierenden und reduzierenden Schmelzvorgängen werden einige Verunreinigungen verflüchtigt (Zink, Blei, Arsen) oder verschlackt (Eisen, Nickel).

## Box 5.6-3 Hüttenprozess: Zinnerzeugung

Zinn wird praktisch ausschließlich durch Reduktion von Kassiterit (Zinnstein,  $\text{SnO}_2$ ) mit Kohle und Fe-Schrott hergestellt



Das erhaltene Rohzinn besitzt einen Reinheitsgrad von 97-99%. Die Reinigung von den restlichen Verunreinigungen wie Eisen, Kupfer und Antimon erfolgte durch Seigerung: Das Rohzinn wird in einer schiefen Ebene knapp über seine Schmelztemperatur erhitzt. Das flüssige Zinn läuft ab und das schwer schmelzbare Eisen bleibt im Rückstand, der Zinnschlacke, zurück.

Da Zinnstein meist als Seifenmineral gewonnen wird, enthält er noch andere Seifenminerale, die Nb- und Ta-haltig sind. Diese Gehalte an Nb und Ta gehen in die Schlacke und können daraus gewonnen werden.

## 5.6.2 Ermittlung von Prozessparametern

Primärverhüttung von Roheisen

Eine Massenbilanz für die Roheisenverhüttung enthält Tabelle 5-7.

Daraus können die folgenden Massentrennfaktoren für die Roheisenverhüttung abgeleitet werden:

Ausgangsstoff – Rückstand 1 (Schlacke):  $\text{MTF}_1 = 262 / (1450 + 380 + 178) = 0,13$

Ausgangsstoff – Rückstand 2 (Gichtgasstaub)  $\text{MTF}_2 = 10,3 / (1450 + 380 + 178) = 0,0051$

Tabelle 5-7: Massenbilanzen für die Roheisenproduktion in Deutschland (Jahr: 1995). Daten aus /REN 99/

Inputs	Gesamtmenge [1.000 t/a]	spezifische Menge [kg/t Roheisen]	Outputs	Gesamtmenge [1.000 t/a]	spezifische Menge [kg/t Roheisen]
Eisenerz, gesamt	43.593	1.450	Roheisen	30.012	1,0
davon Sinter / Briketts	28.356	940	Gichtgas	4.774 Mio. Nm <sup>3</sup>	159 Nm <sup>3</sup>
Koks / Koksgruß	11.401	380	Gichtgasstaub	308	10,3
Zuschläge	5.351	178	Hochofenschlacke	7.871	262,3

Nimmt man an, dass Koks und Zuschläge ähnlich niedrige spezifische Aktivitäten wie das Eisenerz aufweisen, dann errechnet sich der Zuschlags-Faktor  $ZF_{ZA}$  Gl. ( 7) zu etwa 1,46. Um diesen Anteil erhöht sich das Nuklidinventar (in dieser Abschätzung) durch die Zuschlagstoffe.

Für eine erste Abschätzung können als Aktivitätstrennfaktoren die in Tabelle 5-8 aufgeführten Werte angesetzt werden. Damit erhält man die in Tabelle 5-8 zusammengestellten Ergebnisse der Nuklidanreicherung. Danach ist in den Eisenhüttenschlacken eine um ca. 1 Größenordnung höhere spezifische Aktivität der nichtflüchtigen Radionuklide (Uran, Thorium, Radium) zu erwarten als in den eingesetzten Erzen. Für die flüchtigen Radionuklide Pb-210, Po-210 ergibt sich eine Abreicherung und damit insgesamt für die Schlacke eine deutliche Abweichung von Aktivitätsgleichgewicht. Dieses Nichtgleichgewicht ist messtechnisch gut fassbar und kann zur Ermittlung der Aktivitätstrennfaktoren vor allem für Pb-210 genutzt werden.

Tabelle 5-8: Modellgrößen der Radionuklidumverteilung für die Roheisenproduktion

	Ra-226	Ra-228	U-238	Pb-210	Po-210	Th-228	Th-230	Th-232
<b>Eisenerz - Schlacke</b>								
Aktivitätstrennfaktor	0,99	0,99	0,99	0,1	0,05	0,99	0,99	0,99
Massentrennfaktor	0,13							
Zuschlags-Faktor	1,46							
Anreicherungsfaktor	11,1	11,1	11,1	1,1	0,6	11,1	11,1	11,1
<b>Eisenerz - Filterstaub</b>								
Aktivitätstrennfaktor *	0,01	0,01	0,01	0,9	0,95	0,01	0,01	0,01
Massentrennfaktor	0,0051							
Zuschlags-Faktor	1,46							
Anreicherungsfaktor	2,9	2,9	2,9	258	272	2,9	2,9	2,9

Die Angaben über Massenanteile von Rückständen in der Primärverhüttung von NE-Metallen (s. Kapitel 3.7.3.2) ergeben Massentrennfaktoren für die Al-Verhüttung von:

Staub: 50 kg/t Al entspricht 0,050 t/ (2 t Konzentrat) → MTF = 0,025

Krätze: 20 kg/t Al entspricht 0,020 t/ (2 t Konzentrat) → MTF = 0,010

Dabei wurde berücksichtigt, dass die Primärverhüttung von Aluminium als Ausgangsstoff vorkonzentriertes  $\text{Al}_2\text{O}_3$  benutzt.

Messwerte, aus denen Aktivitätstrennfaktoren berechnet werden können, lagen nicht vor. Nimmt man daher abschätzend an, dass für Pb-210 ein vollständiger Übertrag in den Filterstaub auftritt, dann ergibt sich mit  $\text{ATF}(\text{Pb-210}) = 1$  ein Anreicherungsfaktor  $\text{EF}(\text{Pb-210})$  von 40.

### 5.6.3 Begleitende Anreicherungen anderer Schadstoffe

Die hohen Temperaturen bei der Verhüttung führen neben der Umverteilung von Radionukliden auch zu Umverteilungen von Spurenelementen wie Pb, Hg, As (sublimiert bei 673 °C). Diese Spurenelemente sind daher in Filterstäuben der Verhüttung verglichen mit den Roh- und Zuschlagstoffen angereichert, in den Schlacken abgereichert.

Ein sehr gut untersuchtes Beispiel für diese begleitenden Anreicherungen sind die Theisenschlämme der Kupferschieferverhüttung. Dabei handelt es sich um in Wasser suspendierte, eingedickte und dann deponierte Flugstäube aus der Verhüttung des Kupferschiefers. Die Partikelgröße beträgt  $<0,1 \mu\text{m}$ . Charakteristisch für die Theisenschlämme sind hohe Blei- und Zn-Gehalte, die in den Hauptphasen sulfidisch, sulfatisch oder oxidisch ausgebildet sind /NOE 96/, /DES 99/.

Eine Auswertung von Daten aus /DES 99/ ergibt die in Tabelle 3.7-2 aufgeführten Anreicherungsfaktoren für Spurenelemente für den Transfer Kupferschiefer → Theisenschlamm. Der höchste Wert für As ist plausibel, da As bei 673 °C sublimiert. Der relativ niedrige Wert von Pb ist eventuell auf die sehr hohen Pb-Gehalte im Rohstoff zurückzuführen. Nicht plausibel ist die hohe Th-Anreicherung in diesem Datensatz.

Tabelle 5-9: Anreicherungsfaktoren (EF) Kupferschiefer → Theisenschlamm (berechnet nach Daten von /DES 99/)

	EF		EF		EF
MgO	0,22	Rb	4,20	Pb	20,32
Sr	0,53	$\text{K}_2\text{O}$	4,99	Zr	27,39
Mn	0,64	$\text{TiO}_2$	5,57	$\text{Na}_2\text{O}$	32,74
CaO	0,69	Ag	6,90	Tl	45,67
V	0,82	$\text{P}_2\text{O}_5$	7,67	Th	47,50
Ni	1,27	Zn	8,19	Sb	128,13
$\text{Fe}_2\text{O}_3$	1,58	$\text{SO}_3$	8,65	Sn	142,07
U	1,94	Cd	8,67	Hg	156,00
Cu	2,12	Ba	10,05	Bi	212,00
$\text{Al}_2\text{O}_3$	2,93	Cl	12,63	As	247,19
Mo	3,37	Se	19,50		

## 5.7 Andere Rohstoffe: Titandioxid-Pigmentproduktion

### 5.7.1 Prozesse der Radionuklidumverteilung

Bei der Herstellung von Titandioxid-Pigmenten wird nach /BMU 05a/ titandioxidhaltiges Erz (Schlacken, Ilmenit, Rutil, Pyrit) nach dem Sulfat- oder Chloridverfahren aufgeschlossen.

Zur Erzaufbereitung wird das Erz zunächst zu kleinen Stücken mit einer Größe von etwa 12 mm zerbrochen und dann in ein feines Pulver zermahlen. Die im Erz enthaltenen Sulfide und vor allem der Magnetit werden abgetrennt. Das pulverisierte Mineralgemisch wird durch Flotation getrennt. Magnetit wird mittels starker Magnetfelder separiert. Nach Abtrennung der Flotationschemikalien erhält man aus dem ursprünglich 18%igen Erz ein Ilmenitkonzentrat mit einem Titandioxidanteil von rund 45% /Sei 05c/.

Herstellung nach dem Sulfatverfahren /SEI 05c, BMU 01/

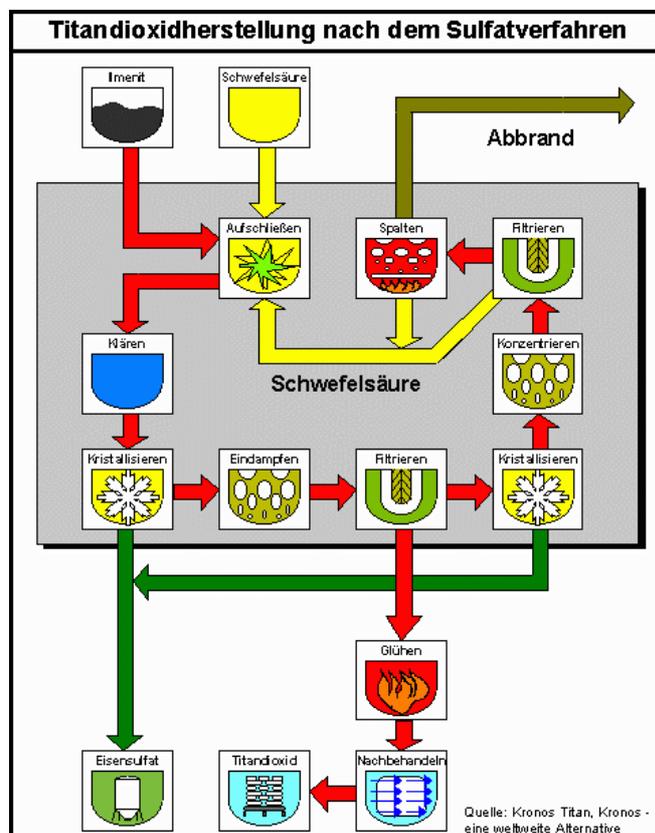


Abbildung 5-7: Flussbild zur Titandioxidherstellung nach dem Sulfatverfahren (Quelle: Kronos)

Bei der Herstellung von Titandioxid nach dem Sulfatverfahren werden die eingesetzten Rohstoffe Ilmenit oder Titanschlacke zunächst getrocknet und in Kugelmühlen auf eine mittlere Korngröße von ca. 40 µm gemahlen. Die entstehenden Abluftströme werden über einen Staubfilter geführt.

Beim anschließenden diskontinuierlichen Aufschlussverfahren werden die gemahlene Titan-Rohstoffe mit Schwefelsäure gemischt. Die Reaktion wird durch Zugabe von Wasser, Schwefelsäure (<70 %) und evtl. Dampf gestartet.

Durch die Hydrationswärme der Säure stellt sich zunächst eine Reaktionstemperatur von 50 – 70 °C ein, die dann durch eine exotherme Sulfatbildung gemäß Reaktionsgleichung:



weiter erhöht wird. Nach Erreichen der Maximaltemperatur muss die Aufschlussmasse je nach Rohstoff 1 – 12 Stunden lang reifen, um einen möglichst hohen Aufschlussgrad zu erreichen.

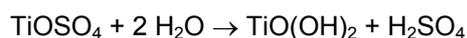
Bei diesem Aufschluss sollten Uran und Thorium mit gelöst, Radium und Blei gemeinsam mit anderen unlöslichen Sulfaten als nicht aufgeschlossener Feststoff im Aufschlussrückstand verbleiben. Die Analysendaten nach Tabelle 3-39 zeigen allerdings auch für Uran und Thorium Anreicherungen gegenüber den Erzaktivitäten, deren Ursache wahrscheinlich in der Kreislaufführung der Schwefelsäure zu suchen ist.

Die Aufschlussmasse wird im Aufschlussbehälter mit kaltem Wasser oder verdünnter Säure, die aus dem Prozess zurückgeführt wird, gelöst. Dabei wird durch Einblasen von Luft gerührt. Die  $\text{TiO}_2$ -Konzentration der Lösung liegt bei 8 – 12 % (Ilmenit-Aufschluss) bzw. 13 – 18 % (Schlacke-Aufschluss). Um eine Mitfällung der  $\text{Fe}^{3+}$ -Ionen bei der Hydrolyse zu verhindern, erfolgt beim Ilmenit-Aufschluss die Reduktion von  $\text{Fe}^{3+}$  zu  $\text{Fe}^{2+}$  durch Zugabe von Eisen oder  $\text{Ti}^{3+}$ -Lösung.

Alle nicht aufgeschlossenen Feststoffe werden anschließend mittels Eindicker, Vakuumdrehfilter oder Filterpresse möglichst vollständig aus der Lösung abgetrennt. In dieser Fraktion sind Radiumanreicherungen zu erwarten.

Die Lösungen enthalten 5 – 6 %  $\text{FeSO}_4$  (Schlacke-Aufschluss) bzw. 15 – 20 %  $\text{FeSO}_4$  nach  $\text{Fe}^{3+}$ -Reduktion (Ilmenit-Aufschluss). Beim Ilmenit-Aufschluss wird anschließend Eisensulfat  $\text{FeSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$  durch Vakuumkühlung auskristallisiert. Hierdurch wird der  $\text{FeSO}_4$ -Ausstoß mit den Gebrauchsäuren vermindert und die  $\text{TiO}_2$ -Konzentration der Lösung auf ca. 25 % erhöht. Das Salz wird durch Zentrifugieren oder Filtration abgetrennt. Es kann als Grünsalz zur Abwasserreinigung eingesetzt werden oder es wird entwässert und der Salzsaltanlage zugeführt, in der eine thermische Spaltung zu  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  und  $\text{SO}_2$  erfolgt. Aus chemischen Gründen ist zu erwarten, dass Blei (Pb-210), Radium (soweit noch vorhanden) und Thorium bei dieser Kristallisation mit ausfallen und sich im Eisensulfat anreichern. Uran sollte in Lösung verbleiben.

Entsprechend der folgenden Reaktionsgleichung wird anschließend Titanoxidhydrat durch Hydrolyse bei 95 – 110°C ausgefällt. Um die Hydrolyse bis  $\text{TiO}_2$ -Ausbeuten von 93 – 96 % zu treiben, werden Hydrolysebeschleunigungskeime zugesetzt bzw. am Anfang der Hydrolyse erzeugt.



Nach der Hydrolyse enthält die flüssige Phase der Lösung 20 – 28 %  $\text{H}_2\text{SO}_4$  und je nach Rohstoff unterschiedliche Mengen gelöster Sulfate. In dieser Lösung sollte sich auch Uran befinden. Das Titanhydrat wird durch Filtration von der Gebrauchsäure getrennt. An den deutschen Produktionsstandorten wird die Gebrauchsäure in einer Säureaufbereitungsanlage auf eine ca. 70 – 80 %ige  $\text{H}_2\text{SO}_4$  aufkonzentriert und anschließend wieder zum Aufschluss der Titan-Rohstoffe eingesetzt. Statt Aufbereitung und Wiederverwertung wurde früher die Gebrauchsäure mit Kalkmilch unter Gipsbildung neutralisiert<sup>15</sup>.

Im Anschluss an die Gebrauchsäureabtrennung wird das Hydrat mit Wasser oder schwacher Säure gewaschen. Die auch nach einer sauren Wäsche noch verbleibenden Schwermetall-Verunreinigungen des Hydrats (Fe, Cr, Mn, V und wahrscheinlich auch Reste von Uran) werden durch die Zugabe von Reduktionsmittel (z. B.  $\text{Ti}^{3+}$ -Lösung oder Aluminium) und Säure entfernt (Bleiche). Nach einer weiteren Filtration und Wä-

---

<sup>15</sup> Eine weitere Möglichkeit ist die Abgabe der Gebrauchsäure an die Düngemittelproduktion.

sche mit verdünnter Säure enthält das Hydrat nur noch geringe farbgebende Verunreinigungen. Die bei der Wäsche des Hydrats abfiltrierten Säuren werden in Speicherbehältern gesammelt, aus dem sie wieder in den Prozess zurückgeführt werden können bzw. als Abwasser abgegeben werden.

Nach dem Waschen enthält das Hydrat noch 5 – 10 % H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> in gebundener Form. Zur Herstellung eines kristallisierten (Anatas-, Rutilstruktur), möglichst reinen technischen TiO<sub>2</sub> wird das Hydrat in einem Drehrohr-Ofen geglüht. Je nach Glüh-temperatur bildet sich relativ grobes Titandioxid mit unterschiedlichem Rutilgehalt. Um Pigmente bestimmter Qualität zu erhalten, werden dem Hydrat vor dem Glühen Alkalimetall-Verbindungen sowie Phosphorsäure als Mineralisatoren (< 1 %) zugegeben. Das so dotierte Hydrat wird vor dem Eintrag in den Ofen filtriert. Hierdurch wird eine Entwässerung auf ca. 40 % TiO<sub>2</sub>-Gehalt (Vakuumdreh-filter) bzw. ca. 50 % TiO<sub>2</sub>-Gehalt (Pressfilter) erreicht. Der Drehrohr-Ofen wird mit Öl oder Gas beheizt. Etwa 2/3 der gesamten Verweilzeit im Ofen von 7 – 20 h wird zum Trocknen des Gutes benötigt. Ab ca. 500 °C wird Schwefeltrioxid abgespalten, welches bei höheren Temperaturen partiell in SO<sub>2</sub> und O<sub>2</sub> zerfällt. Das Produkt erreicht max. Temperaturen von 800 – 1.100 °C. Das Abgas muss beim Verlassen des Ofens eine Temperatur von > 300 °C haben, um die Kondensation des H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> in den Rohrleitungen zu vermeiden. Zwecks Energieeinsparung kann ein Teil des Abgases in die Brennkammer des Ofens zurückgeführt werden. Die Hauptmenge muss jedoch der Abgasreinigung zugeführt werden. Der ausgetragene Klinker wird mit Luft gekühlt und anschließend gemahlen. Bei der Nachbehandlung des Mahlgutes werden Additive und Wasser zugegeben, was zu einem Abwasseranfall führt. Bei der Nachbehandlung fällt eine staubhaltige Ab-luft an, die zur Abtrennung der mitgeführten feinen TiO<sub>2</sub>-Pigmente über Tuchfilter geführt wird. Das zurück-gehaltene Titandioxid wird anschließend in den Prozess zurückgeführt.

Herstellung nach dem Chloridverfahren /SEI 05c, BMU 01/

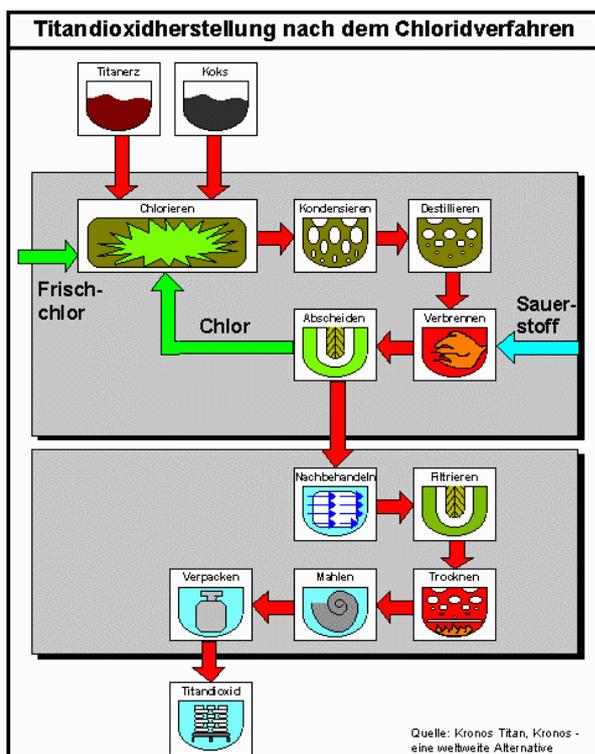
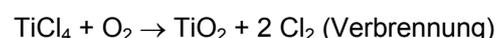
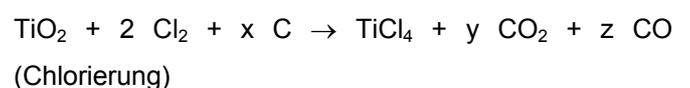


Abbildung 5-8: Flussbild zur Titandioxidherstellung nach dem Chloridverfahren (Quelle: Kronos)

Im Gegensatz zum Sulfatverfahren ist der Chlorid-Prozess ein kontinuierliches Verfahren, wobei entsprechend der folgenden Reaktionsgleichungen und das zum Aufschluss der Rohstoffe (Chlorierung) benötigte Chlor wieder freigesetzt und im Kreis gefahren wird.



Die einzelnen Prozessschritte sind:

Aufschluss der Rohstoffe (Schlacke, Rutil, synthetischer Rutil und in seltenen Fällen Ilmenit oder Leukoxen) durch Chlorierung in einem Wirbelbettreaktor mit Petrolkoks als Reduktionsmittel. Das Chlor wird dabei zu 98 – 100 %, die Titananteile des Rohstoffes zu 90 – 100 % umgesetzt. Die Chlorierungstemperatur liegt bei ca. 1.000°C. Hierbei liegen die meisten der gebildeten Metallchloride gasförmig vor mit Ausnahme von Mg- und Ca-Chlorid (also wahrscheinlich auch Ba- und Ra-Chlorid, soweit nicht als Sulfate unaufgeschlossen) und unchloriertes SiO<sub>2</sub>. Der zugesetzte Petrolkoks ist extrem aschearm und kann daher auch als weitgehend frei von Radioaktivität eingeschätzt werden.

Kondensation der gasförmigen Metallchloride sowie feinteiligen Feststoffe (nicht reagiertes TiO<sub>2</sub>, SiO<sub>2</sub> und Petrolkoks) zusammen mit TiCl<sub>4</sub> und den übrigen Reaktionsgasen (CO<sub>2</sub>, CO, HCl, N<sub>2</sub>, COS aus dem Schwefelanteil im Petrolkoks) durch Einsprühung von kaltem TiCl<sub>4</sub> bei einer Temperatur knapp oberhalb des Siedepunktes von TiCl<sub>4</sub>. Dabei kondensiert der Großteil der übrigen Metallchloride zu Feinstaub und kann zusammen mit dem Feststoffaustrag aus dem Reaktor vom Hauptgasstrom abgetrennt werden. Dieser Feststoffaustrag sollte den Hauptteil der Radionuklide enthalten.

Behandlung des Feststoffaustrags mit Abtrennung von Koks und einer Metall-Chlorid-Lösung. Sofern die Metall-Chlorid-Lösung durch Auswahl geeigneter Chlorierungsrohstoffe vorwiegend Fe(II) enthält, kann die Lösung als Fäll- und Flockungsmittel in der Abwasserbehandlung eingesetzt werden. Anderenfalls erfolgt eine Neutralisation mit Kalk mit anschließender Deponierung der Feststoffe.

Auskondensieren von TiCl<sub>4</sub> durch weitere Kühlung (mehrstufige Kondensation bis auf < 0°C) aus dem Gasstrom. Der verbleibende Abgasstrom (CO<sub>2</sub>, CO, HCl, N<sub>2</sub>, COS, Cl<sub>2</sub> und Spuren von TiCl<sub>4</sub>) durchläuft eine mehrstufige Wäsche (TiCl<sub>4</sub>, HCl) mit nachfolgender Entschwefelung (COS) und abschließend einer Abgasverbrennung, in der das CO zu CO<sub>2</sub> verbrannt wird. Der Abgasstrom der Verbrennung wird in die Atmosphäre abgegeben. Er sollte, evtl. mit Ausnahme von Rn-222, praktisch frei von natürlichen Radionukliden, auch von Pb-210 oder Po-210 sein. Durch geeignete Wahl der verfahrenstechnischen Schritte kann in der Abgaswäsche eine technisch reine, verkaufsfähige Salzsäure hergestellt werden. Der Schwefel aus der Entschwefelung gelangt ebenfalls als Produkt in den Verkauf. In diesen Koppelprodukten sind Anreicherungen von Radionukliden nicht zu erwarten.

Reinigung des flüssigen „Roh-TiCl<sub>4</sub>“ durch Destillation unter Zugabe eines Reduktionsmittels zur Ausfällung von Vanadium unterworfen (Vanadium muss nahezu quantitativ entfernt werden, da bereits wenige ppm zu einer Gelbfärbung der Pigmente führen würden).

Verbrennen des gereinigten TiCl<sub>4</sub> im Temperaturbereich von ca. 900°C (Starttemperatur) bis ca. 2.000°C (max. Reaktionstemperatur) mit Sauerstoff entsprechend oben aufgeführter Reaktionsgleichung zu TiO<sub>2</sub>. Dabei werden die Reaktionsbedingungen so gesteuert, dass die geforderte Teilchengrößenverteilung für das Pigment erzielt wird.

Der den Brenner verlassende Heißgasstrom mit den darin suspendierten TiO<sub>2</sub>- Partikeln wird in einer nachfolgenden Kühlstrecke durch indirekte Kühlung mit Wasser abgekühlt und das TiO<sub>2</sub> über Feinfilter abge-

trennt. Der vom TiO<sub>2</sub> befreite Gasstrom (überwiegend Cl<sub>2</sub> mit geringen Mengen O<sub>2</sub>) wird direkt zur Chlorierung rückgeführt. An zusätzlichem Frischchlor wird nur so viel benötigt, wie durch Umsetzung mit den Verunreinigungen des Erzes (Metallchloride, als Staub abgeschieden) sowie durch Bildung von HCl verbraucht wird. Eine hohe TiO<sub>2</sub>-Konzentration im Rohmaterial ist erforderlich, um die Chlor-Verluste zu reduzieren.

Das TiO<sub>2</sub> wird dann in Wasser dispergiert und zur Einstellung der gewünschten Pigmenteigenschaften weiterbehandelt (z. B. Feinstmahlung, Oberflächenbehandlung, Trocknung, Mikromisierung, Abpackung). Die bei der Nachbehandlung entstehenden Abluftströme werden vor Abgabe in die Atmosphäre über einen Staubfilter geführt, wobei die abgeschiedenen TiO<sub>2</sub>-Pigmente in den Prozess zurückgeführt werden. Die Flüssigphase der Nachbehandlung wird als Abwasser abgegeben.

### 5.7.2 Ermittlung von Prozessparametern

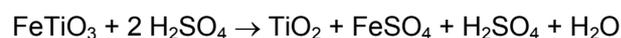
Die bisher vorliegenden Messungen zur Radioaktivität von Materialien der Titandioxidproduktion (s. Kapitel 3.6.3.5) sind nicht unmittelbar prozessbezogen zuzuordnen. Unter Nutzung der in Tabelle 3-38 und Tabelle 3-39 zusammengestellten Daten und dem daraus grob abgeschätzten Nuklidvektor der Ausgangsstoffe ergeben sich die in Tabelle 5-10 aufgeführten Anreicherungsfaktoren.

Tabelle 5-10: Berechnete Anreicherungsfaktoren für Materialien der Titandioxidproduktion

	U-238	Th-230	Ra-226	Pb-210	Ra-228	Th-228
Spezif. Aktivität Erz (Ausgangsstoff) in Bq/kg	10	10	30	10	100	100
	Anreicherungsfaktoren EF (Rückstand/Ausgangsstoff)					
Aufschlussrückstand	3,5	10	2,0	3,0	2,15	1,30
Abbrand	1,4	< 2,0	0,3	0,6	0,15	0,32
Filtertücher	< 17	150	300	120	360	26
Filtertücher	< 20	< 150	450	110	610	36
Filtertücher	< 3	< 20	63	270	87	7

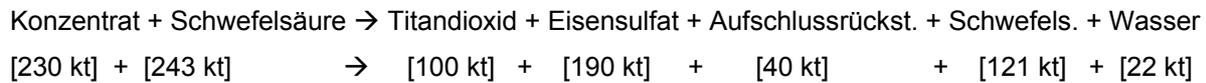
Insbesondere die an den Filtertüchern abgetrennten Materialien zeigen eine starke Anreicherung von Radium und Pb-210 (Größenordnung 10<sup>2</sup>-10<sup>3</sup>), eine signifikante Anreicherung von Thorium (Größenordnung 10<sup>1</sup>) und geringe bis keine Anreicherungen von Uran. Allerdings können auch die Aufschlussrückstände mit einer Anreicherung von 2 – 3 in einen Aktivitätsbereich fallen, der radiologisch nicht grundsätzlich zu vernachlässigen ist (spezifische Aktivität über 0,2 Bq/g bzw. 200 Bq/kg).

Um den Anreicherungsfaktoren prozessbezogene Trennfaktoren zuzuordnen, sind Massenbilanzen erforderlich. Die Massenangaben zum Sulfatverfahren nach Kapitel 3.6.3.5 ergeben für die Aufschlussrückstände eine Masse von 40.000 t /a. Diese Masse entspricht den nicht aufgeschlossenen Mineralanteilen des Ausgangsstoffes (Erz). Mit der normierten Massenbilanz für den stöchiometrisch reinen Gesamtprozess der Titandioxidproduktion nach dem Sulfatverfahren



$$[0,44] + [0,56] \rightarrow [0,23] + [0,44] + [0,28] + [0,05]$$

ergibt sich als Massenbilanz für eine Produktion von 100 kt Titandioxid pro Jahr:



und damit als Massentrennfaktor für den Aufschlussrückstand

$$\text{MTF (Aufschlussrückstand)} = 40/473 = 0,085$$

Der Zuschlagfaktor ergibt sich bei Annahme, dass frische Schwefelsäure aktivitätsfrei ist zu

$$\text{ZF} = 1 / (1 + 243/230) = 0,55.$$

Damit können die Aktivitätstrennfaktoren für den Sulfataufschluss von Titanerzen abgeschätzt werden. Formal ergeben sich Werte von  $\text{ATF(U-238)} = 0,54$ ;  $\text{ATF(Th-230)} = 1,5$  (?);  $\text{ATF(Ra-226)} = 0,30$ ;  $\text{ATF(Pb-210)} = 0,46$ ;  $\text{ATF(Ra-228)} = 0,33$  und  $\text{ATF(Ra-224)} = 0,20$ . Für die meisten Nuklide ergeben sich Werte zwischen 0,3 bis 0,5, d.h. dass ca. 30 bis 50 % der Aktivität des Ausgangsmaterials im Aufschlussrückstand verbleiben. Der Wert für Th-230 ist nicht plausibel da größer 100 %, realistischer ist der Wert von 20 % für Ra-224, der als Th-228 zu interpretieren ist. Das bedeutet insgesamt, dass ein wesentlicher Anteil der Aktivität durch den Aufschluss in Lösung geht und erst in späteren Prozessschritten abgetrennt wird. Eine wichtige Senke für Radionuklide könnte die Eisensulfatproduktion sein. Durch die großen Massenströme ist für dieses Produkt nicht mit erheblichen Radionuklidanreicherungen zu rechnen. Die Bedeutung der Filtrationsschritte (untersucht als dabei anfallende Filtertücher) für die Nuklidbilanzen ist ohne Kenntnis der Massenströme derzeit nicht möglich.

Legt man die oben beschriebenen Anreicherungs-faktoren zugrunde, so muss bei der Beurteilung von Hinterlassenschaften früherer Titandioxidproduktionen damit gerechnet werden, dass die spezifischen Aktivitäten höher als bei derzeitigen Rückständen ausfielen, da die frühere Rohstoffauswahl die Radioaktivität nicht berücksichtigte.

## 5.8 Radionuklidumverteilung bei Verbrennungsprozessen

### 5.8.1 Beschreibung der Prozesse

Grundprozess der Verbrennung konventioneller Energieträger ist die Oxidation von Kohlenstoff zu  $\text{CO}_2$ . Dabei können als Energieträger feste Stoffe (Kohle, Holz, Torf, Müll, ...) aber auch flüssige Stoffe (Öl) oder Gase genutzt werden. Radionuklidanreicherungen sind dabei vor allem bei festen Energieträgern möglich. Daher werden nur solche Stoffe im Folgenden betrachtet.

Die Radionuklidanreicherung bei der Verbrennung ist das Ergebnis der Umwandlung des festen Brennstoffes in das gasförmige  $\text{CO}_2$  und das Zurückbleiben der unbrennbaren mineralischen Verbrennungsrückstände als Aschen. Daneben ist aber auch die Verflüchtigung von volatilen Elementen bei hohen Temperaturen zu beachten, die zu einer selektiven Mobilisierung vor allem von Blei und Polonium führen kann (s. /SSK 81/).

Wie im Kapitel 4.3 beschrieben, treten prozessbedingt verschiedene Formen von Aschen sowie daneben auch andere Restmaterialien der Rauchgasreinigung (vor allem der SO<sub>2</sub>-Entfernung) auf.

Nach /REN 02/ ist bei Anlagen mit einer Rückführung der Filterasche, z. B. Schmelzkammerfeuerungen, mit einer erhöhten Konzentration von Schwermetallen im Rauchgas zu rechnen, da die längeren Verweilzeiten bei recht hohen Temperaturen zu einer vermehrten Verdampfung führen.

Ein im Zusammenhang mit der Verbrennung möglicher weiterer Anreicherungsprozess von Radionukliden besteht in der Aufbereitung von Kohlen (s. Kapitel 5.8.4).

### 5.8.2 Ermittlung von Prozessparametern

Wesentlichste Kenngröße für die Radionuklidumverteilung bei Verbrennungsprozessen ist der Aschegehalt, da die meisten Radionuklide in der Asche zurückbleiben. Angaben zu Aschegehalten von Kohlen und anderen Brennstoffen enthält Tabelle 5-11. In den Modelltermini nach Kapitel 5.1 entsprechen die Aschegehalte (bei Ausblenden der Luft als Zuschlagstoff) den MTF. In erster Näherung sollte für die meisten Radionuklide (außer Pb-210, Po-210) der ATF bei 1,0 liegen.

Tabelle 5-11: Aschegehalte einiger Brennstoffe

	Aschegehalt	Anmerkungen	Quelle
Steinkohle	7 – 40 %	(Mittelwert 15%)	/BER 96/, /PUC 97/
Jüngere Braunkohle	2 – 12 %	Bei 40 – 70 % Feuchte	CODED Datenbank (Eurostat)
Holzbriketts	0,5 %		
Holz (Biomasse-heizkraftwerk)	1,8 %	Bezogen auf eingesetzte Holzmasse	Daten aus Kapitel 4.3.3
Torf	0,27 %	Bei 30 % Feuchte	/ÖKO 99/

Damit ergeben sich als Anreicherungsfaktoren EF (ohne Pb-210, Po-210) für die Verbrennung Werte von

Steinkohle	EF = 2,5 bis 15	Braunkohle	EF = 8 bis 50
Holz	EF ca. 50 bis 200	Torf	EF bis ca. 400

Der Wert für Steinkohle stimmt gut mit Angaben aus der Literatur überein, nach denen die Anreicherungsfaktoren von radioaktiven Elementen im Staub gegenüber Kohle zwischen 2 und 15 liegen /ITK 89/. Aus Studien, die 1980 bzw. 1981 abgeschlossen wurden, werden in einer Empfehlung der SSK /SSK 81/ ebenfalls Anreicherungsfaktoren für Ra-226, U-238 und Th-232 von etwa 10 genannt. In der SSK Empfehlung wird die Anreicherung von Pb-210 im Staub von Steinkohlekraftwerken mit 100, die von Po-210 mit 200 angegeben.

Für Braunkohlekraftwerke nennt die SSK Anreicherungsfaktoren von 3-5 für Ra-226, Th-232, U-238 und 10 für Pb-210, Po-210. Dabei ist die Bezugsmasse aber wahrscheinlich nicht die Feuchtmasse der Kohle, sondern eine Trockenmasse.

Die konkrete Umverteilung der Radionuklide in einem Kraftwerk ist wegen der unterschiedlichen Prozessabläufe und Reinigungsstufen für die Staubanteile nicht durch die einfachen Abschätzungen über den Aschegehalt zu beschreiben. In Tabelle 5-12 sind die Aktivitäts- und Massenbilanzen für ein Steinkohlenkraftwerk mit Trockenfeuerung und daraus abgeleitete Modellgrößen der Radionuklidumverteilung zusammengestellt. Die Angaben sind in verschiedenen Publikationen /BER 96/, /PUC 97/, /PUC 05/ enthalten, beziehen sich aber primär auf die Arbeit von Rohrer /ROH 90/. In dem untersuchten Kraftwerk wurde die Grobasche in den Verbrennungskessel rückgeführt, so dass kein Output an Grobasche entstand. Die Angaben in /ROH 90/ zur spezifischen Aktivität der Grobasche lassen auf einen Anreicherungsfaktor zur eingesetzten Kohle von ca. 9 schließen. Der größte Teil der Radionuklide geht allerdings in den Filterstaub über. Für diese Fraktion ist die Radionuklidanreicherung mit EF von ca. 16 praktisch völlig durch den Massentrennfaktor (Aschegehalt) determiniert.

Tabelle 5-12: Aktivitäts- und Massenbilanzen für ein Steinkohlenkraftwerk mit Trockenfeuerung und daraus abgeleitete Modellgrößen der Radionuklidumverteilung (ohne Pb-210, Po-210)

	Kohle <sup>+) </sup>	Absetzbeckenschlamm	Filterstaub	Kalkstein	Filterpressenschlamm	Gips	Reststaub
	Ausg.-st.	Rückst.	Rückst.	Zuschlagst.	Rückst.	Rückst.	Rückst.
Ausgangsdaten nach /PUC 97/							
M [Mg/a)	385.495	10	27.577	11.825	500	20.995	2,1
a <sub>(Th-Reihe)</sub> [Bq/g]	77	44	1.150	10	47	10	
a <sub>(U-Reihe)</sub> [Bq/g]	114	60	1.947	48	179	19	
a <sub>Th-232sec</sub> [Bq/g]	8	4	115	1	5	1	
a <sub>U-238sec</sub> [Bq/g]	10	5	177	4	16	2	
Berechnete Modellparameter							
MTF		2,6E-05	7,2E-02		1,3E-03	5,4E-02	
ZF(Th-Reihe)				1,096			
ZF(U-Reihe)				1,379			
EF(Th-Reihe)		0,57	15		0,61	0,13	
EF(U-Reihe)		0,53	17		1,57	0,17	
ATF(Th-Reihe)		1,5E-05	1,0E+00 *)		7,2E-04	6,5E-03	
ATF(U-Reihe)		1,4E-05	1,0E+00 *)		1,5E-03	6,6E-03	

+) incl. 160.000 Mg Aschewasser; \*) rechnerisch aus den Daten nach /PUC 97/ größer als 1,0

Nicht im Detail untersucht wurde von Rohrer allerdings das Verhalten von Pb-210 und Po-210 bei der Verbrennung. Bereits in /SSK 81/ wird die besondere Anreicherung dieser Nuklide in die Flugasche hingewiesen. Angaben von Rentz /REN 02/ belegen ebenfalls, dass in kohlebefeierten Kraftwerken mit Trockenfeuerung mehr als 80 %, bei Braunkohle sogar 98 % des Eintrags/Inputs von Pb über den Flugstaub ausgebracht werden (s. Tabelle 5-13). Nimmt man diesen Wert als Aktivitätstrennfaktor für Pb-210 an, so ist die Anreicherung von Pb-210 im Flugstaub entscheidend von den Massentrennungen zwischen Grobasche und Flugasche abhängig. Es ist fraglich, ob die beispielhafte Untersuchung von Rohrer /ROH 90/ in dieser Beziehung vor allem auch in Hinblick auf frühere Prozesse hinreichend repräsentativ für die deutschen Kohle-

kraftwerke ist und die dort enthaltenen Massenbilanzen soweit übertragbar, dass größere als die in Tabelle 5-12 aufgeführten Anreicherungen ausgeschlossen werden können. In Anbetracht der Massenströme und der vorwiegend auf Verwertung orientierten Entsorgung sind genauere Untersuchungen zu empfehlen.

Tabelle 5-13: Schwermetallbilanzen in kohlebefeueten Kraftwerken /REN 02/

Feuerungstyp	Steinkohle, Trockenfeuerung	Braunkohle, Trockenfeuerung	Steinkohle, Schmelzkammerfeuerung
Austrag [% des Eintrags]: Grobasche (Trockenfeuerung) Granulat (Schmelzkammer)			
As	1,6 - 7,5	0,4	10 - 21,2
Cd	1,8 - 8,9	-	15 - 30,1
Hg	2	-	2
Pb	3,1 - 11,3	1,1	76,7 - 88,8
Austrag [% des Eintrags]: Flugstaub (Trockenfeuerung)			
As	88 - 91,2	98	
Cd	89,8 - 95	96	
Hg	17 - 39	49	
Pb	81 - 94	98	
Austrag [% des Eintrags]: Gips bzw. Abwasser			
As	0,4 - 1,19	0,4	21,4 - 83,5
Cd	1,1 - 3,5	0,4	72 - 79
Hg	27 - 41	4,9	44 - 71
Pb	0,9 - 1	0,4	10 - 17,5
Austrag [% des Eintrags]: Rauchgas			
As	0,18	0,06	6,5 - 17,3
Cd	0,19	4,2	0,1 - 6
Hg	18 - 32	44	27,6 - 54
Pb	0,17	0,5	1,2 - 2,6

### 5.8.3 Begleitende Anreicherungen anderer Schadstoffe

Durch die Verbrennung werden andere anorganische Spurenstoffe analog zu den Radionukliden in der Asche angereichert. Soweit sie bei hohen Temperaturen flüchtig sind, reichern sie sich in der Flugasche an. Tabelle 5-13 zeigt, dass die flüchtigen Elemente As, Cd, Hg, Pb in besonderem Maße in der Flugasche angereichert werden.

### 5.8.4 Aufbereitung von Steinkohlen

Bei festen Brennstoffen wie Steinkohle und Braunkohle sind meisten Schwermetalle im Mineralanteil der Kohle enthalten. Daher kann durch eine Abtrennung des anorganischen, inerten Materials eine Reduzierung

der eingebundenen Schwermetalle in den Aschen und sonstigen Emissionen von Kraftwerken erreicht werden. Für die Verringerung des Gehalts der organisch gebundenen Schwermetalle stehen großtechnisch und zu vertretbaren Kosten derzeit keine Verfahren zur Verfügung /REN 02/.

Der Aufbereitungsprozess umfasst nach /REN 02/ eine mechanische Aufbereitung in drei Schritten: Zerkleinerung des Brennstoffes, Flotation mit Wasser zur Abtrennung des inerten Anteils und Trocknung des übriggebliebenen organischen Anteils. In einigen Fällen werden auch mehrstufige Verfahren mit zwei oder mehr Flotationsstufen unterschiedlicher Trenndichten eingesetzt.

Typische Abtrenngrade für verschiedene Elemente sind in Tabelle 5-14 enthalten.

Abgesehen von den für einige Elemente teilweise geringen Abtrenngraden führt die Kohleaufbereitung zu einem erhöhten Wassergehalt und auf diese Weise zu einem negativen Einfluss auf den Heizwert. Ein dritter Aspekt bei der Aufbereitung ist aus dem Prozess resultierendes Abwasser, das eine umfangreiche Abwasserreinigung erfordert /REN 02/.

Tabelle 5-14: Mögliche Verminderung der Schwermetallgehalte in Kohlen durch Aufbereitung in technischen Kohleaufbereitungsanlagen [KIRCHARTZ 1995] (zitiert aus /REN 02/)

Bereich des Abtrenngrades [%]	Element
< 10 -	
11 - 25	Hg, Se
26 - 50	As, Cd, Cu, Ni, Zn
51 - 70	Mn, Pb
> 71	

Nimmt man an, dass bei dieser Aufbereitung die radionuklidhaltigen Schwerminerale analog zur Gruppe As ... Zn reduziert werden, so ist eine Abreicherung von Uran, Thorium und Radium bei der technischen Kohleaufbereitung um ca. 40 % realistisch. In den Aufbereitungsrückständen muss jedoch von einer Anreicherung der Radionuklide ausgegangen werden. Nimmt man als abgetrennten Mineralanteil der Kohle einen Wert von 10 % (= MTF) an, dann bedeutet eine Abtrennung von 40 % (= ATF) der ursprünglichen Radionuklide bei Annahme eines aktivitätsfreien Flotationsfluids ( $a_z = 0$ ) eine Anreicherung von

$$EF = 4$$

Damit sind Steinkohlen mit spezifischen Aktivitäten unter 50 Bq/kg (0,05 Bq/g) auch in Bezug auf Aufbereitungsprozesse radiologisch nicht relevant.

Ob bzw. inwieweit es bei einem solchen Aufbereitungsprozess zur selektiven Lösungen von Radium oder Uran und die Bildung von Ablagerungen kommt, ist ohne konkrete Falluntersuchung nicht zu bewerten.

## 5.9 Andere Hochtemperaturprozesse

Die Arbeiten /HIP 97/ und /SMI 98/ enthalten Angaben zu Radionukliden in Zirkonsanden und im Flugstaub, die beim Brennen (Sintern) von Zirkon in Elektroöfen auftreten. Die in Tabelle 5-15 zusammengestellten Angaben zeigen, dass es bei diesem Brennprozess zu Anreicherungen von Pb-210, aber möglicherweise auch leichteren Anreicherungen von Ra-226, Ra-228 kommt. In Anbetracht einige unplausibler Messwerte in diesen Datensätzen (vor allem Th-230) können dieser Angaben nicht in allen Punkten als belastbar eingestuft werden. Die Anreicherung von Pb-210 und Po-210 erscheint allerdings plausibel. Die Anreicherungsfaktoren errechnen sich zu

EF(Pb-210) ca. 20 bis 70

EF(Po-210) ca. 60 bis 70

Sie sind damit etwas geringer als die Anreicherungsfaktoren bei der Roheisenverhüttung, aufgrund der in der Regel deutlich höheren spezifischen Aktivität von Zirkon im Vergleich zu Eisenerzen kann allerdings die spezifische Aktivität der Flugstäube höher als die der Stäube in Eisenhütten sein.

Eine komplette Bilanzierung der Massen- und Aktivitätsströme und eine Ermittlung der MTF, ATF ist aufgrund fehlender Angaben in den hier herangezogenen Arbeiten nicht möglich. In /SMI 98/ wird allerdings als Menge an sichergestelltem Flugstaub aus einer längeren Betriebszeit 100 Tonnen genannt. Diese Angabe zeigt, dass derartige Prozesse durchaus zu größeren Materialmengen führen können.

Tabelle 5-15: Radionuklide in Zirkon-Ausgangsmaterial sowie in Flugstäuben beim Brennen dieser Rohstoffe

	Th-232	Ra-228	Th-228	U-238	Th-230	Ra-226	Pb-210	Po-210	Quelle
Zircon (Raw material)	0,6	0,6		3		3	3	3	HIP 97
Raw material	0,3	2	0,4	9,5	1,3	10	10	(10)*	SMI 98
Zirconia flue dusts	0,5	8		3		3	200	200	HIP 97
Furnace dust collector fines	1,8	11	3,6	16	2,5	30	200	600	SMI 98

\*) Datensatz ergänzt.

## 5.10 Radionuklidanreicherungen beim Quecksilberrecycling

Ein spezieller Fall der technischen Radionuklidanreicherung betrifft die vakuothermische Entquickung von Rückständen der Erdöl-/Erdgasgewinnung. Aufgrund der vielfältigen Reinigungsprozesse, die bei teils extrem unterschiedlichen Temperaturen und Drücken ablaufen, kommt es dabei auch zu einer prozessbedingten Trennung der Radioaktivität in den verschiedenartigen Reinigungsstufen. Folgende An-/Abreicherungsprozesse laufen dabei ab:

- Durch die Entfernung des Quecksilbers, das 15 - 30% der Masse mancher Rückstände ausmachen kann, nimmt die spezifische Aktivität der verbleibenden Reinigungsrückstände signifikant zu.
- Durch Abtrennung von wasser- und ölhaltige Anteilen, die ca. 15 % der Ausgangsmasse umfassen, kommt es ebenfalls zur Anreicherung der Radionuklide bezogen auf die verbleibende Rückstandsmasse.

- Abgetrenntes metallisches Quecksilber ist (wahrscheinlich aufgrund einer guten Löslichkeit von Radon im flüssigen Quecksilber) meistens mit Pb-210 und Po-210 kontaminiert. Die spezifischen Aktivitäten liegen im Bereich von 10 Bq/g, wobei die Bezugsmasse das metallische Quecksilber ist.

Für eine komplette Bilanzanalyse fehlen insbesondere Angaben zu Massentrennungen.

### 5.11 Zusammenfassung

Die in diesem Kapitel 5 untersuchten Prozesse der Nuklidanreicherung können prinzipiell mit dem im Kapitel 5.1 dargestellten phänomenologischen Modell beschrieben werden. Die für die hier untersuchten Prozesse ermittelten Modellparameter sind in der folgenden Tabelle zusammengefasst. Bei der Interpretation dieser Werte ist zu beachten, dass einige Werte zunächst geschätzt wurden (z.B. ATF für Mitfällungsprozesse).

Die Ergebnisse der Untersuchung zeigen, dass die Radionuklidumverteilung bei technischen Prozessen sich auf wenige Grundprozesse zurückführen lässt und diese Prozesse durch ähnliche Größenordnungen der Kenngrößen charakterisiert sind. Damit besteht eine neue Möglichkeit, historische industrielle Prozesse in Hinblick auf radiologische Relevanz abzuprüfen.

Als besonders relevante Anreicherungsprozesse konnten chemische Fällungen und Sorption von Radium aus wässrigen Lösungen ermittelt werden. Diese Prozesse treten nicht nur als Mitfällung aus Grundwasser bzw. Tiefenwasser auf, sondern können auch in großtechnischen Anlagen wie der hier untersuchten Titandioxidproduktion zu erheblichen Nuklidanreicherungen führen. Bei der Anreicherung aus dem Ausgangsmaterial natürliches Wasser liegen die Anreicherungsfaktoren für Radium bei etwa  $10^4$ .

Ein zweiter hocheffizienter Anreicherungsprozess ist die thermische Trennung von Pb-210 und Po-210 bei Hochtemperaturprozessen. Dieser Prozess tritt nicht nur bei metallurgischen Hüttenprozessen auf, sondern auch beim Tempern oder Verarbeiten mineralischer Rohstoffe bei hohen Temperaturen. Seine Effizienz zeigt sich deutlich in der signifikanten Abreicherung von Pb-210 im Vergleich zu Ra-226 in Schlacken und getemperten Mineralen (s. Kap. 6.2.4). Da diese Schlacken und Mineralien verglichen mit den Filterstäuben eine sehr große Masse besitzen, liegt die Anreicherung von Pb-210 und Po-210 in der Größenordnung  $10^2$ .

Tabelle 5-16: Ermittelte Parameter von TENORM-bildenden Prozessen

Prozess	Industrie	Rückstand / Material	MTF	ZF	ATF				EF			
					U	Ra	Pb-210	Th	U	Ra	Pb-210	Th
Sorption oder Mitfällung aus Wasser	Erdgasgewinnung	Scales	7,3E-6	0		0,1				14.000		
	Erdölgewinnung	Scales	5,2E-6	0		0,1				19.000		
	Geothermie	Scales	(50-70)E-6	0		0,1				1.500	<70.000	
	Wasseraufbereitung (Trinkwasser)	Schlämme	28E-6	(0)	0,05-0,1	0,2-0,8			1.800 – 3.600	7.200 – 28.000		
Mechanische Aufbereitung von Gesteinen/Erzen	Granitgewinnung und Verarbeitung	Stäube							< 2	<2	<2	<2
		Schlämme							<2	<2	<2	<2
Flotation	Kohleaufbereitung	Mineralanteil	0,1	0	0,4	0,4	0,4	0,4	4	4	4	4
Chemischer Aufschluss von Erz	Aufbereitung von Rohphosphat (Apatit)	Phosphogips	0,73	0,43	0,1	0,9	0,9	0,8	0,06	0,53	0,53	0,47
	Aufbereitung von Rohphosphat (Phosphorit)	Phosphogips	0,72	0,43	0,1	0,9	0,9	0,8	0,06	0,55	0,55	0,49
	Aufschluss von Bauxit	Rotschlamm	0,3	0,8	1,0	1,0	1,0	1,0	2,66	2,66	2,66	2,66
	Sulfataufschluss von Titanerzen	Aufschlussrückstand	0,085	0,55	0,5	0,3	0,4	0,2	3,5	2	3	1,3
Thermische Verarbeitung von Mineralen/Erzen	Aufbereitung von Rohphosphat (Apatit)	Schlacke	0,60	0,64	0,90	0,90	0,02	k.A.	0,96	0,96	0,021	
	Aufbereitung von Rohphosphat (Phosphorit)	Schlacke	0,67	0,62	0,90	0,90	0,02	k.A.	0,83	0,83	0,019	
	Roheisenverhüttung	Schlacke	0,13	1,46	0,99	0,99	0,10	0,99	11,1	11,1	1,1	11,1
	Aufbereitung von Rohphosphat (Apatit)	Filterstaub	0,006	0,64			0,95				101	
	Aufbereitung von Rohphosphat (Phosphorit)	Filterstaub	0,007	0,62			0,95				84	
	Roheisenverhüttung	Filterstaub	0,0051	1,46	0,01	0,01	0,90	0,01	2,9	2,9	258	2,9
Nasschemische Weiterverarbeitung	Titandioxidproduktion	Filtertücher	k.A.	k.A.					<10	300	150	30

Prozess	Industrie	Rückstand / Material	MTF	ZF	ATF				EF			
					U	Ra	Pb-210	Th	U	Ra	Pb-210	Th
Verbrennung	Steinkohlekraftwerk	Absetzbeckenschlamm	2,6E-05	0	1,4E-5	1,4E-5	1,4E-5	1,5E-5	0,53	0,53	0,53	0,57
		Filterstaub	0,072	0	1,0	1,0	1,0(?)	1,0	17	17	17	15
		Filterpressenschlamm	0,0013	1,1 (Th) 1,4 (U)	0,0015	0,0015	0,0015	7,2E-4	1,6	1,6	1,6	0,6
		REA-Gips	0,054	1,1 (Th) 1,4 (U)	6,6E-3	6,6E-3	6,6E-3	6,5E-3	0,17	0,17	0,17	0,13
	Holzkraftwerk (*)	Feuerraumasche	0,015	0	0,88	0,88	0,2	0,88	59	59	13	59
		Filterasche	0,002	0	0,12	0,12	0,8	0,12	60	60	400	60

(\*) unterschiedliche ATF von Pb-210 beruhen nicht auf Messwerten, sondern sind Schätzungen der Verfasser

Die vollständige Betrachtung aller langlebigen Radionuklide der Zerfallsreihen erwies sich bei der Prozessanalyse als vorteilhaft, da sie Daten und Kenntnislücken aufdeckt. Sie verhindert auch, dass einzelne plausible Befunde pauschal auf den Gesamtprozess übertragen werden. So geht bei der Phosphataufbereitung zwar Radium in den Phosphogips über (ohne dass es zu einer Anreicherung kommt), allerdings ist eine Urananreicherung im Produkt (Düngemittel) zu erwarten.

Die Tabelle 5-16 zeigt allerdings auch, dass für zahlreiche Prozesse bisher keine belastbare Aussage über alle Radionuklide möglich ist, da sich die Untersuchungen meist auf die im jeweiligen Fall besonders relevanten Nuklide konzentrierten. So ist es z.B. nicht auszuschließen, dass bei der Scalebildung aus Tiefenwasser auch Uran und Thorium erheblich angereichert werden. Aufgrund der extrem niedrigen Konzentrationen dieser Elemente in den Tiefenwässern führt diese Anreicherung in der Regel nicht zu auffälligen spezifischen Aktivitäten von Uran oder Thorium im Scale. Für die Beurteilung der Scalebildung bei anderer Wasserzusammensetzung kann eine entsprechende Kenntnis jedoch helfen, um z.B. Messprogramme gezielter festzulegen oder Messergebnisse auf Plausibilität zu prüfen.

Werden Rückstände oder andere Materialien, die bereits technologische Radionuklidanreicherungen aufweisen weiterverarbeitet, dann können durch diesen Stufenprozess besonders starke Anreicherungen vorkommen. Derartige Prozessketten sind z.B. in der metallurgischen Industrie möglich, da dort in der Sekundärverhüttung auch Materialien wie z.B. Filterstäube aus Prozessen verwendet werden, bei denen bereits in vorhergehenden Schritten Anreicherungen auftraten. Dieser Sachverhalt wurde bei der Abgrenzung der Rückstände für die StrISchV nicht berücksichtigt. Seine radiologische Relevanz sowohl für die derzeitigen als auch frühere industrielle Prozesse (und damit auch mögliche Hinterlassenschaften) ist aufgrund nur unzureichender Kenntnisse derartiger Prozessketten derzeit nicht bewertbar.

In Anbetracht der noch erheblichen Kenntnislücken zu den Prozessparametern sind genauere Untersuchungen zu empfehlen. Neben einer gezielten Bestimmung von Prozessparametern sollte dabei auch geprüft werden, wie die Parameter von anderen Verfahrensgrößen abhängen und ob sich daraus Möglichkeiten zur Steuerung der spezifischen Aktivität in Rückständen oder sonstigen Materialien ergeben. Geht man davon aus, dass die MTF des Prozesses verfahrenstechnisch festgelegt sind, so ist die Abhängigkeit der ATF von anderen Einflussgrößen eine Untersuchungsaufgabe.

## 6 Ermittlung repräsentativer Nuklidvektoren

### 6.1 Methodische Grundlagen

#### 6.1.1 Festlegung von zu berücksichtigenden Nukliden

Für die Berechnung realer oder potentieller Expositionen von konkret abgegrenzten Mengen an Rückständen oder sonstigen Materialien („Chargen“) wurde durch die SSK eine Empfehlung zur Ermittlung repräsentativer spezifischer Aktivitäten erarbeitet /SSK 05/. In dieser Empfehlung wird u.a. darauf hingewiesen, dass Messungen zur spezifischen Aktivität der relevanten langlebigen Radionuklide unter Beachtung von Vorkenntnissen zu Herkunft und Entstehung der in bergbaulichen bzw. industriellen Prozessen anfallenden Rückstände vorgenommen werden sollten. Bisher sind die vielen Vorkenntnisse zu den „relevanten“ Radionukliden von Rückständen unterschiedlichster Herkunft nie systematisch analysiert und ausgewertet worden. Um unabhängig vom individuellen Erfahrungsschatz des Einzelbearbeiters Orientierungen geben zu können, ist daher eine systematische Analyse von Daten und darauf basierende Klassifikation von Materialien erforderlich. Eine solche Klassifikation kann bei der Untersuchung von Bodenkontaminationen oder anderen Hinterlassenschaften helfen, ggf. Rückschlüsse auf die Herkunft oder Entstehung der Materialien zu ziehen.

Um die radiologischen und radioökologischen Eigenschaften von Rückständen und anderen Materialien zuverlässig angeben zu können, müssen grundsätzlich die spezifischen Aktivitäten oder Aktivitätsverteilungen aller Nuklide der natürlichen Zerfallsreihen<sup>16</sup> bekannt sein. Dazu gehören auch die Nuklide der U-235-Zerfallsreihe /SSK 05/.

Aus der Kenntnis des Zerfallsgesetzes ergänzt mit einer Bewertung der Radiotoxizität von Nukliden kann die praktisch relevante Anzahl auf folgende Radionuklide reduziert werden (s. auch /SSK 05/):

U-238-Zerfallsreihe: U-238, Th-230, Ra-226, Pb-210, Po-210;

U-235-Zerfallsreihe: Pa-231, Ac-227;

Th-232-Zerfallsreihe: Th-232, Ra-228, Th-228.

Hinter dieser Auswahl stehen folgende Überlegungen:

- Kurzlebige Radionuklide mit HWZ unter 1 Tag können in Feststoffen grundsätzlich als im Gleichgewicht mit ihren längerlebigen Vorgängernukliden angesetzt werden. Selbst wenn in einzelnen Prozessen der TENORM-Bildung zunächst Ungleichgewichte vorliegen sollten, gleichen sich diese so schnell aus, dass sie messtechnisch nur mit sehr gezielten Untersuchungen fassbar sind. Für eine radiologische Bewertung von Feststoffen bei industriellen und bergbaulichen Prozessen müssen sie nicht betrachtet werden.
- Radionuklide mit HWZ über 1 Tag aber unter 100 Tagen können im Ergebnis technischer Prozesse bei Probenahmen direkt aus dem Prozess oder kurz danach Ungleichgewichte aufweisen. In den meisten

---

<sup>16</sup> außer denen seltener Verzweigungen

Fällen sind diese Nuklide in Feststoffen mit Ausnahme von Rn-222 ebenfalls als im Gleichgewicht mit ihren längerlebigen Vorgängernukliden. Beim Radon FÜHREN Emanation, Migration und Exhalation zu Ungleichgewichten. Sind diese Ungleichgewichte aus radiologischen Gründen nicht zu vernachlässigen, bedarf es in jedem Fall einer exakten Definition des Zeitpunktes, für den der Nuklidvektor bestimmt werden soll.

- Für U-234 (Halbwertszeit:  $2,5 \times 10^5$  a) kann in der Regel ein Aktivitätsgleichgewicht mit U-238 angenommen werden. Ausnahmen können vor allem Wasserwerksschlämme oder andere Ablagerungen aus Grundwasser sein, da in diesen Wässern deutliche Ungleichgewichte des U-234 vorkommen können /GEL 96/.
- Auf die explizite Einbeziehung von U-235 wird verzichtet, da in natürlichen Stoffen<sup>17</sup> das Verhältnis U-235/U-238 mit sehr hoher Präzision konstant ist (Massenverhältnis U-235/U-238 variiert maximal 0,0002 % absolut bzw. 3 ‰ relativ /COW 76/). Die durch übliche Messtechnik bei natürlichen Stoffen ermittelten Abweichungen von diesem Verhältnis sind Ergebnis von Messunsicherheiten. Für radiologische Zwecke kann ein Wert von 5 % der spezifischen Aktivität von U-238 als Aktivität von U-235 angesetzt werden.
- Die o.g. Nuklide sind bis auf Th-232, U-234 und Po-210 mittels des Standardverfahrens Gamma-spektrometrie grundsätzlich bestimmbar. Dabei kann es allerdings nötig sein, Nuklide über Tochter-nuklide indirekt zu bestimmen (z.B. Ra-228 über Ac-228, Ra-226 über Bi-214, Th-232 über Pb-212 und Tl-208). Die korrekte Bestimmung der hier als Bezug genutzten langlebigen Nuklide durch Laboratorien wird im Weiteren vorausgesetzt.
- Einige der in der obigen Zusammenstellung enthaltenen Nuklide sind aufgrund der geringen Intensität oder niedrigen Energie der Gammastrahlung nur mit höherer Nachweisgrenze oder größerer statistischer Unsicherheit zu bestimmen als andere Nuklide (z.B. Th-230, Pa-231).

Neben der Nutzung der Nuklidzusammensetzung zur Ermittlung von Expositionen können vor allem aus Störungen der Aktivitätsgleichgewichte in den Zerfallsreihen Schlussfolgerungen zur Entstehung, Veränderung oder Alterung des jeweiligen Materials abgeleitet werden. Das gilt sowohl für natürliche Entstehungsprozesse (s. z.B. /IVA 92/) als auch technische Prozesse. Damit können Nuklidvektoren eine wichtige Rolle bei der Bewertung von Altlastenflächen oder anderen Hinterlassenschaften spielen.

### 6.1.2 Darstellung von Nuklidvektoren

Die bisher überwiegend genutzte Form, um Nuklidvektoren natürlicher Radionuklide im Zusammenhang mit der Charakterisierung von NORM, TENORM zu beschreiben, besteht in der Angabe der wichtigsten Nuklide

---

<sup>17</sup> Ausnahmen: Uranerze aus den Naturreaktoren von Oklo (Gabun) sowie Meteoritenmaterial

und ihrer spezifischen Aktivität. Diese Angabe ist jedoch zumeist stark von den Gesichtspunkten abhängig, unter denen die relevanten Nuklide ausgewählt wurden. Häufig ist eine Bevorzugung bekannter und (über Tochternuklide) einfach bestimmbarer Nuklide wie Ra-226 festzustellen. Eine vollständige Angabe aller langlebigen Nuklide findet dabei in der Regel nicht statt.

Eine andere Form der Darstellung ergibt sich durch Nutzung von Aktivitätsverhältnissen. Dabei werden fallspezifisch ausgewählte Aktivitätsverhältnisse gebildet und in ihren Abhängigkeiten dargestellt. Abbildung 6-1 zeigt als ein Beispiel Ergebnisse einer Untersuchung Ra-226 kontaminierter Böden- und Sedimente. Die unkontaminierten Proben weisen nahezu Aktivitätsgleichgewichte auf (Wertetupel (1,0;1,0)), während die kontaminierten Proben durch starke Ungleichgewichte nach links-unten verschoben sind. Diese Form von Darstellungen (auch mit anderen Nuklidverhältnissen) ist in den Geo- und Umweltwissenschaften gebräuchlich und vor allem sehr gut geeignet, fallspezifisch Veränderungen der Nuklidzusammensetzung sichtbar zu machen (s. /IVA 92/). Nachteilig für eine Verwendung in einer radiologischen Methodik ist allerdings, dass allgemein anzuwendende Aktivitätsverhältnisse nicht anzugeben sind bzw. eine Vorgabe aller dabei sinnvoller Weise zu betrachtenden Verhältnisse zu unübersichtlichen und schwerfälligen Darstellungen führt. Die Nutzung von Aktivitätsverhältnissen kann daher für Einzelbetrachtungen empfohlen werden. Für den allgemeinen Vergleich von NORM, TENORM ist sie wenig geeignet.

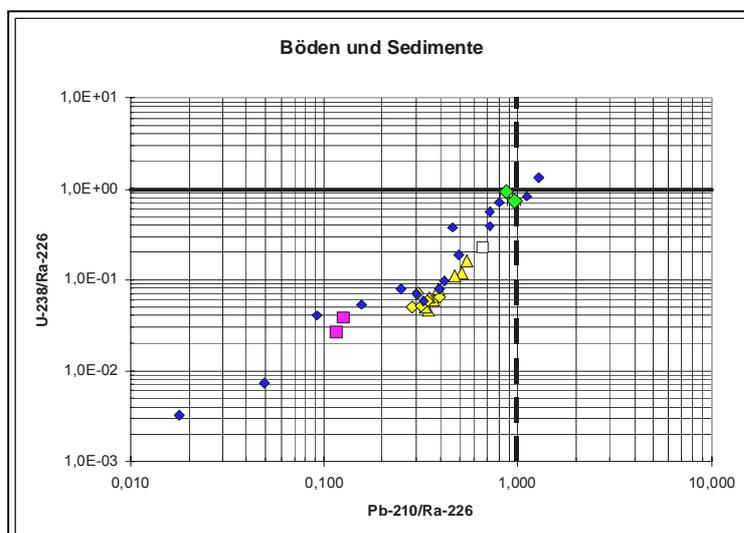


Abbildung 6-1: Beispieldarstellung. Ergebnisse einer Untersuchung Ra-226 kontaminierter Böden- und Sedimente

Eine weitere Möglichkeit der Darstellung von Nuklidverhältnissen sind Dreiecksdiagramme in Analogie zu den PIPER-Diagrammen der Hydrogeochemie. Diese Darstellung nutzt die Normierung eines Tripels von Nukliden einer Zerfallsreihe auf die Summe der 3 Einzelwerte. Gleichgewichtsverhältnisse befinden sich in der Mitte des Dreiecks, während Ungleichgewichte in den Rand- oder Eckbereichen liegen. Vorteilhaft an dieser Darstellung ist, dass jeweils 3 Nuklide direkt in einen relationalen Zusammenhang gesetzt werden. Nachteilig ist, dass die Darstellung für Ungeübte schwierig zu lesen ist, dass die Nuklide der maximalen spezifischen Aktivität nicht einfach ersichtlich sind und dass eine Darstellung aller langlebigen Nuklide (ohne

Po-210) 4 verschachtelte Dreiecke erfordert. Derartig verschachtelte Dreiecke zwingen allerdings auch zu einer separaten Betrachtung der Nuklidverhältnisse in den 3 Zerfallsreihen und könnten dadurch bestimmte Sachverhalte transparent machen. Es bleibt allerdings nachteilig, dass ein direkter Vergleich der Aktivitätsverhältnisse zwischen den Zerfallsreihen noch weitere Darstellungen erfordert. Insgesamt ist daher einzuschätzen, dass Dreiecksdiagramme wenig geeignet sind, um Nuklidvektoren einfach, übersichtlich und gut interpretierbar darzustellen.

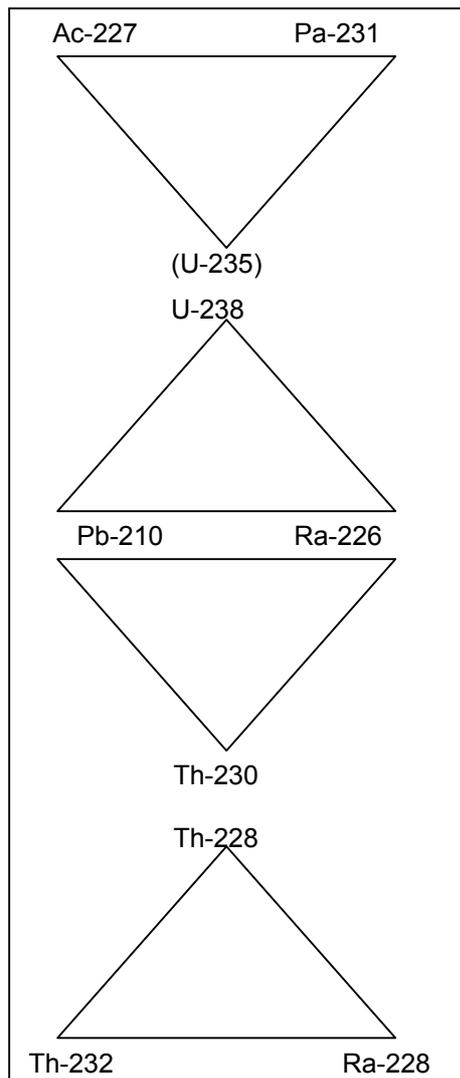


Abbildung 6-2: Mögliche Darstellung von kompletten Nuklidvektoren durch 4 verschachtelte PIPER-Diagramme

Eine einfache Möglichkeit die Nuklidzusammensetzung von NORM, TENORM umfassend zu beschreiben und darzustellen, bietet sich durch eine einheitliche Normierung mit folgendem Ansatz an:

- Alle spezifische Aktivitäten sind auf eine Gesamtaktivität zu normieren. Angegeben werden also **normierte Nuklidanteile**  $a_{iN}$  statt spezifischer Aktivitäten  $a_i$ . ( $i$  – Nuklid). Dabei gilt  $\sum a_{iN} = 1,0$ .

- Als Gesamtaktivität wird die Summe  $U-238_{max}$  und  $Th-232_{max}$  gebildet. Damit gilt:  $a_{iN} = a_i / (a_{U-238,max} + a_{Th-232,max})$ .
- Für die Nuklide der U-235 Reihe wird die normierte Aktivität durch den Bezug auf die natürliche U-235 Aktivität gemäß  $a_{iN}^* = 21,7 a_i / (a_{U-238,max} + a_{Th-232,max})$  korrigiert, so dass im Gleichgewichtsfall die normierten Werte denen der U-238 Reihe entsprechen.

Die Darstellung der so erhaltenen normierten Werte erfolgt in x-y-Diagrammen oder Säulendiagrammen mit der normierten Aktivität als y-Achse und den Nukliden auf der x-Achse Th-232, Ra-228, Th-228, U-238, Th-230, Ra-226, Pb-210, Pa-231\*, Ac-227\*. Auf Po-210 kann an dieser Stelle verzichtet werden, da Ungleichgewichte Po-210/Pb-210 stets einer besonderen, zeitbezogenen Betrachtung bedürfen.

Vorteil der hier beschriebenen Normierung und Darstellung ist ihre Einfachheit und Übersichtlichkeit, die auch eine direkte Sichtbarmachung der Maximalwerte  $U-238_{max}$  und  $Th-232_{max}$  einschließt. Sofern einzelne Nuklide nicht gemessen wurden (z.B. Th-232; Th-230) können sie ohne entscheidende Auswirkungen auf die Darstellung weggelassen werden, wenn gewährleistet ist, dass sie nicht die Nuklide der maximalen spezifischen Aktivität sind.

Bei Materialien, die ein radioaktives Gleichgewicht der natürlichen Zerfallsreihen aufweisen (z.B. Bergematerial, mineralische Rohstoffe), können die nicht gemessenen Radionuklide auch mit dem Mittelwert der spezifischen Aktivität der dazugehörigen Reihe belegt werden.

Im Folgenden werden die wichtigsten Nuklidzusammensetzungen für Rückstände und andere als relevant identifizierte Materialien beschrieben, um daraus eine für die Altlastenuntersuchung brauchbare Klassifikation abzuleiten. Dabei werden 2 Typen von Diagrammen genutzt. Zum einen werden die normierten Aktivitäten als Einzelanalysen in Liniendiagrammen veranschaulicht (s. Abbildung 6-3). Diese Darstellung ist geeignet, ähnliche Nuklidzusammensetzungen verschiedener Proben zu erkennen und auf dieser Basis eine Klassifikation vorzunehmen. Von Materialien mit ähnlichen Nuklidzusammensetzungen können Mittelwerte (oder andere geeignete Zusammenfassungen) der Einzeldaten berechnet werden. Diese aggregierten Datensätzen von Materialien vergleichbarer Nuklidzusammensetzung werden als Säulendiagramme mit Fehlerbalken als Streuungsindikatoren dargestellt (s. Abbildung 6-4). Eine Detailanalyse von Nuklidzusammensetzungen der Rückstände aus der Erdgas- und Erdölgewinnung enthält Kapitel 6.4.

## 6.2 Nuklidvektoren für Rückstände und andere Materialien

### 6.2.1 Materialien aus Prozessen der Radionuklidanreicherung durch Mitfällung oder Sorption aus Wasser

#### Erdöl-, Erdgasgewinnung

Ein exemplarisches Bild von Nuklidvektoren unterschiedlicher Materialien aus der Erdöl-/Erdgasgewinnung zeigt Abbildung 6-3. In diesem Diagramm sind Daten von 39 Analysen aus verschiedenen deutschen Fördergebieten verarbeitet. Die Nuklidvektoren wurden farblich nach folgendem Schema gekennzeichnet:

Ra-226, normiert > 0,8	rot	
Ra-228, normiert > 0,5	gelb	(d.h. Ra-226, normiert < 0,5)
Pb-210, normiert > 0,9	grün	
Sonstige:	schwarz	

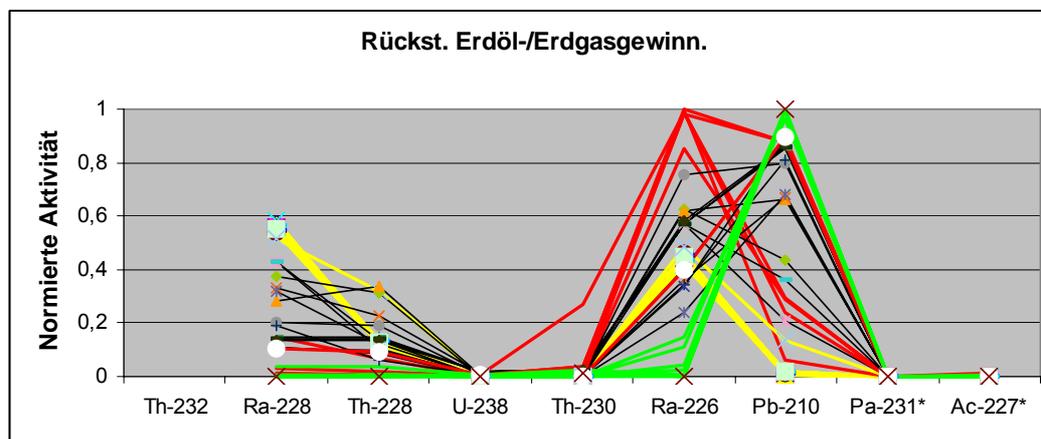


Abbildung 6-3: Nuklidvektoren von Rückständen der Erdöl-/Erdgasgewinnung (Einzeldatensätze)

Das Diagramm zeigt 3 unterschiedliche Typen von Nuklidvektoren (s. Abbildung 6-4).

Typ 1: Ra-226 dominiert, mit den Untertypen Ra-226 ohne Pb-210 (junges Material, da ansonsten Pb-210 nachgewachsen ist) und Ra-226 mit signifikantem Anteil Pb-210 (meist altes Material mit nachgewachsenem Pb-210).

Typ 2: Ra-228 dominiert. Junge Materialien mit wenig Pb-210 und noch ohne wesentlichen Zerfall von Ra-228. Bei sehr jungen Ablagerungen ist Th-228 im Defizit zu Ra-228 und wächst durch radiogene Produktion nach. Scales dieses Typs zeigen in der Regel sehr hohe spezifischen Aktivitäten.

Typ 3: Pb-210 dominiert. Kaum Ra-226, Ra-228 vorhanden.

Während Typ 1 und Typ 2 als radioaktive Begleitkomponente sulfatischer Minerale (Meist Ba,Sr-Sulfat) vorkommen, tritt Typ 3 vor allem bei sulfidischen Mineralbildungen auf.

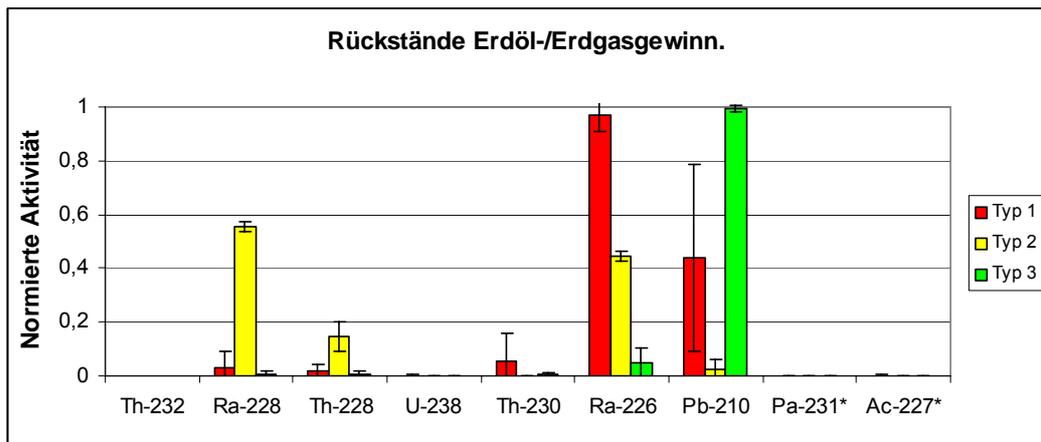


Abbildung 6-4: Aggregierte Nuklidvektoren für Rückstände der Erdöl-, Erdgasgewinnung

Durch den Zerfall und die Nachbildung von Pb-210, den Zerfall von Ra-228 und die Nachbildung von Th-228 kommt es bei Ablagerungen zu zeitlichen Verschiebungen der Nuklidzusammensetzung. Die daraus resultierenden Konsequenzen in Bezug auf die Interpretation von Messergebnissen werden in Anhang A beschrieben und diskutiert.

Eine detailliertere Auswertung von Datensätzen von Rückständen der Erdöl-/Erdgasgewinnung enthält Kapitel 6.4.

## Geothermie

Von Köhler /KÖH 03/ wurden Messergebnisse von radioaktiv kontaminierten Materialien aus einem Geothermiekraftwerk mitgeteilt. Diese Daten (teilweise spezifische Aktivitäten, teilweise Oberflächenkontaminationen) sind in Abbildung 6-5 als normierte Aktivitäten dargestellt. Dabei wurden die in /KÖH 03/ nicht als Messwerte angegebenen Nuklide Th-232, U-238, Th-230 mit „Null“ angesetzt, ein Wert, der als Näherung der im Allg. sehr geringen spezifischen Aktivitäten dieser Nuklide in Scales realistisch ist.

Obwohl es sich um Daten einer einzigen Anlage handelt, kommen offensichtlich unterschiedliche Nuklidzusammensetzungen vor. Nur der „Rost“ und der „Scale 1“ besitzen Nuklidzusammensetzungen, die dem geothermalen Tiefenwasser soweit entsprechen, dass ein direkter Bezug sichtbar wird (beim „Rost“ ist offensichtlich Th-228 nachgewachsen). Die meisten übrigen Proben sind durch Pb-210 dominiert. Werden unter Bezug auf die Typeneinteilung des vorhergehenden Abschnitts „Erdöl-/Erdgasgewinnung“ die Proben mit einer dominierenden normierten Aktivität von Pb-210 als Typ 3-Materialien, die „Scale 1“-Probe mit gleichen Aktivitätsanteilen von Ra-226 und Ra-228 als Typ 1/2-Material klassifiziert, dann erhält man als aggregierten Nuklidvektor das in Abbildung 6-6 dargestellte Diagramm. Das Bild zeigt, dass die Typisierung der Nuklidzusammensetzung auch für diesen Fall anwendbar ist.

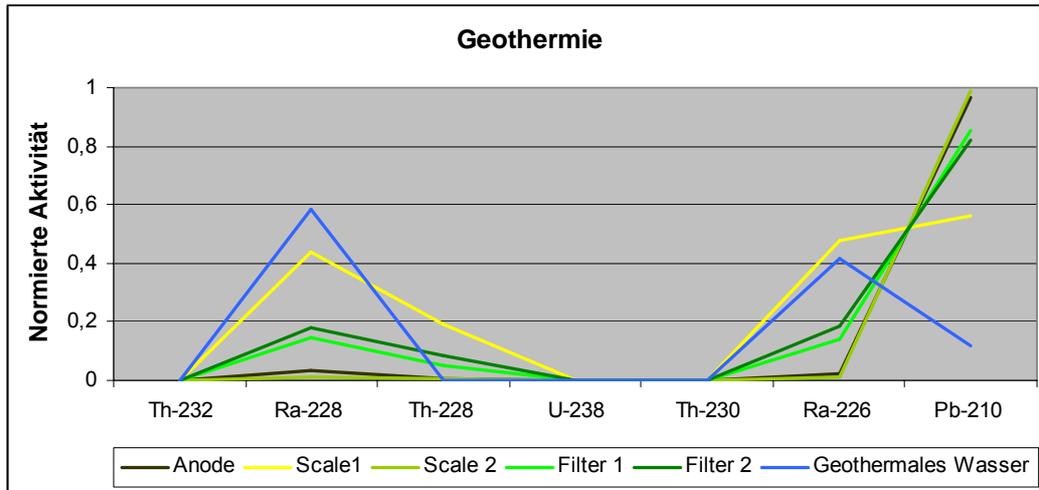


Abbildung 6-5: Nuklidvektoren von Materialien eines Geothermiekraftwerkes (Einzeldatensätze). Datenquelle: /KÖH 03/.

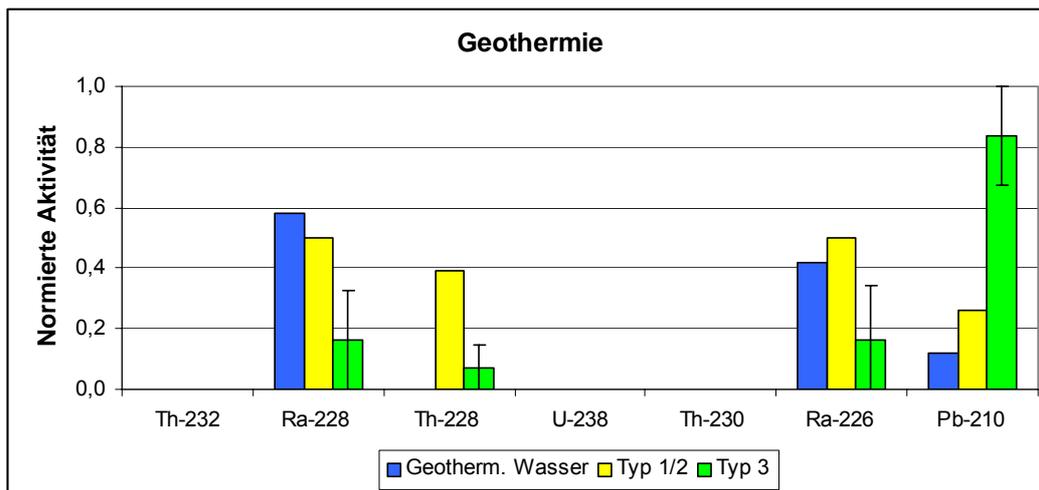


Abbildung 6-6: Nuklidvektoren von Materialien eines Geothermiekraftwerkes (aggregierte Daten). Datenquelle: /KÖH 03/.

### Sedimente und Bodenkontaminationen des Steinkohlenbergbaus

Durch Ableitungen von radiumhaltigen Tiefenwässern kommt es in Gebieten des Steinkohlenbergbaus in Deutschland zur Bildung radiumhaltiger Sedimente. Durch Verfrachtung dieser Sedimente können auch Böden kontaminiert werden. Im Rahmen dieser Arbeit wurde das Gewässersystem Fossa Eugeniana / Rheinberger Altrhein (linksniederrheinisches Tiefland, NRW) vertiefend untersucht (s. Teil II dieser Arbeit). An dieser Stelle werden aus den in /HGN 06/ dokumentierten Daten die in diesem Gebiet beobachteten Nuklidvektoren als Beispiel für Materialien aus Fällungs-/Sorptionsprozessen dargestellt und bewertet.

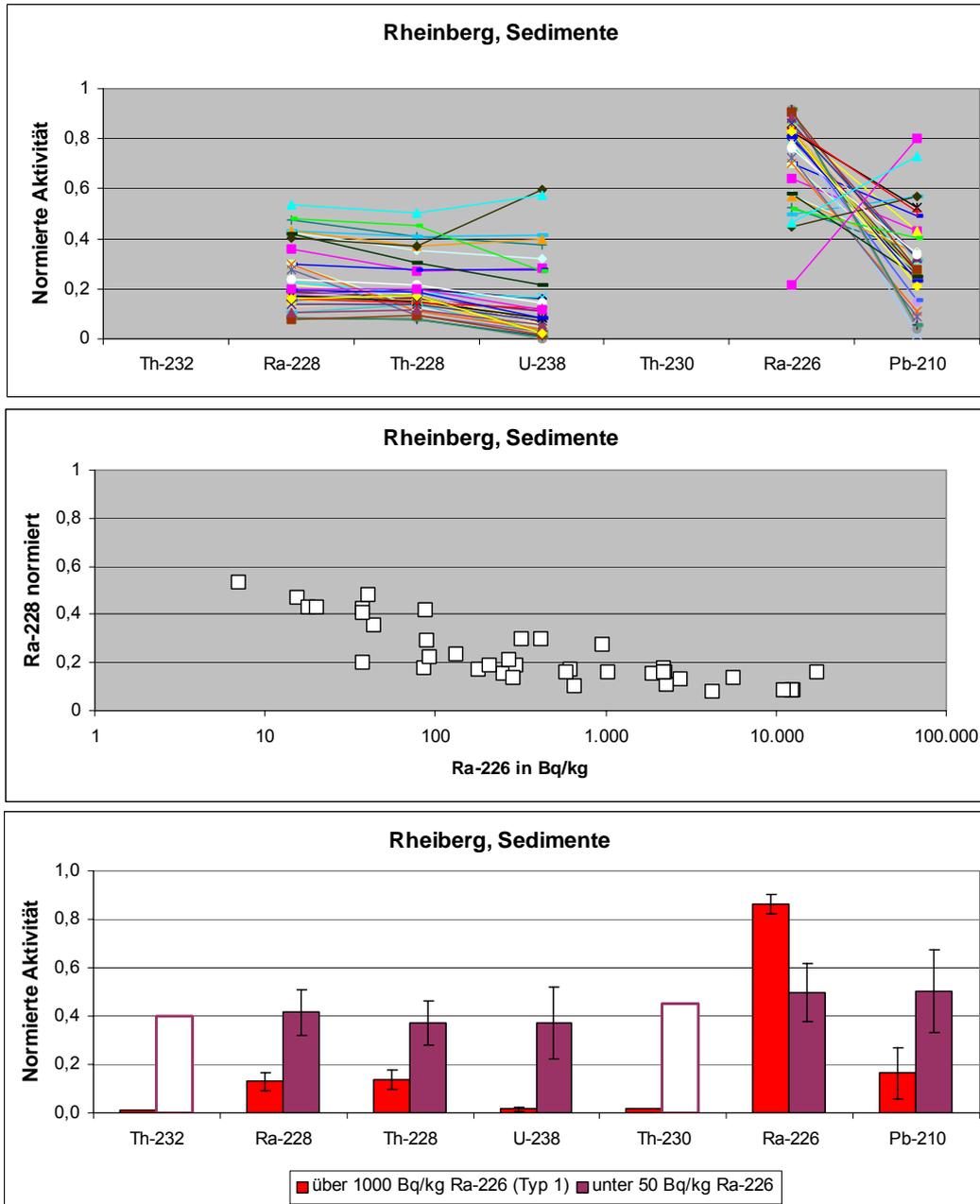


Abbildung 6-7: Diagramme von Nuklidvektoren der Sedimente im Gewässersystem Fossa-Eugeniana / Rheinberger Altrhein.

Oben: Einzeldatensätze. Mitte: Zusammenhang Ra-228,normiert vs. Ra-226. Unten: Nuklidvektoren für kontaminierte und unkontaminierte Sedimente. Weiße Säulen: als Aktivitätsgleichgewicht angenommen, da keine Messdaten vorlagen. (weitere Erläuterungen s. Text)

Ein Diagramm der Einzelmesswerte von 39 Sedimentproben zeigt das obere Diagramm in Abbildung 6-7. Man erkennt eine größere Variabilität der Nuklidzusammensetzung mit einem deutlich dominierenden Anteil von Ra-226. Die Variabilität dieser Daten ist nicht zufällig, sondern wird entscheidend durch die spezifische Aktivität von Ra-226 bestimmt. So nimmt der Anteil von Ra-228 mit zunehmender Ra-226 Aktivität ab und liegt bei hohen Werten der spezifischen Ra-226 Aktivität unter 0,2. Dieser Befund zeigt, dass die Ra-Kontamination der

Sedimente auf Einträge (von Grubenwasser) zurückzuführen ist, die relativ geringe Ra-228/Ra-226 Verhältnisse besitzen. Werden mit dieser Kenntnis die hoch belasteten Sedimente (Ra-226 über 1000 Bq/kg) und die praktisch unkontaminierten Sedimente (Ra-226 unter 50 Bq/kg) getrennt zu Nuklidvektoren zusammengefasst, so erhält man (nach „Auffüllung“ von nicht direkt bestimmten Nukliden) die in dem unteren Diagramm der Abbildung 6-7 dargestellten typischen Nuklidvektoren für kontaminierte und unkontaminierte Sedimente.

Eine analoge Auswertung für Bodenproben aus dem Gebiet des Rheinberger Altrheins zeigt Abbildung 6-8. Ein Vergleich der Diagramme mit aggregierten Daten für Böden und Sedimente zeigt höhere normierte Aktivitäten von Pb-210 in den Böden im Vergleich zu den Sedimenten, ein Effekt der als Alterung interpretiert werden kann. Beim Ra-228 ist dieser Alterungseffekt in der hier vorgenommenen Zusammenfassung nicht erkennbar, da die Ra-228 Kontamination im Vergleich zu den Hintergrundwerten des Gebietes nicht so markant erhöht ist. Eine detailliertere Auswertung dieser Befunde enthält Teil II dieser Arbeit.

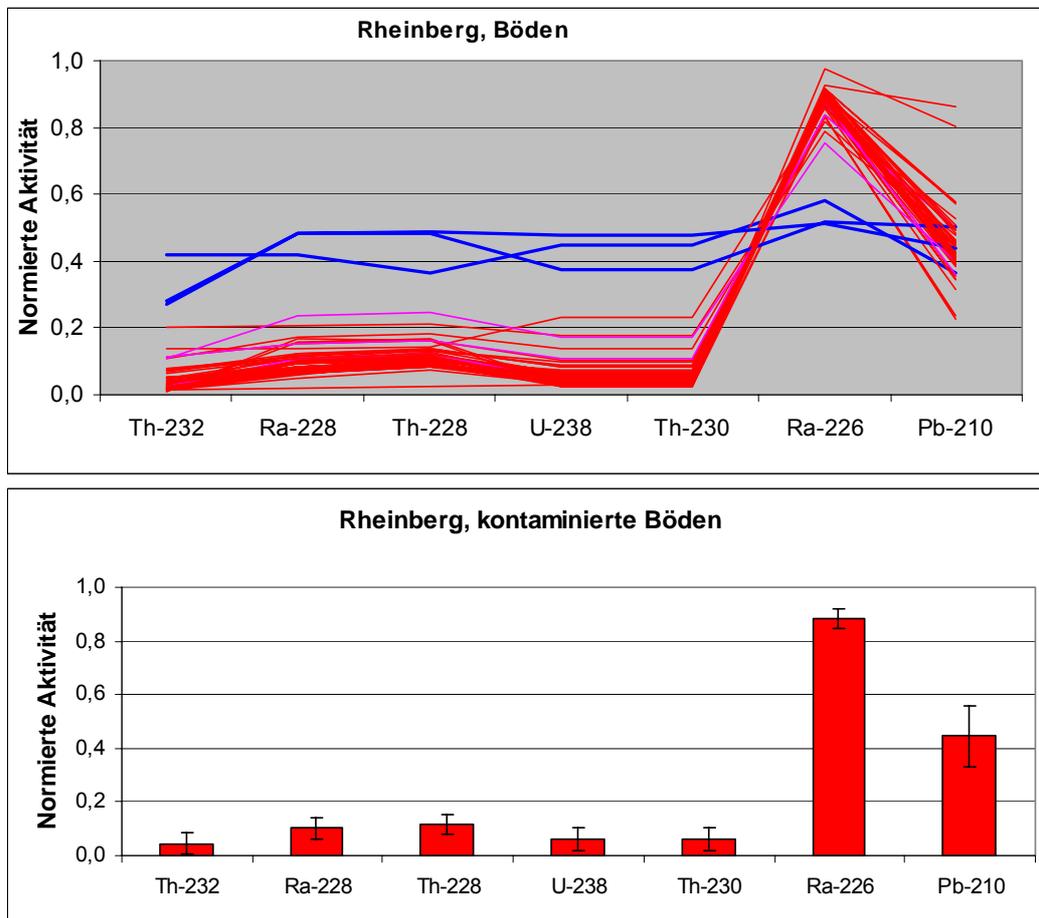


Abbildung 6-8: Diagramme von Nuklidvektoren von Böden im Gebiet Rheinberger Altrhein. Oben: Einzeldatensätze. Unten: Nuklidvektoren für kontaminierte Böden.

**Wasserwerksschlämme**

Eine weitere Gruppe von Materialien, bei denen Radionuklide aus Wasser durch Sorption an Feststoffe gebunden werden, sind die Wasserwerksschlämme. In Abbildung 6-9 (oben) sind Einzelvektoren von 13 Wasserwerksschlämmen dargestellt. Sie zeigen ein prinzipiell ähnliches Bild mit klar dominierendem Radium und einem nachwachsenden Th-228. Die normierten Pb-210 Aktivitäten sind sehr gering. Die bei einigen Proben leicht erhöhten U-238 und Th-230 Werte sind auf die Verwendung der Bestimmungsgrenzen im Diagramm zurückzuführen.

Die nach der Typisierung der Erdöl-/Erdgasrückstände vorgenommene Aggregation der Daten im unteren Diagramm der Abbildung 6-9 stellen das oben beschriebene Bild in anderer Weise dar.

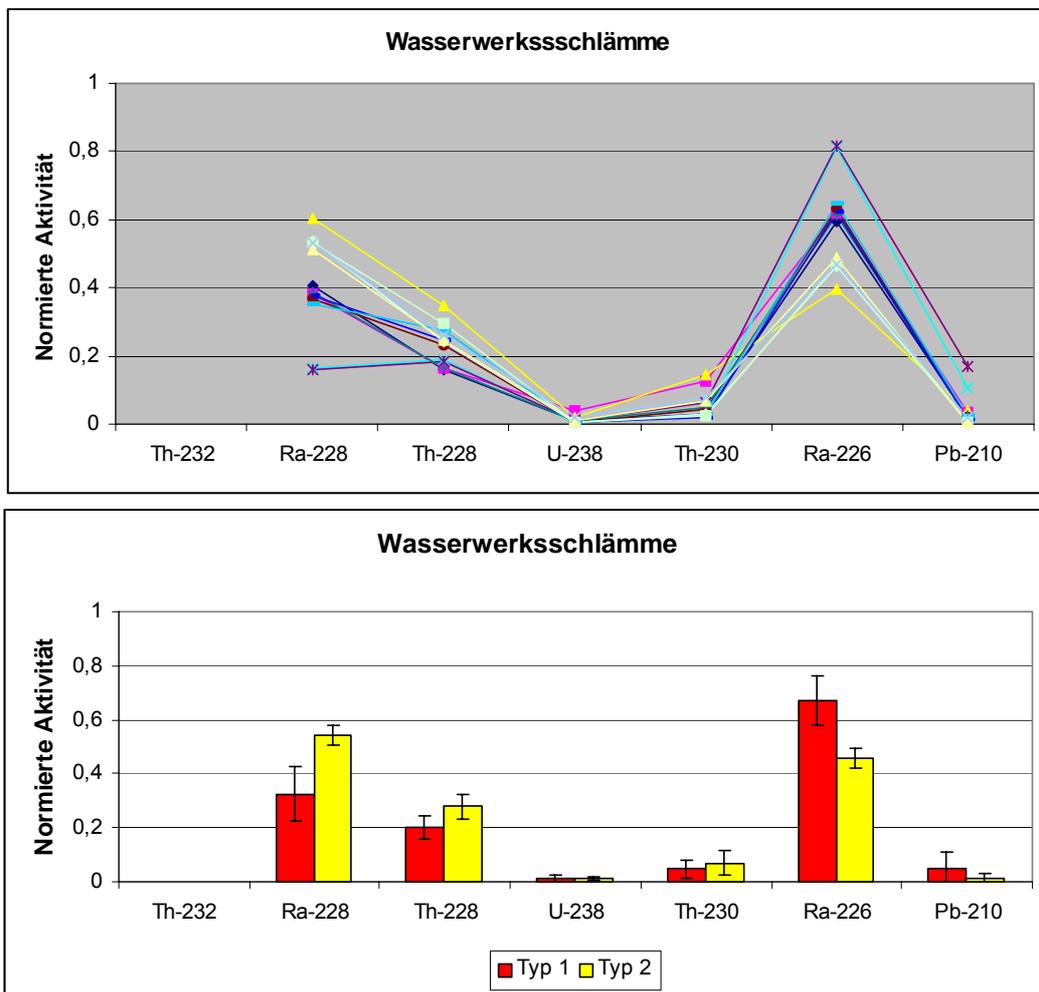


Abbildung 6-9: Nuklidvektoren von Wasserwerksschlämmen (Messdaten IAF)

**Sedimente anderer Gewässer**

Beispielhaft sind in Abbildung 6-10 die in Tabelle 4-2 aufgeführten nuklidspezifischen Daten der Gewässersedimente in der Weißen Elster dargestellt. Obwohl die Daten in Bezug auf den gesamten Nuklidvektor nicht

vollständig sind, zeigt das Diagramm, dass auch in den belasteten Sedimenten ab Mündung Gölzsch das Uran bei weitem nicht so dominiert, wie es in den radiumhaltigen Sedimenten der Abbildung 6-7 zu erkennen ist. Ein Grund sind die höheren Hintergrundaktivitäten, die bei etwa 100 Bq/kg (0,1 Bq/g) liegen, ein anderer Grund dürfte darin zu suchen sein, dass die Uransorption wesentlich weniger wirksam ist als die Mitfällung von Radium in Sulfaten.

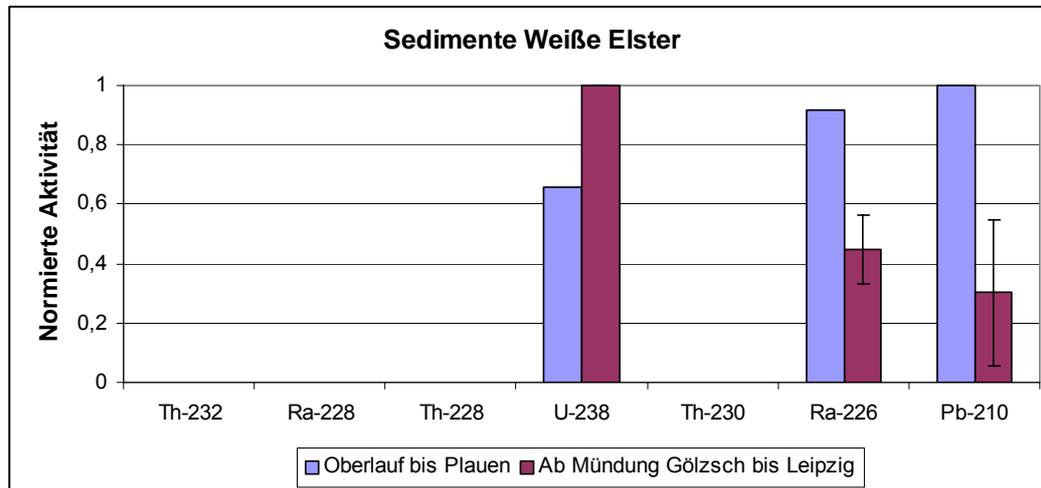


Abbildung 6-10: (Unvollständige) Nuklidvektoren für Sedimente der Weißen Elster (Daten s. Tabelle 4-2)

## 6.2.2 Mechanische Aufbereitung von Gesteinen/Erzen

### Granit

Zur Erstellung von Diagrammen der Nuklidvektoren von Granit (s. Abbildung 6-11) standen folgende Analysergebnisse zur Verfügung:

31 Analysen für einheimische Granite (Ausgangsgestein)

38 Analysen für importierte Granite (Ausgangsgestein)

22 Analysen aus Filterstäuben, die bei der Verarbeitung von einheimischen (19 Proben) und importierten (3 Proben) Granit entstehen

15 Analysen aus Schlämmen, die bei der Verarbeitung von einheimischen (12 Proben) und importierten (3 Proben) Granit entstehen

Davon wurden nur die Analysen mit U-238 Bestimmung genutzt und Th-230 diesem Wert gleichgesetzt. Th-232 wurde mit der Aktivität von Ra-228 angenommen. Die Datenbasis für das Nuklid Pb-210 war unvollkommen.

Nach den vorliegenden Daten findet keine Veränderung der Nuklidanteile im Bearbeitungsprozess statt. Die Nuklide der Th-232 Reihe sowie der U-238 Reihe befinden sich in etwa im Gleichgewicht. Auffällig ist, dass entweder die Th-232 Reihe oder die U-238 Reihe den größeren Anteil an der Gesamtaktivität hat. Nur in

wenigen Proben weisen beide Nuklidreihen die gleichen Aktivitätsanteile auf. Trotz teilweise fehlender Daten ist hinsichtlich des Radionuklids Pb-210 von einem Gleichgewicht mit Ra-226 auszugehen.

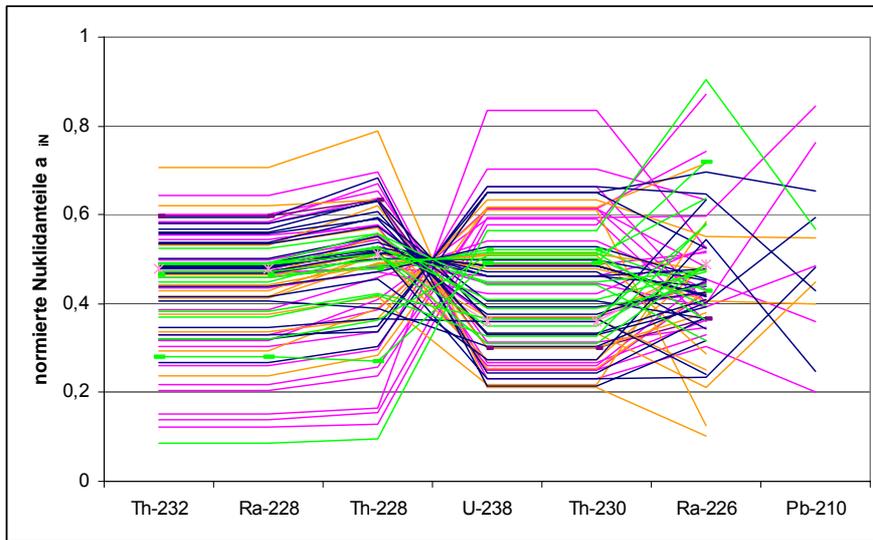


Abbildung 6-11: Normierte Nuklidanteile von einheimischen und importierten Graniten sowie Filterstäuben und Schlämmen der Granitverarbeitung

Legende: Einheimische Granite (rosa), importierte Granite (orange); Filterstäube (blau), Schlämme (grün)

Eine Darstellung aggregierter Daten in Säulendiagrammen ist für den hier benutzten Datensatz nicht sinnvoll, da die Hauptinformation der Nuklidverteilung in den sehr lagerstättenspezifischen U/Th-Verhältnissen liegt und diese Information durch Mittelung leicht verloren geht oder verwischt wird.

### Zirkonsande

Datenbasis für die Darstellung von Nuklidvektoren von Zirkonsanden sind die Messdaten der Tabelle 4-13. Diese Daten lassen zwei Gruppen von Zirkonsanden erkennen, die sich im U/Th-Verhältnis unterscheiden. Die für diese beiden Gruppen zusammengefassten Nuklidvektoren zeigt Abbildung 6-12.

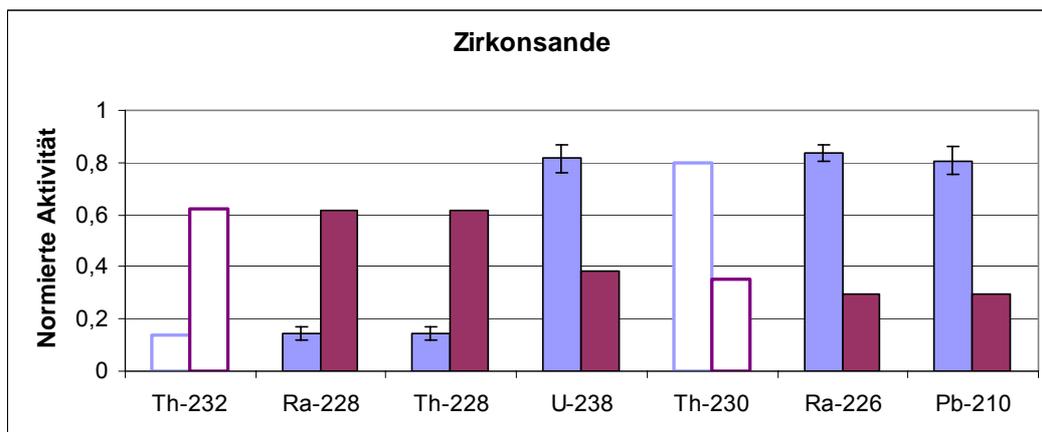


Abbildung 6-12: Diagramm der aggregierten Nuklidvektoren von Zirkonsanden. Weiße Säulen: als Aktivitätsgleichgewicht angenommen, da keine Messdaten vorlagen.

### 6.2.3 Chemische Aufbereitung von Gesteinen/Erzen

#### Verarbeitung von Rohphosphat

Durch die frühere Verarbeitung großer Mengen an Rohphosphat sind Altablagerung dieser Industrie mit Sicherheit in Deutschland zu erwarten. Die Daten zu den spezifischen Aktivitäten nach Tabelle 3-10 und Tabelle 3-11 sind für eine Darstellung von Nuklidvektoren wenig geeignet, da zu viele Nuklide nicht angegeben sind. Um zumindest ein orientierendes Bild der Nuklidzusammensetzung darstellen zu können, wurden die nicht in den Tabellen aufgeführten Tochternuklide als im Aktivitätsgleichgewicht mit den Vorgängern angenommen. Mit dieser Annahme ergeben als Einzelauswertung die in Abbildung 6-13 dargestellten Nuklidzusammensetzungen. Das Diagramm zeigt 2 Typen von Material: thoriumdominiertes Material und urandominiertes. Die Daten zeigen auch, dass die Phosphogipse in ihrer Nuklidzusammensetzung entscheidend durch die Rohstoffe geprägt werden. In Abbildung 6-14 sind die Nuklidvektoren der nach Abbildung 6-13 erkennbaren Materialtypen als aggregierte Nuklidvektoren dargestellt. Die nicht durch Daten belegten Nuklide sind als weiße Säulen kenntlich.

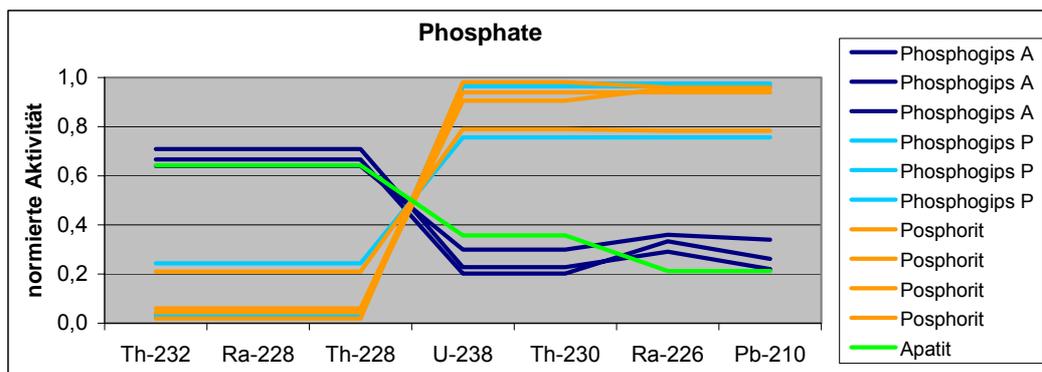


Abbildung 6-13: Nuklidvektoren von Rohphosphaten (Phosphorit, Apatit (Kola)) sowie von zugehörigen Phosphogipsen als Einzeldatensätze (Erläuterungen s. Text)

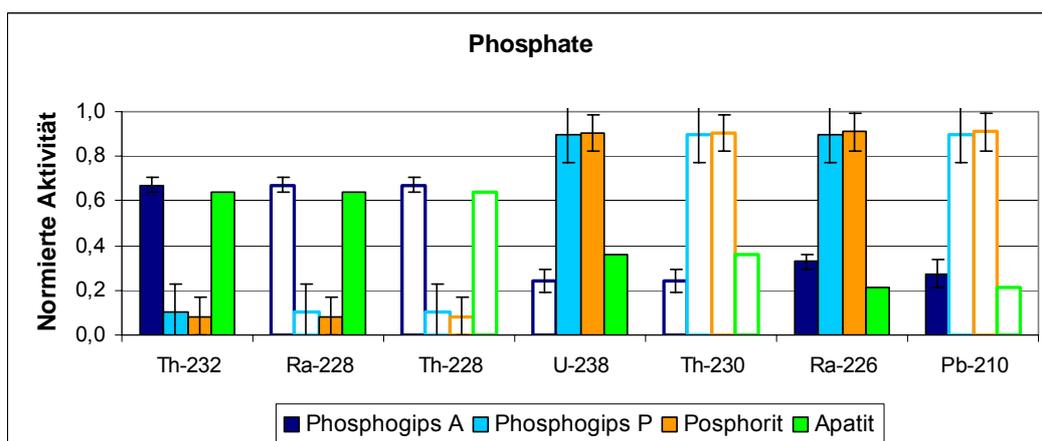


Abbildung 6-14: Aggregierte Nuklidvektoren von Rohphosphaten (Phosphorit, Apatit (Kola)) sowie von zugehörigen Phosphogipsen (Erläuterungen s. Text)

Aus dieser Darstellung wird deutlich, dass aus den hier benutzten Daten differenzierte Aussagen zu den Nuklidvektoren und damit auch zu den Umverteilungsprozessen bei der Rohphosphatverarbeitung nicht möglich sind. Die aus Literaturangaben /GEO 05/ zu erwartende signifikante Abreicherung von Uran im Phosphorgips ist nicht erkennbar. In der Realität muss mit komplizierteren Nuklidzusammensetzungen bei den Rückständen (hier: Phosphogipse) gerechnet werden. Für die Rohstoffe dürften die angenommenen Aktivitätsgleichgewichte mit hoher Wahrscheinlichkeit zutreffen und die Nuklidvektoren damit hinreichend repräsentativ sein.

### Verarbeitung von Bauxit

Nuklidvektoren von Bauxit und Rotschlamm (Daten s. Kapitel 3.4.3.1) sowie von Strahlmitteln auf Bauxitbasis (Korund) sind in Abbildung 6-15 dargestellt. Die blauen Säulen mit Fehlerbalken sind Messwerte mit den Streuungen aufgrund der unterschiedlichen Einzelproben. Die weißen Säulen sind Vervollständigungen für nicht bestimmte Nuklide auf der Basis von Aktivitätsgleichgewichten.

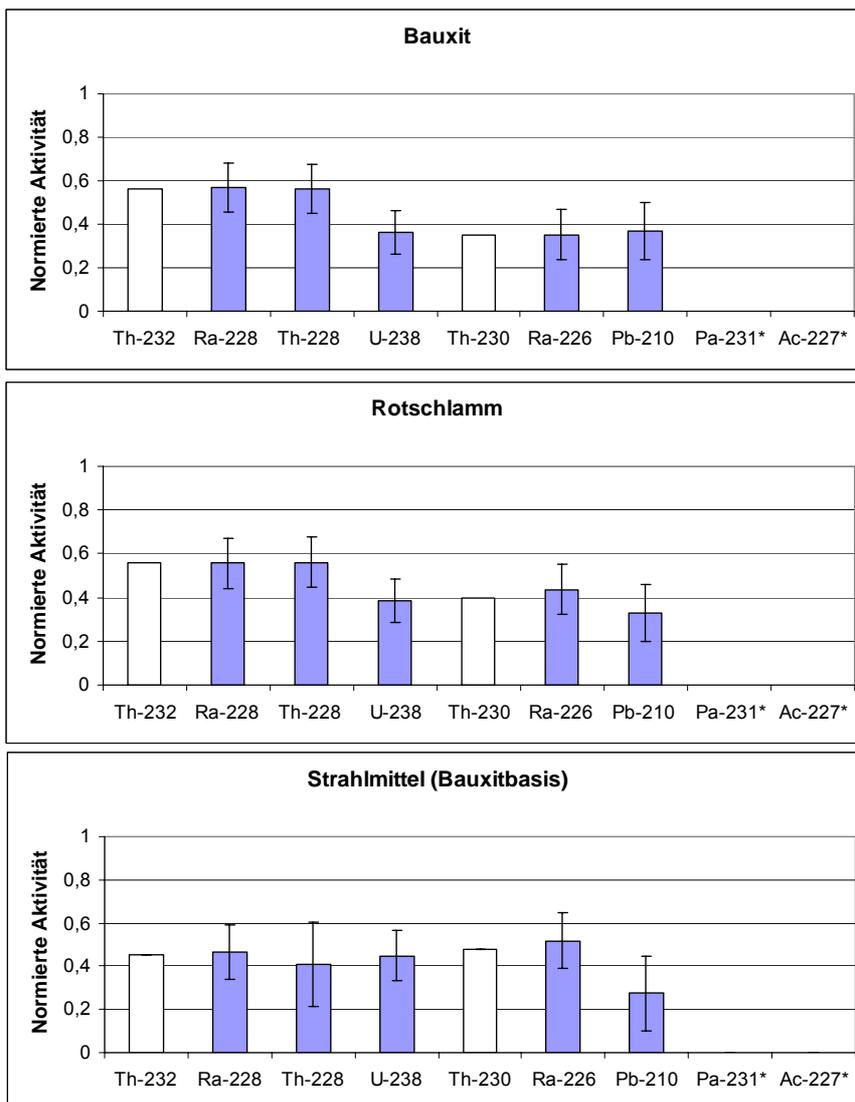


Abbildung 6-15: Aggregierte Darstellung der Nuklidvektoren von Bauxit, Rotschlamm und Strahlmitteln auf Bauxitbasis. Weiße Säulen: als Aktivitätsgleichgewicht angenommen, da keine Messdaten vorlagen.

Man erkennt, dass in den beiden dargestellten Zerfallsreihen Th-232 und U-238 im Wesentlichen Aktivitätsgleichgewichte vorliegen. Dieser Sachverhalt entspricht den Erwartungen an mineralische Rohstoffe. Im Strahlmittel sind für Pb-210 deutliche Abreicherungen erkennbar, beim Rotschlamm deutet sich ein leichtes Defizit von Pb-210 an. Diese Abreicherungen von Pb-210 müssen durch technische Prozesse bedingt sein, die in anderen Stoffströmen zu Anreicherungen von Pb-210 geführt haben können. Beim Strahlmittel sind es wahrscheinlich thermische Behandlungen (Brennen), die zu den Abreicherungen führen und bei denen in Abgasströmen Pb-210 Anreicherungen auftreten.

**Verarbeitung und Weiterverarbeitung von Uranerzen**

Die industrielle Aufbereitung der Uranerze durch chemische Laugung hinterließ großvolumige Tailingsablagerungen (s. Tabelle 3-25). Eine Auswertung der nuklidspezifischen Daten der Tabelle 3-28 zeigt Abbildung 6-16.

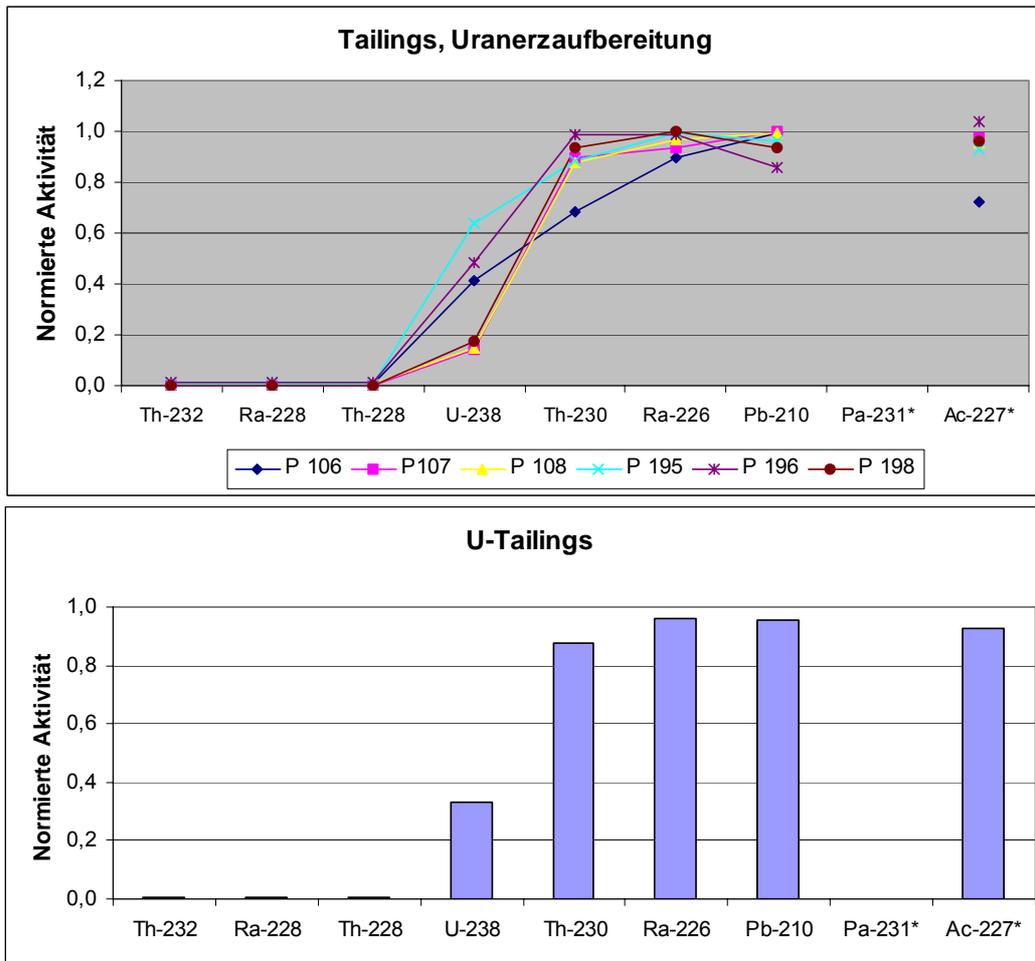


Abbildung 6-16: Nuklidvektoren von Uranerztailings bei alkalischem Erzaufschluss (Messergebnisse IAF. Daten s. Tabelle 3-28)

Das in Abbildung 6-16 oben dargestellte Diagramm zeigt grundsätzlich ähnliche Zusammensetzungen, wobei 2 Proben eine stärkere Abreicherung von Uran (U-238, normiert ca. 0,2), die anderen 3 Proben geringere Abreicherungen von Uran (U-238, normiert ca. 0,5) aufweisen. Da nur Uran signifikant abgereichert wurde, sind die dargestellten Nuklidvektoren als Ergebnis eines alkalischen Aufschlussverfahrens einzustufen. Bei schwefelsaurer Laugung wird Thorium (und evtl. auch Pa-231, Ac-227) zunächst mitextrahiert und erst später abgetrennt, so dass Th-230 gegen Ra-226 abgereichert wird. Es ist auch erkennbar, dass in den hier dargestellten Proben Ac-227 in seiner ursprünglichen Aktivität – also im natürlichen Aktivitätsverhältnis zu Th-230, Ra-226 - vorhanden ist. Da U-235 im gleichen Maße wie U-238 extrahiert wird, muss in der U-235 Reihe ein entsprechendes Aktivitätsungleichgewicht vorkommen. Das aus den Daten abzuleitende Aktivitätsverhältnis U-235/Ac-227 in den Tailings entspricht dem von U-238/Ra-226, d.h. es beträgt in den analysierten Proben nur 0,18 (P108, P198) bis 0,65 (P195).

Die bei der Sanierung eines ehemaligen Standortes der Radiumproduktion und Leuchtfarbenherstellung in Braunschweig gefundenen Nuklidvektoren (s. Kapitel 3.5.2.5) sind in Abbildung 6-17 dargestellt. Datenbasis sind 107 Analysen (IAF Radioökologie). Aus dem Gesamtdatensatz wurden die 4 auf diesem Gelände ange-troffenen Haupttypen von Nuklidvektoren herausgezogen und als Diagramm dargestellt. Daneben wurden auch Mischkontaminationen und unkontaminierte Böden bzw. Bauschuttreste mit einem (annähernden) Gleichgewicht in den Zerfallsreihen gefunden.

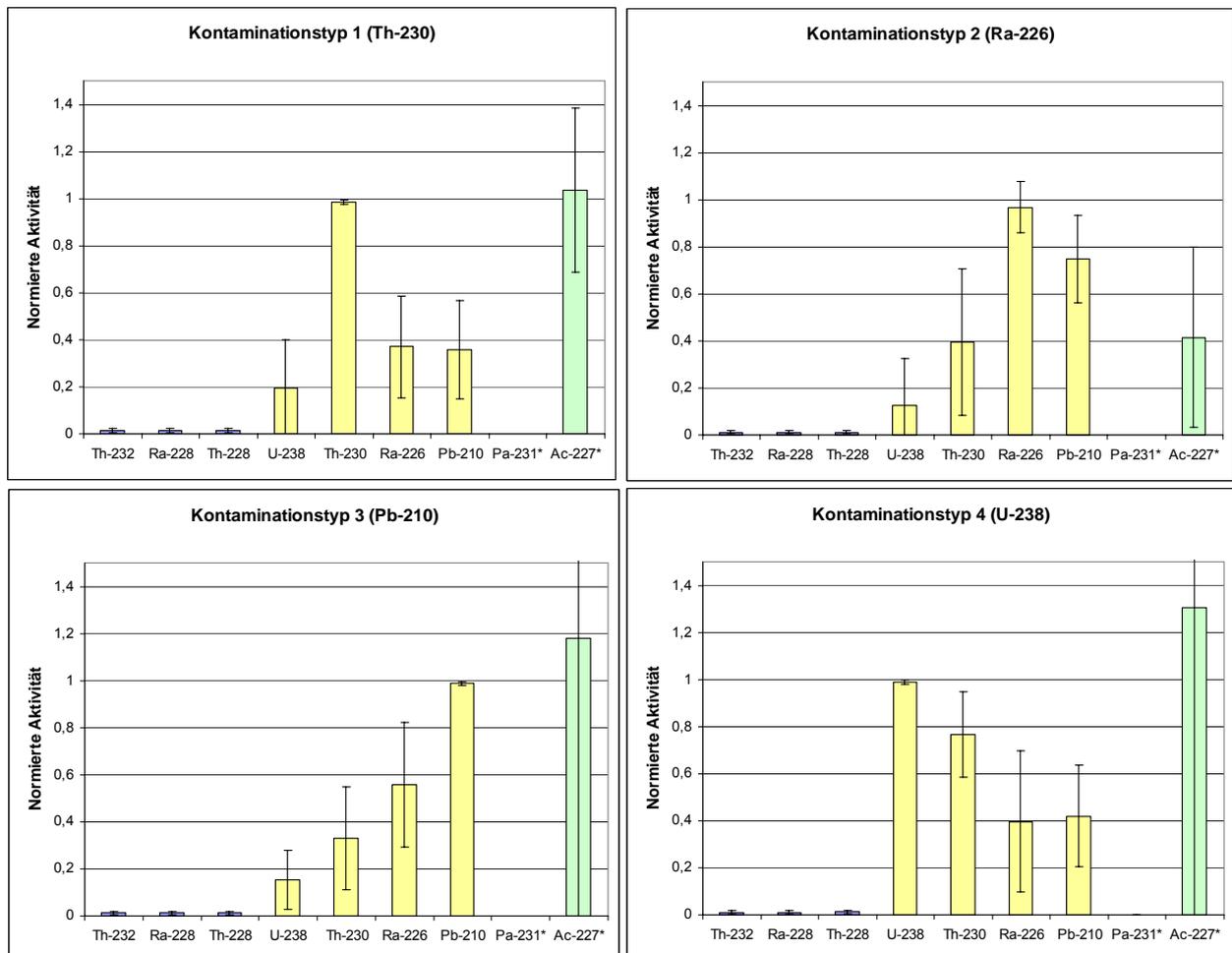


Abbildung 6-17: Nuklidvektoren von Materialien am Standorte einer ehemaligen Radiumfabrik

Durch die an diesem Standorte betriebenen chemischen Aufbereitungsschritte und die Verarbeitung von Leuchtfarben sind sehr unterschiedliche Materialien entstanden, die markant unterschiedliche Nuklidvektoren zeigen. Sie können den verschiedenen Prozessschritten der Verarbeitung von Pechblende zugeordnet werden.

Die Nuklidzusammensetzung des Kontaminationstyps 3 (Pb-210 dominiert) ist schwierig in ihrer Entstehung einzuordnen, da zum Zeitpunkt der Entstehung (mindestens 30 Jahre, wahrscheinlich mehr als 60 Jahre zurück) das Pb-210/Ra-226 Verhältnis 3 bis 8 mal höher gelegen haben muss. In diesem Material wurden in mehreren Proben Aktivitätsverhältnisse von Ac-227/U-238 (238!) von mehr als 1 (also  $Ac-227^*/U-238 > 21,7$ ) gemessen.

Da die Produktion an diesem Standorte seit mehr als 30 Jahren eingestellt ist, sind die (näherungsweise) den natürlichen Verhältnissen entsprechenden Aktivitätsanteile von Ac-227 mit Th-230 in den Materialien der Kontaminationstypen 1, 2 und 4 (bei 4 hohe Datenunsicherheit) ein Indiz für ein Gleichgewicht von Pa-231 und Ac-227.

### **Verarbeitung Seltenen Erden Erzen zur Gewinnung von radioaktiver Elemente**

Die radioaktiven Hinterlassenschaften im Stadtgebiet Oranienburg sind hauptsächlich Ergebnis der früher dort betriebenen Verarbeitung von Selten Erden Erzen zur Herstellung von Thorium und der Herstellung von Gasglühstrümpfen (sowie anderen „strahlenden“ Konsumgütern). Zur Auswertung standen 2 Datensätze zur Verfügung. Datensatz 1 umfasste 61 Analysen verschiedener Labors, die im Zusammenhang mit Standortuntersuchungen von HGN ausgeführt wurden. Dieser Datensatz enthält neben den Standardnukliden Ra-228, Th-228, U-238, Ra-226 auch Angaben zu Th-230 und (lückenhaft) auch Ac-227. Der Datensatz 2 besteht aus 30 gammaspektrometrischen Analysen, die in der Studie /HGN 01/ angefertigt wurden. Dieser Datensatz enthält keine Angaben zu Th-230, Pb-210 und Ac-227.

Die aus den vorgenannten Datensätzen abgeleiteten Nuklidvektoren sind in Abbildung 6-18 dargestellt. In beiden Datensätzen wurde das Nuklid Th-232 als Mittelwert der Messwerte von Ra-228 (gemessen als Ac-228) und Th-228 (gemessen über Linien der Tochternuklide Pb-212, Bi-212, Tl-208) berechnet.

Die Diagramme zeigen für die Mehrzahl der untersuchten Proben ein Dominieren von Nukliden der Thoriumreihe, bei Gleichgewicht in dieser Reihe. Für die Nuklide der U-238 Reihe sind sehr unterschiedliche Muster erkennbar, wobei ein gegen die sonstigen Nuklide dieser Reihe deutlich erhöhter Wert der normierten Th-230 auffällt. Einige wenige Proben fallen aus dem allgemeinen Muster heraus.

Zur Klassifizierung der Nuklidvektoren wurden die Ungleichgewichte in der U-238 Reihe herangezogen. Proben mit keiner oder nur einer geringen Störung der Gleichgewichte zwischen Th-230-U-238-Ra-226 (Wert der Aktivitätsverhältnisse  $Th-230/Ra-226$ ,  $Th-230/U-238 < 2$ ) sind in den Diagrammen der Abbildung 6-19 dargestellt. Die normierten Ac-227\*-Aktivitäten dieser Proben entsprechen (mit einem Ausreißer) denen der U-238 Reihe. Diese Materialien können als Typ „Rohstoffe“ klassifiziert werden, bei denen die Nuklidzusammensetzung noch nicht durch chemisch-technische Prozesse verändert wurden.

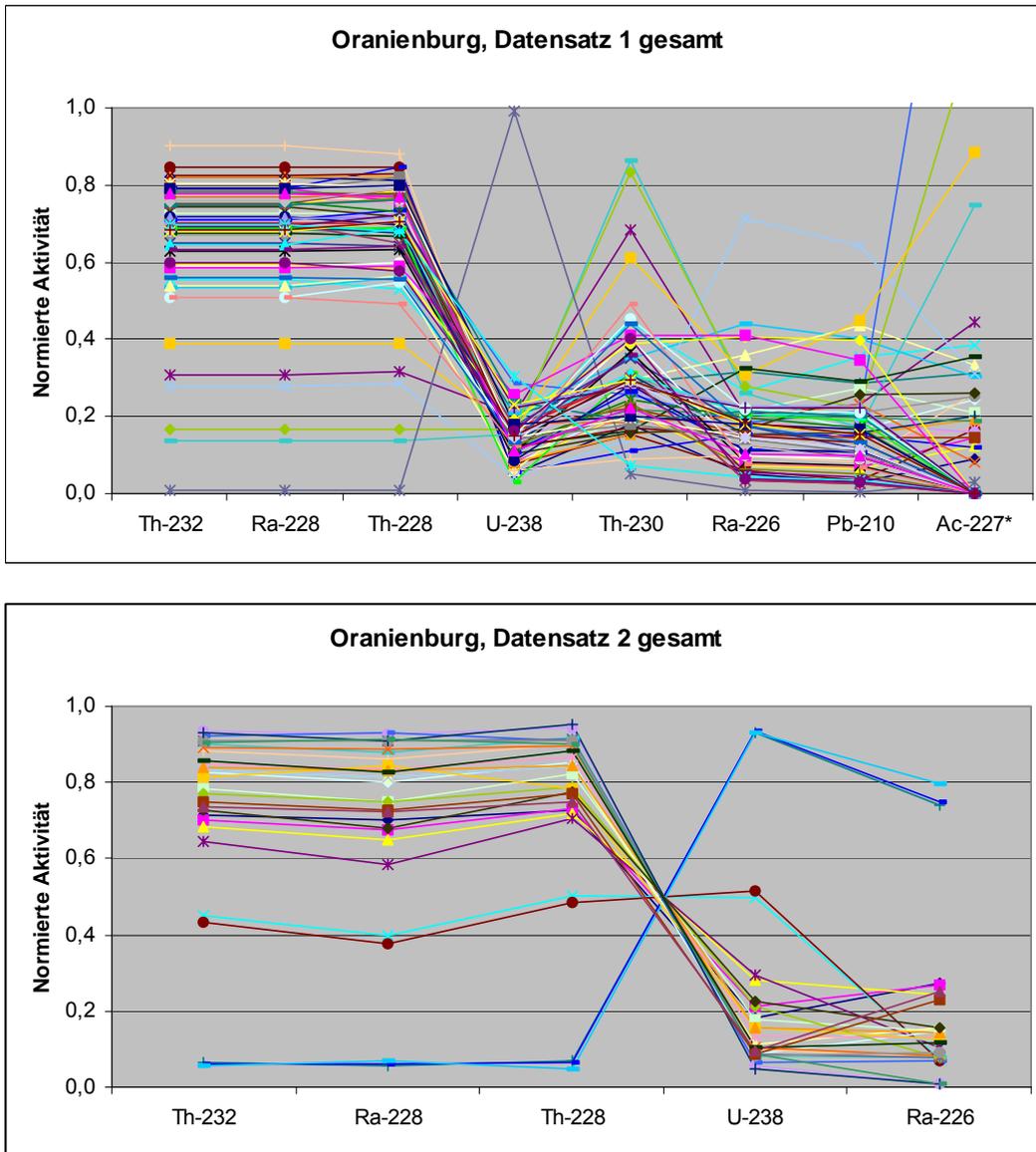


Abbildung 6-18: Nuklidvektoren von Bodenproben aus dem Stadtgebiet Oranienburg

Proben mit gestörten Gleichgewichten in der U-238 Reihe sind in den Diagrammen der Abbildung 6-20 dargestellt. Diese Nuklidvektoren sind durch das Dominieren von Th-230 in der U-Reihe gekennzeichnet. Die beiden Diagramme Mitte und unten repräsentieren Materialien, die bei denen Uran, Ra-226 und Pb-210 stark abgereichert sind. Die vorhandenen Radionuklide sind die Thoriumisotope Th-232, Th-230 und Th-228 sowie das nachgewachsene Ra-228. Die Kontaminationsquelle für die durch dieses Material charakterisierte Bodenkontamination muss chemisch abgetrenntes Thorium gewesen sein. Nach mehr als 50 Jahren ist in solchem Material die Th-232 Reihe im Gleichgewicht und nur das markant heraustretende Th-230 zeigt, dass es sich um chemisch verändertes Material handeln muss.

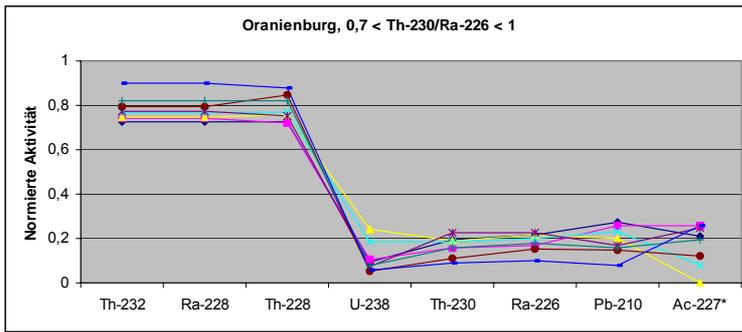


Abbildung 6-19: Nuklidvektoren für den Materialtyp „Rohstoffe“

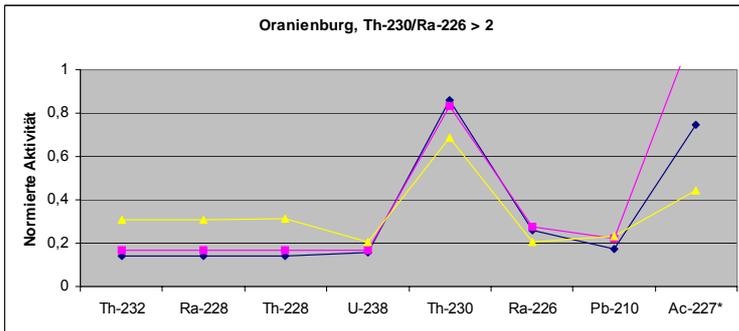
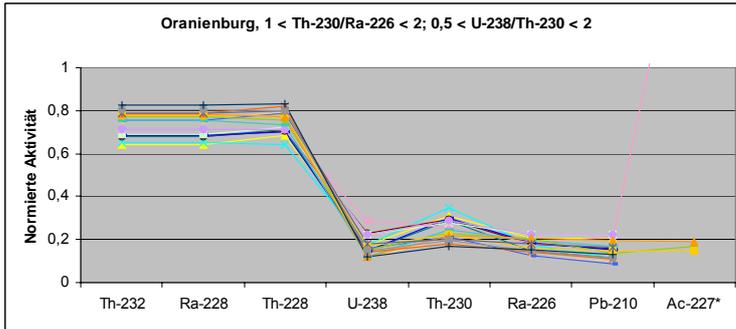
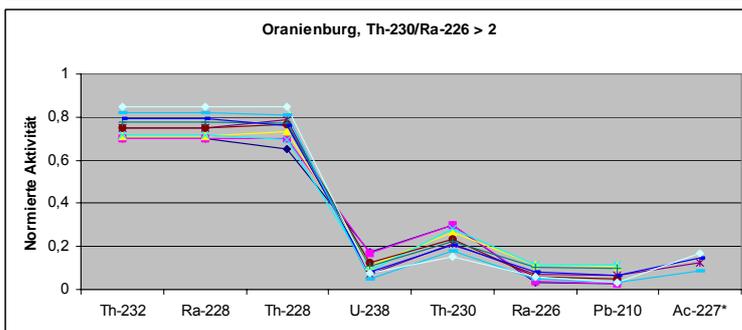
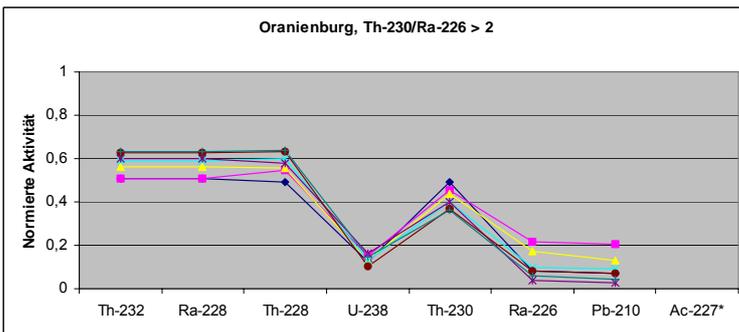


Abbildung 6-20: Nuklidvektoren für Aufbereitungsrückstände von Uranerzen (oben) sowie gealtertem Th-Produkt (Diagramme Mitte und unten)



Ein noch anderer Nuklidvektor ist in Abbildung 6-20 oben zu erkennen. Dieses Material besitzt relativ geringe Anteile an Nukliden der Th-232 Reihe, weist aber in der U-235 Reihe normierte Ac-227\* Aktivitäten auf, die denen von Th-230 entsprechen. Dieser Nuklidvektor entspricht dem Kontaminationstyp 1 nach Abbildung 6-17. Eine solche Nuklidzusammensetzung kann bei der Verarbeitung von Uranerzen entstehen, wenn in einer Prozessstufe Th-230 und Pa-231 abgetrennt wird. Da eine Verarbeitung von Uranerzen am Standort Oranienburg stattfand, ist solches Material für diesen Standort plausibel.

Ein gänzlich anderen Nuklidvektor zeigt Abbildung 6-21. Hier handelt es sich eindeutig um eine Kontamination, die ausschließlich durch Uran bestimmt wird. Kontaminationsquelle muss ein „Uranprodukt“, z.B. Yellow Cake gewesen sein.

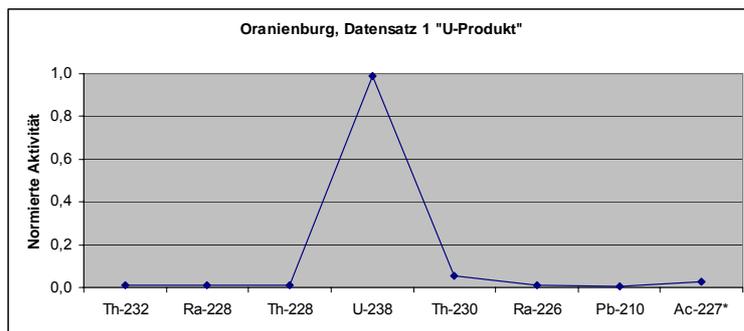


Abbildung 6-21: Nuklidvektor von einer Bodenkontamination durch „Uran-Produkt“

Insgesamt zeigen die hier dargestellten Nuklidvektoren von Materialien, die chemische Aufbereitungsprozesse durchlaufen haben, eine hohe Variabilität der Nuklidzusammensetzung. Ein entscheidendes Nuklid, um die technischen Entstehungsprozesse einordnen zu können ist Th-230. Nur bei Kenntnis der Th-230 Aktivität kann mit Sicherheit beurteilt werden, ob Kontaminationen durch Rohstoffe oder durch Aufbereitungsrückstände vorliegen. Eine hinreichend zuverlässige Bestimmung von Ac-227 kann eine Klassifizierung von Materialien unterstützen. Beide genannte Nuklide sind gammaspektrometrisch nur bei Proben mit höherer spezifischer Aktivität sicher bestimmbar. Eine präzise Bestimmung der Th-232/Th-230 Verhältnisse ist nur mittels Alphaspektrometrie oder Massenspektrometrie möglich.

Da die hier analysierten Proben hinreichend „alte“ Materialien repräsentieren, sind in der Th-232 Reihe Aktivitätsgleichgewichte anzusetzen. Nur unter dieser Voraussetzung konnten die gammaspektrometrischen Messungen auf Th-232 übertragen werden. In „jüngeren“ Ablagerungen kann dieses Gleichgewicht allerdings ebenfalls gestört sein. In solchen Fällen ist eine separate Bestimmung von Th-232 erforderlich, wenn die zeitliche Veränderung der Nuklidzusammensetzung beurteilt werden muss.

### 6.2.4 Thermische Verarbeitung von Mineralen/Erzen

#### Schlacken

Für die Auswertung geeignete Daten standen von Kupferschieferschlacken (10 Analysen) und Eisenhütten-  
 schlacken (2 Analysen) zur Verfügung. Die daraus abgeleiteten Diagramme der Nuklidzusammensetzung  
 zeigen die Abbildung 6-22 und Abbildung 6-23. Man erkennt (trotz fehlender Daten zu einigen Nukliden),  
 dass die aus einem Erz erzeugten Schlacken relativ einheitliche Nuklidzusammensetzung aufweisen, die  
 durch Gleichgewichte in den beiden Zerfallsreihen mit Ausnahme von Pb-210 gekennzeichnet sind.

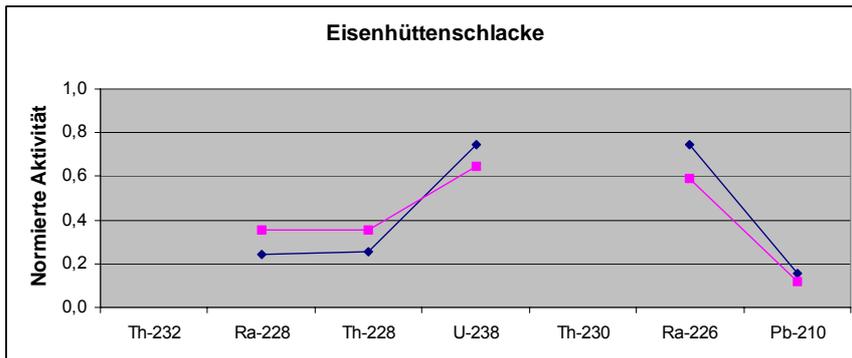


Abbildung 6-22: Darstellung der Nuklidvektoren von Eisenhütten-  
 schlacken. Weiße Säulen: als Aktivitätsgleichgewicht angenom-  
 men, da keine Messdaten vorla-  
 gen

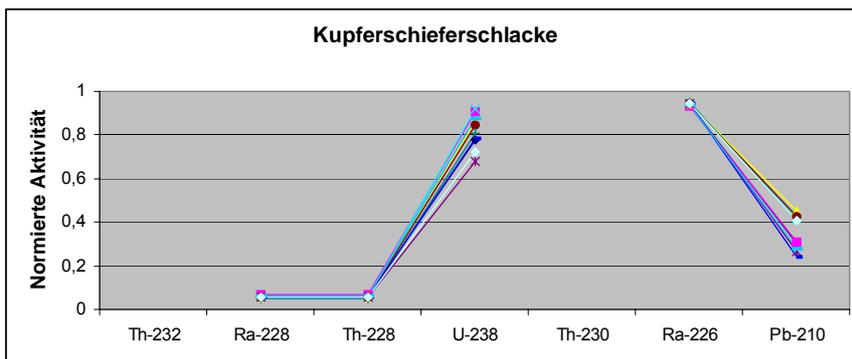
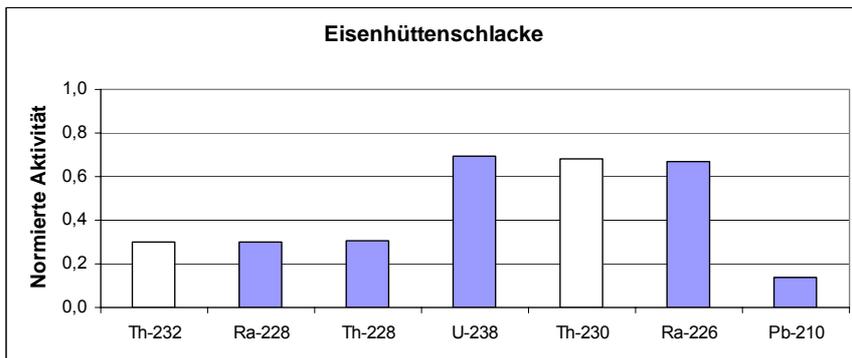
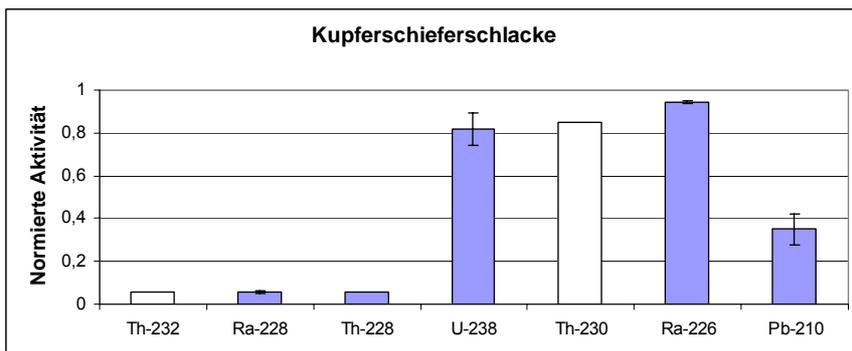


Abbildung 6-23: Darstellung der Nuklidvektoren von Kupferschiefer-  
 schlacke. Weiße Säulen: als Aktivitätsgleichgewicht ange-  
 nommen, da keine Messdaten  
 vorlagen



Die unterschiedlichen Anteile der Thoriumreihe (bzw. die unterschiedlichen U/Th-Verhältnisse) sind auf die verarbeiteten Erze zurückzuführen.

Pb-210 ist in beiden Schlacken stark angereichert, in der Eisenhüttenschlacke um ca. 90 %. In der Kupferschieferschlacke ist wahrscheinlich Pb-210 aufgrund längerer Liegezeit bereits teilweise nachgewachsen.

Auf die signifikant geringere Pb-210 Aktivität in Strahlsanden (s. Abbildung 6-15) wurde bereits im vorigen Kapitel hingewiesen.

Die Darstellungen zeigen, dass die Analyse von Schlacken geeignet ist, die Aktivitätstrennung von Pb-210 bei thermischen Prozessen quantitativ zu ermitteln. Da Schlacken häufig einfacher verfügbar sind als Filterstäube, sind Analysen an solchen Schlacken zur Präzisierung des Prozessverständnisses zu empfehlen.

### **Rauchgasreinigung der Roheisenverhüttung**

Aus einem Datensatz von 281 Analysenwerten von Sinterstäuben, Hochofen-Gichtgasschlamm und Hochofen-Gichtgasstäuben verschiedener deutscher Roheisenhütten wurden die in den Abbildung 6-24 dargestellten Diagramme abgeleitet. Die links dargestellten Diagramme zeigen, dass alle diese Materialien durch Pb-210 bestimmt werden. In den Diagrammen rechts wurden zusätzlich die normierten Po-210 Aktivitäten mit eingetragen. Diese Werte beziehen sich auf den Zeitpunkt der Probenahme, zum Zeitpunkt der Entstehung der Stäube bzw. Schlämme sind daher noch etwas größere Ungleichgewichte Po-210/Pb-210 zu erwarten. Nach den hier ausgewerteten Daten fallen die Po-210 Aktivitäten in den Hochofenprozessen tendenziell niedriger aus als die Pb-210 Aktivitäten, im Sinterprozess wurden tendenziell höhere Po-210 Aktivitäten als die von Pb-210 gemessen. Die Schwankungsbreite dieses Verhältnisses ist allerdings erheblich, so dass eine eindeutige Aussage zu den Po-210/Pb-210 Verhältnissen in den Rückständen der Roheisenverhüttung nicht möglich ist.

Von den sonstigen Radionuklide dominiert in allen Diagrammen das Th-230. Dieser Wert ergibt sich allerdings nicht aus echten Messwerten, sondern ist eine Folge der in die Auswertung einbezogenen Bestimmungsgrenzen. Die höheren Anteile der Nuklide U-238, Ra-226 in den Gichtstäuben sind kein Resultat von Anreicherungen, sondern sind auf die geringeren Pb-210 Aktivität in den ausgewerteten Proben (nur ca. 1-2 Bq/g) im Vergleich zu ansonsten über 10 Bq/g zurückzuführen.

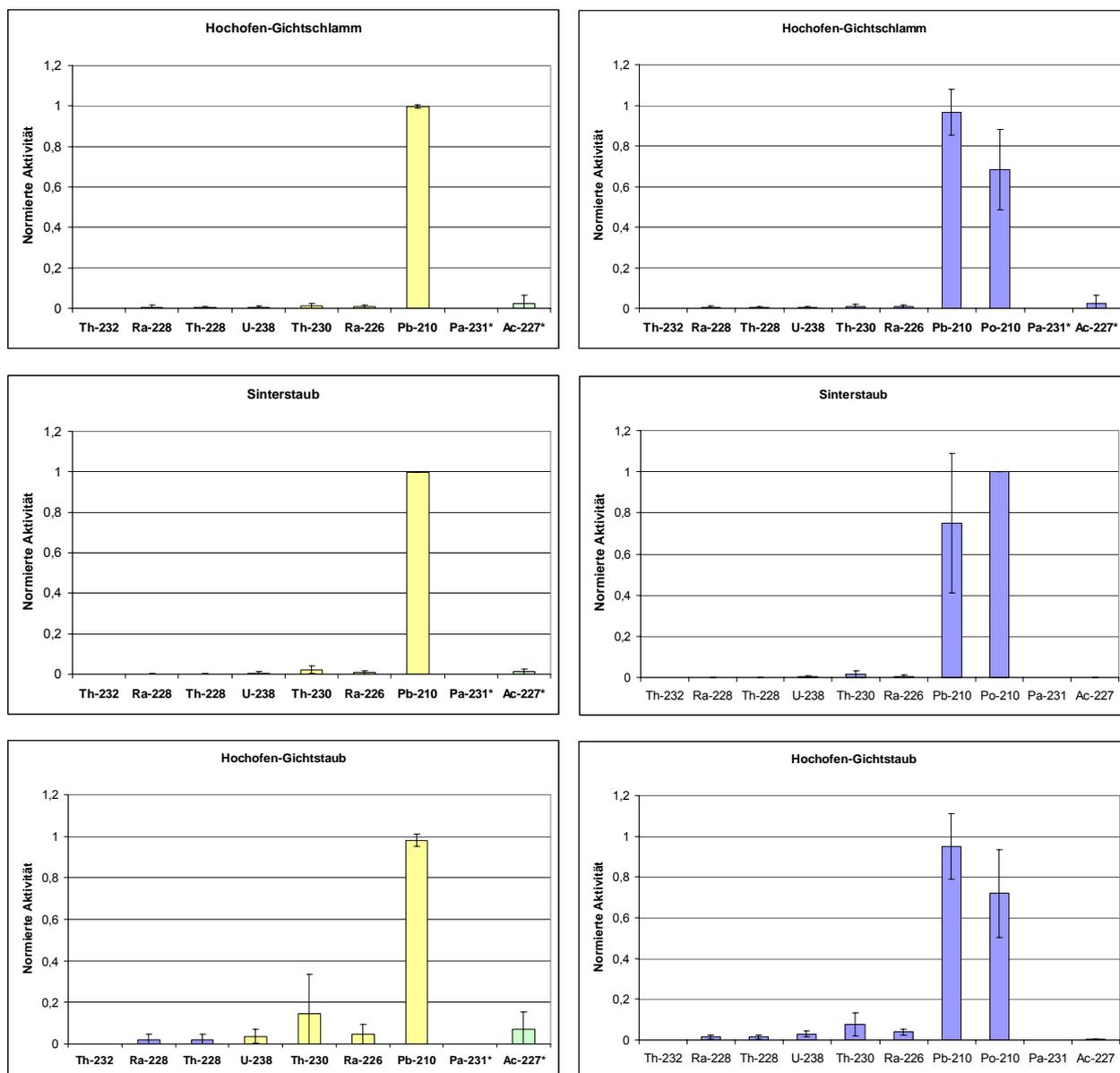


Abbildung 6-24: Nuklidvektoren von Rückständen der Roheisenverhüttung

### Rückstände der Rauchgasreinigung aus der Verhüttung von NE-Metallen

Zur Auswertung standen Daten von Theisenschlämmen (20 Analysen, s. Tabelle 3-48) und von Stäuben der Aluminiumverhüttung (1 Analyse, Quelle: IAF/HGN) zur Verfügung. Aus diesem Datensatz wurden die in den Abbildung 6-24 dargestellten Nuklidvektoren abgeleitet.

Die Diagramme zeigen, dass alle diese Materialien durch Pb-210 bestimmt werden. In den Diagrammen rechts wurde zusätzlich die normierten Po-210 Aktivitäten mit eingetragen. Diese Werte beziehen sich auf den Probenahmezeitpunkt.

Von den sonstigen Radionuklide dominiert in allen Diagrammen das Th-230. Dieser Wert ergibt sich allerdings nicht aus echten Messwerten, sondern ist eine Folge der in die Auswertung einbezogenen Bestim-

mungsgrenzen. Die höheren Anteile der Nuklide U-238, Ra-226 in den Gichtstäuben sind kein Resultat von Anreicherungen, sondern sind auf die geringeren Pb-210 Aktivität in den ausgewerteten Proben (nur ca. 1-2 Bq/g) im Vergleich zu ansonsten über 10 Bq/g zurückzuführen.

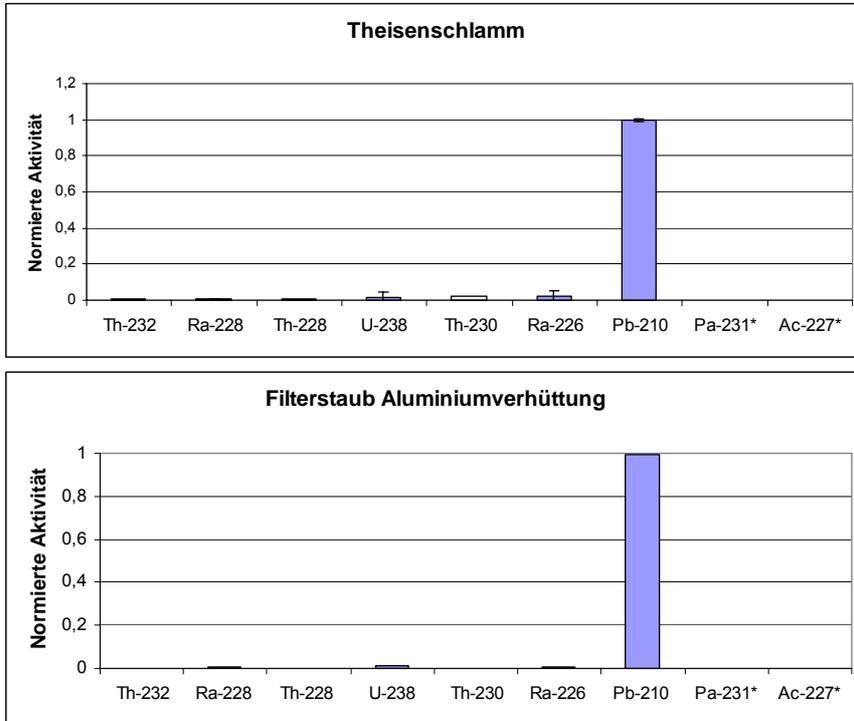


Abbildung 6-25: Nuklidvektoren für Theisenschlamm und Filterstaub der Aluminiumverhüttung

### Rückstände der thermischen Behandlung von Mineralen

Aus der Literatur /SMI 98, HIP 97/ sind prozessbezogene Analysenergebnisse von Zirkonmineralen und Filterstäuben des Brennens solcher Minerale bekannt. Diese Daten belegen, dass Pb-210 (und Po-210) durch das Brennen in den Staubpartikeln der heißen Abgase in beträchtlichem Maße angereichert werden (s. Kapitel 5.11). Die aus den Daten der vorgenannten Quellen resultierenden Nuklidvektoren der Abbildung 6-26 zeigen, dass hier ähnliche Nuklidzusammensetzungen wie in den Hüttenprozessen auftreten.

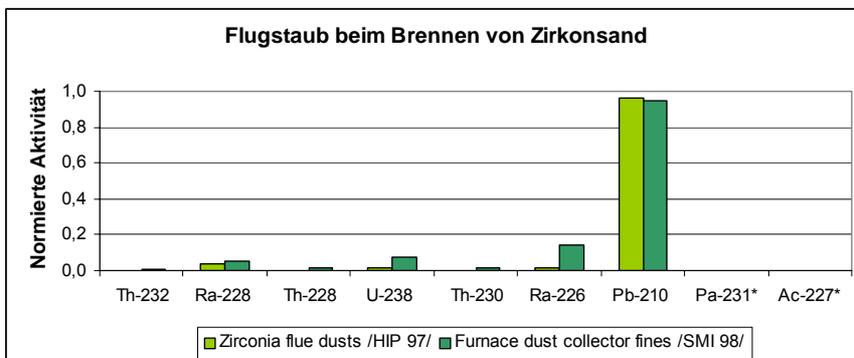


Abbildung 6-26: Nuklidvektor von Flugstäuben aus der thermischen Behandlung von Zirkonsanden (Brennen im Elektroofen). Daten aus /SMI 98, HIP 97/

### 6.3 Nuklidvektoren für andere Materialien

Neben den bisher beschriebenen Prozessen der Anreicherung oder Umverteilung von natürlichen Radionukliden kann es auch durch die Verarbeitung oder Verwendung von Produkten mit natürlichen Radionukliden zu Bodenkontaminationen und damit Hinterlassenschaften kommen. Industriell genutzt wurden neben Uran auch Radium (vor allem als Leuchtfarben in der Uhren- und Geräteproduktion) und Thorium.

In Abbildung 6-27 werden beispielhaft Nuklidvektoren von Bodenkontaminationen durch thoriumhaltige Produkte dargestellt. Während die Bodenkontaminationen durch Katalysatormaterial relativ altes Katalysatormaterial enthalten, beim dem die Th-232 Reihe im Gleichgewicht vorliegt, ist bei den Bodenkontaminationen durch Schweißelektroden ein Ungleichgewicht in der Th-232 Reihe vorhanden, das noch zu einem (hier geringen) Anstieg der Aktivität von Ra-228, Th-228 führt.

In beiden Materialien wird die U-238 Reihe durch Th-230 dominiert, so dass die korrekte Ermittlung der spezifischen Aktivität nach den Vorgaben von Anlage XII Teil B oder Teil C StrlSchV ( $C_{U-238,max} + C_{Th-232,max}$ ) eine hinreichend genaue Bestimmung von Th-230 erfordert. Vor allem bei geringen spezifischen Aktivitäten kann die ausschließlich gammaspektrometrische Analyse in solchen Fällen zu unsicheren oder auch unkonkreten Ergebnissen führen.

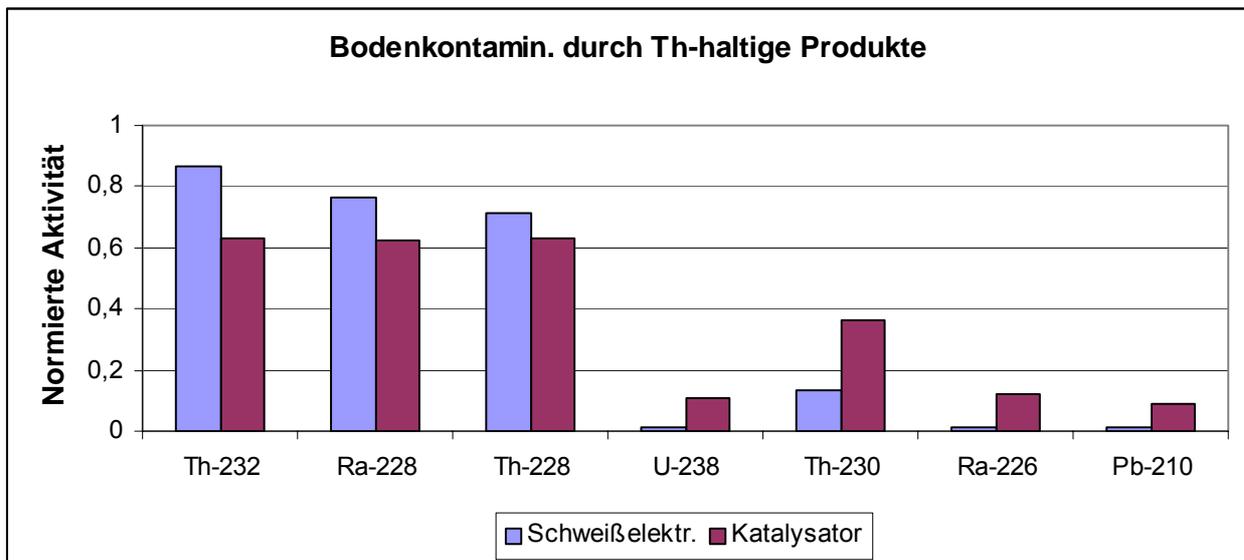


Abbildung 6-27: Aggregierte Nuklidvektoren von Bodenproben mit Kontaminationen thoriumhaltiger Produkte

## 6.4 Detailanalyse von Nuklidvektoren bei der Erdgas-, Erdölgewinnung

### 6.4.1 Allgemeines

Die Aktivitätsverhältnisse frischer Bildungen der Erdöl- Erdgasgewinnung sind sehr variabel. Für praktische Abschätzungen kann aus vorliegenden Erfahrungswerten für Scales, die aus nur einige Jahre lagernden Rohren stammen, häufig mit einem Verhältnis von Ra-226 zu Ra-228 von ca. 3 für Abschätzungen gerechnet werden. Dieser für grobe Abschätzungen geeignete Verhältniswert von 3 basiert auf mehr als 100 Einzelmessungen, die die IAF - Radioökologie GmbH im Auftrag unterschiedlicher Firmen durchgeführt hat /IAF 99/.

Wegen der relativ kurzen Halbwertszeit von 5,8 a für Ra-228 hängt das Aktivitätsverhältnis zwischen Ra-226 und Ra-228 natürlich vom Alter der Scales stark ab. In alten Steigrohren (Lagerungszeit  $\geq 15$  Jahre) ist die spezifische Aktivität von Ra-228 gegenüber der von Ra-226 in vielen Fällen bereits vernachlässigbar. Nach einer Lagerungszeit von mehr als 60 Jahren wird Ra-226+ zu Ra-226++, wobei die spezifischen Aktivitäten von Ra-226 sowie Pb-210 und Po-210 übereinstimmen. Die spezifische Gesamtaktivität der Schlämme und Scales wird dann ausschließlich durch Ra-226++ dominiert.

### 6.4.2 Datenbasis

Die zur weiteren Auswertung genutzte Datenbasis besteht aus

- 204 Analysen für Reinigungsrückstände (Schlämme) und
- 94 Messwerten von Scales.

Da sowohl für Schlämme als auch Scales die genaue Lagerungszeit bis zur Analyse in der Regel nicht bekannt ist, sind die daraus folgenden Schlussfolgerungen für die Radionuklide Ra-228 und Th-228 als weniger belastbar einzuschätzen als die für Ra-226 und Pb-210/Po-210. Des weiteren ist zu beachten, dass eine Trennung der Rückstände nach verschiedenen Förderfeldern nicht vorgenommen werden konnte. Aufgrund der Tatsache, dass die Anzahl der Messwerte relativ groß ist, ist davon auszugehen, dass die Datenbasis für die Ableitung von charakteristischen Nuklidvektoren belastbare Schlussfolgerungen zulässt.

In der Abbildung 6-28 ist die Häufigkeitsverteilung der nach Kapitel 6.1 normierten Nuklidanteile  $a_{Ni}$  von Ra-226 und Pb-210 für Schlämme dargestellt. Die Abbildung 6-29 zeigt die entsprechende Häufigkeitsverteilung für die Scales. Generell ist zu erkennen, dass für Ra-226 eine wesentliche breitere Verteilung als für Pb-210/Po-210 vorliegt und nur letztere eine ausgeprägte Peak-Struktur aufweist. Bei Schlämmen liegt das Maximum der Pb-210/Po-210-Verteilung bei  $a_{Ni}=0,31$  und bei den Scales bei 0,16. Dies bedeutet, dass in den Scales der relative Anteil der Proben mit dominierendem Gehalt an Pb-210/Po-210 deutlich geringer als der in Schlämmen ist. Dieser Sachverhalt spiegelt sich auch im Quecksilbergehalt der Proben wieder. Die Schlämme weisen teils deutlich höhere Quecksilbergehalte auf und damit auch erhöhte Beimischungen an Pb-210/Po-210.

Bei den Schlämmen stimmt die Lage des Maximums ( $a_{Ni} \approx 0,3$ ) der Ra-226- und Pb-210/Po-210-Verteilungen (s. Abbildung 6-29) annähernd überein. Das bedeutet, dass in relativ vielen Schlammproben die spezifischen Aktivitäten von Ra-226 und Pb-210/Po-210 annähernd gleich groß sind und sich in Abhängigkeit von der Lagerungszeit nur wenig ändern wird. Bei Lagerungszeiten von mehr als hundert Jahren würde das Maximum der Verteilung genau bei  $a_{Ni}=1/3$  liegen (s. nächster Abschnitt). Dagegen liegt das Maximum der  $a_{Ni}$ -Verteilung für Pb-210/Po-210 von Scales bei deutlich geringen Werten ( $a_{Ni}=0,16$ ) und verdeutlicht, dass in der Mehrzahl der Fälle Ra-226 Leitnuklid ist. Auch hier würde sich das Maximum zu  $a_{Ni}=1/3$  nach großen Lagerungszeiten verschieben.

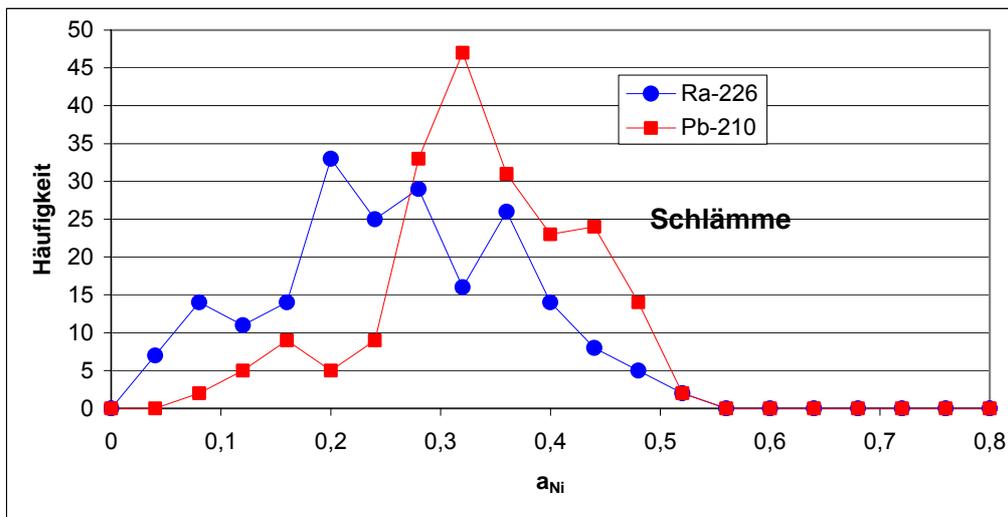


Abbildung 6-28: Häufigkeitsverteilung der normierten Nuklidanteile  $a_{Ni}$  von Ra-226 und Pb-210 der Schlämme

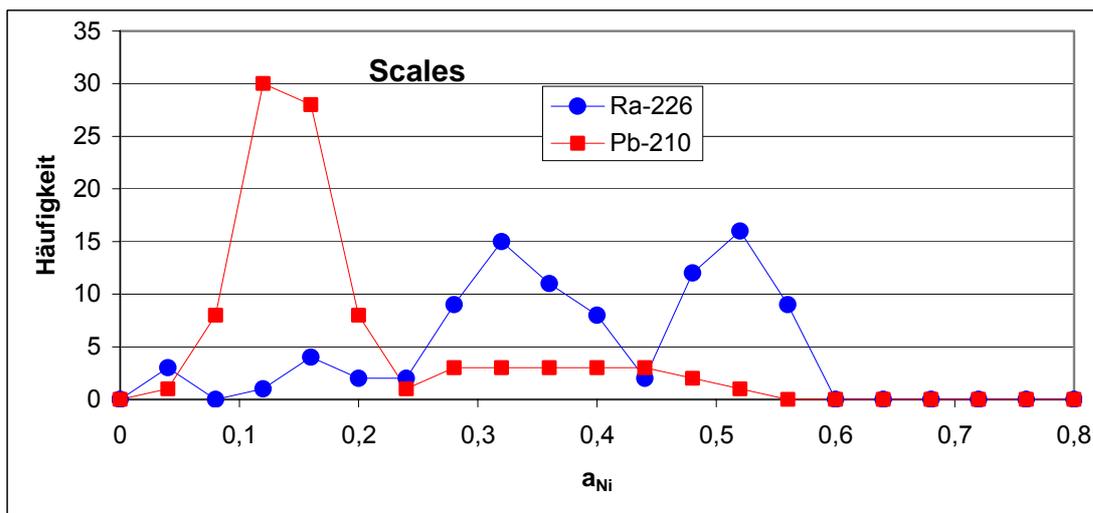


Abbildung 6-29: Häufigkeitsverteilung der normierten Nuklidanteile  $a_{Ni}$  von Ra-226 und Pb-210 der Scales

### 6.4.3 Zeitliche Veränderungen

In der Abbildung 6-30 sind die normierten Nuklidanteile  $a_{Ni}$  der Schlämme in Abhängigkeit vom Anteil  $a_{Ni}$  von Ra-226 dargestellt, während Abbildung 6-32 (linkes Bild) diese Korrelation nach einer Lagerungszeit von 30 Jahren zeigt. Im letzteren Fall ist der Anteil von Ra-226 und Th-228 in der Korrelation von Pb-210 und Ra-226 bereits nicht mehr in Betracht zu ziehen. Die Verteilung der normierten Nuklidanteile  $a_{Ni}$  zeigt eine deutliche Peak-Struktur, wobei sich die Positionen der Maxima annähern.

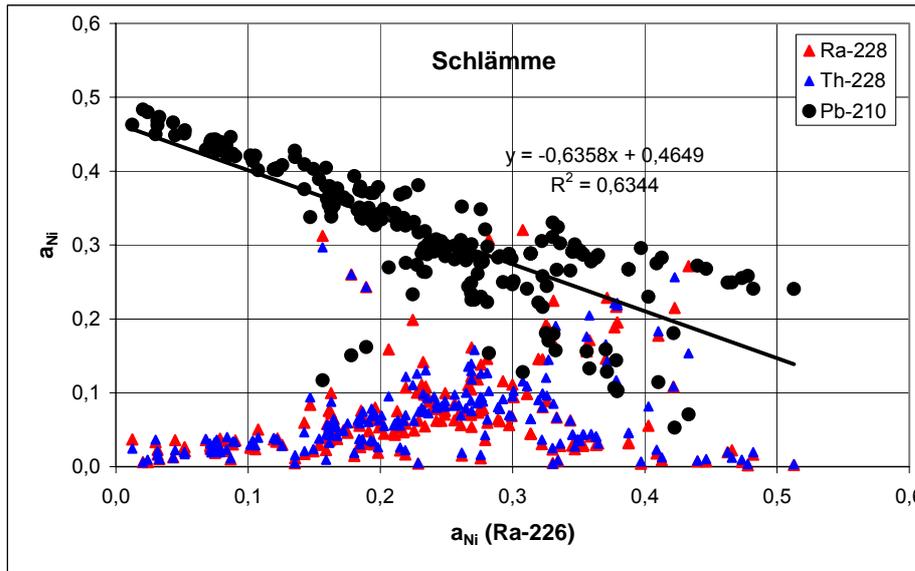


Abbildung 6-30: Normierte Nuklidanteile  $a_{Ni}$  der Schlämme (204 Werte je Nuklid) in Abhängigkeit vom Anteil von Ra-226

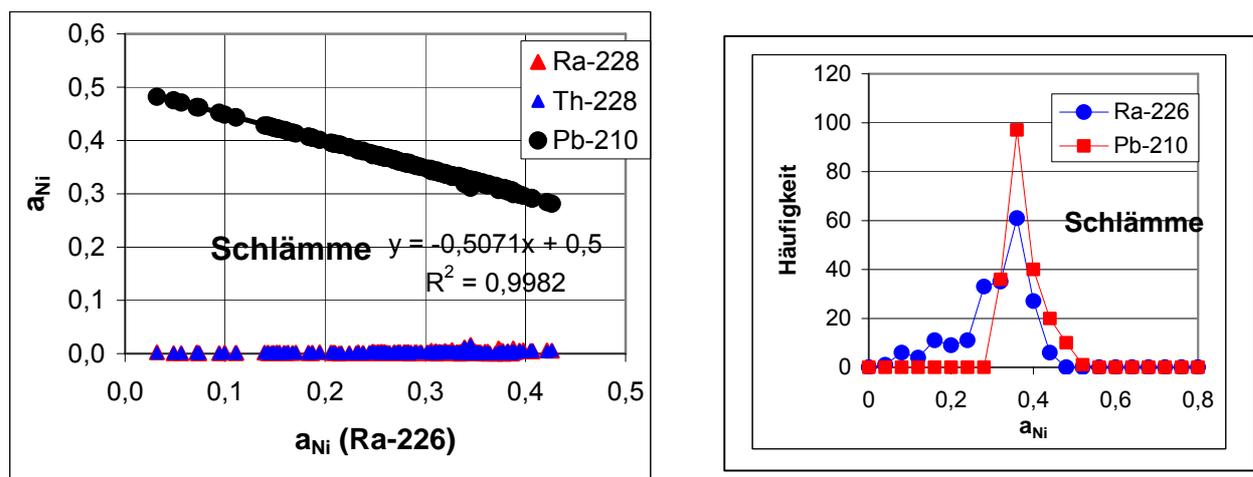


Abbildung 6-31: linkes Bild: Normierte Nuklidanteile  $a_{Ni}$  der Schlämme in Abhängigkeit vom Anteil von Ra-226 nach einer Lagerungszeit von 30 Jahren. rechtes Bild: Häufigkeitsverteilung der normierten Nuklidanteile  $a_{Ni}$  von Ra-226 und Pb-210 der Schlämme nach einer Lagerungszeit von 30 Jahren.

In den Abbildungen 6-32 und 6-33 ist der für die Schlämme diskutierte Sachverhalt für die Scales dargestellt. Der Hauptunterschied besteht darin, dass nach einer Lagerungszeit von ca. 30 Jahren die Maxima der Verteilung der normierten Nuklidanteile  $a_{Ni}$  zwar deutlich ausgeprägt sind, jedoch ihre Positionen sich noch signifikant voneinander unterscheiden. Dieser Unterschied reflektiert den experimentell erhaltenen Sachverhalt, dass die mittlere spezifische Ra-226-Aktivität der Scales deutlich größer ist als die von Pb-210. Erst nach einer Lagerungszeit von 60 Jahren würden die Positionen der Maxima praktisch übereinstimmen.

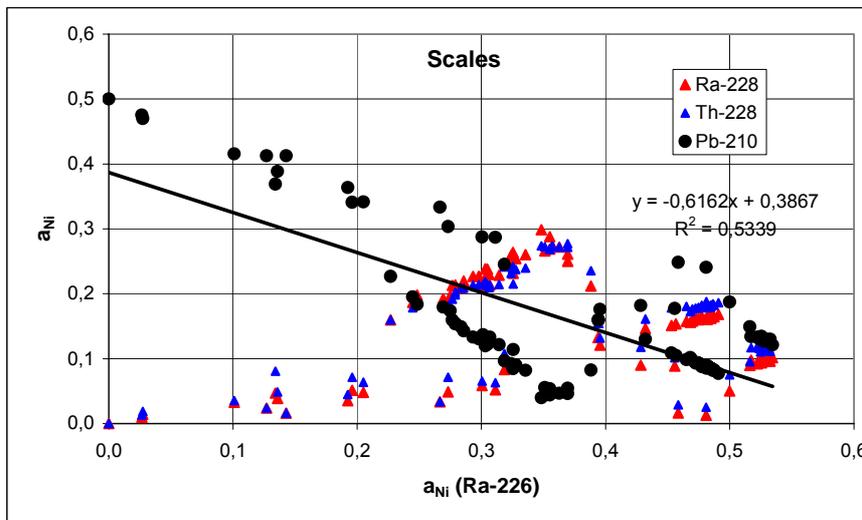


Abbildung 6-32: Normierte Nuklidanteile  $a_{Ni}$  der Scales (94 Werte je Nuklid) in Abhängigkeit vom Anteil von Ra-226

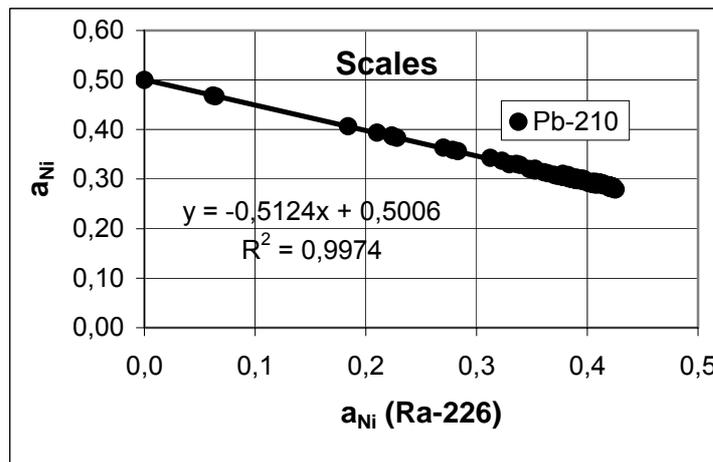


Abbildung 6-33: linkes Bild: Normierte Nuklidanteile  $a_{Ni}$  der Scales in Abhängigkeit vom Anteil von Ra-226 nach einer Lagerungszeit von 30 Jahren. Rechtes Bild: Häufigkeitsverteilung der normierten Nuklidanteile  $a_{Ni}$  von Ra-226 und Pb-210 der Scales nach einer Lagerungszeit von 30 Jahren.

### 6.5 Repräsentative Nuklidvektoren für Materialtypen

Die in diesem Kapitel 6 dargestellten Nuklidvektoren zeigen, dass die Nuklidzusammensetzung von Materialien zum einen durch die Rohstoffe / Ausgangsstoffe, zum anderen durch die Bildungsprozesse bestimmt werden. In Bezug auf Bodenkontaminationen und Altlasten lassen sich einigen typischen Gruppen mit Materialien ähnlicher Nuklidzusammensetzungen und ähnlichen radiologischen Eigenschaften ableiten. Diese Typen bieten sich als methodische Basis für die Untersuchung und Bewertung von Altlasten an. Im Folgenden wird eine mögliche Klassifizierung von Materialien nach den Nuklidzusammensetzungen vorgestellt. Eine Übersicht über die Nuklidvektoren zeigen die Diagramme der Abbildung 6-34.

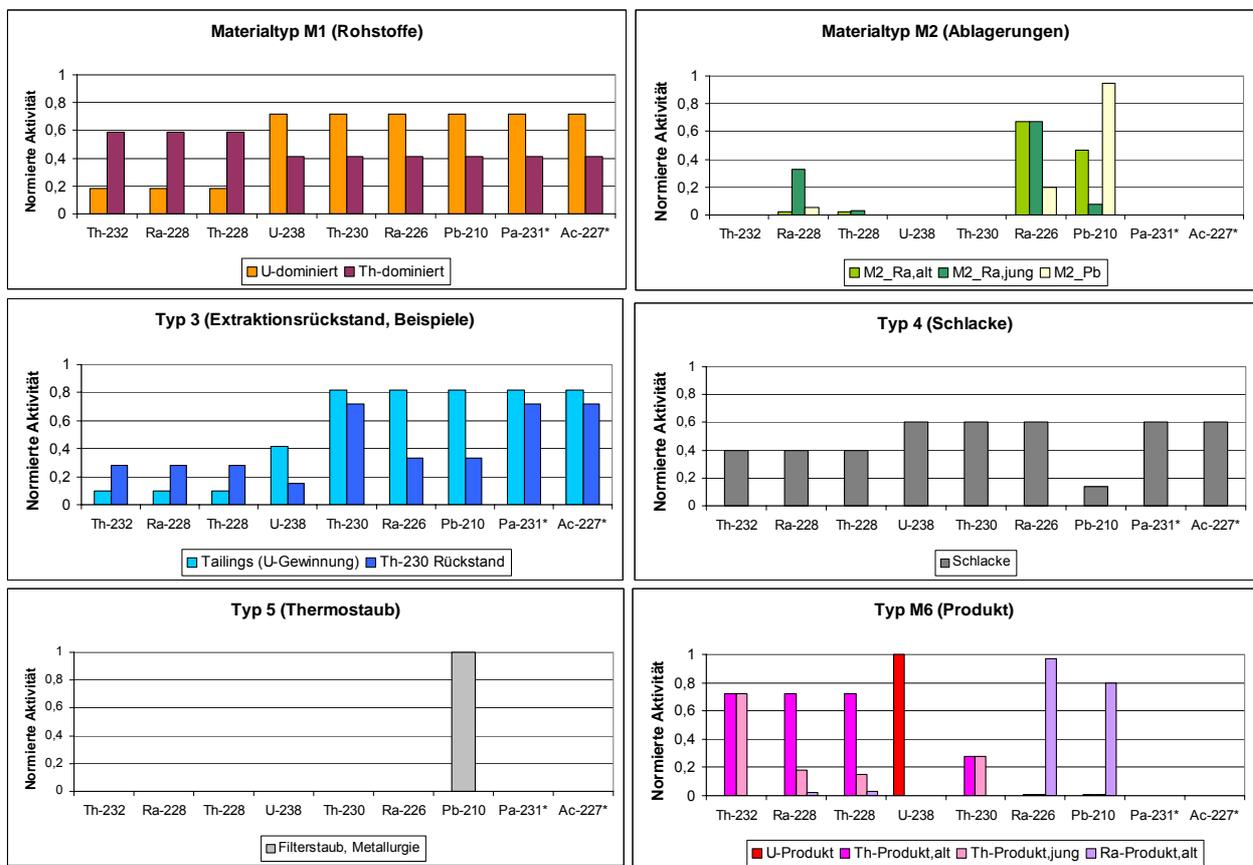


Abbildung 6-34: Übersicht über typische Nuklidvektoren von Materialien (Erläuterungen s. Text)

#### Typ M1 („Rohstoff“)

**Charakteristisch:** Zerfallsreihen (weitgehend) im Gleichgewicht. U/Th-Verhältnis unterschiedlich.

Die U-235 Reihe ist ebenfalls im Gleichgewicht. U-235 steht (immer!) im natürlichen Verhältnis zu U-238. Das Aktivitätsverhältnis U-235/U-238 kann mit 0,046 angesetzt werden.

**Tritt auf bei:** Natürlichen Gesteinen und Mineralen sowie mechanisch aufbereiteten Rohstoffe. Rückstände nach StrlSchV mit diesem Typ sind Nebengesteine, Sande ggf. auch Stäube von Erzen und Mineralien, die nicht durch chemische oder thermische Prozesse in ihrer Zusammensetzung verändert wurden. Natürliche, unkontaminierte Böden besitzen zwar häufig geringfügige Ungleichgewichte in den Zerfallsreihen (s. IVA 92/), können aber zumeist als Typ „Rohstoffe“ angesehen werden.

**Nuklide der maximalen Aktivitäten:** Je nach Bildungsbedingungen und Mineral dominieren die langlebigen Nuklide U-238, Th-230 oder Ra-226 in der U-238 Reihe sowie Th-232-oder Ra-228 in der Th-232 Reihe.

**Messung:** Zur Messung des Nuklidvektors genügt die Gammaspektrometrie. Langlebige Nuklide, die nicht oder nur mit geringer Empfindlichkeit bestimmbar sind, können aus anderen Nukliden als im Aktivitätsgleichgewicht befindlich übertragen werden.

### Typ M2 („Ablagerung“)

**Charakteristisch:** Es liegen deutliche Ungleichgewichte vor, wobei Nuklide eines chemischen Elementes dominieren. Die Nuklidvektoren werden bestimmt durch Radium (Ra-226, Ra-228), Pb-210 oder Uran.

Die Thoriumisotope fehlen, da Thorium im Wasser (bei „normalen“ Milieubedingungen) praktisch nicht gelöst im Wasser vorkommt. Die Tochternuklide der dominierenden Nuklide (Th-228 bei Ra-228, Pb-210 bei Ra-226 und Po-210 bei Pb-210) sind in frischen Bildungen ebenfalls stark abgereichert. Sie wachsen allerdings mit dem Alter der Ablagerung nach. Beim Radium ist das Bildungsverhältnis Ra-228/Ra-226 durch die unterschiedlichen Aktivitätsverhältnisse im Wasser bestimmt (die in der Regel nicht den U/Th-Verhältnissen der Gesteine entsprechen). Wegen des Fehlens von Th-232 zerfällt Ra-228, so dass das Aktivitätsverhältnis Ra-226/Ra-228 variabel und altersabhängig ist.

U-235 steht (immer!) im natürlichen Verhältnis zu U-238. Das Aktivitätsverhältnis U-235/U-238 kann mit 0,046 angesetzt werden.

**Tritt auf bei:** Inkrustationen, Schlämmen und Sedimenten, die von im Wasser gelösten Stoffen gebildet oder kontaminiert wurden. Typische Vertreter sind Scales der Erdöl-/Erdgasgewinnung, der Geothermie aber auch Wasserwerksschlämme, Ablagerungen in Anlagen sowie Gewässersedimente.

Ein besonderer Bildungsfall sind Pb-210 Kontaminationen aus dem Kontakt des betreffenden Materials mit radonreicher Luft bzw. Staubablagerungen aus radonhaltiger Luft (Ablagerung durch Absorption/Adsorption). Die letztgenannte Ablagerung tritt als natürlicher Prozess der atmosphärischen Pb-210 Deposition bereits mit messbaren Effekten an der (ungestörten) Bodenoberfläche auf.

**Messung:** Zur Messung des Nuklidvektors genügt in der Regel die Gammaspektrometrie, soweit nicht Po-210 als im Ungleichgewicht zu Pb-210 angenommen werden muss. Langlebige Nuklide, die nicht oder nur mit geringer Empfindlichkeit bestimmbar sind, können allerdings nicht aus anderen Nukliden als im Aktivitätsgleichgewicht befindlich übertragen werden. Die U-235 Reihe ist ebenfalls als im Ungleichgewicht anzunehmen, spielt aber für radiologische Betrachtungen kaum eine Rolle.

**Typ M3: („Extraktionsrückstand“)**

**Charakteristisch:** Starke Störungen der Gleichgewichte in den Zerfallsreihen. Selektive Abreicherung einzelner Elemente (Uran, Thorium oder Radium) durch Extraktion. Die Nuklide der maximalen Aktivitäten sind abhängig von der Art der chemischen Prozesse. Die ausgewerteten Daten zeigen, dass Th-230 (und Ac-227) für die Zuordnung der Materialien zu Prozessen eine wesentliche Rolle spielen kann.

Die U-235 Reihe ist nicht im Gleichgewicht. U-235 kann gegen die langlebigen Tochternuklide Pa-231 und Ac-227 deutlich abgereichert sein. U-235 steht im natürlichen Verhältnis zu U-238. Das Aktivitätsverhältnis U-235/U-238 kann mit 0,046 angesetzt werden.

Aufgrund sehr vielfältiger Prozessbedingungen ist die Variabilität von Nuklidvektoren bei der chemischen Aufarbeitung von Erzen besonders hoch. Insbesondere bei der Herstellung von radioaktiven Elementen (Uran, Thorium, Radium) fielen offensichtlich zum Teil sehr ungewöhnliche Nuklidzusammensetzungen an. Eine Einzelfallprüfung ist daher ggf. notwendig.

**Tritt auf bei:** Rückstände der chemischen Aufbereitung oder Weiterverarbeitung von Rohstoffen und Konzentraten (Schlämme, Sande, Stäube). Beispiel: Tailings der Uranerzaufbereitung.

**Messung:** Die Messung des Nuklidvektors sollte in jedem Fall das Nuklid Th-230, möglichst auch Ac-227 einschließen. Soweit genauere Daten der Aktivität der Th-Isotope erforderlich sind, sollte die Gammaskopimetrie ggf. um präzisere Messungen ergänzt werden. Die Annahme von Aktivitätsgleichgewichten verschiedener langlebiger Nuklide (z.B. Pb-210 – Ra-226) ist nur möglich, wenn dieses Gleichgewicht messtechnisch nachgewiesen oder anderweitig plausibel ist (z.B. bei großem Alter der Kontamination).

**Typ M4: („Schlacke“)**

**Charakteristisch:** Gleichgewichte in den Zerfallsreihen bis auf Pb-210, Po-210. Selektive Abreicherung von Pb-210, Po-210 durch thermische Verdampfung.

Nuklide der maximalen Aktivitäten: Die Zerfallsreihen befinden sich bis auf Pb-210, Po-210 in erster Näherung im Gleichgewicht. Je nach Vorgeschichte und Mineral dominieren die langlebigen Nuklide U-238, Th-230 oder Ra-226 in der U-238 Reihe sowie Th-232- oder Ra-228 in der Th-232 Reihe.

Die U-235 Reihe ist im Gleichgewicht. U-235 steht im natürlichen Verhältnis zu U-238. Das Aktivitätsverhältnis U-235/U-238 kann mit 0,046 angesetzt werden.

**Tritt auf bei:** Materialien der pyrometallurgischen oder anderen thermischen Weiterverarbeitung von Rohstoffen und Konzentraten. Dazu gehören Schlacken, aber auch gesinterte oder gebrannte Minerale. Der charakteristische Pb-210 Verlust tritt auch bei benutzten Feuerfestmaterialien auf, sofern die Temperaturen über ca. 1000 °C lagen. Wahrscheinlich sind auch Grobaschen diesem Typ zuzuordnen.

**Messung:** Zur Messung des Nuklidvektors genügt die Gammaskopimetrie. Langlebige Nuklide, die nicht oder nur mit geringer Empfindlichkeit bestimmbar sind, können aus anderen Nukliden (außer Pb-210) als im Aktivitätsgleichgewicht befindlich übertragen werden.

**Typ M5: („Thermostaub“)**

**Charakteristisch:** starke Anreicherungen von Pb-210, Po-210

Nuklide der maximalen Aktivitäten sind in der U-238-Reihe Pb-210 oder bei frischen Materialien auch Po-210. Th-232-Reihe und Vorgängernuklide vom Pb-210 in der U-238 Reihe treten nur im Bereich der Hintergrundwerte auf. Die U-235 Reihe spielt radiologisch keine Rolle.

**Tritt auf bei:** Filterstäuben von Hochtemperaturprozessen (Rückstände von Hüttenprozessen, Sinterstäube, thermische Phosphatverarbeitung, Filterstäube des Brennens von Zirkon und anderen mineralischen Stoffen).

Meist sehr feinkörnig. Häufig Starke Anreicherungen von leicht flüchtigen Spurenelementen (Blei, Arsen u.a.).

**Messung:** Zur Messung des Nuklidvektors genügt die Gammaspektrometrie. Langlebige Nuklide, die nicht oder nur mit geringer Empfindlichkeit bestimmbar sind, können aus anderen Nukliden als im Aktivitätsgleichgewicht befindlich übertragen werden. Die U-235 Reihe ist ebenfalls im Gleichgewicht. U-235 steht (immer!) im natürlichen Verhältnis zu U-238. Das Aktivitätsverhältnis U-235/U-238 kann mit 0,046 angesetzt werden.

**Typ M6: („Produkt“)**

**Charakteristisch:** starke Störungen der Gleichgewichte in den Zerfallsreihen. Selektive Anreicherung von Uran, Thorium oder Radium.

Nuklide der maximalen Aktivitäten

- bei Uranprodukten: U-238 Reihe: U-238 (=U-234); Th-232 Reihe im Bereich der Hintergrundwerte.
- bei Thoriumprodukten: U-238 Reihe: Th-230; Th-232-Reihe: Th-232
- bei Ra-Leuchtfarben: U-238 Reihe: Ra-226; Th-232-Reihe: Th-228 (!), sofern Ra-228 noch nicht völlig bis auf Hintergrundniveau zerfallen.

Beachten: Bei Uran-Kontaminationen jüngerer Datums (nach 1955) kann es sich um abgereichertes Uran handeln. U-235 muss nicht im natürlichen Verhältnis zu U-238 stehen.

**Tritt auf bei:** Abfällen, Gebäude- und Bodenkontaminationen aus der Lagerung oder Verwendung von uran- oder thoriumhaltigen Produkten (Katalysatoren, Schweißelektroden) sowie Leuchtfarben.

**Messung:** Zur Messung von Materialien mit Uran- und Radiumkontamination genügt in der Regel die Gammaspektrometrie. Bei Verdacht auf abgereichertes Uran sind ggf. alpha- oder massenspektrometrische Messungen zu empfehlen. Für die Beurteilung von Thoriumkontaminationen genügt die Gammaspektrometrie in der Regel nicht. Es muss erst klar sein, ob Th-232 in einem Gleichgewicht oder einem anderen festen Verhältnis mit Ra-228 steht. Es ist auch zu empfehlen, das Aktivitätsverhältnis Th-230/Th-232 an einige Proben genauer zu bestimmen, als es gammaspektrometrisch möglich ist. Sofern für das zu untersuchende

Objekt konstante Aktivitätsverhältnisse der Thoriumisotope vorliegen, können die weiteren Messungen durch Gammaskopimetrie erfolgen.

Mit den hier vorgestellten Nuklidvektoren können zum einen Plausibilitätsprüfungen von Analysendaten vorgenommen werden. Bei Kenntnis der Materialtyps sollten auffällige Abweichungen der Messbefunde von den hier beschriebenen Nuklidmustern grundsätzlich überprüft werden. Neben Analysefehlern sind dabei stets auch andere Bildungsprozesse und damit andere Typzuordnungen in die Prüfung einzubeziehen.

Die Expositionspotentiale der Materialtypen sind für die Pfade Staub und Ingestion in hohem Maße von der jeweiligen physikalischen Beschaffenheit abhängig. Für die Direktstrahlung und die Mobilität bezüglich Wasserpfad sind jedoch durch die Nuklidzusammensetzung und chemisch-mineralogische Zusammensetzung in der Regel Eigenschaften zuordenbar. Diese Eigenschaften sind in Tabelle 6-1 zusammengestellt. Aus dieser Klassifizierung kann abgeleitet werden, dass bei bestimmten Typen von Kontaminationen (z.B. Pb-210 haltige Ablagerungen) eine Erkundung mittels ODL nicht zielführend ist und dass bei Ba-Ra-Scales in der Regel der Wasserpfad kaum betroffen ist. Durch die Einstufung „variabel“ soll auf die hohe Variabilität dieser Eigenschaft in der jeweiligen Typengruppe hingewiesen werden, die eine besonders zielgerichtete Erkundung zur Ermittlung wesentlicher Eigenschaften erfordert.

Tabelle 6-1: Expositionseigenschaften von Materialtypen

Typ	Typbezeichnung	Direktstrahlung	Mobilität Wasserpfad	Mobilität Luftpfad
M1	Rohstoff	Hoch	Hoch	Abhängig von Form (Kornfraktion)
M2	Ablagerung	Ra: hoch Pb-210: gering	Ra: gering Pb-210: gering	Meist gering
M3	Extraktionsrückstand	Mittel – hoch	Unterschiedlich (abhängig von Nukliden)	Mittel - hoch
M4	Schlacke	Hoch	gering	Gering
M5	Thermostaub	vernachlässigbar	gering	hoch
M6	Produkt	Hoch für Th, Ra; U: mittel	Abhängig von Nuklidzusammensetzung	Abhängig von Form (Kornfraktion)

## 7 Verwertungs- und Beseitigungswege

### 7.1 Vorbemerkung

Durch die StrlSchV wurden die bis 2001 bestehenden Entsorgungswege für Rückstände vom Grundsatz her nicht zwingend verändert, sondern nur in einen neuen rechtlichen Rahmen gestellt. Einen Überblick über die Entsorgungswege von Rückständen und anderen radiologisch relevanten Materialien enthält /HGN 03a/. Für das Entstehen von radiologischen Altlasten sind allerdings vor allem **frühere Entsorgungswege** zu betrachten, die teilweise noch ohne besondere Anforderungen an die Entsorgung der Abfälle abliefen. Im Weiteren werden vor allem solche Entsorgungswege benannt, die altlastenrelevant sind oder die durch Weiterverwertung zu Radionuklidanreicherungen und radiologisch relevanten Kontaminationen an anderer Stelle führen können. Eine Recherche dieser Altlasten selbst war nicht Inhalt der Bearbeitung. Benannte Objekte mit Ablagerungen sind daher nur exemplarisch und erheben keinen Anspruch auf Vollständigkeit.

### 7.2 Entsorgungswege für Rückstände nach Anlage XII StrlSchV

#### 7.2.1 Erdöl-/Erdgas

Nach dem seit ca. 1972 bis Oktober 1996 geltenden Bundes-Abfallbeseitigungsgesetz (AbfG) galt für bergbauliche Abfälle eine Ausnahmeregelung. Danach fielen Abfälle aus dem Aufsuchen, Gewinnen, Aufbereiten und Weiterverarbeiten von Bodenschätzen in den der Bergaufsicht unterstehenden Betrieben nicht dem Abfallrecht sondern dem Bergrecht. Die Entsorgung von Schlämmen und Ablagerungen aus der Gewinnung von Erdöl- und Erdgas wurde daher im Rahmen von bergrechtlichen Betriebsplänen geregelt. Das seit Oktober 1996 geltende KrW-/AbfG grenzte diese Ausnahmeregelungen ein. Die hier zu betrachtenden Produktionsrückstände verblieben jedoch als sog. bergbauspezifische Abfälle unter Bergaufsicht. Ihre Entsorgung wird auch weiterhin über Betriebsplanverfahren geregelt. Bergrechtliche Grundlage ist der § 55 Abs. 1 Nr. 6 BBergG, nach dem Abfälle ordnungsgemäß zu beseitigen sind, sofern sie keiner Nutzung zugeführt werden können.

Die Entsorgungswege bis zur Einführung der novellierten StrlSchV im Jahr 2001 sind in einem Arbeitspapier des WEG zusammenfassend beschrieben /WEG 97/. Danach richtete sich die Entsorgung nach dem Quecksilbergehalt und der spezifischen Aktivität. In dem Papier wird darauf hingewiesen, dass nach § 3 Abs. 3 der StrlSchV (1989) die bergbauliche Tätigkeiten von der Genehmigungspflicht der StrlSchV befreit waren, die Bergbehörden sich jedoch an den Regelungen dieser Verordnung orientierten. Diese Praxis war zumindest in den Jahren nach 1990 etabliert, wobei vor 1980 die Problematik der Radioaktivität in der Erdöl-/Erdgasindustrie praktisch nicht bekannt war. In den Jahren vor 1980 ist daher von einer Entsorgungspraxis auszugehen, die sich ausschließlich am damaligen Abfallrecht bzw. den entsprechenden bergrechtlichen Praktiken orientierte. Das gilt auch für die neuen Bundesländer, in denen ab 1984 durch VOAS und DBVO-AS Regelungen zur natürlichen Radioaktivität ab spezifischen Aktivitäten von 0,2 Bq/g vorhanden waren.

Nach der StrlSchV von 1989 galten Produktionsrückstände mit spezifischen Aktivitäten von weniger als  $0,5 \text{ Bq/g}$ <sup>18</sup> als nicht radioaktiv. Ihre Entsorgung richtete sich daher nach den Gehalten an sonstigen Schadstoffen. Für den Fall, dass weder Hg noch Kohlenwasserstoffe (KW) oder andere Schadstoffe enthalten waren, wird eine Entsorgung auf Bauschuttdeponien, evtl. nach vorheriger Verfestigung, als Entsorgungsweg benannt. Bei Anwesenheit von Kohlenwasserstoffen aber Abwesenheit von Hg werden thermische Verwertungen in Zement- oder Asphaltwerken oder eine Verbrennung in Müllverbrennungsanlagen aufgeführt. Nicht radioaktive Produktionsrückstände mit Hg-Kontamination sollten in Untertage-Deponien verbracht oder bei der Verfüllung in Bohrlöcher eingebracht werden.

Produktionsrückstände mit spezifischen Aktivitäten über  $0,5 \text{ Bq/g}$  unterlagen generell der Ablieferungspflicht an Landessammelstellen. Die Bergbehörden machten jedoch gem. § 3 i.V. mit § 83 StrlSchV (1989) von einer Freistellungsmöglichkeit Gebrauch /WEG 97/. Danach konnten radioaktive Produktionsrückstände mit spezifischen Aktivitäten bis  $500 \text{ Bq/g}$  als Verfüllmaterial bei der Bohrlochverfüllung verwendet werden. Erst ab spezifischen Aktivitäten über  $500 \text{ Bq/g}$  wurden sie in der Regel über die Fa. Amersham-Buchler (historischer Firmenname, inzwischen umfirmiert) an Landessammelstellen abgegeben.

Unabhängig von diesen generell zutreffenden Beschreibungen des WEG wurden in den einzelnen Betrieben spezifische Entsorgungswege genutzt. Dazu gehören auch Betriebsdeponien auf die größere Mengen an Schlämmen, die an Sammelstationen anfielen, verbracht wurden. Eine bekannte derartige Deponie ist z.B. die Deponie Brüchau (Sachsen-Anhalt).

Weitere wichtige aktuelle Entsorgungswege sind die Verarbeitung von Scales und Schlämmen zur Quecksilberzyklisierung (GMR Leipzig) und die Recyklierung von kontaminiertem Schrott bei der Fa. Siempelkamp (Krefeld).

Betrachtet man die hier beschriebenen Entsorgungswege in Hinblick auf mögliche Hinterlassenschaften, dann sind vor allem Verbringungen von Produktionsrückständen in bergrechtlich zugelassene Objekte, Gruben oder lokale Entsorgungsplätze aus Zeiten vor 1972 (Bundesregelungen zum Abfallrecht) als mögliche Ursachen von radiologischen Altlasten zu charakterisieren. Da allerdings auch solche Entsorgungen bergrechtlich zugelassen waren und bekannte Altlasten dieser Herkunft bereits aufgrund von konventionellen Belastungen nach BBodSchG untersucht, bewertet und ggf. saniert wurden, ist die Zahl evtl. noch verbliebener Altlasten als eher gering einzuschätzen.

## 7.2.2 Phosphatindustrie

Für die bei der Verarbeitung der Rohphosphate in Deutschland angefallenen Rückstände ergaben die im Anhang B dargestellten Recherchen die in Tabelle 7-1 zusammengestellten Entsorgungswege.

---

<sup>18</sup> Die spezifischen Aktivitäten wurden als Summenaktivität der langlebigen Nuklide Ra-226, Pb-210-Po-210, Ra-228, Th-228 ermittelt.

Tabelle 7-1: Entsorgungswege für Rückstände der Rohphosphatverarbeitung in Deutschland

Werk, Standort	Mengenangaben	Entsorgungswege
Chemische Fabrik Budenheim	2 Mio. t Gips	Entsorgungswege nicht bekannt
Leimfabrik H. & E. Albert in Biebrich (Wiesbaden)	> 100.000 bis ca. 1 Mio. t Gips möglich	Entsorgungswege nicht bekannt
Chemische Fabrik Wülfel (Hannover)	nur geringe Abfallmengen	Entsorgungswege nicht bekannt
Chemische Werke Schönebeck		Entsorgungswege nicht bekannt
Industriestandort Bitterfeld Wolfen		Ablagerungen auf Altstandorten und Deponien gemeinsam mit anderen Abfällen, Phosphorschlacken auf Altstandort festgestellt und beseitigt
Wittenberg-Piesteritz	mehrere Mio. t Gips	Kleiner Teil auf Deponie Griebo. Verbleib der restlichen Mengen nicht geklärt.
Guano-Werke Nordenham	300.000 t Gips	Entsorgt auf Betriebsdeponie. Inzwischen saniert.
Hoechst Werk Hürth	6 Mio. t Schlacke; 6,5 Mio. t Gips	Deponie Knapsack
Gipswerke Lüneburg	Keine Mengenangaben	Phosphat-Gips auf hauseigene Deponie („Rohstoff-Aufhaltung“) entsorgt. Die Aufhaltung diente als Zwischenlager. Das aufgehaltene Material wurde recycelt und in die Putzgips-Produktion mit eingebunden, so dass keine Altlasten vorhanden sind.

Über den Verbleib eines Großteils der Rückstände konnten keine eindeutigen Aussagen ermittelt werden. Es ist davon auszugehen, dass vor allen die Phosphogipse weitgehend verwertet wurden.

### 7.2.3 Rückstände der Gewinnung und Aufbereitung von Erzen und Mineralien

Nach Kapitel 3.4.1 fielen in Deutschland Rückstände nach Anlage XII Teil A Nr. 3a StriSchV bei der Gewinnung und Aufbereitung von Bauxit, Kupferschiefer-, Zinn- und Uranerzen an. Bezüglich der rechtlichen Rahmenbedingungen galten hierfür in den alten Bundesländern die im Kapitel 7.2.1 beschriebenen Bedingungen. In den neuen Bundesländern wurde ab 1984 die Entsorgung von Materialien im Uranbergbau und Kupferschieferbergbau durch die VOAS/DBVOAS geregelt.

Nebengesteine der Gewinnung der vorgenannten Erze, die sich nicht unmittelbar als Wertstoffe nutzen ließen, wurden generell standortnah auf Halden abgelegt. Soweit die Nebengesteine erhöhte natürliche Radioaktivität aufwiesen, konnten dadurch radiologisch relevante Ablagerungen entstehen. Beispiele für bekannte derartige Ablagerungen enthält Kapitel 3.4.2.

Die bei der Aufbereitung der von Zinnerzen anfallenden erzarmen Sande (früher „Pochsande“) später Flotationsschlämme wurden häufig ebenfalls auf Halden aufgeschüttet.

Der bei der Herstellung von Bauxit durch das Bayer-Verfahren anfallende Rotschlamm wurde (und wird) auf Monodeponien beseitigt. Die Deponien wurden als Spülhalden betrieben. Sie wurden als dammgesicherte Hochhalden oder in aufgelassene Tagebaue angelegt. Eine Verwertung und Weiternutzung des Rotschlammes wurde vereinzelt versucht, aber offensichtlich nie in großem Umfang betrieben. Nach /BSP 99/ wurde Rotschlamm im Unterbau von Straßen, als Zuschlagsstoff bei der Ziegel- und Mineralwolle-/Faserherstellung sowie als Zuschlagsstoff für Kunststoffe verwendet.

Generell ist bei bergbaulichen Objekten eine Verwendung von Nebengesteinen oder Aufbereitungsrückständen für bergbauliche Zwecke wie Verfüllungen zur geotechnischen Stabilisierung nicht auszuschließen. Soweit Nebengesteine als Baustoffe genutzt wurden, sind standortübergreifende Ablagerungen möglich. Die bekanntesten derartigen Fälle betreffen die Verwendung von Haldenmaterialien des Uranerzbergbaus in Ostdeutschland als Unterbau von Verkehrswegen.

#### 7.2.4 Weiterverarbeitung von Konzentraten oder Rückständen

Gips-/Flussspatgemische und gelaugte Erze aus der Weiterverarbeitung von **Tantal**erzen (Columbit, Pyrochlor, Mikrolyth und Euxenit) sowie von Zinnschlacke zur Gewinnung von Tantal werden derzeit nach Angaben des Betreibers auf einer Deponie entsorgt. Über frühere Entsorgungswege gibt es keine zuverlässigen Angaben.

**Kupferschieferschlacken** wurden und werden im Straßen-, Landschafts- und Wasserbau verwendet. Dabei können auch Formstücke (Kupferschlackensteine) eingesetzt werden, wobei nur die früher im Mansfelder Raum hergestellten Schlackesteine erhöhte natürliche Radioaktivität aufweisen.

Bei der Verarbeitung der Mansfelder Kupferschiefererze ist die Schlacke über viele Jahre hinweg vor allem in Form von Schlackesteinen im Norden und Osten Deutschlands vertrieben worden. Die Weiterverarbeitung der Schlacke vor allem als Baustoff im Straßen-, Wege- und Landschaftsbau ist ein wichtiger Verwertungsweg für Rückstände. Einige Firmen in Sachsen-Anhalt verarbeiten aufgehaldete Schlacke zur Verwertung im Straßen- und Wegebau. Als Formstücke sind Kupferschieferschlackesteine zu berücksichtigen, die hauptsächlich als Straßenpflaster verwendet werden.

Über die Verwendung von Kupferschieferschlacken aus den hessischen Abbaugebieten konnten keine konkreten Informationen ermittelt werden.

Weiterhin wird nach /BSP 99/ Kupferschlacke in granulierter Form als Strahlmittel eingesetzt. Hierbei handelt es sich aber vermutlich nicht um Kupferschieferschlacke.

Theisenschlämme aus der Weiterverarbeitung von **Kupferschiefererzen** im Mansfelder Gebiet wurden zunächst metallurgisch weiterverarbeitet (zur Herstellung von Blei). Diese Verarbeitung wurde Ende der 1970er Jahre eingestellt. Danach wurden diese Schlämme in Spülteiche (z.B. auf der Schlackehalde Helbra) entsorgt. Die daraus resultierenden Ablagerungen wurden inzwischen zu großen Teilen saniert. Von bisher noch nicht erfassten Ablagerungen ist allerdings auszugehen.

Über die Entsorgungswege von Schlacken und Stäube aus der **Verhüttung von Zinnerzen** konnten im Rahmen dieser Studie keine speziellen Angaben gesammelt werden. Eine Recherche sollte auf der Basis der im Kapitel 3.5.2 benannten Standorte durchgeführt werden.

Über die Entsorgung von **Pyrochlorschlacken** aus der Verhüttung von Ferroniob sind in /HGN 03/ zwei konkrete Fälle beschrieben. In einem Fall aus den 1980er Jahren wurden Schlacken auf eine Sonderabfalldeponie entsorgt. Der andere Fall wurde erst nach 2001 bekannt. Es ist davon auszugehen, dass die Entsorgung dieser Schlacken auf der Basis der novellierten StrlSchV erfolgte. Inwieweit größere Mengen an derartigen Schlacken im Rahmen der Rüstungsproduktion vor 1945 anfielen und wie solche Schlacken entsorgt wurden, wäre ggf. noch zu klären.

Die in großen Mengen anfallenden Aufbereitungsschlämme (chemisch gelaugte Schlämme sowie Prozesslösungen unterschiedlicher chemisch-radiologischer Zusammensetzung) aus der Weiterverarbeitung von **Uranerz** wurden Absetzanlagen beseitigt („Tailings“). Diese Anlagen sind bekannt und radiologisch bewertet.

Die bei der Verarbeitung von Uranerzen vor 1945 angefallenen Abfälle der früheren Leuchtfarbenfabrik Buchler in Braunschweig wurden offensichtlich zumindest teilweise auf dem Betriebsgrundstück verkippt. Das Grundstück wurde nach einer Erstsanierung in den 1970er Jahren inzwischen nochmals vollständig tiefenentrümmert und von radioaktiven Kontaminationen gereinigt. (Kenntnisse zum Fall liegen bei HGN und IAF aus einer aktiven Beteiligung an den Arbeiten vor.)

Auch am Standort Oranienburg (Verarbeitung von Uranerzen und Erzen Seltener Erden) ist von einer Beseitigung der Aufbereitungsrückstände im unmittelbaren Betriebsgelände oder auf standortnahen Deponien / Abfallbeseitigungsplätzen auszugehen. Durch die schweren Bombardements am Ende des 2. Weltkriegs und die anschließende Verfüllung von Bombenrichtern sind diese Rückstände auf den ehemaligen Betriebsflächen verteilt und vermischt worden. Daher sind gerade im Stadtgebiet Oranienburg erhebliche radiologische Altlasten vorhanden. Eine genauere Beschreibung der Situation im Stadtgebiet Oranienburg enthält Teil II dieser Arbeit.

Die Abfälle der Verarbeitung von Erzen der Seltenen Erden in Wittenberg-Piesteritz wurden auf die Deponie Griebo verbracht (s. auch Anhang B).

Ingesamt muss davon ausgegangen werden, dass vor allem im Umfeld von Standorten, an denen vor 1945 Uranerze, Seltene Erden Erze, Tantal- und Nioberze hydro- oder pyrometallurgisch verarbeitet wurden, radiologische Altlasten entstanden sein können.

### 7.2.5 Rückstände aus der Rauchgasreinigung der Primärverhüttung

Für die in großen Mengen anfallenden Stäube oder Schlämme der Rauchgasreinigung bestand seit Einführung von Reinigungstechniken ein Bedarf an Entsorgungen. Die Rückstände der Rauchgasreinigung der Roheisenverhüttung werden derzeit auf in den meisten Fällen standortnah auf Betriebsdeponien (Mineralstoffdeponien) entsorgt. Andere derzeit genutzte Entsorgungswege sind:

- Untertägige Verwertung von Sinterstaub (für den speziellen Entsorgungsweg kein überwachungsbedürftiger Rückstand),
- Abgabe zur Verwertung in der Metallurgie und zur Zementproduktion (nicht überwachungsbedürftige Rückstände).

Insbesondere durch die Weiterverarbeitung von Filterstäuben in anderen Unternehmen der Eisen- und NE-Metallurgie entstehen komplexe Entsorgungswege, deren radiologische Konsequenzen derzeit nicht immer überschaubar sind.

Auch zu früheren Zeiten ist von entsprechenden Kettenprozessen bei der Verarbeitung von Rückständen der Primärverhüttung auszugehen. Als Beispiel ist die Verarbeitung von Theisenschlämmen zu nennen.

Durch den hohen Energieinhalt des Gichtgases wurde eine energetische Nutzung dieser Gase bereits seit Beginn des 20. Jahrhunderts angestrebt und realisiert. Dazu musste allerdings der Staubgehalt des Gichtgases reduziert werden. Größere Staubpartikel wurden in trockenen, feinere in nassen Reinigungsschritten entfernt. Das bei der Nassreinigung anfallende Waschwasser wurde in Klärbecken eingeleitet, in denen sich Hochofengasschlamm absetzte. Diese Entsorgung fand teilweise über größere Entfernungen in zumeist nicht abgedichtete Absetzbecken statt und hinterließ teilweise Ablagerungen mit erheblichen Mengen an Hochofenschlämmen /MAN 04/. Für die 1980er Jahre gibt Mertins /MER 86/ eine Menge von 130.000 Jahrestonnen auf dem Gebiet der alten Bundesländer an. Nach Mansfeld und Küper /MAN 04/ ergab eine Umfrage, dass in Deutschland mindestens 15 Hochofenschlammablagerungen existieren.

Die von diesen Ablagerungen ausgehenden Gefährdungen vor allem für das Grundwasser werden durch die Mobilisierung von Schwermetallen bestimmt. Durch teilweise stark basische pH-Werte bis zu 10,6 in Porenwasser /MAN 04/ wird diese Mobilität gefördert. Eine Bewertung der Radiologie solcher Ablagerungen wurde bisher nicht systematisch ausgeführt. Untersuchungen an Theisenschlammablagerungen /IAF 03c/ erbrachten keine erhöhten Konzentrationen von Pb-210 im Sickerwasser.

Beim derzeitigen Kenntnisstand kann allerdings nicht ausgeschlossen werden, dass (einzelne) Ablagerungen mit Stäuben oder Schlämmen von Verhüttungsprozessen radiologisch relevant sind.

### **7.3 Entsorgungswege für sonstige Materialien**

#### **7.3.1 Wasserwerksschlämme**

Einen Überblick über die Entsorgung von Wasserwerksschlämmen aus Anlagen der kommunalen Wasserversorgung enthalten die Arbeiten von Wichmann /WIC 04/. Eine aus diesen Arbeiten entnommene Übersicht über die allgemeinen Verwertungs- und Beseitigungswege von Wasserwerksrückständen enthält Tabelle 7-2. Danach wurde bereits Ende der 1990er Jahre ein Großteil dieser Materialien verwertet. Durch die Veränderungen im Abfallrecht ist vor allem die direkte Beseitigung auf Deponien nicht mehr ohne Weiteres möglich und der Anteil an Verwertung wird noch steigen.

Tabelle 7-2: Verwertung und Beseitigung von Wasserwerksrückständen in Deutschland (1998)

Verwertungs-/Beseitigungsweg	Menge in t Trockenmasse pro Jahr	Anteil in %
Beseitigung auf Deponien	Ca. 63.000	Ca. 35
Beseitigung mit Abwasser	Ca. 21.600	Ca. 12
Verwertung in industriellen Prozessen (z.B. Zement- oder Ziegelproduktion)	Ca. 45.000	Ca. 25
Verwertung in der Land- und Forstwirtschaft oder Umwelttechnik	Ca. 41.400	16
Verwertung mit Abwasser	Ca. 9.000	Ca. 5
<b>Gesamt</b>	<b>Ca. 180.000</b>	<b>100</b>

Die Verwertungsmöglichkeiten von Wasserwerksrückständen sind vielfältig. Für die Verwertung von Wasserwerksschlämmen in der Land- oder Forstwirtschaft sind hauptsächlich kalkhaltige Materialien geeignet. Sowohl kalk- als auch eisenhaltige Materialien eignen sich als Zuschlagstoffe in der Zement- und Ziegelproduktion. In /WIC 04/ wird empfohlen, dafür auch aluminiumhaltige Schlämme zu prüfen. Hochreiner Kalkschlamm wird als Füller für die Papierherstellung eingesetzt. Als Anwendung in der Umwelttechnik benennt Wichmann den Zusatz solcher Schlämme bei der Kompostierung von Bioabfall. Eisenschlämme können bei der Reinigung von H<sub>2</sub>S-haltigen Gasen und Kalkschlämme für die Reinigung von SO<sub>2</sub>-haltigen Gasen verwendet werden. Die Verwertung mit dem Abwasser umfasst eine gezielte Dosierung von Fe-Schlamm-haltigem Filterspülwasser in Abwassersammler zur Bindung von Schwefelwasserstoff und zur Phosphat-Eliminierung.

Insgesamt durchläuft ein Großteil dieser Materialien Verwertungswege, bei der es zu weiteren Umverteilungen von Radionukliden kommen kann. Es ist bisher nicht geklärt, welche der Prozesse zu weiteren Anreicherungen von Radionukliden führen und unter welchen Bedingungen radiologisch bedeutsame Anreicherungen möglich sind.

Hinzuweisen ist auch darauf, dass in den Bilanzen der Tabelle 7-2 Schlämme und Aufbereitungsrückstände anderer Herkunft nicht enthalten sind. Die Entsorgung von Aufbereitungsrückständen aus der Mineralwasserproduktion, aus Heilbädern oder auch aus Anlagen der (Grund-)Wasser-Sanierung erfolgt bei entsprechenden Schadstoffgehalten zumeist auf Deponien, teilweise nach einer thermischen Verwertung. Soweit eine erhöhte Radioaktivität dieser Materialien bekannt ist, wird dieser Sachverhalt bei der Entsorgung berücksichtigt, wobei die Länder derzeit sehr unterschiedliche Überwachungskonzepte realisieren.

Die Entsorgungswege von Wasseraufbereitungsschlämmen seit Beginn der industriellen Wasserversorgung in deutschen Großstädten (z.B. Berlin ab 1852) sind weitgehend unbekannt. Es kann allerdings davon ausgegangen werden, dass die Schlämme zunächst wie in früheren Zeiten üblich in der Nähe der Wasserwerke in Gruben oder Geländevertiefungen abgelagert, später ggf. auf Flächen im Außenbereich der Kommunen und nur vereinzelt auf geordneten Deponien entsorgt wurden. Diese Entsorgungspraxis kann dann zu radiologischen Hinterlassenschaften geführt haben, wenn die Aufbereitungsrückstände besonders starke Anreicherungen aufwiesen. Nach den Ergebnissen des Kapitels 5 kommen dafür nur Regionen in Frage, in denen bereits hohe Radiumkonzentrationen im Grundwasser typisch sind.

### 7.3.2 Feuerfestmaterial, Strahlsande

Größere Mengen an Feuerfestmaterial fallen beim Abbruch von Industrieöfen an. Beim Abbruch solcher Öfen erfolgt in der Regel keine Trennung nach Art des Feuerfestmaterials. Damit ist eine technologisch bedingte Vermischung zirkonhaltiger Bauteile mit anderem Feuerfestmaterial verbunden. Der Ofenausbruch wird in der Regel auf eine Deponie verbracht, z.T. aber auch wiederverwendet (z.B. gemahlen als Zuschlagsstoff zu Zement). Zu früheren Zeiten ist von einer Dominanz der direkten Beseitigung durch Ablagerung auszugehen.

Gemäß /BSP 00/ wird der Sand der Gussformen nach Möglichkeit wiederverwendet. Dabei wird häufig der relativ geringe Zirkonsand-Anteil wegen des hohen Aufwandes nicht vom Quarzsand getrennt, sondern mit diesem vermischt und als allgemeiner Formsand (Quarzsand) weiter verwendet. Durch die Vermischung kommt es zu einer starken Verdünnung des Zirkonsandes. Andererseits kann es durch den Kreislaufprozess der Wiederverwendung zu einer gewissen Aufkonzentration von Zirkonsand im Formsand kommen. Nach /BSP 00/ liegt der Zirkonsand-Anteil des Altsandaufkommens von Gießereien jedoch unter 10 %.

Gebrauchte Strahlsande mit hochwertigen Mineralen wie Zirkon werden derzeit (zumindest teilweise) aufgearbeitet und wiederverwendet. Die nicht nutzbaren Feinfraktionen werden deponiert, wobei die Entsorgungswege von den konventionellen Schadstoffgehalten, die vor allem von den bestrahlten Gegenständen herrühren, bestimmt werden.

Strahlsande von geringerem (finanziellen) Wert werden zumeist direkt entsorgt. Auch hier werden die Entsorgungswege von den konventionellen Schadstoffgehalten bestimmt.

Durch die (un)geordnete Ablagerung von Feuerfestmaterial, Strahlsanden oder anderweitig genutzten mineralischen Stoffen erhöhter natürlicher Radioaktivität können bauschutthaltige Altdeponien ebenfalls leicht erhöhte Radioaktivität besitzen.

Für frühere Zeiten ist eine Ablagerung von gebrauchten Gießereisanden, anderen Feuerfestmaterialien oder auch Strahlmitteln auf den jeweiligen Betriebsflächen realistisch. Inwieweit die bereits in /WIE 98/ diskutierten radioaktiven Anomalien an der unteren Elbe auf betriebliche Ableitungen aus Gießereien, z.B. durch Abschwemmungen von Lagerplätzen, zurückzuführen sind, wäre ggf. zu prüfen.

### 7.3.3 Verbrennungsrückstände, Aschen

Angaben zu den Mengen der in deutschen Kohlekraftwerken anfallenden Materialien und den Anteil der Verwertung dieser Stoffe enthält Tabelle 4-7. Danach wurden im Jahr 2004 die 9,7 Mio. t Nebenprodukte aus der Steinkohlenverfeuerung zu 99 % verwertet, während von den 16,5 Mio. t an Nebenprodukten der Braunkohlenverfeuerung 62 % in Tagebaue eingebracht und nur 38 % anderweitig verwertet wurden.

Zu früheren Zeiten wurden derartige Aschen allerdings vielfach in Absetzanlagen gespült oder trocken deponiert. Altablagerungen, die direkt als „Aschedeponie“ bezeichnet werden, befinden sich in allen Bundesländern. Daneben enthalten Mineralstoffdeponien und Industriedeponien häufig größere Anteile an Verbren-

nungsaschen. Insgesamt muss mit mehreren 100 Ablagerungen gerechnet werden, die erhebliche Mengen (mehrere 10.000 Tonnen und mehr) an Aschen enthalten. Deren radiologische Relevanz wurde bisher nur stichprobenhaft oder bei besonderem Verdacht geprüft. Die Aschehalde des König-Friedrich Kunstschachtes im Gebiet Hettstedt, die Verbrennungsaschen aus Freital enthält, weist mit 13-21 Bq/g Ra-226 die höchsten Radionuklidaktivitäten auf /WIC 01/. Viele alte Aschedeponien sind inzwischen gesichert oder saniert.

Da die in Deutschland geförderten Kohlen mit wenigen Ausnahmen (Freital/Sachsen, Stockheim / Oberfranken) kaum, einige Importkohlen allerdings durchaus erhöhte natürliche Radioaktivität aufweisen, sind radiologisch relevante Altablagerungen auch in Küstennähe (s. Kapitel 4.3: Emden, Wilhelmshaven) oder an Binnenwasserstraßen nicht auszuschließen.

Durch die chemische Beschaffenheit der Asche kann es zu einer hohen Mineralisation des Sicker- oder Kontaktwassers und einer Verschiebung der pH-Werte vor allem in den basischen Bereich hinein kommen /FRE 03/. Inwieweit eine solche Milieuveränderung zur Mobilisierung von Radionukliden führt, ist bisher nicht geklärt.

#### **7.3.4 Verwendung von Produkten mit Radioaktivität**

Bei der Verwendung von Produkten mit Zusatz von Uran (z.B. Herstellung von Uranglas) oder von Thorium (z.B. Herstellung von Gasglühstrümpfen; Gießen thoriumhaltiger Legierungen, Verwendung von Th-Katalysatoren) aber auch bei der Verwendung von Leuchtfarben (Uhrenherstellung, Geräteherstellung) anfallende Abfälle wurden früher als gewöhnliche Abfälle nach den jeweils standorttypischen Entsorgungsmöglichkeiten beseitigt. Dazu wurden Gruben oder Geländevertiefungen auf den jeweiligen Betriebsgeländen, später auch Entsorgungsplätze im Außenbereich der Siedlungen genutzt. Aus dieser Beseitigung resultieren einige der bekannten radiologischen Altlasten in Deutschland (s. Tabelle 3-49). Weitere Fälle sind aber nicht auszuschließen.

#### **7.4 Unbeabsichtigte Ablagerungen**

Auch ohne eine Entsorgungsabsicht wurden (und werden teilweise noch immer) radioaktive Materialien in der Umwelt abgelagert, die zu radiologisch relevanten Hinterlassenschaften führen können. Dazu sind vor allem die Einleitungen von radiumhaltigen oder Pb-210-haltigen Wässern in Vorfluter zu zählen, die erhöhte spezifische Aktivitäten in Sedimenten zur Folge haben, die aber auch radiologisch relevante Ablagerungen im Uferbereich verursachen können.

Durch die Anreicherung von Uran in den Phosphatdüngern sind sekundäre Anreicherungen in landwirtschaftlich genutzten Böden möglich. Diese Anreicherungen erreichen nach bisheriger Kenntnis kein radiologisch relevantes Niveau. Zumindest lokal können Lagerflächen durch Auswaschung von Uran kontaminiert sein.

Ein anders Beispiel für derartige unbeabsichtigte Ablagerungen sind Bodenkontaminationen mit abgereicherem Uran, die auf militärisch genutzten Schießplätzen auftreten können.

## 8 Zusammenfassung

Der vorliegende Bericht stellt die Ergebnisse einer Studie vor, mit der Kenntnislücken im Bereich der radioaktiven Bodenkontaminationen aus früheren bergbaulichen und industriellen Tätigkeiten oder Arbeiten geschlossen werden sollten. Dazu wurde im Kapitel 3 das derzeitige, vor allem aber auch des frühere Aufkommen an Materialien, die nach der Klassifikation der StrlSchV als Rückstände eingeordnet werden müssen, untersucht. Im Kapitel 4 wird eine analoge Untersuchung für Materialien, die nicht in der Anlage XII Teil A der StrlSchV explizit benannt sind, beschrieben. Diese Arbeiten wurden sowohl durch Auswertung von Literatur als auch gezielte Recherchen ausgeführt. Zur Erweiterung des Kenntnisstandes wurden die bei den Bearbeitern vorhandenen Messbefunde einbezogen und für eine Reihe von Fällen gezielt neue Messungen ausgeführt. In Verbindung mit einer Analyse der aktuellen und früheren Entsorgungswege werden in Hinblick auf radiologische Relevanz eingeschätzt:

- Bei der Gewinnung von Erdöl-/Erdgas kann die frühere Verbringung von Produktionsrückständen in bergrechtlich zugelassene Objekte, Gruben oder lokale Entsorgungsplätze zu Ablagerungen geführt haben, die auch radioaktives Material enthalten. Die Standorte sind bisher nicht systematisch erfasst und bewertet.
- Die inzwischen eingestellte Verarbeitung von Rohphosphat hinterließ an einigen Standorten große Ablagerungen, die radiologisch noch nicht umfassend bewertet sind. Sofern die Ablagerungen nicht umgelagert werden müssen oder aus anderen Gründen Arbeiten direkt mit den Materialien stattfinden, ist die Wirkung auf den Wasserpfad der zu beachtende Ausbreitungspfad. Anhaltspunkte für eine besondere Gefährdung des Grundwassers durch Radionuklide liegen bisher nicht vor.
- Im Umfeld von Standorten, an denen vor 1945 Uranerze, Seltene Erden Erze, Tantal- und Nioberze hydro- oder pyrometallurgisch verarbeitet wurden, können radiologische Altlasten entstanden sein. Als bedeutendster Standort dieser Art außerhalb der Uranbergbaugebiete ist Oranienburg anzusehen.
- Durch die Beseitigung von Stäuben und Schlämmen aus der Verhüttung von Erzen auf zumeist ungedichtete Anlagen sind Altablagerungen mit beträchtlichen Gesamtmassen entstanden, für die beim derzeitigen Kenntnisstand nicht ausgeschlossen werden, dass (einzelne) Ablagerungen mit Stäuben oder Schlämmen von Verhüttungsprozessen radiologisch relevant sind. Vor allem bei einer Sanierung solcher Standorte müssen Expositionen der beteiligten Personen in Betracht gezogen werden.
- Die Entsorgungswege von Wasseraufbereitungsschlämmen seit Beginn der industriellen Wasserversorgung in deutschen Großstädten sind zwar im Einzelnen unbekannt, radiologisch relevante Hinterlassenschaften sind aber kaum zu erwarten.
- Für frühere Zeiten ist eine Ablagerung von gebrauchten Gießereisanden, anderen Feuerfestmaterialien oder auch Strahlmitteln auf Betriebsflächen und betrieblichen Deponien realistisch. Expositionen aus solchen Ablagerungen sind allerdings nur zu erwarten, wenn es zu unkontrollierten Ausbreitungen (z.B. durch Abschwemmungen) oder zu Sanierungsarbeiten auf derartigen Standorten kommt.
- Da die in Deutschland geförderten Kohlen mit wenigen Ausnahmen (Freital/Sachsen, Stockheim / Oberfranken) kaum, einige Importkohlen allerdings durchaus erhöhte natürliche Radioaktivität aufweisen, sind radiologisch relevante Altablagerungen von Verbrennungaschen nicht auszuschließen. Für den Sickerwasserpfad sind Milieuveränderungen vor allem in den basischen Bereich hinein zu beachten, deren Wirkung auf die Mobilisierung von Radionukliden ist bisher nicht geklärt ist.
- Bei der Verwendung von Produkten mit Zusatz von Uran (z.B. Herstellung von Uranglas) oder von Thorium (z.B. Herstellung von Gasglühstrümpfen, Gießen thoriumhaltiger Legierungen, Verwendung von Th-Katalysatoren) aber auch bei der Verwendung von Leuchtfarben (Uhrenherstellung, Geräteherstellung) anfallende Abfälle wurden früher als gewöhnliche Abfälle nach den jeweils standorttypischen Entsorgungsmöglichkeiten beseitigt. Dazu wurden Gruben oder Geländevertiefungen auf den jeweiligen Betriebsgeländen, später auch Entsorgungsplätze im Außenbereich der Siedlungen genutzt. Aus dieser Beseitigung resultieren einige der bekannten radiologischen Altlasten in Deutschland (s. Tabelle 3-49). Weitere Fälle sind nicht auszuschließen.

- Auch ohne eine Entsorgungsabsicht wurden (und werden teilweise noch immer) radioaktive Materialien in der Umwelt abgelagert, die zu radiologisch relevanten Hinterlassenschaften führen können. Dazu sind vor allem die Einleitungen von radiumhaltigen oder Pb-210-haltigen Wässern in Vorfluter zu zählen, die erhöhte spezifische Aktivitäten in Sedimenten zur Folge haben, die aber auch radiologisch relevante Ablagerungen im Uferbereich verursachen können. Als radiologisch nicht vernachlässigbar sind die durch Einleitungen des Steinkohlenbergbaus in NRW verursachten Bodenkontaminationen an Gewässern einzuschätzen.

Um losgelöst von Einzelbefunden und konkreten Erfahrungen die technologischen und verfahrenstechnischen Prozesse, die Nuklidanreicherungen verursachen, charakterisieren zu können, wurde ein phänomenologisches Bilanzmodell aufgestellt, das die Radionuklidumverteilung durch die vier Parameter Massentrennfaktor (MTF), Aktivitätstrennfaktor (ATF), Zuschlagsfaktor (ZF) und Anreicherungsfaktor (EF) beschreibt. Das Modell zeigt:

- Hohe Radionuklidanreicherungen treten nur bei hohen ATF und kleinen MTF auf, d.h. wenn bei einer Massentrennung die Gesamtaktivität des Inputs zu möglichst großen Teilen auf eine kleine Teilmasse übergeht.
- In Prozessen mit hoher Nuklidanreicherung führen bereits geringe Veränderungen der Massentrennungen zu deutlichen Veränderungen der spezifischen Aktivität in den Rückständen, ein Sachverhalt der eine Prognose der spezifischen Aktivität bei solchen Prozessen erschwert.
- Besonders wirksame Anreicherungsprozesse sind chemische Fällungen und Sorption von Radium aus wässrigen Lösungen. Diese Prozesse treten nicht nur als Folge der Mitförderung von Lagerstättenwasser bei Gewinnung von Erdöl oder Erdgas auf, sondern z.B. auch in der Geothermie und in Wasserwerken. Sie können in technischen Anlagen, wie z.B. in der Titandioxidproduktion zu erheblichen Nuklidanreicherungen führen. Bei der Anreicherung aus dem Ausgangsmaterial natürliches Wasser liegen die Anreicherungsfaktoren für Radium bei etwa  $10^4$ .
- Ein zweiter effizienter Anreicherungsprozess ist die Trennung von Pb-210 und Po-210 bei Hochtemperaturprozessen. Dieser Prozess tritt nicht nur bei metallurgischen Hüttenprozessen auf, sondern auch beim Tempern oder Verarbeiten mineralischer Rohstoffe bei hohen Temperaturen. Seine Effizienz zeigt sich deutlich in der signifikanten Abreicherung von Pb-210 im Vergleich zu Ra-226 in Schlacken und getemperten Mineralen. Da diese Schlacken und Mineralien verglichen mit den Filterstäuben eine sehr große Masse besitzen, liegt die Anreicherung von Pb-210 und Po-210 in der Größenordnung  $10^2$ .
- Bei der Verbrennung von Kohle ist mit Radionuklidanreicherungen um den Faktor 10 zu rechnen, wobei höhere Anreicherungen von Pb-210, Po-210 im Flugstaub auftreten können. Bei der Verbrennung von Holz und Biomasse kann die Anreicherung aufgrund der geringen Ascheanteile deutlich höher ausfallen. Durch die geringe Aktivität der eingesetzten Rohstoffe sind radiologisch relevante Aktivitäten aber nur in Filterstäuben zu erwarten.
- Für viele industrielle Prozesse konnten noch keine vollständige Prozessanalysen der Radionuklidumverteilung vorgenommen werden, da Angaben zu den Massenströmen häufig nicht prozessspezifisch erhoben wurden.

Die Auswertung von publizierten und eigenen Daten zeigte, dass die Nuklidzusammensetzung von Materialien zum einen durch die Ausgangsstoffe, zum anderen durch die Bildungsprozesse der Materialien bestimmt werden. In Bezug auf Bodenkontaminationen und Altlasten konnten 6 typische Gruppen von Materialien ähnlicher Nuklidzusammensetzungen und ähnlichen radiologischen Eigenschaften abgeleitet werden.

- Typ M1 („Rohstoff“): Zerfallsreihen (weitgehend) im Gleichgewicht. U/Th-Verhältnis unterschiedlich.
- Typ M2 („Ablagerung“): Es liegen deutliche Ungleichgewichte vor, wobei Nuklide eines chemischen Elementes dominieren. Die Nuklidvektoren werden bestimmt durch Radium (Ra-226, Ra-228), Pb-210 oder Uran.

- Typ M3: („Extraktionsrückstand“): Starke Störungen der Gleichgewichte in den Zerfallsreihen. Selektive Abreicherung einzelner Elemente (Uran, Thorium oder Radium) durch Extraktion. Die Nuklide der maximalen Aktivitäten sind abhängig von der Art der chemischen Prozesse. Die U-235 Reihe ist nicht im Gleichgewicht. U-235 kann gegen die langlebigen Tochternuklide Pa-231 und Ac-227 deutlich abgereichert sein.
- Typ M4: („Schlacke“): Gleichgewichte in den Zerfallsreihen bis auf Pb-210, Po-210. Selektive Abreicherung von Pb-210, Po-210 durch thermische Verdampfung.
- Typ M5: („Thermostaub“): starke Anreicherungen von Pb-210, Po-210. Th-232-Reihe und Vorgängernuklide vom Pb-210 in der U-238 Reihe treten nur im Bereich der Hintergrundwerte auf.
- Typ M6: („Produkt“): starke Störungen der Gleichgewichte in den Zerfallsreihen. Selektive Anreicherung von Uran, Thorium oder Radium.

Diese Typen können als methodische Basis für die Untersuchung und Bewertung von Altlasten genutzt werden. Sie erlauben sowohl Rückschlüsse auf Art und teilweise Alter der Entstehung, ermöglichen aber auch Festlegungen zu optimalen Analyseprogrammen und Plausibilitätsprüfungen von Analyseergebnissen.

## 9 Empfehlungen

Aus den Ergebnissen dieser Arbeit lässt sich für folgende Aspekte einen Bedarf an der Weiterentwicklung des bestehenden BfS - Leitfadens zur Untersuchung und Bewertung bergbaulicher Altlasten /GRS 03/ erkennen.

- (1) Grundsätzlich besteht bei einer Einbeziehung radiologischer Altlasten in den Strahlenschutz die Notwendigkeit, potentielle radiologische Altlasten als Verdachtsflächen zu identifizieren. In Anlehnung an bereits existierende Arbeitshilfen zur Historischen Erkundung von (konventionellen) Altlasten (z.B. Wirtschaftszweige- Stoffe - Matrix im Altlastenhandbuch Baden-Württemberg /BW 88/) sollte dazu ein gesonderter Leitfaden(teil) mit einer Matrix für eine Vorabprüfung von Standorten entwickelt werden. Diese Matrix sollte neben den Rückständen der Anlage XII Teil A StrlSchV die im Kapitel 4.1 dieser Studie beschriebenen Materialgruppen enthalten.
- (2) Für die Festlegung von Untersuchungsprogrammen zur Erstbewertung von Bodenkontaminationen sind neben Hinweisen zu Probenahmestrategien (Anzahl, Tiefe, Masse von Proben) auch Hinweise zu typischen Nuklidvektoren aufzunehmen. Dazu können die in dieser Arbeit beschriebenen 6 Materialtypen genutzt werden.
- (3) Sanierungsarbeiten an Altablagerungen wie alten Rotschlammdeponien (s. Kapitel 3.4.3.1) oder Gichtstaubablagerungen (s. Kapitel 3.7.3.1), die zweifelsfrei überwachungsbedürftige Rückstände im Sinne der StrlSchV enthalten, sollten im Vorfeld auf die radiologische Relevanz der Arbeiten überprüft werden. Hierzu sind geeignete Hinweise, Anweisungen im Leitfaden zu berücksichtigen, die ein rechtzeitiges Handeln der Behörden unterstützen.

Für einige in dieser Studie noch nicht vertiefend untersuchte Prozesse mit großen Massenströmen (Zinnerverarbeitung, Titandioxidproduktion), bei denen Rückstände im Sinne der StrlSchV anfallen können, sollten frühere Entsorgungswege genauer geprüft werden, um die Relevanz dieser Ablagerungen abschließend beurteilen zu können. Das gilt auch für Altablagerungen früherer Prozesse, die nicht unter den Rückstands begriff fallen, insbesondere Kraftwerksaschen.

## 10 Zitierte Quellen

- /AKK 99/ Akkermann-Kubillus, A.: Radioaktivität in Trinkwasser und ihre Beseitigung. In: Bericht 5 des Institutes ESWE Institut, Wiesbaden 1999
- /AOS 04/ [www.aos-stade.de](http://www.aos-stade.de). Aluminium Oxid Stade GmbH (AOS)
- /BÄD 04/ Telefonat Frau Peters (GRS) mit Herrn Bädtker, K + S GmbH, vom 15.06.2004
- /BAF 04/ Bundesamts für Wirtschaft und Ausfuhrkontrolle, BAFA. Daten der Amtlichen Erhebungen in Betrieben der NE-Metallwirtschaft (2004)
- /BAR 98/ A. Barth, M. Seehafer, D. Weiß: Die Auswirkungen des Uranbergbaus in Sachsen und Ostthüringen auf Radionuklidkonzentrationen in Sedimenten und Auenböden. In: Uranium Mining and Hydrogeology II. Verlag S. von Loga, Köln 1998, S. 515 –526
- /BEC 91/ Becker, J. u. Reichelt, A.: Anthropogene Stoffe und Produkte mit natürlichen Radionukliden. Teil I: Überblick über die wichtigsten Expositionspfade. Technischer Überwachungsverein Bayern e.V., Studie i.A. Bayerisches Staatsministerium für Landesentwicklung und Umweltfragen, Juni 1991
- /BED 04/ Beddow, H., Black, S. u. Read, D.: Characterisation of scale from a former phosphoric acid processing plant. NORM IV Conference, Szczyrk, Poland, 17-21 May, 2004, Prace Naukowe GIG, Book of Abstracts, p. 108
- /BER 96/ W. vom Berg, K.-H. Puch: Radioaktivität von Verbrennungsrückständen aus Kohlekraftwerken. VGB Kraftwerkstechnik 76 (1996) H. 8, S. 681-687
- /BfS 00/ Radiologische Erkundung auf dem Gelände der ehemaligen Versuchsanlage des Heereswaffenamtes in Gottow. Schreiben des Bundesamtes für Strahlenschutz (Dr. Will) an das Ministerium für Landwirtschaft, Umwelt und Raumordnung Potsdam (Herrn Geisler) vom 05.04.2000 (Veröffentlicht in /NAG 02/)
- /BfS 04/ Messergebnisse. Bundesamt für Strahlenschutz Berlin (2004)
- /BGR 04/ Bundesrepublik Deutschland. Rohstoffsituation 2003. Bundesanstalt für Geowissenschaften und Rohstoffe Hannover, 2004
- /BLA 03/ Bayr. LA für Umweltschutz: Abschlussbericht zum Untersuchungsvorhaben: Innere Strahlenexposition beim berufsbedingten Umgang mit thoriumhaltigen Materialien ( 2003)
- /BMH 05/ Biomasseheizkraftwerk Pfaffenhofen. Internet Seite "Asche als Dünger": <http://www.bmhkw.de/start.html>
- /BMU 00/ Gesetz über die friedliche Verwendung der Kernenergie und den Schutz gegen ihre Gefahren (AtG) in der Fassung der Bekanntmachung vom 15. Juli 1985 (BGBl. I, S. 1565) zuletzt geändert durch Artikel 1 des Gesetzes vom 3. Mai 2000 (BGBl. I, S. 1350).
- /BMU 01a/ Verordnung für die Umsetzung von EURATOM-Richtlinien zum Strahlenschutz vom 20. Juli 2001, Artikel 1: Verordnung über den Schutz vor Schäden durch ionisierende Strahlen (Strahlenschutzverordnung - StrlSchV), BGBl. I, Nr. 38, S. 1714, Bonn, 26. Juli 2001
- /BMU 01b/ Begründung zur Neufassung der Strahlenschutzverordnung, BR-Drucksache 207/01 vom 16. März 2001.
- /BMU 04/ Geothermie – Energie für die Zukunft. Herausgeber: Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit (BMU). Referat Öffentlichkeitsarbeit. Berlin September 2004
- /BMU 05/ Entwurf „Erstes Gesetz zur Änderung des Strahlenschutzvorsorgegesetzes und sonstiger strahlenschutzrechtlicher Vorschriften“. Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit (Stand 21.03.2005)
- /BMU 05a/ <http://www.bmu.de/de/1024/js/sachthemen/pilotprojekte/009/>
- /BMU 05b/ <http://www.bmu.de/foerderprogramme/doc/5328.php>

- /BMU 99b/ Berechnungsgrundlagen zur Ermittlung der Strahlenexposition durch Inhalation von Radon und seinen kurzlebigen Zerfallsprodukten infolge bergbaubedingter Umweltradioaktivität, Berechnungsgrundlagen – Bergbau - Teil: Radon. BMU, 1999.
- /BMU 99a/ Berechnungsgrundlagen zur Ermittlung der Strahlenexposition infolge bergbaubedingter Umweltradioaktivität (Berechnungsgrundlagen - Bergbau) Empfehlung der Strahlenschutzkommission, verabschiedet in der 155. Sitzung der Strahlenschutzkommission am 02./03.07.1998, durch BMU und BfS überarbeitete Fassung, Stand 30.07.1999.
- /BMW 01/ Der Bergbau in der Bundesrepublik Deutschland 2000. Bergwirtschaft und Statistik. Zusammenge stellt vom Bundesministerium für Wirtschaft und Technologie in Zusammenarbeit mit den Bergbehörden der Länder. 52. Jahrgang 2001
- /BMW 04/ Der Bergbau in der Bundesrepublik Deutschland 2003. Bergwirtschaft und Statistik. Zusammenge stellt vom Bundesministerium für Wirtschaft und Arbeit in Zusammenarbeit mit den Bergbehörden der Länder. 55. Jahrgang 2004
- /BMW 99/ Der Bergbau in der Bundesrepublik Deutschland 1998. Bundesministerium für Wirtschaft und Technologie in Zusammenarbeit mit den Bergbehörden der Länder. Der Bergbau in der Bundesrepublik Deutschland. 50 Jahrgang 1999
- /BON 04/ H. Bonka, W. Geißler, A. Neu: Zur Strahlenexposition durch terrestrische Strahlung am Katzenbuckel bei Eberbach. StrahlenschutzPraxis Heft 4/2004 S. 44-49
- /BPS 05/ B.P.S. Engineering GmbH, Zwickau, <http://www.bps-zwickau.de>
- /BRU 04/ Telefonat Frau Peters (GRS) mit Herrn Brusenbauch, Fa. AMFERT, vom 16.06.2004
- /BSP 00/ Brenk Systemplanung: Eingrenzung und Bewertung der von den vorgesehenen NORM- Regelungen der Novelle der StrlSchV betroffenen Bereiche. AG: BMU, BS-Bearb. Nr. 9410/2, Brenk Systemplanung GmbH Aachen, Januar 2000
- /BSP 99/ Brenk Systemplanung: Ableitung von Überwachungsgrenzen für Reststoffe mit erhöhten Konzentrationen natürlicher Radioaktivität. AG: BMU, BS-Bearb. Nr. 9410-2, Brenk Systemplanung GmbH Aachen, Mai 1999
- /BSW 02/ Bayerisches Staatsministerium für Wirtschaft, Infrastruktur, Verkehr und Technologie: Rohstoffe in Bayern. Situation, Prognosen, Programm. Broschüre; München 5/2002
- /BÜN 01/ Bünger, Th.: Vortrag 33. Radiometrisches Seminar Theuern, Nov. 2001
- /BUN 05/ [www.bundhannover.de/konkret/recycling/ZukunftsfaehigerKalibergbauAbschlussbericht.pdf](http://www.bundhannover.de/konkret/recycling/ZukunftsfaehigerKalibergbauAbschlussbericht.pdf) [Kalibergbau und Aluminium-Recycling in der Region Hannover](#)
- /BVK 05/ Bundesverband Kraftwerksnebenprodukte e.V.: [http://www.bvk-online.com/bvk\\_smartm/html/f/133/glossar.html](http://www.bvk-online.com/bvk_smartm/html/f/133/glossar.html)
- /BW 88/ Altlastenhandbuch Teil I. Ministerium für Umwelt und Verkehr Baden-Württemberg. 1988
- /CAR 05/ Centrales Agrar Rohstoff Marketing und Entwicklungs-Netzwerk e.V. : <http://www.carmen-ev.de/dt/energie/beispielprojekte/pfaffenhofen.html>
- /CHA 04/ Chałupnik, S.: THEORETICAL STUDY OF RADIUM BEHAVIOUR IN AQUIFERS. Proceedings NORM IV Conference (CD. May 2004, Szczyrk POLAND. p. 696-715
- /CHR 03/ Chriwa Filt: Hochleistungs-Filtermaterial zur Reduzierung bzw. Entfernung von Uran, Radium, Arsen, Nickel, Bor, Fluorid. Prospekt Chriwa Deutschland GmbH (ohne Jahr; ca. 2003)
- /COW 76/ Cowan, G.A., H.H. Adler: Geochim. Cosmochim. Acta 40 (1976) 1487-1490
- /DEG 05/ Das Werk Essen der Goldschmidt GmbH. Internet-Seite Degusa: <http://www.degussa-geschichte.de/geschichte/de/standorte/essen.html> (2005)
- /DES 99/ Despotovic, P.: Schwermetallmobilität in typischen Haldenablagerungen des ehemaligen Hüttenstandortes Helbra. Studienarbeit. TU Berlin. Fachbereich Angewandte Geowissenschaften. Berlin August 1999
- /DIE 03/ P. Diehl: Altstandorte des Uranbergbaus in Sachsen. [www.wise-uranium.org/pdf/wisalt.pdf](http://www.wise-uranium.org/pdf/wisalt.pdf)

- /DIE 05/ <http://www.naturpark-diemelsee.de/lebensbild.html>
- /DIE 91/ [Peter Diehl, Uranabbau im Westen Deutschlands, Oktober 1991. www.antenna.nl/wise/uranium/umwd.html:](http://www.antenna.nl/wise/uranium/umwd.html)
- /DIW 04/ Wochenbericht des DIW Berlin 38/04. Eberhard Wettig: Aktuelle Entwicklungen auf den Weltmärkten für elektronische Bauelemente und in deren Einsatzgebieten. Die Weltmärkte ausgewählter Elektronikmetalle: Cadmium, Gallium, Germanium, Indium, Silizium, Tantal
- /DIW 99/ Niob - ein junges Legierungsmetall hat sich auf dem Weltmarkt etabliert. DIW Wochenberichte 1999 (Autor: P. Eggert)
- /DSK 96/ "Leitfaden für die Ermittlung und Bewertung von natürlichen radioaktiven Stoffen in Sedimenten des Steinkohlenbergbaus und die sich daraus ergebenden Maßnahmen unter Ausnahme von Radon", Internes Dokument der Steinkohlenindustrie (DSK), 24.09.1996
- /DSK xx/ Leitfaden Natürliche Radioaktivität für die Ermittlung und Bewertung der Expositionen durch natürliche Radioaktivität im Steinkohlenbergbau und die sich daraus ergebenden Maßnahmen. Projektgruppe „Leitfaden Natürliche Radioaktivität im Bergbau“: Deutsche Steinkohle AG, Materialprüfungsamt Nordrhein-Westfalen, Bezirksregierung Arnsberg, Abteilung Bergbau und Energie in NRW (ohne Jahr)
- /EBE 03/ Telefonische Auskunft von Hr. Eberhard (Landesamt für Arbeitsschutz Suhl) an R. Gellermann vom 13.01.2003
- /EC 99a/ European Commission: Radiation Protection 95: Reference levels for workplaces processing materials with enhanced levels of naturally occurring materials. (1999)
- /EIS 00/ G. Eisele, J. Stock, G. Heckmann: Revitalisierung einer Industriebranche – das Kienzle-Areal in Villingen-Schwenningen. Terra-Tech 2/2000, S. 44-47
- /EIS 05/ <http://www.ta7.de/txt/wissensc/wiss0013.htm>: Eisengewinnung im Hochofen
- /ERK 97/ Erkens, W.H.H.: Electrothermal phosphorus production – radioactivity in the environment and at workplace. In: Proc. Int. Symp. On Radiological Problems with Natural Radioactivity in the Non-nuclear Industry, Amsterdam, 8-10 Sept. 1997
- /ETT 01/ Ettenhuber, E.; Gehrcke, K.: Radiologische Erfassung, Untersuchung und Bewertung bergbaulicher Altlasten. Abschlussbericht. Salzgitter, März 2001. BfS-SCHR-22/1
- /ETT 78/ E. Ettenhuber, Bericht SAAS 1978 (Bauxit)
- /EU 05/ Amtsblatt Nr. L 296 der EU vom 12.11.2005
- /EUR 00/ European Commission. Natural Radionuclide Concentrations in Materials Processed in the Chemical Industry and the Related Radiological Impact. EC, DG Environment, Report EUR 19264, August 2000
- /FAV 05/ <http://www.faventia.de/lexikon/objekt/Erzgebirge/>
- /FEI 97/ S. Feige: Radionuklid-Kontaminationen von Wässern, Sedimenten und Böden durch den Steinkohle- und Braunkohletagebau. Unveröffentlichte Diplomarbeit. Universität Gesamthochschule Essen, Fachbereich Bio- und Geowissenschaften. Essen 1997.
- /FEL 94/ W. Feldheim, M. Taube, R. Heepe: Ermittlung und Beräumung thoriumkontaminierter Flächen auf dem Betriebsgelände der BASF Schwarzheide GmbH. in: Berichte aus der Arbeit. Landesumweltamt Brandenburg, 1994
- /FLA 99/ Flamme, P., P. Gabrielsson und K.-J. Lorenzen-Schmidt (Herausg.). Kommentierte Übersicht über die Bestände des Staatsarchivs der Freien und Hansestadt Hamburg. Zweite erweiterte und verbesserte Auflage (1999). Nr. 621-1 Zinnwerke
- /FRA 05/ [Franke, W.: Geowissenschaftliche Aspekte von Umweltproblemen und Umwelttechnik; \(www.fu-berlin.de/mineralogie/pdf/Umwelt%202005.pdf\)](http://www.fu-berlin.de/mineralogie/pdf/Umwelt%202005.pdf)

- /FRE03/ C. Fredrich: Renaturierung des Geländes des ehemaligen Heizkraftwerkes und der Aschedeponie in Brieskow – Finkenheerd. Untersuchung der Grundwasserqualität an ausgewählten Pegeln von 1992 bis 2002 –Abschlussarbeit. Postgradualstudium Toxikologie der Universität Leipzig. Frankfurt (Oder), den 08.05.2003
- /FRI 89/ R. Fritzsche, J. Schmidt: Untersuchung alter Rückstandshalden aus Bergbau und Erzaufbereitung auf eine mögliche Freisetzung toxischer Elemente. Durchführbarkeitsstudie. (Primärbericht) Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH, Januar 1989
- /FRI 96/ Fritzsche, R., J. Schmitz, Th. Nöltner: Bestandsaufnahme von Rückstandshalden aus Bergbau und Erzaufbereitung in Baden-Württemberg. Band I: Nördlicher Teil. FZ Karlsruhe. Wiss. Berichte KZAA 5768B. März 1996
- /GÄF 99/ Gäfvert, T. u. Holm, E.: Radionuclide Fluxes at a Plant Manufacturing Phosphate Products for Domestic Animals. TENR II Symposium, Rio de Janeiro, Brazil, 12-17 Sept., 1999, Book of Abstracts, p. 26
- /GAR 98/ Garcia-Leon, M. u.a.: The Phosphoric Acid Production as a Source of Environmental Radioactivity: The Spanish Case. In: NORM II. Proceedings of the Second International Symposium on the Treatment of Naturally Occurring Radioactive Materials. Krefeld 1998. S. 90-94
- /GDA 04/ [Gesamtverband der Aluminiumindustrie e.V. \(GDA\). http://www.aluinfo.de.](http://www.aluinfo.de)
- /GEB 06/ Gebhardt, J.: Millonen für Umwelt und region. Amberger Zeitung vom 08.02.2006
- /GEI 05/ Geisler, R.: Internetseite [www.physik3.gwdg.de/~rgeisle/bergbau/gustav.html](http://www.physik3.gwdg.de/~rgeisle/bergbau/gustav.html)
- /GEI 99/ Geipel, R.: Uranvererzungen in Aufschlüssen des Nabburger Flussspatreviers. Exkursionsführer. Im Eigenverlag 1999
- /GEL 01/ Gellermann, R., K. Kip, H. Schulz: Differentiation of radioactive ground contamination with TENORM. In: Symposium Book NORM III, Brüssel, 2001 (s. /3/)
- /GEL 02/ Gellermann, R., J. Wiegand, L. Funke, J. Gerler: Mineral waters with anomalous high radium concentrations in the Northern Harz region. In: High Levels of Natural Radiation and Radon Areas: Radiation Dose and Health Effects BfS Schriften 24/2002; S. 83-86
- /GEL 83/ Gellermann, R., H. Gast: Ra-Rn-Datierung der Quellwässer von Bad Brambach. Z. Physiother. 35 (1983) 129-135
- /GEL 94/ Gellermann, R., H. Dörr, M. Reichert: Radionuklide im Sickerwasser der Mischdeponie Freital-Döhlen: Ergebnisse der Erkundung und Standortbewertung. In: Workshop Sanierung von Mischaltlasten (1994). Herausg.: Sächs. Landesamt für Umwelt und Geologie. Radebeul, 1995
- /GEO 05/ Georgescu, D., F. Aurelian, M. Popescu, C. Radulescu: Sources of TENORM - Inventory of phosphate fertiliser and aluminium industry. In Naturally occurring radioactive materials (NORM IV). IAEA TECDOC-1472. IAEA Vienna 2005
- /GER 05/ mündliche Mitteilung Dr. Gerler, Bundesamt für Strahlenschutz, im Rahmen der Projektbesprechung am 5.12.2005 in Salzgitter
- /GES 05/ Gesamtverband der Deutschen Aluminiumindustrie e.V. - Aluminium im Bauwesen. <http://www.aluinfo.de/pdf/AluBau.pdf>.
- /GFM 05/ <http://www.gfm-fesil.de/germany/html/de/index.php?page=roheisen> (Internet Seite der Fa. GfM Fesil Duisburg, 2005)
- /GLA 98/ Rohstoffbericht Sachsen-Anhalt 1998. Verbreitung, Gewinnung und Sicherung mineralischer Rohstoffe in Sachsen-Anhalt. Geol. Landesamt Sachsen Anhalt
- /GRA 05/ [Internet-Datenbank: www.graniteland.de/naturstein/](http://www.graniteland.de/naturstein/)
- /GRS 02/ Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH und Universität Essen. German national report to levels and inventory of TENORM.EU-project TENORMHARM, Deliverable No. 1, September 2002
- /GRS 03/ Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit mbH: Leitfaden zur radiologischen Untersuchung und Bewertung bergbaulicher Altlasten; Köln/Berlin 2003

- /GRS 99/ Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH. Radiologische Erfassung, Untersuchung und Bewertung bergbaulicher Altlasten. Abschlussbericht. GRS-A-2658, GRS Köln, Juli 1999 (mit Datenbank ALASKA)
- /HAB 05/ Haberlau, U.: persönliche Mitteilung an R. Gellermann vom 14.10.2005
- /HAB 97/ Haberer, K., O.Raff, A. Akkermann-Kubillus, R.-D. Wilken: Natural Radionuclides in Drinking Water in Europe and Treatment Methods for their Removal. Bericht des ESWE-Instituts, Wiesbaden, 1997
- /HAH 00/ M. Hahn, R. Gellermann, R. Heepe: Sanierung einer thoriumkontaminierten Industriealtlast. In: Berichte aus der Arbeit 1999. Landesumweltamt Brandenburg (2000), S. 228 - 231
- /HAR 05/ [www.harz-saale.de/Geschichte\\_und\\_Sagen/Bergbau/bergbau.html](http://www.harz-saale.de/Geschichte_und_Sagen/Bergbau/bergbau.html): Bergbau und Industrie im Unterharz - im Mansfelder Land
- /HGN 01/ Ableitung von Prüfwerten für die Beurteilung einer Grundwassergefährdung durch natürlich radioaktive Altlasten im Gebiet der Stadt Oranienburg. Gutachten im Auftrag des Landesumweltamtes Brandenburg. HGN Hydrogeologie GmbH. 30.11.2001
- /HGN 03a/ "Mengenaufkommen an NORM-Rückständen für das deutsche Entsorgungskonzept". Abschlussbericht zum Vorhaben SR 2416 des Bundesamtes für Strahlenschutz HGN Hydrogeologie GmbH, IAF Radioökologie GmbH, Öko-Institut e.V. Darmstadt, 2003
- /HGN 03b/ Radiologische Bewertung der Deponierung von Hochofenschlämmen in der Roheisenerzeugung. Gutachten im Auftrag des VDEh Düsseldorf. HGN Hydrogeologie März 2003
- /HGN 06/ Radiologische Bewertung der Grubenwässer - Einleitungen des Steinkohlenbergbaus im Bereich Fossa Eugenia" Abschlussbericht, HGN Hydrogeologie GmbH, Universität Hannover, Universität Duisburg-Essen, Universität Würzburg. März 2006 (unveröff.)
- /HIP 97/ Hipkin, J., P.V. Shaw: Workplace Exposure to Ionising Radiation in The United Kingdom from the Use of Naturally Occurring Radioactive Materials. International Symposium on Radiological Problems in the Non-nuclear Industry, Amsterdam, September 1997
- /HIR 03/ A. Hirsch, M. Kurze: Lauter-Werk – Chronik eines gescheiterten Unternehmens (Studienarbeit). Hochschule Mittweida (FH). Schwerpunkt Controlling (Prof. D.W. Schoeppner). 18-06-2003
- /HK 05/ [Internetseite "NA Hüttenwerke Kayser" auf: www.hk-ag.com/start.html](http://www.hk-ag.com/start.html)
- /HOF 00/ J. Hofmann, R. Leicht, H.J. Wingerder, J. Wörner: Radiological impact due to wastes containing radionuclides from use and treatment of water. Report EUR 19255. May 2000
- /HOM 05/ [www.home.t-online.de/home/steffen.witt/aluher.htm](http://www.home.t-online.de/home/steffen.witt/aluher.htm): Aluminiumherstellung
- /IAE 03/ Extend of Environmental Contamination by Naturally Occurring Radioactive Material (NORM) and Technological Options for Mitigation. Technical Reports Series No. 419. IAEA Vienna 2003
- /IAF 03/ schriftliche Mitteilung des Bayerischen Geologischen Landesamtes an die IAF-Radioökologie GmbH Dresden vom 25.03.2003
- /IAF 03b/ IAF - Radioökologie GmbH Dresden im Auftrag der GMR Leipzig GmbH, Bestimmung von Pb-210 in metallischem Quecksilber, 2003
- /IAF 03c/ IAF - Radioökologie GmbH, BGD Boden- und Grundwasserlabor GmbH, HGN Hydrogeologie GmbH: Entwicklung strahlenschutzbezogener Untersuchungs- und Bewertungsmethoden für den Sickerwasserpfad bei Rückständen des Uranerz- und Altbergbaus in Sachsen, Sachsen-Anhalt und Thüringen, 1. Zwischenbericht, Dresden, 15.8.2002
- /IAF 95/ Radionuklid-Analyse für Umweltbewertungen, IAF - Radioökologie GmbH Dresden, Sächsisches Ministerium für Wirtschaft und Arbeit, 1995
- /IAF 99/ IAF - Radioökologie GmbH Dresden, Radionuklidanalytik von Rückständen und Schlämmen aus der Ergasindustrie, im Auftrag verschiedener Firmen seit 1999

- /ICP 02/ Research & Design Institute for Rare and Radioactive Metals (ICPMRR). Romanian national report to levels and inventory of TENORM. EU-project TENORMHARM, Deliverable No. 1, September 2002
- /ITK 89/ Itkonen, A., Jantunen, M.J.: The properties of fly ash and fly ash mutagenicity, Gulf Publishing Company, Houston, 1989
- /IVA 92/ Ivanovich, M., R.S. Harmon: Uranium-series Disequilibrium. Second Edition. Clarendon Press. Oxford 1992
- /IZ 05a/ Internetseite [www.initiative-zink.de](http://www.initiative-zink.de)
- /IZ 05b/ Zink - Werkstoff und lebenswichtiges Spurenelement. Informationsmaterial für den Unterricht und die Ausbildung. Initiative Zink. Bonn (ohne Jahr)
- /JGS 05/ [Internetseite "Johanngeorgenstadt" auf: www.geoberg.de/text/mining/05010103.php](http://www.geoberg.de/text/mining/05010103.php)
- /JUB 75/ R. Jubelt, P. Schreiter: Gesteinsbestimmungsbuch. 3. Auflage. VEB Dt. Verlag für Grundstoffindustrie. Leipzig 1975
- /KIE 02/ Müller-Kiemes, B. (Hess. Ministerium für Umwelt) Telefonische Auskunft an R. Gellermann, HGN, März 2002
- /KIE 03/ Müller-Kiemes, B. (Hess. Ministerium für Umwelt) Telefonische Auskunft an R. Gellermann, HGN, 21.01.2003
- /KIE 05/ Müller-Kiemes, B. (Hess. Ministerium für Umwelt, ländlichen Raum und Verbraucherschutz) Telefonat am 14.09.05 mit R. Gellermann
- /KLÖ xx/ [Klös, H. \(o.J.\): Messdaten Radionuklide in Sedimenten. http://people.freenet.de/hans.kloes/0.htm](http://people.freenet.de/hans.kloes/0.htm)
- /KÖH 01/ Köhler, M., R. Knappig, B. Gleisberg, I. Schäfer, W. Boden, M. Bothe: Das Labor für Umwelt- und Radionuklidanalytik im VKTA Rossendorf. In: Strahlenschutz im Europa von Morgen. 33. Jahrestagung Fachverband Strahlenschutz. Verlag TÜV Rheinland, Köln 2001, S. 272-275
- /KÖH 03/ Köhler, M., A. Wöllert, H. Menzel: NORM in einem geothermischen Heizwerk. Vortrag Fachverband Strahlenschutz; AKNAT (2003)
- /KOL 85/ Kolb, W. und M. Woicik: Strahlenschutzprobleme bei der Gewinnung und Nutzung von Erdöl und Erdgas in der Bundesrepublik Deutschland, Bericht der PTB (PTB-Ra\_17) Februar 1985
- /KOU 00/ Kouptsidis, J., F. Peters, D. Proch, W. Singer: Niob für Tesla – Eine globale Markanalyse, Tesla-Projekt, Tesla-Report 2001-27, Hamburg, Oktober 2000
- /KRÜ 99/ Krüger, J.: Studie über Anfall und Verbleib radioaktiver Rückstände im Bereich der Nichteisenmetallurgie. Ber. Institut für Metallhüttenkunde und Elektrometallurgie der RWTH Aachen, 1999
- /KRW 04/ Gesetz zur Förderung der Kreislaufwirtschaft und Sicherung der umweltverträglichen Beseitigung von Abfällen (KrW-/AbfG) vom 27. September 1994; BGBl I 1994, 2705; zuletzt geändert durch Art. 3 G v. 22.12.2004 I 3704
- /KUN 02/ C. Kunze, E. Herrmann, I. Griebel, G. Kiessig; F. Dullies, M. Schreiter: Entwicklung und Praxiseinsatz eines hocheffizienten selektiven Sorbens für Radium. GWF Wasser - Abwasser Nr. 7-8 (2002)
- /LAU 90/ Zusammenstellung von Messergebnissen aus den durch die Landesanstalt für Umweltschutz, Referat 32 durchgeführten Untersuchungen auf dem Gelände der ehemaligen Betriebsdeponie der Firma Kienzle in Villingen-Schwenningen. Landesanstalt für Umweltschutz Baden-Württemberg; Ref 32. November 1990 (unveröffentl.)
- /LEH 92/ R. Lehmann und R. Czarwinski: Die Strahlenbelastung in Häusern des Freitaler Bergbaugesbietes. In. BfS Jahresbericht 1992
- /LEH 96/ Lehmann, R.: Strahlenbelastung durch natürliche Radionuklide in Baumaterialien, fossilen Brennstoffen und Düngemitteln. In: A. Siehl: Umweltradioaktivität. Berlin. Verlag Ernst und Sohn 1996, S. 135 ff

- /LEH 99/ Lehmann, K.-H., A. Reichelt, W. Hauk: Control measurements during remediation for unrestricted release of a thorium-contaminated building. In: Release of radioactive Material from Regulatory Control: Proceed. 2. Intern. Sympos.; TÜV Nord Akademie. Hamburg, Nov. 1999, S. 315-325
- /LEI 05/ Leikert, Telefonische Auskunft an A. Schellenberger (IAF), April 2005
- /LEI 91/ Leißring, B.: Messdaten (unveröff.) 1991
- /LIB 05/ [http://www.lib.utexas.edu/maps/europe/germany\\_rel\\_94.jpg](http://www.lib.utexas.edu/maps/europe/germany_rel_94.jpg)
- /LPL 00/ Erläuterungsbericht zum Landschaftsplan Oranienburg, 2. Überarbeitete Fassung (Stand 12/2000). Büro für Landschaftsplanung A. Rosenkranz (Berlin) und B. Kronenberg (Klein-Mutz), (AG: Stadtplanungsamt Oranienburg)
- /LSA 97/ Strahlenschutzbericht Land Sachsen-Anhalt 1997.
- /LWF 05/ Energetische Nutzung von Holz. Heiz(kraft)werke, Förderung, Hackertechnik, Spaltautomaten, Genetik im Wald, Interview mit Bildhauer. Bayrische Staatsforstverwaltung. LWF Aktuell Nr. 48. Ausgabe 1 - 2005
- /MAL 05/ Mallick, R.: Vortragsmaterialien Seminar "Abfälle und Radioaktivität"; Institut für Weiterbildung im Umweltschutz Magdeburg. März 2005 (unveröff.)
- /MAN 04/ Mansfeldt, T. und J. Küper: Deponierte Hochofengasschlämme – Eine Gefahr für die Umwelt? Altlasten Spektrum H. 2 (2004) S. 103 - 107
- /MAR 04/ Telefonat Frau Peters (GRS) mit Herrn Dr. Martin, Fa. H. C. Starck, vom 15.06.2004
- /MAZ 99/ Mazzilli, B. et al.: Natural Radioactivity of Phosphate Rock and Associated Phosphogypsum in Brazil. TENR II Symposium, Rio de Janeiro, Brazil, 12-17 Sept., 1999, Book of Abstracts, p. 25
- /MER 86/ Mertins, E.: Die Aufbereitung von Hochofengichtschlamm – ein Beitrag zur Entsorgung eines Abfallstoffs. Erzmetall Bd. 39 (1986) S. 399-404
- /MIC 97/ Michel, G.: Mineral- und Thermalwässer. Allgemeine Balneogeologie. Lehrbuch der Hydrogeologie. Band 7. Gebrüder Bornträger. Berlin, Stuttgart 1997
- /MMW 05/ [Mineralmahlwerk Hamm, Internet Seite: www.mmw-hamm.de](http://www.mmw-hamm.de)
- /MON 05/ (MONOAGENDA) [http://www.monagenda.de/lexikon/Richelsdorfer\\_Gebirge](http://www.monagenda.de/lexikon/Richelsdorfer_Gebirge)
- /MOT 03/ Vortrag von Dr. W. Mothes, 26. Sitzung des Arbeitskreises Natürliche Radioaktivität (AKNAT), Salzwedel 16 und 17. 10. 2003
- /MSC 05/ [Internet-Seite: Fa. Max Schmidt Waidhaus \(2005\); www.schmidt-waidhaus.de/start.htm](http://www.schmidt-waidhaus.de/start.htm)
- /MUG 88/ Ministerium für Umwelt und Gesundheit Rheinland-Pfalz: Urananlage Ellweiler. Eine Dokumentation. Mai 1988
- /MÜL 04/ Müller, A.: Radioaktivität in Natursteinen. Diplomarbeit. TU Bergakademie Freiberg 2004
- /MYG 05/ [http://www.mygeo.info/landkarten\\_deutschland.html](http://www.mygeo.info/landkarten_deutschland.html)
- /NAG 02/ Nagel, G.: Atomversuche in Deutschland. Heinrich-Jung-Verlagsgesellschaft mbH. Zella-Mehlis / Meiningen 2002.
- /NIE 05/ Niedermayer, M.; P.M. Hamel, A. Reichelt, B. Sitte: Historische Recherchen zur Erfassung und radiologischen Bewertung von TENORM-Hinterlassenschaften. In: Strahlenschutz-Aspekte bei der Entsorgung radioaktiver Stoffe. 37. Jahrestagung Fachverband für Strahlenschutz e.V. TÜV Verlag Köln 2005; S. 20-27
- /NIE 05b/ M. Niedermayer, pers. Mitteilung an R. Gellermann, Okt. 2005
- /NIE 98/ Niese, S., M. Koehler, B. Gleisberg: Instrumental and radiochemical determination of natural radionuclides in raw and waste materials. In: NORM II. Proceedings of the Second Intern. Symposium on the Treatment of Naturally Occurring Radioactive Materials. Krefeld Nov. 1998, p. 27-31
- /NLfB 01/ [www.nlfb.de/rohstoffe/downloads/jahresbericht\\_2001.pdf](http://www.nlfb.de/rohstoffe/downloads/jahresbericht_2001.pdf)

- /NLfB 03/ [www.nlfb.de/rohstoffe/downloads/jahresbericht\\_2003.pdf](http://www.nlfb.de/rohstoffe/downloads/jahresbericht_2003.pdf)
- /NOE 96/ Sanierungsrahmenkonzept Altlasten. Ökologisches Großprojekt Mansfeld. Althüttenstandort Rohhütte Helbra. Noell Umweltdienste / BISANTECH, Bitterfeld, 19.07.1996
- /NRI 02/ National Research Institute Rez (NRI). Czech national report to levels and inventory of TENORM. EU-project TENORMHARM, Deliverable No. 1, September 2002
- /OEC 02/ OECD Nuclear Energy Agency and the International Atomic Energy Agency: Environmental Remediation of Uranium Production Facilities, Paris, 2002
- /ÖKO 99/ Datenblatt Torf. Internet Seite Öko-Institut (1999) <http://www.oeko.de/service/kea/files/datenhtml/Produkte/Torf.htm>
- /OST 04/ [www.ostbayernmineralien.piranho.de/h-Fundstellen/Huenerkobel/huenerkobel.htm](http://www.ostbayernmineralien.piranho.de/h-Fundstellen/Huenerkobel/huenerkobel.htm)
- /OST 05/ R. Ostendorf, V. Thon: Bauliche Maßnahmen zur Sicherung der Rotschlammdeponien in Schwandorf. 21. Fachtagung „Die sichere Deponie“ am 10./11. Februar 2005 in Würzburg
- /PHI 04/ e-mail vom 14.06.2004 von G. Philipp, Leiter Dezernat 44 (Bergaufsicht) im Regierungspräsidium Darmstadt, Abt. Umwelt Wiesbaden an D. Weiß (GRS).
- /PRO 00/ Prognos AG. Handlungsinstrumentarium zur Effizienzverbesserung bei der Gewinnung und Verarbeitung mineralischer Rohstoffe im Hinblick auf eine nachhaltige Entwicklung am Beispiel Kupfer, Umtersuchungen im Auftrag des Bundesministerium für Wirtschaft und Technologie, Dezember 2000
- /PUC 05/ Puch, K.-H., R. Bialucha, G. Keller: Naturally occurring radioactivity in industrial by-products from coal fired power plants, from municipal waste incineration and from the iron- and steel-industry. Radioactivity in the Environment. Vol. 7 (2005) Verlag Elsevier
- /PUC 97/ Puch, K.-H., G. Keller, W. vom Berg: Radioactivity of combustion residues from coal fired power stations. In: Proc. Int. Symp. on Radiological Problems with Natural Radioactivity in the Non-nuclear Industry, Amsterdam, 8-10 Sept. 1997
- /QUA 02/ Quade, U., S. Thierfeldt, S. Wörlen: Release of Residues from Melting NORM-contaminated steel scrap. WM'03 Conference, February 23-27, 2003, Tucson, AZ
- /QUA 05/ Quade, U., R. Kreh, W. Müller: Recycling von Schrotten mit radioaktiver Kontamination natürlichen Ursprungs durch Schmelzen. In: Strahlenschutz-Aspekte bei der Entsorgung radioaktiver Stoffe. 37. Jahrestagung Fachverband für Strahlenschutz e.V. TÜV Verlag Köln 2005; S. 44-51
- /RAU 05/ A. Rauh: Das Fichtelgebirge. <http://www.bayern-fichtelgebirge.de/heimatkunde/032.htm> (2005)
- /REG 04/ Regeling van de Staatssecretaris van Volkshuisvesting, Ruimtelijke Ordening en Milieubeheer en de Staatssecretaris van Sociale Zaken en Werkgelegenheid van 25 augustus 2004, Nr. DGM/SAS/2004080182, inzake meldingen, vergunningen, vrijstellingen en toetsingscriteria met betrekking tot natuurlijke bronnen van ioniserende straling (Regeling natuurlijke bronnen van ioniserende straling)
- /REI 06/ A. Reichelt. Vortrag auf der 31. Sitzung des AKNAT. Mai 2006
- /REN 01/ O. Rentz, B. Engels, F. Schultmann: Untersuchung von Batterieverwertungsverfahren und -anlagen hinsichtlich ökologischer und ökonomischer Relevanz unter besonderer Berücksichtigung des Cadmiumproblems. Forschungsprojekt 299 35 330. Im Auftrag des Umweltbundesamtes Berlin. Juli 2001
- /REN 02/ Rentz, O., K. Gütling, U. Karl: Erarbeitung der Grundlagen für das BVT-Merkblatt Großfeuerungsanlagen im Rahmen des Informationsaustausches nach Art. 16(2) IVU-Richtlinie. Deutsch-Französisches Institut für Umweltforschung. Universität Karlsruhe (TH). Forschungsbericht Nr. 200 46 317 im Auftrag des Umweltbundesamtes. November 2002
- /REN 99/ O. Rentz, S. Hähre, R. Jochum, J. Geldermann, M. Krippner, F. Schultmann: Exemplarische Untersuchung zum Stand der praktischen Umsetzung des integrierten Umweltschutzes in der Metallindustrie und Entwicklung von generellen Anforderungen. Forschungsprojekt 296 94 006. Im Auftrag des Umweltbundesamtes Berlin. Dezember 1999

- /ROH 90/ Rohrer, A.: Massen- und Aktivitätsfluss des Steinkohlenkraftwerks Zolling (Diplomarbeit). TÜV Bayern 1990
- /RSB 02/ Rohstoffbericht Sachsen-Anhalt 2002. Verbreitung, Gewinnung und Sicherung mineralischer Rohstoffe in Sachsen-Anhalt. LAGB Sachsen Anhalt
- /SAC 04/ [www.sachon-exportadressbuch.de](http://www.sachon-exportadressbuch.de)
- /SAC 04b/ Aufbereitung von Rückständen aus der Titandioxid Pigmentproduktion. Sachtleben Chemie GmbH. Fördervorhaben BMU (Information <http://www.bmu.de/foerderprogramme/doc/2353.php>)
- /SBA --/ Pressemitteilungen des Statistischen Bundesamtes Wiesbaden vom 08.01.96; 10.01.97; 10.01.03; 12.01.04; 10.01.05 zur Rohstahl Jahresproduktion
- /SBA 02/ Statistisches Bundesamt. Statistik zum Sachbereich Umwelt. Wasserwirtschaft (2002)
- /SCH 01/ S. Schmid: Untersuchungen zur Radionuklidbelastung von Oberflächenwässern, Sedimenten und Böden als Folge des Steinkohlebergbaus im Ruhr-Revier. Dissertation. Fachbereich Bio- und Geowissenschaften. Universität Essen 2001.
- /SCH 03/ Projektstudie Lautawerk. - Hochschule Mittweida, Schwerpunkt Controlling (Prof. D. W. Schoepfner), 2003
- /SCH 04/ Telefonat Frau Peters (GRS) mit Frau Schneider, Clariant GmbH, vom 16.06.2004
- /SCH 83/ J. Schmitz, H. Klein: Untersuchung einer repräsentativen Zahl von bergmännischen Abraumhalden in Baden-Württemberg auf mögliche Freisetzung radioaktiver Elemente. KfK Karlsruhe Juli 1983
- /SCH 85/ J. Schmitz, H. Klein: Untersuchung bergmännischer und industrieller Rückstandshalden in Niedersachsen auf eine mögliche Freisetzung radioaktiver Elemente. KfK Karlsruhe September 1985
- /SCH 89/ J. Schmitz, A. Olkis, H. Klenk, K. Bächmann: Radioökologische Untersuchungen im Raum Mähring/Poppenreuth (Opf.). KfK Karlsruhe 1989
- /SCH 92/ Schwankner, R., A. Brummeisl, G. Lieckfeld, P. Schöffl, A. Schöpf: Die Frühgeschichte des Radiums - Teil II. Die Geowissenschaften 10 (1992) Nr. 7, S. 190-198
- /SCH 95/ Schmederer, J.: Wasserwirtschaftliche Aspekte bei der Stilllegung bayerischer Uranbergbauanlagen. Uranium-Mining and Hydrogeology Bd. 1 (Herausgeber: Merkel, Hurst, Löhnert, Struckmeier) S. 519-524. Sven von Loga Verlag. Köln 1995
- /SCH 99/ Schucht, S.: Ökologische Modernisierung und Strukturwandel in der deutschen Aluminiumindustrie. Forschungsstelle für Umweltpolitik (FFU). Freie Universität Berlin, Otto-Suhr-Institut für Politikwissenschaft. FFU-Report 99-4 (1999)
- /SCH 62/ Schreiter, W.: Seltene Metalle. VEB Verlag für Grundstoffindustrie Leipzig. 3 Bände (1961, 1962)
- /SEI 05/ <http://www.seilnacht.tuttlingen.com/Lexikon/13Alu.htm>
- /SEI 05a/ <http://www.seilnacht.com/Lexikon/73Tantal.htm>
- /SEI 05b/ <http://www.seilnach.com/Lexikon/50Zinn.htm>
- /SEI 05c/ <http://www.seilnacht.com/Lexikon/Titandi.htm>
- /SHE 34/ SHELL STADTKARTE Nr. 44 HARBURG. Verlag: SHELL Reisedienst. Erscheinungsjahr: 1934/35. Verlag: RHENANIA-OSSAG MINERALÖLWERKE AKTIENGESELLSCHAFT ([http://www.landkartenarchiv.de/shellstadtkarte44\\_193435.htm](http://www.landkartenarchiv.de/shellstadtkarte44_193435.htm))
- /SIE 96/ Siehl, A. (Herausg.): Umweltradioaktivität. Verlag Ernst und Sohn, Berlin 1996
- /SMI 98/ D.M. Smith, P.V. Shaw: Radiation Protection issues associated with the processing of mineral sands in the UK. In: NORM II. Proceedings of the Second Intern. Symposium on the Treatment of Naturally Occurring Radioactive Materials. Krefeld Nov. 1998, p. 103-107
- /SMU 99/ Sächsisches Staatsministerium für Umwelt und Landwirtschaft: Leitfaden Uranbergbausanierung – Wegweiser für den Umgang mit radioaktiv kontaminierten Materialine, Flächen, Bergehalden und Absetzanlagen aus dem Altbergbau. Dez. 1999

- /SOR 05/ [http://www.sorelmetal.com/de/about/product\\_main.htm](http://www.sorelmetal.com/de/about/product_main.htm) (Internet Seite von Rio Tinto Iron & Titanium Inc. 2005)
- /SSK 81/ Zum Vergleich der Strahlenexposition der Bevölkerung durch Emission radioaktiver Stoffe aus Kohlekraftwerken und aus Kernkraftwerken. Empfehlung der Strahlenschutzkommission vom 02.07.1981. Bundesanzeiger Nr. 150 vom 15.08.1981
- /STA 05/ Stahlinstitut VDEh: [www.stahl-online.de/deutsch/KARTE\\_bedeu\\_2004\\_feb05.pdf](http://www.stahl-online.de/deutsch/KARTE_bedeu_2004_feb05.pdf)
- /STR 94/ Stroh, R., F. Neubacher, S. Bradac: Reststoffe aus der Aluminiumverhüttung. Umweltbundesamt Wien, Juli 1994. Bericht UBA-94-096
- /TEN 00/ TENAWA project. Final Report: M. Annanmäki, T. Turtiainen (eds.): Treatment Techniques for Removing Natural Radionuclides from Drinking Water. STUK-A169, Helsinki 2000.
- /THI 98/ Thiem, R.: Zur Geschichte des Zinnbergbaus im Fichtelgebirge, Heft 8/1998 der FGV-Schriftenreihe "Das Fichtelgebirge"
- /THY 05/ [www.thyssenkrupp-stahl.de/grobblech/de/organisation/roheisen\\_hochofen.jsp](http://www.thyssenkrupp-stahl.de/grobblech/de/organisation/roheisen_hochofen.jsp)
- /TIN 05/ Tinfos AG. Internetseite <http://www.tinfos.no/index.shtml?main.shtml&2>
- /TUB 98/ TU Bergakademie Freiberg, Lehrstuhl für Hydrogeologie Prof. Dr. B. Merkel, Geologisches Institut: Untersuchungen zur radiologischen Emission des Uran-Tailings Schneckenstein, 1998, AG: Sächsisches Staatsministerium für Umwelt und Landesentwicklung, Dresden
- /TÜV 04a/ StSch 4386: Erfassung und radiologische Bewertung von Hinterlassenschaften mit NORM-Materialien aus früheren Tätigkeiten und Arbeiten einschließlich der modellhaften Untersuchung branchentypischer Rückstände); AP 4000 – Orientierende radiologische Untersuchungen: Rohphosphatverarbeitung. Standorte und Rückstandsformen. TÜV Süd, Dezember 2004 (Zwischenbericht)
- /TÜV 04b/ StSch 4386: Erfassung und radiologische Bewertung von Hinterlassenschaften mit NORM-Materialien aus früheren Tätigkeiten und Arbeiten einschließlich der modellhaften Untersuchung branchentypischer Rückstände). AP 4000 – Orientierende radiologische Untersuchungen: Rohphosphatverarbeitung. Herkunft des Rohphosphates und weitere Standorte. TÜV Süd, Dezember 2004 (Zwischenbericht)
- /TÜV 05a/ Erfassung und radiologische Bewertung von Hinterlassenschaften mit NORM-Materialien aus früheren Tätigkeiten und Arbeiten einschließlich der modellhaften Untersuchung branchentypischer Rückstände – Teil 3b: Industrielle Hinterlassenschaften der Rohphosphat-Verarbeitung, TÜV Süd Industrie Service GmbH, Juli 2005.
- /TÜV 05b/ Erfassung und radiologische Bewertung von Hinterlassenschaften mit NORM-Materialien aus früheren Tätigkeiten und Arbeiten einschließlich der modellhaften Untersuchung branchentypischer Rückstände – Teil 4b: Orientierende radiologische Untersuchungen an industriellen Hinterlassenschaften der Rohphosphat-Verarbeitung, TÜV Süd Industrie Service GmbH, November 2005.
- /TÜV 94/ A. Reichelt, J. Röhrer, K.-H. Lehmann: Anthropogene Stoffe und Produkte mit natürlichen Radionukliden. Teil 1a: Strahlungseigenschaften von Roh- und Reststoffen - Literaturrecherche. TÜV Bayern Sachsen. Dezember 1994
- /UBA 01/ Umweltbundesamt / Institut für Umwelttechnik und Management an der Universität Witten/Herdecke German Notes on BAT for the production of Large Volume Solid Inorganic Chemicals - Titandioxid, Juni 2001
- /UBA 04/ Daten zur Anlagentechnik und zu den Standorten der thermischen Klärschlamm Entsorgung in der Bundesrepublik Deutschland. 3. überarbeitete Auflage (08/2004). Umweltbundesamt Fachgebiet III 3.3 „Abfallbehandlung, Ablagerung“. Bearbeitung: Tim Hermann, Kerstin Goldau
- /UBA 97/ Revitalisierung von Altstandorten versus Inanspruchnahme von Naturflächen. Gegenüberstellung der Flächenalternativen zur gewerblichen Nutzung durch qualitative, quantitative und monetäre Bewertung der gesellschaftlichen Potentiale und Effekte. UBA-Vorhaben Nr. 103 40 119 (31. Juli 1997)

- /ULL 94/ Ullrich, B., P. Adolphi: Zur stofflichen Charakteristik der Uranerzaufbereitungsabgänge der Industriellen Absetzanlagen in Dresden-Coschütz/Gittersee. In: Workshop Sanierung von Mischaltlasten (1994). Herausg.: Sächs. Landesamt für Umwelt und Geologie. Radebeul, 1995
- /USE 05/ [www.userpage.chemie.fu-berlin.de/~mininst/Umwelt%202005.pdf](http://www.userpage.chemie.fu-berlin.de/~mininst/Umwelt%202005.pdf): Geowissenschaftliche Aspekte von Umweltproblemen und Umwelttechnik; Prof. Dr. Walter Franke
- /VAH 02/ Vahlbruch, J.-W., R. Sachse S. Harb u.a.: Untersuchungen zur Strahlenexposition durch natürliche Radionuklide aus dem Steinkohlenbergbau in die Vorflut. In: Praxis des Strahlenschutzes: Messen, Modellieren, Dokumentieren. Tagungsband 34. Jahrestagung Fachverband für Strahlenschutz. TÜV-Verlag GmbH. Köln 2002
- /VAH 05/ Vahlbruch, J.-W.: Pers. Mitteilung zu Sammlungsstücken des ZSR Hannover, 21.11.2005
- /VFM 05a/ <http://www.vfmg-weiden.de/min.htm>: Mineralfundstellen in Nord-Ostbayern
- /VFM 05b/ [www.vfmg-weiden.de/kaolino.htm](http://www.vfmg-weiden.de/kaolino.htm): Der Monte Kaolino bei Hirschau
- /VGB 05/ Aufkommen und Verwertung von Nebenprodukten aus kohlebefeueten Kraftwerken in Deutschland im Jahr 2004. VGB Power Tech (2005)
- /VIE 94/ Viehweg, M.: Einige Bemerkungen zu den ehemaligen Industriellen Absetzanlagen der Uran-Aufbereitung in West-Sachsen. In: Workshop Sanierung von Mischaltlasten (1994). Herausg.: Sächs. Landesamt für Umwelt und Geologie. Radebeul, 1995
- /VLM 05/ Virtual Library Museen. Besucherbergwerke. <http://www.roscheiderhof.de/icom/bergwerk.html> (2005)
- /VOI 04/ Telefonat Frau Peters (GRS) mit Herrn Voigt, Chemische Fabrik Budenheim KG, vom 16.06.2004
- /WEB 05/ Weber, B. (2005): Internetseite <http://www.berthold-weber.de/min.htm>
- /WEG 00/ Erdgas – Erdöl. Entstehung, Suche, Förderung. Wirtschaftsverband Erdöl- und Erdgasgewinnung e.V. Hannover, Dez. 2000
- /WEG 04/ [www.erdoel-erdgas.de](http://www.erdoel-erdgas.de) Wirtschaftsverband Erdöl- und Erdgasgewinnung e.V.
- /WEG 04/ Technische Regel. Leitfaden für Arbeiten mit natürlicher Radioaktivität. Wirtschaftsverband Erdöl- und Erdgasgewinnung e.V., Stand 03/04 (2004)
- /WEG 05/ [Internet Seite Wirtschaftsverband Erdöl- und Erdgasgewinnung e.V.: http://www.erdoel-erdgas.de/](http://www.erdoel-erdgas.de/)  
[Teil: Daten und Fakten \(2005\)](#)
- /WEG 97/ Aufkommen und Beseitigung von schwach radioaktiven und quecksilberhaltigen Produktionsrückständen in der Erdöl- und Erdgasindustrie. Wirtschaftsverband Erdöl- und Erdgasgewinnung e.V. (September 1997) unveröffentl. Arbeitspapier
- /WEI 04/ mündliche Mitteilung von U. Glaubitz (LfUG) an D. Weiß vom 04.03.2004
- /WEI 98/ D. Weiß, H. Biesold: Radiologische Erfassung, Untersuchung und Bewertung bergbaulicher Altlasten: Bericht zum Sondermessprogramm „Sedimente und Auenböden“. GRS Berlin und Köln, Juni 1998. GRS-A-2580
- /WIC 01/ Wichterery K. u.a.: Radiologische Erfassung, Untersuchung und Bewertung bergbaulicher Altlasten. Abschlussbericht zur Verdachtsfläche Hettstedt (VF 01). Bundesamt für Strahlenschutz. Berlin, Nov. 2001 (AS-IB-11)
- /WIC 04/ Wichmann, K.: Rückstände aus der Wasseraufbereitung. In: DVGW-Lehr- und Handbuch Wasserversorgung Bd. 6. München (2004) S. 791-806
- /WIK 05/ [www.wikipedia.org/wiki/Tantal](http://www.wikipedia.org/wiki/Tantal)
- /WIS 01/ Wisser, S.: Natürliche Radionuklide im Thermalwasser des rheinland-pfälzischen Kurortes Bad Kreuznach. Mitt. Pollichia. Bd. 88 (2001) S.115-121
- /WIS 02/ Wisser, S.: Außergewöhnliche Anreicherung natürlicher Radionuklide in Thermalwasserleitungen. Wasser & Boden 54/3 (2002) S. 20-22
- /WIS 04/ [www.wissenschaft-online.de](http://www.wissenschaft-online.de). Online Lexikon der Chemie

- /WIS 05/ <http://www.wisutec.de/NORM>
- /WIS 93/ Vom Uranproduzenten zum Sanierer. Unterlagen zum Workshop "Mill Tailings". 21.-23-01-1993. Wismut GmbH Chemnitz, 1993
- /WIS 99/ Chronik der Wismut. Wismut GmbH Chemnitz 1999
- /WVM 03/ Wirtschaftsvereinigung Metalle (WVM). Metallstatistik 2003. Düsseldorf 2004
- /WVM 05/ Internetseite WVM (2005): [www.wvmetalle.de/welcome.asp?page\\_id=186&sessionid=](http://www.wvmetalle.de/welcome.asp?page_id=186&sessionid=)
- /WWF 05/ Internetseite World Wildlife Fund. Internet Seite: [wwf.de/naturschutz/klima/CO2\\_Karte/index.html](http://wwf.de/naturschutz/klima/CO2_Karte/index.html) (2005)
- /ZHH 05/ Internetseite (2005): [www.zinkhuetterhof.de/](http://www.zinkhuetterhof.de/)

# **Abschlussbericht Teil I zum Vorhaben StSch 4416**

## **Anhang A**

### **Zeitliche Veränderungen der Nuklidvektoren in Ablagerungen**

(StSch 4416 Leitfaden NORM-Rückstände, Teil B, Komm.-Nr. 5.18.001.3.1)

Bearbeiter:

Dr. Hartmut Schulz (IAF)

Astrid Schellenberger (IAF)

Dr. Rainer Gellermann (HGN)

## Inhaltsverzeichnis

1	Einführung.....	3
2	Grundmodell .....	3
3	Die Nuklide Ra-228, Ra-226.....	5
3.1	Zeitentwicklung der abgelagerte Gesamtaktivität.....	5
3.2	Zeitentwicklung der spezifischen Aktivität .....	6
4	Das Nuklidpaar Ra-228, Th-228.....	7
4.1	Vorbemerkung.....	7
4.2	Nachwachsen von Th-228 bei kontinuierlicher Ablagerung von Ra-228 .....	7
4.2.1	Nachwachsen von Th-228 bei einmaliger Ablagerung von Ra-228 .....	8
4.2.2	Abklingen der Aktivität von Ra-228 und Th-228 nach Beendigung der Ablagerung .....	11
4.2.3	Nachwachsen von Th-228 bei kontinuierlicher Ablagerung von Ra-228 unter Berücksichtigung des Mutternuklids Th-232 .....	15
5	Die Nuklide Ra-226, Pb-210.....	18
5.1	Nachwachsen von Pb-210 aus kontinuierlich abgelagerten Ra-226.....	18
5.2	Nachwachsen von Pb-210 im abgelagerten Material .....	20
5.3	Pb-210-Entwicklung in Scales durch direkte Anlagerung und Zerfall von Rn-222 im radonhaltigen Wasser oder Gas .....	21
5.4	Die Nuklide Pa-231, Ac-227.....	23
6	Zusammenfassung und Schlussfolgerungen .....	24
7	Quellenverzeichnis .....	25

## 1 Einführung

Bei Materialien mit Radionukliden, die Halbwertszeiten (HWZ) zwischen 1 Jahr bis 100 Jahren besitzen, ändert sich die Zusammensetzung der Nuklidvektoren über längere Betrachtungszeiten gesehen. Diese Veränderungen müssen bei der Expositionsermittlung zukünftiger Situationen berücksichtigt werden. Sie können aber auch bei der Bewertung von Erkundungsergebnissen genutzt werden, um aus der zeitlichen Veränderung dieser Nuklide Aussagen zur Ablagerungsgeschichte abzuleiten.

Die Nuklide der Zerfallsreihen, mit HWZ im angegebenen Bereich sind Ra-228, Th-228, Pb-210 und Ac-227. Typische Beispiele von Materialien mit derartigen Radionukliden sind Scales in Anlagen der Erdöl-Erdgasindustrie, Inkrustationen in Anlagen der Wassergewinnung aber auch Sedimente an Gewässer, die durch Ableitungen des Steinkohlebergbaus kontaminiert wurden.

Die Beprobung und Analyse solcher Ablagerungen erfasst stets mehr oder weniger dicke Schichten. Bei Scales und anderen dünnen, festhaftenden Ablagerungen in Anlagenteilen werden zumeist die kompletten Schichtdicken beprobt und analysiert. Auch bei Schlammablagerungen und Gewässersedimenten werden mehr oder weniger mächtige Schichten erfasst. Bei Böden sind gemäß Berechnungsgrundlage Bergbau Tiefenbereiche von 10 cm oder 20 cm als Basis für die Ermittlung der Direktingestion zu nutzen.

Durch die Mittelung der Proben über einen endlichen Horizont werden Aktivitätsverteilungen gemessen, die von denen abweichen (können), die sich aus der zeitlichen Entwicklung einer isolierten Probe nach den Gesetzen der radioaktiven Zerfallsreihen ergeben. Im Folgenden wird untersucht, welche Nuklidvektoren und Aktivitätsverteilungen bei unterschiedlichen Probenahmestrategien zu erwarten sind und welche Konsequenzen sich daraus für die Interpretation von Nuklidvektoren bei radium- und Pb-210-haltigen Ablagerungen ergeben.

## 2 Grundmodell

Ein schematisches Grundmodell eines Ablagerungsprozesses zeigt Abbildung 2-1.

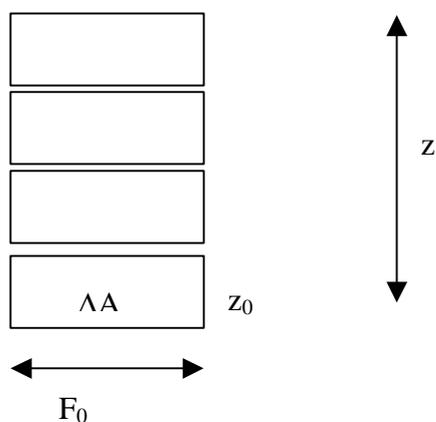


Abbildung 2-1: Elementare Kenngrößen eines Ablagerungsprozesses

In diesem Modell wird angenommen, dass eine Ablagerung (z.B. Scale-, Schlamm-, Sedimentschicht) kontinuierlich mit einer Sedimentationsgeschwindigkeit  $v_s = z_0/\Delta t$  anwächst. Bei Scales entsteht bei einer Sedimentationsgeschwindigkeit von 0,1 mm/a nach  $t = 20$  Jahren eine Scaleschicht von 2 mm Mächtigkeit. Bei einer Schlammablagerung mit einer Sedimentationsgeschwindigkeit von 1 cm/a beträgt die Mächtigkeit der Schlammschicht nach 20 Jahren 20 cm. Vom Fließregime eines Baches/Flusses abhängige abweichende erosive und sedimentierende Phasen werden außer Acht gelassen. Die wichtigste Kenngrößen des Ablagerungsprozesses ist die Ablagerungsrate  $J_A$  der Aktivität  $\Delta A$  a pro Zeitintervall  $\Delta t$  und je Einheitsfläche  $F_0$

$$J_A = \frac{\Delta A}{F_0 \Delta t} \quad (\text{Einheit: Bq m}^{-2} \text{ a}^{-1}) \quad (1)$$

Die gesamte auf der Fläche  $F_0$  in der Zeit  $t$  abgelagerte Aktivität  $A_0$  beträgt

$$A_0 = J_A \cdot F_0 \cdot t, \quad (2)$$

wobei das Volumen  $V$  der in der Zeit  $t$  aufwachsenden Schicht durch

$$V(t) = F_0 \cdot v_s \cdot t = V_0 \frac{t}{\Delta t} \quad (3)$$

gegeben ist. Die im Zeitraum  $t$  abgelagerten Masse  $M$  (bei konstanter Dichte  $\rho_0$ ) ist

$$M(t) = \rho_0 \cdot V(t) = \rho_0 \cdot F_0 \cdot v_s \cdot t = J_M \cdot F_0 \cdot t. \quad (4)$$

Die Sedimentakkumulationsrate (Ablagerungsrate der Masse)  $J_M$

$$J_M = \frac{\Delta m}{F_0 \Delta t} = \rho_0 \cdot v_s, \quad (\text{Einheit: kg m}^{-2} \text{ a}^{-1}) \quad (5)$$

Für die zeitliche Entwicklung der auf einer (beprobten) Fläche  $F_0$  abgelagerten **Gesamtaktivität**  $A$  gilt folgende Differentialgleichung

$$\frac{dA(t)}{dt} = J_A \cdot F_0 - \lambda \cdot A(t) + \lambda \cdot A_{-1}(t), \quad (6)$$

wobei  $A_{-1}(t)$  die Aktivität des jeweiligen Vorgängernuklids (Mutternuklids) bezeichnet. Der Term "Aktivität" oder auch „spezifische Aktivität“ bezieht sich in diesem Zusammenhang stets auf ein Einzelnuclid.

Die zugehörige Massenablagerung wird durch

$$\frac{dM(t)}{dt} = J_M \cdot F_0 \quad (7)$$

beschrieben.

---

a Der Term "Aktivität" oder auch „spezifische Aktivität“ bezieht sich in diesem Zusammenhang stets auf ein Einzelnuclid.

Dieses Modell wird im Folgenden in Hinblick auf Nuklidvektoren in radiumdominierten Ablagerungen untersucht. Da die Bestimmung der Gesamtaktivität oder der ihr zuzuordnenden spezifischen Aktivität praktisch nur bei Ablagerungen auf einer definierten (festen) Fläche, wie sie vor allem bei Scales vorkommen, möglich ist, ist dieses Modell zunächst auf solche Fälle beschränkt. Bei Ablagerungen (Böden, Gewässersedimente u.a.), die hinsichtlich der spezifischen Aktivität sehr geringe Werte annehmen können, muss das Modell entsprechend modifiziert werden. Vereinfachend kann ein solcher Fall als Mischung zweier Kompartiments (Boxen) aufgefasst werden, von denen die obere („1“) die Ablagerung und die untere („2“) den (unkontaminierten) Untergrund enthält.

Die mittlere spezifische Aktivität in einer bis zur Tiefe  $z$  entnommenen Gesamtprobe berechnet sich aus

$$a(z_p, t) = A(z_p, t) / M(z_p) \quad (8)$$

mit

$$A(z_p, t) = a_1 \cdot M_1(z_p, t) + a_2 \cdot M_2(z_p, t) \quad (9)$$

und der Gesamtmasse

$$M(z_p) = M_1(z_p, t) + M_2(z_p, t). \quad (10)$$

Der Anteil  $\alpha$  der „Ablagerung“ (Schicht „1“) beträgt

$$\alpha(t) = \frac{M_1(z_p, t)}{M(z_p)}, \quad (11)$$

wobei  $M(t)$  die Masse des in der Zeit  $t$  abgelagerten Materials auf der (beprobten) Fläche  $F_0$  darstellt (s. Gl. (4)) und  $M(z_p)$  die real als Probe gewonnene Masse. Solange  $M(t) < M(z_p)$  ist, wird die spezifische Aktivität der Probe durch den Untergrund verringert. Ist  $M(t) > M(z_p)$  ist die Modellgleichung (6) entsprechend zu modifizieren, da nicht die gesamte sedimentierte Schicht beprobt wurde.

### 3 Die Nuklide Ra-228, Ra-226

#### 3.1 Zeitentwicklung der abgelagerte Gesamtaktivität

Wird nur Ra-228 und kein Th-232 abgelagert, ergibt sich für die zeitliche Entwicklung der abgelagerten Ra-228-Aktivität

$$A_{\text{Ra-228}}(t) = J_{\text{A,Ra-228}} \cdot F_0 \cdot \tau_{\text{Ra-228}} \left[ 1 - \exp\left(-\frac{t}{\tau_{\text{Ra-228}}}\right) \right], \quad (12)$$

wobei

$$\tau_{\text{Ra-228}} = 5,75a / \ln(2) = 8,3a \quad (13)$$

die Zerfallszeit ist.

Für die abgelagerte Ra-226-Aktivität ergibt sich analog

$$A_{\text{Ra-226}}(t) = J_{\text{A,Ra-226}} \cdot F_0 \cdot \tau_{\text{Ra-226}} \left[ 1 - \exp\left(-\frac{t}{\tau_{\text{Ra-226}}}\right) \right] \quad (14)$$

mit

$$\tau_{\text{Ra-226}} = 1600\text{a} / \ln(2) = 2308\text{ a} \quad (15)$$

Das Verhältnis der nach einer Ablagerungszeit von t Jahren noch vorhandenen Aktivität zur insgesamt im Prozess abgelagerten Aktivität beträgt

$$A(t) / A_0 = \frac{\tau}{t} \left[ 1 - \exp\left(-\frac{t}{\tau}\right) \right]. \quad (16)$$

Für Ra-226 bedeutet dies, dass nach t = 20 Jahren noch etwa 38% der ursprünglich auf die Einheitsfläche  $F_0$  abgelagerten Ra-226 Aktivität noch vorhanden ist. Wegen der großen Ra-226-Zerfallszeit von 2308 Jahren ist praktisch die gesamte abgelagerte Ra-226-Aktivität nach 20 Jahren noch in der Ablagerungsschicht vorhanden ( $A_{\text{Ra-226}}(t)/A_{0,\text{Ra-226}} = 0,996$ ).

Die hier abgeleiteten Lösungen gelten unter der Annahme, dass die gesamte Mächtigkeit der Ablagerung erfasst wurde. Durch die Betrachtung der Gesamtaktivität in einer Ablagerungsschicht enthält Gl. (6) implizit auch den Fall, dass sich die bereits abgelagerten Schichten vermischen.

### 3.2 Zeitentwicklung der spezifischen Aktivität

Für die mittlere spezifische Aktivität der Gesamtmasse der Ablagerungsschicht ergibt sich die zeitabhängige Lösung in der Form

$$a(t) = \frac{A(t)}{M(t)} = \frac{J_A \cdot \tau}{J_M \cdot t} \left[ 1 - \exp\left(-\frac{t}{\tau}\right) \right] \quad (17)$$

Nach Gl. (1) und Gl. (5) beschreibt das Verhältnis  $J_A/J_M$  das Verhältnis der Gesamtaktivität  $\Delta A$  zur Masse des im Zeitraum  $\Delta t$  abgelagerten Materials, also die spezifische Aktivität  $a_0$  bei der Ablagerung („Anfangsaktivität“). Damit vereinfacht sich Gl. (16) zu

$$a(t) = \frac{A(t)}{M(t)} = a_0 \frac{\tau}{t} \left[ 1 - \exp\left(-\frac{t}{\tau}\right) \right] \quad (18)$$

Bei einer beispielhaft gewählten Aktivität  $a_{0,\text{Ra-226}}$  von 1 Bq/g beträgt nach einer Ablagerungszeit von 20 Jahren die gemessene Ra-226-Aktivität bei kompletter Beprobung der Ablagerung 0,38 Bq/g. Die spezifische Ra-226-Aktivität der gesamten Ablagerungsschicht ändert sich praktisch nicht.

Ist die spezifische Aktivität des „frischen“ Materials  $a_0$  bekannt (und kann als zeitlich konstant angenommen werden), so kann aus Gl. (18) die Ablagerungsdauer (das „Alter“) bestimmt werden.

## 4 Das Nuklidpaar Ra-228, Th-228

### 4.1 Vorbemerkung

Das Radionuklid Th-228 wird in radiumdominierten Materialien in der Regel nicht direkt abgelagert. Es wächst aus dem abgelagerten Ra-228 nach. Wegen der vergleichsweise kleinen Halbwertszeit von 1,9 Jahren, wird bereits nach ca. 10 Jahren auf den zuerst abgelagerten Schichten ein festes Aktivitätsverhältnis zwischen Ra-228 und Th-228 erreicht.

### 4.2 Nachwachsen von Th-228 bei kontinuierlicher Ablagerung von Ra-228

Die Lösung der Differentialgleichung (6) für das Nachwachsen von Th-228 bei kontinuierlicher Ablagerung von Ra-228 wird durch die Funktion

$$a_{\text{Th-228}}(t) = a_{0,\text{Ra-228}} \frac{\tau_{\text{Ra-228}}}{t} \left( \left[ 1 - e^{-t/\tau_{\text{Th-228}}} \right] + \frac{\tau_{\text{Ra-228}}}{\tau_{\text{Ra-228}} - \tau_{\text{Th-228}}} \left[ -e^{-\frac{t}{\tau_{\text{Ra-228}}}} + e^{-\frac{t}{\tau_{\text{Th-228}}}} \right] \right) \quad (19)$$

beschrieben, wobei die Th-228-Zerfallszeit durch

$$\tau_{\text{Th-228}} = 1,9a / \ln(2) = 2,8 \text{ a} \quad (20)$$

gegeben ist. Die in Gl. (19) angesetzte Anfangsbedingung lautet

$$a_{\text{Th-228}}(t = 0) = 0 \quad (21)$$

Mit einer beispielhaft gewählten Anfangsaktivität von Ra-228 von 1 Bq/g ergibt sich für die spezifische Th-228-Aktivität nach 20 Jahren

$$a_{\text{Th-228}}(t = 20 \text{ a}) \approx \frac{1 \text{ Bq}}{\text{g}} \frac{\tau_{\text{Ra-228}}}{20 \text{ a}} [1 - 1,5^{-20}] \approx 0,35 \text{ Bq/g} \quad (22)$$

Das Aktivitätsverhältnis Th-228/Ra-228 beträgt

$$a_{\text{Th-228}}(t = 20 \text{ a}) / a_{\text{Ra-228}}(t = 20 \text{ a}) = \frac{1 - 1,5^{-20}}{1 - 0,09} = 0,93 \quad (23)$$

d.h. nach 20 Jahren gleichmäßiger Ra-228-Ablagerung ist das Verhältnis der spezifischen Aktivität von Th-228 und Ra-228 einer 2 mm dicken Scaleschicht etwa 0,93. Bei einer Ablagerungszeit von 10 Jahren würde das Verhältnis bei 0,8 liegen (s. Abbildung 4-1).

Dass sich das Verhältnis  $a_{\text{Th-228}}(t) / a_{\text{Ra-228}}(t)$  im Unterschied zum Verhältnis bei einmaliger  $^{228}\text{Ra}$  Ablagerung asymptotisch gegen 1 nähert, ist dadurch bedingt, dass in dem hier betrachteten Modellfall ständig Ra-228 abgelagert wird.

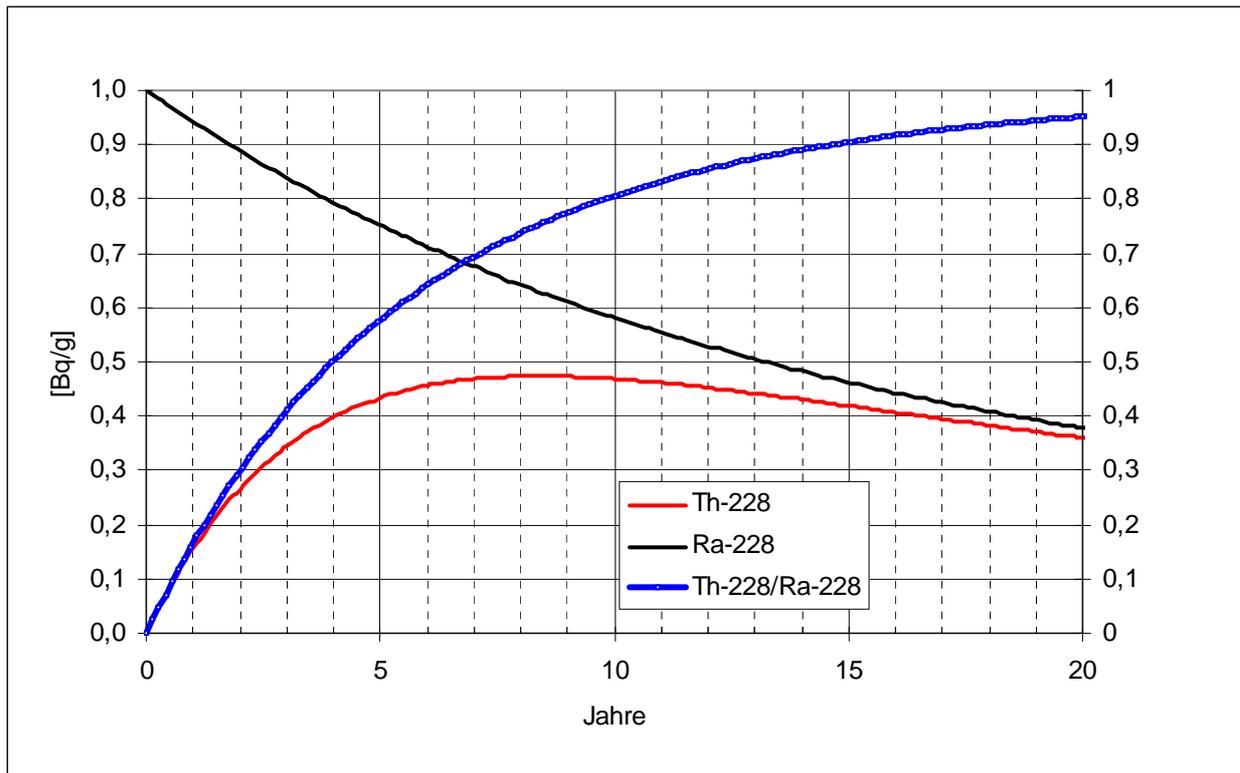


Abbildung 4-1: Zeitliche Entwicklung von  $a_{\text{Ra-228}}$ ,  $a_{\text{Th-228}}$  und des Aktivitätsverhältnisses  $a_{\text{Th-228}}/a_{\text{Ra-228}}$

#### 4.2.1 Nachwachsen von Th-228 bei einmaliger Ablagerung von Ra-228

Untersucht man statt der gesamten Ablagerung eine dünne Schicht dieser Ablagerung, dann kann die sich dort befindende Ra-228-Aktivität als Ergebnis einer einmaligen, momentanen Ablagerung aufgefasst werden. Wählt man als Zeitpunkt der Ablagerung  $t=0$ , so sind die entsprechenden zeitlichen Veränderungen der spezifischen Aktivität durch

$$a_{\text{Ra-228}}(t) = a_{\text{Ra-228}}(0) \cdot e^{-\frac{t}{\tau_{\text{Ra-228}}}} \quad (24)$$

und

$$a_{\text{Th-228}}(t) = a_{\text{Ra-228}}(0) \cdot \left\{ \frac{\tau_{\text{Ra-228}}}{\tau_{\text{Ra-228}} - \tau_{\text{Th-228}}} \left[ e^{-\frac{t}{\tau_{\text{Ra-228}}}} - e^{-\frac{t}{\tau_{\text{Th-228}}}} \right] \right\} \quad (25)$$

gegeben. Die Anfangsbedingung für Gl. (25) lautet  $a_{\text{Ra-228}}(t=0) = a_{\text{Ra-228}}(0)$  und  $a_{\text{Th-228}}(0)=0$ . Die zeitliche Entwicklung der spezifischen Aktivitäten von Ra-228 und Th-228 sowie das Aktivitätsverhältnis  $a_{\text{Th-228}}/a_{\text{Ra-228}}$  sind in der Abbildung 4-2 dargestellt. Nach einer Lagerung von mehr als 10 Jahren erreicht

das Aktivitätsverhältnis  $a_{\text{Th-228}}(t = 10 \text{ a})/a_{\text{Ra-228}}(t = 10 \text{ a}) \approx \frac{\tau_{\text{Ra-228}}}{\tau_{\text{Ra-228}} - \tau_{\text{Th-228}}} = 1,5$  annähernd den

asymptotischen Wert. Dagegen ist bei einer kontinuierlichen Ablagerung von Ra-228 dieses Verhältnis etwa 1 (s. voriges Kapitel).

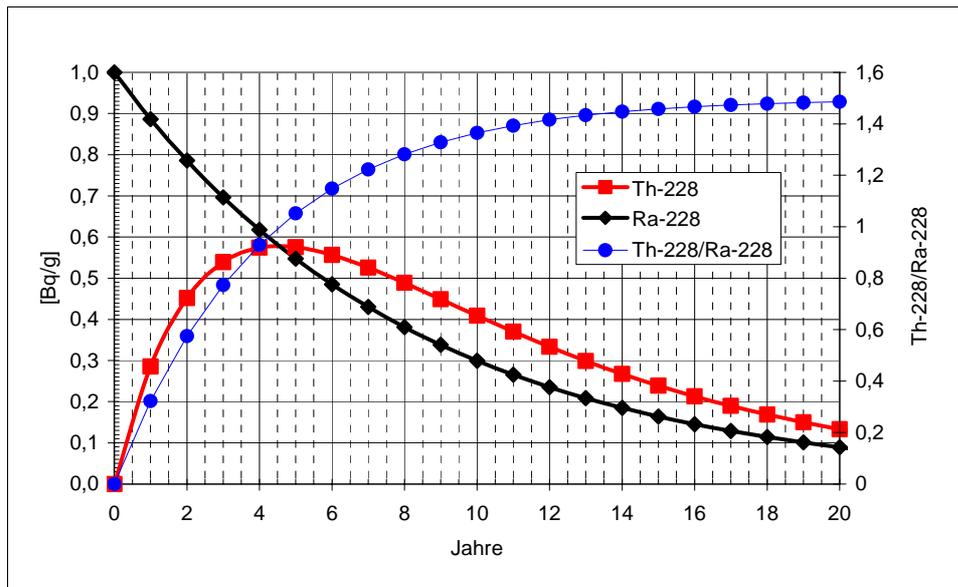


Abbildung 4-2: Zeitliche Entwicklung der spezifischen Aktivität und des Aktivitätsverhältnisses  $a_{\text{Th-228}}/a_{\text{Ra-228}}$  von einmalig abgelagertem Ra-228-haltigen Material mit  $a_{\text{Ra-228}}(0) = 1 \text{ Bq/g}$

Ist in der Ablagerung bereits Th-228 enthalten, also  $a_{\text{Th-228}}(t=0) = a_{\text{Th-228}}(0)$ , lautet die Zeitentwicklungsfunktion

$$a_{\text{Th-228}}(t) = a_{\text{Ra-228}}(0) \cdot \left\{ \frac{\tau_{\text{Ra-228}}}{\tau_{\text{Ra-228}} - \tau_{\text{Th-228}}} \left[ e^{-\frac{t}{\tau_{\text{Ra-228}}}} - e^{-\frac{t}{\tau_{\text{Th-228}}}} \right] \right\} + a_{\text{Th-228}}(0) \cdot e^{-\frac{t}{\tau_{\text{Th-228}}}}. \quad (26)$$

Die zeitliche Entwicklung nach Gl. (26) ist für zwei Beispiele in der Abbildung 4-4 dargestellt. Es ist zu erkennen, dass unabhängig vom Anfangswert der spezifischen Aktivitäten, der asymptotische Wert des Aktivitätsverhältnisses  $a_{\text{Th-228}}/a_{\text{Ra-228}} = 1,5$  nach weniger als 10 Jahren praktisch erreicht ist.

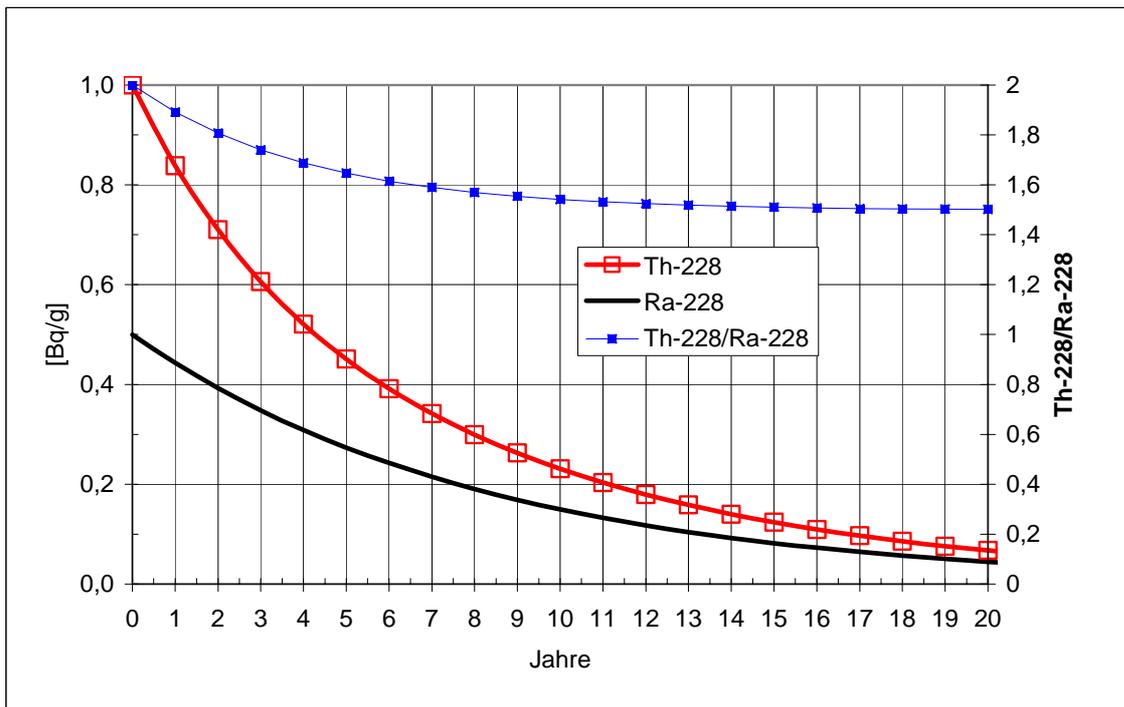
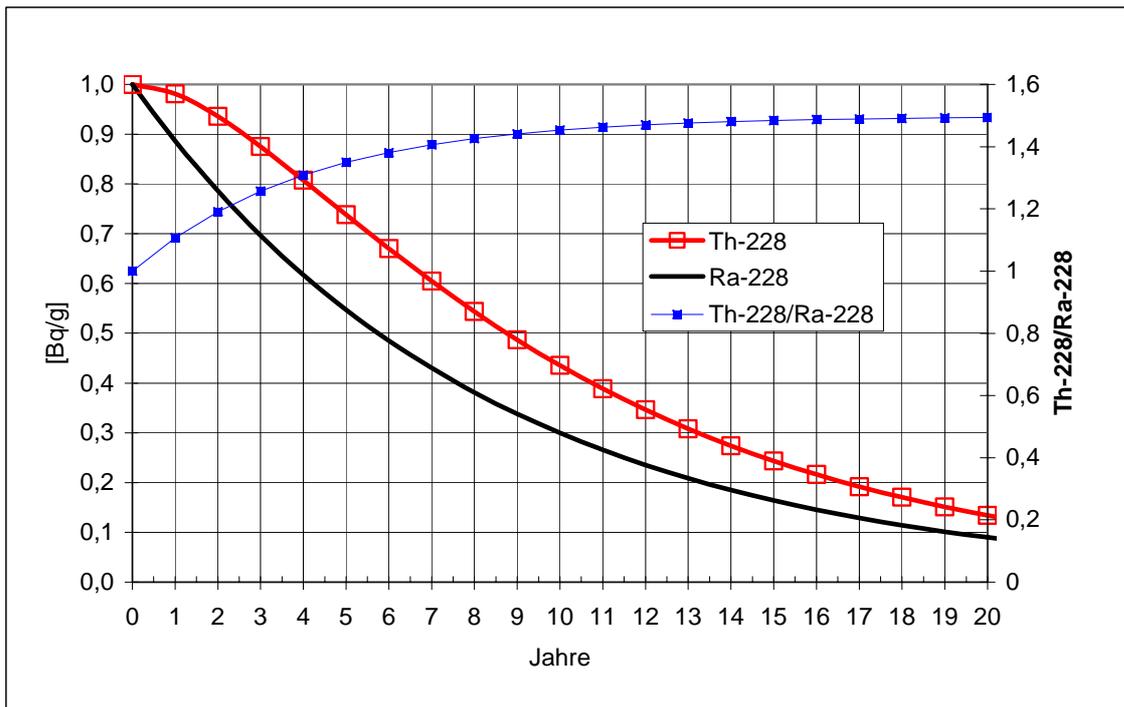


Abbildung 4-3: Zeitliche Entwicklung der spezifischen Aktivität und des Aktivitätsverhältnisses  $a_{Th-228}/a_{Ra-228}$  von einmalig abgelagertem Material mit  $a_{Ra-228} = a_{Th-228} = 1$  Bq/g (oberes Bild),  $a_{Ra-228} = 0,5$  Bq/g,  $a_{Th-228} = 1$  Bq/g (unteres Bild)

#### 4.2.2 Abklingen der Aktivität von Ra-228 und Th-228 nach Beendigung der Ablagerung

Endet der Sedimentationsprozess nach einer Ablagerungszeit (Sedimentationszeit)  $t_s$ , und es werden z.B. in Rohren keine Scales oder in Flussgebieten kein Sediment mehr abgelagert, verringern sich die spezifischen Aktivitäten von Ra-228 und Th-228 bis auf das Niveau der natürlichen Th-232-Aktivität. Der Aktivitätsanstieg von Th-228 wird durch Gl. (19) beschrieben. Das jeweilige Zeitverhalten beim Abklingen der Aktivität wird durch die Funktionen

$$a_{\text{Ra-228}}(t) = a_{\text{Ra-228}}(t_s) \cdot e^{-\frac{t}{\tau_{\text{Ra-228}}}} \quad (27)$$

und

$$a_{\text{Th-228}}(t) = a_{\text{Ra-228}}(t_s) \cdot \left\{ \frac{\tau_{\text{Ra-228}}}{\tau_{\text{Ra-228}} - \tau_{\text{Th-228}}} \left[ e^{-\frac{t}{\tau_{\text{Ra-228}}}} - e^{-\frac{t}{\tau_{\text{Th-228}}}} \right] \right\} + a_{\text{Th-228}}(t_s) \cdot e^{-\frac{t}{\tau_{\text{Th-228}}}} \quad (28)$$

bestimmt, wobei die Zeit  $t$  vom Ende der Sedimentationsphase gemessen wird ( $t_s$  wird Anfangsbedingung!).

Bei einer Ablagerungszeit  $t_s$  von 20 Jahren gilt nach Gl. (19)  $a_{\text{Th-228}}(t_s)/a_{\text{Ra-228}}(t_s) \approx 0,93$ , d.h. die spezifischen Aktivitäten von Ra-228 und Th-228 sind praktisch gleich. Bei einer weiteren Lagerung von

10 Jahren ohne Sedimentation wird  $e^{-\frac{10 \text{ a}}{\tau_{\text{Th-228}}}} \ll 1$  und das Aktivitätsverhältnis erreicht nach Gl. (27) und

(28) mit  $a_{\text{Th-228}}(t = 10 \text{ a})/a_{\text{Ra-228}}(t = 10 \text{ a}) \approx \frac{\tau_{\text{Ra-228}}}{\tau_{\text{Ra-228}} - \tau_{\text{Th-228}}} = 1,5$  bereits den asymptotischen Wert.

In der Abbildung 4-4 ist dieses Zeitverhalten für zwei unterschiedliche Ablagerungszeiten von 10 und 20 Jahren dargestellt.

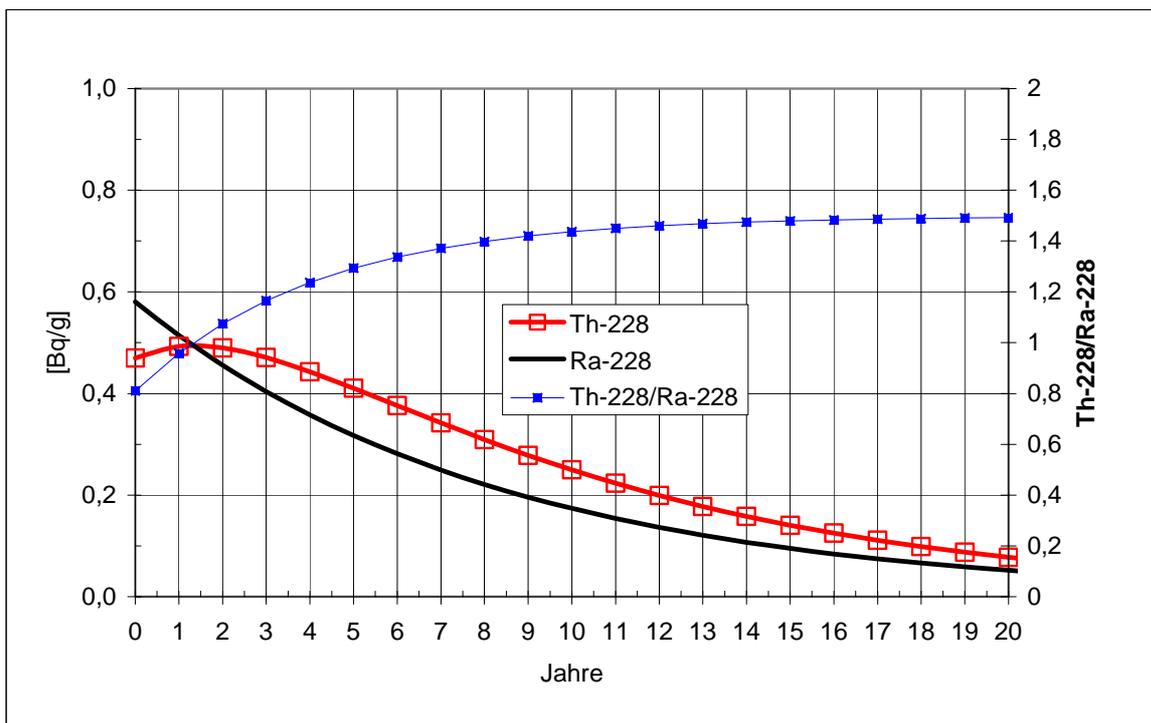
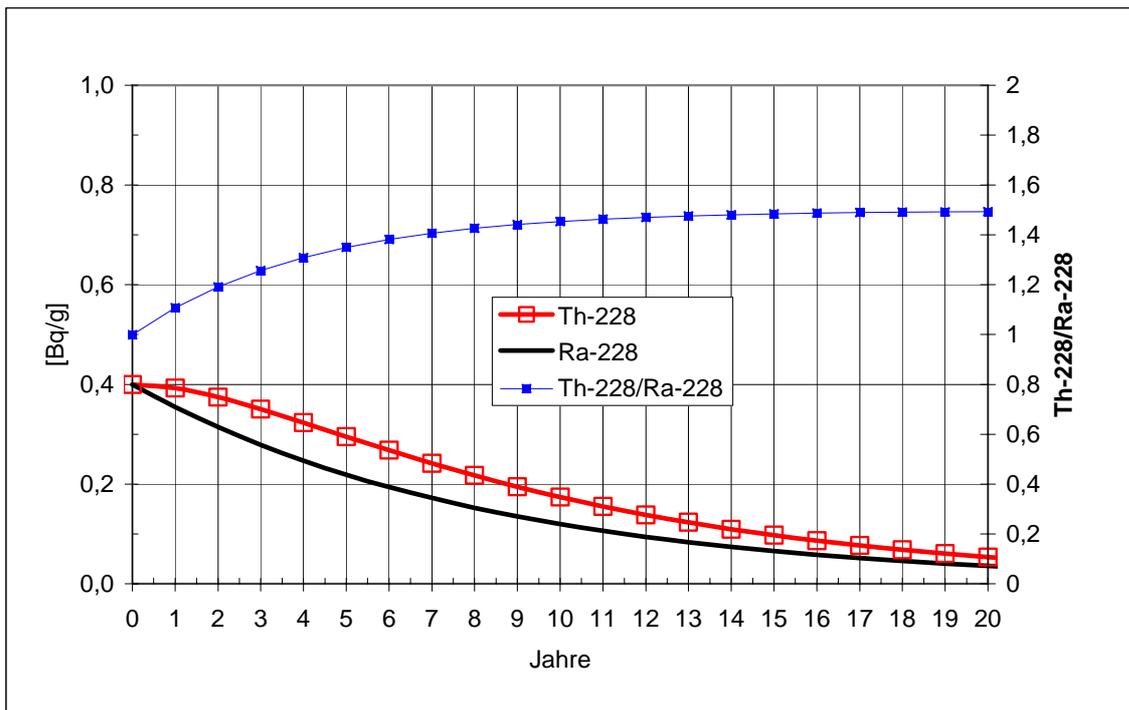


Abbildung 4-4: Zeitliche Entwicklung von  $a_{Th-228}$ ,  $a_{Ra-228}$  und des Aktivitätsverhältnisses  $a_{Th-228}/a_{Ra-228}$ , oberes Bild: nach 20 Jahren Ablagerung, unteres Bild: nach 10 Jahren Ablagerung

Die unterschiedlichen zeitlichen Entwicklungen der spezifischen Aktivität in Einzelschichten und der Gesamtablagerung sind beispielhaft in Abbildung 4-5 und Abbildung 4-6 dargestellt. Jede der 4 Schichten repräsentiert (bei gleicher Ablagerungsrate) eine Ablagerungsdauer von 5 Jahren. Die Ablagerung selbst enthalte nur Ra-228 und kein Th-228.

Die zeitliche Entwicklung der spezifischen Ra-228-Aktivität in den einzelnen Schichten ist in der Abbildung 4-5 dargestellt. In der zuerst abgelagerten untersten (bei Scales innersten, d.h. unmittelbar auf der Rohrrinnenfläche abgelagerten 1. Schicht) ist nach 20 Jahren die mittlere spezifische Ra-228-Aktivität auf 2,5 Bq/g abgeklungen, während die spezifische Ra-228-Aktivität der obersten 4. Schicht mit 15 Bq/g am größten ist. Nach Beendigung der Ablagerung (im Beispiel nach jeweils 5 Jahren) wird der Abfall der Kurve steiler, da dann ausschließlich der radioaktive Zerfall wirkt und die Nachlieferung von „frischem“ Material entfällt. 10 Jahre nach Beendigung der Ablagerung (Gesamtzeit 30 Jahre) ist die spezifische Ra-228-Aktivität in der ersten Schicht auf 0,74 Bq/g, in einer Mischprobe der Gesamtablagerung auf 2,25 Bq/g abgefallen.

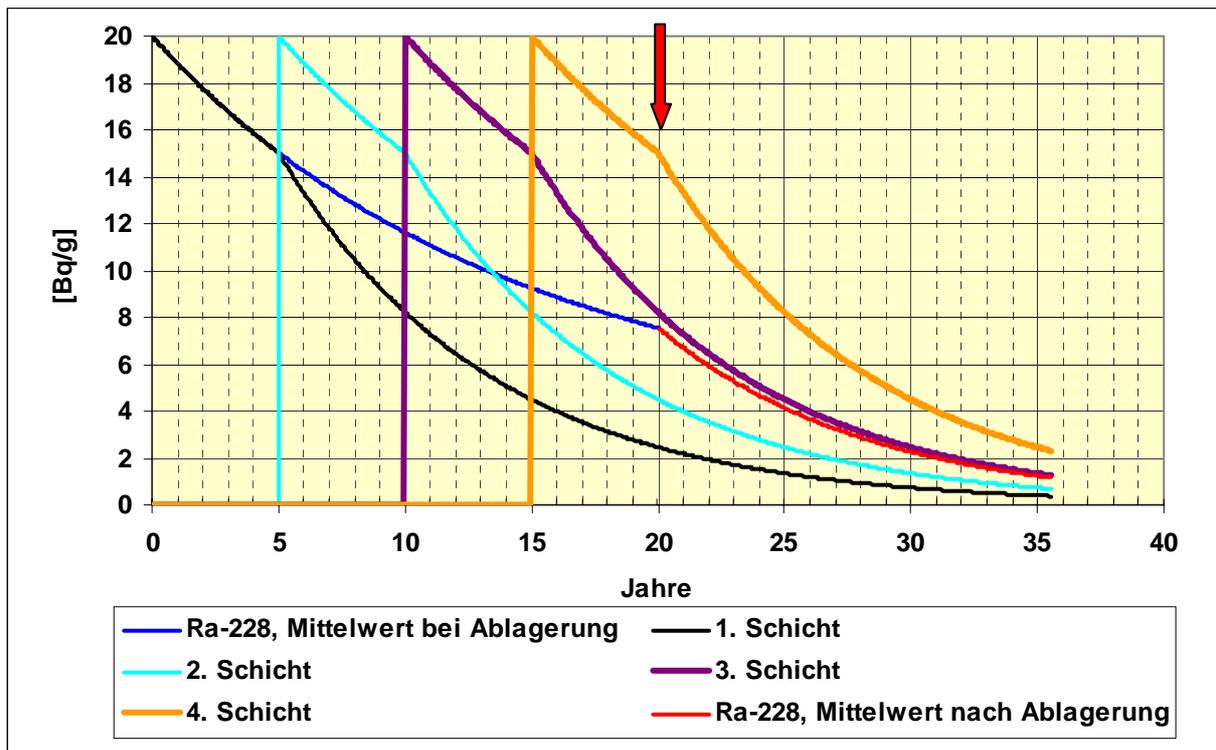


Abbildung 4-5: Zeitliche Entwicklung von  $^{228}\text{Ra}$  für eine Ablagerung aus 4 einzelnen Schichten, Parameter s. Text, die Ablagerung ist beispielhaft nach 20 Jahren beendet

Die zugehörige zeitliche Entwicklung von  $^{228}\text{Th}$  zeigt Abbildung 4-6. In der ersten (bei Scales z.B. innersten, d.h. unmittelbar auf der Rohrrinnenfläche abgelagerten Schicht) ist nach 20 Jahren die mittlere spezifische  $^{228}\text{Th}$ -Aktivität auf 3,6 Bq/g abgeklungen, während die spezifische  $^{228}\text{Th}$ -Aktivität der letzten (obersten) 4. Schicht zu diesem Zeitpunkt noch nach Beendigung der Ablagerung mit 8,7 Bq/g etwas geringer

als der Maximalwert des Nachwachsens von ca. 11 Bq/g ist. Nach weiteren 10 Jahren (Gesamtzeit 30 Jahre) fällt die spezifische Th-228-Aktivität der innersten und äußersten Schicht auf 1,1 Bq/g bzw. 6,3 Bq/g ab. Die spezifische Th-228-Aktivität der Mischprobe beträgt dann ca. 3,3 Bq/g.

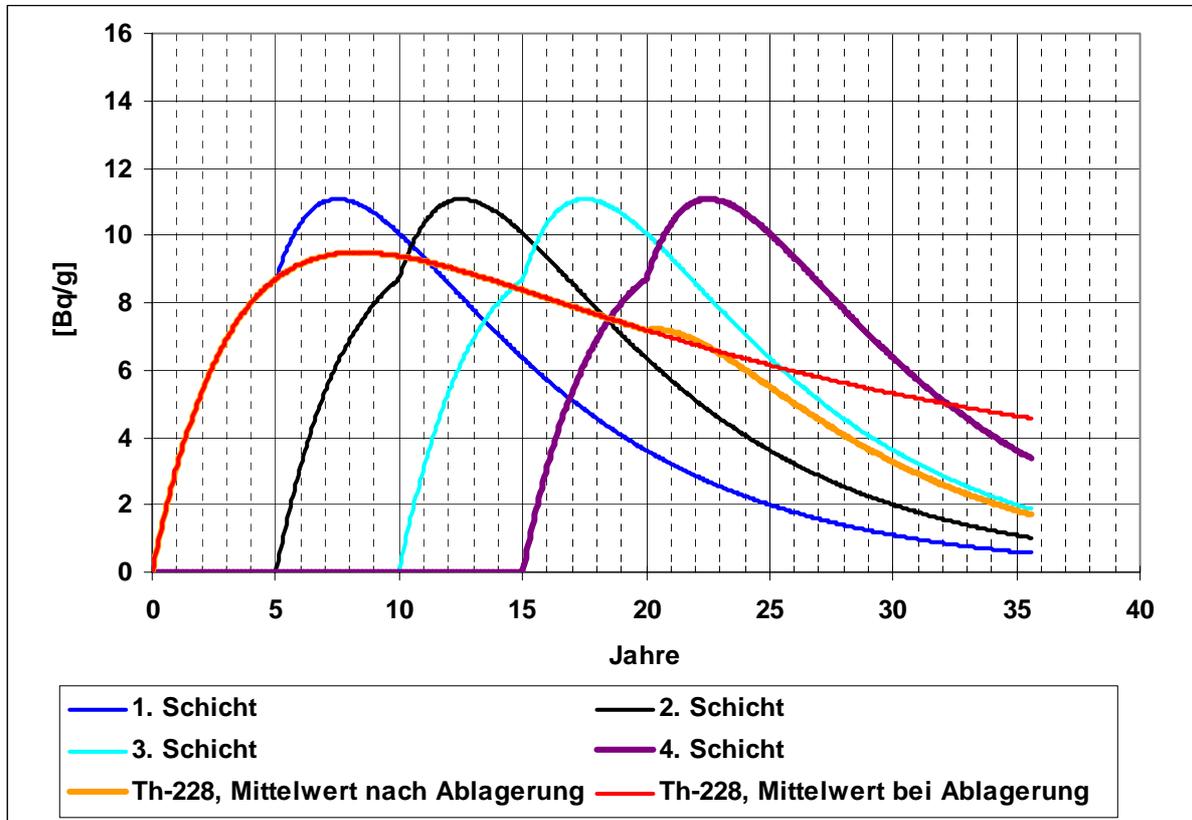


Abbildung 4-6: Zeitliche Entwicklung von  $a_{\text{Th-228}}$  für einzelne Schichten einer Ablagerung, Parameter s. Text

Die zeitliche Entwicklung der mittleren spezifischen Aktivitäten sowie des Aktivitätsverhältnisses Th-228/Ra-228 in der Gesamtschicht während und nach der Ablagerung ist in der Abbildung 4-7 dargestellt.

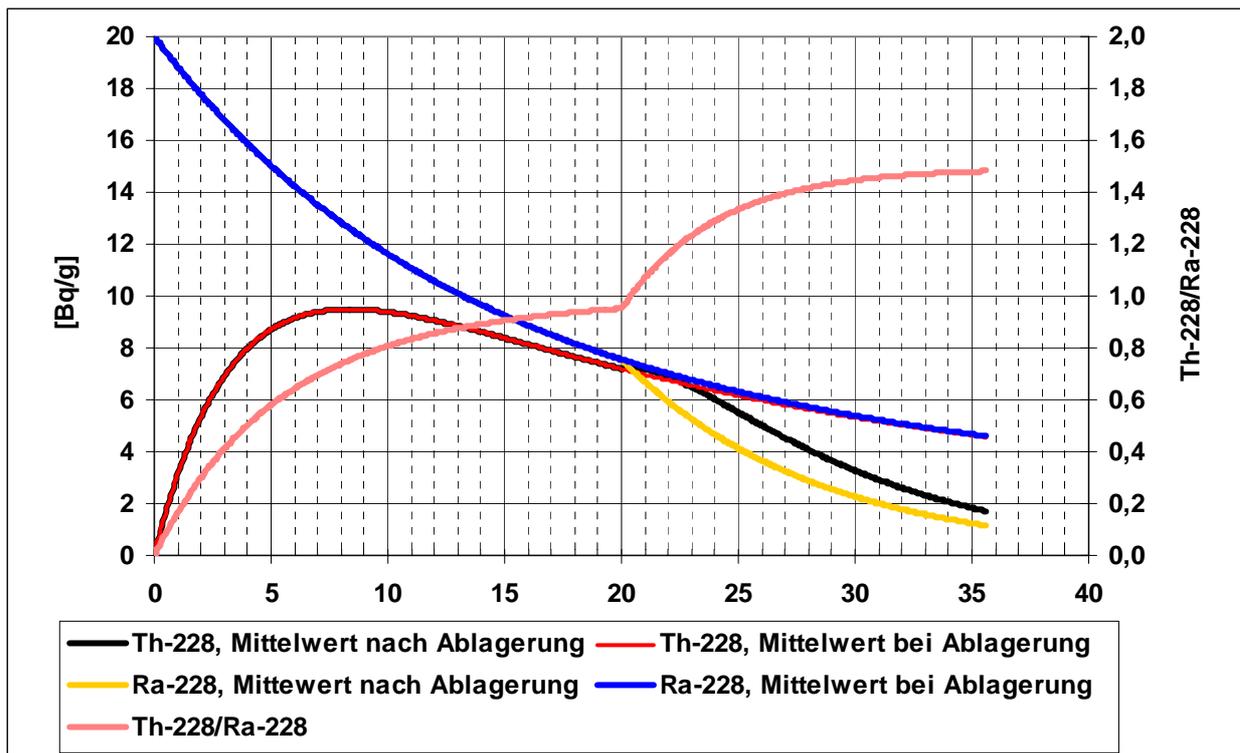


Abbildung 4-7: Zeitliche Entwicklung von Ra-228 und Th-228 für eine über 20 Jahre abgelagerte Schicht während ( $t < 20$  Jahre) und nach ( $t > 20$  Jahre) der Ablagerung

Aus diesen Darstellungen folgt, dass sich aus dem Aktivitätsverhältnis Th-228/Ra-228 eine Rekonstruktion des Ablagerungsprozesses nur für sehr junge Ablagerungen (bis ca. 5 Jahre) eindeutig ableiten lässt. Die aus dem Aktivitätsverhältnis Th-228/Ra-228 ableitbare Zeit entspricht der (mittleren) Zeitdifferenz zwischen Eintrag von Ra-228 in die Ablagerung und Probenahme, Messung. Da nach einem längeren Ablagerungsprozess das Aktivitätsverhältnis Th-228/Ra-228 zum Zeitpunkt der Beendigung der Ablagerung nicht bekannt ist, kann eine Datierung praktisch kaum noch erfolgen. Bei einer hinreichend genauen Bestimmung des Aktivitätsverhältnisses Th-228/Ra-228 könnte allerdings eine Aussage getroffen werden, ob das untersuchte Material zum Zeitpunkt der Beprobung noch durch Ablagerungsprozesse nachgeliefert wurde (Th-228/Ra-228 ca. 1) oder ob der Ablagerungsprozess schon seit mehreren Jahren abgeschlossen war (Th-228/Ra-228 ca. 1,5).

#### 4.2.3 Nachwachsen von Th-228 bei kontinuierlicher Ablagerung von Ra-228 unter Berücksichtigung des Mutternuklids Th-232

In den obigen Ableitungen ist das Nachwachsen von Th-228 bei kontinuierlicher Ablagerung von Ra-228 unter der Annahme erfolgt, dass sich in der Ablagerung kein Th-232 befindet. Wird zum Zeitpunkt  $t=0$  Ra-228 abgelagert und enthält die Ablagerung einen gewissen Anteil Th-232 in dem Ra-228 und Th-228 im radioaktiven Gleichgewicht mit Th-232 stehen („Th-232sec“), sind z.B. die entsprechenden Zeitentwicklungen (27) und (28) der spezifischen Aktivitäten durch

$$a_{\text{Ra-228}}(t) = a_{\text{Th-232}} + a_{\text{Ra-228}}^{\text{ex}}(0) \cdot e^{-\frac{t}{\tau_{\text{Ra-228}}}} \quad (29)$$

und

$$a_{\text{Th-228}}(t) = a_{\text{Th-232}} + a_{\text{Ra-228}}^{\text{ex}}(0) \cdot \left\{ \frac{\tau_{\text{Ra-228}}}{\tau_{\text{Ra-228}} - \tau_{\text{Th-228}}} \left[ e^{-\frac{t}{\tau_{\text{Ra-228}}}} - e^{-\frac{t}{\tau_{\text{Th-228}}}} \right] \right\} \quad (30)$$

gegeben. Die Anfangsbedingungen sind durch  $a_{\text{Ra-228}}(t=0) = a_{\text{Th-232}} + a_{\text{Ra-228}}^{\text{ex}}(0)$  und  $a_{\text{Th-228}}(t=0) = a_{\text{Th-232}}$  gegeben, wobei  $a_{\text{Ra-228}}^{\text{ex}}(0)$  die nicht durch langlebige Vorgängernuklide gestützte Überschuss- („Excess“-)Aktivität bezeichnet.

Die zeitliche Entwicklung der spezifischen Aktivitäten Ra-228 und Th-228 eines abgelagerten Materials sowie das Aktivitätsverhältnis Th-228/Ra-228 sind in der Abbildung 4-8 für  $a_{\text{Th-232}} = 0,03$  Bq/g und  $a_{\text{Ra-228}} = 0,2$  Bq/g beispielhaft dargestellt. Nach einer Lagerung von mehr als 20 Jahren, erreicht das Aktivitätsverhältnis

$$\frac{a_{\text{Th-228}}(t=20\text{ a})}{a_{\text{Ra-228}}(t=20\text{ a})} = \frac{a_{\text{Th-232}} + a_{\text{Ra-228}}^{\text{ex}}(0) \frac{\tau_{\text{Ra-228}}}{\tau_{\text{Ra-228}} - \tau_{\text{Th-228}}} \left[ e^{-\frac{20\text{ a}}{\tau_{\text{Ra-228}}}} - e^{-\frac{20\text{ a}}{\tau_{\text{Th-228}}}} \right]}{a_{\text{Th-232}} + a_{\text{Ra-228}}^{\text{ex}}(0) \cdot e^{-\frac{20\text{ a}}{\tau_{\text{Ra-228}}}}} \approx 1 \quad (31)$$

den asymptotischen Wert von 1. Wichtig ist zu konstatieren, dass wegen des Th-232-Anteils der oben diskutierte Grenzfall

$$\frac{a_{\text{Th-228}}(t > 10\text{ a})}{a_{\text{Ra-228}}(t > 10\text{ a})} \approx \frac{\tau_{\text{Ra-228}}}{\tau_{\text{Ra-228}} - \tau_{\text{Th-228}}} = 1,5$$

nicht erreicht wird.

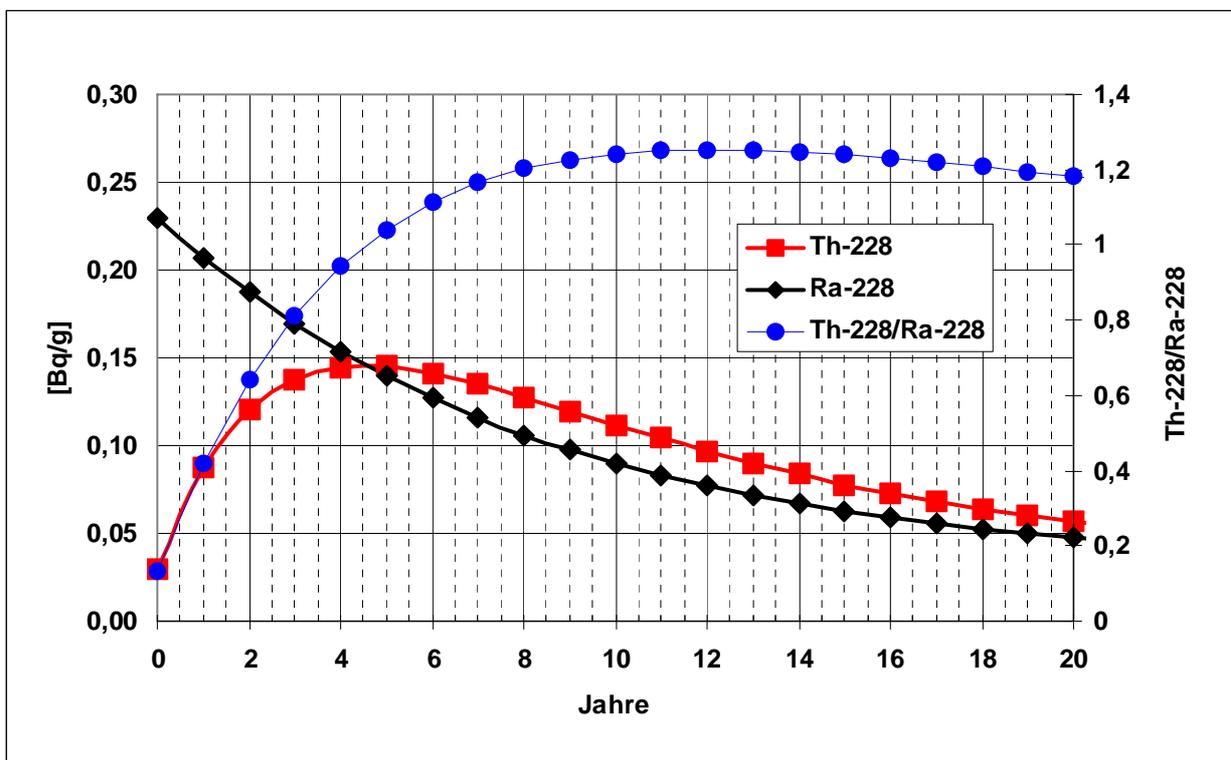


Abbildung 4-8: Zeitliche Entwicklung der spezifischen Aktivität und des Aktivitätsverhältnisses Th-228/Ra-228 eines abgelagerten Ra-228-haltigen ( $a_{Ra-228} = 0,23 \text{ Bq/g}$ ) und Th-232-haltigen ( $a_{Th-232} = 0,03 \text{ Bq/g}$ ) Materials

Ist die spezifische Th-228-Anfangsaktivität ebenfalls nicht Null, entwickelt sich die Th-228-Aktivität in Analogie zu Gl. (28) in der Form

$$a_{Th-228}(t) = a_{Th-232} + a_{Ra-228}(0) \cdot \left\{ \frac{\tau_{Ra-228}}{\tau_{Ra-228} - \tau_{Th-228}} \left[ e^{-\frac{t}{\tau_{Ra-228}}} - e^{-\frac{t}{\tau_{Th-228}}} \right] \right\} + a_{Th-228}(0) \cdot e^{-\frac{t}{\tau_{Th-228}}} \quad (32)$$

Die zeitliche Entwicklung der spezifischen Aktivitäten eines abgelagerten Materials sowie das Aktivitätsverhältnis Th-228/Ra-228 sind in der Abbildung 4-9 für  $a_{Th-232} = 0,03 \text{ Bq/g}$  und  $a_{Th-228}(0) = a_{Ra-228}(0) = 0,23 \text{ Bq/g}$  beispielhaft dargestellt. Es ist zu erkennen, dass das Aktivitätsverhältnis nach ca. 8 - 10 Jahren das Maximum von ca. 1,3 erreicht und dessen Größe vom Wert der spezifischen Aktivität von Th-232 abhängt. Für  $a_{Th-232} = 0,06 \text{ Bq/g}$  würde der maximale Wert bei 1,24 und  $a_{Th-232} = 0,02 \text{ Bq/g}$  bei 1,34 liegen.

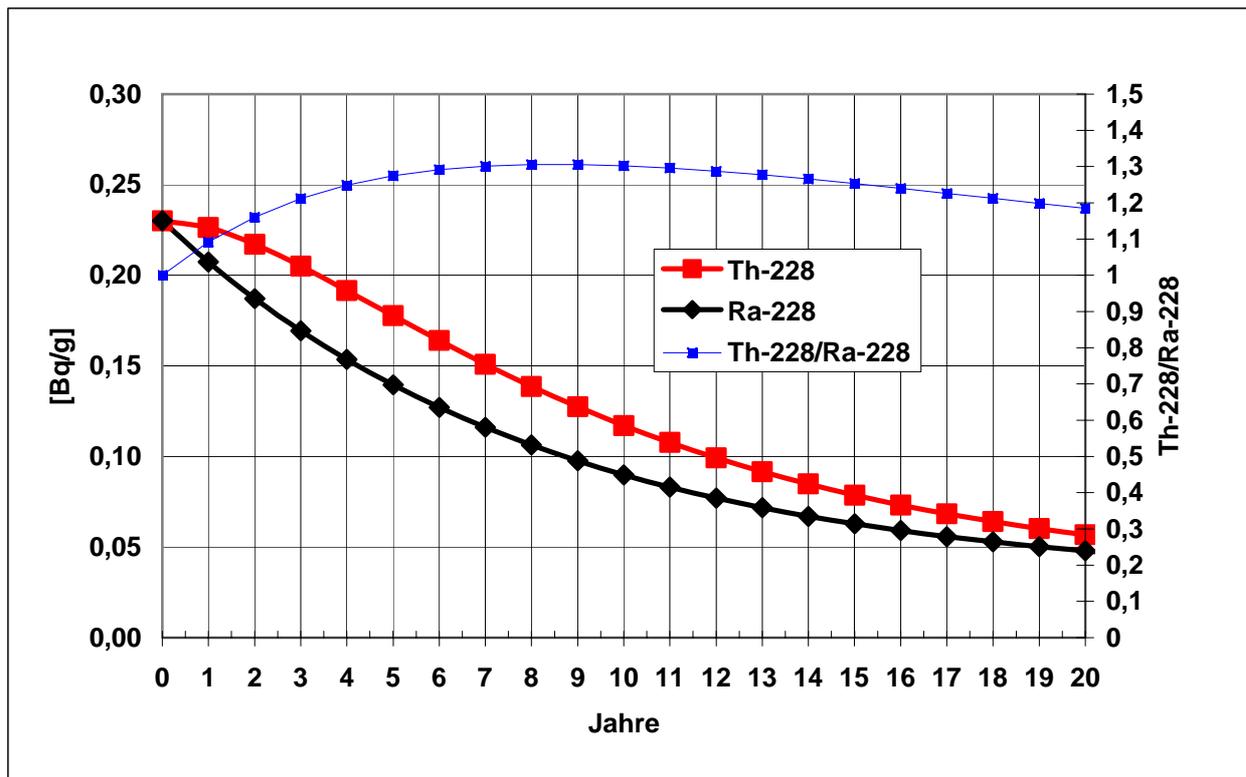


Abbildung 4-9: Zeitliche Entwicklung der spezifischen Aktivität und des Aktivitätsverhältnisses Th-228/Ra-228 mit  $A_{\text{Ra-228}}(0) = 0,23 \text{ Bq/g}$ ,  $a_{\text{Th-228}}(0) = 0,2 \text{ Bq/g}$  und  $a_{\text{Th-232}} = 0,03 \text{ Bq/g}$ .

## 5 Die Nuklide Ra-226, Pb-210

### 5.1 Nachwachsen von Pb-210 aus kontinuierlich abgelagerten Ra-226

In Analogie zum Nachwachsen von Th-228 aus abgelagertem Ra-228 kann das Nachwachsen von Pb-210 aus dem Ra-226 betrachtet werden. Dabei ist jedoch zu berücksichtigen, dass aufgrund der Mobilität von Rn-222 ein radioaktives Gleichgewicht möglicherweise nicht erreicht wird.

Der Einfachheit nehmen wir zunächst an, dass Rn-222 nicht vom Entstehungsort wegtransportiert wird. In dem Fall gilt für die zeitliche Entwicklung der spezifischen Pb-210-Aktivität in einem kontinuierlich abgelagerten Ra-226-Material

$$a_{\text{Pb-210}}(t) = a_{0,\text{Ra-226}} \frac{\tau_{\text{Ra-226}}}{t} \left\{ \left[ 1 - e^{-\frac{t}{\tau_{\text{Pb-210}}}} \right] + \frac{\tau_{\text{Ra-226}}}{\tau_{\text{Ra-226}} - \tau_{\text{Pb-210}}} \left[ -e^{-\frac{t}{\tau_{\text{Ra-226}}}} + e^{-\frac{t}{\tau_{\text{Pb-210}}}} \right] \right\} \quad (33)$$

mit

$$\tau_{\text{Pb-210}} = 22,3 \text{ a} / \ln(2) = 32,2 \text{ a}$$

Die Anfangsbedingung lautet  $a_{\text{Pb-210}}(t=0) = 0$ .

Für Zeiträume  $t < \tau_{\text{Pb-210}}$  kann  $a_{\text{Pb-210}}(t)$  nach  $t$  entwickelt werden, so dass sich

$$a_{\text{Pb-210}}(t) \approx \frac{a_{0,\text{Ra-226}} \cdot \tau_{\text{Ra-226}}}{t} \left\{ \frac{1}{2} \frac{t^2}{\tau_{\text{Ra-226}} \cdot \tau_{\text{Pb-210}}} \right\} \quad (34)$$

ergibt, d.h. die mittlere spezifische Pb-210-Aktivität der gesamten Schicht entwickelt sich zunächst linear mit der Ablagerungszeit.

In der Abbildung 5-1 ist die exakte Zeitentwicklung der spezifischen Pb-210-Aktivität nach Gl. (33) dargestellt. Nimmt man an, dass nach  $t_s = 20$  Jahren die Ablagerung beendet ist, so erreicht nach diesem Zeitraum die spezifische Pb-210-Aktivität der gesamten Schicht 5,1 Bq/g, d.h. etwa 25% der spezifischen abgelagerten Ra-226-Aktivität. Die lineare Abschätzung (34) würde für diesen Zeitraum 6,2 Bq/g liefern. Aus der Abbildung 5-1 ist des weiteren ersichtlich, dass die spezifische Pb-210-Aktivität nach Beendigung der Ablagerung zunächst linear ansteigt und somit deutlich höher ist als die einer Probe, die zu einem späteren Zeitpunkt ( $t > 20$ Jahre) entnommen wird, wobei immer noch Ra-226 kontinuierlich abgelagert wird.

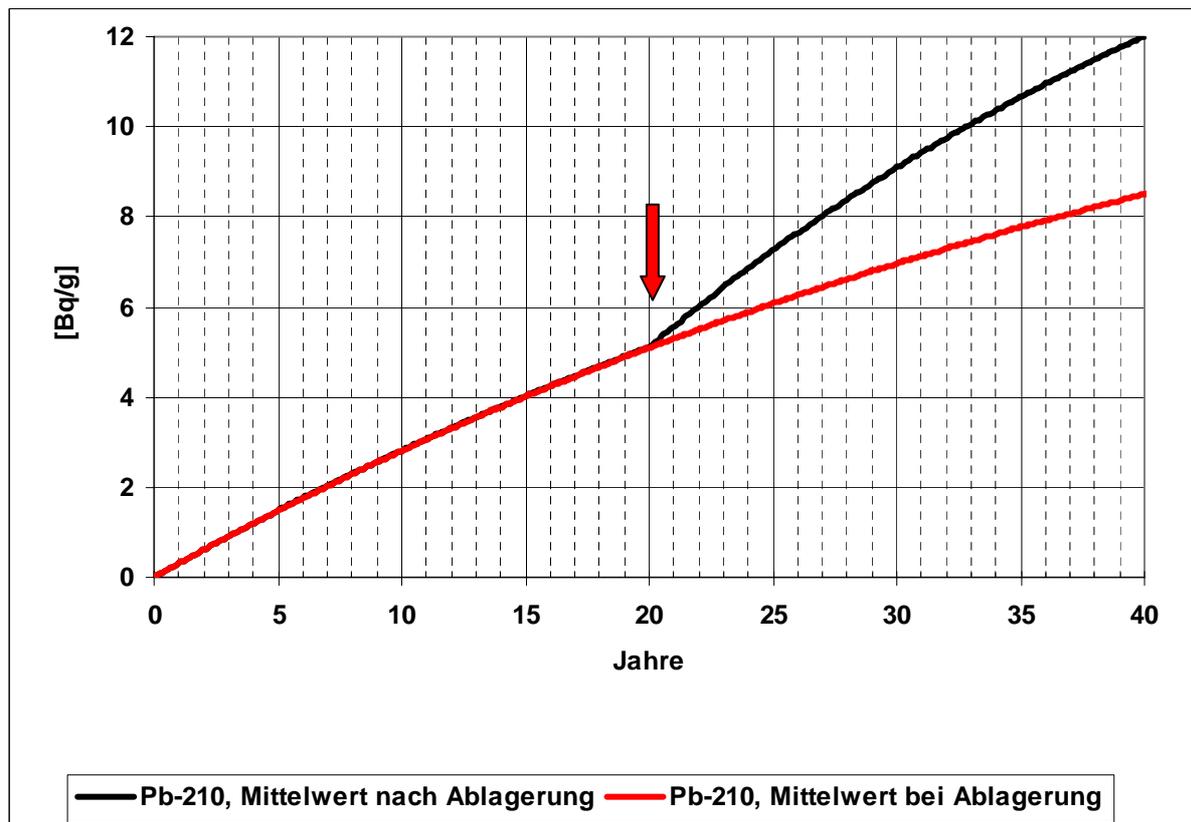


Abbildung 5-1: Zeitliche Entwicklung der abgelagerten spezifischen Aktivität  $a_{\text{Pb-210}}$ . Erläuterungen s. Text

## 5.2 Nachwachsen von Pb-210 im abgelagerten Material

Nach Beendigung der Ra-226-Ablagerungsprozesse entwickelt sich die spezifische Pb-210-Aktivität nach dem Zerfallsgesetz in der Form

$$a_{\text{Pb-210}}(t > t_s) = a_{\text{Ra-226}} \left[ 1 - e^{-\frac{t-t_s}{\tau_{\text{Pb-210}}}} \right] + a_{\text{Pb-210}}(t_s) \cdot e^{-\frac{t-t_0}{\tau_{\text{Pb-210}}}}, \quad (35)$$

Hier ist  $a_{\text{Ra-226}}$  die experimentell einfach bestimmbare mittlere spezifischen Aktivitäten von Ra-226 in der Schicht. Die mittlere spezifische Aktivität von Pb-210 zum Zeitpunkt  $t_s$  ist messtechnisch in der Regel nicht mehr bestimmbar, wenn, wie bei Altlasten üblich, erst nach dem Abschluss der Prozesse das Material untersucht wird.

Aus der Abbildung 5-1 ist ersichtlich, dass nach einer weiteren Lagerungszeit von weiteren 20 Jahren die mittlere spezifische Pb-210-Aktivität der gesamten Schicht ca. 12 Bq/g beträgt, d.h. die spezifische Pb-210-Aktivität ist immer noch etwa um die Hälfte geringer als die von Ra-226. Würde der Ablagerungsprozess kontinuierlich weitergehen, wäre die spezifische Aktivität der dann doppelt so dicken Schicht 8,5 Bq/g.

Die zeitliche Entwicklung der spezifischen Aktivität in einzelnen Schichten der Ablagerung ist in der Abbildung 5-2 dargestellt, wobei jede der 4 Schichten eine Ablagerungsdauer von 5 Jahren repräsentiert. Auch hier sind, wie in Abbildung 5-1 dargestellt, zum Vergleich die Ergebnisse angegeben, wenn der Ablagerungsprozess kontinuierlich weitergehen würden.

In der untersten (bei Scales der unmittelbar auf der Rohinnenfläche abgelagerten Schicht) wird nach 20 Jahren eine mittlere spezifische Pb-210-Aktivität von 8,4 Bq/g erreicht, während die spezifische Aktivität der obersten 4. Schicht lediglich 1,5 Bq/g beträgt. Nach einer Zeit von weiteren 20 Jahren ist die spezifische Pb-210-Aktivität der innersten und äußersten Schicht auf 13,8 Bq/g bzw. 8,1 Bq/g angewachsen, d.h. 70% bzw. 41%, des Maximalwerts werden erreicht.

Die hier betrachteten Beispiele gelten nur, wenn Rn-222 nicht aus der Ablagerung migrieren kann. Da vor allem bei gut gasdurchlässigen Schichten an der Grenzfläche zur Luft ein signifikanter Teil des Radons entweichen kann, ist das Erreichen eines Aktivitätsgleichgewichtes Pb-210-Ra-226 in den oberen Schichten solcher Ablagerungen nicht zwingend. Geht man z.B. für Scales von experimentell bestimmten Emanationskoeffizienten von  $E=0,2$  aus [1], bedeutet dies, dass die im Gleichgewicht zu erwartenden Pb-210-Aktivitäten um 20% reduziert werden müssen.

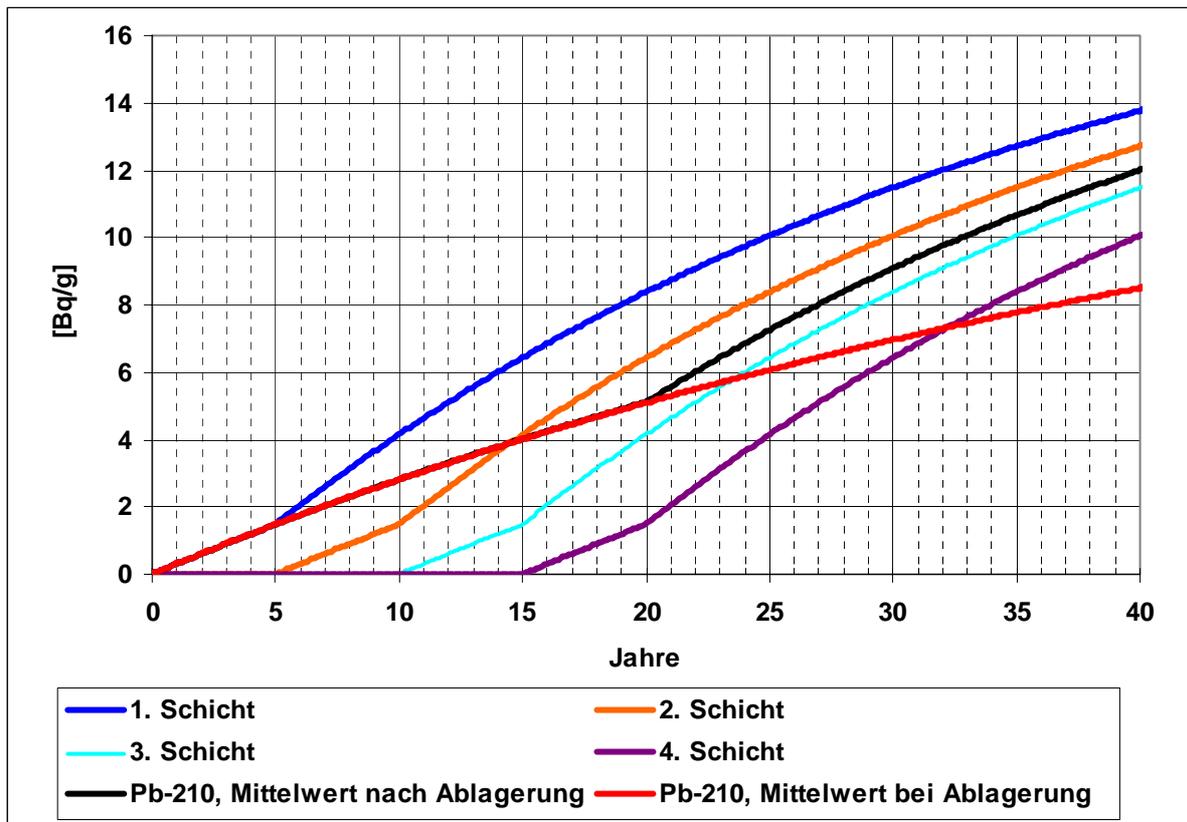


Abbildung 5-2: Zeitliche Entwicklung der spezifischen Aktivität  $a_{\text{Pb-210}}$  der sukzessiv abgelagerten 5-Jahresscheiben

### 5.3 Pb-210-Entwicklung in Scales durch direkte Anlagerung und Zerfall von Rn-222 im radonhaltigen Wasser oder Gas

Die sich in den Scales akkumulierende Pb-210-Aktivität ist nicht nur durch den radioaktiven Zerfall der ursprünglich abgelagerte Ra-226-Aktivität bedingt, sondern kann zusätzlich durch eine direkte Ablagerung von im Wasser gelösten Pb-210 sowie durch den Zerfall von Rn-222 entstehen, das im Wasser oder im Gas mittransportiert wird.

Der Effekt einer direkten Ablagerung von im Wasser gelösten Pb-210 an der Rohrwand wird durch die Differentialgleichung (6) beschrieben. Wird dabei kein Ra-226 abgelagert (weil im Wasser nicht gelöst), dann gilt

$$\frac{dA_{\text{Pb-210}}(t)}{dt} = J_{\text{Pb-210}} \cdot F_0 - \lambda_{\text{Pb-210}} \cdot A_{\text{Pb-210}}(t) \quad (36)$$

Als Lösung mit der Anfangsbedingung  $A_{\text{Pb-210}}(0) = 0$  erhält man die Funktion

$$A_{\text{Pb-210}}(t) = J_{\text{Pb-210}} \cdot F_0 \cdot \tau_{\text{Pb-210}} \cdot \left[ 1 - e^{-\frac{t}{\tau_{\text{Pb-210}}}} \right] \quad (37)$$

wobei die Ablagerungsrate  $J_{\text{Pb-210}}$  die pro Einheitsfläche und Jahr abgelagerte Pb-210-Aktivität beschreibt. Diese Ablagerungsrate ist der im Wasser gelösten Pb-210-Aktivitätskonzentration  $C_{\text{Pb-210}}^w$  [Bq/l] und der durch das Rohr pro Jahr strömenden Wassermenge  $Q^w$  proportional, so dass sich die Rate in der Form

$$J_{\text{Pb-210}} = \frac{\alpha_{\text{Pb-210}}}{F_0} Q^w C_{\text{Pb-210}}^w \quad (\text{Einheit: Bq m}^{-2} \text{ a}^{-1}) \quad (38)$$

darstellen lässt. Hier ist  $\alpha_{\text{Pb-210}}$  ein dimensionsloser Proportionalitätsfaktor, der den Pb-210-Transfer in die Scaleschicht beschreibt. Damit gilt

$$A_{\text{Pb-210}}(t) = \alpha_{\text{Pb-210}} \cdot Q^w \cdot C_{\text{Pb-210}}^w \cdot \tau_{\text{Pb-210}} \cdot \left[ 1 - e^{-\frac{t}{\tau_{\text{Pb-210}}}} \right]. \quad (39)$$

Während der Nutzung der Rohre kann sich Pb-210 auch durch den Zerfall von Rn-222 im radonhaltigem Wasser oder in den strömenden Gasen anreichern. Die Zeitentwicklung der abgelagerten Aktivität wird wiederum durch eine Funktion vom obigen Typ beschrieben, wobei in dem Fall entweder die Radonkonzentration im Wasser  $C_{\text{Rn-222}}^w$  [Bq/l] oder die Radonkonzentration im Gas  $C_{\text{Rn-222}}^g$  [Bq/m<sup>3</sup>] einzusetzen sind. Die beiden vorgenannten Prozesse sind durch eigene Proportionalitätsfaktoren  $\alpha$  gekennzeichnet.

Wegen der gleichen Zeitabhängigkeit der Aktivitätsentwicklungsfunktion können alle 3 Beiträge in der Form einer allgemeinen Rate

$$J_{\text{Pb-210}}^* = \frac{\alpha_{1,\text{Pb-210}}}{F_0} Q^w C_{\text{Pb-210}}^w + \frac{\alpha_{2,\text{Pb-210}}}{F_0} Q^w C_{\text{Rn-222}}^w + \frac{\alpha_{3,\text{Pb-210}}}{F_0} Q^g C_{\text{Rn-222}}^g \quad (40)$$

zusammengefasst werden. Wird auch Ra-226 mit abgelagert, so ergibt sich in völliger Analogie zu der oben abgeleiteten Gl. (33) für das Nachwachsen von Pb-210 für den Zeitraum  $t < t_s$  ( $t_s$  - Zeitraum des Ablagerungsprozesses) die zeitliche Entwicklung der spezifischen Pb-210 Aktivität in der Form

$$a_{\text{Pb-210}}(t) = \frac{(J_{\text{Ra-226}} + J_{\text{Pb-210}}^*) \tau_{\text{Ra-226}}}{J_{\text{M}} \cdot t} \cdot \left\{ \left[ 1 - e^{-\frac{t}{\tau_{\text{Pb-210}}}} \right] + \frac{\tau_{\text{Ra-226}}}{\tau_{\text{Ra-226}} - \tau_{\text{Pb-210}}} \left[ -e^{-\frac{t}{\tau_{\text{Ra-226}}}} + e^{-\frac{t}{\tau_{\text{Pb-210}}}} \right] \right\} \quad (41)$$

Nach Beendigung der Ablagerung ( $t > t_s$ ) entwickelt sich die Pb-210-Aktivität gemäß

$$a_{\text{Pb-210}}(t > t_s) = a_{\text{Ra-226}} \cdot \left[ 1 - \exp\left(-\frac{t - t_s}{\tau_{\text{Pb-210}}}\right) \right] + a_{\text{Pb-210}} \cdot \exp\left(-\frac{t - t_s}{\tau_{\text{Pb-210}}}\right), \quad (42)$$

wobei  $a_{\text{Pb-210}}$  und  $a_{\text{Ra-226}}$  die experimentell bestimmten spezifischen Aktivitäten von Ra-226 und Pb-210 zum Zeitpunkt  $t_s$  bezeichnen.

Ist die Dauer des Prozesses  $t_s$  bekannt (z.B. als Betriebszeit einer Fördersonde) und ist zum Untersuchungszeitpunkt  $a_{\text{Pb-210}} > a_{\text{Ra-226}}$ , kann aus der Differenz die Größe  $J_{\text{Pb-210}}$  abgeschätzt werden. Welcher konkrete Prozess diesen Aktivitätsfluss bedingt, d.h. direkte Ablagerung von im Wasser gelöstem Pb-210 oder Zerfall von Rn-222, kann nur aus der Kenntnis der Prozessabläufe näher spezifiziert werden.

Die Prozessanalyse kann weiter aufgelöst werden, wenn die (Scale-)proben schichtweise abgetragen und die spezifischen Aktivitäten der relevanten Radionuklide bestimmt werden. In solchem Fall gelten die Modellgleichungen des Kapitels 5.2 für die Einzelprobe.

#### 5.4 Die Nuklide Pa-231, Ac-227

Von den Nukliden der U-235 Reihe ist das Ac-227 über sein Tochternuklid Th-227 relativ gut mittels Gammaskopie bestimmbar. Prinzipiell ist auch Pa-231 gammaskopie messbar, allerdings nur mit wesentlich geringerer Empfindlichkeit. Daher kann das Nuklidpaar Ac-227, Pa-231 in der Regel nicht für analoge Aussagen genutzt werden, wie es für Ra-228, Th-228 und Pb-210 demonstriert wurde. Grundsätzlich ist aber auch das Aktivitätsverhältnis Ac-227/Pa-231 als Indikator für Prozessrekonstruktionen und die Ermittlung des „Alters“ von Ablagerungen nutzbar. Nach bisheriger Kenntnis sind es allerdings weniger die NORM-bildenden Sedimentations- und Ablagerungsprozesse als hydrometallurgische Prozesse der Erzaufbereitung, bei denen Fraktionierungen von Ac-227 beobachtbar werden (s. Teil I, Kapitel 6.2.3).

## 6 Zusammenfassung und Schlussfolgerungen

Durch Auswertung von Radionuklidanalysen in Hinblick auf Nuklidverhältnisse (Aktivitätsverhältnisse) können Prozesse der Bildung von NORM/TENORM in ihrem zeitlichen Ablauf erkannt und beurteilt werden. Bei einer solchen Auswertung ist es jedoch wesentlich, die Einheit von Prozess – Probenahme – Analyse zu beachten. Dies zeigt sich insbesondere bei der Interpretation der Ergebnisse der Radionuklidanalytik. Wird z.B. bei radiumdominierten Ablagerungen auf Anlagenteilen, auf denen bis zum Zeitpunkt der Probenahme noch Ablagerungsprozesse stattfanden, die gesamte Schicht beprobt, so stellt die gemessene Aktivität eine mittlere Aktivität über den gesamten Zeitraum der Ablagerung dar und resultiert als Ergebnis von Anlagerungs- und radioaktiven Zerfallsprozessen. Wird dagegen eine Beprobung erst nach einem gewissen Zeitraum nach Beendigung der Produktion (der Ablagerungsprozesse) durchgeführt, ist nur noch das Zeitverhalten der Zerfallsprozesse ins Kalkül zu ziehen. Auch hier ist für eine Bewertung der radiologischen Situation von Wichtigkeit, wie die Probe genommen wurde.

So sind z.B. in Scales, abgelagert in Rohren, in den meisten Fällen nach einer Ablagerungszeit von ca. 20 Jahren die spezifischen Aktivitäten von Ra-228 und damit auch Th-228 in den zuerst abgelagerten Schichten vernachlässigbar gering, während sie in den zuletzt abgelagerten Schichten noch sehr bedeutend sein können. Wird bei der Probenahme nur die oberste Schicht aufgenommen, sind deshalb Aussage über die spezifische Ra-228- Aktivitäten der Gesamtschicht entsprechend zu relativieren, wobei immer die Einheit von Prozess – Probenahme – Analyse zu beachten ist.

Die Situation ist in gewisser Weise umgekehrt, wird die spezifische Aktivität von Pb-210 betrachtet, das im Defizit zum Vorgänger Ra-226 abgelagert wird. Auf den zuerst abgelagerten Schichten ist nach ca. 20 Jahren Ablagerungszeit Pb-210 aus dem Zerfall von Ra-226 nachgewachsen, während in den zuletzt abgelagerten Schichten das Pb-210-Nachwachsen meistens vernachlässigbar gering ist. Dies zeigt wiederum, dass die Höhe der spezifischen Aktivität immer in Bezug auf die entnommenen Masse (Schichthöhe) möglicherweise zu relativieren ist und die Probenahme immer eine besondere Rolle spielt.

Dies hier Gesagte trifft auch in analoger Weise auf die Untersuchung von Ablagerungen in Behältern oder auf in Fässern gesammelten NORM-Rückständen zu. Auch hier kann nur die Einheit von Prozess – Probenahme – Analyse letztlich zu belastbaren Ergebnissen hinsichtlich von spezifischen Aktivitäten führen.

Zusammenfassend können somit folgende Aussagen getroffen werden:

*Aktivitätsverhältnisse vor Beendigung der Ablagerungsprozesse*

$$\frac{\text{Th} - 228}{\text{Ra} - 228} < 1 \quad (\text{unabhängig von der Ablagerungszeit})$$

Experimentelle Ergebnisse zeigen jedoch in Einzelfällen Aktivitätsverhältnisse von Th-228/Ra-228 > 1. Diese entwickeln sich, wenn z.B. im Produktionszeitraum für gewisse Zeiträume keine oder vernachlässigbar geringe Ra-228-Anlagerungen stattgefunden haben.

$$\frac{\text{Pb} - 210}{\text{Ra} - 226} \approx \frac{1}{2} \frac{t}{\tau_{\text{Pb}-210}} \quad (\text{bis zu Zeiten } t \text{ von ca. } < 30 \text{ Jahren anwendbar})$$

Auch hier zeigen die experimentellen Ergebnisse Abweichungen von dieser Regel, da P-210 nicht nur aus Ra-226 nachgebildet, sondern über andere Prozesse direkt angelagert werden kann.

*Aktivitätsverhältnisse nach Beendigung der Ablagerungsprozesse*

$$\frac{\text{Th} - 228}{\text{Ra} - 228} \rightarrow 1,5 \text{ (stark abhängig von der Lagerungszeit, bei "frischen" Proben meistens } \leq 1)$$

$\frac{\text{Pb} - 210}{\text{Ra} - 226} \leq 1$  (stark abhängig von der Art der Bildung, bei sehr alten Proben, Lagerung  $t > 30$  Jahre, wird tendenziell Aktivitätsgleichgewicht erreicht, wenn Radonmigration keine Rolle spielt)

## 7 Quellenverzeichnis

---

- [1] Berichte der IAF - Radioökologie GmbH zu radiologischen Eigenschaften von Rückständen aus der Erdgasindustrie, Dresden 2000 (unveröffentlicht)

# **Abschlussbericht Teil I zum Vorhaben StSch 4416**

## **Anhang B**

### **Industrielle Hinterlassenschaften: Phosphat verarbeitende Industrie**

(StSch 4416 Leitfaden NORM-Rückstände, Teil B, Komm.-Nr. 5.18.001.3.1)

**Bearbeiter:**

Dr. Dietmar Weiss,

Sebastian Feige,

Birgit Peters

**GRS Berlin, Juni 2005**

## Inhaltsverzeichnis

1	Einführung.....	3
2	Chemische Fabrik Budenheim.....	3
2.1	Betriebsgeschichte .....	3
2.2	Rückstandsarten und -mengen .....	4
2.3	Durchgeführte Untersuchungen und Ergebnisse .....	6
3	Chemische Werke vorm. H. & E. Albert Amöneburg.....	6
3.1	Betriebsgeschichte .....	6
3.2	Rückstandsarten und -mengen .....	7
3.3	Durchgeführte Untersuchungen und Ergebnisse .....	7
4	Chemische Fabrik Wülfel Just & Dittmar .....	8
4.1	Betriebsgeschichte .....	8
4.2	Rückstandsarten und -mengen .....	8
5	Chemische Werke Schönebeck AG.....	9
5.1	Betriebsgeschichte .....	9
5.2	Rückstandsarten und -mengen .....	9
6	Industriestandort Bitterfeld-Wolfen.....	9
6.1	Geschichte des Standortes .....	9
6.2	Rückstandsarten und -mengen .....	10
6.2.1	Überblick .....	10
6.2.2	Spittelwasser/Mulde .....	11
6.2.3	Deponie Freiheit III.....	12
6.2.4	Deponie Freiheit IV .....	12
7	Industriestandort Wittenberg-Piesteritz.....	12
7.1	Geschichte des Standortes .....	12
7.2	Rückstandsarten und -mengen .....	12
8	Guano-Werke Nordenham.....	13
8.1	Betriebsgeschichte .....	13
8.2	Rückstandsarten und -mengen .....	15
8.3	Durchgeführte Untersuchungen und Bewertung der Untersuchungsergebnisse.....	15
9	Sonderabfalldeponie Knapsack-Hürth .....	15
9.1	Betriebsgeschichte .....	15
9.2	Rückstandsarten und -mengen .....	17
9.3	Durchgeführte Untersuchungen und Bewertung der Untersuchungsergebnisse.....	17
10	Gipswerke Lüneburg.....	17
11	Zusammenfassung und Schlussfolgerungen.....	17
12	Quellen.....	18

## 1 Einführung

Der vorliegende Bericht bezieht sich im Wesentlichen auf Abschnitt 3.3.1 „Regionale Schwerpunkte der früheren Rohphosphataufbereitung“ sowie auf Abschnitt 3.3.2 „Mengen und Aktivitäten dieser Rückstände“. Vom TÜV Süd wurden dazu Rechercheergebnisse aus dem Vorhaben StSch 4386 (Erfassung und radiologische Bewertung von Hinterlassenschaften mit NORM-Materialien aus früheren Tätigkeiten und Arbeiten einschließlich der modellhaften Untersuchung branchentypischer Rückstände) zu gegenwärtigen und ehemaligen Standorten der Phosphat verarbeitenden Industrie zur Verfügung gestellt. Auf dieser Grundlage wurden detaillierte Recherchen zum Status Quo dieser Hinterlassenschaften durchgeführt.

Es wurden die nachfolgend genannten Standorte recherchiert, die sowohl ehemalige Produktionsstandorte der Rohphosphat-Verarbeitung als auch gegenwärtig noch betriebene bzw. anderweitig genutzte Industriestandorte betreffen.

1. Chemische Fabrik Budenheim KG, Mainz
2. Chemische Werke vorm. H. & E. Albert, Wiesbaden, Standort Mainz-Amöneburg
3. Chemische Fabrik Wülfel Just & Dittmar, Hannover-Wülfel
4. Chemische Werke Schönebeck AG, Schönebeck
5. Industriestandort Bitterfeld-Wolfen, u.a. I.G. Farbenindustrie AG Bitterfeld
6. Industriestandort Wittenberg-Piesteritz, u.a. I.G. Farbenindustrie AG Piesteritz
7. Guano Werke Nordenham, Nordenham
8. Fa. Hoechst, Knapsack
9. Gipswerk Lüneburg

## 2 Chemische Fabrik Budenheim

### 2.1 Betriebsgeschichte

Die Chemische Fabrik Budenheim wurde im Jahre 1908 als „Chemische Fabrik Utz & Hensel“ gegründet. Das Firmengelände befindet sich direkt am Rhein in Budenheim am westlichen Ortsrand von Mainz (Abb. 1). Ursprünglich wurden damals weinsaure Salze aus Rohweinstein gewonnen. Ab 1918 kam es zum Ausbau des Werkes mit dem Produktionsschwerpunkt Phosphat-Herstellung (nasschemischen Herstellung von Phosphorsäure und Kalziumphosphat). Seit 1923 gehört das Unternehmen zum Konsolidierungskreis der Oetkergruppe. Gegenwärtig werden an diesem Standort von etwa 650 Mitarbeitern fast 1.000 verschiedene Produkte in einer Gesamtmenge von jährlich etwa 200.000 Tonnen, vornehmlich Phosphate hergestellt. Dabei wird ausschließlich importierte „technische“ Phosphorsäure (industrial and food grade) gereinigt (alimentary grade) und weiterverarbeitet.

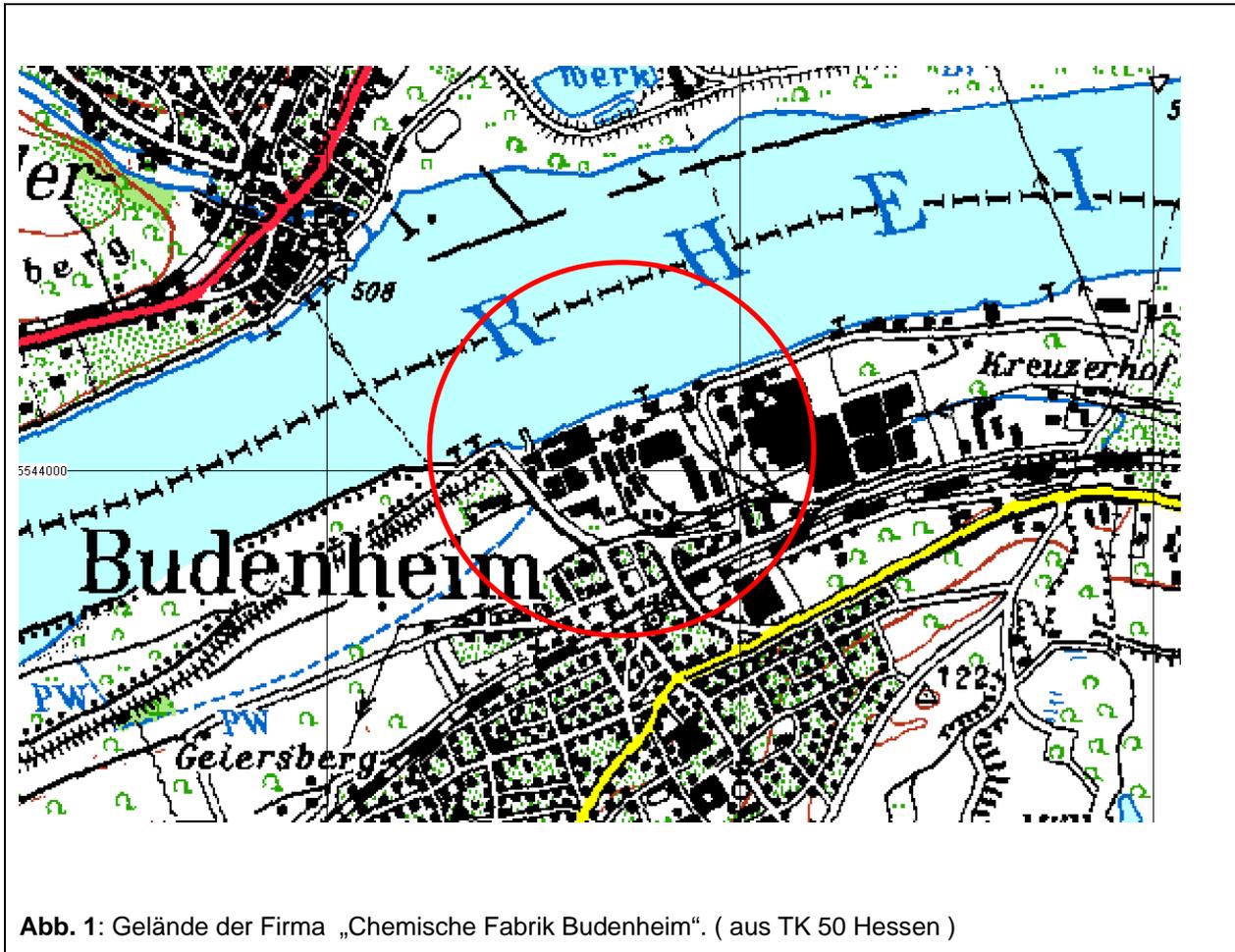


Abb. 1: Gelände der Firma „Chemische Fabrik Budenheim“. ( aus TK 50 Hessen )

## 2.2 Rückstandsarten und -mengen

Nach Angaben des TÜV Süd /TÜV 05a/ wurden im Bezugsjahr 1936 7.038 t Phosphorsäure (bezogen auf  $P_2O_5$ ) mit nass-chemischer Aufbereitung ( $H_2SO_4$ -Verfahren) hergestellt. Mengenmäßig fallen bei der Verarbeitung von drei Tonnen Rohphosphat zu einer Tonne  $P_2O_5$  ca. 4 – 5 Tonnen Phosphorgips an. Folglich ergeben sich für das Bezugsjahr 1936 etwa 28.000 t bis 35.000 t Phosphorgips. Hochgerechnet über den gesamten Zeitraum der Rohphosphatverarbeitung von 1918 bis Mitte der 1990er sind schätzungsweise mehr als 2 Mio. Tonnen Phosphorgips angefallen, über dessen Weiterverarbeitung oder Deponierung keine Angaben vorliegen. Auf dem gegenwärtigen Betriebsgelände der Chemischen Fabrik Budenheim AG (s. Abb. 2) sind keine Deponieflächen erkennbar.

Aus der gegenwärtigen Produktion von Phosphaten aus „technischer“ Phosphorsäure fallen nach Auskunft des Betreibers nur sehr geringe Rückstandsmengen an, die in Fässern verpackt in die Untertagedeponie (UTD) Herfa-Neurode verbracht werden.

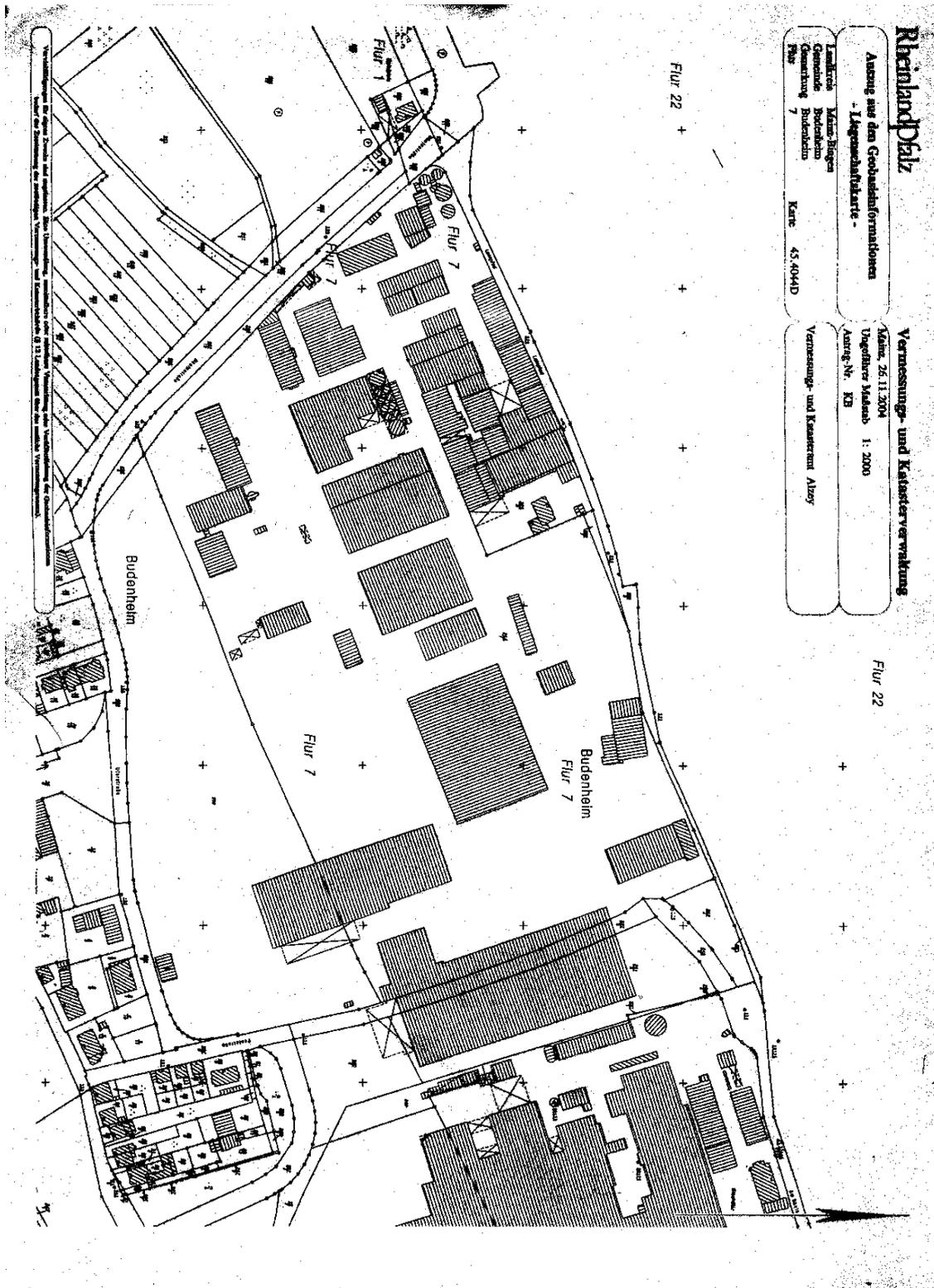


Abb. 2: Betriebsgelände „Chemische Fabrik Budenheim KG“

### 2.3 Durchgeführte Untersuchungen und Ergebnisse

Ursprünglich war vorgesehen, auf dem Betriebsgelände der Chemischen Fabrik Budenheim AG (s. Abb. 2) zunächst Messungen der  $\gamma$ -ODL vorzunehmen, um aus den Messergebnissen ggf. weitere Untersuchungen bzw. Probenentnahmen abzuleiten. Da die vorgesehenen ODL-Messungen von Seiten des Unternehmens nicht genehmigt wurden, konnten nur Messwerte von Messorten außerhalb des Betriebsgeländes gewonnen werden. Von 22 ODL-Messwerten lagen 21 Messwerte im Bereich von 60 nSv/h bis 110 nSv/h, d.h. sie repräsentierten ungefähr das geogene Niveau bzw. eine geringfügige Erhöhung je nach Untergrund (Boden mit bzw. ohne Bewuchs, versiegelte Flächen). Lediglich ein Messpunkt am nördlichen Betriebszaun wies mit 200 nSv/h auf eine diffuse Kontamination hin. Bodenproben wurden nicht entnommen.

## 3 Chemische Werke vorm. H. & E. Albert Amöneburg

### 3.1 Betriebsgeschichte

Die landwirtschaftlich-chemische Leimfabrik H. & E. Albert in Biebrich wurde im Jahre 1858 gegründet. Zweck der Gesellschaft war die Fabrikation von Phosphaten und Thomasmehl sowie von chemischen und pharmazeutischen Stoffen. Standorte waren neben Biebrich u.a. Duisburg und Dillingen. Die Standorte Duisburg und Dillingen gibt es offenbar nicht mehr. Die landwirtschaftlich-chemische Leimfabrik H. & E. Albert und die 1863 gegründete Farbstoff-Fabrik Wilhelm Kalle waren Ausgangspunkt des vor 130 Jahren gegründeten und nach diesen beiden Firmengründern benannten Industrieparks Kalle-Albert (s. Abb. 3). Auf diesem Gelände sind heute zahlreiche Unternehmen vornehmlich der chemischen Industrie mit insgesamt ca. 5.000 Mitarbeitern angesiedelt.

Die 1858 begonnene Produktion von Phosphatprodukten ging am Standort Industriepark Kalle-Albert bis 1970, zuletzt wurde insbesondere das Doppelsuperphosphat hergestellt. Ab 1970-1972 ist das Unternehmen auf die Produktion auf Alkanosulphonat, optische Aufheller und Celluloseäther umgestellt. 1981 folgten Produktionsanlagen für den Bleichaktivator TAED. Ab 1995 wurde das Werk durch die Höchst AG in einen Industriepfad umgewandelt.

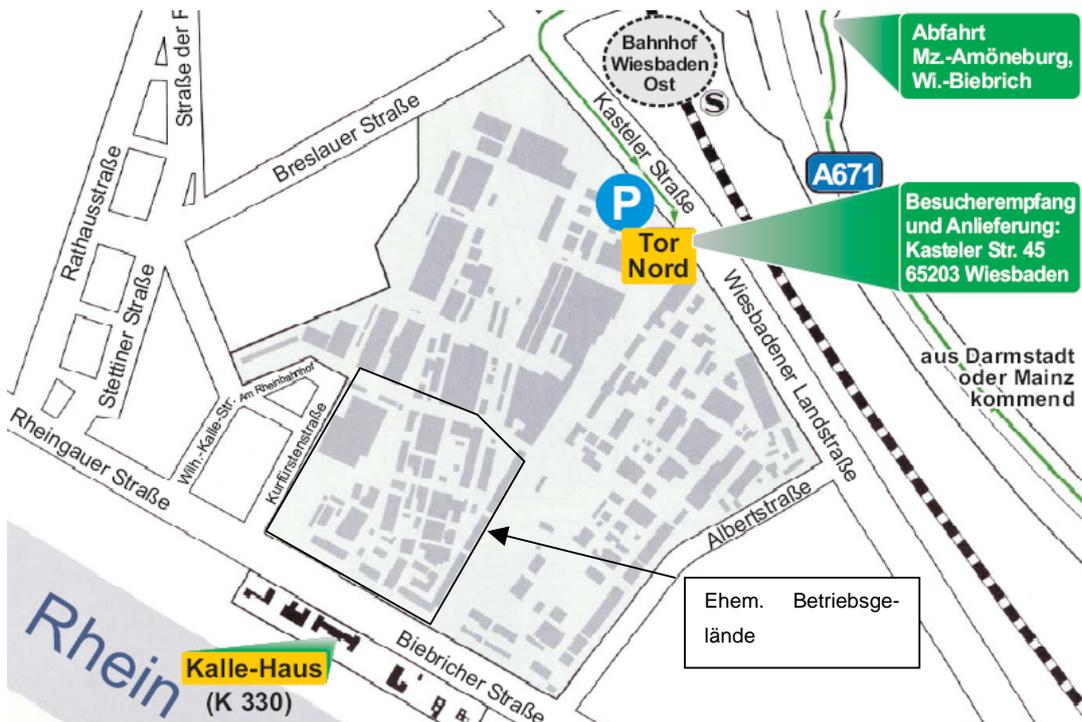


Abb. 3: Industriepark Kalle-Albert

### 3.2 Rückstandsarten und -mengen

Nach Angaben des TÜV Süd /TÜV 05/ wurden im Bezugsjahr 1936 2.203 t Phosphorsäure (bezogen auf  $P_2O_5$ ) mit nass-chemischer Aufbereitung ( $H_2SO_4$ -Verfahren) hergestellt. Mengenmäßig fallen bei der Verarbeitung von drei Tonnen Rohphosphat zu einer Tonne  $P_2O_5$  ca. 4 – 5 Tonnen Phosphorgips an. Folglich ergeben sich für das Bezugsjahr 1936 etwa 8.800 t bis 11.000 t Phosphorgips. Über Gesamtmengen an Rückständen (Phosphorgips) bzw. über dessen Weiterverarbeitung oder Deponierung liegen keine Angaben vor. Auf dem Gelände des Industrieparks sind keine Deponieflächen erkennbar.

### 3.3 Durchgeführte Untersuchungen und Ergebnisse

Durch die Universität Würzburg wurden Messungen der  $\gamma$ -ODL um das Gelände des Industrieparkes Kalle-Albert herum durchgeführt, da der Betreiber Messungen auf dem Gelände ohne Voranmeldung nicht zugestimmt hatte. Alle 22 ODL-Messwerte lagen im Bereich von 60 nSv/h bis 120 nSv/h, d.h. sie repräsentierten ungefähr das geogene Niveau bzw. eine geringfügige Erhöhung je nach Untergrund (Boden mit bzw. ohne Bewuchs, versiegelte Flächen).

## **4 Chemische Fabrik Wüfel Just & Dittmar**

### **4.1 Betriebsgeschichte**

Die „Chemische Fabrik Wüfel Just & Dittmar“ ist im Jahre 1871 in Hannover-Wüfel gegründet worden und stellt bis heute an demselben Standort Pflanzenschutzmittel sowie Laborchemikalien her. Vor und während des 2. Weltkrieges wurden zeitweise auch Phosphorsäure und phosphorsaure Salze für die Nahrungsmittel- und Arzneimittelindustrie hergestellt. Das Unternehmen hat sich heutzutage im Wesentlichen auf die Herstellung von Phosphorwasserstoff-Präparaten spezialisiert.

Zwischen 1939 und 1945 wurden chemisch reine Orthophosphorsäure, meta-Phosphorsäure, Calciumphosphid und Zinkphosphid produziert. Diese Produkte werden noch heute hergestellt bzw. verwendet. Ferner umfasste die Produktion in diesem Zeitraum Calciumhydrogenphosphat, Kaliumhydrogensulphat und Futtermittel auf Molkebasis, welche heute nicht mehr hergestellt werden.

In den Jahren 1947-1952 hat das Unternehmen britische Phosphor-Brandbomben auf dem Werksgelände gelagert und zur Herstellung von Phosphorsäure verwendet.

Seit dem Jahre 1978 werden an diesem Standort Begasungslehrgänge gemäß TRGS 512 zur Anwendung von eigenproduziertem Phosphorwasserstoff im Vorratsschutz und zur Schädlingsbekämpfung im Freiland durchgeführt. 1992 ist der Lehrgangsbereich ausgegliedert und die Firma Wüfel Seminar GmbH gegründet worden.

### **4.2 Rückstandsarten und -mengen**

Angaben zum Umfang der Phosphorsäureproduktion und den daraus resultierenden Rückständen liegen nicht vor. Offenbar war die Produktion von Phosphorsäure und phosphorsauren Salze von geringer Bedeutung und wurde nach dem 2. Weltkrieg nach Betreiberangaben nicht mehr durchgeführt.

Laut Auskunft der Firma Wüfel wurden bereits umfangreiche Messungen auf dem Gelände vorgenommen, bei denen aber ausschließlich Schwermetalle im Boden nachgewiesen wurden. Die Fabrik produziert heute hauptsächlich Phosphide, wobei anfallende Reste üblicherweise wieder in den Produktionsprozess eingebunden werden. Sollten dennoch einmal Reste auf die hauseigene Deponie gelangen, wären diese leicht flüchtig, da sie sich unter Luftwirkung sehr schnell zersetzen und somit in die Atmosphäre und nicht in den Boden gelangen.

## **5 Chemische Werke Schönebeck AG**

### **5.1 Betriebsgeschichte**

Die „Chemische Werke Schönebeck AG“ ist im Jahre 1907 in Schönebeck/Elbe als Munitionsfabrik gegründet worden. Das Gelände der ehemaligen Chemischen Werke Schönebeck AG ist heute nach einer umfangreichen Sanierung Standort folgender drei Firmen:

- Anhaltinische Chemischen Fabriken GmbH (ACF),
- Chemische Werke Schönebeck,
- SK Jagd- und Sportmunitions GmbH.

### **5.2 Rückstandsarten und -mengen**

Eine früher vorhandene Betriebsdeponie der seit 1907 ansässigen Chemischen Werke Schönebeck AG (oder auch Sprengstoffwerke Schönebeck) enthielt möglicherweise Phosphate. Jedoch wurden diese nur verwendet und nicht hergestellt. Alle in Frage kommenden Flächen wurden aber mittlerweile saniert und während der Sanierung wurde der Boden ausgetauscht. Messstellen sind nicht mehr vorhanden.

Keine der heute ansässigen Firmen verwendet Rohphosphat oder stellt Phosphorsäure bzw. Phosphate her.

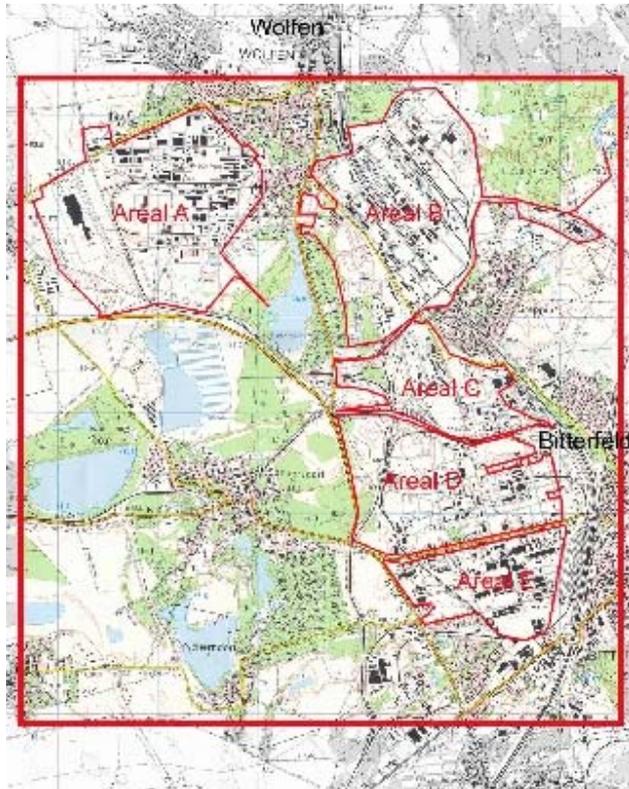
## **6 Industriestandort Bitterfeld-Wolfen**

### **6.1 Geschichte des Standortes**

Die Region Bitterfeld-Wolfen ist einer der ältesten Chemiestandorte Europas und gehört neben den Standorten Leuna/Lützkendorf/Schkopau und Witterberg-Piesteritz zum in Sachsen-Anhalt gelegenen Mitteldeutschen Chemiedreieck. Seit 1893 ist diese Region Standort für Großbetriebe der chemischen Industrie wie der Chemischen Fabrik Griesheim-Elektron und der Farbenfabrik Wolfen (1909). Dort erfolgte die Produktion von Chlor, Ätznatron und -kali, Schwefelsäure, Düngemitteln, Waschrohstoffen, Zement, Pflanzen- und Schädlingsbekämpfungsmitteln sowie Kunststoffen. 1925 folgt der Zusammenschluss zur I.G. Farbenindustrie AG. Nach 1946 gehörten die Werke zum Bestand der Sowjetischen Aktiengesellschaft „Mineral-Düngemittel“ und wurden 1952 unter den Namen VEB Elektrochemisches Kombinat Bitterfeld und VEB Farbenfabrik Wolfen an die DDR zurückgegeben. 1969 erfolgte die Bildung des VEB Chemiekombinat Bitterfeld unter Einbezug beider Betriebe, 1990 die Umwandlung des Stammbetriebes in die Chemie AG Bitterfeld-Wolfen.

Nach dem Konkurs der Chemie AG Bitterfeld-Wolfen 1994 wurde diese 1997 in die Chemieparkgesellschaft überführt. Seitdem wurde der gesamte Standort saniert, wobei der Boden, auch im Bereich ehemaliger Deponien, komplett ausgetauscht wurde. Anfallendes Erdgut wurde, ebenso wie zunächst thermisch und chemisch vorbehandelter weißer Phosphor, in unterirdische Sonderabfalldeponien entsorgt. Die sa-

nierten Flächen wurden dann abgedeckt und sind inzwischen nicht mehr auffindbar. Auch eine Lagerfläche für Phosphor-Arsen-Fässer aus Wehrmachtsproduktion wurde komplett saniert. 2001 wurde der Chemiapark privatisiert und befindet sich gegenwärtig im Besitz der Firmengruppe Preiss-Daimler.



**Abb. 4:** Standort Bitterfeld-Wolfen mit Darstellung der Sanierungsgebiete (Areale A – E)

## 6.2 Rückstandsarten und -mengen

### 6.2.1 Überblick

Für den Standort Bitterfeld-Wolfen waren 1992 insgesamt 18 Altablagerungen und Deponien ausgewiesen, von denen acht die Prioritätsstufe I aufwiesen. Phosphorverbindungen oder Rückstände der Phosphatverarbeitung spielten an diesem Standort nur eine untergeordnete Rolle. Das zeigt sich auch anhand des Rechercheergebnisses des TÜV Süd, wo für die ehemalige IG Farbenindustrie AG am Betriebsort Bitterfeld eine Erzeugung von elementarem Phosphor von lediglich 1.605 Tonnen für das Bezugsjahr 1936 ausgewiesen wird (vergl. z.B. mit IG Farben-Betriebsort Piesteritz: 17.440 t für 1936).

Nach der Übersicht der Altablagerungen und Deponien sind auch nur für die Sonderdeponie „Freiheit IV“ Phosphorverbindungen explizit genannt. Für andere Deponien, z.B. Sonderdeponie „Freiheit III“, sind nur allgemein „Industrieschlämme“ ausgewiesen, so dass Phosphatrückstände nicht auszuschließen sind.

Die Mitteldeutschen Sanierungs- und Entsorgungsgesellschaft mbH (MDSE) betreibt und saniert auf Grundlage eines Vertrages des Landes Sachsen-Anhalt und der BvS die Sonderabfalldeponien auf den Chemiestandorten des Landes und ist somit sowohl für die Deponien Freiheit III und IV als auch für die Deponie Griebö in Witterberg-Piesteritz zuständig.

Nachfolgend sind ausgewählte Altstandorte und Deponien aufgeführt, auf denen ggf. Phosphorverbindungen abgelagert waren. Alle Flächen sind bereits oder werden gegenwärtig saniert. Die Rückstände wurden in UTD verwahrt oder die Deponien wurden bzw. werden on-site nach TA Abfall saniert, d.h. sie sind mit einer Mehrschichtabdeckung versehen und haben eine Sickerwasserdrainage.

**Tabelle 1:** Ausgewählte Altablagerungen und Deponien am Standort Bitterfeld-Wolfen

Bezeichnung	Fläche [ha]	Volumen [Mio. m <sup>3</sup> ]	Wesentliche Inhaltsstoffe	Stand der Sanierung
Klärteiche Süd		1,0	Industrieschlämme, PCDD/F, Schwermetalle	abgeschlossen
Sonderdeponie Freiheit III	90	2,0	Industrieschlämme, Asche, Bauschutt, PAK, LHKW	Beendigung Ablagerung 2005; ordnungsgemäßer Deponieabschluss
Sonderdeponie Freiheit IV		10,0	Hg-haltige Asche, Phosphor-Verbindungen	Stilllegung 1996, Vorbereitung zur Nachnutzung
Grube Marie		0,5	Industrieschlämme, Fäkalien	?
Spittelwasser			Industrieschlämme, Schwermetalle, PAK, CKW	abgeschlossen

Bei der Prüfung von Proben aus verschiedenen Bodensanierungen und Rückbauvorhaben auf dem Gelände des Chemieparkes Bitterfeld wurden durch IAF Radioökologie im Jahr 2004 Materialien erhöhter Radioaktivität festgestellt. Unter anderem wurden aus einem Baufeld Bodenaushub mit Schlackeresten entsorgt, wobei es sich mit hoher Wahrscheinlichkeit um Phosphorschlacken handelte. Die spezifische Aktivität dieser Schlacken wurde von IAF Radioökologie ermittelt und betrug etwa 4 Bq/g U-238, Ra-226, 2 Bq/g Pb-210 und 1 Bq/g Th-232 und Tochterprodukte. Da der Bodenaushub nur geringe Anteile an Schlacke aufwies, konnte auf eine Entlassung der Abfälle nach § 98 StrlSchV verzichtet werden /HGN 05/.

### 6.2.2 Spittelwasser/Mulde

Im Rahmen eines Modellprojektes „Muldeau“ in den Jahren 1992 bis 1994 hat es umfangreiche Probenahmen sowohl in der Muldeau als auch im Schlick des Spittelwassers gegeben, bei denen keine Phosphorverbindungen in relevanten Mengen gefunden wurden.

### 6.2.3 Deponie Freiheit III

Die Deponie Freiheit III ist eine ehemalige Braunkohlegrube, in die etwa seit 1963 die Einlagerung von Sonderabfällen durch das Chemiekombinat Bitterfeld erfolgte. Die Beendigung der Ablagerung ist für 2005, die Sanierung durch hydraulische Sicherung und Oberflächenabdeckung für das Jahr 2006 geplant.

### 6.2.4 Deponie Freiheit IV

Die Nutzung der ehemaligen Braunkohlegrube als Deponie erfolgte ab 1954. Seit 1996 ist die Deponie gemäß § 36 Kreislaufwirtschafts-/Abfallgesetz stillgelegt. Mit Einstellung des Deponiebetriebes wurden Sicherungsarbeiten durchgeführt, die in der großflächigen Abdeckung mit kulturfrendlichen Böden, der Sicherung von verbliebenen Böschungen sowie der Sicherung gegen unbefugtes Betreten und Benutzen bestehen. Geplant ist, die Fläche der Deponie Freiheit IV eines Tages zur Nachnutzung zurückgeben zu können.

## 7 Industriestandort Wittenberg-Piesteritz

### 7.1 Geschichte des Standortes

Der Industriestandort Wittenberg-Piesteritz liegt in Sachsen-Anhalt und gehört ebenfalls zum mitteldeutschen Chemiedreieck. Die Reichsstickstoffwerke Piesteritz wurden 1915 zur Herstellung von Kalziumkarbid, Salpetersäure, Kalkstickstoff, später auch Ruß und Phosphor, gegründet. Nach dem Status einer Sowjetischen Aktiengesellschaft in den Jahren nach 1946, erfolgte 1953 die Umwandlung in das VEB Kombinat Piesteritz (ab 1979 VEB Kombinat Agrochemie Piesteritz) sowie eine Erweiterung der Produktpalette um phosphorsaure Salze, seltene Erden, Ammoniak und Harnstoff in den 60er und 70er Jahren. Aus dem VEB Kombinat Piesteritz gingen 1990 die Stickstoffwerke AG hervor, die 1993 in die SKW Stickstoffwerke Piesteritz umgewandelt wurden. Die SKW Stickstoffwerke Piesteritz produzieren gegenwärtig Stickstoffdüngemittel, Ammoniak, Harnstoff und Salpetersäure.

### 7.2 Rückstandsarten und -mengen

Nach Angaben des TÜV Süd wurden am Standort Piesteritz der IG Farbenindustrie AG im Bezugsjahr 1936 17.440 t Elementarphosphor (thermisches Verfahren) und 39.366 t Phosphorsäure (bezogen auf  $P_2O_5$ ) hergestellt; letztere mittels Schwefelsäureaufschluss. Daraus ergibt sich allein für das Bezugsjahr 1936 eine Rückstandsmenge von ca. 160.000 t bis 200.000 t Phosphogips. Über den Verbleib liegen nur wenige Informationen vor. Nach Angaben der zuständigen MDSE wurden zwar auf der Deponie Griebo Phosphatrückstände abgelagert, sie sind aber nicht wesentlich für das Gesamtschadstoffpotential.

Im Zeitraum vom 1990 bis 1993 wurden, bevorzugt in den Bereichen, die weiter betrieben werden sollten, erste Sanierungsarbeiten auf dem Gelände der Stickstoffwerke vorgenommen. 1998/99 wurde dann der gesamte Standort Wittenberg-Piesteritz aufgrund einer Gefahrenfeststellung des Landkreises komplett saniert. Dabei wurde der Boden auch im in Frage kommenden Areal der alten CWP bis in 2,5 m Tiefe ausgetauscht. Vor und nach der Sanierung durchgeführte Untersuchungen wurden in Form von Brennproben und nicht als chemische Analysen vorgenommen, so dass keine Messergebnisse vorliegen.

Auch das Betriebsgelände der 1994 aus dem Bereich Phosphorfolgeprodukte der Stickstoffwerke AG Wittenberg-Piesteritz hervorgegangenen Chemischen Werke Piesteritz (CWP) GmbH wurde komplett saniert. Es gibt heute weder eine Deponie noch Produktion auf dem Gelände.

Im früheren Nebenwerk des VEB Kombines Piesteritz, dem VEB Chemiewerk Coswig, wurden weder Phosphor noch Phosphate verarbeitet.

In Betrieb befand sich während der Recherche noch die ehemalige Betriebsdeponie des Stickstoffwerkes Piesteritz Grieco bei Wittenberg, die sich ebenfalls im Besitz der MDSE befindet (siehe Bitterfeld – Deponie Freiheit III und IV). Die Deponie ist seit 1920 in Betrieb und wird 2005 geschlossen. Bis 2009 soll der ordnungsgemäße Deponieabschluss (Profilierung und Sanierung) erfolgen. Die Deponie hat eine Fläche von ca. 45 ha. Wesentliche Schadstoffe sind nach Angaben der MDSE: MKW, PAK, Cyanide und Th-haltige Abfälle. Phosphate sind von untergeordneter Bedeutung.

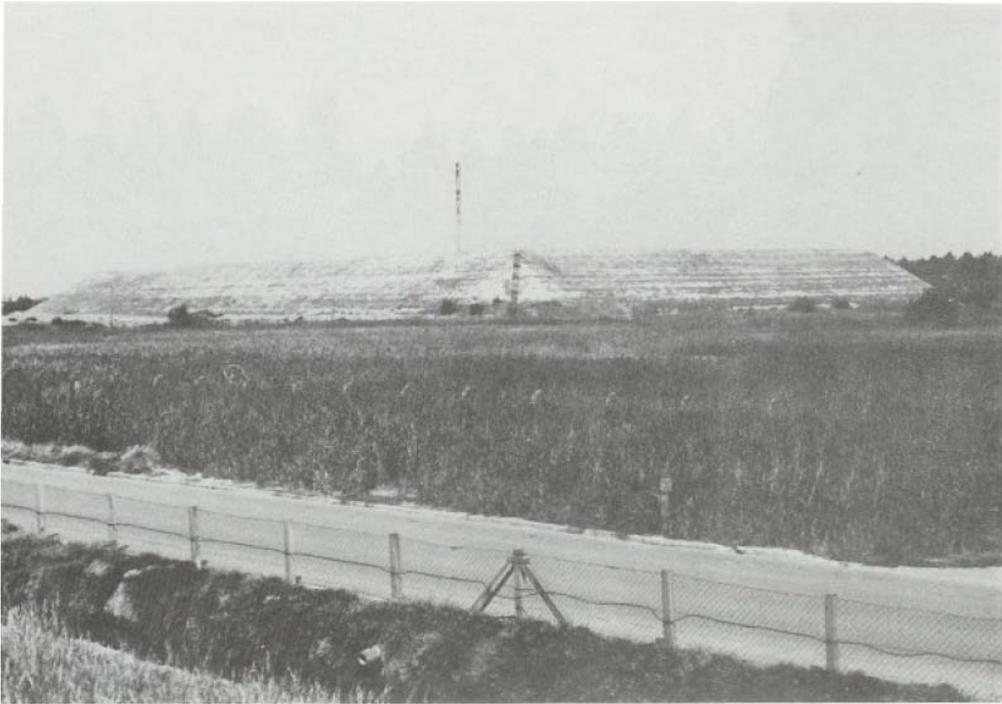
Obwohl nach Angabe des TÜV Süd /TÜV 05/ für den Standort eine Erzeugung von ca. 39.400 t Phosphorsäure und 17.440 t elementaren Phosphor für das Bezugsjahr 1936 ausgewiesen ist, ergaben die Recherchen weder Hinweise auf größere Deponien oder zu Verwertungswegen der schätzungsweise mehrer 10 Mio. t Rückstände aus der Rohphosphatverarbeitung.

Angaben zum Produktionsumfang von Phosphorsäure und Phosphatdüngemittel an diesem Standort zu Zeiten der DDR liegen nicht vor, ebenso zum Verbleib der Rückstände. Allerdings wurde in der DDR fast ausschließlich Kola-Apatit verarbeitet. Dieser weist eine sehr niedrige spezifische Aktivität natürlicher Radionuklide  $< 0.1$  Bq/g auf, so dass aus der Verarbeitung keine überwachungsbedürftigen Rückstände gemäß Anlage XII, Teil A der StrlSchV hervorgegangen sind.

## **8 Guano-Werke Nordenham**

### **8.1 Betriebsgeschichte**

Die Superphosphatfabrik Nordenham wurde 1906 gegründet und produzierte Düngemittel. 1956 wurde das Werk an die Guano Werke AG verkauft, die 1969 an die BASF AG angegliedert wurden. Das Werk wurde 1987 aus der Produktion genommen, 1988 geschlossen und das Gelände ab 1992 komplett saniert. Die auf dem Gelände befindliche Phosphat-Gips Deponie, die sog. „Gipshalde“ wurde 1994 saniert. Sie gehört heute der Stadt Nordenham. Die Deponie im unsanierten Zustand zeigt Abb. 5 und Abb. 6 verdeutlicht den gegenwärtigen Zustand.



**Abb. 5:** Foto der Phosphatgipsdeponie Nordenham aus dem Jahre 1984



**Abb. 6:** Sanierte und rekultivierte Phosphat-Gips Deponie Nordenham

## 8.2 Rückstandsarten und -mengen

Die Deponie wurde von 1964 bis 1967 zur Ablagerung des Phosphorgipses aus der Düngemittelproduktion der ehemaligen Guano-Werke verwendet. Im Wesentlichen wurde Florida-Phosphat verarbeitet. Insgesamt wurden ca. 300.000 t Gips aufgeschüttet.

Nach Daten von 1984 beträgt die mittlere Ra-226-Aktivität 0,29 Bq/g, die Pb-210-Aktivität 0,36 Bq/g und die U 238-Aktivität < 0,08 Bq/g.

Die Deponie ist mit einer mineralischen Deckschicht versehen. Abfließendes Oberflächenwasser wird erst in einem Ringgraben und dann über einen Kontrollschacht in einen Schaugraben geleitet. Regelmäßige Messungen zur Überwachung werden sowohl in Gräben als auch Grundwasser durch den Landkreis Wesermarsch vorgenommen.

## 8.3 Durchgeführte Untersuchungen und Bewertung der Untersuchungsergebnisse

Auf und in der Umgebung der Deponie wurden durch die GRS an 16 Messpunkten  $\gamma$ -ODL-Messungen durchgeführt. Die 16 Messwerte der  $\gamma$ -ODL lagen sowohl auf als auch in der unmittelbaren Umgebung der Deponie zwischen 82 nSv/h und 102 nSv/h. Sie entsprechen somit dem in der Umgebung ermittelten lokalen geogenen Niveau von 89 nSv/h.

Eine Sichtung von Ergebnissen der Grundwasserüberwachung der Deponie durch die Bearbeiter dieser Studie zeigte, dass die Phosphat-Konzentrationen in den GWMS im Abstrom auf gleichen bzw. an einzelnen Messpunkten sogar niedrigerem Niveau als in den GWMS im Anstrom liegen. Es ist deshalb nahe liegend anzunehmen, dass die Phosphatkonzentration im Grundwasser hier primär auf Einträge aus der Landwirtschaft zurückzuführen ist. Auch für weitere Inhaltsstoffe sind keine Auswirkungen der Deponie auf das Grundwasser zu erkennen, so dass seit 2005 das GW-Kontrollprogramm auf einen fünfjährigen Messzyklus umgestellt wurde.

Die vorliegenden Messergebnisse zeigen eindeutig die Wirksamkeit der nach TA Abfall durchgeführten Sanierungsmaßnahmen, die im vorliegenden Fall auch für Phosphorgips als überwachungsbedürftiger Rückstand gemäß Anlage XII Teil A Ziffer 2 der StrlSchV die aus dem Strahlenschutz anzuleitenden Anforderungen an ihre Deponierung erfüllen würden.

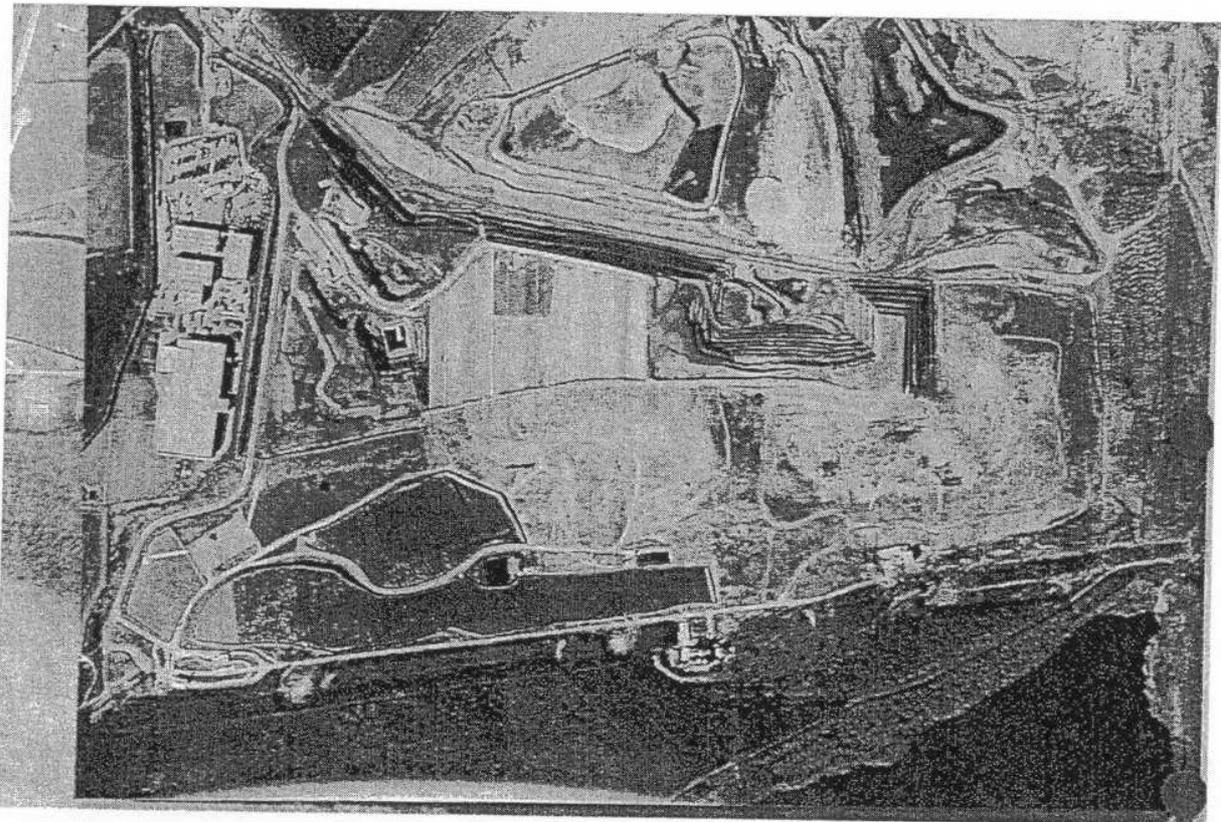
# 9 Sonderabfalldeponie Knapsack-Hürth

## 9.1 Betriebsgeschichte

Die Sonderabfalldeponie (SAD) Knapsack (Abb. 6) liegt im ehemaligen Braunkohletagebau „Vereinigte Ville“ in Nordrhein-Westfalen und wird seit 1975 betrieben. Die ursprüngliche Werksdeponie der Hoechst AG Werk Knapsack wurde 1982 mittels Planfeststellungsbeschluss genehmigt und mit nachfolgenden Änderungen/Ergänzungen im Jahre 1999 für die bundesweite Nutzung als SAD geöffnet. Seit 2002 gehört

die SAD Knapsack zum Konzernverbund der RWE Umwelt AG, seit 2003 zur RWE UmweltSonderAbfallwirtschaft (RUSO).

Das Deponiegelände umfasst ca. 60 ha mit einer Gesamtablagerungskapazität von etwa 22 Mio. m<sup>3</sup> und einem gegenwärtigen Restvolumen von 5,2 Mio. m<sup>3</sup>. Die SAD Knapsack entspricht dem Stand der TA Abfall und gehört gemäß Deponie-Verordnung zur Klasse DK III. Sie steht unter Aufsicht des Bergamtes Düren.



**Abb. 6:** Aktuelles Luftbild der Deponie Knapsack

Diese SAD steht, ähnlich wie die Deponie Ihlenberg (Mecklenburg-Vorpommern) auf einer geogenen 30 m dicken Tonschicht, wodurch ein Schadstoffaustrag in den Untergrund langfristig ausgeschlossen bzw. vernachlässigt werden kann. Lateral wurde eine künstliche Dichtwand nach den Anforderungen der TA Abfall angelegt. Eine dem Stand der Technik entsprechende Zwischenabdeckung trennt den Altbereich der Deponie von der neuen SAD, auf der jährlich ca. 0,5 Mio. t Sonderabfälle entsorgt werden. Der Phosphorgips liegt im Altbereich.

## 9.2 Rückstandsarten und -mengen

Bis 1992 lag der Schwerpunkt der Entsorgung auf anorganischen Anfällen, vor allem Silikatschlacken (6,5 Mio. t) und Gips (6,0 Mio. t) aus der chemischen Aufbereitung von Phosphaterzen. Seit 1997 erfolgt vor allem die Abnahme von Abfällen aus Sanierungsmaßnahmen.

## 9.3 Durchgeführte Untersuchungen und Bewertung der Untersuchungsergebnisse

Eine Untersuchung der spezifischen Aktivität der Phosphatrückstände, der Radon-Emanation, der Radon-Konzentration in der bodennahen Luft sowie der Aktivitätskonzentration in Sicker- und Grundwasser wurde durch die Firma Brenk Systemplanung durchgeführt. Die Ergebnisse werden nach Abschluss des Untersuchungsprogramms ggf. zur Verfügung gestellt.

## 10 Gipswerke Lüneburg

Die Gipswerke Lüneburg firmieren heute unter dem Namen „Gipswerke Embsen“ und gehören zur Knauf Gips KG, Iphofen. Laut Auskunft des Werkes fällt heute kein Phosphat-Gips während der Produktion an. Es wurde aber eingeräumt, dass es früher zeitweise eine Phosphorsäure-Produktion mittels Schwefelsäureaufschluss gab. Der dabei entstandene Phosphat-Gips wurde auf die hauseigene Deponie, die als „Rohstoff-Aufhaltung“ bezeichnet wird, entsorgt. Diese Aufhaltung dient als Rohstoff-Zwischenlager. Das aufgehaldete Material wird ständig recycelt und in die aktuelle Putzgips-Produktion mit eingebunden, so dass keine Altlasten vorhanden sind. Über auf dem Gelände durchgeführte Messungen ist nichts bekannt.

## 11 Zusammenfassung und Schlussfolgerungen

Die Ergebnisse der Recherchen zu den realen und potentiellen Standorten der Deponierung bzw. Verwertung von Rückständen der Rohphosphataufbereitung zeigen:

- Die thermische Aufbereitung konzentrierte sich in Deutschland vor und nach dem 2. Weltkrieg auf die Standorte Piesteritz (IG-Farben) und Hürth (Hoechst). Während am Standort Piesteritz keine größeren Aufhaltungen von Silikatschlacke nachgewiesen werden konnten, lagern auf der Deponie Knapsack (Hürth) ca. 6.5 Mio. t Silikatschlacken vornehmlich aus der thermischen Phosphataufbereitung.
- Die Nassaufbereitung von Rohphosphat erfolgte im Allgemeinen mittels Schwefelsäureaufschluss, woraus als Rückstand Phosphorgips hervorgeht.
- Der aus früherer Produktion in Deutschland angefallene Phosphorgips enthält je nach Herkunft zwischen 0,3 und 1,0 Bq/g Ra 226 bzw. Pb 210 /GRS 02/, ausgenommen der in der ehemaligen

DDR hauptsächlich verarbeitete Kola-Apatit mit einer spezifischen Ra 226-Aktivität < 0,1 Bq/g. Die Nuklide der Th-Reihe sowie U-238, U-234 liegen beim Schwefelsäureaufschluss im Phosphorgips zwischen < 0,01 und 0,08 Bq/g.

- An den recherchierten Standorten der früheren (bzw. noch laufenden) Produktion von Phosphorsäure und/oder Phosphordünger wurde als einzige noch bestehende Deponie mit nennenswerten Mengen an Phosphorgips nur die Deponie Knapsack ermittelt. Diese Rückstände liegen zusammen mit den Silikatschlacken der thermischen Aufbereitung auf dem „alten“ Deponiebereich. Obwohl noch keine Messdaten übergeben wurden, sind nach Auskunft des Betreibers Auswirkungen auf die Umwelt, insbesondere das Grundwasser auch langfristig auszuschließen bzw. vernachlässigbar, da die Deponiesohle auf einer geogenen ca. 30 m dicken Tonschicht angelegt wurde und die Deponie lateral mit einer künstlichen Dichtwand nach TA Abfall versehen ist.
- Die Phosphorgips-Deponie Nordenham wurde 1994 nach den Anforderungen der TA Abfall saniert. Untersuchungsergebnisse zeigen, dass die nach TA Abfall durchgeführten Sanierungsmaßnahmen auch die sich aus Sicht des Strahlenschutzes ergebende Anforderungen an die Deponierung von Phosphorgips als überwachungsbedürftiger Rückstand gemäß Anlage XII, Teil A, Ziffer 2. der StrlSchV erfüllen.

## 12 Quellen

- /HGN 05/ Mitteilung von R. Gellermann (HGN Hydrogeologie) an D. Weiß. Mai 2005
- /TÜV 05/ StSch 4386: Erfassung und radiologische Bewertung von Hinterlassenschaften mit NORM-Materialien aus früheren Tätigkeiten und Arbeiten einschließlich der modellhaften Untersuchung branchentypischer Rückstände). Teil 4b – Orientierende radiologische Untersuchungen an industriellen Hinterlassenschaften der Rohphosphatverarbeitung. TÜV Süd, November 2005
- [http://www.bfs.de/anthropg/fachinfo/forschungs\\_vh/Abschlussbericht\\_StSch4386\\_Teil4b.pdf](http://www.bfs.de/anthropg/fachinfo/forschungs_vh/Abschlussbericht_StSch4386_Teil4b.pdf)