



Bundesamt
für Strahlenschutz

Ressortforschungsberichte zum Strahlenschutz

Analyse von Urankonzentraten aus Deutschland
mit bekannter Herkunft: Unterstützung der
nuklearen Forensik in Deutschland

Vorhaben 3621R01611

Wismut GmbH

Frank Dullies

Axel Hiller

Dr. Robert Sieland

Eiko Hermann (B.P.S. Engineering GmbH)

Das Vorhaben wurde mit Mitteln des Bundesministeriums für Umwelt, Naturschutz,
nukleare Sicherheit und Verbraucherschutz (BMUV) und im Auftrag des Bundesamtes
für Strahlenschutz (BfS) durchgeführt.

Dieser Band enthält einen Ergebnisbericht eines vom Bundesamt für Strahlenschutz im Rahmen der Ressortforschung des BMUV (Ressortforschungsplan) in Auftrag gegebenen Untersuchungsvorhabens. Verantwortlich für den Inhalt sind allein die Autoren. Das BfS übernimmt keine Gewähr für die Richtigkeit, die Genauigkeit und Vollständigkeit der Angaben sowie die Beachtung privater Rechte Dritter. Der Auftraggeber behält sich alle Rechte vor. Insbesondere darf dieser Bericht nur mit seiner Zustimmung ganz oder teilweise vervielfältigt werden.

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

Impressum

Bundesamt für Strahlenschutz
Postfach 10 01 49
38201 Salzgitter

Tel.: +49 30 18333-0

Fax: +49 30 18333-1885

E-Mail: ePost@bfs.de

De-Mail: epost@bfs.de-mail.de

www.bfs.de

BfS-RESFOR-244/25

Bitte beziehen Sie sich beim Zitieren dieses Dokumentes immer auf folgende URN:

urn:nbn:de:0221-2025031350858

Salzgitter, März 2025



Analyse von Urankonzentraten aus Deutschland mit bekannter Herkunft: Unterstützung der nuklearen Forensik in Deutschland

Abschlussbericht

BfS-Vergabe-Nummer: 3621R01611

Bearbeiter:	Frank Dullies	Leiter Projekt Umweltmessung
	Axel Hiller	Leiter Abteilung Informationsmanagement
	Dr. Robert Sieland	Referent der Geschäftsführung Technik
	Eiko Hermann	B.P.S. Engineering GmbH

Chemnitz, 15. November 2022

Ulf Barnekow
Leiter Bereich Ingenieurwesen/Strahlenschutz

Inhaltsverzeichnis

Erklärung des Auftragnehmers	5
Datenbereitstellung	6
Glossar	7
Abstract	8
Zusammenfassung	9
1 Veranlassung	10
2 Auswahl der Proben	11
2.1 Beschaffung deutscher Proben	11
2.2 Beschaffung ausländischer Proben	12
2.3 Repräsentativität der Proben	12
3 Durchführung	13
3.1 Probenvorbereitung	13
3.2 Aufschluss zur Analyse	14
3.3 Analysenmethoden	14
4 Validierung der Methoden	15
4.1 Validierung der Aufschlussverfahren	15
4.2 Validierung der Analysenergebnisse	16
5 Datenauswertung	17
5.1 Manuelle Datenanalyse	17
5.2 Statistische Datenanalyse (Dr. Sieland)	19
5.2.1 Methodik	19
5.2.1.1 Plausibilitätsprüfung der Eingangsdaten	19
5.2.1.2 Hauptkomponenten- und Faktorenanalyse	19
5.2.1.3 Clusteranalyse	19
5.2.1.4 Varianzanalyse	20
5.2.2 Ergebnisse	20
5.2.2.1 Hauptkomponenten und Faktoren	20
5.2.2.2 Clusteranalyse	28
5.2.3 Schlussfolgerung	32

6	Anwendung der Indikatoren	33
6.1	Urankonzentrate	33
6.1.1	Historisches Konzentrat Seelingstädt HUK 1980	33
6.1.2	Urankonzentrat aus Königsteiner Zwischenprodukt KZP 1993	34
6.1.3	Unbekanntes Urankonzentrat aus Seelingstädt UK ZP	34
6.1.4	Crossener Urankonzentrat UKC 1990	34
6.1.5	Königsteiner Konzentrat KK	35
6.1.6	Rückstand der neuen WBA Helmsdorf UKW Hdf	35
6.1.7	Zusammenfassung Urankonzentrate	36
6.2	Rückstände und Immobilisate der Wasserbehandlung	36
6.2.1	WBA Ronneburg	37
6.2.2	WBA Seelingstädt	37
6.2.3	WBA Helmsdorf alt	37
6.2.4	WBA Helmsdorf neu	37
6.2.5	WBA Schlema-Alberoda	38
6.2.6	WBA Pöhla	38
6.2.7	WBA (neue AAF) Königstein	38
6.2.8	Zusammenfassung Wasserbehandlungsprodukte	38
6.3	Tailings	39
6.3.1	IAA Helmsdorf	40
6.3.2	IAA Culmitzsch	41
6.3.3	IAA Trünzig	42
6.3.4	Kara Balta	42
6.3.5	Zusammenfassung Tailings	42
6.4	Erze	43
7	Altersbestimmung (Hermann, B.P.S. Engineering GmbH)	45
7.1	Randbedingungen für die Altersbestimmung	45
7.2	Beschreibung geeigneter Radionuklide	45
7.3	U-235 Reihe	47
7.4	U-238 Reihe	50

7.5	Th-232 Reihe	53
7.5.1	Th-232, Ra-228 und Th-228 im radioaktiven Gleichgewicht	54
7.5.2	Th-232 und Th-228 deutlich kleiner als Ra-228 bei $t = 0$	55
7.5.3	Th-232 und Th-228 deutlich größer als Ra-228 bei $t = 0$	56
7.5.4	Th-232 und Ra-228 gleich und deutlich größer oder kleiner als Th-228 bei $t = 0$	56
7.5.5	Zusammenfassung bezüglich Th-232, Ra-228 und Th-228	58
7.6	Beschreibung der Stoffgruppen für die Altersbestimmung	58
7.7	Beispielhafte Anwendung der Altersbestimmung	63
7.7.1	Th-232 Reihe	63
7.7.2	U-235 Reihe	64
7.7.3	U-238 Reihe	68
7.8	Diskussion einer alternativen Methode	72
7.9	Ergebnisse der Altersbestimmung	75
7.9.1	Bestimmung über die Nuklide Th-232, Ra-228 und Th-228	75
7.9.2	Bestimmung über die Nuklide Pa-231 und Ac-227	76
7.9.3	Bestimmung über die Nuklide U-234 und Th-230	76
7.9.4	Bestimmung über die Nuklide U-234, Th-230 und Ra-226	77
7.10	Vorschläge	77
7.11	Zusammenfassung und Schlussfolgerungen	79
	Literaturverzeichnis	80
	Zitierte Normen	81
	Anlagen	83

Erklärung des Auftragnehmers

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

Datenbereitstellung

Für das Verständnis und für die Übersicht über die Datengrundlage dieses Abschlussberichtes sind folgende Dateien (als Link) erforderlich.

- [20221027 Fotodokumentation Proben.xlsx](#)
- [20221019 validierte Laborergebnisse nach Aufschlüssen und Methoden.xlsx](#)
- [20221020 Datenzusammenstellung für manuelle Auswertung.xlsx](#)
- [20221019 Datenzusammenstellung für die statistische Auswertung.xlsx](#)
- [20221021 Übersicht Indikatoren aus der Datenzusammenstellung manuelle Auswertung.xlsx](#)
- [20221021 Zusammenfassung Indikatoren.xlsx](#)
- [20221102 Clusterzugehörigkeit bearbeitet_dul.xlsx](#)
- [20221028 Bestimmungsmatrix.xlsx](#)

Glossar

Berge	aufbereitungstechnisch für Tailings
Block	auch Abbaublock, meist großräumiger Abbauraum von Erz
Grubenwasser	Flutungswasser eines stillgelegten Bergwerkes
Haufwerk	bergmännisch durch Sprengung oder mechanische Verfahren gewonnenes Lockergestein vor der Aufbereitung
IAA	industrielle Absetzanlage für Aufbereitungsrückstände, in der technischen Umgangssprache auch als Schlammteich bezeichnet
Porenwasser	gemeint ist das Porenwasser in eingespülten Tailings, durch die Konsolidierung der Tailings werden Porenwässer ausgepresst und gelangen entweder an die Oberfläche oder ins Sickerwasser, sie haben in der Regel eine sehr hohe Kontamination
Querschlag	bergmännischer horizontaler Grubenbau quer zur Auffahrriichtung der Lagerstätte
Schluff	Klassifizierung von Böden und Lockergesteinen mit mehr als 50 % der Korngrößenklasse von 0,002 mm bis 0,063 mm
Sickerwasser	aus einer Halde oder eine IAA
Sohle	Etage in einem Bergwerk oder Teil des Grubenraumes auf dem man läuft
Sorption	Anreicherungsverfahren mittels Ionenaustauscher
Stolln	bergmännischer horizontaler Grubenbau mit direktem Tagesanschluss
Strecke	direkte Verbindung zwischen Schacht und Grubenfeld
Tailings	international für Aufbereitungsrückstände wie z.B. ausgelaugtes Erz, in der klassischen Aufbereitung als Berge bezeichnet
Überhauen	vertikaler Grubenbau, Verbindung zwischen einer Strecke und einem Abbaublock oder Teilsohle

Abstract

The aim of this research project is to carry out laboratory analyses of a representative selection of historical uranium ore concentrates (UOC) that were produced in Germany. The aim of the analysis is to produce a “fingerprint” indicator for the material. This “fingerprint” indicator will be compared with similar data from material of different origin, including in uranium ore samples from overseas. The feasibility of the analysis methods for the definite identification of uranium concentrates produced in Germany will be assessed. The results of the project will be issued to support and improve nuclear forensics in Germany.

Zusammenfassung

Für die Charakterisierung signifikanter Eigenschaften uranhaltiger Produkte aus Deutschland wurden 70 Proben aus den Stoffgruppen Uranerze, Aufbereitungsprodukte, Urankonzentrate, Tailings der Uranerzaufbereitung sowie Rückstände und Immobilisate der Wasserbehandlung der Wismut GmbH analysiert.

Als ausländische Vergleichsproben wurden 11 Materialien der Stoffgruppen Uranerze, Thoriumerze und Tailings der Uranerzaufbereitung bearbeitet.

Es kamen mehrere, teilweise parallele Analyseverfahren zur Anwendung, bei denen insgesamt 106 Parameter bestimmt wurden. Für die 81 Proben ergibt dies eine Rohdatenmenge von 8586 Analysen.

Die Auswertung der Daten, mit dem Ziel die Produkte in Bezug auf ihre Herkunft unterscheiden zu können, erfolgte mit zwei voneinander unabhängigen Methoden.

Die erste Methode war die klassische ingenieurtechnische Analyse der Daten durch Bildung von Klassen und sortieren nach Eigenschaften. Dazu wurden die Kenntnisse von Lagerstätten-besonderheiten sowie Aufbereitungs- und Wasserbehandlungsverfahren in die Datenauswahl einbezogen. Im Ergebnis wurden stoffgruppenbezogene Parameter herausgearbeitet, die durch markante Konzentrationen oder Elementzusammensetzungen die Produkte möglichst eindeutig charakterisieren. Diese wurden als Indikatoren bezeichnet.

Als mathematischer bzw. statistischer Ansatz wurde mit dem Programm *Statistica* durch die Analyse von Hauptkomponenten, Faktoren- und Clusteranalysen eine Klassifizierung in Gruppen mit ähnlichen Eigenschaften realisiert. Für eine Reduzierung der signifikanten Parameter wurden die Ergebnisse regelmäßig mit den Indikatoren der oben genannten manuellen Datenauswertung abgeglichen. Es ergaben sich dadurch gute Schnittmengen an Indikatoren aus beiden Methoden. Die Clusteranalyse erbrachte für die Klassifizierung der Proben keine auswertbaren Ergebnisse, da die Gruppenbildung sehr klar durch den Urangehalt dominiert wurde.

Zusätzlich zum obligatorischen Uran erfolgte eine stoffgruppenspezifische Auswahl an Indikatoren zur Unterscheidung der Produkte:

- Urankonzentrate (9): Al, As, Ba, Fe, Na, P, W, Ra-226, TOC,
- Rückstände/Immobilisate (14): As, Ba, Mn, P, Pb, Ra-226, U sowie Ce, Nd, Pr, Sm, Y, Gd, Dy,
- Tailings (10): As, Mn, Mo, P, Pb, S, Zn, Zr, Rb, Ra-226 sowie
- Erze (31): Ag, As, Bi, Co, Cu, Mn, Mo, P, Sb, Se, Sr, Sulfid, Te, Th, Ti, TIC, TOC, Zn, Zr, W, Ce, Nd, Pr, Sm, Y, Gd, Dy, Li, Ga, Rb und Ge.

Während die Auswertung für die Stoffgruppen Urankonzentrate, Rückstände und Immobilisate sowie Tailings in den meisten Fällen eine klare Unterscheidung zuließ, war dies für die Erze nur bedingt möglich, da die Indikatorenauswahl zu vielfältig ist. Für die Deklaration der Erze ist ein mineralogischer Ansatz zielführender als über eine umfangreiche Elementanalyse.

Die Altersbestimmung von Produkten mit einer zeitlich möglichst genau definierbaren Störung der radioaktiven Gleichgewichte der Zerfallsreihen von U-238, U-235 und Th-232 wurde auf der Grundlage der Ergebnisse der Gammaskopie mit Hilfe des Programmes *VIRA* durchgeführt. Die Voraussetzungen dafür erfüllen die Urankonzentrate, die Rückstände und Immobilisate sowie eingeschränkt auch die Tailings. Leider erwiesen sich die Ergebnisse der Gammaskopie als zu ungenau, um besonders für die geeigneten Nuklide Th-232, Ra-228 und Th-228 verwertbare spezifische Aktivitäten zu erhalten. Es wurde zur Verifizierung die Anwendung der Alphaspektroskopie empfohlen.

1 Veranlassung

Gemäß dem „Gesetz zur Errichtung eines Bundesamtes für Strahlenschutz“ (BASTrISchG) §2 (5) unterstützt das BfS die zuständigen Behörden bei der Wahrnehmung ihrer Aufgaben. Dazu gehört auch die Unterstützung bei polizeilichen Ermittlungen zur nuklearen Forensik sichergestellter radioaktiver Stoffe. Die wesentliche Information bei einer nuklear forensischen Untersuchung eines Fundes herrenloser oder missbräuchlich verwendeter radioaktiver Stoffe ist die Herkunft des Materials. Mit dieser Information können mögliche Verstöße gegen Regulierungsaufgaben aufgedeckt und ggf. juristisch geahndet werden.

Um im Ereignisfall vergleichen zu können, werden Uranerzkonzentrate von Erzeugern und Verbrauchern in vielen Staaten daher nicht nur für die Qualitätssicherung, sondern auch für die nukleare Forensik charakterisiert. Diese Daten dienen bei Funden von Uranerzproben zur Herkunftsermittlung oder auch zum Ausschluss der Herkunft aus einer bestimmten Quelle.

Im Rahmen dieses Vorhabens soll eine breite Auswahl von in Deutschland verfügbaren Natururanprodukten wie Uranerzen, Zwischen- und Endprodukten der Uranerzaufbereitung sowie uranhaltiger Stoffe von Abwasserbehandlungsanlagen mit validierten analytischen Methoden für eine forensische Charakterisierung untersucht werden. Voraussetzung hierfür ist eine möglichst eindeutige Zuordnung der Natururanprodukte zu den Lagerstätten bzw. Aufbereitungs- und Abwasserbehandlungsanlagen.

Die Analyseergebnisse sollen anschließend mit historischen Daten bzw. Probandensätzen aus der Qualitätskontrolle sowie mit für analoge Untersuchungen verfügbaren internationalen Natururanprodukten verglichen werden. Ziel ist dabei, zu prüfen, inwieweit sich die Produkte deutscher Herkunft von anderen unterscheiden lassen. Im Rahmen des Vorhabens ist zu prüfen, inwieweit der Parametersatz für die Charakterisierung optimiert werden kann, um den analytischen Aufwand zu minimieren.

2 Auswahl der Proben

2.1 Beschaffung deutscher Proben

Die Auswahl der deutschen Proben erfolgte nach der Verfügbarkeit und dem zukünftigen Verfügungspotential großer Mengen von uranhaltigen Stoffen. Es wurden insgesamt 70 Proben charakteristischer Natururanprodukte innerhalb von 5 Stoffgruppen ausgewählt:

- 30 Uranerze aus Sachsen und Thüringen, zwei Erzproben aus Bayern und eine aus Baden-Württemberg,
- 9 Zwischenprodukte der Uranerzaufbereitung,
- 4 historische Urankonzentrate (Yellow Cake) sowie 5 Prozessproben der Uranproduktion am Standort Königstein,
- 6 Tailings der Uranerzaufbereitung sowie
- 16 Rückstände und Immobilisate der Wasserbehandlungsanlagen (WBA) der Wismut GmbH.

Die Auswahl der Uranerze aus Sachsen und Thüringen erfolgte aus der Lagerstättensammlung der Wismut GmbH in Hartenstein, Schachtgebäude Schacht 371 (Bereich Sanierung Aue/Königstein). In Sachsen befinden sich die Lagerstätten der Standorte: Schlema-Alberoda, Johanngeorgenstadt, Schneckenstein, Vogtland, Königstein und Freital-Gittersee. Für Thüringen wurden die Lagerstätten der Standorte in Ronneburg und Seelingstädt ausgewählt. In Anlage 1 (Sachsen) und Anlage 2 (Thüringen) sind die Lagerstätten mit den genauen Fundorten zusammengefasst. Eine Foto-Dokumentation aller Proben befindet sich im Dokument [\[20221027_Fotodokumentation Proben.xlsx\]](#).

Die untersuchten westdeutschen Proben stammen ursprünglich von der Prospektionsgesellschaft Uranerz Bonn (UEB). Die Archivierung findet in einer Außenstelle der Mineralogischen Sammlung der Technischen Universität (TU) Bergakademie Freiberg statt. Ausgewählt wurden die Belegstücke D 595 Wölsendorf (Bayern, Oberpfalz, Marienschacht/Johannesschacht), D 476 Großschloppen (Bayern, Fichtelgebirge) und D 503 Menzenschwand (Baden-Württemberg, Schwarzwald).

Besonders bei den historischen Urankonzentratproben ist deren Vorhandensein nach 42, 32 bzw. 29 Jahren ein reiner Glücksfall. Die älteste Probe ist eine Rückstellprobe (Etalon-Flasche) zur Qualitätskontrolle für den Export in die damalige UdSSR vom 14. April 1980. Sie stammt, wie die Probe vom 17. September 1993, aus dem Aufbereitungsbetrieb AB 102 Seelingstädt. Vom Aufbereitungsbetrieb AB 101 Crossen existiert nur eine Probe aus der fortgeschrittenen Stilllegungszeit aus dem Jahr 1990. Da die Proben aus dem AB 102 mit einem genauen Probenahmedatum versehen sind, sind diese Proben besonders für die Altersbestimmung geeignet.

Das Urankonzentrat (Suspension) der im Juni 2021 beendeten Restproduktion der Wismut GmbH am Standort Königstein entstammt aus Probenahmen zur laufenden Qualitätskontrolle aus den Monaten April und Mai 2021. Sie wurden aus einem Lagersilo entnommen, welches über die gesamte Produktionszeit als Stapelbehälter genutzt wurde. In diesem Silo wurde das Produkt der kontinuierlichen Produktion über mehrere Jahre gesammelt und ständig gemischt. Es ist darum für eine Altersbestimmung nicht geeignet.

Die aktive Uranerzaufbereitung wurde im Dezember 1991 mit der Stilllegung des AB 102 Seelingstädt beendet. Die Proben von einzelnen, leider nicht vollständigen Aufbereitungsstufen wurden im Stilllegungsjahr 1991 genommen, getrocknet und in dicht schließenden PE-Flaschen im „Gift-Schrank“ des Chemikalienlagers im Labor Seelingstädt aufbewahrt. Kurioserweise hat sie in über 30 Jahren keiner entsorgt, da deren Nutzen eigentlich unklar ist. Unter den Proben befindet sich auch eine Konzentratprobe, die, warum auch immer, mit Sand im Massenverhältnis 1 : 1 verdünnt wurde.

Eine aktuelle und zukünftige Verfügbarkeit an uranhaltigen Stoffen stellen die Rückstände und Immobilisate (Mischung der Rückstände zur Verfestigung mit Zement) der Wasserbehandlungsanlagen (WBA) der Wismut GmbH dar. Die Urankonzentrationen der Immobilisate der WBA Seelingstädt liegen im Durchschnitt bei 1600 ppm und in der WBA Schlema-Alberoda um die 6000 ppm. Die WBA Königstein produziert aktuell Rückstände (nach der Kammerfilterpresse ohne Immobilisierung) mit rund 25000 ppm Uran. In der neuen WBA Helmsdorf wird durch die Uran-Abtrennung mittels Ionenaustauscher ein sehr hochwertiges Urankonzentrat erzeugt, welches durch die Immobilisierung mit Zement einen mittleren Urangelhalt von ca. 12000 ppm besitzt.

Die Urangehalte in den Immobilisaten (Mischung mit Branntkalk und Zement) der WBA Ronneburg bewegen sich aufgrund der geringen Urankonzentration im Rohwasser und der dominanten Eisenkonzentration in einem Bereich von nur 300 ppm. Sehr wenig Uran mit rund 100 ppm besitzen die Rückstände der WBA Pöhla, die in der WBA Schlema-Alberoda gemeinsam mit deren Rückständen mit Zement immobilisiert werden. Sie haben jedoch die mit Abstand größte Radium-Aktivitätskonzentration von rund 46000 Bq/kg (Ra-226).

2.2 Beschaffung ausländischer Proben

An dieser Stelle muss erwähnt werden, dass die Wismut GmbH in den frühen 1990er Jahren im Labor Seelingstädt, als ehemals zentrales Aufbereitungs-Technikum der Sowjetisch-Deutschen Aktiengesellschaft (SDAG) Wismut, noch einen sehr umfangreichen Fundus an internationalen Uranerzproben, besonders aus den Ländern des Rates für gegenseitige Wirtschaftshilfe (RGW) aber auch aus den Alt-bundesländern (Uranerz Bonn) sowie den USA, Kanada und Australien sowie Monazitsande aus Indien besaß. Leider wurden diese Proben mit dem Rückbau der Infrastruktur am Standort auf der industriellen Absetzanlage (IAA) Culmitzsch entsorgt. Die für dieses Projekt verwendeten Proben mussten darum aus aktuellen Geschäftsbeziehungen organisiert werden:

- UIT Umwelt- und Ingenieurleistungen GmbH, Dresden:
 - Bohrkernmaterial Mount Taylor Mine, New Mexico, USA,
 - Bohrkernmaterial Beverley Mine, Four Mile West, South Australia,
- Philips-Universität Marburg, ehemaliger Fachbereich Kernchemie:
 - Monazitsand, Australien,
 - Monazit, Ambatofotsikely, Madagaskar,
 - (Erzkohle Freital-Gittersee),
- WISUTEC GmbH, Chemnitz: Tailings, Kara Balta, Kirgisistan und
- DIAMO State Enterprise, Erzprobe, Příbram, Tschechien, Ganglagerstätte Bohemian Massiv.

Eine Beschaffung ausländischer Urankonzentratproben war organisatorisch leider nicht möglich. In Rücksprache mit dem Auftraggeber wurden Uranerzproben aus den USA, Australien, Tschechien sowie Monazitproben aus Madagaskar und Australien beschafft. Zusätzlich wurden Tailings aus der Uranerzaufbereitungsanlage Karabalta in Kirgisistan in das Untersuchungsprogramm aufgenommen.

2.3 Repräsentativität der Proben

Mit der Auswertung der Analysendaten wurde sehr schnell klar, dass ein genereller „Fingerabdruck“ für deutsche Uranerzprodukte mit den angewendeten Analyseverfahren nicht dargestellt werden kann. Vielmehr sind die oben genannten 5 Stoffgruppen nicht nur in den optischen und physikalischen, sondern auch in den Elementzusammensetzungen deutlich voneinander unterscheidbar. Sie müssen folglich mit ihren spezifischen Eigenschaften beschrieben werden.

Hinsichtlich der Repräsentanz muss ausdrücklich betont werden, dass es sich bei den untersuchten Proben um Stichproben bzw. bei den Erzproben (Stufenerze) um Belegstücke aus der Wismut-Lagerstättensammlung handelt. Für die Stoffgruppen ergeben sich folgende Wertigkeiten für die Repräsentanz der einzelnen Proben:

- Die Uranerze sind ausgewählte Uranerzstufen (Belegstücke bzw. Archivmaterial) von sächsischen und thüringischen Lagerstätten mit einer Uranproduktion (bezogen auf U_3O_8) größer als 1000 t. Diese Belegstücke repräsentieren natürlich keine Durchschnittsgehalte wie z. B. ein bergmännisch gewonnenes Haufwerk oder ein daraus erzeugtes Konzentrat. Die statistische Sicherheit lässt sich jedoch mit einer signifikanten Erhöhung der Anzahl an Untersuchungen derartiger Objekte verbessern.

- Für die Bewertung der Zwischenprodukte der Uranerzaufbereitung existieren nur noch die untersuchten Proben. Aufgrund der Unattraktivität derartiger Materialien bieten sie für Sammler keinerlei Anreiz. Eine Bewertung der Daten ist 30 Jahre nach Produktionsende nur noch von zwei Personen in der Wismut GmbH möglich. Die praktische Bedeutung dieser Produkte wird momentan als gering eingeschätzt.
- Die historischen Urankonzentrationen sind neben ihrer technologisch bedingten Begleitstoffzusammensetzung besonders interessant für die Altersbestimmung. Die Prozessproben der Uranproduktion am Standort Königstein und die Rückstände der neuen Wasserbehandlung am Standort Helmsdorf besitzen aufgrund der hohen Anzahl an Analysen zur Qualitätskontrolle eine sehr hohe Repräsentanz.
- Die Tailings der Uranerzaufbereitung wurden im Zuge der Sanierungserkundung für die Verwahrung an Ort und Stelle in den 1990er und Anfang der 2000er Jahren sehr intensiv untersucht. Die Datenlage ist repräsentativ, bezüglich der Anzahl an analysierten Elementen jedoch relativ begrenzt.
- Die Rückstände und Immobilisate der Wasserbehandlungsanlagen (WBA) werden regelmäßig für die Qualitätskontrolle deponie- und umweltrelevanter Parameter analysiert. Die Datenlage ist sehr umfangreich und repräsentativ.

3 Durchführung

3.1 Probenvorbereitung

Die Proben wurden für die Dokumentation vor der Verarbeitung zur Analyse mit Normal- und UV-Licht fotografiert.

Als eine sehr schnell zu bestimmende Messgröße für die Charakterisierung einer unbekannt Probe wurde die Ortsdosisleistung mit aufgelegtem Detektor einer Szintillatorsonde am Automess 6150AD6 bestimmt.

Alle Proben wurden vor der Analyse entsprechend DIN 18121-2:2020-11 bis zur Gewichtskonstanz bei 105 °C im Umluft-Trockenofen getrocknet.

Die Zerkleinerung bis zur sog. Analysenfeinheit mit einer Korngrößenverteilung 95 % kleiner 63 µm (DIN 19747:2009-07) wurde angepasst an die Probeneigenschaften wie folgt durchgeführt.

Erzstufen:

- Mit einer wassergekühlten Diamantsteinsäge erfolgte das Abtrennen einer repräsentativen Teilprobe und einer anschließenden Trocknung über 24 h bei 105 °C im Umluft-Trockenofen.
- Es wurde in den folgenden Bearbeitungsschritten immer die gesamte Probe bearbeitet, es wurden keine Teilproben entnommen.
- Vor der manuellen Zerkleinerung der Probe mit einem Hammer (1000 g) erfolgte eine zweifache Verpackung in PE-Zipp-Beutel um eine Staubverbreitung, Probenverluste bzw. Kontamination zu verhindern. Die manuelle Zerkleinerung wurde bis auf eine maximale obere Korngröße von ca. 5 mm durchgeführt. Die Proben wurden anschließend in 150-ml-Plastikbecher luftdicht verpackt und in dieser Form gamma-spektrometrisch analysiert.
- Nach der Gamma-spektroskopie erfolgte eine weitere Zerkleinerung in einer Scheibenschwingmühle. Die Mahlgarnitur (Mantel, Mahlring und Zylinder) besteht vollständig aus Zirkoniumdioxid (ZrO₂). Nach jedem Mahlvorgang wurde die Mahlgarnitur mit Wasser intensiv gereinigt, anschließend wurde zweimalig mit jeweils sauberem Quarzsand eine Reinigungsmahlung durchgeführt und erneut mit Wasser gereinigt. Mit der Scheibenschwingmühle wird die notwendige Analysenfeinheit und auch die Homogenität für den folgenden chemischen Aufschluss für die Analyse vollständig erreicht.

Bei den Zwischenprodukten der Uranerzaufbereitung und gleichbedeutend für die Tailingsproben wurde eine Teilmenge von ca. 100 g entnommen und 24 h bei 105 °C im Umluft-Trockenofen getrocknet. Die Proben der jeweiligen technologischen Stufen und die Tailings sind bereits aufgemahlen.

Die Korngrößenverteilung in einer großtechnischen Kugelmühle im Kreislauf mit Schraubenklassierern und 60-Meter-Eindickern ist für die chemische Analyse nicht homogen genug. Aus diesem Grund wurde ebenfalls mit der Scheibenschwingmühle nachzerkleinert.

Die Urankonzentrate sind als technische Produkte ausreichend homogenisiert und müssen für den chemischen Aufschluss für die Analyse nicht zusätzlich zerkleinert werden. Die Proben wurden vor der Einwaage für den chemischen Aufschluss über 24 h einer nochmaligen Trocknung bei 105 °C im Umluft-Trockenofen unterzogen.

Die Rückstände und Immobilisate der Wasserbehandlung werden durch den Trocknungsprozess (Trocknungsbedingungen wie bei allen anderen Proben) bzw. dem Abbindeprozess mit Zement und Kalk steinhart. Ähnlich wie bei den Erzproben muss eine mehrstufige Zerkleinerung bis zur Analysenfeinheit vollzogen werden. Das Probenmaterial ist durch die Herstellungsprozesse (Zwangsmischer) bereits ausreichend homogenisiert. Nach der Trocknung wurde zuerst eine Teilmenge von ca. 500 g in einem Backenbrecher auf eine obere Korngröße von ca. 10 mm zerkleinert. Im zweiten Zerkleinerungsschritt erfolgt eine Mahlung in einer Scheibenmühle mit einer Spaltweite von 2 mm. Die Mahlgarnitur (Rotor und Stator) besteht ebenfalls aus Zirkoniumdioxid. Für den dritten Zerkleinerungsschritt mit der Scheibenschwingmühle wird eine Teilmenge von ca. 100 g verwendet. Obligatorisch ist bei jedem Zerkleinerungsvorgang die Reinigung und Reinigungsmahlung mit sauberem Quarzsand der Mahlaggregate zwischen den einzelnen Proben.

3.2 Aufschluss zur Analyse

Mit dem sog. Aufschluss wird eine Teilmenge der analysenfeinen Probe mit einem Lösungsmittel oder Lösungsverfahren in die wässrige und weitgehend gelöste Phase überführt. In Abhängigkeit der Stoffeigenschaften kamen zwei Aufschlussverfahren zum Einsatz.

Der Königswasseraufschluss nach DIN EN 13346:2000 ist ein für die Elementanalyse sehr häufig angewendetes Verfahren. Hauptsächlich Metallionen werden mit einer Mischung aus konzentrierter Salzsäure und konzentrierter Salpetersäure im mol-Verhältnis 3 zu 1 sehr gut in Lösung gebracht. In Abhängigkeit der Feststoffzusammensetzung kann die Lösung aber auch unvollständig sein, darum wird das Ergebnis auch als königswasserlöslicher Anteil bezeichnet. Für den Aufschluss wurde eine Teilmenge von 0,5 g der Proben eingesetzt.

Die Stoffgruppen Uranerze, Zwischenprodukte und Tailings der Uranerzaufbereitung enthalten in der Regel signifikante Anteile an silikatischen Bestandteilen, die mit dem Königswasseraufschluss nicht ausreichend gelöst werden können. Hier kam der sog. Schmelzaufschluss mit einem Lithium-Metaborat-Gemisch als Aufschlussmittel (Fa. *Katanax*) zum Einsatz. Hierfür wurde eine Teilmenge der Proben von 0,125 g verwendet.

Für die gammaspektrometrische Analyse wurden die Proben in einer vorzerkleinerten Form eingesetzt:

- Bei den Erzen nach der manuellen Zerkleinerung (kleiner 5 mm),
- die Zwischenprodukte der Uranerzaufbereitung und die historischen Urankonzentrate nach der Trocknung,
- die neuen Urankonzentrate als Granulate nach der Trocknung (kleiner 5 mm) und
- die Rückstände und Immobilisate als Zwischenprodukt nach der Mahlung in der Scheibenmühle (kleiner 2 mm).

3.3 Analysenmethoden

Die Elementanalysen wurden in Anbetracht der besonders bei den Uranerzen nicht vorhersehbaren Stoffeigenschaften mit zwei Analyseverfahren bearbeitet. Beiden gemeinsam ist die Erzeugung eines induktiv gekoppelten Plasmas (ICP). Die Massenspektroskopie (ICP-MS) von 53 Elementen wurde gemäß DIN EN ISO 17 294-2:2017-01 (E29) durchgeführt und die Analyse der optischen Emissionsspektren (ICP-OES) von 30 Elementen erfolgte nach DIN EN ISO 11 885:2009-09 (E22). Die Durchführung der Analysen wurde im Labor Seelingstädt, im Bereich Sanierung Ronneburg der Wismut GmbH durchgeführt.

Die Durchführung der Gammaskopie relevanter Elemente der Uran-Radium-, der Uran-Actinium- sowie der Thorium-Zerfallsreihen erfolgte nach einer Messanleitung für die Überwachung der Radioaktivität in der Umwelt und zur Erfassung radioaktiver Emissionen aus kerntechnischen Anlagen und wurde von der Firma IAF-Radioökologie GmbH, Wilhelm-Rönsch-Straße 9 in 01454 Radeberg durchgeführt.

Die Analysen weiterer, sog Matrixparameter, erfolge nach den Methoden:

- TIC, anorganischer Kohlenstoff im Feststoff, IR-Detektion nach DIN ISO 10694,
- TOC, organischer Kohlenstoff im Feststoff, IR-Detektion nach DIN ISO 10694,
- Schwefel im Feststoff, IR-Detektion nach DIN EN 15875:2012-11,
- Sulfidschwefel im Feststoff, IR-Detektion nach DIN EN 15875:2012-11,
- Chlorid, Volumetrie nach DIN EN ISO 10304-1 und
- Glühverlust, Gravimetrie nach DIN 38414 S 3.

4 Validierung der Methoden

4.1 Validierung der Aufschlussverfahren

Bei der Validierung der Aufschlussverfahren wurden die Proben für die Analyse der gesteinsbildenden Elemente Aluminium (Al), Calcium (Ca), Eisen (Fe), Kalium (K), Magnesium (Mg), Natrium (Na), Phosphor (P) und Barium (Ba) mit dem Lithium-Metaborat-Schmelzaufschluss (Li-MBo) und dem Königswasseraufschluss (KöWa) miteinander verglichen. Die Lösungen des KöWa-Aufschlusses wurden mit ICP-OES und ICP-MS analysiert, die des Li-MBo-Aufschlusses nur mit ICP-OES. In der Datei: [\[20221018_validierte Laborergebnisse nach Aufschlüssen und Methoden.xlsx\]](#) sind die Ergebnisse für die 81 untersuchten Proben zusammengefasst.

Für den Vergleich der Aufschlussverfahren wurden aus den Analysenwerten mit Li-MBo-ICP-OES und KöWa-ICP-OES sowie Li-MBo-ICP-OES und KöWa-ICP-MS die Quotienten mal 100 (Verhältnis in %) berechnet. Mittels bedingter Formatierung wurden alle Verhältnisse kleiner 50 % markiert (Schrift rot, Zelle grau). Für diese Proben bedeutet dies, dass der KöWa-Aufschluss nicht vollständig war und die Daten mit dem Li-MBo-Aufschluss bevorzugt werden. Zusätzlich wurden die Zellen mit dem Inhalt NE (nicht ermittelbar) markiert (Schrift dunkelrot, Zelle rosa), die aufgrund einer Wellenlängen-Störung (OES-Störung) bei der Analyse mit ICP-OES keine validen Ergebnisse liefern konnten. In Auswertung der beiden Kriterien: Analysenwert-Verhältnisse der Aufschlüsse und OES-Störungen wurden die validen Analysenwerte als grüne Zelle manuell markiert.

Die Ergebnisse für die genannten Elemente sind folgende:

Für Aluminium liefert der KöWa-Aufschluss-ICP-MS bei den Stoffgruppen Erze, Zwischenprodukte, Tailings und Immobilisate und Rückstände der Wasserbehandlung überwiegend valide Ergebnisse. Nur in wenigen Fällen muss auf die Ergebnisse mit Li-MBo-Aufschluss ausgewichen werden.

Bei den Urankonzentrationen war bis auf das historische Konzentrat von 1980 eine OES-Störung beim KöWa-Aufschluss die Regel. Wenn das Verhältnis der Aufschlussverfahren größer 50 % lag, wurde KöWa-ICP-MS validiert und bei kleiner 50 % folglich Li-MBo-ICP-OES.

Bei den ausländischen Erzen gab es zwar keine signifikante OES-Störung, aber die Aufschluss-Verhältnisse für Monazit, den Sandsteinerzen Mount Taylor Mine (USA) und Beverley Mine (Australien) waren überwiegend kleiner als 50 %, so dass die Werte mit Li-MBo-Aufschluss bevorzugt wurden.

Für Calcium liefert der KöWa-Aufschluss mit ICP-OES durchweg valide Ergebnisse. Ausnahmen sind die sandsteingepprägten Erze: Quadersandstein Königstein, Mount Taylor Mine (USA) und Beverley Mine (Australien).

Auch für Eisen ist der KöWa-Aufschluss mit ICP-OES bestens geeignet. Einzige Ausnahme sind die Proben der Beverley Mine (Australien).

Bei Kalium sind die Validierungen nach den Aufschlussverfahren sehr heterogen. OES-Störungen sind relativ häufig.

Für Magnesium gibt es bei den Urankonzentrationen mit KöWa-Aufschluss keine validen Ergebnisse. Hier ist der Li-MBo-Aufschluss notwendig. Auch bei der Stoffgruppe Erze (aller Herkunft) wirken die Aufschlussverfahren recht unterschiedlich. Wenige Störungen gibt es dagegen bei den Aufbereitungsproben inkl. Tailings sowie den Wasserbehandlungsprodukten. Hier liefert der KöWa-Aufschluss solide Ergebnisse.

Die Validierung der Natrium-Ergebnisse ist stoffgruppenunabhängig geprägt durch OES-Störungen, teilweise auch bei beiden Aufschlussverfahren gleichzeitig (Urankonzentrate Königstein). Bis auf wenige Ausnahmen liefert nur der Li-MBo-Aufschluss brauchbare Analysenergebnisse.

Die Bestimmung von Phosphor war generell eine der größten analytischen Herausforderungen in diesem Projekt. OES-Störungen waren die Regel. Um brauchbare Ergebnisse zu gewinnen, wurde der KöWa-Aufschluss bei einigen Proben auch photometrisch bestimmt.

Die Königsdisziplin für die Aufschlussverfahren stellt Barium dar. Die validen Daten zeigen ein sehr gemischtes Bild, wobei der KöWa-Aufschluss mit 40 validen Daten von 81 fast 50 % repräsentiert.

Fazit:

Der KöWa-Aufschluss ist für Metalle wie Eisen (stellvertretend für Schwermetalle und seltene Elemente) gut bis sehr gut geeignet und liefert mit beiden angewendeten ICP-Analyseverfahren valide Ergebnisse.

Die Anwendung des Li-MBo-Aufschlusses ist generell bei den Elementen: Ba, Al, Na, K und Mg notwendig.

Für Phosphor mussten ganze Aufschluss- und Analysenserien wiederholt werden, da oft keine validen Ergebnisse erzielt wurden. Sollte dieser Parameter von Bedeutung sein, sind zusätzliche Anstrengungen vonnöten.

4.2 Validierung der Analysenergebnisse

Für die 81 Proben wurden unter Berücksichtigung der Aufschluss- und Analyseverfahren insgesamt 106 Parameter analysiert. Dies ergibt eine Rohdatenmenge von 8586 Analysendaten. Von diesen Werten sind aufgrund von verschiedenen analytischen Störungen 362 Daten NE, d.h. nicht ermittelbar bzw. nicht valide. Weitere 1580 Analysenergebnisse liegen unterhalb der analytischen Bestimmungsgrenze (BG). Als Datengrundlage für die folgenden manuellen und statistischen Datenauswertungen zur Ermittlung stoffgruppenspezifischer Indikatorparameter können 6644 Analysenergebnisse verwendet werden. Die Zusammenstellung der Rohdaten befindet sich in der Datei: [\[20221020_Datenzusammenstellung für manuelle Auswertung.xlsx\]](#).

In den 6644 Analysendaten sind alle Daten enthalten, die durch die Aufschluss- und Analyseverfahren mehrfach bestimmt wurden. Sie bilden die Grundlage für die manuelle Datenauswertung.

Als Datengrundlage zur statistischen Datenanalyse wurden element- bzw. parameterbezogen nur die Daten ausgewählt, die nach dem Aufschluss- und Analyseverfahren vom Labor als valide freigegeben wurden. Unabhängig von der Notwendigkeit der Verwendung qualitätsgeprüfter Daten, ist es für die statistische Berechnung notwendig, dass jeder Parameter nur einen eindeutigen Wert besitzen kann. Aus diesem Grund sind in dieser Datengrundlage auch die Werte kleiner der BG als direkter Zahlenwert der BG enthalten. Für die 81 Proben verbleiben 77 Parameter, was einer Datenmenge von 6237 Analysenergebnissen entspricht.

Bei der Zwischenauswertung der Ergebnisse der statistischen Datenanalyse und dem Vergleich mit der manuellen Datenauswertung wurde festgestellt, dass einige Parameter als Indikatoren berechnet wurden, die keine Analysenergebnisse oberhalb der BG haben. Ursache dafür waren verdünnungsbedingte Unterschiede bei der Analyse und damit auch dem Zahlenwert der BG. Beispielsweise lag die BG für Indium (In) stoffspezifisch zwischen 1 ppm und 25 ppm. Da bei der statistischen Auswertung der Zahlenwert eingesetzt wurde, entstanden daraus signifikante Unterschiede und damit vermeintliche Indikatoren. Aus diesem Grund wurden die BG der Elemente: Ag, Be, Bi, Ga, Ge, In, Nb, Pd, Pt, Sb, Sn, Ta, Te, Th und W manuell geändert, indem die wenigen zweistelligen BG z.B. 25 ppm auf eine einstellige BG z.B. 2 ppm (repräsentieren die Mehrzahl der BG-Werte) reduziert wurden. Die Zusammenstellung der Daten nach Bereinigung der BG befindet sich in der Datei: [\[20221019_Datenzusammenstellung für die statistische Auswertung.xlsx\]](#).

5 Datenauswertung

Für die Feststoffkonzentrationen wird anstelle von mg/kg das internationale ppm verwendet.

5.1 Manuelle Datenanalyse

Wie bereits erwähnt, wurde die manuelle Datenanalyse zur Bestimmung stoffgruppenspezifischer Indikatoren mit den Rohdaten durchgeführt. Der Grund dafür ist, dass bei der Auswertung neben den sehr unterschiedlichen Stoffeigenschaften auch die Zusammenhänge zu Lagerstätten, Aufbereitungsverfahren und Wasserbehandlungsverfahren betrachtet werden mussten. Dazu ist es wichtig, die gesamte Datenlage zu sichten, ohne die Ausgrenzungen, welche zwangsläufig durch die Validierung des Labors erfolgen muss.

Alle im Folgenden beschriebenen Schritte der manuellen Datenauswertung beziehen sich auf die Daten sowie deren Klassifizierung und Auswahl nach Stoffgruppen in der Datei: [\[20221020_Datenzusammenstellung für manuelle Auswertung.xlsx\]](#).

Im ersten Auswertungsschritt erfolgte eine Klassifizierung nach Stoffmengen durch eine bedingte Formatierung, (siehe Datei-Blatt: Klassierung Stoffmengen):

- Zellwert enthält „NE“: Zell- und Schriftfarbe Grau,
- Zellwert enthält „<“: Zell- und Schriftfarbe Grau (heller),
- Zellwert kleiner als 50: Zellfarbe Lichtgrün,
- Zellwert zwischen 50 und 100: Zellfarbe Hellblau,
- Zellwert zwischen 100 und 1000: Zellfarbe Orange,
- Zellwert zwischen 1000 und 10000: Zellfarbe Rot,
- Zellwert zwischen 10000 und 500000: Zellfarbe Magenta und
- Zellwert größer als 500000: Zellfarbe Weiß.
- Schwefel gesamt (S-ges), Sulfat-Schwefel (SO₄-S) und Sulfid-S: Zellwert zwischen 1 und 50: Zellfarbe Orange sowie
- Kohlenstoff gesamt (TC), totaler anorganischer Kohlenstoff (TIC) und totaler organischer Kohlenstoff (TOC): Zellwert zwischen 3 und 50: Zellfarbe Orange.

Im nächsten Schritt wurden die Klassierungen nach Stoffmengen in die Stoffgruppen: Erze Sachsen, Erze Thüringen, Erze Alt-BRD, Urankonzentrate, Zwischenprodukte, Tailings, Immobilisate und Rückstände sowie ausländische Erze und Tailings aufgeteilt. Diese Datenblätter wurden mit Auswahl plus Stoffgruppe bezeichnet. In den Stoffgruppen wurden alle Parameter ausgeblendet, die keine Rottöne oder Weiß enthalten. Dadurch wurde die signifikante Parametermenge teilweise deutlich reduziert.

Der folgende Separationsschritt ist nicht streng mathematisch bzw. logisch definiert, sondern orientiert sich daran, welcher Parameter in einer Lagerstätte, in einem Urankonzentrat, einem Typ an IAA mit den entsprechenden Tailings oder den Wasserbehandlungsverfahren und den daraus resultierenden Rückständen und Immobilisaten besonders herausstechen. Wertvoll sind dabei Parameter, die idealerweise nur in einer Lokalität oder in einem Stoff zu finden sind. Parameter mit „Allerwelts-Charakter“, die mit überwiegend hohen bis sehr hohen Konzentrationen bei allen Stoffen vertreten sind, wie z.B. die Elemente Ca, Fe, Mn oder Pb, wurden bei dieser Auswahl nicht berücksichtigt. Eine gewisse Intuition bei der Entscheidung muss an dieser Stelle zugelassen werden, da hier die Erfahrungen aus Geologie, Mineralogie, Lagerstättenkunde, Bergbau, Aufbereitung und Wasserbehandlung zusammenfließen und die Auswahl auf ein notwendiges Maß an Parametern bzw. Indikatoren konzentriert sind. Hiermit kommt der Begriff manuelle Datenanalyse zu seiner Bedeutung. Die ausgewählten Elemente wurden in der Kopfzeile der Stoffgruppen gelb markiert.

Zur Erlangung einer zunehmend übersichtlichen Datenauswahl wurden die als „charakteristisch“ (gelb) bewerteten Parameter in eine neue Datei: [[20221021_Übersicht Indikatoren aus der Datenzusammenstellung manuelle Auswertung.xlsx](#)] überführt und alle nichtrelevanten Daten gelöscht.

Aus der Gesamtübersicht über alle 81 Proben verbleiben danach noch 52 Elemente bzw. Parameter. Daran wird deutlich, dass eine Untergliederung in die Stoffgruppen notwendig ist, um die Indikatoranzahl überschaubar zu gestalten. In den Stoffgruppen sind dies zwischen 4 (Zwischenprodukte) und 23 (Immobilisate und Rückstände) Indikatoren. Mit der damit gewonnenen Übersichtlichkeit wurde ein letzter Reduzierungsschritt vorgenommen. Prämisse war auch hier, die Unterscheidungsmerkmale in den Stoffgruppen weiter zu schärfen. Die Auswahl wurde in der Kopfzeile (Elemente und Parameter) rot markiert.

Finaler Schritt ist die Zusammenfassung der stoffgruppenbezogenen Indikatoren. Diese sind in der Datei: [[20021021_Zusammenfassung Indikatoren.xlsx](#)] dargestellt. Diese Datei ist eine Vorstufe für eine Unterscheidungsmatrix auf der Grundlage des Aussehens, der Radioaktivität (ODL), dem Urangehalt und den Indikatoren. Dazu wurden die Stoffgruppen wie folgt gruppiert.

Erze: sind Gesteinsbrocken, Haufwerk oder Mineralstufen mit einer ODL zwischen 0,3 $\mu\text{Sv/h}$ und teilweise über 100 $\mu\text{Sv/h}$. Eine Fluoreszenz mit UV-Licht ist recht häufig, aber nicht die Regel. Der Urangehalt kann zwischen 750 ppm und 440000 ppm liegen. Für die direkte Unterscheidung der deutschen und ausländischen Proben wurden alle Erze in einer Gruppe zusammengefasst. Naturgemäß ist die Anzahl der Indikatoren mit insgesamt 31 in dieser Stoffgruppe relativ hoch: Ag, As, Bi, Co, Cu, Mn, Mo, P, Sb, Se, Sr, Sulfid, Te, Th, Ti, TIC, TOC, Zn, Zr, W, Ce, Nd, Pr, Sm, Y, Gd, Dy, Li, Ga, Rb und Ge.

Bei den Konzentraten wurden neben den historischen Proben und dem Königsteiner Produkt auch die Probe Zwischenprodukt Konzentrat-Sand-Gemisch und der Rückstand der neuen WBA Helmsdorf in einer Gruppe formiert. Alle Proben sind eindeutig als Yellow Cake erkennbar und haben in Abhängigkeit der Probenmasse eine ODL zwischen 0,9 $\mu\text{Sv/h}$ und 4,2 $\mu\text{Sv/h}$. Als Indikatoren erscheinen die Elemente bzw. Nuklide und Verbindungen: Al, As, Ba, Fe, Na, P, W, Ra-226 und TOC.

Die Tailings der Uranerzaufbereitung sind graue bis schwarze sandige bis lehmig-tonige (schluffige) Materialien. Der Urangehalt ist in der Regel mit 20 ppm bis 260 ppm relativ niedrig, dafür sind die spezifischen Radium-226-Aktivitäten mit bis zu 30000 Bq/kg relativ hoch. Die ODL liegt bei einer 1 kg-Probe zwischen 0,2 $\mu\text{Sv/h}$ und 0,3 $\mu\text{Sv/h}$. Eine UV-Licht-Wirkung gibt es nicht. Folgende Elemente bzw. Nuklide sind als Indikatoren geeignet: As, Mn, Pb, U, Ra-226 und Zn.

Die Rückstände und Immobilisate der Wasserbehandlung sind geprägt durch die Zusammensetzung der Rohwässer und den angewendeten Behandlungsverfahren. Die Rückstände sind farblich meist sehr deutlich durch den hohen bis sehr hohen Eisengehalt mit allen Schattierungen von Rotbraun gekennzeichnet. In Abhängigkeit des Entwässerungsgrades sind es dickflüssige Schlämme bis stichfeste Filterkuchen. Ein sehr dominanter Geruch nach Fisch ist recht häufig. Bis auf die WBA AAF Königstein und Pöhla werden in allen anderen Anlagen die Rückstände durch eine Mischung mit Zement (Seelingstadt und Schlema-Alberoda) bzw. Mischungen aus Zement und Kalk (WBA Ronneburg) sowie Mischung aus Zement und Braunkohlefilterasche mechanisch und chemisch stabilisiert. Das ausgehärtete Produkt wird als Immobilisat bezeichnet und hat durch den Bindemittelanteil eine graue bis graubraune Farbe. Die ODL liegt in Abhängigkeit der Urankonzentration bzw. der Radiumaktivität zwischen 0,1 $\mu\text{Sv/h}$ und 0,9 $\mu\text{Sv/h}$. Als Indikatoren kommen folgende Parameter in Frage: As, Ba, Mn, P, Pb, Ra-226, U, Ce, Nd, Pr, Sm, Y, Gd und Dy.

Die Zwischenprodukte der Uranerzaufbereitung zeigen, bis auf Uran, keine signifikanten Unterschiede, die eine Indikatorauswahl rechtfertigen. Da deren Verfügbarkeit in ganz Deutschland sehr unwahrscheinlich ist, wird diese Stoffgruppe nicht weiter betrachtet.

5.2 Statistische Datenanalyse (Dr. Sieland)

5.2.1 Methodik

Die Auswertung der Daten erfolgte mit der Software: *Statistica*, Version 12.0 von der Firma StatSoft Inc.

5.2.1.1 Plausibilitätsprüfung der Eingangsdaten

Vor der statistischen Datenauswertung sind die Analysedaten auf Vollständigkeit (keine Lücken) und Plausibilität zu prüfen. Werte kleiner der Bestimmungsgrenze sind durch die Bestimmungsgrenze zu ersetzen. Ergeben sich für verschiedene Proben sehr unterschiedliche Bestimmungsgrenzen, z. B. durch Messungen in unterschiedlichen Verdünnungsstufen, so sind die Bestimmungsgrenzen eines Parameters für alle Proben zu homogenisieren.

Parameter, für die in keiner Probe Konzentrationen oberhalb der Bestimmungsgrenze vorliegen, werden von der weiteren statistischen Auswertung ausgeschlossen, da keine analytisch unterscheidbare Varianz in den Daten vorliegt und die Berechnungen ausschließlich anhand der Bestimmungsgrenzen zu Artefakten in den Ergebnissen führen kann.

5.2.1.2 Hauptkomponenten- und Faktorenanalyse

Um den sehr umfassenden Datensatz von 81 analysierten Parametern an 81 Proben effizient zusammenzufassen und sich ein Bild über die Zusammenhänge in den Daten zu machen, können die Hauptkomponenten und die Faktorenanalyse angewendet werden.

Ziel der Hauptkomponentenanalyse ist es, eine große Anzahl von gemessenen Parametern (Variablen) auf wenige bedeutsame (Haupt-)Komponenten zu reduzieren, mit deren Hilfe dennoch ein Großteil der Gesamtvarianz aller Daten erklärt werden kann (Datenreduktion). Dabei werden die ursprünglichen Parameter (Variablen) über eine orthogonale Transformation in eine neue Menge unkorrelierter Variablen, den Hauptkomponenten, überführt. Die Analyse basierte im vorliegenden Fall auf den Korrelationen zwischen den Variablen. Die Varianzberechnung erfolgte mit $SQ/(N-1)$, wobei SQ die Summe aller quadrierten Abweichungen ist.

Im Ergebnis werden für alle ursprünglichen Parameter sogenannte Ladungen auf den neuen Hauptkomponenten berechnet. Die Hauptkomponenten werden durch diejenigen Parameter dominiert, deren Ladungen (Werte zwischen -1,0 und +1,0) größer als 0,7 bzw. kleiner als -0,7 sind.

Bei der Hauptkomponentenanalyse werden möglichst viele Parameter mit hohen Ladungen auf der 1. Hauptkomponente abgebildet, auf der 2. Hauptkomponente möglichst viele der verbliebenen Parameter und so weiter.

Zur leichteren Interpretation der aus den Gesamtdaten extrahierten Komponenten wurde deshalb eine Faktorenanalyse durchgeführt. Hierbei werden die zuvor berechneten Hauptkomponenten über ein mathematisches Rotationsverfahren so im mehrdimensionalen Raum gedreht, dass ein möglichst hoher Anteil der Varianz (hohe Ladungen) eines jeweiligen Parameters auf einem bestimmten Faktor abgebildet wird. Im vorliegenden Fall wurde die standardisierte Varimax-Rotation verwendet.

Durch die Rotation der Faktoren werden die Parameter auf die unterschiedlichen Faktoren stärker verteilt, wodurch eine Interpretation der Faktoren erleichtert wird.

Im Ergebnis wird die Verteilung der dominierenden Faktorladungen ($< -0,7$ bzw. $> +0,7$) der einzelnen Parameter ausgewertet und mit den zuvor manuell ermittelten Indikatorparametern verglichen (siehe Kap. 5.1).

5.2.1.3 Clusteranalyse

Mit Hilfe der Clusteranalyse wird der Datensatz in Gruppen klassifiziert. Dabei werden z.B. Proben zu einer Gruppe zusammengefasst, die ähnliche Eigenschaften besitzen und daher im mehrdimensionalen Parameterraum dicht beieinanderliegen. Als Maß für den Abstand zweier Probenpunkte wurden die Euklidischen Distanzen berechnet. Als Fusionsregel des agglomerativen hierarchischen Klassifizierungsverfahrens diente Complete Linkage. Im Ergebnis dieses Verfahrens werden die Beziehungen der einzelnen Messgrößen bzw. Proben in Form von Dendrogrammen visualisiert.

Neben den hierarchischen Verfahren gibt es auch partitionierende Verfahren. Hier wurde das k-Means-Verfahren verwendet. Basierend auf einer Varianzminimierung wird der Gesamtdatensatz in zuvor festgelegte k Cluster partitioniert. Ziel ist es, jeden Datenpunkt einem Cluster i zuzuordnen, so dass der quadrierte Abstand zum Centroiden des Clusters i minimiert wird. Darüber hinaus sollen die Zwischen-Cluster-Distanzen maximiert werden.

Das k-Means-Verfahren wurde für k = 2 bis 13 Cluster angewendet. Anschließend wurde mittels Varianzanalyse (ANOVA¹) geprüft, für wie viele Parameter die jeweilige Klassifizierung signifikante Unterschiede in den Gruppen hervorbringt. Die Clusteranzahl mit den meisten sich signifikant unterscheidenden Parametern wird für die weitere Ergebnisdarstellung herangezogen.

5.2.1.4 Varianzanalyse

Bei der Varianzanalyse ANOVA wird von der Grundannahme (Nullhypothese) ausgegangen, dass die Erwartungswerte (Mittelwerte) der Gruppen identisch sind, d. h. $x_1 = x_2$.

Ziel ist es, diese Nullhypothese zu einem bestimmten Signifikanzniveau Alpha abzulehnen. Für die statistische Auswertung von geochemischen Analysedaten wird üblicherweise ein Signifikanzniveau Alpha = 0,05 angesetzt. Dies entspricht einer Irrtumswahrscheinlichkeit von 5 %. Ist die in *Statistica* berechnete Überschreitungswahrscheinlichkeit (p-Wert = Maß für die Glaubwürdigkeit der Nullhypothese) kleiner als das festgelegte Signifikanzniveau Alpha, so kann die Nullhypothese mit 95%iger Sicherheit abgelehnt werden. Demzufolge gibt es signifikante Unterschiede zwischen den Gruppen in Bezug auf den getesteten Parameter.

5.2.2 Ergebnisse

5.2.2.1 Hauptkomponenten und Faktoren

Mit Hilfe des Scree-Plots der Eigenwerte (Abbildung 1) lässt sich erkennen, wie viele Hauptkomponenten bzw. Faktoren sinnvollerweise aus den Gesamtdaten extrahiert werden können, die einen bedeutenden Teil der Varianz erklären und daher einen hohen Eigenwert besitzen. Der Kurvenverlauf der abnehmenden Eigenwerte zeigt zwei Knickstellen nach Eigenwert Nr. 3 bzw. Nr. 8. Darüber hinaus stagnieren die Eigenwerte (< 2) annähernd auf niedrigem Niveau und sind nicht mehr von Bedeutung, da sie sich in etwa auf dem Niveau von Zufallskorrelationen bewegen.

¹ engl. Analysis of Variance

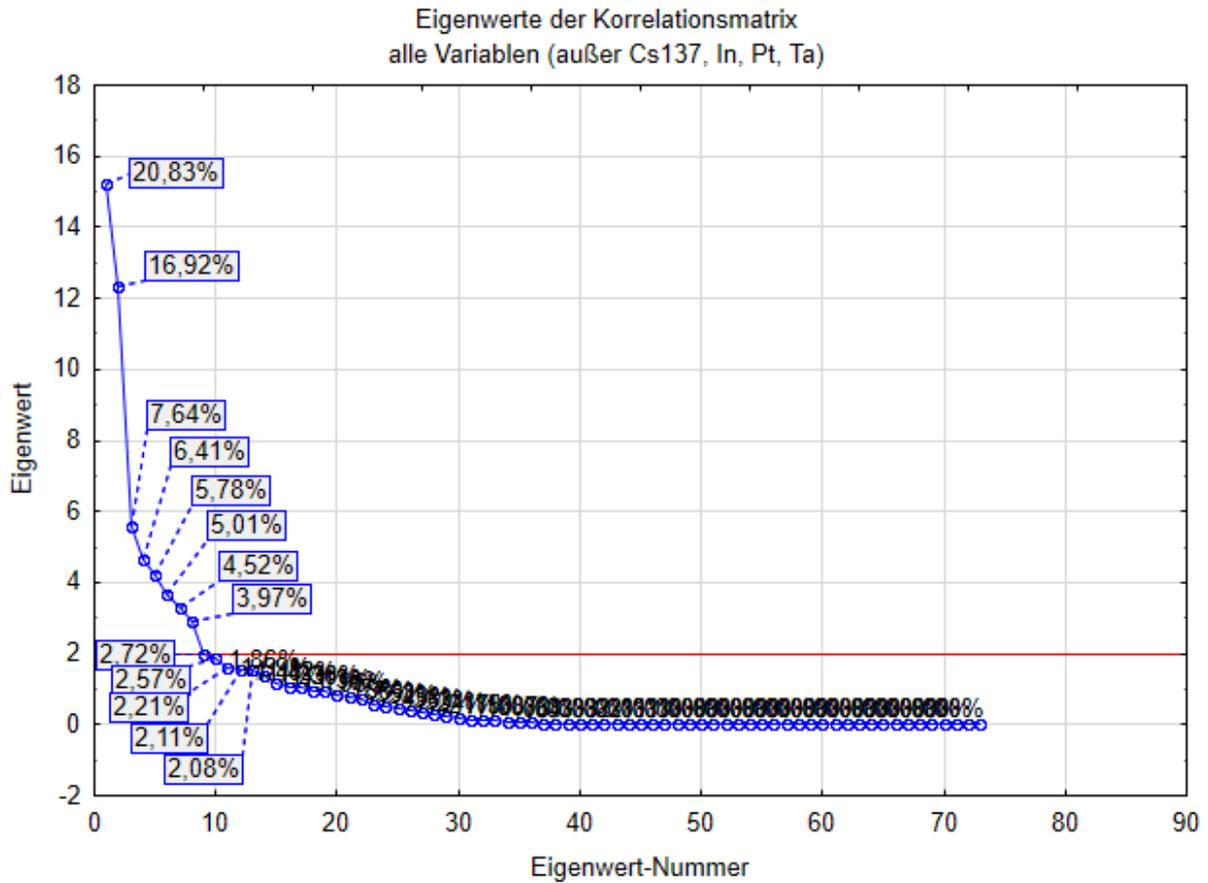


Abbildung 1: Eigenwerte der Korrelationsmatrix für 76 Parameter (81 Proben)

Die ersten 8 Komponenten repräsentieren 71,7% der Gesamtvarianz aller Daten (76 Parameter), die ersten 3 Komponenten immerhin noch 45,4 %.

Bei der Darstellung der Proben in Abhängigkeit der Hauptkomponenten 1. und 2. (Abbildung 2) bzw. der Hauptkomponenten 2. und 3. (Abbildung 3) wird erkennbar, dass die beiden Monazitproben sich erheblich von den übrigen Proben unterscheiden. Ursache ist, dass beide Proben keine klassischen Uranerze, sondern Thoriumerze sind und ihre Elementanalysen sehr viele signifikante Werte vorweisen.

Ebenfalls sehr auffällig ist die Uranerzprobe aus Zobes im Vogtland. Sie hat ähnlich wie die Monazite ein sehr umfangreiches Parameterspektrum vorzuweisen.

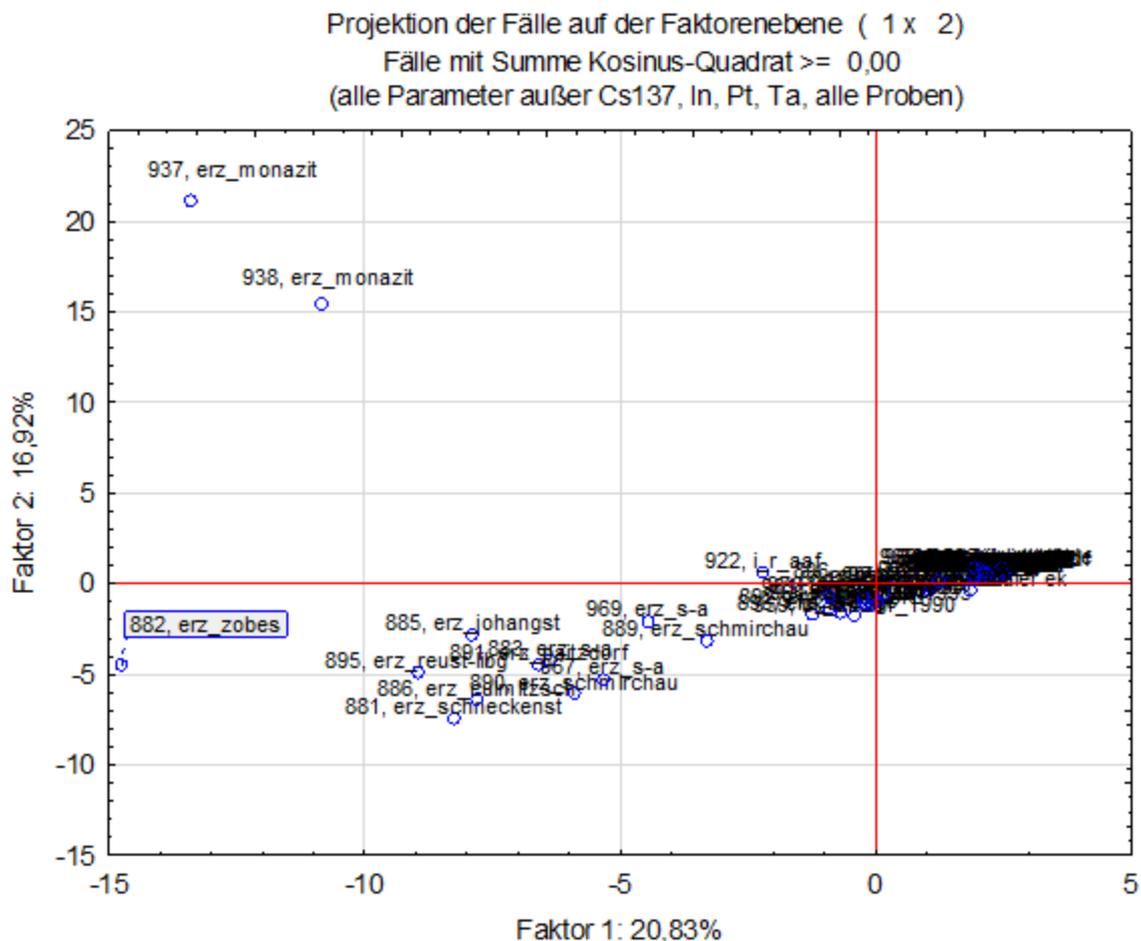


Abbildung 2: Projektion der Proben (N = 81) auf der Hauptkomponentenebene in Abhängigkeit der Komponenten 1 und 2

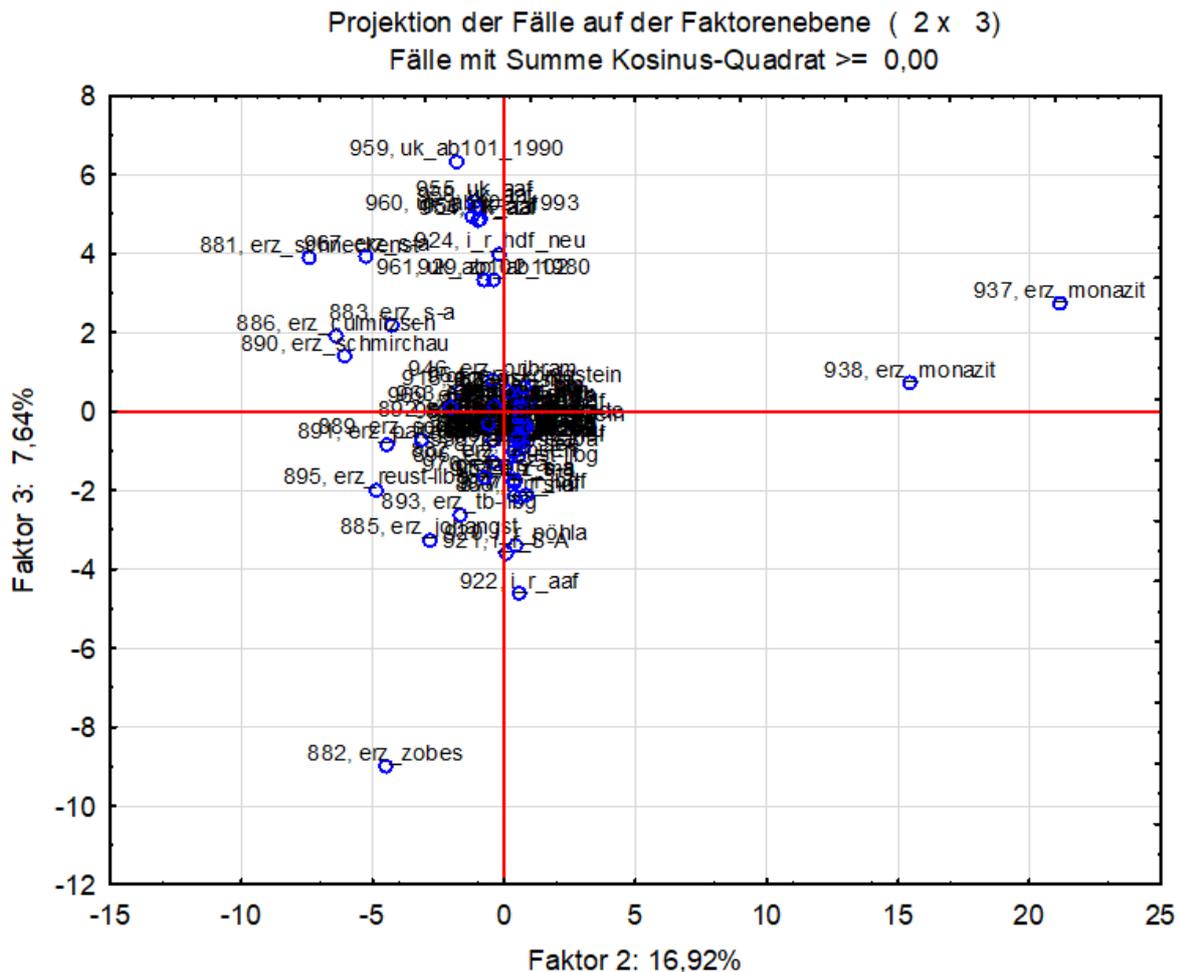


Abbildung 3: Projektion (N = 81) in Abhängigkeit der Hauptkomponenten 2 und 3
 Aus der Bewertung der Hauptkomponenten ergeben sich die in Tabelle 1 aufgeführten Parameter.

Tabelle 1: Charakterisierung der Hauptkomponenten

Komponenten	Parameter mit Ladungen $>0,7$ bzw. $<-0,7$
1	Pd, Y, Dy, Yb, Ac-227, K-40, Pb-210, Ra-223, Ra-226, Th-227, Th-230
2	Ge, P, Ce, Pr, Nd, Sm, Gd, Th, Ra-224, Ra-228, Th-228
3 - 7	(keine dominanten Parameter)
8	TC, TOC

Um die übrigen Proben besser unterscheiden zu können, werden die beiden besonders auffälligen Monazitproben bei den weiteren Betrachtungen ausgeschlossen. Dadurch ändern sich auch die Anteile der erklärten Varianzen der Hauptkomponenten deutlich (Abbildung 4). Es löst sich die Punktwolke deutlich auf und es kommen besonders die Erzproben aus Thüringen deutlich zum Vorschein. Die Probe aus Zobes bleibt weiter ein Exot.

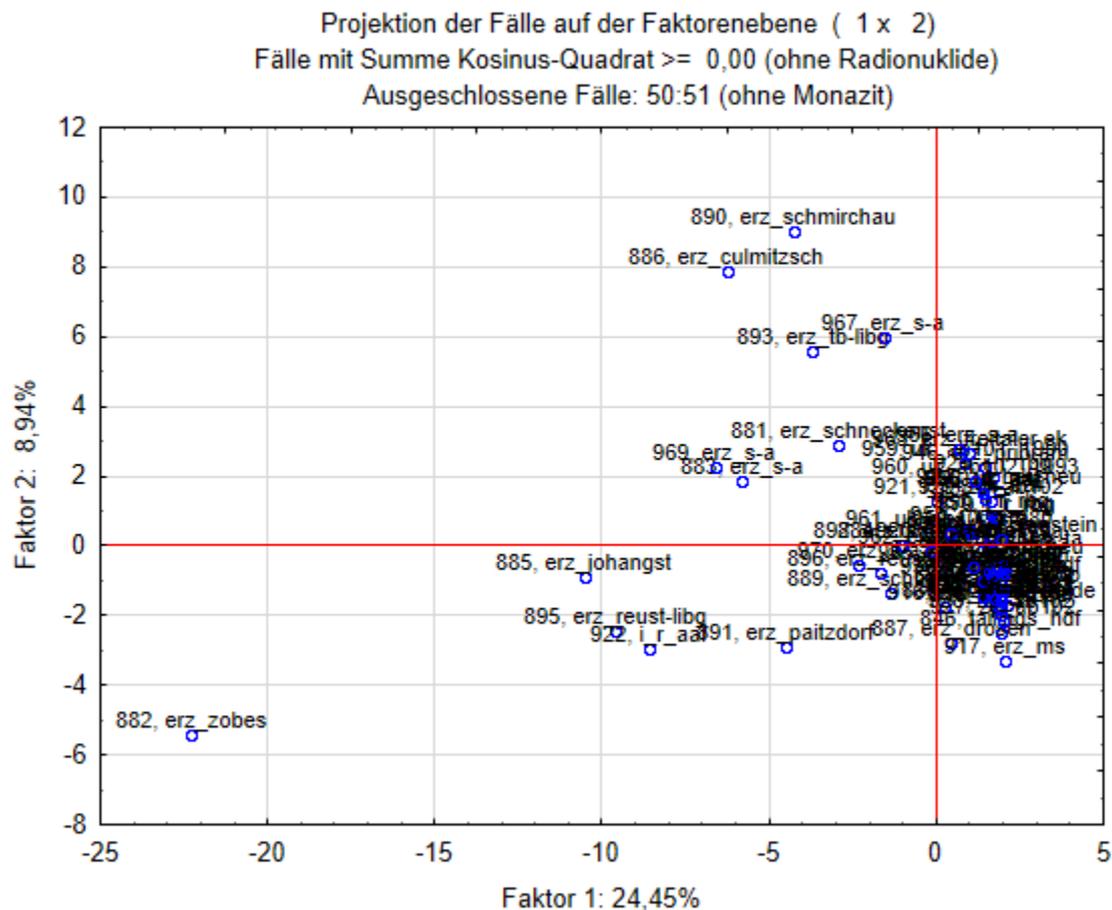


Abbildung 4: Projektion der Proben ohne Monazite (N = 79) in Abhängigkeit der 1. und 2. Hauptkomponenten

Im Ergebnis der Faktorenanalyse mit standardisierter Varimax-Rotation für alle Parameter (N = 79) und mit allen Proben (N = 81) lassen sich die neu berechneten Faktoren (Tabelle 2) durch folgende dominierende Parameter charakterisieren.

Tabelle 2: Charakterisierung der Hauptfaktoren

Faktoren	Parameter mit Ladungen $>0,7$ bzw. $<-0,7$
1	W, Ac-227, K-40, Pb-210, Ra-223, Ra-226, Th-227, Th-230
2	Ge, Nb, P, Ce, Pr, Nd, Sm, Gd, Dy, Th, Ra-224, Ra-228, Th-228
3	Zr, U, U-234, U-235, U-238
4	Sr
5	Cd, S-ges, Sulfid-S, Zn
6	Co, Ni, Pd, Y, Eu, Yb, Lu
7	(kein dominierender Parameter)
8	GV, TC, TOC

Eine Projektion der Parameter befindet sich in Abbildung 5.

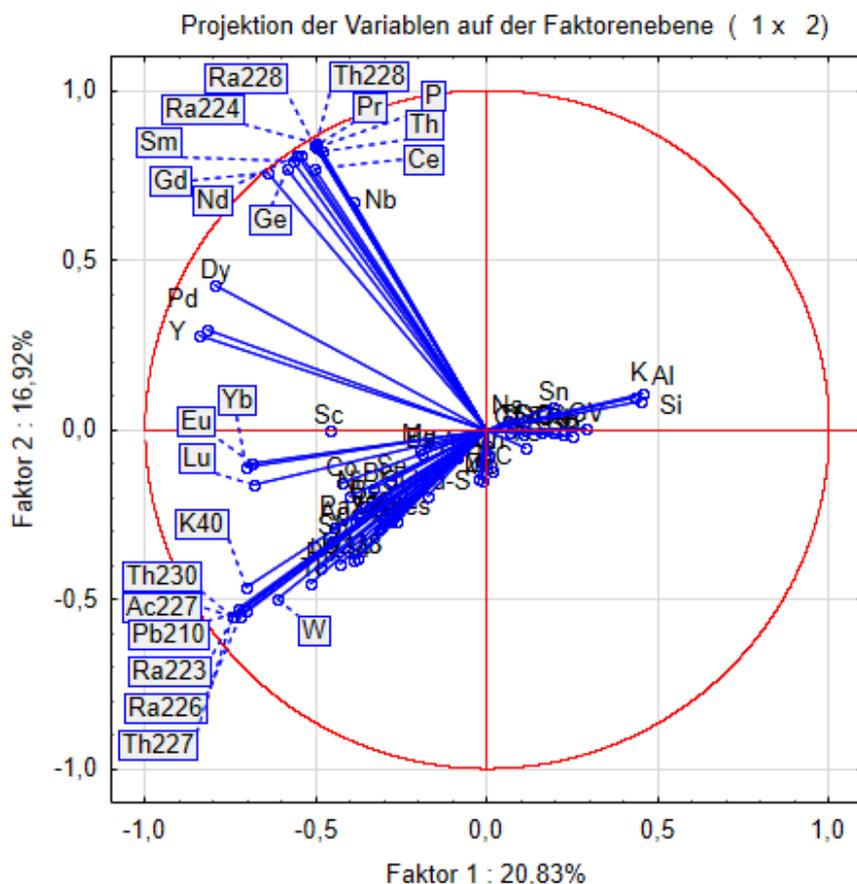


Abbildung 5: Darstellung aller Parameter (N = 79) in Abhängigkeit der 1. und 2. Hauptkomponente

Diese 41 Parameter mit großen Ladungsgewichten (Abbildung 6) können als Indikatorparameter für die 8 extrahierten Faktoren (71,1% der Gesamtvariabilität) interpretiert werden.

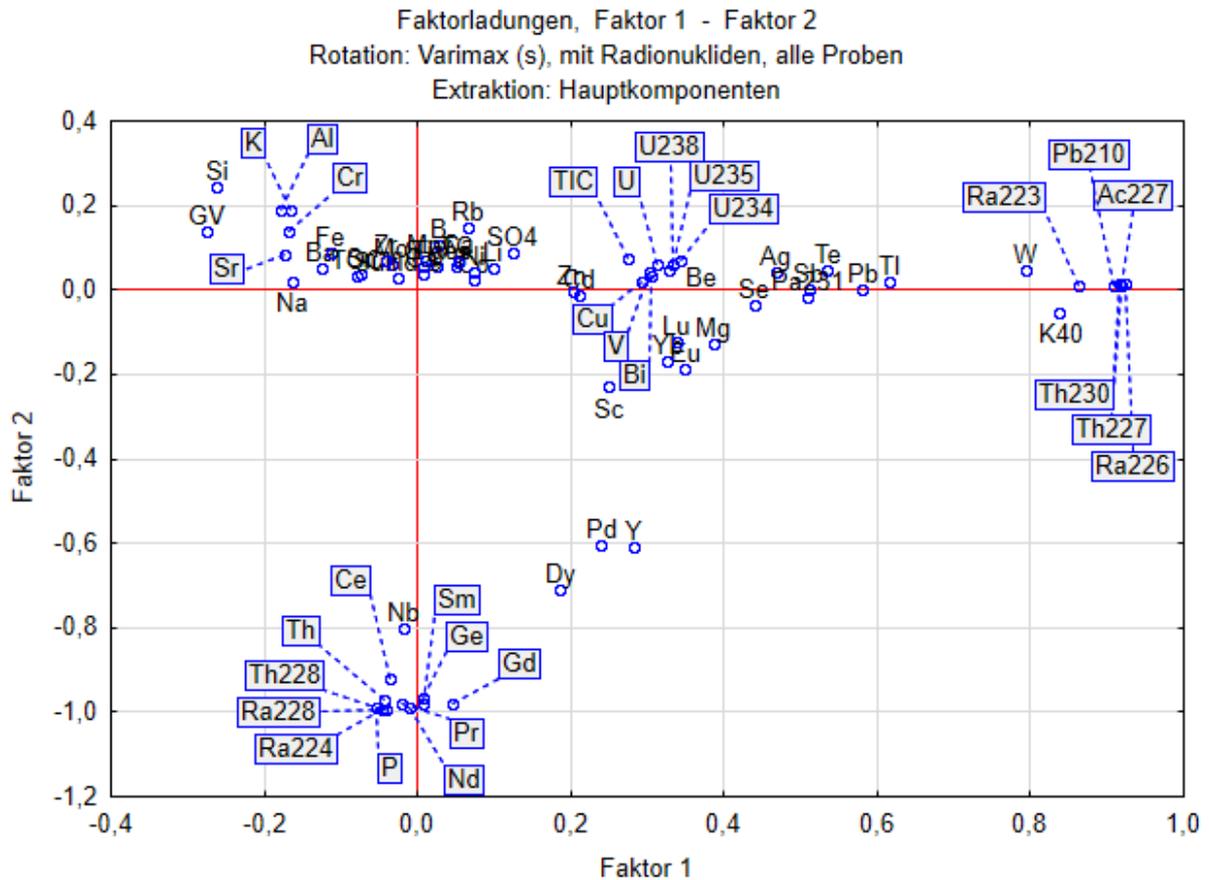


Abbildung 6: Faktorladungen der Parameter in Abhängigkeit der berechneten Faktoren 1 und 2

Vergleicht man diese mittels Faktorenanalyse identifizierten Indikatorparameter (N = 41) mit den zuvor manuell ermittelten Indikatoren (N = 39) so sind 20 Übereinstimmungen festzustellen. Es handelt sich hierbei um folgende Parameter:

Co, P, Ra-226, S-ges, Sr, Sulfid-S, Th, TOC, U, Zn, Zr, W, Ce, Nd, Pr, Sm, Y, Gd, Dy und Ge.

Von den Radionukliden ist Ra-226 ein wichtiger Leitparameter für die Wismut-Sanierung und wird daher in der weiteren statistischen Auswertung berücksichtigt. Alle anderen Radionuklidparameter wurden überwiegend zum Zweck von Altersdatierungen erhoben und daher im Folgenden nicht weiter in die Analysen einbezogen.

Schließt man hingegen die Radionuklide (außer Ra-226) von der Faktorenanalyse aus, so ergeben sich für die verbleibenden 60 Parameter folgende Faktorbelegungen in Tabelle 3.

5.2.2.2 Clusteranalyse

Die Klassifizierung der Proben wurde mit vier verschiedenen Parametersätzen durchgeführt und als Dendrogramm dargestellt.

Die erste Klassifizierung für alle 73 analysierten Parameter, für die Messwerte oberhalb der Bestimmungsgrenze ermittelt werden konnten, befindet sich in Abbildung 8.

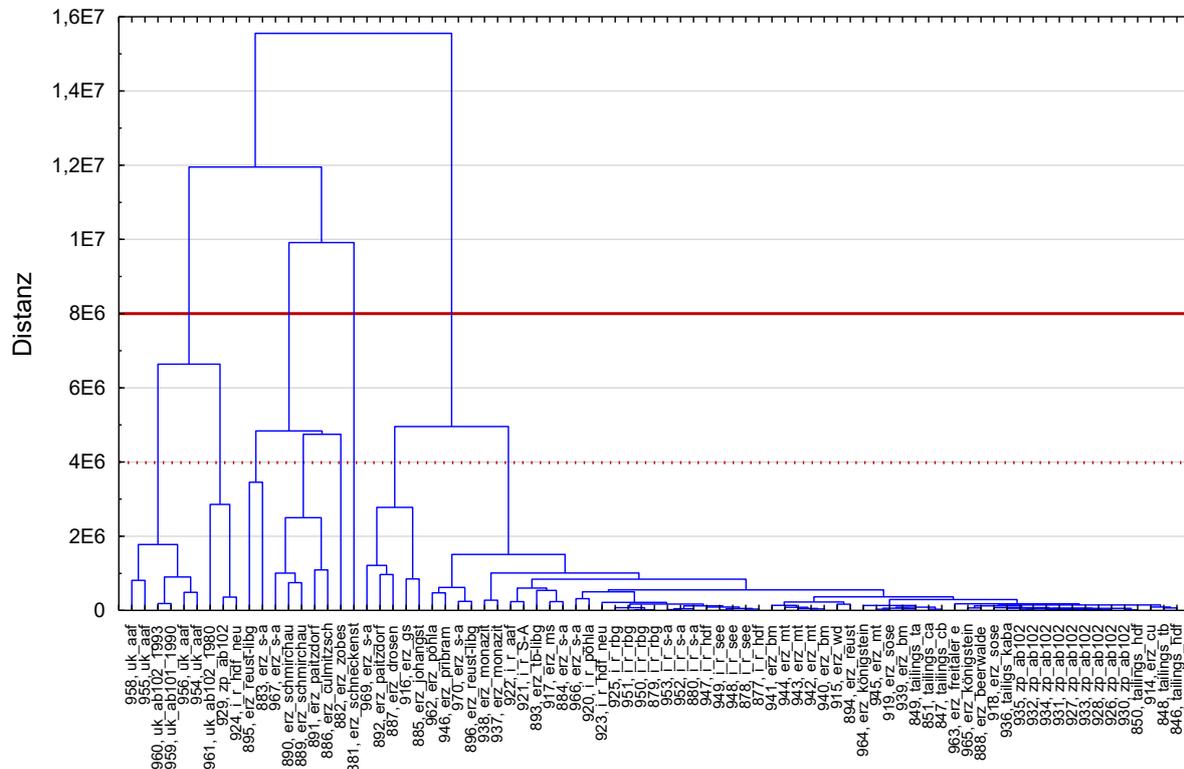


Abbildung 8: Klassifizierung anhand aller Parameter N = 73

Die roten durchgezogenen oder punktierten Linien bedeuten am Schnittpunkt mit einer blauen Klassenlinie eine Gruppenbildung (Cluster) von entweder 4 (dicke rote Linie) oder 8 Gruppen (rot punktierte Linie). Im vorliegenden Fall entstehen folgende Cluster:

4er Cluster:

1. Urankonzentrate aller Standorte,
2. Thüringer Erze: Schmirchau, Lichtenberg, Reust, Paitzdorf, Culmitzsch, Sachsen: Schlema-Alberoda (Gang Beryll und Gang Erna) und Vogtland: Zobes,
3. Erz Schneckenstein sowie
4. alle anderen.

8er Cluster:

1. Urankonzentrat Königstein und Seelingstädt 1990 und 1993,
2. Urankonzentrat Seelingstädt 1980 und Zwischenprodukt sowie Urankonzentrat Helmsdorf neu,
3. Erze Reust und Schlema-Alberoda (Gang Beryll),
4. Thüringer Erze: Schmirchau, Paitzdorf, Culmitzsch, Sachsen: Schlema-Alberoda (Gang Erna),
5. Erz Vogtland Zobes,
6. Erz Schneckenstein,

7. Erze Sachsen: Schlema-Alberoda (Gang Ruhmvoll) und Schneckenstein, Thüringen: Paitzdorf und Drosen, Bayern: Großschloppen sowie
8. alle anderen.

Bei dieser Gruppierung dominieren besonders die Urankonzentration gefolgt von den Uranerzen mit sehr hohen Urankonzentrationen (z.B. Gänge: Beryll, Erna und Ruhmvoll). Offensichtlich ist hier Uran der treibende Parameter.

In Abbildung 9 wurden alle 38 manuell identifizierten Indikatorparameter: Ag, As, Ba, Bi, Co, Cu, Fe, Mn, Mo, Na, P, Pb, Ra-226, S-ges, Sb, Se, Sr, Sulfid-S, Te, Th, Ti, TIC, TOC, U, Zn, Zr, W, Ce, Nd, Pr, Sm, Y, Gd, Dy, Li, Ga, Rb und Ge für die Klassifizierung herangezogen.

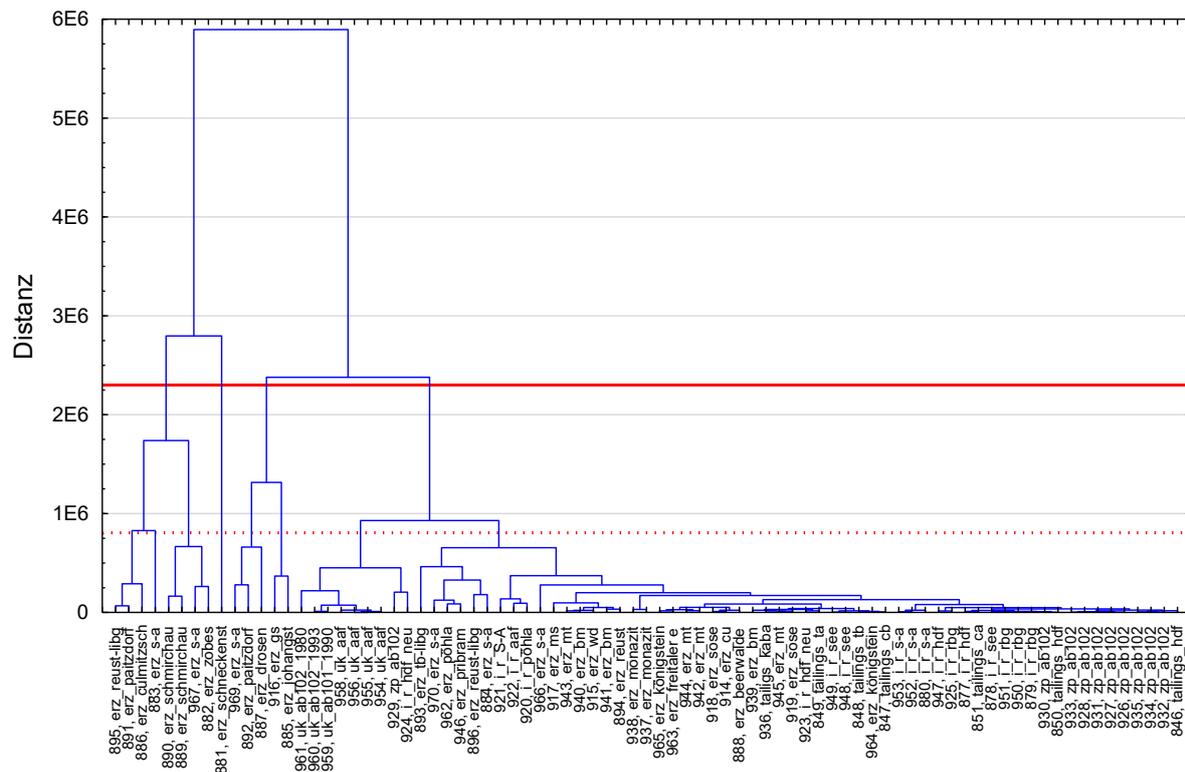


Abbildung 9: Klassifizierung anhand manuell identifizierter Indikatorparameter N = 39

4er Cluster:

1. Thüringer Erze: Schmirchau, Lichtenberg, Reust, Paitzdorf, Culmitzsch, Sachsen: Schlema-Alberoda (Gang Beryll und Gang Erna) und Vogtland: Zobes,
2. Erz Sachsen: Schneckenstein,
3. Erze Sachsen: Schlema-Alberoda (Gang Ruhmvoll) und Johanngeorgenstadt, Thüringen: Paitzdorf und Drosen, Bayern: Großschloppen sowie
4. alle anderen.

8er Cluster:

1. Erze Thüringen: Reust, Paitzdorf und Culmitzsch
2. Erz Schlema-Alberoda (Gang Beryll),
3. Erze Sachsen: Schlema-Alberoda (Gang Erna), Thüringen: Schmirchau und Vogtland: Zobes,
4. Erz Sachsen: Schneckenstein,
5. Erze Sachsen: Schlema-Alberoda (Gang Ruhmvoll), Thüringen: Paitzdorf und Drosen
6. Erz Bayern: Großschloppen und Sachsen: Johangeorgenstadt,
7. Urankonzentrate aller Standorte,
8. alle anderen.

Die Klassifizierung trennt zuerst Thüringer und Sächsische Erze mit hohem Urangehalt ab. Das Erz vom Schneckenstein bildet bei beiden Gruppierungen ein eigenes Cluster. Es ist das Erz mit dem höchsten Urangehalt im Vergleich. Erstaunlich ist, dass alle Urankonzentrate im Cluster 7 vereinigt sind. Das spricht für eine gute Signifikanz der manuell ausgewählten Indikatoren.

Im nächsten Schritt wurden die 29 über die Faktoranalyse ermittelten statistisch bedeutsamen Parameter: Ge, Nb, P, Ce, Pr, Nd, Sm, Gd, Dy, Th, Co, Pd, Y, Eu, Yb, Lu, Sr, Cd, Pb, S-ges, Sulfid-S, Ti, Zn, GV, TC, TOC, Zr, U, B für die Klassifizierung (Abbildung 10) eingesetzt.

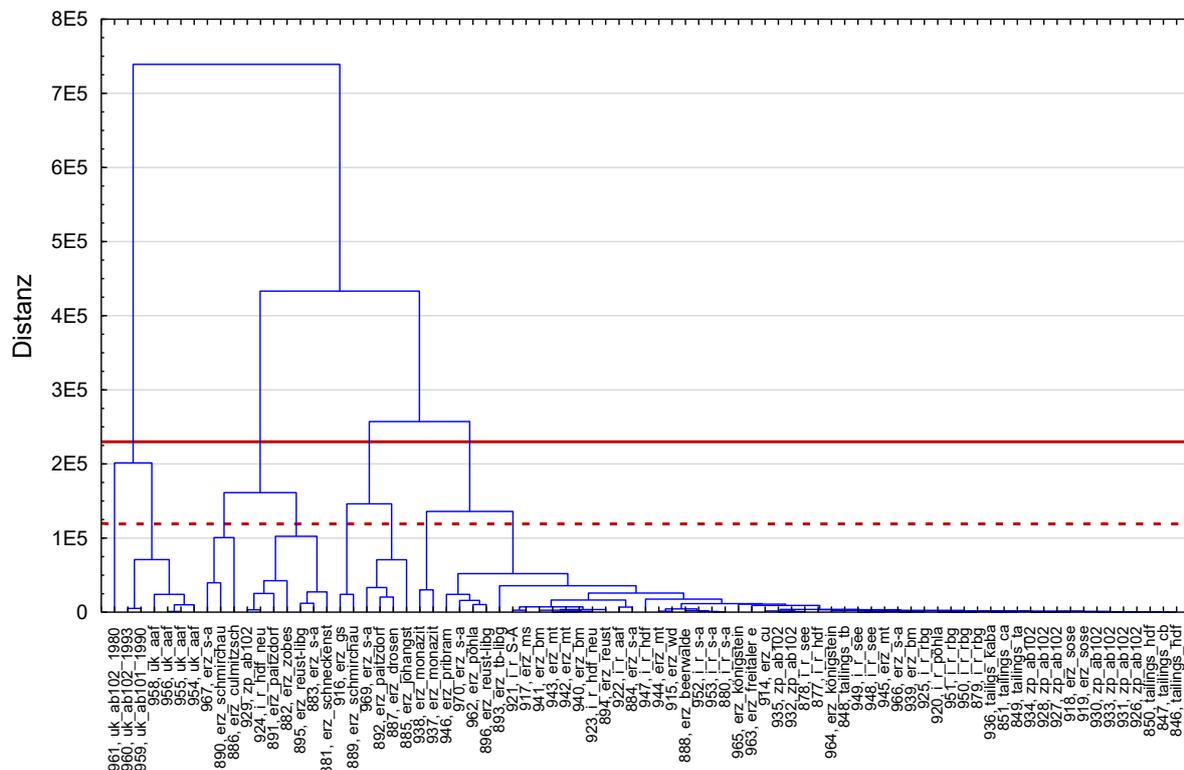


Abbildung 10: Klassifizierung der statistisch über eine Faktorenanalyse ermittelter Indikatorparameter ohne Radionuklide $N = 29$

4er Cluster:

1. Konzentrate Seelingstädt, Crossen und Königstein,
2. bunte Mischung aus Erzen und Urankonzentrationen mit niedrigem Urangehalt (ZP und Helmsdorf),
3. verschiedene Erze sowie
4. alle anderen.

8er Cluster:

1. das historische Konzentrat aus Seelingstädt von 1980,
2. die Konzentrate Königstein sowie Seelingstädt 1993 und Crossen 1990,
3. Erze Sachsen: Schlema-Alberoda (Gang Erna), Thüringen: Schmirchau und Culmitzsch,
4. Urankonzentrate mit niedrigem Urangehalt (ZP und Helmsdorf) und eine bunte Mischung von Erzen,
5. Erz Bayern: Großschloppen und Thüringen: Schmirchau
6. Erz Mischung,
7. die beiden Monazite,
8. alle anderen.

Diese Klassifizierung liefert besonders bei der 8er Gruppierung eine nachvollziehbare Unterteilung der Urankonzentrate. Die Gemeinsamkeiten im Cluster 5 zwischen den Erzen Großschloppen und Schmirchau Block 559 kann anhand der Daten nicht erklärt werden. Insgesamt treten die Erze aller Herkunft in den Clustern gemischt auf. Einzige Ausnahme sind die Monazite, sie bilden aus besagten Gründen ihr eigenes Cluster.

Im letzten Klassifizierungsschritt (Abbildung 11) wurde die Schnittmenge (Übereinstimmung) aus den manuellen und statistischen Indikatorparametern: Co, P, S-ges, Sr, Sulfid-S, Th, TOC, U, Zn, Zr, Ce, Nd, Pr, Sm, Y, Gd, Dy und Ge verwendet.

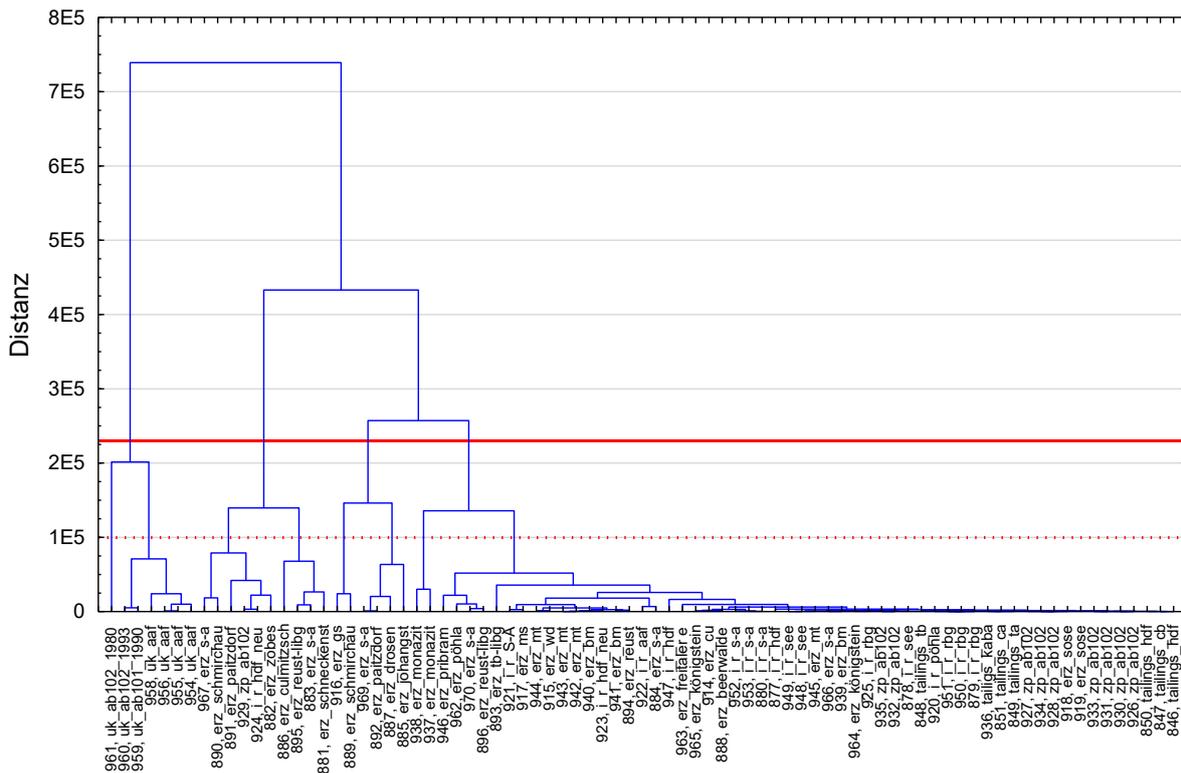


Abbildung 11: Klassifizierung auf Grundlage der übereinstimmenden Parameter aus manueller und statistischer Indikatorparameterermittlung N = 18, ohne Radionuklide

Diese Klassifizierung ist von der Verteilung der Proben in den Clustern identisch mit den vorhergehenden Ergebnissen in Abbildung 11. Nur innerhalb der Clustern gibt es einige wenige Stellungswechsel speziell bei den Erzen.

Anhand der durchgeführten Varianzanalyse der partitionierenden Klassifizierung (k-Means-Verfahren) für alle Parameter hat sich gezeigt, dass eine Aufteilung der Proben in 8 Gruppen für die meisten Parameter signifikante Unterschiede gezeigt werden konnten. Daher werden im Folgenden die einzelnen Klassifizierungsergebnisse für N = 8 Gruppen ausgewertet.

Auf der Grundlage der Datenbasis von Abbildung 11 wurden in Tabelle 4 die Urankonzentrationsbereiche (Datei: [20221102_Clusterzugehörigkeit bearbeitet_dul.xlsx]) der Cluster mit dem Minimum, Mittelwert und Maximum zusammengefasst. Dabei fällt auf, dass bis auf das Cluster 7 (Monazite) sich keine Wertebereiche für Uran überschneiden. Die Klassenbildung ist, wie bereits erwähnt, sehr dominant durch Uran geprägt, was bei einer Auswahl von uranhaltigen Produkten zu erwarten ist. Die Monazite stehen durch ihren einzigartigen Thoriumgehalt in dieser Auswahl in einer eigenen Kategorie.

Tabelle 4: Clusterbeschreibung für Uran

Cluster	Proben	Minimum Uran in ppm	Mittelwert Uran in ppm	Maximum Uran in ppm
1	historisches Konzentrat aus Seelingstädt von 1980,		530000	
2	Konzentrate Seelingstädt 1993 und Crossen 1990	660000	662500	665000
3	Konzentrate Königstein	707000	720250	731000
4	Schneckenstein Erzgebirge, Schlema-Alberoda Gang Beryll, Reust-Lichtenberg Bl. 1022, Culmisch Basalkonglomerat, Paitzdorf Bl. 1146, Zwischenprodukt Konzentrat : Sand: 1:1, WBA Helmsdorf Rückstand neu und Zobes im Vogtland	315000	364000	417000
5	Schlema-Alberoda Gang Erna, Schmirchau Bl. 664, Schmirchau Bl. 599 und Großschloppen Bayern Fichtelgebirge	203000	250000	292000
6	Johanngeorgenstadt, Paitzdorf Bl. 1175, Schlema-Alberoda, Gang Ruhmvoll und Drosen	81000	106025	144000
7	Monazit Ambatofotsikely Madagaskar und Monazitsand Australien	536	584	631
8	alle anderen	20	7077	51900

5.2.3 Schlussfolgerung

Die statistische Berechnung auf der Grundlage der analysierten Datenbasis klassifiziert Probengruppen relativ streng nach dem Urangehalt. Eine Unterscheidung nach anderen Parametern ist leider nicht eindeutig darzustellen.

Es wird darum im folgenden Abschnitt die Anwendung der manuell und statistisch ermittelten Indikatoren stoffgruppenbezogen für die Unterscheidung der einzelnen Produkte verwendet.

6 Anwendung der Indikatoren

Die in Deutschland nutzbaren Quellen für die Herstellung von Urankonzentraten sind die hydrometallurgische Aufbereitung von Uranerzen, die Wasserbehandlungsanlagen der sanierten Hinterlassenschaften des Uranbergbaus in Sachsen und Thüringen aber auch die Uranabtrennung bei der Trinkwasseraufbereitung in Bayern, Sachsen und Thüringen. Während die Uranerzaufbereitung im Dezember 1991 mit der Stilllegung des Aufbereitungsbetriebes AB 102 in Seelingstädt beendet wurde, sind die Wasserbehandlung und die Trinkwasseraufbereitung auch zukünftig eine Quelle für Urankonzentrate die eine Verfügbarkeit im dreistelligen kg-Maßstab (U_3O_8) ermöglichen. Darum ist es besonders wichtig, diese Produkte ihrer Quelle genau zuordnen zu können.

In diesem Abschnitt werden die untersuchten Produkte anhand ihrer Eigenschaften und die in diesem Projekt erarbeiteten Indikatoren differenziert. Grundlage ist die Bewertungsmatrix in der Datei: [\[20221028_Bestimmungsmatrix.xlsx\]](#).

6.1 Urankonzentrate

Verglichen werden folgende Produkte:

- historisches Konzentrat AB 102 Seelingstädt von 1980 (HUK 1980),
- Konzentrat AB 102 Seelingstädt von 1993 (KZP 1993),
- Zwischenprodukt Konzentrat: Sand: 1:1 (UK ZP),
- Konzentrat vom AB 101 Crossen von 1990 (UKC 1990),
- Königsteiner Konzentrat (KK) sowie
- Rückstände der WBA neuen Helmsdorf (UKW Hdf).

Als Indikatoren (9) wurden die Elemente: Al, As, Ba, Fe, Na, P, W und das Nuklid Ra-226 sowie der Summenparameter TOC erarbeitet.

In den folgenden Punkten werden die einzelnen Produkte mit ihren spezifischen Eigenschaften beschrieben.

6.1.1 Historisches Konzentrat Seelingstädt HUK 1980

Die Eigenschaften der Konzentrate spiegeln die Herstellungsbedingungen wider. Unterschiede lassen sich relativ genau von den Aufbereitungsverfahren ableiten.

Das historische Urankonzentrat von 1980 (HUK 1980) ist ein ockerfarbenes Pulver mit einem Urangehalt von ca. 580000 ppm (ca. 68 % U_3O_8). Die mit ca. 250 g befüllte Glasflasche erzeugt an einem direkt angelegten ODL-Messgerät ca. 1,0 μ Sv/h.

Was an der Probe optisch auffällt, ist die für ein Gemisch aus Natrium- und Ammoniumdiuranat relativ dunkle Farbe. Die recht kräftige Ockerfarbe resultiert aus dem hohen Eisengehalt. HUK 1980 hat mit ca. 93300 ppm den höchsten Eisengehalt aller untersuchten Produkte.

Die Ursache für den hohen Eisengehalt sowie den anderen Indikatoren reflektiert die damaligen Aufbereitungsverfahren und die Zusammensetzung der Erze. Markanter Unterschied zu jüngeren Produkten ist ein noch relativ hoher Anteil an Erzen, die mit Schwefelsäure gelaugt wurden. Durch die im Vergleich zum Sodaverfahren sehr aggressiven und korrosiven Laugungsbedingungen wurde neben dem Uran auch eine Reihe von weiteren Erzbestandteilen gelöst. Prominente Elemente sind Eisen aus dem Pyrit, Phosphor mit ca. 15000 ppm aus dem Apatit und Aluminium mit ca. 4970 ppm aus den alauhaltigen Kieselschiefererzen. Aber auch radioaktive Nebenbestandteile wie Radium mit ca. 10800 Bq/kg (Ra-226) wurden mobilisiert. Aus diesem Grund hat das HUK 1980 für diese Parameter die mit Abstand höchsten Konzentrationen bzw. Aktivitätskonzentrationen der Vergleichsproben.

Der Parameter Natrium ist im HUK 1980 vergleichsweise hoch. Zum Produktionszeitpunkt wurden zur Fällung neben Ammoniak auch Natronlauge verwendet.

Die Elemente As und Ba sind zwar vorhanden, liegen aber auf relativ niedrigem Niveau. Dies ist ein Indiz dafür, dass kein Erz aus dem Erzgebirge und auch noch kein sog. Zwischenprodukt aus Königstein verarbeitet wurde.

6.1.2 Urankonzentrat aus Königsteiner Zwischenprodukt KZP 1993

Die Probe KZP 1993 wurde im September 1993 abgefüllt. Das Produkt stammt somit nicht mehr aus der aktiven Produktionszeit, sondern enthält Uran aus dem sog. Königsteiner Zwischenprodukt.

Das KZP war aufgrund seiner Kontamination mit Organik und Eisen (Untertagelaugung) nicht verkaufsfähig. Es wurde in Seelingstädt mit Schwefelsäure wieder aufgelöst, das Eisen durch Zugabe von Natronlauge vorabgetrennt und anschließend Uran mit Ammoniak gefällt.

Klares Indiz für einen hohen Anteil von Uran aus Königstein ist der mit ca. 1780 ppm relativ hohe Bariumwert, der für die Urankonzentratsuspension (bis 2021, siehe 6.1.5) typisch ist.

Der Eisengehalt ist mit ca. 13300 ppm für die Seelingstädter Anlage relativ niedrig. Das Produkt selbst hat eine für Ammoniumdiuranat typische kräftige gelbe Farbe. Der Urangehalt ist mit 720000 ppm (84 % U_3O_8) der Höchste im Vergleich, was auf die Reinigungsfällung zurückzuführen ist. Die ODL der ca. 140 g schweren Probe direkt an der Glasflasche beträgt ca. 1,2 μ Sv/h.

Der Natriumgehalt liegt mit ca. 2550 ppm deutlich unter der HUK 1980 und der UKC 1990. Alle anderen Parameter sind unauffällig.

6.1.3 Unbekanntes Urankonzentrat aus Seelingstädt UK ZP

Das UK ZP ist zweifellos ein Seelingstädter Produkt, was durch die niedrige Arsenkonzentration mit ca. 107 ppm und dem niedrigen Bariumgehalt von 147 ppm begründet wird. Es muss jedoch bei der Interpretation der Daten berücksichtigt werden, dass die Probe durch einen Witzbold mit Sand im Massen-Verhältnis 1 : 1 verdünnt wurde. Dies kann man sehr gut an der Siliziumkonzentration von ca. 240000 ppm (SiO_2 ca. 51,5 %) erkennen. Das bedeutet jedoch, dass die relevanten Stoffkonzentrationen durch die Sandbeimischung um rund 50 % verdünnt wurden. Die Urankonzentration beträgt demzufolge nicht ca. 340000 ppm sondern ca. 680000 ppm (80 % U_3O_8).

Das Produkt ist pulverförmig und hat eine hellere uranylgelbe Farbe. Die ODL der ca. 500 g schweren Probe liegt bei ca. 2,8 μ Sv/h.

Beim Vergleich der Indikatoren fällt besonders Aluminium auf, was hochgerechnet mit ca. 2020 ppm in Richtung HUK 1980 zeigt. Der Bariumgehalt mit hochgerechnet ca. 294 ppm ist nicht deutlich erhöht, was auf nur geringe Anteile an Königsteiner Zwischenprodukt hindeutet. Der Eisengehalt mit hochgerechnet ca. 11420 ppm ist recht markant aber vergleichsweise niedrig und passt damit in die Produktqualität der späten 1980er Jahre bis 1991. Der Natriumgehalt mit hochgerechnet ca. 7920 ppm weist auf eine Natronlaugenfällung hin.

Die eigentlich anonyme Probe ohne Probenahmedatum, Herkunftsangabe und mit Sand verdünnt, kann somit recht sicher als UK aus Seelingstädt mit einem Produktionsdatum um 1990 deklariert werden.

6.1.4 Crossener Urankonzentrat UKC 1990

Das Produkt UKC 1990 stammt aus dem Aufbereitungsbetrieb AB 101 Crossen. Die Probe wurde ähnlich der KZP 1993 nach der Stilllegung (1988/89) der aktiven Uranerzaufbereitung dieser Anlage genommen. Das Erscheinungsbild der Probe ist typisch uranylgelb aber untypisch granulatartig, was auf die Trocknung einer Suspension hindeutet. Es ist kein sauberes Endprodukt wie die HUK 1980 und KZP 1993, es muss sich um eine Probe vor der Endtrocknung im Rotationsdünnenschichtverdampfer handeln. Der Urangehalt ist mit ca. 680 000 ppm (ca. 80 % U_3O_8) qualitativ sehr gut, die ODL der ca. 400 g schweren Probe weist ca. 4 μ S/h auf.

Charakteristisch für die Crossener Aufbereitung ist der mit ca. 7580 ppm sehr hohe Arsengehalt. Ursache ist die sodaalkalische Drucklaugung der Erze aus dem Erzgebirge mit signifikantem Arsenanteil.

Die Eisenkonzentration liegt bei 22700 ppm sehr hoch und befindet sich damit an 2. Stelle im Vergleich. Die Ursache ist auch hier die sodaalkalische Drucklaugung, bei der der Pyritanteil in den Erzen aufgeschlossen wurde.

Der Natriumgehalt mit ca. 10100 ppm weist wiederum auf eine Natronlaugefällung hin.

Das UKC 1990 aus Crossen hat als einziges Produkt mit ca. 924 ppm eine markante Wolframkonzentration.

Alle anderen Parameter sind unauffällig.

6.1.5 Königsteiner Konzentrat KK

Nachdem man sich richtigerweise Mitte der 1990er Jahre dazu entschlossen hatte, das KZP nicht mehr nach Seelingstädt zu fahren², sondern in Königstein eine Konzentratqualität zu erzeugen, die verkaufsfähig war, wurde ein verfahrenstechnisch sehr anspruchsvolles Verfahren installiert.

Ausgangsprodukt war das Reichregenerat der Ionenaustauscher, die seit Anfang der 1980er Jahre das Uran aus der Untertagelaugung und nach Schließung der Grube aus dem Grubenwasser abgetrennt haben. Die Regeneratlösung wurde einer zweistufigen Fällung unterzogen. Im ersten Schritt wurde durch die Zugabe von Natronlauge Eisen abgetrennt. Darum ist die Eisenkonzentration im KK mit durchschnittlich 2700 ppm vergleichsweise niedrig. Die Fällung des Urans in der zweiten Stufe wurde mit Wasserstoffperoxid durchgeführt. Dabei entstand Uranylperoxid (UO_4) als ein sehr sauberer und hellgelber Niederschlag. Das KK wurde nach der Fällung nur dekantiert, gewaschen und in Form einer Suspension verkauft.

Der Urangehalt lag durchschnittlich bei sehr guten 700000 ppm (ca. 82 % U_3O_8) in der Trockensubstanz. Die ODL liegt bei ca. 2 $\mu\text{Sv/h}$ an einer mit ca. 400 ml Suspension gefüllten PE-Flasche.

Markant am KK ist, dass es außer den genannten Eisengehalten nur noch Barium in signifikanten Konzentrationen von rund 4800 ppm enthält. Es ist darum sehr klar von den anderen Produkten unterscheidbar und liefert zusätzlich den Nachweis der ungewöhnlichen Zusammensetzung eines vermeintlichen Seelingstädter Produktes, dem KZP.

6.1.6 Rückstand der neuen WBA Helmsdorf UKW Hdf

Das UKW Hdf entstammt dem Sickerwasser aus der IAA Helmsdorf. Hier werden ca. 49 Mio. m^3 sodaalkalische Tailings des AB 101 Crossen in-situ verwahrt. Das Uran wird mit einem Ionenaustauscher abgetrennt, der auch in der Uran-Trinkwasserbehandlung eingesetzt wird. Besonderes Merkmal dieses Ionenaustauschers ist, dass er eine sehr hohe Affinität zu komplexen organischen Verbindungen hat, die mit dem Oberbegriff Huminstoffe bezeichnet werden. Huminstoffe sind ubiquitäre Abbauprodukte bei der Mineralisierung von Biomasse in Böden und Gewässern. In Abhängigkeit der Urankonzentration im Rohwasser (Sickerwasser Helmsdorf ca. 7 mg/l und im Trinkwasser zwischen 0,015 mg/l und 0,030 mg/l) und damit der Beladungszeit, werden relativ große Mengen an Huminstoffen an den Ionenaustauschern gebunden. In Helmsdorf sind es ca. 30 % der Uranbeladung und im Trinkwasser können es bis zu 200 % sein. Bei der sauren Regeneration der Ionenaustauscher werden die Huminstoffe vollständig desorbiert und befinden sich dann in entsprechend hoher Konzentration im Regenerat wieder. Regenerate im Trinkwasserbereich färben sich dadurch ähnlich dunkelbraun wie Schwarztee. Huminstoffe sind chemisch sehr robust und führen teilweise zu einer sehr stabilen Komplexierung von Uran, was im Trinkwasserbereich die alkalische Fällung (egal womit) massiv behindert. Glücklicherweise ist durch die hohe Urankonzentration in Helmsdorf die Beladung mit Huminstoffen nicht so hoch, dass sich dies bei der Uranfällung mit Natronlauge bemerkbar macht. Als Indikator für diese Stoffgruppe wurde der Summenparameter TOC verwendet, da ein signifikanter Anteil der Huminstoffe im alkalischen pH-Bereich ausfällt.

Die Konzentration an organischem Kohlenstoff liegt im UKW Hdf bei ca. 3,1 % (31000 ppm) und die Urankonzentration bei ca. 330000 ppm (ca. 39 % U_3O_8). Da das Urankonzentrat nicht genutzt wird, erfolgt keine Waschung des Fällproduktes, woraus ein sehr hoher Natriumgehalt von ca. 207000 ppm resultiert. Die vergleichsweise hohe Phosphorkonzentration mit ca. 1460 ppm resultiert aus dem Komplexsystem der Huminstoffe.

Gemeinsames Merkmal des UKW Hdf aber auch von Urankonzentraten aus der Trinkwasserbehandlung sind hohe bis sehr hohe Gehalte an TOC.

² Ein anderer wichtiger Grund war, dass die Anlage in Seelingstädt abgerissen werden musste.

6.1.7 Zusammenfassung Urankonzentrate

In Tabelle 5 sind die signifikanten Eigenschaften zur Unterscheidung der untersuchten Konzentratprodukte zusammengefasst. Neben dem Aussehen und dem Urangehalt wurden alle Parameter mit zutreffend hohen Konzentrationen bzw. Aktivitätskonzentrationen als positive Indikatoren bezeichnet. Die Elemente, die in den Produkten typischerweise mit relativ niedrigen Konzentrationen vertreten sind, wurden als negative Indikatoren benannt. Zusätzlich wurden die Elemente bzw. der Summenparameter TOC fett hinterlegt, die nur für dieses Produkt am zutreffendsten sind.

Tabelle 5: Zusammenfassung der Indikatoren für Urankonzentrate

Produkt	Aussehen	Urangehalt % U ₃ O ₈	positive Indikatoren	negative Indikatoren
HUK 1980	ockerfarben, Pulver	68	Fe, P, Al, Na, Ra-226	As, Ba
KZP 1993	gelb, Pulver	84	Ba, U	Na, P
UK ZP	hellgelb, Pulver	80	Al, Fe, Na, Ra-226	As, Ba, P
UKC 1990	gelb, Granulat	80	As, W, Fe, Na, Ra-226	Ba, P
KK	hellgelb, Suspension	82	Ba	Fe
UKW Hdf	gelb, Suspension	39	TOC, Na, P	U, Fe

6.2 Rückstände und Immobilisate der Wasserbehandlung

Die Abtrennung von Schadstoffen aus Grubenwässern, Sickerwässern von Absetzanlagen und Halden ist eine zwingende Notwendigkeit, um die Umweltauswirkungen der Hinterlassenschaften des Uranbergbaus in Deutschland langfristig zu reduzieren. Das Ergebnis sind jährlich viele Millionen m³ gereinigtes Wasser, die schadlos in die Gewässer eingeleitet werden können. Was jedoch bleibt, sind tausende von Tonnen abgetrennte Schadstoffe (Rückstände), die für die Langzeitstabilisierung mit Zement, Kalk und Braunkohlenfilterasche gemischt und anschließend sicher verwahrt werden.

Alle Behandlungsverfahren haben das Ziel, den Rückstandsanteil so gering wie möglich zu gestalten. Geringe spezifische Rückstandsmengen bedeuten jedoch auch sehr hohe Stoffkonzentrationen im Rückstand. Durch die Immobilisierung wird durch die Mengenvermehrung die Stoffkonzentration entsprechend dem Mischungsverhältnis reduziert. Da Uran bis auf wenige Ausnahmen zu den Hauptabtrennkomponenten gehört, sind die genannten Produkte als Uranquelle prädestiniert.

Als Indikatoren kommen 7 Parameter als Hauptkomponenten und 7 weitere als Nebenkomponten speziell nur für das Immobilisat in Königstein in Frage: As, Ba, Mn, P, Pb, Ra-226, U sowie Ce, Nd, Pr, Sm, Y, Gd und Dy. Im Folgenden werden die Produkte hinsichtlich dieser Indikatoren verglichen:

- Rückstände:
 - WBA Ronneburg,
 - WBA Schlema-Alberoda,
 - WBA Pöhla,
 - WBA (neue AAF) Königstein,
- Immobilisate:
 - alte WBA Helmsdorf,
 - neue WBA Helmsdorf,
 - WBA Seelingstädt,
 - WBA Ronneburg und
 - WBA Schlema-Alberoda.

6.2.1 WBA Ronneburg

Die WBA Ronneburg behandelt jährlich rund 3,6 Mio. m³ Grubenwasser aus dem Ronneburger Revier. Dabei entstehen rund 9000 m³ Immobilisate. Die Behandlungstechnologie ist eine Kalkfällung (Oxidation und Neutralisation) mit Schlammrückführung (HDS³-Verfahren). Abzutrennende Schadstoffe sind Eisen (ca. 120 mg/l), Mangan (ca. 6 mg/l), weitere Schwermetalle wie z.B. Nickel (ca. 0,5 mg/l) und Uran (ca. 0,6 mg/l).

Aufgrund der Mengendominanz des Eisens ist die WBA Ronneburg (neben der WBA Pöhla) eine der Anlagen mit der niedrigsten Urankonzentration. Sie liegt im Rückstand bei ca. 726 ppm und im Immobilisat bei durchschnittlich 200 ppm. Auch die Indikatoren Mangan (ca. 4890 ppm im Rückstand und rund 2000 ppm im Immobilisat), Arsen (ca. 240 ppm) und Barium (ca. 1300 ppm) liegen im Vergleich mit den anderen Anlagen im unteren Konzentrationsbereich.

6.2.2 WBA Seelingstädt

Behandlungsziel der WBA Seelingstädt sind die Sicker-, Grund- und Porenwässer der IAA Culmitzsch und IAA Trünzig. Die Anlage hat einen Maximaldurchsatz von ca. 330 m³/h. Bei einer mittleren Jahresmenge an behandeltem Wasser von ca. 1,5 Mio. m³ entsteht eine Immobilisatmenge von rund 1400 m³. Das Zulaufwasser hat mittlere Urankonzentrationen von ca. 1,2 mg/l, Arsen ca. 0,024 mg/l, Mangan ca. 4,4 mg/l und Ra-226 ca. 230 mBq/l.

Das angewendete modifizierte Kalkfällverfahren ist sehr gut rückstandsoptimiert und liefert im Immobilisat durchschnittliche Urangehalte von ca. 1600 ppm. Auch die weiteren Indikatoren wie Barium (ca. 6700 ppm) und Mangan (ca. 5800 ppm) liegen in signifikanten Konzentrationen vor.

Charakteristisch sind jedoch die sehr niedrigen Arsengehalte mit durchschnittlich 40 ppm und die Ra-226-Aktivitätskonzentration im Mittel von 300 Bq/kg.

6.2.3 WBA Helmsdorf alt

Wie bereits unter 6.1.6 beschrieben, wird in der alten wie in der neuen Anlage das Sickerwasser der IAA Helmsdorf behandelt. Der Jahresdurchsatz geht durch die Häufung der Trockenjahre kontinuierlich zurück und liegt bei rund 300000 m³. Das Behandlungsverfahren ist ebenfalls das modifizierte Kalkfällverfahren. Die Rückstandsmenge beträgt rund 600 m³ pro Jahr. Behandlungsziele sind Uran mit ca. 7 mg/l und Arsen mit ca. 1 mg/l.

Das mit Zement und Braunkohlenfilterasche (Kraftwerk Chemnitz) erzeugte Immobilisat hat mit durchschnittlich 3500 ppm eine recht hohe Urankonzentration. Die ehemals sehr hohen Arsengehalte liegen momentan nur noch bei rund 500 ppm. Demgegenüber beträgt die Konzentration für den chemisch sehr ähnlichen Phosphor ca. 14000 ppm, was für die Helmsdorfer Produkte typisch ist. Die weiteren Indikatoren wie Barium und Mangan haben ein Konzentrationsniveau um 1000 ppm.

Die Altanlage wird in den kommenden 2 Jahren stillgelegt. Seit der Inbetriebnahme der neuen WBA Helmsdorf im März 2021 wird die Altanlage nur noch sporadisch angefahren, um die Technik während des Probebetriebes in Bereitschaft zu halten.

6.2.4 WBA Helmsdorf neu

Die Behandlungsziele für die Neuanlage sind die Gleichen: Uran und Arsen. Die Abtrennung von Uran wurde schon unter 6.1.6 beschrieben. Für die Entfernung von Arsen wird ein Adsorber auf Eisenhydroxidbasis (Ferosorp) eingesetzt. Das Urankonzentrat und der Arsenadsorber werden aktuell noch getrennt voneinander durch die Mischung mit Zement immobilisiert. Das Uranimmobilisat ist dadurch nahezu arsenfrei. Die Urankonzentration ist mit 10300 ppm rund dreifach höher als in der Altanlage. Zukünftig sollen beide Produkte gemeinsam immobilisiert werden. Es ist zu vermuten, dass dann die Immobilisatkonzentrationen ähnliche Parameterzusammensetzungen und Konzentrationsniveaus hat, wie das Alt-Immobilisat.

³ HDS: high density sludge

6.2.5 WBA Schlema-Alberoda

Die WBA Schlema-Alberoda behandelt jährlich rund 4,3 Mio. m³ Grubenwasser der Grube Schlema-Alberoda. Der Rückstandsanfall liegt durch das modifizierte Kalkfällverfahren bei vergleichsweise niedrigen 760 m³. Behandlungsziele sind Uran (ca. 1 mg/l), Radium (ca. 1350 mBq/l als Ra-226), Arsen (ca. 1,25 mg/l) und Mangan (ca. 1,6 mg/l). Durch die sehr geringen spezifischen Rückstandsmengen sind die Stoffkonzentrationen sehr hoch. Im Rückstand sind die Konzentrationen wie folgt: Uran ca. 16800 ppm, Arsen ca. 19600 ppm, Barium (durch die Zugabe von Bariumchlorid zur Radiumabtrennung), 175000 ppm, Mangan (ergänzt durch die Zugabe von Kaliumpermanganat zur Manganabtrennung) 57000 ppm und Radium 24700 Bq/kg als Ra-226. Durch die Immobilisierung mit Zement werden die wesentlichen Stoffkonzentrationen rund um den Faktor 3 herabgesetzt. Alleinstellungsmerkmal der Anlage Schlema-Alberoda sind die sehr hohen Konzentrationen bzw. Aktivitätskonzentrationen aller vier Behandlungsziele: Uran, Radium, Arsen und Mangan.

6.2.6 WBA Pöhla

Die WBA Pöhla reinigt das über einen Stolln abfließende Grubenwasser der Grube Pöhla-Tellerhäuser und ist mit einem Jahresdurchsatz von rund 100000 m³ die kleinste WBA der Wismut GmbH. Die Rückstandsmenge beträgt rund 200 m³. Diese werden in der WBA Schlema-Alberoda gemeinsam mit deren Rückständen immobilisiert. Behandlungsziele sind Radium (ca. 3700 mBq/l als Ra-226), Arsen (ca. 1,5 mg/l) und Eisen (ca. 3,3 mg/l). Die Urankonzentration liegt durch die reduzierenden Bedingungen in der gefluteten Grube bei nur 0,01 mg/l. Das Behandlungsverfahren ist eine sehr einfach gehaltene Fällung mit Eisenchloridsulfat (Arsenabtrennung) und Bariumchlorid (Radiumabtrennung) sowie unterstützender Oxidation durch Wasserstoffperoxid.

Der entstehende Rückstand ist in seiner Zusammensetzung einzigartig und wird dominiert von ca. 136000 ppm Barium, 46500 mBq/l Radium (als Ra-226) und ca. 21300 ppm Arsen. Die Urankonzentration ist mit nur 113 ppm die niedrigste im Vergleich.

6.2.7 WBA (neue AAF) Königstein

Ab dem 1. März 2020 wurde die separate Gewinnung von Uran aus dem Grubenwasser Königstein beendet. In einer neuen und erweiterten HDS-Anlage (neue AAF) werden aus rund 700000 m³ Grubenwasser die Parameter: Uran (ca. 8 mg/l), Radium (ca. 6000 mBq/l als Ra-226), Eisen (ca. 45 mg/l), Mangan (ca. 7 mg/l) und weitere Elemente (Schwermetalle) abgetrennt. Eine Besonderheit des Standortes Königstein ist, dass die Rückstände (ca. 620 m³) nicht immobilisiert, sondern nach der Teilentwässerung mittels Kammerfilterpresse direkt verwahrt werden. Entsprechend hoch sind die Konzentrationen der Hauptparameter: Barium (ca. 68300 ppm), Uran (ca. 22200 ppm), Radium (22900 Bq/kg als Ra-226), Zink (ca. 10900 ppm) sowie Blei (ca. 1670 ppm).

Alleinstellungsmerkmal der Grube Königstein sind jedoch signifikante Konzentrationen an selteneren Elementen wie Yttrium und den Vertretern der Lanthanoide: Cer, Praseodym, Neodym, Samarium, Gadolinium und Dysprosium.

6.2.8 Zusammenfassung Wasserbehandlungsprodukte

In Tabelle 6 sind die signifikanten Eigenschaften zur Unterscheidung der untersuchten Rückstände und Immobilisate der Wasserbehandlung zusammengefasst. Neben produzierten Jahresmengen und dem Urangehalt wurden alle Parameter mit zutreffend hohen Konzentrationen bzw. Aktivitätskonzentrationen als positive Indikatoren bezeichnet. Die Elemente die in den Produkten typischerweise mit relativ niedrigen Konzentrationen vertreten sind, wurden als negative Indikatoren benannt. Zusätzlich wurden die Elemente und Elementgruppen fett hinterlegt, die nur für dieses Produkt signifikant sind.

Tabelle 6: Zusammenfassung Eigenschaften Rückstände und Immobilisate

Anlage	Immobilisate Rückstände in m³/a	Urangehalte in ppm	positive Indikatoren	negative Indikatoren
Immobilisate				
WBA Ronneburg	9000	200	keine	U, As
WBA Seelingstädt	1000	1600	Ba, Mn	As, Ra-226
WBA Helmsdorf alt	600	3500	P , As	keine
WBA Helmsdorf neu	600	10300	U , As	keine
WBA Schlema-Alberoda	760	6000	Ba, As, Mn, Ra-226	Zn
Rückstände				
WBA Pöhl	200	113	Ba, Ra-226 , As	U, Mn
WBA (neue AAF) Königstein	620	22200	Y , Lanthanoide , Pb, Ra-226, Zn	As

6.3 Tailings

Die Rückstände der Uranerzaufbereitung (Tailings oder Berge) werden in sehr großen Mengen in sog. industriellen Absetzanlagen (IAA) verwahrt. In der Geschichte der ostdeutschen Uranerzaufbereitung wurden insgesamt 17 IAA (auch als Schlammteiche bezeichnet) betrieben. In diesem Projekt werden Proben aus den drei größten Anlagen bewertet. Diese sind in Tabelle 7 zusammengefasst.

Tabelle 7: Übersicht der größten IAA

Anlage	Betriebszeit	Fläche in ha	max. Mächtigkeit in m	Masse in Mio. t
IAA Culmitzsch	1967 - 1991	234	65	90
IAA Trünzig	1960 - 1967	115	30	19
IAA Helmsdorf	1958 - 1989	201	48	49

In diesen industriellen Absetzanlagen sind rund 94 % der Tailings der ostdeutschen Uranproduktion eingelagert. Das radioaktive Potential entspricht zu über 90 % dem der Ausgangserze. Es wurden insgesamt 6 Tailings-Proben aus den verschiedenen Verfahrensschemata aus diesen IAA ausgewählt. Zusätzlich für den internationalen Vergleich wurden an dieser Stelle die Tailings aus der Anlage in Kara Balta in Kirgisistan eingegliedert.

Gemeinsames Merkmal aller Tailings sind relativ niedrige Uragehalte zwischen 20 und 264 ppm. Sie sind als Uranquelle in der direkten Nachverarbeitung nicht geeignet. Nur ihre Poren und Sickerwässer sind durch die chemische Aktivierung bei der Aufbereitung eine mittelfristige Möglichkeit für die Uran-gewinnung (siehe Wasserbehandlung). Als Indikatoren für die Unterscheidung der einzelnen Anlagen wurden die Elemente: As, Mn, Mo, P, Pb, S, Zn, Zr, Rb und das Nuklid Ra-226 bestimmt.

Eine Zusammenfassung der relevanten Daten befindet sich in der Datei: [\[22021021_Übersicht Indikatoren aus der Datenzusammenstellung manuelle Auswertung.xlsx\]](#).

6.3.1 IAA Helmsdorf

Im Gegensatz zu den Thüringer Anlagen in Culmitzsch und Trünzig sind die Tailings der IAA Helmsdorf nur aus einem, dem sodaalkalischen Laugungsverfahren entstanden. Entsprechend der Einspültechnologie der Berge als Suspension lagert sich das Material in Abhängigkeit seiner Korngröße in unterschiedlichen Bereichen ab. Direkt an der ringförmigen Einspülleitung (Abbildung 12) lagern sich die sandförmigen Bestandteile und Richtung Beckenmitte die schluffförmigen Feinbestandteile ab.



Abbildung 12: Ringleitung zum Einspülen der Berge, IAA Trünzig

In der Regel ist es so, dass die Stoffkonzentrationen in den Feintailings deutlich höher sind als in den sandigen Tailings. Dies ist auch bei den beiden Helmsdorfer Proben für die Elemente As, Pb, Zn und besonders Ra-226 der Fall (Tabelle 8).

Tabelle 8: Konzentrationsvergleich Schluff- und Sandtailings IAA Helmsdorf

Probe	As in ppm	Mn in ppm	Pb in ppm	U in ppm	Zn in ppm	Ra-226 in Bq/kg
Tailings Helmsdorf Schluff	745	1080	236	127	257	29400
Tailings Helmsdorf Sand	53	2530	8	264	112	106

Charakteristisch für Tailings aus Helmsdorf sind die markanten Arsenkonzentrationen und im deutschen Vergleich die spezifische Radiumaktivität.

6.3.2 IAA Culmitzsch

Die IAA Culmitzsch hat aufgrund der zweigeteilten Aufbereitungstechnologie schwefelsaure Laugung und Sodalaugung folglich auch zwei voneinander getrennte Einlagerungsbereiche für die Tailings (Abbildung 13). Grund war die Kreislaufnutzung der Prozesswässer.



Abbildung 13: IAA Culmitzsch links Becken B und rechts Becken A (1991)

Das Becken A Culmitzsch war der schwefelsaure und Becken B der sodaalkalische Einlagerungsbereich. Die beiden untersuchten Proben gehören zu den sandigen Tailings. Die Vergleichsdaten in Tabelle 9 zeigen im Becken B relativ hohe Mangankonzentrationen, Ursache ist die Verwendung von Braunstein (Mangandioxid) als Oxidationsmittel bei der Laugung. Der Unterschied in der spezifischen Aktivitätskonzentration von Ra-226 ist untypisch, alle weiteren Parameter liegen im unteren Konzentrationsbereich.

Tabelle 9: Datenvergleich IAA Culmitzsch Becken A und B

Probe	As in ppm	Mn in ppm	Pb in ppm	U in ppm	Zn in ppm	Ra-226 in Bq/kg
Tailings Culmitzsch Becken A	53	2720	3	254	128	101
Tailings Culmitzsch Becken B	174	515	92	139	218	3880

6.3.3 IAA Trünzig

Die IAA Trünzig war historisch gesehen die Vorgängeranlage der IAA Culmitzsch für den Aufbereitungsbetrieb Seelingstädt (vgl. Tabelle 7). Auch hier gab es die technologiebedingte Trennung in Becken A und B. Beim Datenvergleich in Tabelle 10 sind die markanten Unterschiede zwischen den Ergebnissen nicht durch die beiden Schemata, sondern durch die Kornklassenverteilung bestimmt. Die Probe aus dem Becken A repräsentiert sandige Tailings und Becken B Feintailings. Hier sind die Verhältnisse eindeutig, dass alle Parameter in den Feintailings deutlich höhere Konzentrationen aufweisen.

Tabelle 10: Datenvergleich IAA Trünzig Becken A und B

Probe	As in ppm	Mn in ppm	Pb in ppm	U in ppm	Zn in ppm	Ra-226 in Bq/kg
Tailings Trünzig Becken A	25	38	160	20	26	3840
Feintailings Trünzig Becken B	267	1830	1030	123	1800	11800

Markant für Trünzig sind die Konzentrationen für Mn, Pb und Zn sowie die spezifische Aktivität für Ra-226.

6.3.4 Kara Balta

Die Tailings aus Kara Balta sind überwiegend sandige Tailings mit einer deutlich helleren und bräunlicheren Farbe als die deutschen Tailings, die durchweg grau bis schwarzgrau gefärbt sind. Die Zusammensetzung der kirgisischen Tailings ist umfangreicher und besonders markant für die Elemente Mo (349 ppm), Zr (166 ppm), Rb (119 ppm) und besonders Ra-226 (2700 Bq/kg). Eine Unterscheidung ist daher für diese Begleitelemente gut möglich.

6.3.5 Zusammenfassung Tailings

In Tabelle 11 sind die signifikanten Eigenschaften zur Unterscheidung der untersuchten Tailings zusammengefasst. Neben den Urangehalten wurden alle Parameter mit zutreffend hohen Konzentrationen bzw. Aktivitätskonzentrationen als positive Indikatoren bezeichnet. Die Elemente die in den Produkten typischerweise mit relativ niedrigen Konzentrationen vertreten sind, wurden als negative Indikatoren benannt. Zusätzlich wurden die Elemente und Elementgruppen fett hinterlegt, die nur für dieses Produkt signifikant sind.

Tabelle 11: Zusammenfassung der Indikatoren für die Tailings

Anlage	Urangehalte in ppm	positive Indikatoren	negative Indikatoren
IAA Helmsdorf	264	As, Ra-226	
IAA Culmitzsch	254	Mn	As, Pb
IAA Trünzig	123	Pb, Zn, Ra-226	As
Kara Balta Kirgisistan	55	Mo, Zr, Rb, Ra-226	As

6.4 Erze

Die Unterscheidung und Zuordnung der Uranerze sollte notwendigerweise durch einen erfahrenen Mineralogen durchgeführt werden.

Hier kann die Zuordnung allein auf der Basis von chemischen Analysen nur ein sehr grobes Instrument sein. Die Anzahl der Indikatoren mit insgesamt 31 ist in dieser Stoffgruppe relativ hoch:

Ag, As, Bi, Co, Cu, Mn, Mo, P, Sb, Se, Sr, Sulfid, Te, Th, Ti, TIC, TOC, Zn, Zr, W, Ce, Nd, Pr, Sm, Y, Gd, Dy, Li, Ga, Rb und Ge.

In der Datei: [\[20221028_Bestimmungsmatrix.xlsx\]](#) wurde neben den Konzentraten, den Rückständen und Immobilisaten sowie den Tailings eine Entscheidungsmatrix (Abbildung 14) anhand der äußeren Merkmale, der UV-Lichteigenschaften, der ODL, der Urangehalte und den ermittelten Indikatoren aufgestellt.

Die Anzahl der relevanten Indikatoren ist für jede Herkunft verschieden. Die Erze aus dem Erzgebirge sind häufig geprägt von einem Silber- und Bismutgehalt aber auch Selen und Wolfram. Die wenigen Lanthanoide sind jedoch auch bei den Thüringer Erzen typisch.

Die Freitaler Erzkohle ist klar durch ihren außergewöhnlichen Kohlenstoffgehalt und durch Molybdän identifizierbar.

Bei den Königsteiner Proben zeigen die Wechsellagerungen durch ihren hohen Kohlenstoffgehalt mit einer ausgesprochenen Affinität zu den Lanthanoiden ein klares Bild, wohingegen der Quadersandstein einfach nur ein relativ sauberer gepresster Sand ist, in den offensichtlich Uran infiltriert ist.

Für die Thüringer Erze sind Antimon, Sulfide (Pyrit), Titan, Zink, Yttrium, Lithium und einige Lanthanoide typisch.

Mit recht hohen Urangehalten zeichnen sich auch die westdeutschen Uranerze aus. Bei den Nebenelementen hat eindeutig Menzenschwand eine ausgeprägtere Vielfalt.

Wie schon mehrfach erwähnt, sind die Monazite in diesem Vergleich eine Besonderheit und zeigen neben dem bestimmenden Thoriumgehalt sehr dominante Gehalte an Phosphor und einer sehr zahlreichen Vielfalt an Lanthanoiden, Yttrium und Germanium.

Bei den Sandsteinerzen der Beverley Mine in Australien und der Mount Taylor Mine in New Mexico sind die Nebenelemente ähnlich schwach vertreten wie beim Königsteiner Sandstein.

Das Tschechische Erz aus Pribiam hat mit Wolfram, Mangan und karbonatischem Kohlenstoff ein gewisses Alleinstellungsmerkmal.

Abbildung 14: Entscheidungsmatrix Erze

Land	Ort/Gebiet	Aussehen	Lagerstätte	UV-Licht	ODL µSv/h	Urangehalte ppm	Indikatoren	
Sachsen	Erzgebirge	typische Erzstufen, Minerale sehr gut erkennbar, gangartige Minerale, Pechblende oft erkennbar, hohe Dichte	Schlema-Alberoda	selten	1,5 bis 80	1 000 bis 400 000	Ag, Bi, W, Ce, Nd, Y	
			Johanngeorgenstadt	nein	10	140 000	Ag, Bi, Se	
			Pöhl-Tellerhäuser	ja	4	40 000	Ag, Bi, Co, W	
			Schneckenstein Erzgebirge	nein	25	420 000	Ag, Bi, Mo, Se, Te, W, Ce, Nd, Y	
Dresden-Gittersee	Dresden-Gittersee	grau-schwarze Steinkohle, brockig-krümelig sehr heller, kompakter und feinkörniger Sandstein mit Eisen und Manganeinschlüssen	Zobes im Vogtland	nein	45	320 000	Ag, Bi, Co, Se, Sr, Ce, Nd, Y	
			Freitaler Erzkohle	ja	0,4	1 500	Mo, TOC	
			Königstein	ja	0,2	700	keine	
			Königstein Quadersandstein	nein	2	4 000	TOC, Zr, Y	
Thüringen	Ronneburg	dunkelgrau, krümelig-blättrig, kohlenstoffhaltig, verkieselte Einlagerungen, Wurmgänge, verkieselte und karbonisierte Pflanzenreste graue Tonstiefer mit Konglomeraten, ausgeblühene Bereich sind uranhaltig, Kohlekieferstiefer, häufig gut erkennbare Pyritanteile (Sulfide)	Culmitzsch	nein	1 bis 100	3 000 bis 300 000	Sb, Sulfid, Ti, Zn, Ce, Nd, Y, Li	
			Drosen	nein	15	81 000	Sb, Ti, Zn, Ce, Nd, Y, Li	
			Beeenwalde	nein	5	5 000	Ti, Zn, Ce, Nd, Y, Li	
			Schmirchau	teilweise	100	250 000	Ag, Co, Sb, Sulfid, Ti, Zn, Ce, Nd, Y, Li	
			Palzdorf	teilweise	20 bis 80	100 000 bis 350 000	Sb, Sulfid, Ti, Zn, Ce, Nd, Y	
			Tagebau Lichtenberg	nein	6	25 000	Co, Sb, Sulfid, Ti, Zn, Ce, Nd, Y	
			Reust	teilweise	5 bis 40	30 000 bis 400 000	Sb, Sulfid, Ti, Zn, Ce, Nd, Y, Li	
			Seelingstadt	grauer Tonstieferersatz mit teilw. gut erkennbaren karbonisierten Pflanzenresten	nein	0,5	900	Ti, Zn, Li
			Oberpfalz	typische Erzstufen, Minerale sehr gut erkennbar, gangartig, Pechblende erkennbar, hohe Dichte	nein	1	9 000	Ti, Zn
			Schwarzwald	braun bis dunkelbraun, grobsütkig	ja	6	200 000	Cu, Se, Rb
Madagaskar	Ambatofotsikely unbekannt	hellgrauer mittelfeiner Sandstein, teilweise gebleicht	Menzenschwand, Schwarzwald	ja	1	17 000	As, P, Ti, W, Li, Ga, Rb	
			Monazit Ambatofotsikely	nein	2	600	P, Th, Ce, Nd, Pr, Sm, Y, Gd, Dy	
Australien	Four Mile West, South Australia	hellgrauer mittelfeiner Sandstein, teilweise gebleicht	Monazit Sand	nein	5	550	P, Th, Ce, Nd, Pr, Sm, Y, Gd, Dy, Ge	
			Beverley Mine	ja	0,5 bis 5	1 000 bis 13 000	P	
USA	New Mexico	schwarzgrauer sehr grober Sandstein mit kiesigen Einlagerungen	Mount Taylor Mine, New Mexico	teilweise	0,4 bis 5	1 600 bis 11 000	Mn, P	
			Bohemian Massiv	nein	3	52 000	Mn, TIC, W	
Tschechien	Přibram	typische Erzstufen, Minerale sehr gut erkennbar, gangartig, hohe Dichte	Bohemian Massiv	nein	3	52 000	Mn, TIC, W	

7 Altersbestimmung (Hermann, B.P.S. Engineering GmbH)

7.1 Randbedingungen für die Altersbestimmung

Eine Altersbestimmung der in diesem Projekt untersuchten Materialien ist mit den der Wismut GmbH zur Verfügung stehenden Mitteln nur möglich, wenn das radioaktive Gleichgewicht durch technologische Prozesse verändert wurde und idealerweise ein relativ eng begrenzter Herstellungszeitpunkt gegeben ist.

Dies ist bei den folgenden Stoffgruppen vorhanden:

- Urankonzentrate: Zeitpunkt der Produktion des Konzentrats,
- Rückstände/Immobilisate WBA: Zeitpunkt der Abtrennung der Kontaminanten aus der flüssigen Phase sowie
- Tailings (nur bedingt, da abhängig von der Art der Beprobung): Zeitpunkt der Abreicherung von Uran im Aufbereitungsprozess.

Aufgrund von möglichen Vermischungen im technologischen Prozess (reales Verweilzeitverhalten) ist eine Altersbestimmung mit einer minimalen Zeitauflösung von einem Jahr als sinnvoll zu betrachten. Es ist aber auch denkbar, Angaben über größere Zeitintervalle zu gewinnen, wenn eine präzisere Aussage nicht möglich ist. Weiterhin wurde in Abstimmung mit dem Auftraggeber festgelegt, dass Zeiträume bis max. 50 Jahre zu betrachten sind. Für die Altersbestimmung sind die Radionuklide der drei natürlichen Zerfallsreihen U-238, U-235 und Th-232 zu benutzen.

Die Wismut GmbH hat für die verschiedenen Stoffgruppen und Untergruppen Nuklidanalysen bereitgestellt und für bestimmte Materialien eine Wiederholung der Analytik nach einem Jahr durchgeführt. Die Wiederholung soll eine Entwicklung des Nuklidvektors zeigen, die für die Altersbestimmung genutzt werden kann. Für alle Einzelproben ist das Alter der Probe im Sinne der Aufgabenstellung bekannt und soll somit die Möglichkeit bieten, Modellansätze für eine Altersbestimmung zu liefern oder zu validieren.

7.2 Beschreibung geeigneter Radionuklide

Im ersten Schritt wurde eine Analyse bezüglich der Radionuklide, die aufgrund ihrer Halbwertszeit geeignet sind, durchgeführt. Dabei ist zu beachten, dass innerhalb von einem Jahr (minimales Δt) bis zu 50 Jahren (maximales Δt) nachweisbare Änderungen der spezifischen Aktivität vorliegen. Es bestehen zwei prinzipielle Möglichkeiten der Analytik: die Gamma-Spektroskopie (BG: 1 Bq/kg) und die Alpha-Spektroskopie (BG: 0,001 Bq/kg). Es ist weiterhin zu berücksichtigen, dass nicht jede Methode auf jedes relevante Radionuklid anwendbar ist und die Alpha-Spektroskopie noch eine Reihe zusätzlicher chemischer Separations- bzw. Selektionsverfahren benötigt.

Grundsätzlich ist für die Nutzung von Radionukliden aus den natürlichen Zerfallsreihen ein Nichtgleichgewicht notwendig, dass sich innerhalb der zu betrachtenden Zeiträume verändert und messtechnisch nachweisbar ist. Dabei können sowohl Prozesse des Aufbaus (Radionuklid lag deutlich unter dem Niveau des radioaktiven Gleichgewichts zum Zeitpunkt $t = 0$) oder des Abbaus (Radionuklid lag deutlich über dem Niveau des radioaktiven Gleichgewichts zum Zeitpunkt $t = 0$) genutzt werden. In der Tabelle 12 werden in den Spalten 4 und 5 die minimalen und maximalen Zeiträume des jeweiligen Radionuklids für die Altersbestimmung angegeben. Dabei wurde als Kriterium herangezogen, dass ein minimaler Aufbau/Abbau auf 15 % und ein maximaler Aufbau/Abbau auf 85 % erfolgt ist.

Alle nachfolgenden Berechnungen wurden mit dem Programmsystem *VIRA* durchgeführt. Dieses Programm basiert auf den in Schpolski Dok 1 angegebenen Lösungen für den radioaktiven Zerfall von Zerfallsketten.

Tabelle 12: Geeignete Radionuklide für eine Altersbestimmung

Nuklid	Halbwertszeit	Einheit	Aufbau auf 15 %	Abbau auf 85 %	α -Zerfall	β -Zerfall	β/α -Zerfall	γ -Zerfall
Uran-Radium-Zerfallsreihe								
U-238	4,50E+09	a			x			(x)
Th-234	24,10	d				x		x
Pa-234m	1,20	m				x		x
U-234	2,50E+05	a			x			(x)
Th-230	80.000	a			x			(x)
Ra-226	1.600	a			x			x
Rn-222	3,80	d			x			
Po-218	3,05	m			x			
Pb-214	26,80	m				x		x
Bi-214	19,80	m				x		x
Po-214	1,62E-04	s			x			
Pb-210	22,00	a	60,2	5,2		x		x
Bi-210	5,00	d				x		
Po-210	138,0	d	1		x			(x)
Uran-Actinium-Zerfallsreihe								
U-235	7,00E+08	a			x			x
Th-231	25,52	h				x		x
Pa-231	32.760	a			x			x
Ac-227	21,80	a	59,7	5,1		x		(x)
Th-227	18,72	d			x			x
Ra-223	11,40	d			x			x
Rn-219	3,96	s			x			x
Po-215	1,78E-03	s			x			
Pb-211	36,10	m				x		x
Bi-211	2,14	m					x	x
Tl-207	4,77	m				x		(x)
Po-211	0,516	s			x			x
Thorium-Zerfallsreihe								
Th-232	1,40E+10	a			x			(x)
Ra-228	5,80	a	15,9	1,4		x		(x)
Ac-228	6,15	h				x		(x)
Th-228	1,91	a	5,2	-	x			(x)
Ra-224	3,70	d			x			(x)
Rn-220	55,60	s			x			
Po-216	0,145	s			x			
Pb-212	10,60	h				x		(x)
Bi-212	60,60	m					x	x
Po-212	2,99E-07	s			x			x
Tl-208	3,05	m				x		x

In den nachfolgenden Kapiteln wird das Potential der relevanten Radionuklide für die jeweiligen Zerfallsreihen dargestellt und mögliche Analyseoptionen werden diskutiert.

7.3 U-235 Reihe

In der Uran-Actinium-Zerfallsreihe (Abbildung 15) besitzt Ac-227 eine Halbwertszeit von 21,8 Jahren und ist somit sehr gut für eine Altersbestimmung geeignet. Alle Tochternuklide von Ac-227 (bis zum Ra-223) besitzen Halbwertszeiten mit max. 18,7 Tagen (Th-227), so dass man unter der Randbedingung einer zeitlichen Auflösung von einem Jahr für alle ein radioaktives Gleichgewicht unterstellen kann. D.h. alle Tochternuklide sind für Nuklidanalytik von Ac-227 geeignet.

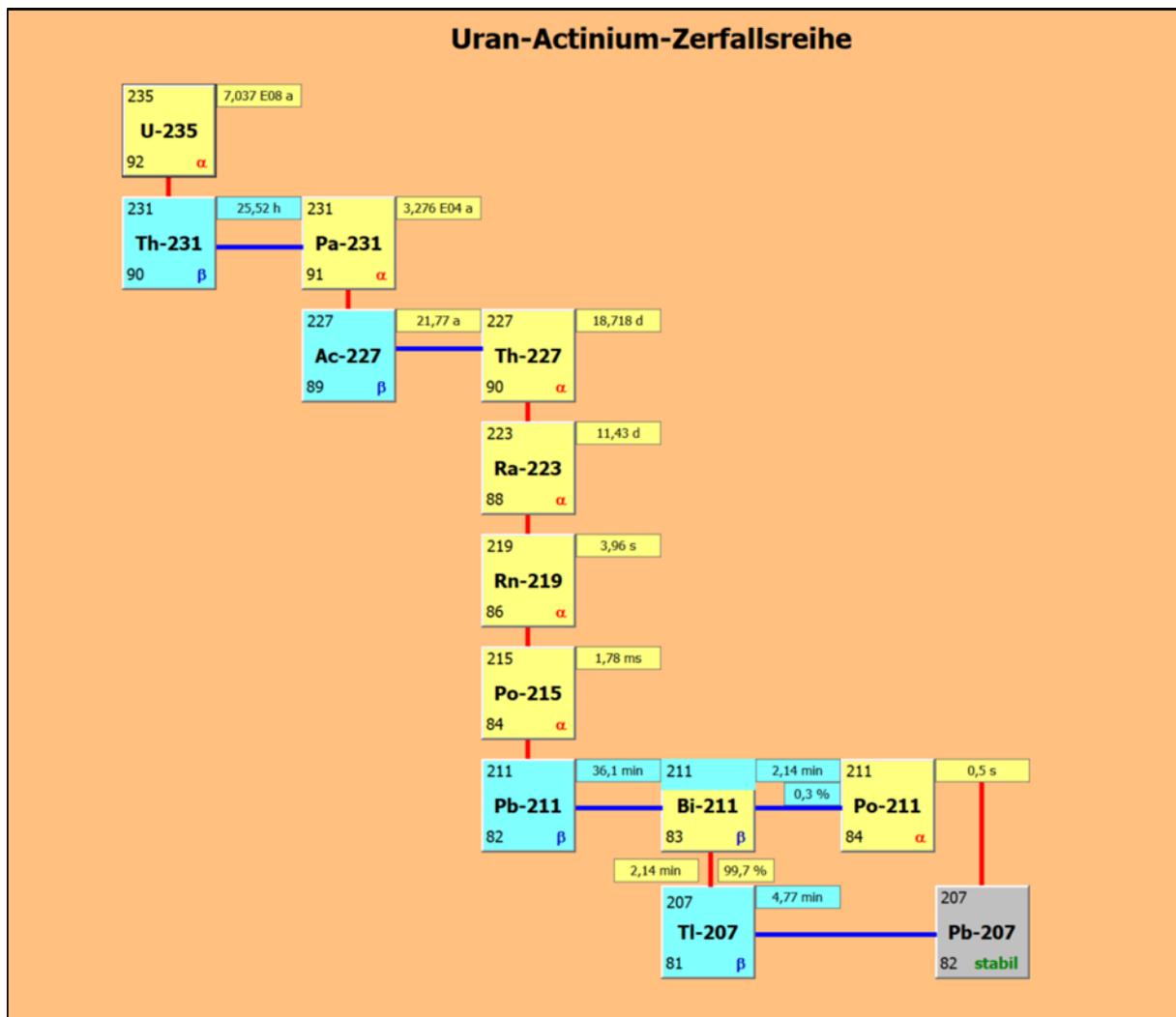


Abbildung 15: Zerfallsreihe Uran-Actinium (U-235-Reihe) mit Halbwertszeiten

Die Abbildung 16 zeigt den zeitlichen Verlauf des Auf- und Abbaus von Ac-227. Beide Prozesse verlaufen symmetrisch, da sie der Funktion

$$e^{-\lambda t} \text{ bzw. } 1 - e^{-\lambda t}$$

folgen, wobei λ die Zerfallszahl für Ac-227 darstellt.

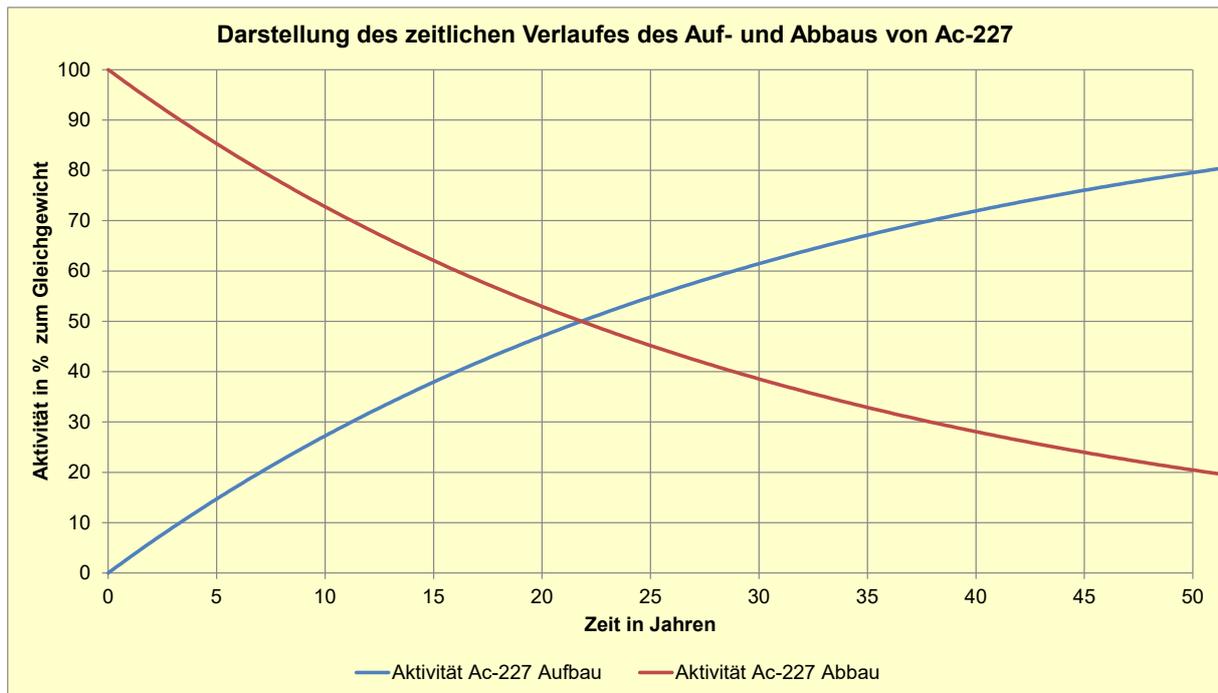


Abbildung 16: Darstellung des zeitlichen Verlaufes des Auf- und Abbaus von Ac-227

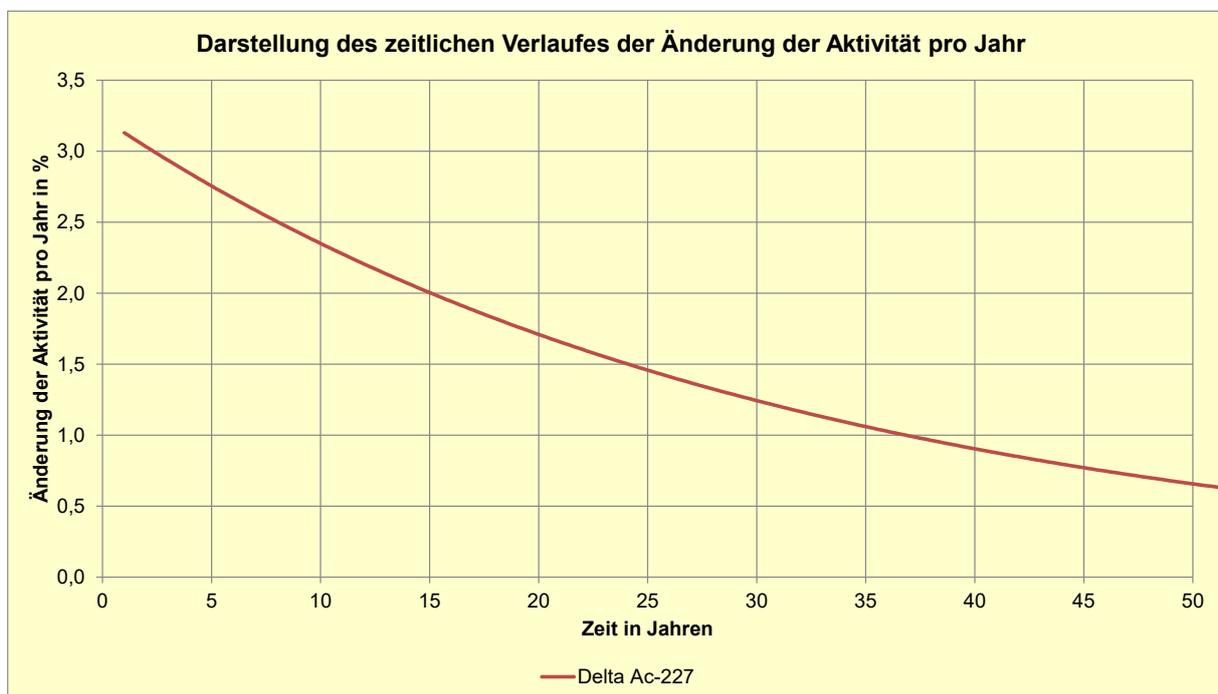


Abbildung 17: Darstellung des zeitlichen Verlaufes der Änderung der Aktivität pro Jahr

In der Abbildung 17 wird die Änderung der Aktivität pro Jahr dargestellt. Es ist zu erkennen, dass mit zunehmendem Alter und somit der Annäherung an das Gleichgewichtsniveau die jährliche Änderung der Aktivität abnimmt. Die Änderung der Aktivität pro Jahr stellt das mögliche Maximum dar, da davon ausgegangen wurde, dass die Anfangsaktivität entweder Null ist oder das Maximum besitzt und keine Nachlieferung vom Mutternuklid Pa-231 erfolgt. Weicht man von diesen Annahmen ab, so liegt die jährliche Änderung unter der maximal möglichen.

Pa-231 besitzt eine Halbwertszeit von 32760 Jahren. Wegen seiner sehr langen Halbwertszeit entsteht und zerfällt das Pa-231 zwar nur sehr langsam, dennoch bilden sich bei Proben mit sehr hohen Aktivitäten des Mutternuklides U-235 (Urankonzentration) im Betrachtungszeitraum Pa-231-Aktivitäten in einem z.B. durch Alphaspektrometrie nachweisbaren Umfang nach. Somit kann in diesen Spezialfällen auch Pa-231 zur Altersbestimmung nutzbar sein. Die Abbildung 18 zeigt den zeitlichen Verlauf des Aufbaus von Pa-231. Der Zerfall verläuft analog, da er der gleichen Grundfunktion folgt.

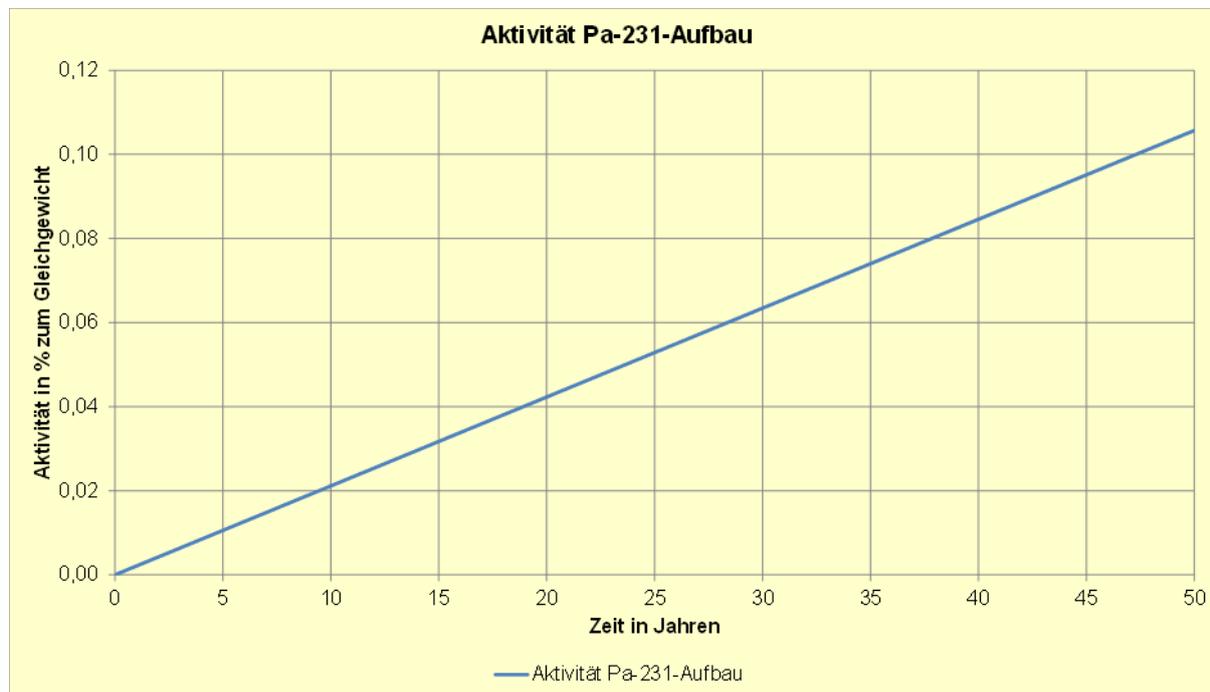


Abbildung 18: Darstellung des zeitlichen Verlaufes des Aufbaus von Pa-231

Grundsätzlich kann Pa-231 sowohl gamma- als auch alphaspektrometrisch bestimmt werden. In den für diese Arbeit zur Verfügung gestellten Proben wurde Pa-231 ausschließlich mittels Gamma-spektrometrie bestimmt. Da die Emissionswahrscheinlichkeiten (Tabelle 13) für Gammalinien beim Pa-231 (sieht man von der sehr niederenergetischen Linie bei 27,36 keV ab) bei maximal ca. 2,5 % liegen und bis auf die Linie bei 283,7 keV (1,7 %) vor allem durch Linien des Ac-227 gestört werden, sind gammaspektrometrische Untersuchungen anhand der ungestörten Linie bei 283,7 keV, wenn überhaupt, nur für Proben mit hohen Pa-231-Aktivitäten (z.B. alte Urankonzentrate und Uranerze) geeignet. Bei der gammaspektrometrischen Bestimmung über die Linie bei 27,36 keV hingegen sind zu hohe Urankonzentrationen (U-235) störend. Die Benutzung der γ -Liniengruppe bei 300 keV und 330 keV setzt Kenntnisse des Ac-227 voraus.

Tabelle 13: Relevante Energielinien von Pa-231

Energie Pa-231 in keV	Wahrscheinlichkeit für Pa-231 in %	Mutternuklid des Störnuklids	Energie Störnuklid in keV	Wahrscheinlichkeit Störnuklid in %
27,36	10,3	Th-231 (U-235)	25,65	14,5
283,7	1,7		ungestört	
300,1	2,5	Th-227 (Ac-227)	300,0	2,3
302,7	2,88	Th-227 (Ac-227)	300,0	2,3
330,1	1,4	Th-227 (Ac-227)	329,8	2,7

Die Berechnungen haben gezeigt, dass im Betrachtungszeitraum die Änderung der Aktivität des Pa-231 weitestgehend konstant ist. Sie beträgt 0,00211 % der Aktivität des U-235 pro Jahr. Das bedeutet, dass aus 47,6 Bq U-235 pro Jahr 1 mBq Pa-231 nachwächst. Derartig geringe Änderungen sind durch gamma-spektrometrische Analysen praktisch nicht erfassbar. Hierfür erscheint die Alphaspektrometrie als die eher geeignete Methodik.

Geht man für einen Alphaspektrometrieaufschluss von einem Probeneinsatz von 1 g und einer Nachweisgrenze von ca. 1 mBq durch alphaspektrometrische Messung aus, so können über diesen Weg bei spezifischen U-235-Aktivitäten von 50 kBq/kg Pa-231-Aktivitätsänderungen von ca. 1 mBq pro 1 g Probeneinsatz nachgewiesen werden. Ein bedeutsamer Vorteil der alphaspektrometrischen Messung ist, dass wesentliche Alpha-Linien des Pa-231 im Energiebereich von ca. 4900 keV bis 5060 keV (Summe der Emissionswahrscheinlichkeiten ca. 82 %) ungestört oberhalb der Uran-Alpha-Linien liegen.

7.4 U-238 Reihe

In der Uran-Radium-Reihe (Abbildung 19) besitzt Th-230 eine Halbwertszeit von 75400 Jahren. Wegen seiner sehr langen Halbwertszeit entsteht und zerfällt das Th-230 zwar nur sehr langsam, dennoch bilden sich bei Proben mit sehr hohen Aktivitäten des Mutternuklides U-234 (Urankonzentrate) im Betrachtungszeitraum Th-230-Aktivitäten in einem z.B. durch Alphaspektrometrie nachweisbaren Umfang nach. Somit kann in diesen Spezialfällen auch Th-230 zur Altersbestimmung nutzbar sein.

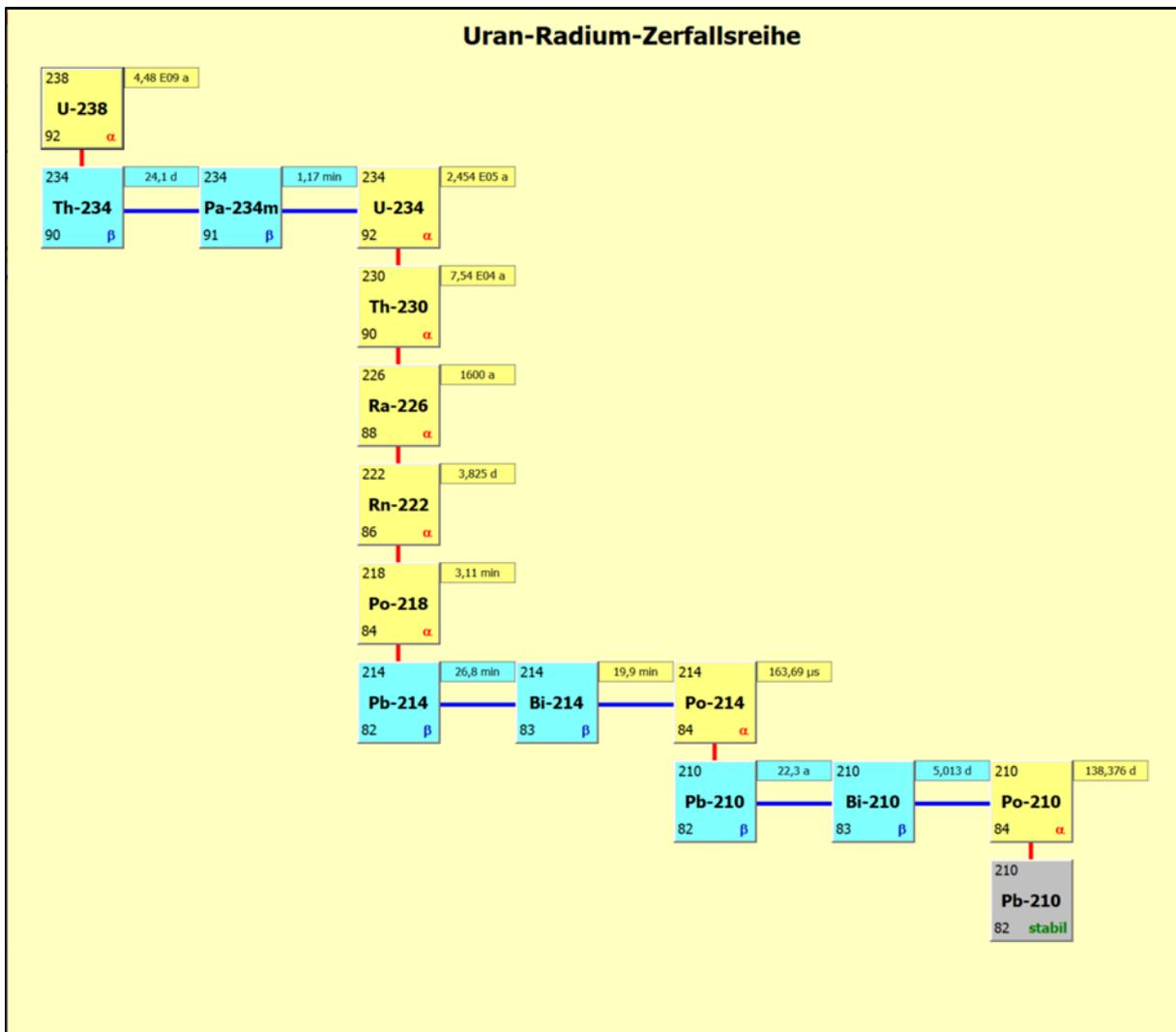


Abbildung 19: Zerfallsreihe Uran-Radium (U-238-Reihe) mit Halbwertszeiten

Die Abbildung 20 zeigt den zeitlichen Verlauf des Aufbaus von Th-230 pro Jahr.

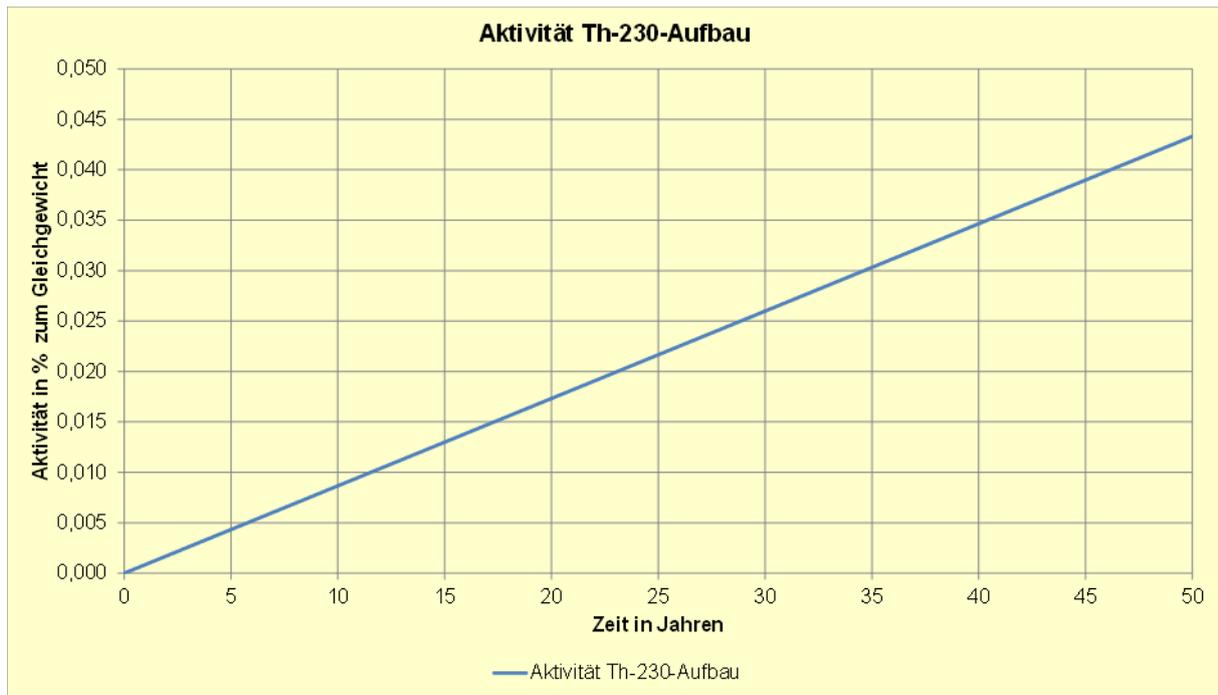


Abbildung 20: Darstellung des zeitlichen Verlaufes des Aufbaus von Th-230

Aus der Abbildung 20 ist zu erkennen, dass im Betrachtungszeitraum die jährliche Änderung der Aktivität des Th-230 weitestgehend konstant ist. Sie beträgt 0,00087 % der Aktivität des U-234 pro Jahr. Die vorliegenden Analyseergebnisse der Urankonzentratproben weisen eine mittlere U-234-Aktivitätskonzentration von ca. 6590000 Bq/kg auf. Das bedeutet, dass pro Jahr in diesen Urankonzentratproben ca. 57 Bq/kg Th-230 nachwachsen. Bei einem Probeneinsatz von 1 g für einen Alphaspektrometrieaufschluss sind ca. 57 mBq Th-230 enthalten und nachzuweisen.

Die wesentlichen Alphalinien des Th-230 liegen bei 4620 keV und 4687 keV (Summe der Emissionswahrscheinlichkeiten ca. 99,7 %). Da diese Th-230-Alphalinien unterhalb der Alphalinien des U-234 (4722 keV und 4775 keV) liegen, ist für eine Bestimmung des nachwachsenden Th-230 eine sehr saubere Uranabtrennung in der chemischen Probenvorbereitung erforderlich.

Dies erschwert zwar u.U. die Analytikanforderungen gegenüber der Altersbestimmung mittels Pa-231, bietet aber, wegen der sehr viel höheren U-234-Aktivitäten gegenüber denen des U-235 im Urankonzentrat, den Vorteil deutlich höherer Th-230-Zuwächse und damit höherer zu analysierender Th-230-Aktivitäten.

Ra-226 besitzt eine im Verhältnis zum Betrachtungszeitraum von 50 Jahren relativ lange, jedoch bezüglich der vorstehend betrachteten Nuklide Th-230 und Pa-231 deutlich kürzere Halbwertszeit von 1600 Jahren. Grundsätzlich wäre Ra-226 mit einem Aktivitätsanstieg von ca. 0,043 % (etwa das 50-fache als Th-230 aus U-234) des Mutternuklids Th-230 zur Altersbestimmung besser geeignet als Th-230 oder Pa-231. Die Nutzbarkeit des Ra-226 zur Altersberechnung setzt jedoch Kenntnisse für das Mutternuklid Th-230 (z.B. Startaktivität oder Beziehungen zur Mutter U-234) voraus. Da derartige Informationen i. d. R. nicht vorhanden sind, ist eine Verwendung des Ra-226 zur Altersbestimmung an Proben nicht oder nur in sehr speziellen Fällen möglich.

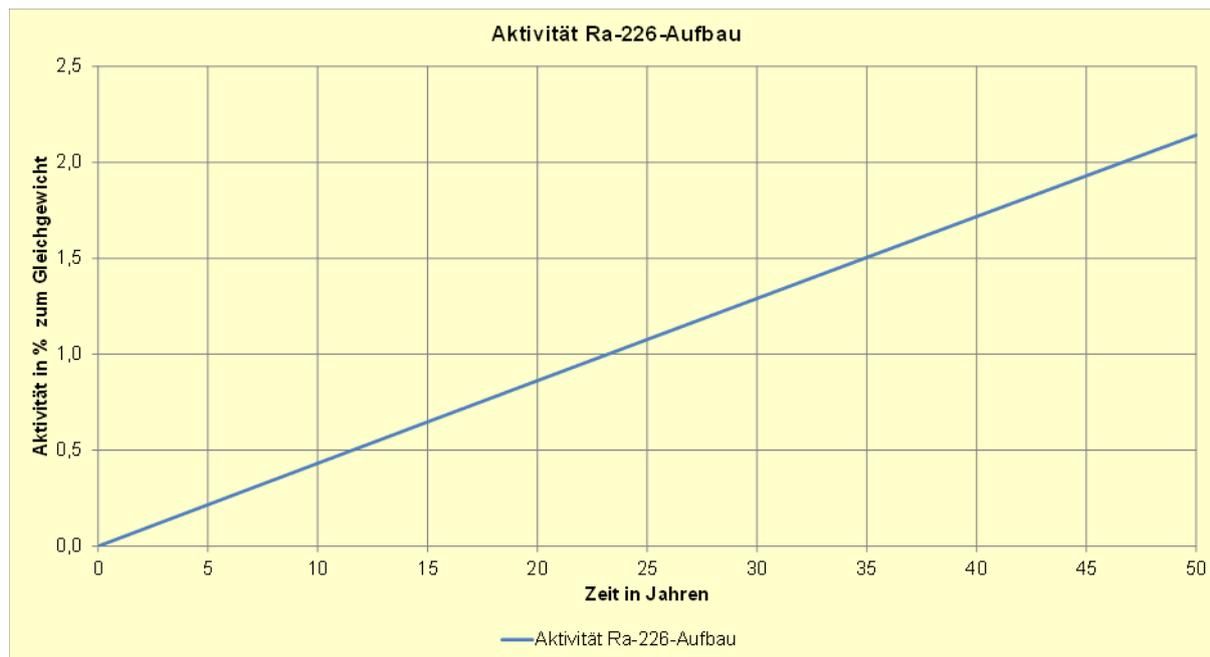


Abbildung 21: Darstellung des zeitlichen Verlaufes des Aufbaus von Ra-226 aus Th-230

Obwohl Pb-210 mit einer Halbwertszeit von nur 22,3 Jahren im Betrachtungszeitraum von 50 Jahren signifikante Aktivitätsveränderungen erwarten lässt, ist es zur Altersbestimmung kaum geeignet, da zwischen dem Pb-210 und dem als Mutternuklid dienenden Ra-226 das gasförmige Radionuklid Rn-222 auftritt. Durch Exhalation des Rn-222 aus dem zu bewertenden Material tritt ein Verlust von Rn-222 auf, der für die Nachbildung des Pb-210 fehlt. Dieser Exhalationsanteil ist i.d.R. nicht bekannt. Nur für Proben, bei denen von einer nicht vorhandenen oder vernachlässigbaren Rn-222-Exhalation ausgegangen werden kann, ist ein Versuch der Altersbestimmung über das Ra-226/Pb-210-Verhältnis sinnvoll.

Zusätzlich besteht die Möglichkeit, dass in Proben, die Radon aufnehmen können (z.B. organisches Material), auch eine Anreicherung über den Gastransport aus benachbarten Bereichen, möglich ist.

In den zu untersuchenden Stoffgruppen ist allerdings nicht vom Vorliegen der genannten Voraussetzung auszugehen. Deshalb wird das Radionuklid Pb-210 in dieser Arbeit nicht weiter betrachtet.

7.5 Th-232 Reihe

Im Zuge von chemischen Veränderung können die Radionuklide der Thorium-Zerfallsreihe (Abbildung 22) in unterschiedlichen Verhältnissen vorliegen. Da die Verhältnisse nicht bekannt sind, wird für die verschiedenen Varianten die Entwicklung des Nuklidvektors dargestellt und aus den sich dabei ergebenden Aktivitätsverhältnissen werden Schlussfolgerungen zum Alter bzw. eine Eingrenzung des Alters gezogen.

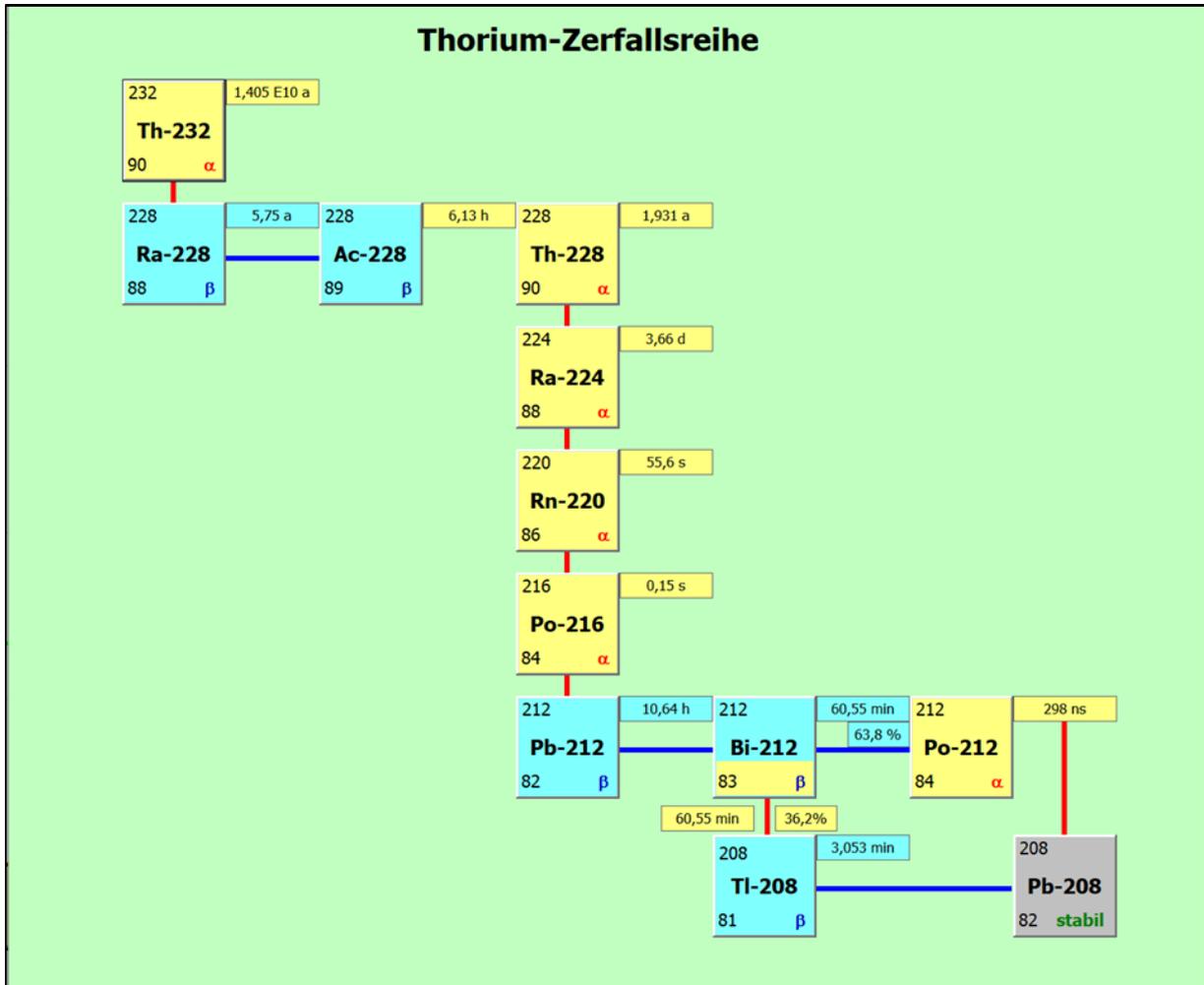


Abbildung 22: Zerfallsreihe Thorium (Th-232-Reihe) mit Halbwertszeiten

In den nachfolgenden Punkten werden Ungleichgewichte zwischen den Radionukliden Th-232, Ra-228 und Th-228 systematisch diskutiert, unabhängig davon, ob solche Verhältnisse zu erwarten bzw. realistisch auch möglich sind.

7.5.1 Th-232, Ra-228 und Th-228 im radioaktiven Gleichgewicht

Unabhängig vom Nuklidvektor der Radionuklide Th-232, Ra-228 und Th-228 hat sich spätestens nach 38 Jahren ein ca. 99%-iges radioaktives Gleichgewicht zwischen Th-232 und Ra-228 eingestellt. Für Th-228 liegt das Gleichgewichtsniveau nach dieser Zeit bei 98,5% bzgl. des Th-232. Somit kann man im Umkehrschluss feststellen, dass Proben die bezüglich Ra-228 im 99%-igen Gleichgewicht stehen, nicht älter als 38 Jahre sind. Zur Kontrolle der Analytik ist zu prüfen, dass auch Ra-228 und Th-228 sich im Gleichgewicht befinden. Liegt zwischen allen 3 Radionukliden ein Gleichgewicht vor, d.h. spätestens nach ca. 38 Jahren, kann anhand dieser Nuklide keine Aussage zum Alter der Probe getroffen werden.

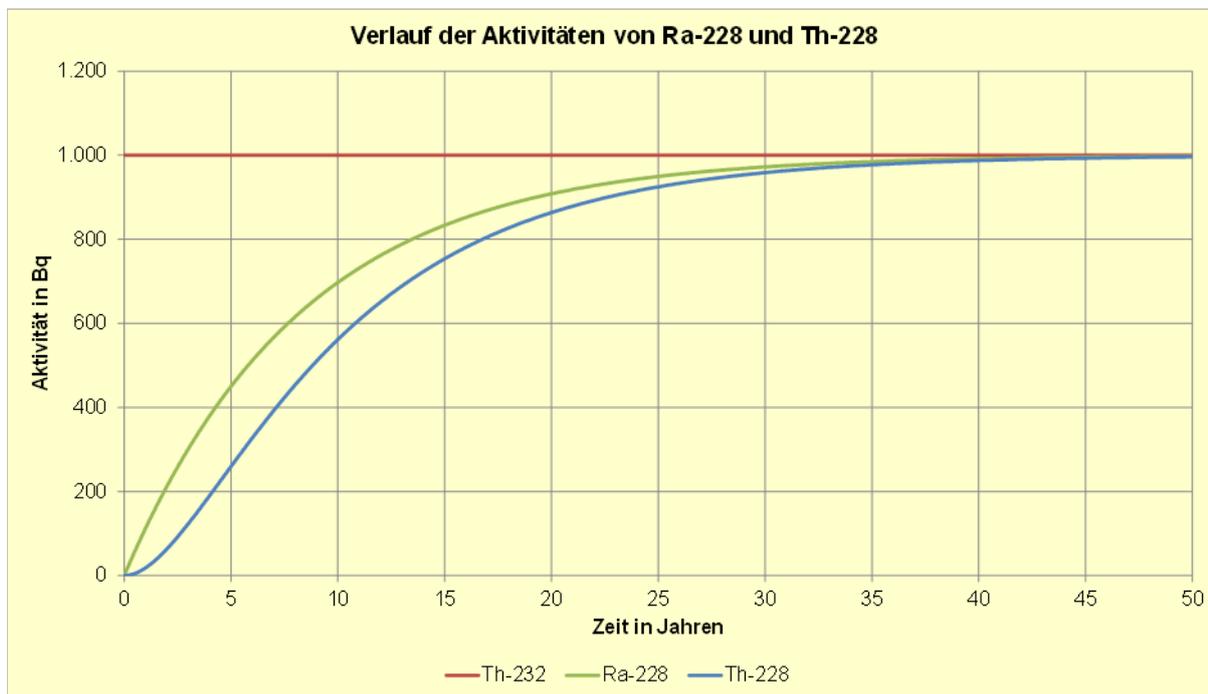


Abbildung 23: Verlauf der Aktivitäten von Ra-228 und Th-228 bis zur Einstellung des radioaktiven Gleichgewichts (Start Th-232 = 1000 Bq, Ra-228 = 0 Bq, Th-228 = 0 Bq)

7.5.2 Th-232 und Th-228 deutlich kleiner als Ra-228 bei $t = 0$

Für den Fall, dass zum Startzeitpunkt kein Th-232 und Th-228 bzw. deutlich kleiner als Ra-228 vorlagen, zerfällt das Ra-228 mit seiner Halbwertszeit und nimmt nach ca. 38 Jahren das Gleichgewicht zu Th-232 ein.

Ein nahezu beliebiger Th-228-Überschuss zum Startzeitpunkt hat auf den Zeitpunkt der Einstellung des radioaktiven Gleichgewichtes zwischen Ra-228 und Th-228 praktisch keinen Einfluss.

Liegt das Th-228 unter dem Niveau von Ra-228 so ist die Probe jünger als ca. 5 Jahre. Im Anschluss beobachtet man wiederum nur die Phase der Einstellung des radioaktiven Gleichgewichts, indem sich Ra-228 und Th-228 dem Niveau von Th-232 annähern.

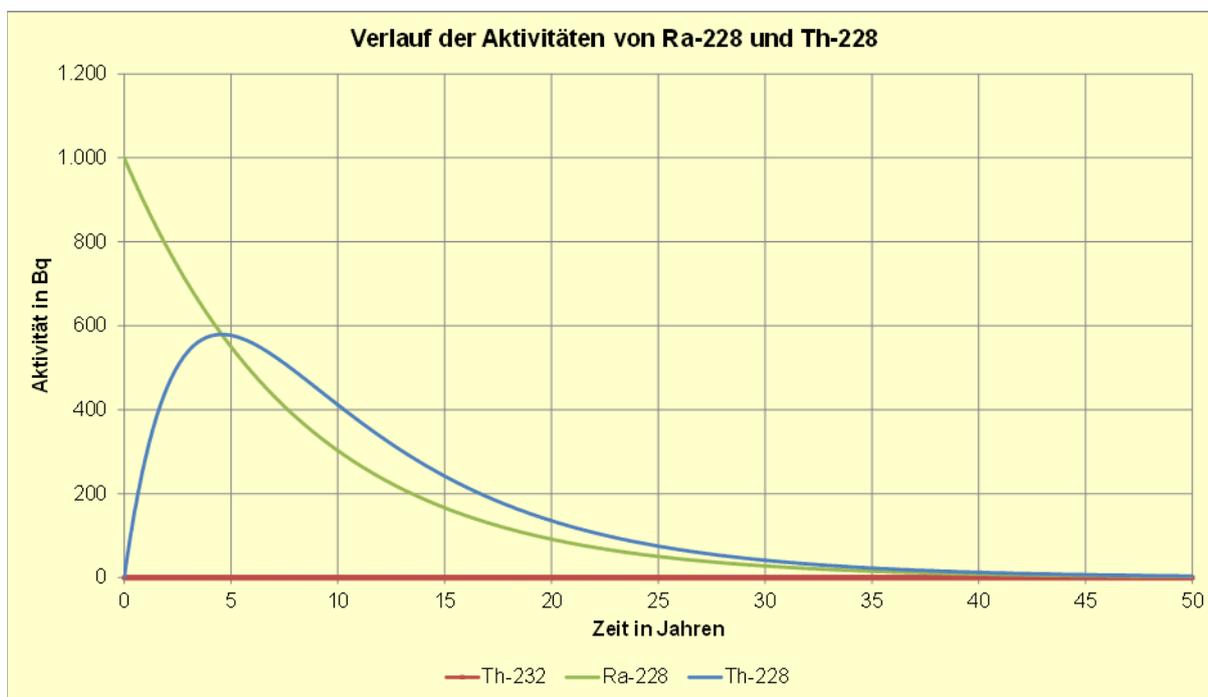


Abbildung 24: Verlauf der Aktivitäten von Ra-228 und Th-228 bis zur Einstellung des radioaktiven Gleichgewichts (Start Th-232 = 0 Bq, Ra-228 = 1000 Bq, Th-228 = 0 Bq)

7.5.3 Th-232 und Th-228 deutlich größer als Ra-228 bei $t = 0$

Für den Fall, dass zum Startzeitpunkt Th-232 und Th-228 deutlich größer als Ra-228 vorlagen, baut sich das Ra-228 mit seiner Halbwertszeit auf und nimmt nach ca. 38 Jahren das Gleichgewicht zu Th-232 ein. In diesem Fall kann aber der Verlauf von Th-228 zusätzlich Informationen liefern. Für Th-228 existiert ein Wendepunkt, der im Schnittpunkt mit dem zeitlichen Verlauf von Ra-228 liegt.

Liegt das Ra-228 unter dem Niveau von Th-228, so ist die Probe jünger als ca. 5 Jahre. Im Anschluss beobachtet man wiederum nur die Phase der Einstellung des radioaktiven Gleichgewichts, indem sich Ra-228 und Th-228 dem Niveau von Th-232 annähern.

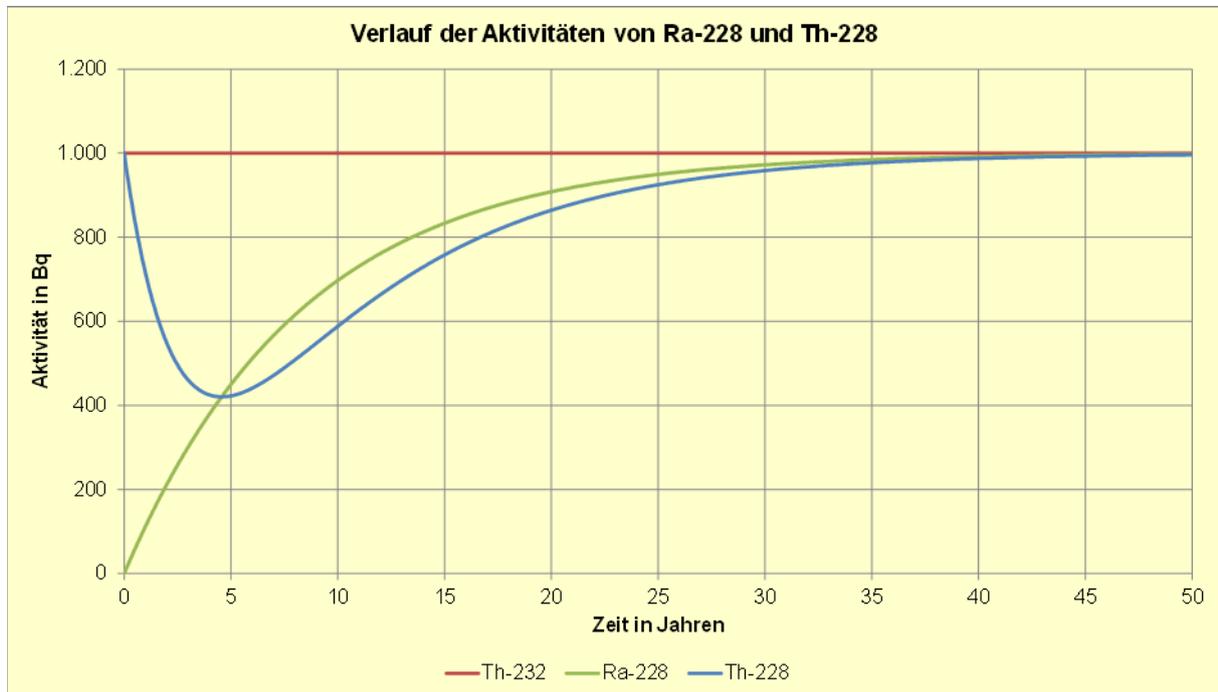


Abbildung 25: Verlauf der Aktivitäten von Ra-228 und Th-228 bis zur Einstellung des radioaktiven Gleichgewichts (Start Th-232 = 1000 Bq, Ra-228 = 0 Bq, Th-228 = 1000 Bq)

Für den Spezialfall, dass zum Startzeitpunkt die Aktivität für Th-232 deutlich größer als für Th-228 vorlag (z.B. Faktor 10), wandert der Wendepunkt der Th-228 Aktivität gegen Null und liegt somit nur für sehr kurze Zeiträume vor und ist nicht mehr auswertbar.

7.5.4 Th-232 und Ra-228 gleich und deutlich größer oder kleiner als Th-228 bei $t = 0$

In diesem Fall, in dem sich Th-232 und Ra-228 signifikant im radioaktiven Gleichgewicht befinden und Th-228 deutlich höher oder niedriger liegen, spielt nur noch der Aufbau oder Zerfall von Th-228 mit der Annäherung an das Niveau des Th-232 eine Rolle. Th-228 hat aufgrund seiner Halbwertszeit von 1,916 Jahre nach ca. 13 Jahren 99 % des Gleichgewichtes erreicht. Daraus kann geschlussfolgert werden, dass Proben mit einem deutlichen höheren oder niedrigeren Niveau von Th-228 bei annähernd gleichem Niveau von Th-232 und Ra-228 nicht älter als 13 Jahre sind.

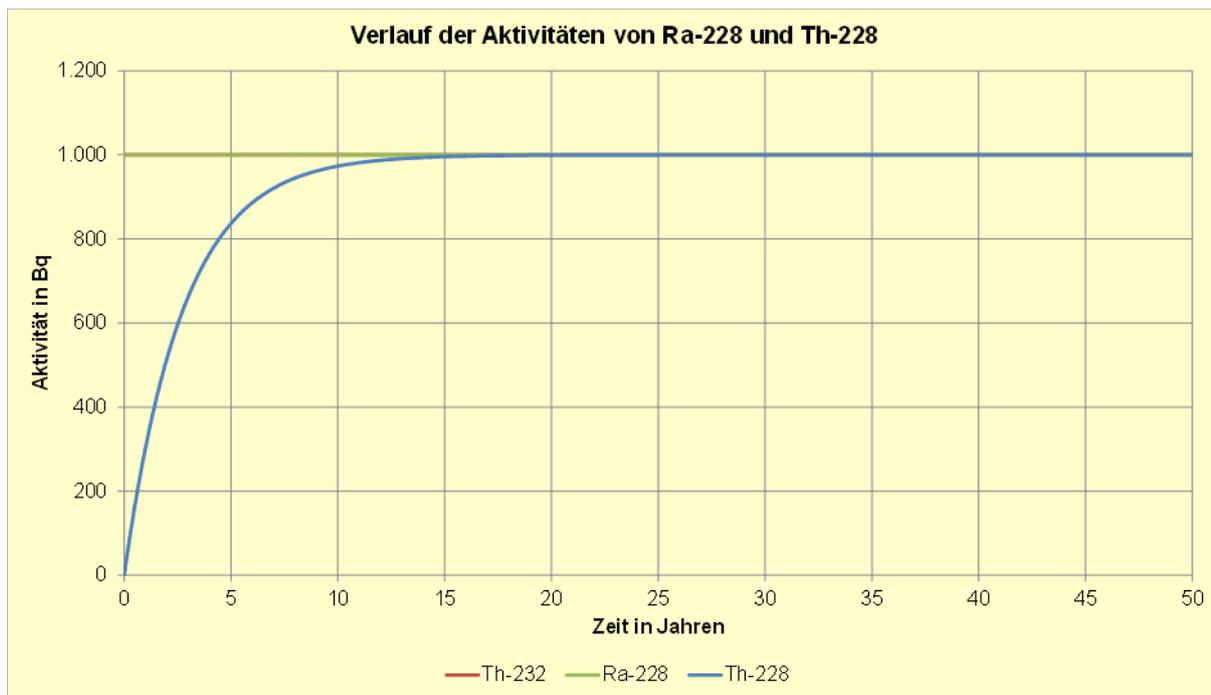


Abbildung 26: Verlauf der Aktivitäten von Ra-228 und Th-228 bis zur Einstellung des radioaktiven Gleichgewichts (Start Th-232 = 1000 Bq, Ra-228 = 1000 Bq, Th-228 = 0 Bq)



Abbildung 27: Verlauf der Aktivitäten von Ra-228 und Th-228 bis zur Einstellung des radioaktiven Gleichgewichts (Start Th-232 = 0 Bq, Ra-228 = 0 Bq, Th-228 = 1000 Bq)

7.5.5 Zusammenfassung bezüglich Th-232, Ra-228 und Th-228

In den vorigen Punkten wurde aufgezeigt, welche denkbaren Verhältnisse zwischen den Radionukliden Th-232, Ra-228 und Th-228 zum Starzeitpunkt vorliegen könnten und welche Informationen zum Alter daraus abgeleitet werden können. In der Zusammenfassung sind die Ergebnisse dahingehend systematisiert, dass eine Probe, die mit einem unbekanntem Alter vorliegt, analysiert wird und zwischen den drei Radionukliden Ungleichgewichte nachgewiesen werden. In der Tabelle 14 sind die Varianten von möglichen Aktivitätsverhältnissen und daraus ableitbaren Aussagen zum Alter dargestellt.

Tabelle 14: Aktivitätsverhältnisse und Ableitung von Aussagen zum Alter der Proben

Th-232	Ra-228	Th-228	Aussage zum Alter
0	> Th-228	\geq Th-232	< 5 Jahre
0	\leq Th-228	> Th-232	< 38 Jahre
>> 0	< Th-228	\leq Th-232	< 5 Jahre
>> 0	> Th-228		< 38 Jahre
vergleichbar mit Ra-228		deutlich größer als Ra-228 und Th-232	< 13 Jahre
vergleichbar mit Ra-228		deutlich kleiner als Ra-228 und Th-232	< 13 Jahre
Th-232 = Ra-228 = Th-228			Keine Aussagen möglich

7.6 Beschreibung der Stoffgruppen für die Altersbestimmung

Urankonzentrate sind Endprodukte des chemischen Aufbereitungsprozesses zur Urangewinnung. Sie sind dadurch charakterisiert, dass das Konzentrat bis zu über 65 % aus Natururan besteht. Alle weiteren Radionuklide liegen in ihren spezifischen Aktivitäten um mehrere Zehnerpotenzen unterhalb der Radionuklide von Uran.

Für die Rückstände und Immobilisate aus Wasserbehandlungsanlagen lassen sich pauschal keine allgemeingültigen Aussagen bezüglich von Startkonzentrationen einzelner natürlicher Radionuklide oder zu Nuklidverhältnissen von Nukliden untereinander treffen, da sowohl die Ausgangszusammensetzung der zu behandelnden Wässer aber auch die eingesetzten Technologien stark anlagenabhängig variieren. Es sind Einzelbetrachtungen für jede Anlage erforderlich. Generell kann man davon ausgehen, dass Uran und Radium aktiv abgetrennt wurden, sofern diese in dem zu behandelnden Wasser in relevanten Konzentrationen vorlagen. Für die weiteren Radionuklide liegt eine unspezifische Abtrennung vor, die nicht gezielt durch die Wasserbehandlung beeinflusst wird.

Die Immobilisate bestehen aus den Rückständen, die durch Zement, Asche bzw. Kalk mechanisch und chemisch stabilisiert werden. Durch diesen Prozess erfolgt eine Reduzierung der spezifischen Aktivität in einem Verhältnis, das der Zugabemenge entspricht. Diese werden durch die jeweilige Rezeptur bestimmt. In erster Näherung kann man davon ausgehen, dass durch die Bindemittel keine weitere Aktivität dem Immobilisat zugeführt wird.

Tailings sind Aufbereitungsrückstände der Uranerzaufbereitung, deren Ursprung Uranerze waren, die mittels nass-chemischer Aufbereitung sauer oder sodaalkalisch gelaugt wurden, um gezielt das Uran zu lösen und abzutrennen. Die Lösung anderer Radionuklide war nicht gewollt und erfolgte somit lediglich als ein untergeordneter Prozess. In erster Linie kann man davon ausgehen, dass das Uran nur noch in geringen Konzentrationen vorliegt und Ra-226 das Leitnuklid der U-238 Reihe darstellt, da Radium bezüglich des durchgeführten technologischen Prozesses sehr immobil ist. In erster Näherung kann man weiterhin annehmen, dass das Radionuklid U-238 ursprünglich vergleichbare spezifische Aktivitäten wie Ra-226 vor der Laugung besaß. Aussagen über die Abtrennung weiterer Radionuklide lassen sich aus den vorhandenen technologischen Unterlagen nicht ableiten.

Alle übergebenen Nuklidanalysen wurden mittels Gammaskopie ermittelt. In die Auswertung (siehe nachfolgende Übersichtstabellen) gehen grundsätzlich nur die Radionuklide ein, die über eine direkte Bestimmung ermittelt wurden. Eine Ausnahme bilden die angegebenen Werte für Ac-227 und Th-228. Sie wurden aus den Messergebnissen der Nuklide Th-227 bzw. Ra-228 unter Annahme des radioaktiven Gleichgewichts abgeleitet. Aufgrund der kurzen Halbwertszeiten von Th-227 und Ra-228 ist eine solche Ableitung plausibel möglich. In den Tabellen werden die Spannbreiten der Analysen dargestellt. Werte mit einem „<“ bedeuten, dass die realen Werte kleiner als die Nachweisgrenzen (NWG) sind. In einigen Fällen existieren nur Daten für bestimmte Gruppen und Radionuklide, die der Nachweisgrenze entsprechen. Diese sind in den Tabellen grau unterlegt.

Die Angaben zu Th-232 stammen aus der chemischen Analyse des Thoriums und wurden in spezifische Aktivitäten des Th-232 umgerechnet.

Für alle Proben, die übergeben wurden, stellt der Nuklidvektor den Zeitpunkt $t = 0$ dar. Ausnahmen sind die Proben für Immobilisate/Rückstände der WBA mit einem Produktionsdatum 2020 (siehe Datei: [20221018_validierte Laboregebnisse nach Aufschlüssen und Methoden.xlsx]) die ein Alter von ca. einem Jahr besitzen.

Weiterhin besitzen die Proben der Urankonzentrate ein folgendes Alter:

- S-21-009959 31 Jahre UK AB101 1990
- S-21-009960 28 Jahre UK AB102 1993
- S-21-009961 41 Jahre UK AB102 1980

1991 wurde die Erzgewinnung und -verarbeitung eingestellt. Somit besitzen die verfügbaren Tailings ein Alter von größer als 30 Jahren. Die gewonnenen Proben sind aus Rammkernsondierungen entstanden. Ihr Alter korreliert folglich mit der entsprechenden Sondierungstiefe.

Das Urankonzentrat (Suspension) der im Juni 2021 beendeten Restproduktion der Wismut GmbH am Standort Königstein entstammt aus Probenahmen zur laufenden Qualitätskontrolle aus den Monaten April und Mai 2021. Sie wurden aus einem Lagersilo entnommen, welches über die gesamte Produktionszeit als Stapelbehälter genutzt wurde. In diesem Silo wurde das Produkt der kontinuierlichen Produktion über mehrere Jahre gesammelt und ständig gemischt. Es ist darum für eine Altersbestimmung nicht geeignet.

Die nachfolgenden Tabelle 15 bis Tabelle 17 fassen die wesentlichsten Daten der für diese Arbeit zur Verfügung gestellten Radionuklidanalysen, geordnet nach Rückstandstyp und Herkunft, zusammen. Es sind sowohl die Spannbreiten der Radionuklidkonzentrationen als auch Angaben zur Qualität der Analyseergebnisse (z.B. < Wert = Angabe der NWG) aufgeführt. Die mittels Gammaskopie nachweisbaren minimalen Radionuklidkonzentrationen reichen für die Verwendung für die Altersbestimmung i. d. R. nicht aus.

In den drei untersten Zeilen der Tabelle 15 bis Tabelle 17 wird dargestellt, ob und wieviel Proben sich für eine der Methoden der Altersbestimmung eignen.

Tabelle 15: Auswertung der vorhandenen Radionuklidanalysedaten der Gammaskpektrometrie für Proben aus den WBA

WBA	Königstein	Pöhla	Aue	Helmsdorf	Ronneburg	Seelingstädt
Anzahl Immobilisatproben	0	0	3	3	3	3
Anzahl Rückstandsproben	1	1	1	0	1	0
U-Ra-Reihe						
Gleichgewicht	nein	nein	nein	nein	nein	nein
U-238 in Bq/kg	317000	751	57700 bis 197000	15100 bis 46000	3060 bis 5600	18200 bis 23100
Th-230 in Bq/kg	39900	3850	< 491 bis < 2010	< 350 bis < 411	< 129 bis < 364	< 291 bis < 719
Ra-226 in Bq/kg	22900	46500	7720 bis 24700	65 bis 95	101 bis 121	292 bis 300
Pb-210 in Bq/kg	51900	4780	1150 bis 3100	71 bis 98	29 bis < 81	< 57 bis < 142
U-Ac-Reihe						
Gleichgewicht	nein	nein	nein	nein	nein	nein
U-235 in Bq/kg	14600	84	2660 bis 9080	696 bis 2120	141 bis 258	848 bis 1060
Pa-231 in Bq/kg	< 2420	< 213	87 bis < 189	< 20 bis < 62	< 8 bis < 19	< 35 bis < 88
Ac-227 in Bq/kg	< 24200	< 82	< 30 bis < 71	< 8 bis < 25	3 bis < 8	13 bis 19
Ra-223 in Bq/kg	< 23300	< 69	< 28 bis < 62	< 7 bis < 30	4 bis < 12	< 19 bis < 28
Th-Reihe						
Gleichgewicht	nein	nein	nein	ja	unbestimmt	nein
Th-232 in Bq/kg	167	20	20 bis < 102	33 bis < 102	20 bis < 102	45 bis 102
Ra-228 in Bq/kg	1140	619	101 bis 292	41 bis 52	11 bis 31	41 bis 46
Th-228 in Bq/kg	328	69	33 bis 63	40 bis 43	2 bis 25	35 bis 42
U-238 zu Ra-226	14	0	7 bis 8	232 bis 484	28 bis 46	62 bis 77
Dateneignung für Altersbestimmung						
U-Ra-Reihe						
U-Ac-Reihe						
Th-Reihe						
	1	1	2			

Die übergebenen Daten mit zeitversetzten Messungen stammen ausschließlich aus der Gruppe der Immobilisate. Die Doppel-Analysen mit einem zeitlichen Versatz von einem Jahr wurden unter Zuhilfenahme der Messunsicherheiten auf signifikante Unterschiede geprüft. In drei Proben wurde eine signifikante Abnahme der spezifischen Aktivität für Ra-226 innerhalb von einem Jahr nachgewiesen, obwohl durch den Zerfall nur eine Abnahme von < 0,05% zu erwarten ist. Diese Abnahme ist jedoch nicht messtechnisch mittels Gammaskpektroskopie erfassbar.

Für zwei Proben aus der WBA Schlema-Alberoda wurden signifikante Abnahmen von Ra-228 nachgewiesen.

Tabelle 16: Auswertung der vorhandenen Radionuklidanalysedaten der Gammaskpektrometrie für Urankonzentrate

Urankonzentrat	Helmsdorf/ Crossen	Königstein	Seelingstädt
Anzahl Konzentratproben:	3	4	3
U-Ra-Reihe			
Gleichgewicht	nein	nein	nein
U-238 in Bq/kg	128000 bis 8000000	7930000 bis 9290000	4300000 bis 7850000
Th-230 in Bq/kg	< 660 bis < 25600	< 28000 bis 51300	< 129000 bis < 214000
Ra-226 in Bq/kg	65 bis 2380	< 1000 bis < 2000	1100 bis 10800
Pb-210 in Bq/kg	< 70 bis < 3070	< 4880 bis < 5920	< 2730 bis 6610
U-Ac-Reihe			
Gleichgewicht	nein	nein	nein
U-235 in Bq/kg	5950 bis 358000	365000 bis 428000	198000 bis 362000
Pa-231 in Bq/kg	< 31 bis 3270	< 5990 bis < 9170	< 2120 bis < 3390
Ac-227 in Bq/kg	< 34 bis < 1130	< 2060 bis < 2970	< 427 bis < 2190
Ra-223 in Bq/kg	< 31 bis < 585	< 762 bis < 1670	< 285 bis < 706
Th-Reihe			
Gleichgewicht	unbestimmt	unbestimmt	unbestimmt
Th-232 in Bq/kg	49 bis < 1020	< 1020	151 bis < 1800
Ra-228 in Bq/kg	41 bis < 799	< 1070 bis < 1650	< 150 bis < 199
Th-228 in Bq/kg	52 bis < 312	< 265 bis < 372	< 199
U-238 zu Ra-226	1996 bis 3361	4335 bis 7930	586 bis 7136
Dateneignung für Altersbestimmung			
U-Ra-Reihe	1		1
U-Ac-Reihe			
Th-Reihe			

Tabelle 17: Auswertung der vorhandenen Radionuklidanalysedaten der Gammaskpektrometrie für Tailings

IAA-Tailings	Königstein	Helmsdorf	Culmitzsch	Trünzig
Anzahl Tailingsproben:	1	2	2	2
U-Ra-Reihe				
Gleichgewicht	nein	nein	nein	nein
U-238 in Bq/kg	620	1200 bis 1460	473 bis 1570	306 bis 1650
Th-230 in Bq/kg	27900	5130 bis 28700	2440 bis 3620	1060 bis 12900
Ra-226 in Bq/kg	27300	4940 bis 29400	3880 bis 4340	3840 bis 11800
Pb-210 in Bq/kg	23600	5000 bis 29700	3750 bis 3840	3920 bis 11700
U-Ac-Reihe				
Gleichgewicht	nein	nein	nein	nein
U-235 in Bq/kg	29	55 bis 67	22 bis 72	14 bis 76
Pa-231 in Bq/kg	1170	216 bis 1400	195 bis 200	131 bis 522
Ac-227 in Bq/kg	1150	212 bis 1390	175 bis 186	115 bis 540
Ra-223 in Bq/kg	1230	213 bis 1320	187 bis 191	123 bis 541
Th-Reihe				
Gleichgewicht	ja	ja	ja	ja
Th-232 in Bq/kg	155	< 29 bis 57	< 20 bis 24	< 20 bis 45
Ra-228 in Bq/kg	155	35 bis 64	22 bis 30	< 16 bis 51
Th-228 in Bq/kg	158	36 bis 64	20 bis 30	12 bis 51
U-238 zu Ra-226	0	0,05 bis 0,24	0,11 bis 0,40	0,08 bis 0,14
Dateneignung für Altersbestimmung				
U-Ra-Reihe	1	2	2	2
U-Ac-Reihe	1	2	2	2
Th-Reihe				

Schlussfolgerung

Ein sehr großer Teil der vorliegenden Analysen ist als Ausgangspunkt für eine Altersbestimmung nicht nutzbar, da

- ein Großteil der Analysen nur mit Werten < NWG angegeben ist,
- scheinbare Inkonsistenzen für Nuklidangaben unterschiedlicher Proben der gleichen Anlage/Stoffgruppe vorhanden sind sowie
- scheinbare Plausibilitätsprobleme für Analysenwerte unter Berücksichtigung von Bilanzrechnungen z.B. gleiches chemisches Element (Radium) und unterschiedliche Abtrennraten der zugehörigen Radionuklide auftreten.

Für alphastrahlende Proben mit der Angabe „< NWG“ ist eine Analytik mit Alpha-Spektrometrie erforderlich.

Wenn unter diesen aktuellen Randbedingungen dennoch Proben weiter diskutiert werden, wird „< NWG“ als 0 oder als sehr klein angenommen.

7.7 Beispielhafte Anwendung der Altersbestimmung

Für die Berechnung des Alters von Radionukliden wurde ein Modul, basierend auf dem Programmsystem *VIRA* entwickelt, in dem die Daten der Radionuklidanalytik zum aktuellen Zeitpunkt benutzt werden und man in Jahresscheiben den Nuklidvektor über die letzten 50 Jahren berechnen kann.

7.7.1 Th-232 Reihe

In der Tabelle 18 wird dargestellt, dass die Proben der Rückstände/Immobilisate aus der WBA Pöhla, der WBA Schlema-Alberoda und der AAF Königstein in der Th-232 Reihe signifikante Nichtgleichgewichte aufweisen. Für diese Proben sind hier die gemäß Tabelle 14 möglichen Altersabschätzungen aufgeführt.

Tabelle 18: Überblick zu relevanten Nukliden aus der Th-232 Reihe für Rückstände und Immobilisate der WBA

Probe	Standort	Th-232 in Bq/kg	Ra-228 in Bq/kg	Th-228 in Bq/kg	Alter
S-21-009820	WBA Pöhla	< 20	619	69	< 5 Jahre
S-21-009880	WBA Schlema-Alberoda	20	105	33	< 5 Jahre
S-21-009921	WBA Schlema-Alberoda	20	292	44	< 5 Jahre
S-21-009952	WBA Schlema-Alberoda	< 102	102	61	< 5 Jahre
S-21-009953	WBA Schlema-Alberoda	< 82	101	63	< 5 Jahre
S-21-009922	WBA AAF Königstein	167	1140	328	< 5 Jahre

Auf die Rückstände/Immobilisate der Standorte Ronneburg, Seelingstädt und Helmsdorf ist die Methode nicht anwendbar, da keine signifikanten Gleichgewichtsstörungen vorliegen.

In der Tabelle 19 sind alle verfügbaren Werte für eine mögliche Altersbestimmung zusammengefasst. Es ist zu erkennen, dass nahezu alle Angaben durch die Bestimmungsgrenze angegeben sind.

Die Probe S-21-009923 für die Urankonzentrate aus der neuen Wasserbehandlungsanlage Helmsdorf lässt vermuten, dass diese Konzentrate bereits im Gleichgewicht auf einem sehr niedrigen Niveau vorliegen und somit kein Potential für die Altersbestimmung bieten.

Die Proben aus der AAF Königstein zeigen, dass eine weitere Analyse mit deutlich geringeren Nachweisgrenzen sinnvoll erscheint, um mit diesen Werten eine weitere Prüfung durchführen zu können. Ähnliches Potential kann für die Proben der Standorte AB 102 und 101 vorliegen.

Tabelle 19: Überblick zu relevanten Nukliden aus der Th-232 Reihe; Urankonzentrate

Probe	Standort	Th-232 in Bq/kg	Ra-228 in Bq/kg	Th-228 in Bq/kg
S-21-009923	Helmsdorf neu	49	41	52
S-21-009924	Helmsdorf neu	NE	<104	<101
S-21-009929	AB 102	151	<566	<199
S-21-009959	AB 102/1990	NE	<799	<312
S-21-009960	AB 102/1993	NE	<791	<149
S-21-009961	AB 101/1980	<1800	<150	NE

NE ... Nicht Ermittelt (nicht analysiert)

In der Tabelle 20 sind für die verfügbaren Tailingsproben die Daten der Thorium-Reihe zusammengefasst. Für die Tailings aus der Tätigkeit der Wismut GmbH ist eine Analytik nach der oben genannten Methode nicht mehr möglich. 1991 wurde die Erzgewinnung und -verarbeitung eingestellt. Somit besitzen die verfügbaren Materialien, wie bereits erwähnt, ein Alter größer als 30 Jahre. Ein mögliches Ungleichgewicht infolge der Laugung der Erze ist weitestgehend abgeklungen. Die verfügbaren Analysen der Proben bestätigen die aktuelle Situation, dass die Radionuklide Th-232, Ra-228 und Th-228 innerhalb der Analysenunsicherheiten im Gleichgewicht vorliegen.

Tabelle 20: Überblick zu relevanten Nukliden aus der Th-232 Reihe für Tailings

Probe	Standort	Th-232 in Bq/kg	Ra-228 in Bq/kg	Th-228 in Bq/kg
S-21-009936	IAA Königstein	155	155	158
S-21-009846	IAA Helmsdorf	57	64	64
S-21-009850	IAA Helmsdorf	< 29	35	36
S-21-009851	IAA Culmitzsch A	< 20	22	20
S-21-009847	IAA Culmitzsch B	24	30	30
S-21-009849	IAA Trünzig A	< 20	< 16	12
S-21-009848	IAA Trünzig B	54	51	51

7.7.2 U-235 Reihe

Ac-227:

Für die Gruppe der Rückstände aus den WBA liegen nur für die AAF Königstein Ungleichgewichte in der U-235 Reihe vor, die eine Altersbestimmung über Ac-227 grundsätzlich möglich machen.

Tabelle 21: Relevante Nuklide aus der U-235 Reihe für Rückstände/Immobilisate WBA

Probe	Standort	U-235 in Bq/kg	Pa-231 in Bq/kg	Ac-227 in Bq/kg
S-21-009877	WBA Helmsdorf	696	< 31	< 13
S-20-011053	WBA Helmsdorf	2120	< 20	< 8
S-21-009947	WBA Helmsdorf	1930	< 62	< 25
S-21-009879	WBA Ronneburg	142	< 8	3
S-21-009950	WBA Ronneburg	146	< 14	< 8
S-21-009951	WBA Ronneburg	141	< 9	< 4
S-21-009925	WBA Ronneburg	258	< 19	< 4
S-21-009880	WAB Aue	3140	87	< 36
S-21-009952	WAB Aue	2660	< 156	< 30
S-21-009953	WAB Aue	3250	< 92	< 39
S-21-009921	WAB Aue	9080	< 189	< 71

Probe	Standort	U-235 in Bq/kg	Pa-231 in Bq/kg	Ac-227 in Bq/kg
S-21-009878	WBA Seelingstädt	1060	< 88	< 15
S-21-009948	WBA Seelingstädt	848	< 35	19
S-21-009949	WBA Seelingstädt	839	< 38	13
S-21-009922	WBA AAF Königstein	14600	< 2420	24200
S-21-009920	WBA Pöhla	< 84	< 213	< 82

In dieser Probe ist das Pa-231 mit einem Faktor von mehr als 10 unter dem Ac-227. Darum ist mit dem Ac-227-Zerfall eine Altersbestimmung möglich. Um für eine Probe unbekanntes Alter dieses schätzen zu können, ist eine Information zur Startaktivität von Ac-227 nötig. Da das Verhältnis zwischen den spezifischen Aktivitäten von U-235 und Ac-227 zum Zeitpunkt der Entstehung ($t = 0$) konstant und bekannt ist (z.B. herkunfts- oder technologiespezifisch), kann man aus U-235 eine Startaktivität für Ac-227 ableiten.

Setzt man dann die Startaktivität und die gemessene Aktivität der Probe unbekanntes Alters ins Verhältnis, kann man entsprechend dem Kurvenverlauf in Abbildung 28 das Alter bestimmen.

Die größte Unsicherheit in diesem Verfahren liegt in der Annahme, dass das Verhältnis von U-235 zu Ac-227 zum Zeitpunkt $t = 0$ im oben genannten Sinn konstant ist. Eine weitere Unsicherheit, die jedoch deutlich geringer ist als die erste, liegt in der tatsächlichen spezifischen Aktivität von Pa-231 und der Annahme, dass auch hier eine feste Relation zu U-235 besteht.

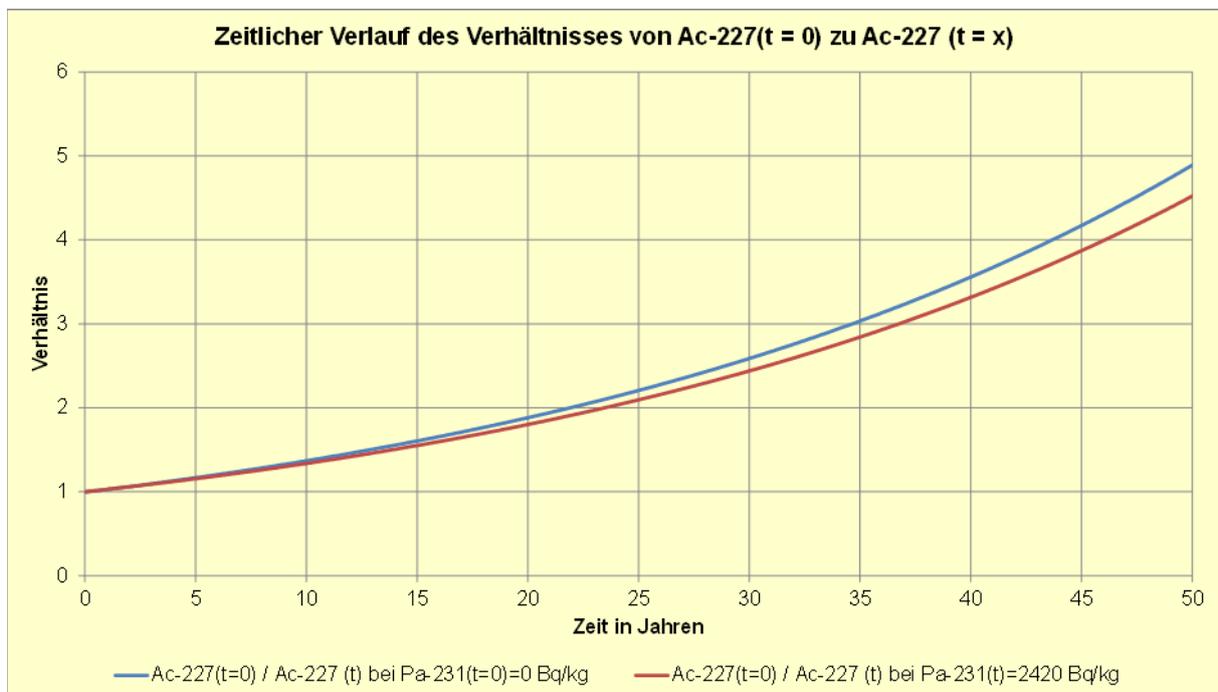


Abbildung 28: Zeitlicher Verlauf des Verhältnisses von Ac-227($t = 0$) zu Ac-227 ($t = x$)

Für die weiteren hier zu betrachtenden Stoffgruppen (Tabelle 22 und Tabelle 23) liegt entweder Pa-231 mit Ac-227 annähernd im Gleichgewicht oder die Analysen weisen nur Nachweisgrenzen auf, die weitere Aussagen auf dieser Basis nicht ermöglichen.

Tabelle 22: Überblick zu relevanten Nukliden aus der U-235 Reihe; Tailings

Probe	Standort	U-235 in Bq/kg	Pa-231 in Bq/kg	Ac-227 in Bq/kg
S-21-009936	Kirgisistan	29	1170	1150
S-21-009846	IAA Helmsdorf	67	1400	1390
S-21-009850	IAA Helmsdorf	55	216	212
S-21-009851	IAA Culmitzsch A	22	200	175
S-21-009847	IAA Culmitzsch B	72	195	186
S-21-009849	IAA Trünzig A	14	131	115
S-21-009848	IAA Trünzig B	76	522	540

Tabelle 23: Überblick zu relevanten Nukliden aus der U-235 Reihe; Urankonzentrat

Probe	Standort	U-235 in Bq/kg	Pa-231 in Bq/kg	Ac-227 in Bq/kg
S-21-009923	WBA Helmsdorf neu	5950	< 31	< 34
S-21-009924	WBA Helmsdorf neu	192000	< 1840	< 341
S-21-009959	AB 101/1990	358000	< 3270	< 1130
S-21-009961	AB 102/1980	292000	< 3390	< 907
S-21-009960	AB 102/1993	362000	< 3340	< 427
S-21-009929	AB 102	198000	< 2120	< 2190

Das größte Potential liegt in der Stoffgruppe Urankonzentrat, da hier nennenswerte Aktivitäten für U-235 vorliegen und die Nachweisgrenzen in der Regel im Bereich von ca. 1000 Bq/kg und darüber liegen. Die nachfolgende Abbildung 29 stellt die Entwicklung des genannten Ac-227-Verhältnisses exemplarisch am Beispiel der Probe-Nr. S-21-009929 dar. Dabei wurde angenommen, dass die als Nachweisgrenze angegebenen Werte für Pa-231 und Ac-227 den tatsächlich gemessenen Aktivitätskonzentrationen in dieser Probe entsprechen.

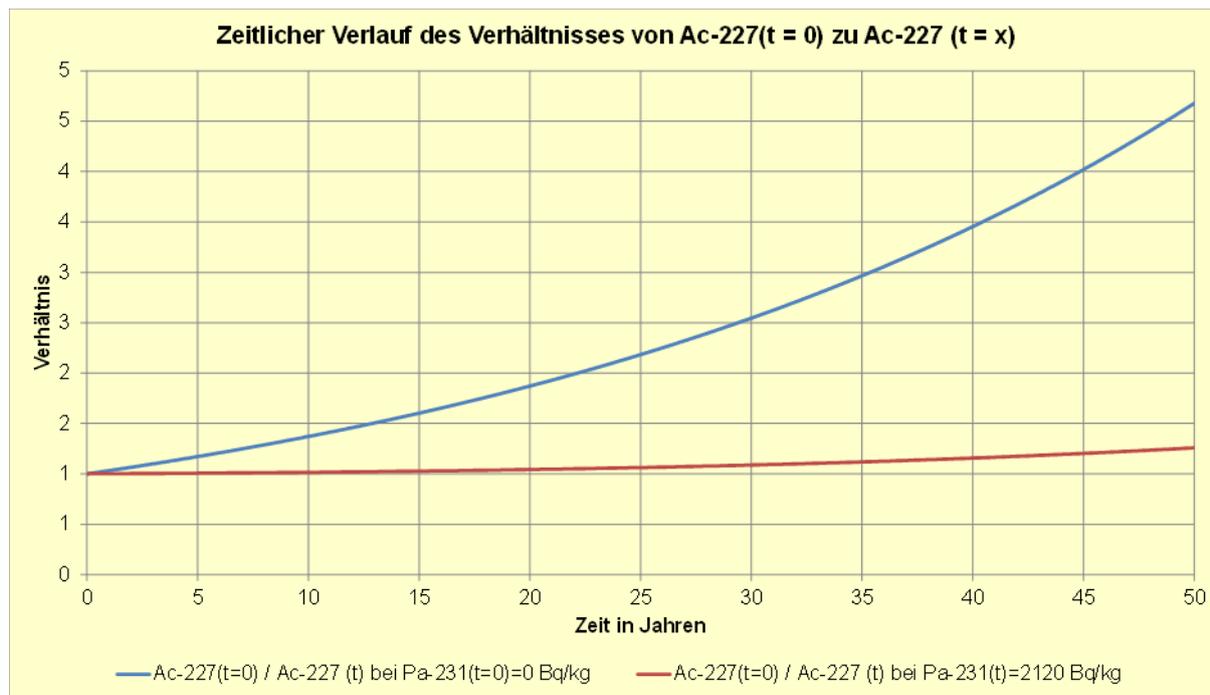


Abbildung 29: Zeitlicher Verlauf des Verhältnisses von Ac-227(t = 0) zu Ac-227 (t = x)

Eine Analytik mit niedrigeren Nachweisgrenzen für Pa-231 und Ac-227 könnte für diese Gruppe einen Lösungsansatz zur Altersbestimmung über Ac-227 bieten.

Pa-231:

Die vorliegenden Analyseergebnisse der Urankonzentratproben weisen eine mittlere U-235-Aktivitätskonzentration von ca. 330000 Bq/kg auf. Das bedeutet, dass pro Jahr in diesen Urankonzentratproben ca. 7 Bq/kg Pa-231 nachwachsen. Hiermit könnten alphaspektrometrische Nachuntersuchungen notwendige Daten zur Altersabschätzung liefern.

Die nachfolgende Abbildung 30 für die Probe-Nr. S-21-009929 zeigt, stellvertretend für die gesamte Gruppe der Urankonzentrate die Entwicklung des Verhältnisses des Radionuklides Pa-231 (t = 0, Startaktivität) zu Pa-231 (t, zu einem späteren Zeitpunkt). Ist die Startaktivität bekannt, kann aus dieser Funktion das Alter der Probe bestimmt werden. Dieses Verfahren ist deutlich unempfindlicher gegenüber dem in Kap. 7.7.2 beschriebenen Verfahren für Ac-227, basiert aber auf dem gleichen Prinzip. Für Pa-231 ist somit eine exakte und empfindliche Analytik Voraussetzung.

Für Immobilisate, Tailings und Rückstände ist diese Variante der Altersbestimmung wegen der zu erwartenden deutlich geringeren Pa-231-Konzentrationen in der Regel weniger geeignet.

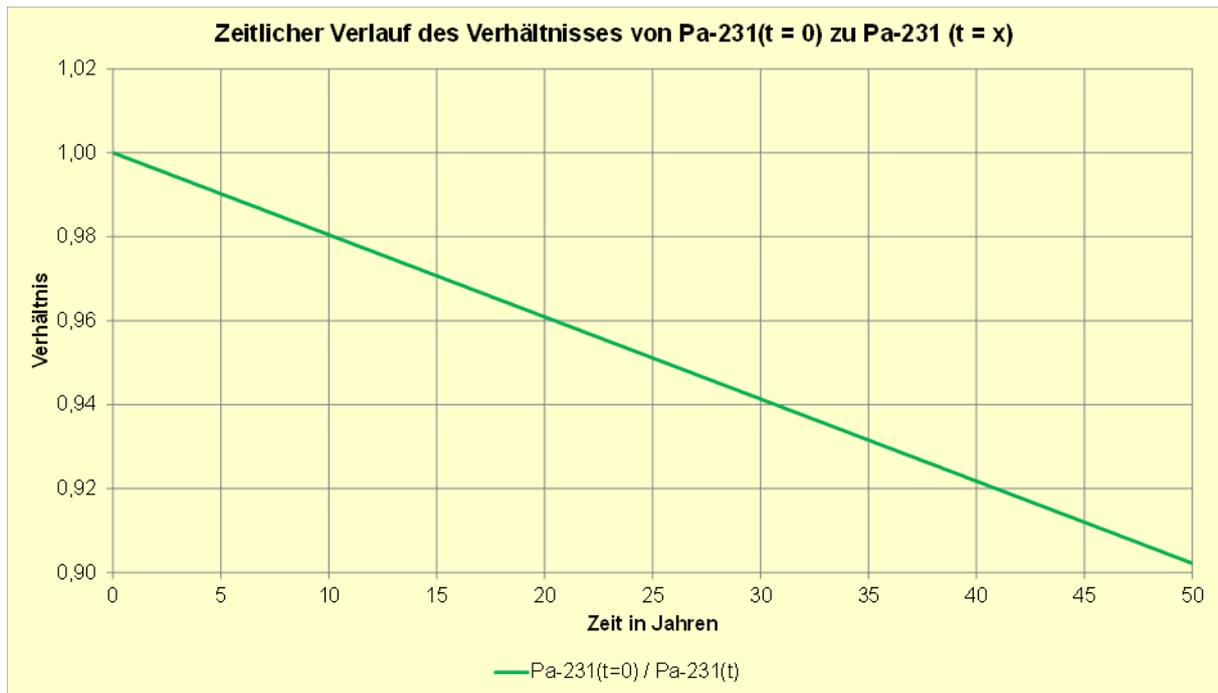


Abbildung 30: Zeitlicher Verlauf des Verhältnisses von Pa-231(t = 0) zu Pa-231 (t = x)

7.7.3 U-238 Reihe

Für die Nuklide der Uran-238-Zerfallsreihe sind Altersabschätzungen über die Verhältnisse der Startaktivitäten der Nuklide Th-230 oder Ra-226 zu den zum Zeitpunkt t gemessenen Aktivitäten analog der Vorgehensweise in der U-235 Reihe ebenfalls möglich.

Auch hier gilt grundsätzlich, dass diese Verfahrensweise vor allem bei Urankonzentrationen erfolgversprechend sein kann, sofern eine qualifizierte empfindliche Radionuklidbestimmung von Th-230 bzw. Ra-226 zum Zeitpunkt t erfolgt.

Die nachfolgenden Abbildung 31 und Abbildung 32 verdeutlichen die Verhältnisse wieder am Beispiel der Probe.-Nr. S-21-009929.

Aufgrund der großen Halbwertszeiten für Th-230 und Ra-226 ist dieses Verfahren nur dann geeignet, wenn sehr hohe U-234 Aktivitäten vorliegen und somit noch messbare Zuwächse für Th-230 und Ra-226 erzielt werden. Das Verfahren beschränkt sich hauptsächlich auf die Stoffgruppe Urankonzentrate.

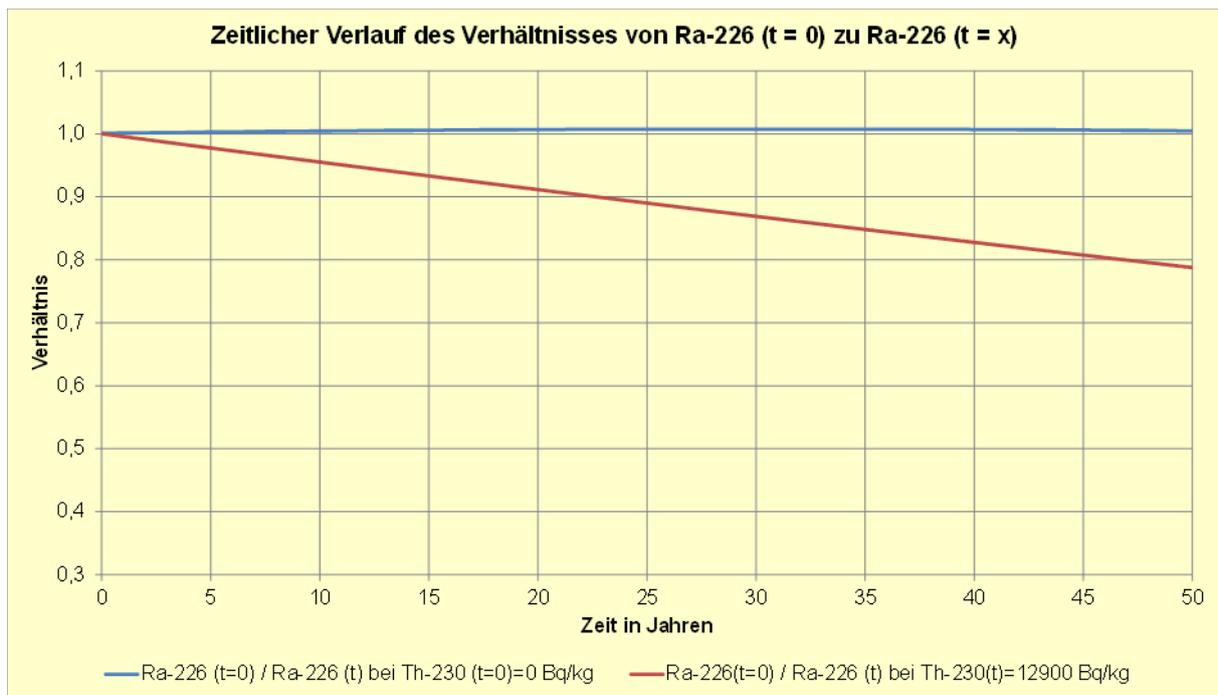


Abbildung 31: Zeitlicher Verlauf des Verhältnisses von Ra-226 (t = 0) zu Ra-226 (t = x)

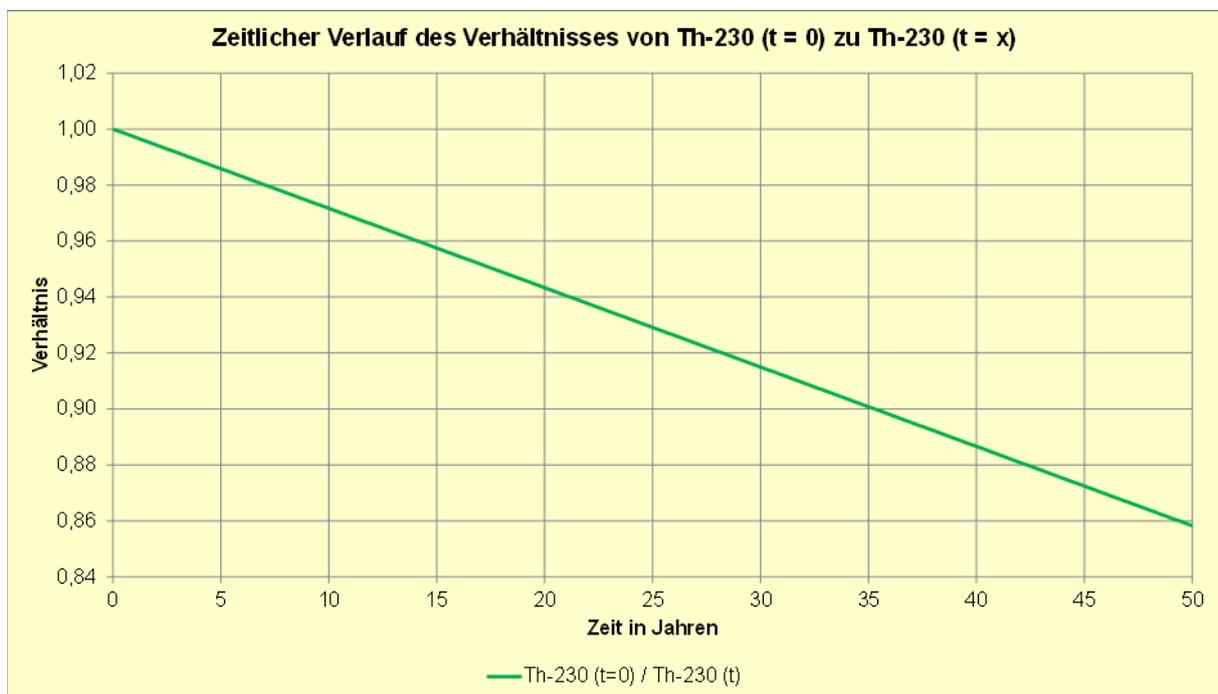


Abbildung 32: Zeitlicher Verlauf des Verhältnisses von Th-230 (t = 0) zu Th-230 (t = x)

Die Verfahrensweise soll nachfolgend am Beispiel dreier Urankonzentratproben, bei denen das Probenalter bekannt ist, erprobt und dargestellt werden.

Beispiel 1:

Probe-Nr.: S-21-009961 bfs_uk_ab102_1980
 Probenalter: Probe-Erzeugung: 1980
 Probe-Analyse: 2021
 Probe-Alter 2021 = 41 a

Nuklid	Alter der Probe in a	Aktivität zum Zeitpunkt x in Bq/kg	Quotient A(0) / A(t)	Aktivität zum Zeitpunkt 0 in Bq/kg
U-234	41	5910000		
Th-230	41	157000	0,986	154802
Ra-226	41	10800	0,759	8197

Schlussfolgerung aus Beispiel 1:

- Th-230 und Ra-226 besitzen eine Startaktivität ($t = 0$) von > 0 Bq/g.
- Th-230 hatte vor 41 Jahren die Aktivität von 154802 Bq/kg.
- Ra-226 hatte vor 41 Jahren den Wert von 8197 Bq/kg.
- Geht man von einem festen Verhältnis zwischen U-234 und Th-230 von 38,2 und zwischen U-234 und Ra-226 von 721 aus, kann man mit der Analytik von U-234 zu einem späteren Datum des Fundes die Startaktivität von Ra-226 bzw. Th-230 berechnen.
- Unter Kenntnis des Nuklidvektors der Probe zum Zeitpunkt $t = 0$ für U-234 (ist identisch mit der Analytik zum Zeitpunkt des Fundes) und der daraus abgeleiteten spezifischen Aktivitäten für Th-230 und Ra-226 ist eine Altersbestimmung möglich, wenn die spezifische Aktivität für Ra-226 zum Zeitpunkt des Fundes durch eine Analytik bestimmt wird.
- Voraussetzung für diese Verfahren ist die Annahme, dass es möglich ist, ein festes Verhältnis (z.B. aufbereitungstechnisch/technologisch bedingt) zwischen den spezifischen Aktivitäten der Nuklide U-234, Th-230 und Ra-226 zum Startzeitpunkt zu definieren. Im vorliegenden Fall ist diese Annahme durch Auswertung an nur einer vorliegenden Probe bestimmbar und liefert somit den größten Fehleranteil für dieses Verfahren.

Beispiel 2:

Probe-Nr.: S-21-009960 bfs_uk_ab102_1993
 Probenalter: Probe-Erzeugung: 1993
 Probe-Analyse: 2021
 Probe-Alter 2021 = 28 a

Nuklid	Alter der Probe in a	Aktivität zum Zeitpunkt x in Bq/kg	Quotient A(0) / A(t)	Aktivität zum Zeitpunkt 0 in Bq/kg	Bemerkung
U-234	28	7680000			
Th-230	28	< 21400	0,908	19428	variabel zwischen 0 und Wert < als
Ra-226	28	1100	0,786	864	

Schlussfolgerung aus Beispiel 2:

- Ra-226 besitzt eine Startaktivität ($t = 0$) von > 0 Bq/g.
- Ra-226 hatte vor 28 Jahren den Wert von ca. 1000 Bq/kg (864 Bq/kg).
- Aussagen zum Th-230 zum Startzeitpunkt sind nicht möglich, da der Th-230-Wert der Nachweisgrenze entspricht.
- Th-230 muss jetzt mindestens ca. 1977 Bq/kg besitzen, wenn zum Zeitpunkt der Herstellung Th-230 = 0 Bq/kg war.
- Nimmt man an, dass die Nachweisgrenze für Th-230 mit 21400 Bq/kg der aktuellen spezifischen Aktivität entspricht, so war der Startwert der spezifischen Aktivität zum Zeitpunkt $t = 0$: 19428 Bq/kg.
- Mit einer präziseren Bestimmung von Th-230 zum aktuellen Zeitpunkt könnte man analog zum Beispiel 1 die exakten Startwerte für Ra-226 und Th-230 berechnen und wiederum unter Annahme des festen Startverhältnisses zwischen U-234 und Th-230 sowie U-234 und Ra-226 eine Altersbestimmung durchführen.

Beispiel 3:

Probe-Nr.: S-21-009959 bfs_uk_ab101_1990

Probenalter: Probe-Erzeugung: 1990

Probe-Analyse: 2021

Probe-Alter 2021 = 31 a

Nuklid	Alter der Probe in a	Aktivität zum Zeitpunkt x in Bq/kg	Quotient $A(0) / A(t)$	Aktivität zum Zeitpunkt 0 in Bq/kg	Bemerkung
U-234	31	7570000			
Th-230	31	< 25600	0,916	23460	variabel zwischen 0 und Wert < als
Ra-226	31	2380	0,874	2082	

Schlussfolgerung aus Beispiel 3:

- Ra-226 besitzt eine Startaktivität ($t = 0$) von > 0 Bq/g.
- Ra-226 hatte vor 31 Jahren den Wert von ca. 2.000 Bq/kg (2.082 Bq/kg).
- Aussagen zum Th-230 zum Startzeitpunkt sind nicht möglich, da der Th-230-Wert der Nachweisgrenze entspricht.
- Th-230 muss jetzt mindestens 2.147 Bq/kg besitzen wenn zum Zeitpunkt der Herstellung Th-230 = 0 Bq/kg war.
- Nimmt man an, dass die Nachweisgrenze für Th-230 mit 25.600 Bq/kg der aktuellen spezifischen Aktivität entspricht, so war der Startwert der spezifischen Aktivität zum Zeitpunkt $t = 0$: 23.460 Bq/kg.
- Mit einer präziseren Bestimmung von Th-230 zum aktuellen Zeitpunkt könnte man analog zum Beispiel 1 die exakten Startwerte für Ra-226 und Th-230 berechnen und wiederum unter Annahme des festen Startverhältnisses zwischen U-234 und Th-230 und U-234 und Ra-226 eine Altersbestimmung durchführen.

Aus den Beispielen 2 und 3 kann abgeleitet werden, dass für präzisere Aussagen eine Analytik für Th-230 notwendig ist, die mindestens 2000 Bq/kg sicher nachweisen kann.

Bei einer angenommenen Nachweisgrenze von einem mBq/g und Jahr für alphaspektrometrische Analysen bedeutet dies, dass die beschriebene Vorgehensweise nur für Proben mit U-234-Aktivitätskonzentrationen von mindestens 115000 Bq/kg anwendbar ist. Derartig hohe Urankonzentrationen werden normalerweise nur in Urankonzentrationen erreicht. Eine Präzisierung kann durch die Bestimmung von Th-230 zum jetzigen Zeitpunkt noch erfolgen.

In seltenen Fällen sind solch hohe Urankonzentrationen auch in Immobilisaten oder Rückständen anzutreffen (Beispiele: S-21-009923 Immobilisat neue WBA Hdf, S-21-009921 Rückstand Schlema-Alberoda, S-21-009922 Rückstand AAF Königstein).

Weiterhin kann man bei den Proben aus den Beispielen 1 bis 3 schlussfolgern, dass von einer Startaktivität des Radionuklids Ra-226 von > 0 Bq/kg auszugehen ist.

Die Probe 1980 ist bezüglich des Nuklidvektors nicht mit den Proben 1990 und 1993 vergleichbar. Auch der Unterschied im Nuklidvektor könnte zur Alterseingrenzung herangezogen werden, da vermutlich die Konzentratprobe aus 1980 zu einem nicht vernachlässigbaren Anteil aus der schwefelsauren Laugung stammt, die vermutlich deutlich stärker die nicht Urannuklide mit in Lösung brachte, als die später dominierende sodaalkalische Laugung.

7.8 Diskussion einer alternativen Methode

Alle WBA laufen mit dem Ziel, in einem großen Wasservolumen, das entweder in einem bergmännisch geschafften untertägigen Hohlraumvolumen oder in einer großen Freiwasserfläche (IAAs) vorliegt, durch ständige Wasserentnahme und Behandlung des Wassers unter Abtrennung der Hauptkontaminanten, die Konzentration der Hauptkontaminanten abzusenken (Gruben) oder das gesamte Freiwasservolumen vollständig abzubauen. Bei beiden Varianten sinken die Konzentrationen der Hauptkontaminanten im zu behandelnden Wasser ab. Der Ansatz für eine Altersbestimmung besteht darin, über sinkende Konzentrationen in den Rückständen/Immobilisaten diese bestimmten Zeitfenster zuordnen zu können.

Am Beispiel der Rückstände bzw. der Immobilisate der WBA Schlema/Alberoda soll eine mögliche Alternative zur Altersbestimmung dargestellt und geprüft werden.

In der Abbildung 33 ist die Abnahme der Urankonzentration im Zulauf der WBA Schlema/Alberoda deutlich zu erkennen. In erster Näherung kann man davon ausgehen, dass die Abtrennung zu 100 % erfolgt, da die Ablaufkonzentrationen sehr klein gegenüber der Zulaufkonzentration ist. Sollte sich dieser Weg als erfolgversprechend darstellen, kann in einer zweiten Iteration auch die tatsächliche Ablaufkonzentration in die Berechnungen einbezogen werden.

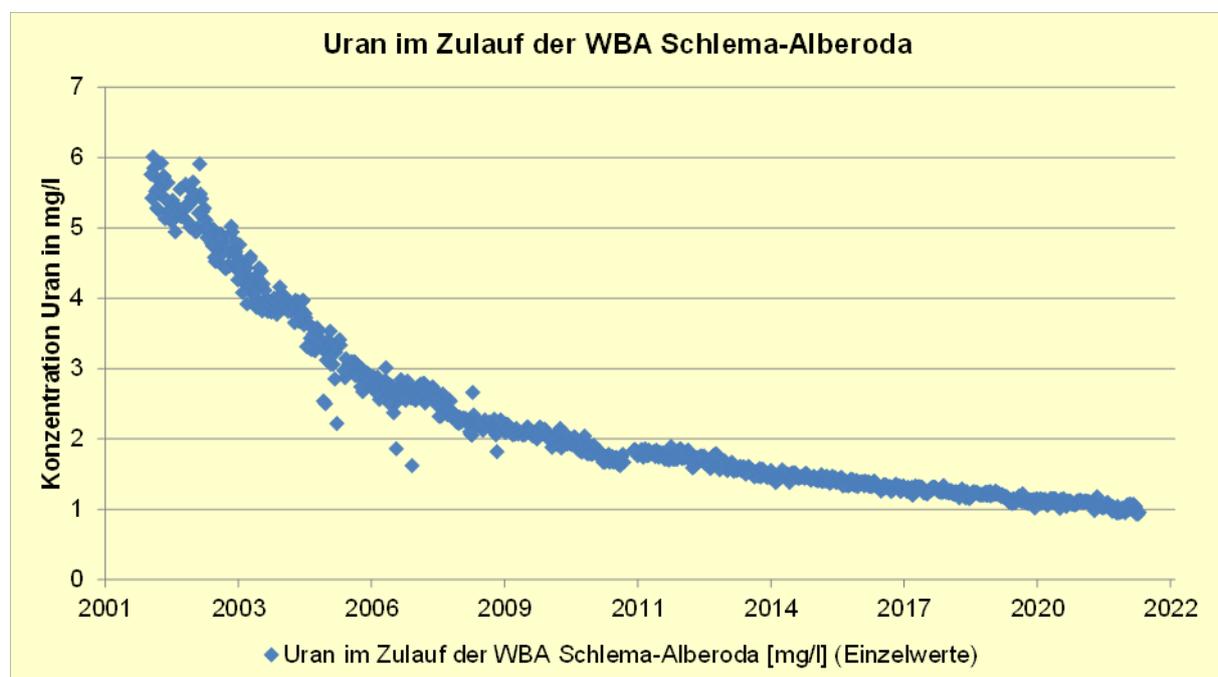


Abbildung 33: Verlauf der Urankonzentration im Zulauf der WBA Schlema-Alberoda

Die nachfolgenden Betrachtungen werden alle auf Zeitabschnitte von einem Jahr ($\Delta t = 1a$) bezogen, in dem die Bilanz über ein gesamtes Jahr erstellt wird. Um die abgetrennten Frachten zu ermitteln sind die Jahresmengen an behandeltem Wasser erforderlich. Diese wurden vom AG bereitgestellt. In der Tabelle 24 sind die abgetrennten Uranfrachten, der spezifische Rückstandsanzahl bezogen auf einen m^3 behandeltes Wasser und weitere Kenngrößen zur Ermittlung der Urankonzentration im Rückstand angegeben.

Tabelle 24: Darstellung der Urankonzentration im Rückstand

Jahr	behandelte Wassermenge	mittlere Urankonzentration im Zulauf	abgetrennte Uranmenge	spezifische Rückstandsmenge	Urangehalt im Rückstand
	m^3	g/m^3	t	g/m^3	mg/kg
2021	6060385	1,01	6,11	54	18599
2020	4335863	1,05	4,56	53	19886
2019	5329272	1,10	5,88	55	20182
2018	5102521	1,17	5,99	58	20389
2017	5943053	1,24	7,37	57	21650
2016	5794251	1,29	7,48	54	23937
2015	5413183	1,36	7,39	57	23835
2014	5412092	1,45	7,84	56	25876
2013	7102835	1,51	10,75	59	25676
2012	5423939	1,66	9,02	65	25493
2011	6545236	1,78	11,67	79	22534
2010	8615912	1,75	15,09	85	20597
2009	6141827	1,96	12,03	89	22094
2008	6088356	2,11	12,85	82	25588
2007	5714976	2,26	12,94	82	27754
2006	7557909	2,61	19,76	93	28192
2005	5665751	2,79	15,82	133	20940
2004	5893202	3,31	19,51		
2003	6720911	3,99	26,84		
2002	7286708	4,63	33,70		
2001	5225299	5,37	28,08		
2000	3565655	5,73	20,43		
1999	942362				

In der Abbildung 34 sind die zeitliche Entwicklung des spezifischen Rückstandsanzfalls und die Urankonzentration im Zulauf dargestellt. Es ist sehr deutlich zu erkennen, dass mit fallender Urankonzentration im Einlauf der WBA auch der spezifische Rückstandsanzahl sinkt.

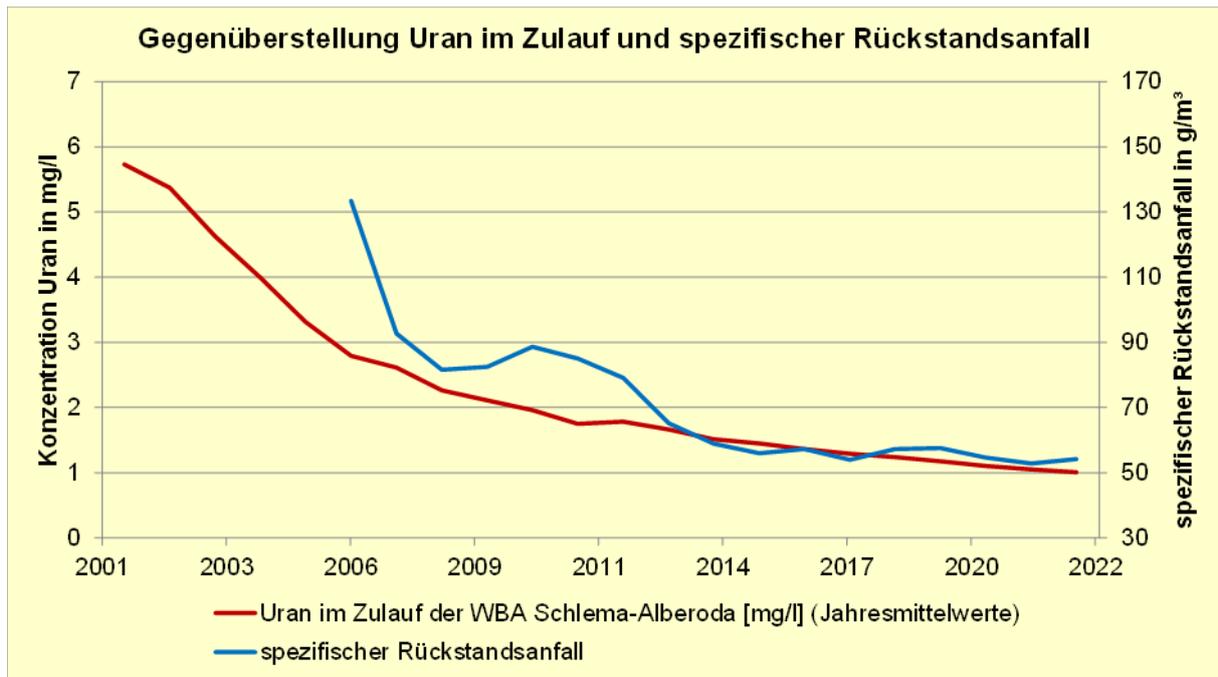


Abbildung 34: Verlauf der Urankonzentration im Zulauf der WBA Schlema-Alberoda und des spezifischen Rückstandsanzfalls

Folgerichtig relativiert sich der Einfluss der fallenden Urankonzentration auf die Urankonzentration im Rückstand aufgrund des fallenden Rückstandsanzfalls. Die mittlere jährliche Urankonzentration im Rückstand ist in der Abbildung 35 dargestellt.

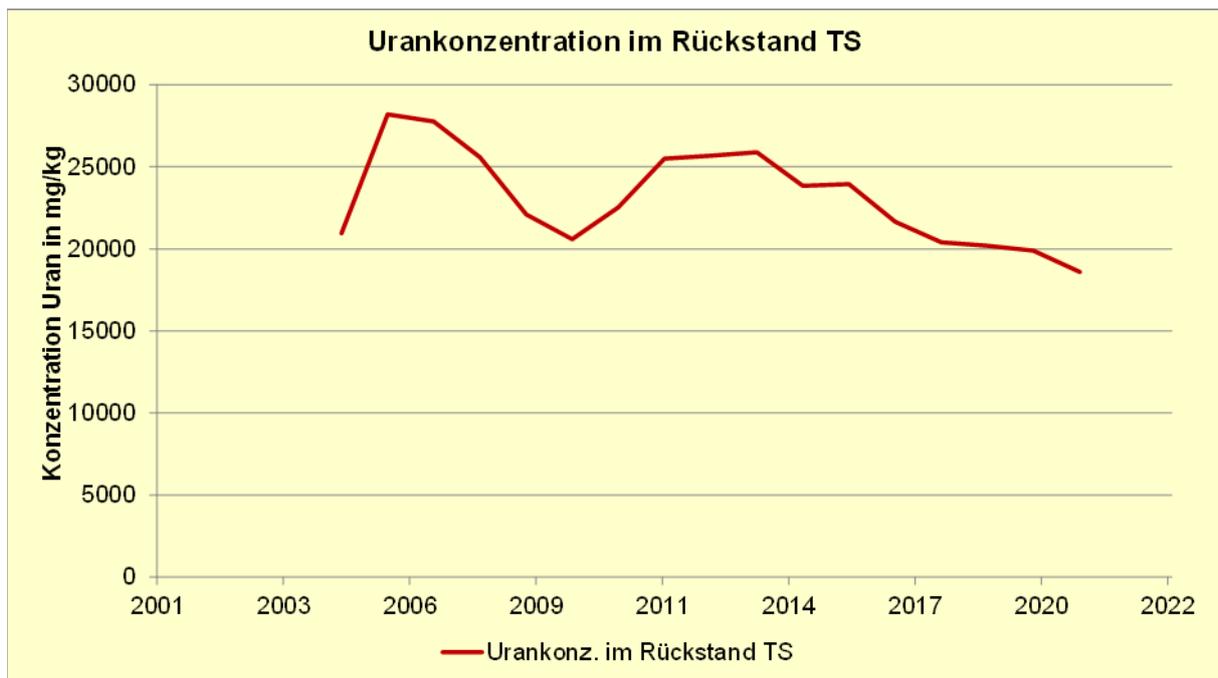


Abbildung 35: Verlauf der Urankonzentration im Rückstand der WBA Schlema-Alberoda

Es ist aus der Abbildung 35 deutlich zu erkennen, dass die mittlere Urankonzentration in einem Band zwischen 18000 mg/kg und 28000 mg/kg schwankt, jedoch keine eindeutige Beziehung zwischen der Urankonzentration im Rückstand und dem Entstehungsdatum des Rückstandes besteht. Aus diesem Grund ist eine Altersbestimmung des Rückstandes über die Urankonzentration nicht möglich. Die gleiche Aussage lässt sich auch auf die Immobilisate treffen, da diese unter Zumischung von Zement und Wasser aus den Rückständen gebildet werden.

7.9 Ergebnisse der Altersbestimmung

In den nachfolgenden Punkten wird beschrieben, zu welchen Ergebnissen die Analyse der Daten bezüglich der einzelnen Methode zur Altersbestimmung geführt haben.

7.9.1 Bestimmung über die Nuklide Th-232, Ra-228 und Th-228

Mindestvoraussetzungen für die Nutzung der Methode:

- Messwerte für Th-232, Ra-228 und Th-228 und signifikante Nichtgleichgewichte und
- Kenntnisse zum Startvektor sind nicht notwendig.

Aus den unterschiedlichen Nichtgleichgewichtsverhältnissen (Tabelle 25) lassen sich folgende Aussagen ableiten.

Tabelle 25: Nuklidkonstellationen als Aktivitäten bzw. Aktivitätsverhältnisse

Th-232	Ra-228	Th-228	Aussage zum Alter
= Ra-228 = Th-228	= Th-232 = Th-228	= Th-232 = Ra-228	keine Aussagen möglich
0	> Th-228	≥ Th-232	< 5 Jahre
0	≤ Th-228	> Th-232	< 38 Jahre
>> 0	< Th-228	≤ Th-232	< 5 Jahre
>> 0	> Th-228	< Th-232	< 38 Jahre
vergleichbar mit Ra-228	vergleichbar mit Th-232	deutlich größer als Ra-228 und Th-232	< 13 Jahre
vergleichbar mit Ra-228	vergleichbar mit Th-232	deutlich kleiner als Ra-228 und Th-232	< 13 Jahre

Für nachfolgende Proben konnte eine Altersbestimmung mit diesem System (Tabelle 26) durchgeführt werden.

Tabelle 26: Relevante Nuklide aus der Th-232 Reihe; Rückstände/Immobilisate WBA

Probe	Standort	Th-232 in Bq/kg	Ra-228 in Bq/kg	Th-228 in Bq/kg	Alter
S-21-009820	WBA Pöhla	< 20	619	69	< 5 Jahre
S-21-009880	WBA Schlema-Alberoda	20	105	33	< 5 Jahre
S-21-009921	WBA Schlema-Alberoda	20	292	44	< 5 Jahre
S-21-009952	WBA Schlema-Alberoda	< 102	102	61	< 5 Jahre
S-21-009953	WBA Schlema-Alberoda	< 82	101	63	< 5 Jahre
S-21-009922	WBA AAF Königstein	167	1140	328	< 5 Jahre

7.9.2 Bestimmung über die Nuklide Pa-231 und Ac-227

Mindestvoraussetzungen für die Nutzung der Methode:

- Messwerte für U-235, Pa-231, und Ac-227 mit signifikanten Nichtgleichgewichten,
- Kenntnisse zur Startaktivität von Pa-231, Ac-227 sind notwendig,
- Startaktivität von Pa-231 und Ac-227 kann möglicherweise über feste Verhältnisse zwischen U-235 zu Pa-231 und U-235 zu Ac-227 aus bekannten Proben bzw. zukünftig gewonnenen Proben ermittelt werden.

Aus Anstieg oder Zerfall von Ac-227 kann das Alter der Probe unter Kenntnis bzw. Ableitung der Startaktivität von Ac-227 und Pa-231 bestimmt werden.

Unter den zur Verfügung gestellten Proben sind keine vorhanden, für die zwischen Pa-231 und Ac-227 ein signifikantes Ungleichgewicht vorlag bzw. für beide Radionuklide lagen die Messergebnisse unter der Nachweisgrenze. Eine Altersbestimmung konnte somit an Beispielen nicht erfolgen. Unter Nutzung der Alphaspektroskopie für Pa-231 und Th-227 (es liegt für die Betrachtungszeiträume von einem Jahr immer im Gleichgewicht mit Ac-227) besteht für die Stoffgruppen Urankonzentrate sowie Rückstände und Immobilisate der Wasserbehandlung das Potential einer Altersbestimmung.

Mindestvoraussetzungen für die Nutzung der Methode:

- Messwerte für U-235 und Pa-231 mit signifikanten Nichtgleichgewichten,
- Kenntnisse zur Startaktivität von Pa-231 sind notwendig,
- Startaktivität von Pa-231 kann möglicherweise über feste Verhältnisse zwischen U-235 und Pa-231 aus bekannten Proben bzw. zukünftig gewonnenen Proben ermittelt werden,
- Aufgrund der großen Halbwertszeit von Pa-231 mit $3,3 \cdot 10^4$ Jahren kann das Verfahren nur für Proben mit hohen U-235 Konzentrationen im Bereich deren von Urankonzentraten erfolgreich durchgeführt werden.

Aus dem Anstieg oder Zerfall von Pa-231 kann das Alter der Probe unter Kenntnis bzw. Ableitung der Startaktivität von Pa-231 bestimmt werden.

Unter den zur Verfügung gestellten Proben sind keine vorhanden, für die zwischen U-235 und Pa-231 ein signifikantes Ungleichgewicht vorlag bzw. für Pa-231 lagen die Messergebnisse unter der Nachweisgrenze. Eine Altersbestimmung konnte somit an Beispielen nicht erfolgen. Unter Nutzung der Alphaspektroskopie für Pa-231 besteht für Urankonzentrate das Potential einer Altersbestimmung.

7.9.3 Bestimmung über die Nuklide U-234 und Th-230

Mindestvoraussetzungen für die Nutzung der Methode:

- Messwerte für U-234 und Th-230 mit signifikanten Nichtgleichgewichten,
- Kenntnisse zur Startaktivität von Th-230 sind notwendig,
- Startaktivität von Th-230 kann möglicherweise über feste Verhältnisse zwischen U-234 und Th-230 aus bekannten Proben bzw. zukünftig gewonnenen Proben ermittelt werden,
- aufgrund der großen Halbwertszeit von Th-230 mit 75.400 Jahren kann das Verfahren nur für Proben mit hohen U-234 Konzentrationen im Bereich deren von Urankonzentraten erfolgreich durchgeführt werden.

Aus dem Anstieg oder Zerfall von Th-230 kann das Alter der Probe unter Kenntnis bzw. Ableitung der Startaktivität von Th-230 bestimmt werden. Unter den zur Verfügung gestellten Proben ist nur eine vorhanden, für die zwischen U-234 und Th-230 ein signifikantes Ungleichgewicht und für Th-230 ein Messwert oberhalb der Nachweisgrenze vorlag (S-21-009961 bfs_uk_ab102_1980).

Für diese Probe wurde mit dem bekannten Alter die Startaktivität von Th-230 bestimmt und ein Verhältnis zwischen U-234 zu Th-230 ermittelt. Geht man davon aus, dass dieses Startverhältnis allgemein gültig ist, kann man mit vergleichbaren Proben das Alter über Th-230 bestimmen. Für die übrigen historischen Proben (S-21-009960 bfs_uk_ab102_1993 und S-21-009959 bfs_uk_ab101_1990) lagen für Th-230 nur Analysen kleiner als die Nachweisgrenze vor. Eine Übertragung der Ergebnisse aus der Probe von 1980 ist aufgrund der signifikanten Unterschiede nicht möglich.

7.9.4 Bestimmung über die Nuklide U-234, Th-230 und Ra-226

Mindestvoraussetzungen für die Nutzung der Methode:

- Messwerte für U-234, Th-230 und Ra-226 und signifikante Nichtgleichgewichte zwischen Th-230 und Ra-226,
- Kenntnisse zur Startaktivität von Th-230 und Ra-226 sind notwendig,
- Startaktivität von Th-230 und Ra-226 kann möglicherweise über feste Verhältnisse zwischen U-234 zu Th-230 und U-234 zu Ra-226 aus bekannten Proben bzw. zukünftig gewonnenen Proben ermittelt werden,
- aufgrund der großen Halbwertszeit von Ra-226 mit 1.600 Jahren kann das Verfahren nur für Proben mit hohen Nichtgleichgewichten zwischen Th-230 und Ra-226 angewendet werden.

Aus dem Anstieg oder Zerfall von Ra-226 kann das Alter der Probe unter Kenntnis bzw. Ableitung der Startaktivität von Th-230 und Ra-226 bestimmt werden.

Unter den zur Verfügung gestellten Proben ist nur eine vorhanden, für die zwischen Th-230 und Ra-226 ein signifikantes und hohes Ungleichgewicht und für Th-230 ein Messwert oberhalb der Nachweisgrenze vorlag (S-21-009961 bfs_uk_ab102_1980).

Für diese Probe wurde mit dem bekannten Alter die Startaktivität von Th-230 und Ra-226 bestimmt und ein Verhältnis zwischen U-234 zu Th-230 und U-234 zu Ra-226 ermittelt. Geht man davon aus, dass dieses Startverhältnis allgemein gültig ist, kann man mit vergleichbaren Proben das Alter über Ra-226 bestimmen. Für die übrigen historischen Proben (S-21-009960 bfs_uk_ab102_1993 und S-21-009959 bfs_uk_ab101_1990) lagen für Th-230 nur Analysen kleiner als die Nachweisgrenze vor. Eine Übertragung der Ergebnisse aus der Probe von 1980 ist aufgrund der signifikanten Unterschiede nicht möglich.

7.10 Vorschläge

Die Diskussion der verfügbaren Daten hat gezeigt, dass die vorhandenen Radionuklidanalysen in vielen Fällen mit Messunsicherheiten behaftet sind, die als Anfangspunkt für eine Altersbestimmung mittels des radioaktiven Zerfalls ungeeignet sind. Die großen Messunsicherheiten basieren auf der Methode der Nuklidanalytik, die ausnahmslos mittels Gammaskopie durchgeführt wurden. Das betrifft sowohl die Proben der Doppelbestimmung mit einem Zeitversatz von einem Jahr als auch die anderen Proben. Eine deutliche Absenkung der Nachweisgrenzen kann unter Nutzung der Radionuklidanalytik mittels Alphaspektroskopie erfolgen, indem man im ersten Schritt mit einer radiochemischen Aufbereitung für die Analytik störende Radionuklide entfernt bzw. die relevanten Radionuklide aus der Probe extrahiert um anschließend eine mit deutlich geringeren Nachweisgrenzen arbeitende Alphaspektroskopie durchzuführen. Diese Methode hat immer dann einen Sinn, wenn in den Proben sehr große Unterschiede in den Aktivitäten vorliegen.

Für folgende Probegruppen und Nuklide besteht die Möglichkeit durch Radionuklidanalysen mit deutlich geringeren Nachweisgrenzen weitere Informationen für die Altersbestimmung zu gewinnen.

Tabelle 27: Urankonzentrate mit dem Potential der Altersbestimmung über die Nuklide Th-232, Ra-228 und Th-228

Probe	Standort	Th-232 in Bq/kg	Ra-228 in Bq/kg	Th-228 in Bq/kg
S-21-009929	AB 102	151	<566	<199
S-21-009959	AB 102/1990	nicht ermittelt	<799	<312
S-21-009960	AB 102/1993	nicht ermittelt	<791	<149
S-21-009961	AB 101/1980	<1800	<150	NE

Tabelle 28: Rückstände/Immobilisate WBA mit dem Potential der Altersbestimmung über die Nuklide Pa-231 und Ac-227

Probe	Standort	U-235 in mg/kg	Pa-231 in mg/kg	Ac-227 in mg/kg
S-21-009922	WBA AAF Königstein	14600	< 2420	24200

Tabelle 29: Urankonzentrate mit dem Potential der Altersbestimmung über die Nuklide U-234, Th-230 und Ra-226

Probe	Standort	U-234 in mg/kg	Th-230 in mg/kg	Ra-226 in mg/kg
S-21-009960	Urankonzentrat AB102 von 1993	7680000	< 21400	1100
S-21-009959	Urankonzentrat AB101 von 1990	7570000	< 25600	2380

Ein weiteres Problem besteht darin, dass für eine Altersbestimmung durch Aufbau oder Zerfall eines Radionuklides Informationen über den Startwert zum Zeitpunkt $t = 0$, d.h. für den Zeitpunkt an dem die letzte technologische Veränderung des Nuklidvektors erfolgte, erforderlich sind. Hier wurde oft nur an einer bzw. nur an wenigen Proben der Startwert ermittelt und anhand von Verhältnissen zu anderen langzeitstabilen Radionukliden abgeleitet. Hierfür bedarf es weiteren systematisch angelegten Untersuchungen, die die bisherigen Annahmen präzisieren aber auch möglicherweise verwerfen. Das betrifft insbesondere die Proben, die ständig neu anfallen und für die präziseren Aussagen über den Startnuklidvektor gewonnen werden können. Das sind Rückstände/Immobilisate der WBA und Urankonzentrate aus der neuen WBA Helmsdorf.

Aus den Beispielen 2 und 3 kann abgeleitet werden, dass für präzisere Aussagen für Urankonzentrate eine Analytik für Th-230 notwendig ist, die mindestens 2000 Bq/kg sicher nachweisen kann.

Eine Altersbestimmung über Th-230 erfordert eine hohe spezifische Aktivität von U-234. Bei einer angenommenen Nachweisgrenze von 1 mBq/g und Jahr für alphaspektrometrische Analysen bedeutet dies, dass die beschriebene Vorgehensweise nur für Proben mit U-234-Aktivitätskonzentrationen von mindestens 115.000 Bq/kg anwendbar ist. Derartig hohe Urankonzentrationen werden normalerweise nur in Urankonzentraten erreicht. Eine Präzisierung kann durch die Bestimmung von Th-230 zum jetzigen Zeitpunkt noch erfolgen.

Eine Altersbestimmung über Pa-231 erfordert eine hohe spezifische Aktivität von U-235. Geht man für einen Alphaspektrometrieaufschluss von einem Probeneinsatz von 1 g und einer Nachweisgrenze von ca. 1 mBq durch alphaspektrometrische Messung aus, so können über diesen Weg bei spezifischen U-235-Aktivitäten von 50 kBq/kg Pa-231-Aktivitätsänderungen von ca. 1 mBq pro 1 g Probeneinsatz nachgewiesen werden.

7.11 Zusammenfassung und Schlussfolgerungen

In der Tabelle 30 wurde eine Übersicht erarbeitet, für welche Stoffgruppen über welche Methode eine Altersbestimmung möglich ist. Es ist zu entnehmen, dass für die Gruppen: Rückstände/Immobilisate WBA der Standorte Ronneburg, Seelingstädt und Helmsdorf und die Tailings keine Methode zur Altersbestimmung gefunden wurden. Die Kennzeichnung mit (x) bedeutet, dass hier nur Messwerte < Nachweisgrenze vorliegen, aber aufgrund der Höhe der Nachweisgrenze das Potential für eine Eignung nicht ausgeschlossen ist.

Tabelle 30: Potentielle Methoden der Altersbestimmung für die Stoffgruppen

Zerfallsreihe:	Th-232	U-235	U-235	U-238	U-238
Material und Nuklide:	Th-232, Ra-228, Th-228	Ac-227	Pa-231	Th-230	Ra-226
Rückstände/Immobilisate WBA					
Ronneburg					
Seelingstädt					
Helmsdorf					
Pöhla	x				
Schlema-Alberoda	x				
Königstein	x				
Tailings					
Urankonzentrate					
Helmsdorf neu			x	x	x
AB 102	(x)		x	x	x
Ab 101	(x)		x	x	x
AAF Königstein	(x)	x	x	x	x

Literaturverzeichnis

- Dok 1** E. Schpolski, Atomphysik Band 9, Teil II, Unveränderte Auflage, S. 420 ff., Berlin:
VEB Deutscher Verlag der Wissenschaften, 1976

Zitierte Normen

Trocknung DIN 18121-2:2020-11, Baugrund, Untersuchung von Bodenproben - Wassergehalt - Teil 2: Bestimmung durch Schnellverfahren. Beuth Verlag GmbH.

Zerkleinerung DIN 19747:2009-07, Untersuchung von Feststoffen - Probenvorbehandlung, -vorbereitung und -aufarbeitung für chemische, biologische und physikalische Untersuchungen. Beuth Verlag GmbH.

Königswasseraufschluss

DIN EN 13346:2000, Charakterisierung von Schlämmen - Bestimmung von Spurenelementen und Phosphor - Extraktionsverfahren mit Königswasser; Deutsche Fassung EN 13346:2000. Beuth Verlag GmbH.

Elementanalyse DIN EN ISO 17 294-2:2017-01 (E29), Wasserbeschaffenheit - Anwendung der induktiv gekoppelten Plasma-Massenspektrometrie (ICP-MS) - Teil 2: Bestimmung von ausgewählten Elementen einschließlich Uran-Isotope (ISO 17294-2:2016); Deutsche Fassung EN ISO 17294-2:2016. Beuth Verlag GmbH.

Elementanalyse DIN EN ISO 11 885:2009-09 (E22), Wasserbeschaffenheit - Bestimmung von ausgewählten Elementen durch induktiv gekoppelte Plasma-Atom-Emissionsspektrometrie (ICP-OES) (ISO 11885:2007); Deutsche Fassung EN ISO 11885:2009. Beuth Verlag GmbH.

Gammaskpektrometrie

IAF – Radioökologie GmbH: Anlage zur Akkreditierungsurkunde D-PL-11201-01-00 nach DIN EN ISO/IEC 17025:2018, Pkt. 3: Gammaskpektrometrische Bestimmung von natürlichen und künstlichen Radionukliden in Feststoffen und Flüssigkeiten, SOP 3 – 09:2018-09: Gammaskpektrometrische Messung und Auswertung von Feststoffproben. Radeberg 2019.

TIC anorganischer Kohlenstoff im Feststoff, IR-Detektion nach DIN ISO 10694 ISO 10694:1995-03, Bodenbeschaffenheit - Bestimmung von organischem Kohlenstoff und Gesamtkohlenstoff nach trockener Verbrennung (Elementaranalyse). Beuth Verlag GmbH.

TOC organischer Kohlenstoff im Feststoff, IR-Detektion nach DIN ISO 10694 ISO 10694:1995-03, Bodenbeschaffenheit - Bestimmung von organischem Kohlenstoff und Gesamtkohlenstoff nach trockener Verbrennung (Elementaranalyse). Beuth Verlag GmbH.

Schwefel im Feststoff, IR-Detektion nach DIN EN 15875:2012-11, Charakterisierung von Abfällen - Statische Prüfung zur Bestimmung des Säurebildungspotenzials und des Neutralisationspotenzials von sulfidhaltigen Abfällen; Deutsche Fassung EN 15875:2011 + AC:2012. Beuth Verlag GmbH.

Sulfidschwefel im Feststoff, IR-Detektion nach DIN EN 15875:2012-11, Charakterisierung von Abfällen - Statische Prüfung zur Bestimmung des Säurebildungspotenzials und des Neutralisationspotenzials von sulfidhaltigen Abfällen; Deutsche Fassung EN 15875:2011 + AC:2012. Beuth Verlag GmbH.

Chlorid Volumetrie nach DIN EN ISO 10304-1:2009-07, Wasserbeschaffenheit - Bestimmung von gelösten Anionen mittels Flüssigkeits-Ionenchromatographie - Teil 1: Bestimmung von Bromid, Chlorid, Fluorid, Nitrat, Nitrit, Phosphat und Sulfat (ISO 10304-1:2007); Deutsche Fassung EN ISO 10304-1:2009. Beuth Verlag GmbH.

Glühverlust

Gravimetrie nach DIN 38414-3:1985-11, Deutsche Einheitsverfahren zur Wasser-, Abwasser- und Schlammuntersuchung - Schlamm und Sedimente (Gruppe S) - Bestimmung des Glührückstandes und des Glühverlustes der Trockenmasse eines Schlammes (S 3). Aktualisiert auf DIN EN 15935:2021-10, Boden, Abfall, behandelter Bioabfall und Schlamm - Bestimmung des Glühverlusts; Deutsche Fassung EN 15935:2021. Beuth Verlag GmbH.

Anlagen

Anlage 1: Informationen zu den Uranerzproben aus Sachsen

Standort	Lagerstätte	Archiv-Nr.	Fundort
Schlema-Alberoda	Gang Rätsel	2058	Schacht 6, Sohle -270m, Überhauen 530
	Gang Ruhmvoll (Slavnaja)	2521	Querschlag 1104, Strecke 9, Überhauen 19
	Gang Beryll	2993	Querschlag 2103 bei 305,4 m
	Ostflanke	2832	Feld-Strecke 1854a, Strecke 2 bei 6 m
	Gang Erna	3255	Querschlag 2007, Block 0336, Strecke 22, Gang im Liegenden
	Gang Bad Elster	2884	Block 6213, Überhauen 5, Höhe 15 m
Johanngeorgenstadt	Schacht 1 "Frisch Glück"	J 80	"Silber-Hoffnung-Flacher" 66 Lachterstrecke
Vogtland	Zobes	1557 F	187-m-Sohle, Überhauen 54/2 bei 26 m, Gang Mostschnaja
Königstein	Königstein	ohne	Bohrkern Wechsellagerung
		ohne	Bohrkern Quadersandstein
Freital-Gittersee	Freital	ohne	Freitaler Erzkohle (Philips Universität Marburg)
Pöhla	Gang Schildbach	2293	Tellerhäuser, Sohle +120
Schneckenstein	Schneckenstein	2221	Sohle +295 m, Gang Juschnaja

Anlage 2: Informationen zu den Uranerzproben aus Thüringen

Standort	Lagerstätte	Archiv-Nr.	Fundort
Ronneburg	Schmirchau	3759	Bergbaubetrieb (BB) Schmirchau, 150-m-Sohle, Block 599
		3768	BB Schmirchau, 180-m-Sohle, Block 664 III, 4. Scheibe
	Paitzdorf	3619	BB Paitzdorf, 345/390-m-Sohle, Block 1146/1246-3
		3626	BB Paitzdorf, Stadtpfeiler Ronneburg, 345-m-Sohle, Block 1175-1
	Reust	3565	BB Reust, Block 1233-2, 5 m unter 345 m bei 3,7 m
		3761	BB Reust-Lichtenberg, 300-m-Sohle, Strecke 1007, Block 1022
		4055	BB Reust-Lichtenberg, 300-m-Sohle, Querschlag 10-69, NW-Stoß
	Lichtenberg	3849	Tagebau Lichtenberg, Bohrloch 192 bei 10,0 m
	Beerwalde	3526	BB Beerwalde, 315-m-Sohle, Strecke 925-50
	Drosen	3771	BB Drosen, 660-m-Sohle, Block 744/5-1, 10. Scheibe
Seelingstädt	Culmitzsch	3681	Basalkonglomerat "Baumstammvererzung"
		WP 56	Bohrung IAA Culmitzsch, Becken B, Weststoß 60,9 m bis 61,0 m
	Sorge-Settendorf	ohne	Sandstein "Obere Rote Folge" (Spatenprobe September 2021)
		ohne	Tonstein "Obere Graue Folge" (Spatenprobe September 2021)