

# **Rückbau kerntechnischer Anlagen aus der (messtechnischen) Sicht der Abfallklassifikation**

Dr. Marina Sokcic-Kostic, Dr. Christoph Klein,  
Dr. Frank Scheuermann

NUKEM Technologies Engineering Services  
Alzenau

---

Konzept der Freimessung und Limitierungen

Messmethodik

Technische Aspekte

- Erde / Bauschutt
- Durchsatz
- Detektoren
- Detektor Ansprechwahrscheinlichkeit
- Hot Spots
- Alpha Zerfall
- Beta Zerfall

Methodik der Messung

- Abfallsortierung
- Metallteile (Kleinteile, Großkomponenten)

Methodik der Datenanalyse

Qualitätskontrolle

Trends



# Konzept der Freimessung / Limitierungen

Unter Freimessung soll im folgenden die Messung von Aktivitätskonzentrationen (z.B. Bq/kg) als wesentlichen Parameter für die Entlassung aus dem Atomgesetz verstanden werden, wobei folgende Modifikationen vorgesehen sind:

- Unbeschränkte Freigabe
- Eingeschränkte Freigabe
- Freigabe in Sonderfällen

Grundlage ist das Strahlenschutzgesetz (Deutschland) und Auflagen von lokalen Behörden  
Es ist zu unterscheiden zwischen:

- Freigabemessungen großer Abfallmengen (z.B. Erde, Bauschutt etc.)
- Freimessung einzelner Objekte oder Räume (werden in diesem Vortrag nicht betrachtet)

Die Basis für die Auswahl von Methoden und Geräten liefert die historische Recherche.

Der charakteristische Parameter für die Einschätzung einer Messung ist die (isotopenspezifische) Nachweisgrenze (NW).

Die Nachweisgrenze hängt vom Messgerät und von den Randbedingungen der Messung ab, wie z.B.

- Messzeit
- Losgröße
- Homogenität des Materials
- Korngröße des Materials
- Füllhöhe, Dichte und chemische Zusammensetzung des Materials



An abstract graphic on the left side of the slide, consisting of numerous thin, white, curved lines that sweep upwards and to the right, creating a sense of motion and depth against the solid orange background.

# Messmethodik

## Messmethodik:

### Berührungsfreie Messung (bevorzugt Gamma-Messung)

- PRO: schnell (hoher Durchsatz, schnell verfügbare Ergebnisse)
- PRO: 100% Beprobung
- PRO: Hot Spot Detektion
- CONTRA: Messbar ist nur die Gammastrahlung bestimmter Isotope

Messmethodik (Fortsetzung):

Probenahme und Analyse in einem radiochemischen Labor

- PRO: Sehr präzise und hochempfindliche Analyse (Alpha- und Beta-Emitter)
- CONTRA: eine repräsentative Probenahme ist schwierig
- CONTRA: Gefahr der Verwechslung von Proben
- CONTRA: Komplexe Analyseprozeduren, sehr zeitaufwendig



An abstract graphic on the left side of the slide, consisting of numerous thin, white, curved lines that sweep upwards and to the right, creating a sense of motion and depth against the solid orange background.

# Technische Aspekte

- Material wird gebrochen auf eine Korngröße kleiner 50 mm
- Material wird losweise portioniert mit einer Losmasse von 1 Tonne
- Material wird auf ein Förderband gefüllt mit einer Füllhöhe von 10 cm



Abbildung 1:

Vorbereitung des Materials  
durch Zerkleinerung, Wägung  
und Füllung auf das Förderband

- Material wird gebrochen auf eine Korngröße kleiner 50 mm
- Material wird losweise portioniert mit einer Losmasse von 1 Tonne
- Material wird auf ein Förderband gefüllt mit einer Füllhöhe von 10 cm



Abbildung 2:

Transportband gefüllt mit  
Erdreich (links) und mit  
Bauschutt (rechts)\*

\*(Mit freundlicher Genehmigung  
von FBFC Dessel)



- Material wird gebrochen auf eine Korngröße kleiner 50 mm
- Material wird losweise portioniert mit einer Losmasse von 1 Tonne
- Material wird auf ein Förderband gefüllt mit einer Füllhöhe von 10 cm



Los

Abbildung 3:

Zwischen den Losen können  
Abstände eingeplant werden

(im vorliegenden Bild nicht  
gezeigt)

# Technische Aspekte: Durchsatz



Los

Materialdichte:  $\rho = 2,4 \text{ g/cm}^3$

Füllhöhe:  $h_b = 100\text{mm}$

Bandgeschwindigkeit:  $v_b = 1\text{m}/30\text{s}$

Bandbreite:  $w_b = 500\text{mm}$

Los Masse:  $m_L = 1000\text{kg}$

Los Volumen:  $V_L = m_L / \rho$   $V_L = 1\text{E}+6/2,4\text{cm}^3$

Los Länge:  $l_L = V_L / h_b / w_b$

Durchsatz:  $D = m_L / l_L * v_b$   
 $D = 4000\text{g/s} = 14\text{t/h}$

# Technische Aspekte: Durchsatz

Durchsatz:

$$D = (m_L / V_L) * (h_b * w_b * v_b)$$

$m_L$  : je größer die (Los)Mittelungsmasse, umso kleiner die Nachweisgrenze

$h_b$ : umso höher die Bandbefüllung, umso höher der Durchsatz, aber umso größer die Absorption in der Matrix

$w_b$ : je länger die Bandbreite, umso höher der Durchsatz, der durch den Sichtwinkel des Detektors begrenzt wird

$v_b$ : je höher die Bandgeschwindigkeit, umso höher der Durchsatz, aber umso größer die Nachweisgrenze



Los



# Technische Aspekte: Detektoren

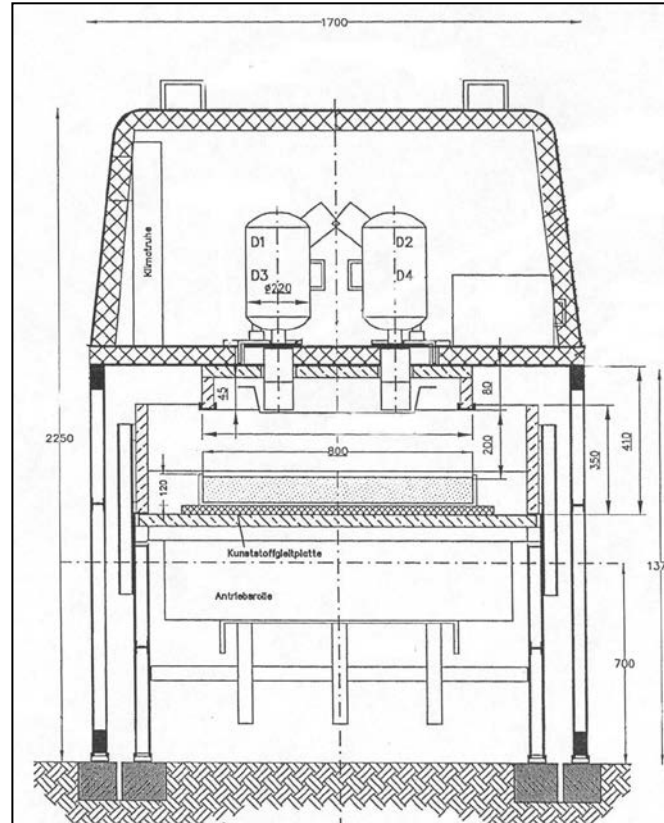


Abbildung 4:

Die Detektoren (hier: HPGe Kristalle gekühlt mit flüssigem Stickstoff (links) oder elektrisch gekühlt (rechts)\*) sind oberhalb des Transportbandes montiert und erfassen das Band in seiner ganzen Breite mit der gleichen Empfindlichkeit. (\*Mit freundlicher Genehmigung von FBFC Dessel)

Der HPGe Detektor muss heruntergekühlt werden.

- Der Thermobehälter (Dewar) mit flüssigem Stickstoff muss daher bis zu 2 mal pro Woche nachgefüllt werden.
- Alternative 1: Dewar mit integriertem Möbius Recycler. Der verdampfte Stickstoff wird wieder verflüssigt. Ein Betrieb bis zu 8000 Stunden ohne Nachfüllung des Dewars ist möglich.
- Wenn der Recycler wegen Stromausfalls abschaltet, ist die Kühlung des Kristalls mit flüssigem Stickstoff bis zu 3 Tagen sichergestellt.
- Nach Wiederherstellung der Spannungsversorgung oder beim Einsatz einer USV kann der Betrieb weitergehen.

Der HPGe Detektor muss heruntergekühlt werden.

- Der Thermobehälter (Dewar) mit flüssigem Stickstoff muss daher bis zu 2 mal pro Woche nachgefüllt werden.
- Alternative 2: Elektrische Kühlung mit einem extern elektrisch betriebenen Kompressor. Der Kristall muss in dieser Konfiguration in einer Hoch-Vakuum-Kammer montiert sein um Verunreinigungen durch Staub beim Erwärmen und Abkühlen zu vermeiden, falls der Strom ausfallen sollte.
- Kein flüssiger Stickstoff wird benötigt.
- Die Betriebsbereitschaft für einen unerwarteten Einsatz ist bereits nach kurzer Zeit nach dem Einschalten des Kompressors hergestellt.

# Technische Aspekte: Detektor Ansprechwahrscheinlichkeit

---

- Die Detektor Ansprechwahrscheinlichkeit hängt von Absorptionseffekten der Gammastrahlung im Material unter dem Detektor wie auch von geometrischen Effekten des Blickwinkels des Detektors ab.
- Diese Effekte können korrigiert werden, indem man die Absorption und andere Effekte mit einem Monte Carlo Programm (MCNP) berechnet. Diese Methode ist sehr zuverlässig, insbesondere, wenn ansonsten die Randbedingungen der Messung konstant sind. Dies bedeutet z.B., dass die Materialanordnung unter dem Detektor wie auch Schütthöhe und Materialdichte konstant sind.
- Für eine ideale Anordnung ist die Absorptionskorrektur nur von der Materialdichte abhängig und kann während der Befüllprozedur des Transportbandes für jedes Los berechnet werden.
- Je homogener die Bandbefüllung ist, umso genauer sind die Messresultate nach den Korrekturen.

- Die Homogenität des Materials muss sowohl hinsichtlich der Materialzusammensetzung und Dichte wie auch hinsichtlich der Quellverteilung betrachtet werden.
- Daher ist die Hot Spot Suche ein empfindliches Indiz für eine unperfekte Homogenität.
- Die Hot Spot Suche wird durch eine Auslese der gemessenen Spektren im Sekundentakt und deren Analyse realisiert. Die schnelle Auslese der Spektren beeinträchtigt hierbei nicht die Messung eines Spektrums für das gesamte Los. Letzteres wird dann für die Bestimmung der spezifischen Aktivität herangezogen.
- Wenn Anzeichen für Hot Spots gefunden werden, so wird das aktuelle Los ausgesondert. Die Hot Spots können dann in einer Handmessung mit Dosisleistungsmessgeräten lokalisiert und entfernt werden. Der Rest wird dem in die Anlage zugeführten Material zugegeben und durchläuft nochmals den Freimessprozess.

- Die HPGe Detektoren messen Gamma-Linien, die infolge eines Betazerfalls emittiert werden.
- In einigen Fällen werden jedoch keine messbaren Gammalinien emittiert, wie z.B. bei dem Isotop Sr-90.
- In diesen Fällen muss die Leitnuklidmethode (Englisch: Key Nuclide Method) angewandt werden: eine messbare Gammalinie muss gefunden werden, die repräsentativ für den verdeckten Betazerfall steht. Das Leitnuklide wird auf der Basis der in der historischen Recherche ermittelten Zusammenhänge ermittelt. Ist dies nicht möglich, so müssen Proben genommen und in einem radiochemischen Labor diesbezüglich untersucht werden.



- Ein ähnliches Vorgehen ist auch im Fall von Alphaemittern angebracht.
- Normalerweise ist die Konzentration von Alpha-emittierenden Isotopen eines Elementes durch den anfänglichen Prozess festgelegt (z.B. Uran Isotope). Dann wird das Isotop mit den am besten messbaren Gammalinien als Leitnuklid ausgewählt.
- Für Abfälle aus der Spaltung von Uran wird oft das Isotop Cs-137 als Leitnuklid gewählt.

An abstract graphic on the left side of the slide, consisting of numerous thin, white, curved lines that sweep upwards and to the right, creating a sense of motion and depth against the solid orange background.

# Methodik der Messung

- Die Los-weise Messung des Abfalls auf dem Transportband erlaubt die Lose einzeln auszuwerten. Lose mit erhöhter Aktivität können so aussortiert werden.
- Prozedur erlaubt die Separation des Abfalls z.B. in die Klassen: „unbeschränkte Freigabe“, „beschränkte Freigabe“ und „Deponiematerial“. Die Klassifikation geschieht nach der gemessenen massenspezifischen Aktivität.
- Für die Sortierung / Klassifizierung werden Aktivitätslimits definiert, die höher als die gemessenen Aktivitäten liegen müssen.

Metallteile (z.B. Rohre oder Druckbehälter) können aufgrund folgender Effekte radioaktiv sein:

- Aktivierung (insbesondere Stahl)
- Oberflächenkontaminierung (innen wie außen)
- Volumenkontaminierung durch Diffusionsprozesse radioaktiver Isotope (z.B. Tritium)

Messmethode:

- Messung der Gammastrahlung mit HPGe oder NaI Spektrometer (z.B. Co-60 Linien)
- Wischtest inkl. Analyse der Wischpads in einem Kontamat (Alpha und Beta Strahlung)
- Gamma-Messung (z.B. „Gross-Gamma-Messung“)
- Gamma/Beta-Messung mit Sonden, die z.B. in Rohrleitungen eingeführt werden können

# Methodik der Messung von Metallteilen (Kleinteile)

Metallteile (z.B. Rohre oder Druckbehälter) können aufgrund folgender Effekte radioaktiv sein:

- Aktivierung (insbesondere Stahl)
- Oberflächenkontaminierung (innen wie außen)
- Volumenkontaminierung durch Diffusionsprozesse radioaktiver Isotope (z.B. Tritium)

Messmethode – Vorbereitung - Schreddern des Metalls bis hin zu Granulat (wenn möglich):

- Messung der Gammastrahlung mit HPGe oder NaI Spektrometer (z.B. Co-60 Linien) mit einem Fassmonitor
- Wischtest im Gegensatz zu Großkomponenten nicht anwendbar
- Messung der Dosisleistung mit Geiger-Müller Zählrohren (Fassmonitor) oder Gross-Gamma-Messung (Gitterboxen)



Abbildung 5: FM10 der Firma SEA bestückt mit Geiger-Müller Zählrohren

- Metallteile (z.B. Rohre oder Druckbehälter) können aufgrund hoher Absorption die Nachweisempfindlichkeit des Detektorsystems stark einschränken.
- Metallischer Abfall in Gitterboxen mit einer geringeren Absorption in den Box-Wänden als Metallcontainer, können mit großflächigen Szintillationszählern gemessen werden, die in einem Abschirmgehäuse (gegen die Untergrundstrahlung) montiert sind.
- Die Oberflächen des Abfalls werden einer Wischprobe unterzogen.

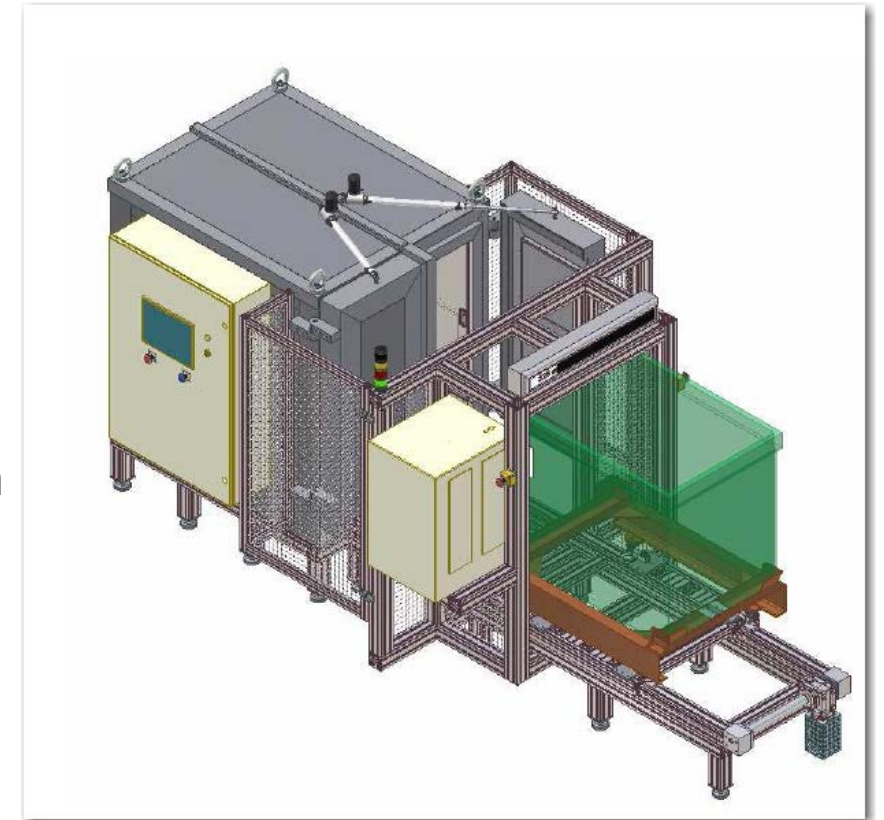


Abbildung 6: Monitor FM-2 mit 32 Plastik-Szintillationszählern (mit freundlicher Genehmigung von VF, Tschechien)



Freimessung von Fässern und Containern:

- 3 HPGe Detektoren
- Statische Scheibenmessung
- Nachweisgrenze für homogene Matrix und homogene Quellverteilung bei einer Dichte von  $1700\text{kg/m}^3$  und 0,5 Stunden Messzeit:

$<0,74\text{Bq/kg}$  (Cs-137)

$<0,37\text{Bq/kg}$  (Co-60)



Abbildung 7: Monitor FMA QED (mit freundlicher Genehmigung von ORTEC)<sub>27</sub>

Freimessung von Gitterboxen:

- Gross-Gamma-Messung
- Großflächige Szintillationszähler
- Volumen bis zu 208 Liter



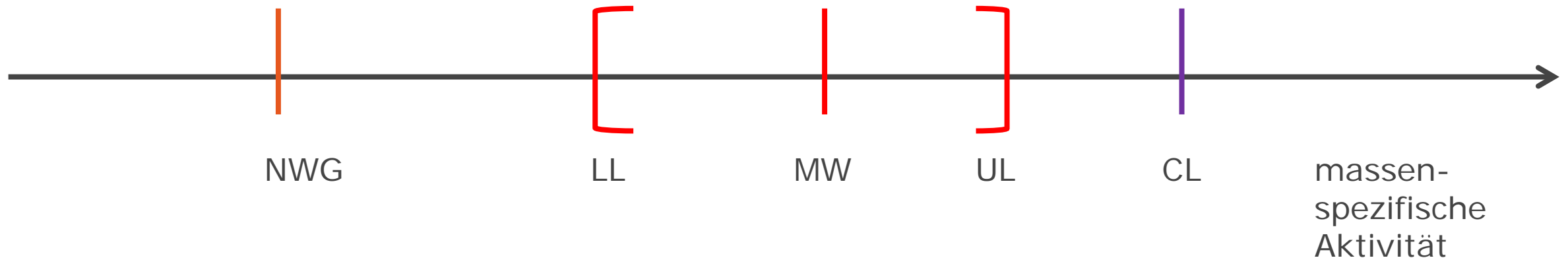
Abbildung 8: Monitor RTM 64X (mit freundlicher Genehmigung von RADOS / Studsvik SINA, Tschechien)

An abstract graphic on the left side of the slide, consisting of numerous thin, white, curved lines that sweep upwards and to the right, creating a sense of motion and depth against the solid orange background.

# Methodik der Datenanalyse

- Für die Evaluierung von statistischen Größen ist gemäß ISO-11929 die Bayes Theorie anzuwenden.
- Im Gegensatz zur früher angewandten frequentistischen Statistiktheorie behandelt die Bayes Theorie stochastische Fehler, systematische Fehler und Normierungsfehler in einer konsistenten und einheitlichen Methode.
- Die Bayesian Theorie basiert auf einer Modellannahme, welche alle bekannten Parameter mit Einfluss auf das Messergebnis einschließt. Entsprechend dem aktuellen Kenntnisstand werden die Parameter mit den Wahrscheinlichkeitsdichtefunktionen verknüpft, wie sie vom Experimentator erwartet werden. Daher stellen die Fehler ein Maß für das Vertrauen in die Messung dar.
- In dieser Interpretation unterscheidet sich die Bayesian Theorie wesentlich von der frequentistischen Statistik.

Für die Abfallklassifikation ist nicht der gemessene (wahrscheinlichste) Aktivitätswert ausschlaggebend, sondern das obere Ende des Vertrauensintervalls, welches den Messwert einschließt.



NWG: Nachweisgrenze  
LL: Unterer Grenzwert des Vertrauensintervalls  
UL: Oberer Grenzwert des Vertrauensintervalls  
MW: Messwert  
CL: Grenzwert der Klassifikation



- Für die Freigabemessung werden der Aktivitätsgrenzwert und die zugehörige gemittelte Masse durch Gesetz oder durch die Autoritäten vorgegeben.
- Wenn die Losgröße kleiner als die vorgegebene gemittelte Masse gewählt wird, und wenn Lose mit höherer Aktivität als die mittlere Aktivität aller Lose zusammengeschüttet werden, so ergibt sich für die vorgegebene mittlere Masse eine niedrigere Aktivität als wenn man die Losgröße entsprechend der vorgegebenen Mittelmaße wählt. Der Effekt ist umso größer, je weiter die Aktivitätswerte der einzelnen Lose streuen.
- Eine Verlängerung der Messzeit würde zwar auch zu einer Reduzierung der Nachweisgrenze führen, doch dies geschieht zu Lasten des Durchsatzes.

An abstract graphic on the left side of the slide, consisting of numerous thin, white, curved lines that sweep upwards and to the right, creating a sense of motion and depth against the solid orange background.

# Qualitätskontrolle

- Die nicht eingeschränkte Freigabemessung bedarf einer vertrauenswürdigen Qualitätskontrolle.
- Die Qualitätskontrolle startet mit der Sammlung aller verfügbaren Informationen, beginnend bei der historischen Recherche. Weiterhin umfasst sie alle Parameter hinsichtlich der Vorbereitung des Materials, der Messung selbst und des anschließenden Sortierungsprozesses.
- Zur Qualitätskontrolle kann die gemessene Aktivität von K-40 oder die einer schwachen Co-57 Quelle herangezogen werden, welche in Detektornähe platziert wurde.
- Zusätzlich sollten auch Proben gezogen und in einem radiochemischen Labor geprüft werden. Dies hat den Vorteil, dass die Kontrolle weitgehendst unabhängig von der eigentlichen Freimessung ist.

An abstract graphic on the left side of the slide, consisting of numerous thin, white, curved lines that sweep upwards and to the right, creating a sense of motion and depth against the solid orange background.

# Entwicklungen und Trends

## Entwicklung von Detektoren:

- mit kurzen Inbetriebnahmezeiten bei unerwartetem Einsatz
- welche unempfindlich gegenüber Umwelteinflüssen wie Vibrationen oder hoher Luftfeuchtigkeit sind
- die kein Kühlmedium brauchen, aber die gleiche Empfindlichkeit und Energieauflösung wie Standard-HPGe Detektoren aufweisen

## Entwicklung von Systemen (d.h. Transportbandsysteme mit Wägung, Portionierung, Detektorsystem und Sortierbänder oder Fassmonitore):

- mit modularem Design
- die leicht von Einsatzort zu Einsatzort transportiert werden können
- die kurze Auf- und Abbauzeiten aufweisen