

**Aktivitätsmeßverfahren für die Freigabe von radioaktiven
Reststoffen und kerntechnischen Anlagenteilen**
Metallschrott mit Beta-/Gamma-Aktivität**DIN**
25 457
Teil 4

Activity measurement methods for the release of radioactive residual materials and decommissioning components of nuclear facilities; with Beta-/Gamma activity contaminated scrap metal

Für die Wiederverwertung und -verwertung von Eisen und Stahl aus Kernkraftwerken liegt die Empfehlung der Strahlenschutzkommission vom 1. Oktober 1987 [1] vor.

Inhalt

	Seite		Seite
1 Anwendungsbereich	1	5.4 Gesamt-Gamma-Aktivitätsmessung	5
2 Zweck	1	6 Dokumentation	5
3 Begriffe	1	6.1 Allgemeines	5
4 Voruntersuchung	2	6.2 Voruntersuchung	6
4.1 Allgemeines	2	6.3 Beta-Oberflächenaktivitätsmessung	6
4.2 Aktivitätsverteilung	2	6.4 Massenbezogene Aktivitätsmessung nach dem Einschmelzen	6
4.3 Radionuklidgemisch	2	6.5 Gesamt-Gamma-Aktivitätsmessung	6
4.4 Schlüsselnuclide	2	Anhang A Beispiele für Datenmasken	8
4.5 Beispiele für Radionuklidgemische	3	Anhang B Mittelungsmasse bei den drei Entscheidungsverfahren	11
5 Entscheidungsmeßverfahren	3	Zitierte Normen und andere Unterlagen	11
5.1 Allgemeines	3		
5.2 Beta-Oberflächenaktivitätsmessung	4		
5.3 Massenbezogene Aktivitätsmessung nach dem Einschmelzen	4		

1 Anwendungsbereich

Die Norm ist anzuwenden bei der Freigabe von mit Beta-/Gamma-Aktivität kontaminiertem oder aktiviertem Metallschrott (metallischen Stoffen), der bei Instandhaltung, Umrüstung oder Abbau von kerntechnischen Anlagen oder Anlagenteilen anfällt und für den eine schadlose Wiederverwendung bzw. -verwertung im nichtkerntechnischen Bereich vorgesehen ist. Hierbei wird unterstellt, daß die kontaminierten oder aktivierten Anlagenteile durch Abklingenlassen, durch Dekontaminieren oder durch Kombination dieser Maßnahmen bereits eine geringe Restaktivität aufweisen.

Die Norm darf auch auf die Freigabe von metallischen radioaktiven Abfällen angewendet werden. Diese Norm gilt nicht für die Freigabe von sonstigen, nichtmetallischen Stoffen wie Isoliermaterialien, Bauschutt u.a.

2 Zweck

Durch diese Norm sollen dem Anlagenbetreiber, dem Gutachter sowie der zuständigen Behörde einheitliche Anforderungen an Beta-/Gamma-Aktivitätsmeßverfahren an die Hand gegeben werden, die bei der Freigabe von metallischen Stoffen zu beachten sind.

3 Begriffe**3.1 Bedingungslose Freigabe**

Bedingungslose Freigabe ist die Entlassung radioaktiver metallischer Stoffe aus dem genehmigungs- oder anzeigebedürftigen Umgang nach dem Atomrecht, die Freigabekriterien zur allgemeinen uneingeschränkten Wiederverwendung oder -verwertung erfüllen.

Fortsetzung Seite 2 bis 11

Normenausschuß Kerntechnik (NKe) im DIN Deutsches Institut für Normung e.V.

3.2 Freigabe zum allgemeinen Einschmelzen

Freigabe zum allgemeinen Einschmelzen ist die Entlassung radioaktiver metallischer Stoffe aus dem genehmigungs- oder anzeigebedürftigen Umgang nach dem Atomrecht, die Freigabekriterien zum allgemeinen Einschmelzen erfüllen. Das Schmelzgut darf frei verwendet werden.

3.3 Freigabe aus kontrollierter Wiederverwertung

Freigabe aus kontrollierter Wiederverwertung ist die Entlassung im Rahmen einer atomrechtlichen Umgangs-genehmigung eingeschmolzener radioaktiver metallischer Stoffe aus dem genehmigungs- oder anzeigebedürftigen Umgang nach dem Atomrecht, wenn das Schmelzprodukt Freigabekriterien erfüllt.

3.4 Voruntersuchung

Die Voruntersuchung ist eine Untersuchung zur Feststellung des Radionuklidgemisches, der relativen Anteile der Radionuklide sowie ihrer geometrischen Verteilung in einer Materialcharge.

3.5 Schlüsselnuklide

Schlüsselnuklide sind meßtechnisch einfach erfaßbare Radionuklide, über deren Messung das Aktivitätsinventar schwierig zu messender Radionuklide rechnerisch bestimmt werden kann.

3.6 Hochrechnungsfaktor

Der Hochrechnungsfaktor ist ein dimensionsloser Faktor, mit dem aus der Aktivität der Schlüsselnuklide die Gesamtaktivität ermittelt wird.

3.7 Entscheidungsmessung

Die Entscheidungsmessung ist eine Aktivitätsmessung, deren Ergebnisse durch Vergleich mit den vorgegebenen Richt- oder Grenzwerten eine Entscheidung über die Freigabe des Meßgutes ermöglichen. (Begriff nach DIN 25 457 Teil 1 08.93)

4 Voruntersuchung

4.1 Allgemeines

Aus dem freizugebenden Material sind möglichst homogene Materialchargen hinsichtlich der geometrischen Aktivitätsverteilung und des Radionuklidgemisches zu bilden.

In einer Voruntersuchung sind an repräsentativen Materialstichproben das Radionuklidgemisch, die relativen Anteile der einzelnen Radionuklide sowie ihre geometrische Verteilung zu ermitteln. Aus dem Radionuklidgemisch sind die Schlüsselnuklide festzulegen, aus denen über Hochrechnungsfaktoren die Gesamtaktivität bestimmt wird.

Mit den Ergebnissen aus sonstigen Untersuchungen während des Betriebes der Anlage bildet die Voruntersuchung die Grundlage für die Auswahl des geeigneten Meßverfahrens für die Entscheidungsmessung.

4.2 Aktivitätsverteilung

Die Untersuchungen zur Aktivitätsverteilung erfolgen zweckmäßigerweise zusammen mit den Untersuchungen zum Radionuklidgemisch.

Im allgemeinen besteht eine Kontamination mit radioaktiven Stoffen an der Oberfläche, die lose gebunden (z. B. Schmutzschicht) oder fest haftend (z. B. Magnetitschicht in Primärsystemen) sein kann. Die Aktivität kann auch über das gesamte Volumen des Materials verteilt sein (Aktivierung im Neutronenfeld) oder an einzelnen Stellen in das Material eingedrungen sein (z. B. Schweißnähte). Wie die Aktivität über das Material verteilt ist, hängt vor allem vom betrieblichen Einsatz der Teile ab. In stichprobenartigen Untersuchungen ist die geometrische Verteilung der Aktivität in dem zur Freigabe anstehenden Material zu untersuchen, damit sichergestellt ist, daß die gesamte Aktivität im Meßgut erfaßt wird.

Je inhomogener die Aktivität über das Material verteilt ist, um so mehr Proben müssen untersucht werden, um zuverlässige Aussagen über die geometrische Verteilung der Aktivität zu erhalten. Hier sind sowohl mögliche Unterschiede an einem gesamten System wie auch an einzelnen Komponenten zu berücksichtigen.

Falls als Freigabepfad das kontrollierte Einschmelzen gewählt wird, hat die geometrische Verteilung der Aktivität über das einzuschmelzende Material für die spätere Freigabe keine Bedeutung.

4.3 Radionuklidgemisch

Die Ermittlung des für die Entscheidungsmessung relevanten Radionuklidgemisches umfaßt Alpha-, Beta- und Elektroneneinfang-Strahler. Sie müssen, soweit sie nicht durch Gamma-Spektrometrie hinreichend sicher bestimmt werden können, durch radiochemische Analysen ermittelt werden. Radionuklide mit einem Aktivitätsanteil von weniger als 1 %, jeweils bezogen auf die Aktivität der Schlüsselnuklide in der freizugebenden Materialcharge, bleiben unberücksichtigt.

ANMERKUNG: Falls ein Radionuklid mit einem Grenzwert von 5 Bq/cm² nach Anlage IX Spalte 4 der StrlSchV als Schlüsselnuklid festgelegt ist und die Freigabe durch flächendeckende Beta-Oberflächenmessung erfolgt, bleiben alle Radionuklide mit einem Grenzwert von 0,5 Bq/cm² nach Anlage IX Spalte 4 StrlSchV unberücksichtigt, wenn deren Aktivität ≤ 0,1 % der Aktivität des Schlüsselnuklids beträgt.

4.4 Schlüsselnuklide

Die im Material vorhandene Gesamtaktivität A ergibt sich aus der gemessenen Aktivität A_s der Schlüsselnuklide durch Multiplikation mit dem Hochrechnungsfaktor f_s ($f_s \geq 1$):

$$A = A_s \cdot f_s \quad (1)$$

Der Hochrechnungsfaktor f_s ergibt sich aus den Untersuchungen des Radionuklidgemisches einer repräsentativen Probe aus dem Verhältnis der Gesamtaktivität zur Aktivität der Schlüsselnuklide.

ANMERKUNG: Ergeben sich aus den Untersuchungen von Proben aus einer Materialcharge voneinander abweichende Hochrechnungsfaktoren, so ist zur Prüfung der Einhaltung der Freigabekriterien der größte ermittelte Hochrechnungsfaktor zu verwenden. Der Anteil der Aktivität der Schlüsselnuklide an der Gesamtaktivität des Radionuklidgemisches sollte möglichst groß sein und über die untersuchte Materialcharge nicht zu stark schwanken.

Tabelle 1: Beispiele für Radionuklidgemische in kühlmittelführenden Systemen

Radionuklid	KRB-A				KWO			AVR		
	Halbwertszeit a	1 Monat altes Gemisch %	1 Jahr altes Gemisch %	10 Jahre altes Gemisch %	1 Monat altes Gemisch %	1 Jahr altes Gemisch %	10 Jahre altes Gemisch %	1 Monat altes Gemisch %	1 Jahr altes Gemisch %	10 Jahre altes Gemisch %
Beta/Elektroneneinfang mit Gammastrahlung										
⁵⁴ Mn	0,86	7,7*)	4,3	—	4,1	2,3	—	—	—	—
⁶⁰ Co	5,3	67,3*)	70,7*)	72,2*)	67,5*)	70,1*)	74,5*)	—	—	—
¹³⁴ Cs	2,1	—	—	—	—	—	—	—	—	—
¹³⁷ Cs	30,2	4,6	5,3*)	14,4*)	5,6*)	6,4*)	18,1*)	2,1	2,1	2,1
Beta/Elektroneneinfang ohne Gammastrahlung										
⁵⁵ Fe	2,7	17,8	16,7	5,5	22,2	20,5	7,1	—	—	—
⁶³ Ni	100,0	1,6	1,9	6,0	—	—	—	—	—	—
⁹⁰ Sr/ ⁹⁰ Y	28,5	—	—	1,6	—	—	—	97,1*)	97,3*)	97,9*)
alle Radionuklide (> 1 %):		99,0	98,9	99,7	99,4	99,3	99,7	99,2	99,4	100,0
Schlüsselnuklide (> 5 %):		75,0	76,0	86,6	73,1	76,5	92,6	97,1	97,3	97,9
Abkürzungen: KRB-A: KKW Gundremmingen, Block A (Siedewasser-Reaktor); KWO: KKW Obrigheim (Druckwasser-Reaktor); AVR: Arbeitsgemeinschaft Versuchsreaktor, Düsseldorf/Jülich (Hochtemperatur-Reaktor)										
*) Schlüsselnuklid										

4.5 Beispiele für Radionuklidgemische

Die Tabelle 1 enthält typische Radionuklidgemische in kühlmittelführenden Systemen für Abklingzeiten von 1 Monat, 1 Jahr und 10 Jahren. In der Tabelle 1 sind nur diejenigen Radionuklide aufgeführt, deren Anteile größer als 1 % sind. Die Radionuklidgemische können im Einzelfall in Abhängigkeit von dem Stilllegungs- und Ausbaupunkt und innerhalb der Anlage variieren. Sie sind deshalb im Rahmen der Voruntersuchung zu bestimmen.

Mit zunehmendem Alter des Gemisches tritt eine deutliche Verschiebung zu den langlebigen Radionukliden auf. Als Schlüsselnuklide kommen im Fall der Leichtwasserreaktoren ⁶⁰Co und ¹³⁷Cs sowohl für Gamma- als auch für Beta-Messungen in Betracht. Ihre Aktivität entspricht etwa 70 bis 95 % der Gesamtaktivität. Im Fall des AVR (siehe Tabelle 1) ist als Schlüsselnuklid das ⁹⁰Sr/⁹⁰Y mit etwa 98 % der Gesamtaktivität maßgebend. Die in Tabelle 1 mit *) gekennzeichneten Radionuklide bieten sich als Schlüsselnuklide an.

5 Entscheidungsmeßverfahren

5.1 Allgemeines

Das Entscheidungsmeßverfahren umfaßt unter Berücksichtigung der Ergebnisse der Voruntersuchung

- die Sortierung und Zusammenfassung des Materials in möglichst gleichartigen Chargen (z. B. u. a. nach Radionuklidgemisch und Geometrie) und
- die Durchführung der Entscheidungsmessung.

Die Entscheidungsmessung ist an allen Materialchargen

- flächendeckend nach Abschnitt 5.2 oder
- nach Homogenisierung des Materials an einer repräsentativen Probe nach Abschnitt 5.3 oder
- für das gesamte Volumen nach Abschnitt 5.4

durchzuführen.

Dazu sind die Meßeinrichtungen mit den festgelegten Schlüsselnukliden zu kalibrieren.

Da in der Entscheidungsmessung die Einhaltung von Freigabekriterien für die

— Oberflächenkontamination zum Beispiel nach Anlage IX Spalte 4 StrlSchV und

— massenbezogene Aktivität zum Beispiel nach Empfehlung der Strahlenschutzkommission (SSK) vom 01. 10. 87 [1]

zu prüfen ist, können die drei oben genannten Meßverfahren nach den Abschnitten 5.2, 5.3 und 5.4 nur angewandt werden, wenn folgende Voraussetzungen erfüllt sind:

— Flächendeckende Oberflächenaktivitätsmessung: Die Aktivität muß (bis auf für die Einhaltung der Richtwerte unbedeutende Mengen) an der Oberfläche konzentriert sein. Die Materialdicke muß hinreichend groß sein, damit durch die Einhaltung des Grenzwertes für die Oberflächenkontamination gleichzeitig die Einhaltung des massenbezogenen Richtwertes sichergestellt ist.

— Massenbezogene Aktivitätsmessung bei homogener Aktivitätsverteilung: Bei der Messung der repräsentativen Probe muß sichergestellt sein, daß die Schlüsselnuklide durch das Meßverfahren mit hinreichender Nachweisgrenze erfaßt werden können.

— Gesamt-Gamma-Aktivitätsmessung: Voraussetzung für den Einsatz dieses Verfahrens ist, daß im Material gammastrahlende Schlüsselnuklide enthalten sind. Durch Voruntersuchungen ist nachzuweisen, daß die Aktivität an der Oberfläche des Materials keine starken Inhomogenitäten aufweist, da bei diesem Verfahren die Gesamtaktivität über eine Fläche ermittelt wird, die im allgemeinen groß gegenüber der Mittelungsfläche von 100 cm² ist.

Im Falle der Messung von gleichartigen Teilen aus Systembereichen mit vergleichbarem Radionuklidgemisch und gleichförmiger Beaufschlagung kann von der vollständigen Messung aller Einzelteile im Einzelfall abgewichen werden, wenn durch andere zusätzliche Informationen der Nachweis der Einhaltung der Grenzwerte mit ausreichender Sicherheit erbracht werden kann.

ANMERKUNG: Je nach dem Ergebnis der Entscheidungsmessung kann über die weitere Verwendung des untersuchten Materials wie folgt entschieden werden:

- Richt-/Grenzwerte nicht eingehalten:
 - Dekontamination,
 - abklingen lassen,
 - gegebenenfalls Beseitigung als radioaktiver Abfall
- Richtwert für die massenbezogene Aktivität eingehalten:
 - Grenzwert für die Oberflächenkontamination eingehalten: Bedingungslose Freigabe oder Freigabe zum allgemeinen Einschmelzen je nach Meßwert für die massenbezogene Aktivität
 - Grenzwert für die Oberflächenkontamination nicht geprüft: Kontrollierte Wiederverwertung.

5.2 Beta-Oberflächenaktivitätsmessung

Für die bedingungslose Freigabe und für die Freigabe zum allgemeinen Einschmelzen muß der Nachweis erbracht werden, daß die Oberflächenkontamination die Grenzwerte, z. B. nach Anlage IX Spalte 4 StrlSchV, nicht überschreitet. Mit der Bestimmung der Oberflächenaktivität nach DIN 25 457 Teil 1 kann auch die Einhaltung des massenbezogenen Richtwertes geprüft werden, solange das Material eine bestimmte Mindestdicke aufweist. Diese Dicke d berechnet sich nach Gleichung 2.

$$d = \frac{2A_F}{A_m \rho} \quad (2)$$

Hierin bedeuten:

- A_m Richtwert der massenbezogenen Aktivität in Bq g^{-1}
 ρ Dichte in g/cm^3
 A_F Grenzwert der Oberflächenaktivität in Bq cm^{-2}

Falls das Material nicht aktiviert ist, reicht dieses Verfahren für Stahlteile bei einem Grenzwert von $0,5 \text{ Bq/cm}^2$ und beidseitiger Kontamination aus

- zum Beispiel nach [1] für die bedingungslose Freigabe mit einem Richtwert von $0,1 \text{ Bq/g}$, sofern die Materialdicke 13 mm ,
- zum Beispiel nach [1] für die Freigabe zum allgemeinen Einschmelzen mit einem Richtwert von 1 Bq/g , sofern die Materialdicke $1,3 \text{ mm}$

überschreitet.

Die Anwendung des Meßverfahrens nach DIN 25 457 Teil 1, Abschnitt 4.2, zur Durchführung der Entscheidungsmessung ist möglich, falls keine Korrosion, Risse und poröse Stellen ersichtlich sind und die Oberfläche flächendeckend ausgemessen werden kann.

Wenn Korrosionen, Risse oder poröse Stellen erkannt werden, dann sind diese Materialteile auszusondern. In diesem Fall ist die Einhaltung der Freigabekriterien sowohl über oberflächen- als auch über massenbezogene Aktivitätsmessungen zu prüfen. Als Meßwert für die

Oberflächenkontamination ist der Meßwert der dem Detektor zugänglichen Oberfläche mit den Kalibrierfaktoren für die ungestörte Oberflächenmessung heranzuziehen. Damit nicht erfaßbare Kontaminationen sind über die massenbezogene Aktivitätsmessung zu bestimmen. Alternativ ist das Material einzuschmelzen.

Sichtbare Schmutz- oder Oxidschichten auf der Oberfläche des Meßgutes beeinflussen den Wirkungsgrad ε_s . Nach der Entfernung verbleibt eine Absorptionsschicht, deren Dicke höchstens der Rauhtiefe der Metalloberfläche entspricht. Für ^{60}Co ist zum Beispiel bei sauberen, nicht polierten Oberflächen die gemessene Oberflächenaktivität mit einem Korrekturfaktor von 1,3 zu multiplizieren (siehe DIN 25 457 Teil 1). Bei polierten Oberflächen ist keine Korrektur notwendig.

Ein Beispiel über das Vorgehen bei der Beta-Oberflächenaktivitätsmessung gibt das Fließschema Bild 1.

5.3 Massenbezogene Aktivitätsmessung nach dem Einschmelzen

5.3.1 Allgemeines

Für jede Schmelzcharge ist aus der homogenen Schmelze mindestens eine Probe zu ziehen.

In der Entscheidungsmessung sind alle aufgrund der Ergebnisse der Voruntersuchungen im Material vorhandenen Radionuklide zu berücksichtigen.

5.3.2 Durchführung der Entscheidungsmessung

Die Bestimmung der Aktivität der Probe erfolgt durch eine gammaspektrometrische Messung nach DIN 25 457 Teil 1, 08.93, Abschnitt 4.3.4.

Die massenbezogene Aktivität der gammastrahlenden Radionuklide $A_{m,\gamma}$ ist zu berechnen nach Gleichung 3.

$$A_{m,\gamma} = \frac{A_\gamma}{m} = \frac{\sum_i A_{\gamma,i}}{m} + \frac{\sum_j NWG_{\gamma,j}}{m} \quad (3)$$

Hierin bedeuten:

- $A_{m,\gamma}$ massenbezogene Aktivität der gammastrahlenden Radionuklide der Probe in Bq
 A_γ Gesamtaktivität der gammastrahlenden Radionuklide in der Probe in Bq
 $A_{\gamma,i}$ Aktivität des nachgewiesenen gammastrahlenden Radionuklids i in der Probe in Bq
 $NWG_{\gamma,j}$ erreichte Nachweisgrenze für das in der Probe nicht nachgewiesene gammastrahlende Radionuklid j in Bq
 m Masse der Probe in g

Die Auswertung umfaßt alle in der Voruntersuchung gefundenen gammastrahlenden Radionuklide. Die reinen Beta- bzw. Elektroneneinfang-Strahler ^{63}Ni und ^{55}Fe sind anhand ihres aus der Voruntersuchung bekannten Aktivitätsverhältnisses zum Schlüsselnuklid ^{60}Co bei der Berechnung der massenbezogenen Gesamtaktivität durch Multiplikation mit dem Hochrechnungsfaktor zu berücksichtigen.

$$A_m = A_{m,^{60}\text{Co}} \cdot f_s \quad (4)$$

Hierin bedeuten:

- A_m massenbezogene Gesamtaktivität
 $A_{m,^{60}\text{Co}}$ massenbezogene Aktivität des Radionuklids ^{60}Co
 f_s Hochrechnungsfaktor (siehe Abschnitt 4.4)

Ist die Aktivität der nicht gammastrahlenden Radionuklide nicht über ihr Aktivitätsverhältnis zu einem gammastrahl-