

**Untersuchung der
Anforderungen an
Strahlungsmessgeräte
und Messmethodik
gemäß StrlSchV und
untergesetzlichem
Regelwerk für den
Bereich der Freigabe
sowie Betrachtung
der im Bereich der
Freigabe eingesetzten
Messtechnologien
einschließlich deren
Eignung**

**Untersuchung der
Anforderungen an
Strahlungsmessgeräte
und Messmethodik
gemäß StrlSchV und
untergesetzlichem
Regelwerk für den
Bereich der Freigabe
sowie Betrachtung
der im Bereich der
Freigabe eingesetzten
Messtechnologien
einschließlich deren
Eignung**

Abschlussbericht

Thomas Braunroth
Matthias Dewald
Richard Spanier

Juli 2025

Anmerkung:

Das diesem Bericht zugrunde liegende Eigenforschungsvorhaben wurde mit Mitteln des Bundesministeriums für Umwelt, Klimaschutz, Naturschutz und nukleare Sicherheit (BMUKN) unter dem Förderkennzeichen 3623S22542 durchgeführt.

Die Verantwortung für den Inhalt dieser Veröffentlichung liegt bei der GRS.

Der Bericht gibt die Auffassung und Meinung der GRS wieder und muss nicht mit der Meinung des BMUKN übereinstimmen.

Deskriptoren

Entsorgung, Freigabe, Innovationen, Messgeräte, Messtechnik, Stilllegung, Strahlenschutz

Kurzzusammenfassung

Mit Hilfe der in der Strahlenschutzverordnung (StrlSchV) geregelten Freigabe können unter klar definierten Voraussetzungen radioaktive Stoffe und Gegenstände als nicht radioaktive Stoffe verwendet, verwertet, beseitigt, innegehalten oder an Dritte weitergegeben werden. Die Freigabe ist ein Verwaltungsakt, mit dessen Hilfe diese radioaktiven Stoffe und Gegenstände aus dem Geltungsbereich des Atom- und Strahlenschutzgesetz entlassen werden.

In der Praxis wird zwischen der uneingeschränkten Freigabe und der spezifischen Freigabe unterschieden. Zudem besteht auch die Möglichkeit der Freigabe im Einzelfall, auf die in der Praxis bis dato aber nur selten zurückgegriffen wurde bzw. wird. Für die einzelnen Freigabepfade sind in der StrlSchV massen- bzw. flächenspezifische Aktivitätswerte (Freigabewerte) für eine Vielzahl an Radioisotopen hinterlegt. Der Nachweis der Einhaltung der Freigabewerte ist anhand von Messungen (Entscheidungsmessungen) zu erbringen, für die auf unterschiedliche Messverfahren zurückgegriffen wird.

Der vorliegende Bericht setzt sich mit zwei Kernthemen auseinander:

- Regulatorische Anforderungen an Strahlungsmessgeräte, die für Messungen im Rahmen der Freigabe Anwendung finden
- Betrachtung von Messverfahren für den Radioaktivitätsnachweis und zur Bestimmung von Materialzusammensetzungen

Hierzu wurden zunächst Dokumente des kerntechnischen Regelwerks gesichtet und messtechnische Anforderungen identifiziert. Zwischen den Dokumenten gibt es eine Vielzahl an Querverweisen, die nicht in allen Fällen als solche zu erkennen sind. Von wesentlicher Bedeutung sind hierbei die StrlSchV sowie die Normenreihen DIN 25457 und DIN EN ISO 11929. Die eher als generisch einzustufenden Anforderungen der StrlSchV wurden anschließend mit den detaillierten Anforderungen der DIN 25457 auf Kompatibilität verglichen. Grundsätzlich konnten hierbei keine bedeutsamen Unstimmigkeiten erkannt werden. Durch die Auseinandersetzung wurden vereinzelte Verbesserungsmöglichkeiten identifiziert, hierzu gehören beispielsweise detailliertere Darlegungen der Anforderungen an innovative Messverfahren bzw. Messgeräte.

Bei den betrachteten Aktivitätsmessverfahren hat sich gezeigt, dass für Freimessungen häufig auf die Gammaspektrometrie, das Oberflächenkontaminationsmessverfahren so-

wie das Gesamt-Gamma-Aktivitätsmessverfahren zurückgegriffen wird. Weitere Messverfahren werden bei Bedarf für Entscheidungsmessungen oder für Voruntersuchungen eingesetzt. Zudem gibt es eine dritte Kategorie an Messverfahren, die sowohl für Freimessungen als auch für Voruntersuchungen nur in wohlbegründeten Einzelfällen genutzt werden. Hierzu gehören beispielsweise massenspektrometrische Messverfahren.

Darüber hinaus wurden exemplarisch einige Messgeräte herausgegriffen und deren praktische Nutzbarkeit (z. B. für Entscheidungsmessungen) anhand von Betriebsparametern illustriert. Zudem wurden innovative Messgeräte betrachtet und Faktoren identifiziert, die die Entwicklung innovativer Messverfahren bzw. Messgeräte motivieren.

Abstract

By means of clearance as specified in the Radiation Protection Ordinance (StrlSchV), low-level radioactive substances and objects can be used, recycled, disposed of, held or passed on to third parties as non-radioactive substances under clearly defined conditions. Clearance is an administrative act allowing to release these low-level radioactive substances and objects from the scope of the Atomic Energy Act and the Radiation Protection Act. In practice, a distinction is made between unrestricted clearance and specific clearance. The StrlSchV contains mass- and area-specific activity values (clearance values) for a large number of radioisotopes for unrestricted and specific clearance. Proof of compliance with the clearance values must be provided by means of measurements (decision measurements), for which different measurement approaches are used.

This report addresses two key topics:

- Regulatory requirements for radiation measuring devices used for measurements within the scope of clearance
- Review of measurement approaches for the detection of radioactivity and for the determination of material compositions

To this purpose, documents of the nuclear regulatory framework were reviewed and measurement requirements identified. There is a large number of cross-references between the documents, which are not always recognizable as such. The StrlSchV, DIN 25457 and DIN EN ISO 11929 are of key importance in this regard. The requirements of the StrlSchV, which can be classified as rather generic, were then compared with the detailed requirements provided in DIN 25457 for compatibility. In principle, no significant inconsistencies were identified. In addition, some opportunities for improvement were identified, including, for example, a more detailed description of the requirements for innovative measurement methods and measuring devices.

With regard to the activity measurement approaches considered, it has been shown that the majority of decision measurements are carried out using three measurement methods. These include gamma-ray spectrometry, the surface contamination measurement method and the total gamma activity measurement method. Further measurement approaches are used for decision measurements or preliminary investigations as necessary. There is also a third category of measurement approaches that are only used

for both decision measurements and preliminary investigations in well justified cases. These include, for example, mass spectrometric measurement methods.

In addition, some measuring devices were selected as examples and their practical usability (e.g. for decision measurements) was illustrated based on operating parameters. Innovative measuring devices were also considered, and factors were identified that motivate the development of innovative measuring methods and devices.

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
2	Anforderungen an Strahlungsmessgeräte im Kontext des Freigabeprozesses und an entsprechende Entscheidungsmessungen gemäß des deutschen Regelwerks.....	5
2.1	Atomgesetz (AtG)	6
2.2	Strahlenschutzgesetz (StrlSchG)	9
2.3	Strahlenschutzverordnung (StrlSchV)	11
2.4	Leitfaden zur Stilllegung, zum sicheren Einschluss und zum Abbau von Anlagen oder Anlagenteilen (Stilllegungsleitfaden)	15
2.5	Empfehlung der SSK – Methodik zur Berücksichtigung von Messunsicherheiten	18
2.6	Empfehlung der ESK-Leitlinien zur Stilllegung kerntechnischer Anlagen	19
2.7	Regelprogramm des Kerntechnischen Ausschusses (KTA- Regelprogramm).....	21
2.7.1	KTA-Regel 1201 – Anforderungen an das Betriebshandbuch	22
2.7.2	KTA-Regel 1301.2 – Berücksichtigung des Strahlenschutzes der Arbeitskräfte bei Auslegung und Betrieb von Kernkraftwerken; Teil 2: Betrieb	23
2.7.3	Zusammenfassung	23
2.8	Regelungen in Betriebshandbuch sowie innerbetrieblichen Arbeitsanweisungen	24
2.8.1	Zusammenfassung	24
2.9	Normenreihe zu Aktivitätsmessverfahren für die Freigabe von radioaktiven Stoffen und kerntechnischen Anlagenteilen (DIN 25457)	25
2.9.1	Direkte Messverfahren der Gesamt-Alpha oder Beta- Oberflächenkontamination	28
2.9.2	Indirekte Oberflächen-Gesamtaktivitätsmessung	31
2.9.3	Spektrometrische Verfahren	34
2.9.3.1	Gamma-spektrometrie an Materialproben	34

2.9.3.2	In-situ Gammaskpektrometrie.....	38
2.9.4	Gesamt-Gamma-Aktivitätsmessung.....	41
2.9.5	Zusammenfassung	44
2.10	Normenreihe zur Bestimmung der charakteristischen Grenzen bei Messungen ionisierender Strahlung (DIN EN ISO 11929).....	45
2.11	Dokumente außerhalb der kerntechnischen Regelwerkspyramide.....	46
2.11.1	Informationspapier der Entsorgungskommission zur Freigabe radioaktiver Stoffe und Herausgabe nicht radioaktiver Stoffe aus dem Abbau von Kernkraftwerken.....	47
2.11.2	Freigabeleitfaden des Umweltministeriums Baden-Württemberg	47
2.11.3	Freigabeleitfaden des Fachverband für Strahlenschutz e. V.	49
3	Analyse und Konsistenz-/Kompatibilitätsbetrachtung der Anforderungen im nationalen Regelwerk	51
3.1	Prüfung der StrlSchV und der DIN 25457 hinsichtlich der Anforderungen an Freimesstechnik	54
3.1.1	Erfüllung der Anforderungen des Messzwecks	55
3.1.2	Regelmäßige Prüfung auf Funktionstüchtigkeit und Wartung.....	56
3.1.3	Zweckdienlichkeit weiterer messtechnischer Anforderungen der Normenreihe DIN 25457	57
3.2	Möglichkeiten zur Verbesserung der Klarheit hinsichtlich der regulatorischen Anforderungen an Freimesstechnik	59
4	Einflussfaktoren für die Eignungsbetrachtung und Anforderungen an Messverfahren für die Durchführung von Freimessungen.....	61
4.1	Grundlegende Faktoren und Überlegungen.....	61
4.2	Allgemeine Einschätzungsfaktoren und Anforderungen.....	63
4.3	Anforderungen an den Detektor und die Messeinrichtung.....	64
4.4	Anforderungen an den Messaufbau und die Messgeometrie	65
4.5	Anforderungen an die Kalibrierung und die Qualitätssicherung.....	65
5	Abweichende Herangehensweisen zu flächendeckenden Messungen als Grundlagen für Freigabeentscheidungen.....	67
5.1	Strategie der repräsentativen Messung	67

5.2	Strategie der abdeckenden Messung.....	68
5.3	Messstrategie der Stichprobenverfahren	68
5.4	Zusammenfassung	69
6	Technische Messverfahren für den Radioaktivitätsnachweis und die Bestimmung von Materialzusammensetzungen sowie deren Nutzung im Kontext der Freigabe.....	71
6.1	Gammapektrometrie	72
6.1.1	Anwendung der Gammapektrometrie für Voruntersuchungen und Freimessungen.....	75
6.1.1.1	Messsystem für in-situ gammapektrometrische Messungen mit Komponenten des Unternehmens Mirion Technologies	78
6.1.1.2	Messsystem für die Gammapektrometrie an Materialproben.....	80
6.1.1.3	Fassmessanlage GAMS4 des Unternehmens NuviaTech.....	80
6.2	Gesamt-Gamma-Aktivitätsmessung.....	81
6.2.1	Anwendung der Gesamt-Gamma-Aktivitätsmessung für Freimessungen.....	83
6.2.1.1	Mirion RTM644-Smart Gamma Clearance Monitor	84
6.3	Direkte Oberflächenkontaminationsmessverfahren.....	86
6.3.1	Anwendung direkter Oberflächenkontaminationsmessverfahren für Voruntersuchungen und Freimessungen	88
6.3.1.1	NUVIATech CoMo-170 Kontaminationsmonitor	89
6.3.1.2	Berthold LB 124 SCINT Kontaminationsmonitor	90
6.4	Indirekte Oberflächenkontaminationsmessverfahren	90
6.4.1	Anwendung indirekter Oberflächenkontaminationsmessverfahren für Voruntersuchungen und Entscheidungsmessungen	91
6.4.1.1	NUVIATech Wischtest-Messplatz NuWIMP 60-100	92
6.5	Dosisleistungsmessverfahren	93
6.5.1	Anwendung der Dosisleistungsmessung für Voruntersuchungen und Entscheidungsmessungen.....	94
6.5.1.1	NUVIATech Dosis- und Dosisleistungsmonitor DoIMo I	95
6.6	Flüssigszintillationsmessverfahren.....	96

6.6.1	Anwendung der Flüssigszintillationsmessung für Voruntersuchungen und Freimessungen	98
6.6.1.1	Hidex 300 SL Automatic TDCR Liquid Scintillation Counter	99
6.7	Alpha-Spektrometrie	100
6.7.1	Anwendung der Alpha-Spektrometrie für Voruntersuchungen und Freimessungen	101
6.7.1.1	AMETEK ORTEC Alpha Suite	102
6.7.1.2	Mirion Technologies Alpha Analyst	103
6.8	Massenspektrometrie	104
6.8.1	Anwendungen der Massenspektrometrie in Kontext der Freigabe	107
6.8.1.1	IonPlus AMS-Messeinrichtungen	108
6.9	Röntgenfluoreszenzanalyse.....	109
6.10	Neutronenaktivierungsanalyse.....	111
6.11	Atomemissions- und Atomabsorptionsspektrometrie	113
6.12	Zusammenfassung	115
7	Innovative Messverfahren und Messgeräte für den Radioaktivitätsnachweis zur Anwendung für Voruntersuchungen und Freimessungen.....	117
7.1	Simultane Gesamt-Gamma-Aktivitätsmessung und gammaspektrometrische Messung	119
7.2	Sektorielle Fassmessanlage ASGS (AiNT/Mirion).....	119
7.3	Entwicklung von Messtechnik zur Beprobung kontaminierter Betonbaukörper kerntechnischer Anlagen während des Rückbaus (KOBKA)	120
7.4	Rohrmoich für in-situ gammaspektrometrische Untersuchungen von Rohren und Durchführungen in Einbaulage	122
7.5	Individuell angepasstes Messsystem zur Durchführung der Freigabe des Sicherheitsbehälters im Kernkraftwerk Stade	123
7.6	Zusammenfassung	124
8	Zusammenfassung und Ausblick.....	127

A	Anhang: Definitionen für die charakteristischen Grenzen (Erkennungsgrenze, Nachweisgrenze und Grenzen des Vertrauensbereichs) gemäß DIN EN ISO 11929-1:2021 und eine beispielhafte Veranschaulichung für eine impulszählende Messung	155
----------	---	------------

1 Einleitung

Insgesamt wurden in der Bundesrepublik Deutschland 36 Kernkraftwerke (Leistungs- und Prototypreaktoren) errichtet und betrieben, von denen als Ergebnis des Ausstiegs Deutschlands aus der friedlichen Nutzung der Kernenergie allerdings keines mehr im Betrieb ist. Im Dezember 2024 befanden sich 33 Kernkraftwerke in der Stilllegung, drei weitere Kernkraftwerke¹ wurden aus dem Geltungsbereich des Atomgesetzes (AtG) entlassen /BASE 24/. Die simultane Stilllegung vieler Kernkraftwerke und die mit dem Rückbau verbundene Materialbearbeitung, -weaternutzung und -entsorgung sind mit Herausforderungen verbunden. Die in der Stilllegung eines Kernkraftwerks bewegten Massen sind enorm: Die Masse des Kontrollbereiches eines für Deutschland repräsentativen Kernreaktors liegt im Bereich von 200.000 Mg /ESK 22/, die Gesamtmasse eines Kernkraftwerks (Kontroll- und Überwachungsbereich) beträgt je nach Anlagentyp, Nutzung und Infrastruktur in etwa 400.000 Mg bis 800.000 Mg.

Radioaktive Abfälle sind in Deutschland grundsätzlich in tiefen geologischen Formationen endzulagern (vgl. Nationales Entsorgungsprogramm /BMU 25/). Wie die bisherigen Erfahrungen zeigen, ist der zu betreibende Aufwand für die Lokalisierung eines geeigneten Standortes und für die Errichtung eines Endlagers hoch. Auch aufgrund damit einhergehender beschränkter Lagerflächen bzw. Lagervolumen gilt in der Praxis ein Minimierungsgebot für radioaktive Abfälle. Grundsätzlich werden alle Stoffe und Gegenstände, die aus einem Kontrollbereich stammen, zunächst als radioaktive Stoffe bzw. als potenziell kontaminierte/aktivierte Gegenstände betrachtet (vgl. § 31 StrlSchV). Der überwiegende Teil der Kontrollbereichsmasse eines Kernkraftwerks ist allerdings nicht bzw. nur schwach kontaminiert, so dass dieser keine signifikante Gefahr für das Personal oder die allgemeine Bevölkerung darstellt.

Zur Reduzierung radioaktiver Abfälle nimmt der Verwaltungsakt der Freigabe, auch im internationalen Vergleich, eine besondere Rolle ein. Gemäß § 2 Abs. 5 Entsorgungsübergangsgesetz (EntsorgÜG) /EÜG 21/ ist die perspektivische Endlagerung radioaktiver Abfälle nur dann gestattet, wenn mit vertretbaren Mitteln keine Freigabeoption zur Verfügung steht.

¹ Bereits stillgelegt und aus dem Geltungsbereich des Atomgesetzes entlassen wurden das Kernkraftwerk Niederaichbach (KKN), das Versuchsatomkraftwerk Kahl (VAK) und der Heißdampfreaktor Grosswelzheim (HDR). Das KKN war weltweit das erste Kernkraftwerk mit einer nennenswerten Leistung, das den Endzustand der „Grünen Wiese“ erreicht hat.

Das Konzept der Freigabe² wird im Strahlenschutzgesetz (StrlSchG) /SSG 24/ formuliert und in der Strahlenschutzverordnung (StrlSchV) /SSV 24/ weiter ausgearbeitet. Entsprechende Regelungen finden sich in Teil 2 Kapitel 3 StrlSchV unter Berücksichtigung von Anlage 4 und Anlage 8 StrlSchV. Vereinfacht ausgedrückt handelt es sich bei der Freigabe um einen speziellen Verwaltungsakt, durch den radioaktive Stoffe und Gegenstände, bei denen eine Aktivierung oder Kontaminierung mit Radioisotopen nicht ausgeschlossen werden kann, aus der strahlenschutzrechtlichen bzw. atomrechtlichen Überwachung entlassen werden, sofern isotopenspezifische Freigabewerte nachweislich unterschritten bzw. eingehalten werden.

Gemäß § 31 Abs. 2 StrlSchV wird als Basis für die Freigabe ein Dosiskriterium herangezogen, nach dem durch die freizugebenden Stoffe und Gegenstände für Einzelpersonen der Bevölkerung nur eine effektive Dosis im Bereich von zehn Mikrosievert im Kalenderjahr auftreten kann bzw. darf. Neben der uneingeschränkten Freigabe (§ 35 StrlSchV), bei der aus Sicht des Strahlenschutzrechts die Nachnutzung keinen Einschränkungen unterliegt, bestehen zudem Optionen der spezifischen Freigabe (§ 36 StrlSchV), bei denen die Nachnutzung in Abhängigkeit des Freigabepfades gewissen Einschränkungen unterliegt. Zudem besteht die Möglichkeit einer Freigabe im Einzelfall (§ 37 StrlSchV), die für die Stilllegung zunehmend an Bedeutung gewinnt. Für die uneingeschränkte Freigabe und die spezifische Freigabe wurden ausgehend von Modellbetrachtungen und dem Dosiskriterium für eine Vielzahl an Radioisotopen zugehörige Freigabewerte berechnet, die in Anlage 4, Tabelle 1 StrlSchV hinterlegt sind. Auch für die Freigabe im Einzelfall sind isotopenspezifische Freigabewerte unter Berücksichtigung des Dosiskriteriums zu bestimmen.

Für die Stilllegung von Kernkraftwerken sind neben der uneingeschränkten Freigabe insb. die spezifischen Freigabepfade für Bauschutt und Gebäude relevant. Bezogen auf die Massenströme nehmen die spezifischen Freigabe zur Deponierung oder zur Beseitigung in Verbrennungsanlagen hingegen nur eine untergeordnete Rolle ein (siehe Abb. 1.1).

² Die Freigabe wird nicht nur im Rahmen der Stilllegung von Kernkraftwerken genutzt, sondern findet in nahezu allen Anlagen und Einrichtungen Verwendung, die einer atomrechtlichen- oder strahlungsrechtlichen Genehmigung bedürfen. Beispielsweise wird die Freigabe auch in der Betriebsphase sog. *small facilities* (z. B. Krankenhäuser mit einer Nuklearmedizin) regelmäßig angewendet.

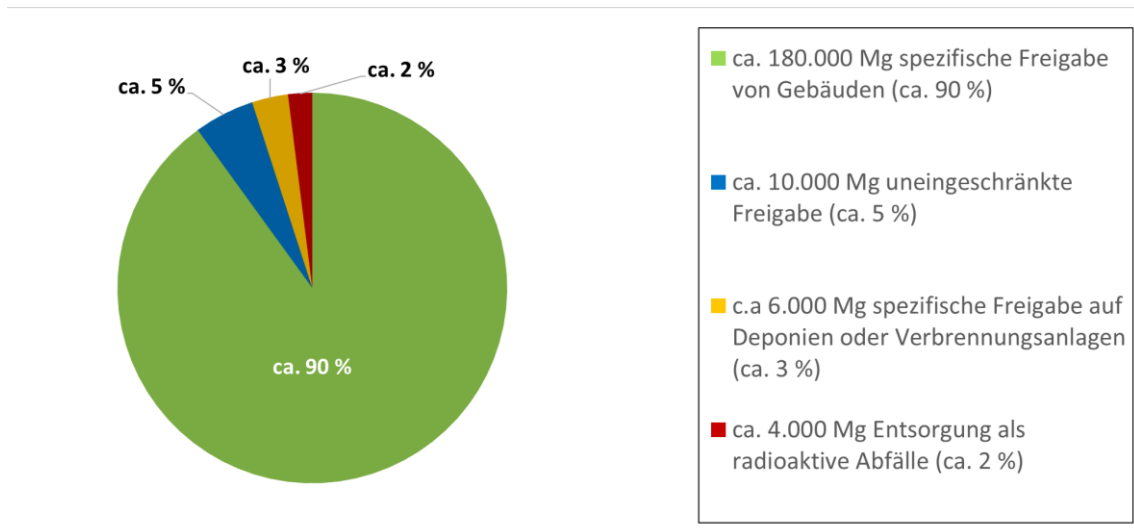


Abb. 1.1 Abschätzung der Entsorgungskommission (ESK) zu Massenflüssen aus dem Kontrollbereich eines repräsentativen Kernkraftwerks (Druckwasserreaktor) in Deutschland /ESK 22/

Der Nachweis für die Einhaltung der Freigabewerte ist in der Regel durch Messungen zu erbringen (§ 42 Abs. 2 StrlSchV und Anlage 8 Teil A StrlSchV), für die z. B. auf das Konzept des Schlüsselnuklids zurückgegriffen werden kann. Die sog. Entscheidungsmessung, die der Entscheidung über eine Freigabe dient, nimmt somit auch gesamtgesellschaftlich eine ausgezeichnete Rolle ein und trägt wesentlich zu einer Akzeptanz des Freigabekonzeptes bei.

Aufgrund dieser Bedeutung ist es selbstevident, dass für Entscheidungsmessungen geeignete Messgeräte einzusetzen sind, wobei für die Eignungsbetrachtung unterschiedliche Aspekte und Parameter heranzuziehen sind. Diese messtechnische Verfahrenseignung und die daraus abzuleitenden Anforderungen stellen das Leitmotiv dieses Berichts dar.

Der erste Teil dieses Berichts beschäftigt sich mit den regulatorischen Anforderungen an Messverfahren und Messgeräten für Freimessungen bzw. Entscheidungsmessungen. Hierzu wurden Dokumente des kerntechnischen Regelwerks zur Identifizierung von Aussagen zu messtechnischen Anforderungen gesichtet. Von übergeordneter Bedeutung sind hierbei die StrlSchV und etablierte Normenreihen wie die DIN 25457 und DIN EN ISO 11929. Zudem nehmen auch weitere Gesetze, Leitfäden, u. ä. Dokumente Bezug zur Messtechnik und sind somit zunächst als relevant für die Eignungsbetrachtung einzustufen. Die identifizierten messtechnischen Anforderungen im Kontext der Freimessungen sind Gegenstand von Kapitel 2 dieses Berichtes. Im anschließenden

Kapitel 3 wird darauf aufbauend eine Konsistenz- bzw. Kompatibilitätsbetrachtung hinsichtlich der identifizierten messtechnischen Anforderungen durchgeführt. In Kapitel 4 werden, ausgehend von den messverfahrensspezifischen Anforderungen der Normenreihe DIN 25457, generische Anforderungen an Messverfahren zusammengestellt. Das Kapitel 5 beschäftigt sich mit Messstrategien, bei denen von der deckenden Bestimmung der oberflächen- bzw. massenspezifischen Aktivität („100 % Messung“) abgewichen wird.

Der zweite Teil des Berichts beschäftigt sich mit Messverfahren für den Aktivitätsnachweis bzw. zur Bestimmung von Materialzusammensetzungen, wie sie im Kontext der Freigabe (z. B. im Rahmen von Voruntersuchungen) genutzt werden bzw. grundsätzlich genutzt werden könnten. Hierzu werden in Kapitel 6 entsprechende Messverfahren zunächst beschrieben und deren jeweilige Nutzung im Kontext der Freigabe zusammengefasst. Zudem werden ausgewählte Messgeräte betrachtet, wobei insb. auf wesentliche Eignungsfaktoren eingegangen wird. Diese Übersicht verdeutlicht, dass für Freimessungen grundsätzlich auf ein breites Spektrum an Messverfahren und Messgeräten zurückgegriffen werden kann. Nichtsdestotrotz gibt es auch, bezogen auf die Messtechnik, ein reges Interesse an innovativen Messgeräten, beispielsweise zur Optimierung des Messprozesses oder zur Erweiterung des Anwendungsspektrums. Solche Forschung und Entwicklung (F&E) wird häufig durch einen punktuellen praktischen Bedarf motiviert. Cursorisch werden in Kapitel 7 ausgewählte innovative Messgeräte bzw. Messeinrichtungen betrachtet und hierfür auch ein Bezug zu den messtechnischen Anforderungen hergestellt.

Der Bericht endet mit einer Zusammenfassung und einem Ausblick in Kapitel 8.

Der vorliegende Bericht ist das Ergebnis eines Eigenforschungsvorhabens, das mit Mitteln des Bundesumweltministeriums (BMUKN) unter der Forschungskennzahl 3623S22542 durchgeführt wurde.

2 Anforderungen an Strahlungsmessgeräte im Kontext des Freigabeprozesses und an entsprechende Entscheidungsmessungen gemäß des deutschen Regelwerks

Das in Deutschland angewendete kerntechnische Regelwerk³ umfasst eine Vielzahl an Gesetzen, Verordnungen, Vorschriften, Regeln und weiterer Dokumente. Mit Ausnahme des Strahlenschutzrechts dient es zuvorderst der Sicherheit für den Betrieb und die Stilllegung kerntechnischer Anlagen (insb. Reaktoren), es kann aber auch in Teilen sinngemäß für Einrichtungen, deren Betrieb bzw. Nutzung einer strahlenschutzrechtlichen Genehmigung bedürfen, adaptiert und zur Orientierung genutzt werden.

Die kerntechnische Regelwerkspyramide (siehe Abb. 2.1) stellt dieses Regelwerk zum einen in einer hierarchischen Struktur dar, zum anderen gibt sie sowohl Auskunft über die erlassenden Behörden bzw. Institutionen als auch über die jeweilige Verbindlichkeit der Vorschrift bzw. Regeln.

Aus Sicht der Freigabe ist im verbindlichen Regelwerk das StrlSchG von zentraler Bedeutung, da es die Ermächtigungsgrundlage für die StrlSchV darstellt, die wiederum in §§ 31 – 42 StrlSchV die Freigabe inkl. der möglichen Freigabeoptionen regelt. Auf Gesetzesebene ist festgelegt, welche Voraussetzungen für die Vergabe von Genehmigungen erfüllt sein müssen, die auch den Freigabeprozess und die eingesetzte Messtechnik tangieren. Bezogen auf die Aktivitätsmessungen entlang des Freigabeprozesses (dies schließt insb. die Entscheidungsmessung ein) ist auf der unteren Ebene der Regelwerkspyramide für die Eignungsbetrachtung insb. die Normenreihe DIN 25457 /DIN 24a/, /DIN 13/, /DIN 18/, /DIN 17a/ und die Normenreihe DIN EN ISO 11929 /DIN 21a/, /DIN 21b/, /DIN 21c/, /DIN 24b/ hervorzuheben. Über den Rahmen der Regelwerkspyramide hinaus existieren weitere Dokumente in Form von Leitfäden o. ä., in denen ebenso ein Bezug zur Messtechnik hergestellt wird.

³ Auch international existieren Vorgaben, Leitfäden und ähnliche Dokumente, die sich an die Freigabe richten und dabei auch messtechnische Anforderungen tangieren. Hervorzuheben ist hier beispielsweise der *IAEA General Safety Guide 18 (GSG-18) – Application of the Concept of Clearance IAEA 23/*. Diese internationalen Dokumente werden in diesem Bericht nicht näher beleuchtet.

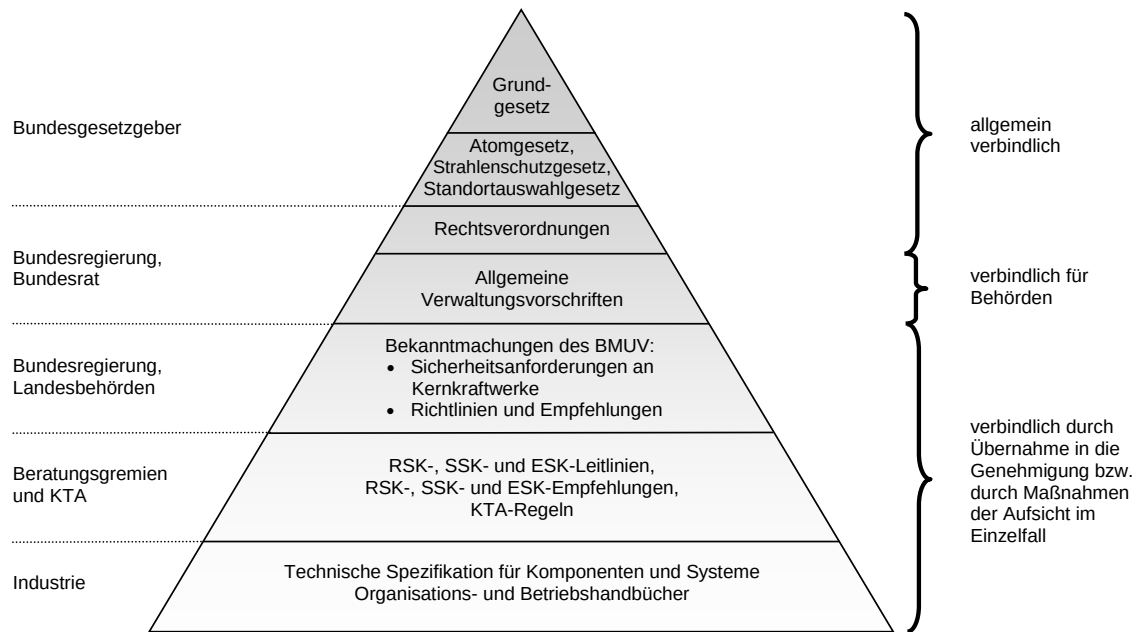


Abb. 2.1 Nationale Regelwerkspyramide

Die kerntechnische Regelwerkspyramide ist eine zusammenfassende Darstellung der Vorschriften bzw. Regelungen, der erlassenden Behörden bzw. Gruppen (links) und der jeweiligen Verbindlichkeiten (rechts).

In den folgenden Abschnitten werden aus den Gesetzen, Leitfäden und weiteren Dokumenten diejenigen Aussagen zusammengefasst, die einen Bezug zu Anforderungen an Strahlungsmessgeräte für Freimessungen haben. Die Reihenfolge der Darstellung orientiert sich hierbei an der durch die Regelwerkspyramide vorgegebene Hierarchie.

2.1 Atomgesetz (AtG)

Im Gesetz über die friedliche Verwendung der Kernenergie und den Schutz gegen ihre Gefahren (kurz: Atomgesetz, AtG), das zurzeit in der geänderten Fassung vom 4. Dezember 2022 vorliegt /ATG 22/, werden in § 1 AtG die wesentlichen Zwecke bestimmt, an denen sich die praktische Ermessungsausübung zu orientieren hat. Zu den Zwecken gehören:

- Geordnete Beendigung der Nutzung der Kernenergie zur gewerblichen Erzeugung von Elektrizität, einschließlich der Sicherstellung des dafür notwendigen Betriebs,
- Schutz von Leben, Gesundheit und Sachgütern vor den Gefahren der Kernenergie und der schädlichen Wirkung ionisierender Strahlen,
- Ausgleich von durch Kernenergie oder ionisierende Strahlen verursachte Schäden,

- Sicherstellung, dass durch Anwendung oder Freiwerden der Kernenergie oder ionisierender Strahlen die innere oder äußere Sicherheit der Bundesrepublik Deutschland nicht gefährdet wird, und
- Sicherstellung der Erfüllung internationaler Verpflichtungen (z. B. Richtlinie 2011/70/EURATOM /EU 11/) der Bundesrepublik Deutschland auf dem Gebiet der Kernenergie und des Strahlenschutzes.

Die direkten Bezüge zur Freigabe im AtG beschränken sich auf § 11 AtG im Kontext von Ermächtigungsvorschriften und haben keinen unmittelbaren Bezug zur Messtechnik. Potenziell bedeutsam ist § 7 AtG, in dem Aussagen zu Genehmigungen von kerntechnischen Anlagen getroffen werden. Hierbei richtet sich § 7 Abs. 1 AtG zunächst an Betriebs- bzw. wesentliche Änderungsgenehmigungen für bestimmte kerntechnische Anlagen⁴. Darauf aufbauend werden in § 7 Abs. 2 AtG die notwendigen Voraussetzungen zur Erteilung einer Genehmigung dargelegt. Eine für die Genehmigungspraxis entscheidende anlagenbezogene Anforderung ergibt sich aus der Schadensvorsorge nach § 7 Abs. 2 Punkt 3 AtG:

„Die Genehmigung darf nur erteilt werden, wenn [...] die nach dem Stand von Wissenschaft und Technik (Hervorhebung Verf.) erforderliche Vorsorge gegen Schäden⁵ (Hervorhebung Verf.) durch die Errichtung und den Betrieb⁶ (Hervorhebung Verf.) der Anlage getroffen ist.“

Seit Erlass des AtG sind einerseits einige Rechtsprechungen erfolgt, andererseits wurden erläuternde Dokumente veröffentlicht, die bei der Auslegung des Standes von Wissenschaft und Technik (W&T) und der Anwendung herangezogen werden können. Zudem ergeben sich aus dem untergesetzlichen Regelwerk weitere Konkretisierungen (z. B. Stellungnahmen der Reaktor-Sicherheitskommission (RSK), Stellungnahmen der Strahlenschutzkommission (SSK) oder das Regelprogramm des Kerntechnischen Ausschusses (KTA)) zur Unterstützung.

⁴ Hierzu gehören ortsfeste Anlagen zur Erzeugung, Bearbeitung, Verarbeitung oder Spaltung von Kernbrennstoffen oder zur Aufarbeitung bestrahlter Kernbrennstoffe.

⁵ Der Begriff Vorsorge gegen Schäden umfasst die klassische polizeiliche Gefahr, den Gefahrenverdacht oder das sachlich begründete Besorgnispotenzial (siehe auch /FRE 19/).

⁶ Zum Betrieb gehört die Inbetriebnahme, der Probetrieb, der Dauerbetrieb sowie die Wiederaufnahme des Betriebs (nach Revisionen) /FRE 19/.

Grundsätzlich stellt sich die Frage, ob der Begriff des Betriebs auch weitere, mit dem Betrieb verbundene Aspekte (wie z. B. Materialmanagement und Freigabe) abdeckt. Der Begriff wird in § 5 AtG (Sonstige Begriffsbestimmungen) nicht näher erläutert, so dass es hier einen gewissen Interpretationsspielraum gibt.

In § 7 Abs. 3 AtG wird aufgeführt, dass auch die Stilllegung⁷ solcher kerntechnischer Anlagen der Genehmigung bedarf, und dass die Voraussetzungen, die sich aus § 7 Abs. 2 AtG ergeben, sinngemäß anzuwenden sind. Die Entlassung einer Anlage nach § 7 Abs. 3 AtG aus der atom- und strahlenschutzrechtlichen Aufsicht erfolgt nach Maßgabe dieser Genehmigung und kann nur mittels einer Freigabe erfolgen. Somit ist als Bewertungsmaßstab zur Erteilung einer Stilllegungsgenehmigung auch für die Freigabe eine Schadensvorsorge nach dem Stand von W&T anzulegen. Zudem ist in der Regel im Rahmen der Genehmigung die Vorgehensweise für die Freigabe festgelegt. Für die Auslegung des AtG in Bezug auf die Stilllegung und die Freigabe sind insb. der Stilllegungsleitfaden (vgl. Kapitel 2.4) als auch Stellungnahmen der ESK (vgl. z. B. Kapitel 2.6) als Hilfestellung zu betrachten.

Da auch die Freigabe im Kontext des Abfall- und Reststoffkonzepts Gegenstand dieser erforderlichen Schadensvorsorge ist bzw. sein kann, ergibt sich somit auch sinngemäß eine übergeordnete Anforderung an die Messtechnik, die für die Entscheidungsmessung heranzuziehen ist. Es muss allerdings betont werden, dass dies nicht bedeutet, dass die eingesetzte Messtechnik dem Stand von W&T entsprechen muss – auch mit dem Stand der Technik entsprechender Messtechnik kann das Vorsorgekriterium erfüllt werden. Die eingesetzte Messtechnik muss den Anforderungen des Messzwecks (Messung zur Prüfung der Einhaltung der Freigabewerte für die heranzuziehenden Radioisotope, vgl. Kapitel 2.3) genügen. Demnach dürfen nach dem Stand von W&T keine Anhaltspunkte vorliegen, die eine Eignung infrage stellen (z. B. durch systematische und nicht zu korrigierende Abhängigkeiten von äußeren Faktoren, die das Messergebnis in nicht nachvollziehbarer Weise verfälschen).

⁷ In den Stilllegungsleitlinien der ESK ist die Stilllegung wie folgt definiert: „Die Stilllegung einer Anlage im technischen Sinne umfasst alle Maßnahmen nach der endgültigen Einstellung des Leistungs- oder Produktionsbetriebs zum Erreichen des Stilllegungsziels.“ Der Umgang mit Materialien (z. B. Zerlegung, Dekontamination, Behandlung, Konditionierung, Lagerung, Entsorgung) und somit auch die Freigabe sind somit Bestandteil der Stilllegung.

Zusammenfassung

Im Rahmen des AtG werden messtechnische Aspekte nicht direkt adressiert. Die Anforderung, im Hinblick auf die erforderliche Schadensvorsorge den Stand von W&T zu berücksichtigen, ist als grundlegende Begrenzung zu betrachten, die sich zumindest auch auf die Freigabe in der Stilllegung nach § 7 Abs. 3 AtG erstreckt. Zur Einschätzung können zur Orientierung der Stilllegungsleitfaden oder Veröffentlichungen der etablierten Kommissionen (insb. ESK und SSK) herangezogen werden. Eine Einschätzung, ob dieser Bewertungsmaßstab für die Schadensvorsorge auch für die Freigabe in der Betriebsphase herangezogen werden muss (vgl. auch Kapitel 2.3), unterliegt einem gewissen Interpretationsspielraum.

2.2 Strahlenschutzgesetz (StrlSchG)

Das Gesetz zum Schutz vor der schädlichen Wirkung ionisierender Strahlung (kurz: Strahlenschutzgesetz, StrlSchG) in der derzeit gültigen Fassung vom 23. Oktober 2024 /SSG 24/ trifft nach § 1 Abs. 1 StrlSchG „Regelungen zum Schutz (Hervorhebung Verf.) des Menschen und, soweit es um den langfristigen Schutz der menschlichen Gesundheit geht, der Umwelt vor der schädlichen Wirkung ionisierender Strahlung insbesondere bei 1. geplanten Expositionssituationen, 2. Notfallexpositionssituationen, 3. bestehenden Expositionssituationen.“.

Im Hinblick auf die Freigabe stellt in erster Linie das StrlSchG die Ermächtigungsgrundlage für die StrlSchV dar und ist somit von formaler Bedeutung. Vergleichbar zum AtG werden auch im StrlSchG nur wenige Aussagen mit explizitem Bezug zur Freigabe getroffen – insb. trifft das StrlSchG keine expliziten Aussagen zu Anforderungen an die Messtechnik.

In § 12 Abs. 1 StrlSchG werden Tätigkeiten aufgeführt, die im Sinne des StrlSchG genehmigungspflichtig⁸ sind:

- Betrieb einer Anlage zur Erzeugung ionisierender Strahlung (mit Ausnahmen, z. B. in Form von Anlagen, die nur einer Anzeige bedürfen (§ 12 Abs. 1 Punkt 1 StrlSchG))

⁸ Auch wesentliche Änderungen dieser Tätigkeiten sind gemäß § 12 Abs. 2 StrlSchG genehmigungspflichtig. Eigenständige Rückbau- bzw. Stilllegungsgenehmigungen für diese Tätigkeiten und damit verbundene Anlagen und Einrichtungen sind im Strahlenschutzrecht nicht vorgesehen.

- Verwendung einer Bestrahlungsvorrichtung, die Bestandteil einer nach § 7 Abs. 1 Satz 1 AtG genehmigten Anlage zur Spaltung von Kernbrennstoffen ist und die für die Anwendung am Menschen oder am Tier in der Tierheilkunde genutzt wird (§ 12 Abs. 1 Punkt 2 StrlSchG)
- Umgang mit sonstigen radioaktiven Stoffen, sofern der Umgang nicht nach § 24 Satz 1 Nr. 1 StrlSchG genehmigungsfrei ist. Weitere Ausnahmen können gemäß § 12 Abs. 4 StrlSchG vorliegen (§ 12 Abs. 1 Punkt 3 StrlSchG)
- Betrieb einer Röntgeneinrichtung (Ausnahmen: Röntgeneinrichtungen, für die eine Anzeige nach § 19 Abs. 1 StrlSchG ausreichend ist) (§ 12 Abs. 1 Punkt 4 StrlSchG)
- Betrieb eines Störstrahlers, der nicht nach § 24 Satz 1 Nr. 1 StrlSchG genehmigungsfrei betrieben werden darf (§ 12 Abs. 1 Punkt 5 StrlSchG)

In § 13 StrlSchG werden u. a. allgemeine Voraussetzungen für die Erteilung der Genehmigung aufgeführt. Es wird insb. in § 13 Abs. 1 StrlSchG die Voraussetzung aufgeführt, dass

„gewährleistet ist, dass Ausrüstungen vorhanden und die Maßnahmen getroffen sind,

- a.) die, bei einer Tätigkeit nach § 12 Abs. 1 Nr. 1 bis 3, nach dem Stand von Wissenschaft und Technik (Hervorhebung Verf.) erforderlich sind, damit die Schutzvorschriften eingehalten (Hervorhebung Verf.) werden, oder
- b.) die, bei einer Tätigkeit nach § 12 Abs. 1 Nr. 4 oder 5, nach dem Stand der Technik (Hervorhebung Verf.) erforderlich sind, damit die Schutzvorschriften eingehalten (Hervorhebung Verf.) werden [...]“

Zudem wird in § 13 Abs. 2 StrlSchG aufgeführt, dass die Genehmigung für eine Tätigkeit nach § 12 Abs. 1 Nr. 1 bis 3 StrlSchG nur dann erteilt wird, wenn die erforderliche Vor-sorge für die Erfüllung gesetzlicher Schadensersatzverpflichtungen getroffen ist.

Analog zu der Rechtsprechung im AtG (vgl. Kapitel 2.1) liegt auch hier ein gewisser Interpretationsspielraum vor, inwieweit diese Anforderungen hinsichtlich der Einhaltung der Schutzziele auch die Freigabe betreffen könnten. Auch im Strahlenschutzrecht ist der Begriff des „Betrieb“ nicht weiter definiert bzw. erläutert. Der Begriff „Umgang“ wird in § 5 Abs. 39 Nr. 1 StrlSchG näher bestimmt. Demnach gehört hierzu die „Gewinnung, Erzeugung, Lagerung, Bearbeitung, Verarbeitung und sonstige Verwendung und Besei-

tigung von a.) künstlich erzeugten radioaktiven Stoffen und b.) natürlich vorkommenden radioaktiven Stoffen auf Grund ihrer Radioaktivität, zur Nutzung als Kernbrennstoff oder zur Erzeugung von Kernbrennstoffen“. Ob dies auch den Verwaltungsakt der Freigabe inkludiert ist fraglich.

Zusammenfassung

Hinsichtlich der Anforderungen an die Messtechnik für die Freigabe (dies schließt insb. die Entscheidungsmessungen ein) ergibt sich für das StrlSchG ein Bild, das in den Grundzügen mit dem des AtG vergleichbar ist: Es werden keine expliziten Anforderungen an die Messtechnik aufgeführt. Bezüglich der Relevanz der Anforderung zur Einhaltung der Schutzvorschriften für die Freigabe im Kontext der Genehmigungsvoraussetzungen gibt es auch hier einen gewissen Interpretationsspielraum.

2.3 Strahlenschutzverordnung (StrlSchV)

Die Verordnung zum Schutz vor der schädlichen Wirkung ionisierender Strahlung (kurz: Strahlenschutzverordnung – StrlSchV) /SSV 24/ bildet zusammen mit dem StrlSchG die zwei tragenden Säulen des deutschen Strahlenschutzrechts. Der Zweck der StrlSchV ist die Regelung von Grundsätzen und Anforderungen für Vorsorge- und Schutzmaßnahmen zum Schutz des Menschen und der Umwelt vor der schädlichen Wirkung ionisierender Strahlung. Erstmals wurde die StrlSchV im Jahr 1960 veröffentlicht, seitdem wurde sie mehrfach revidiert, um dem Stand der Wissenschaft Rechnung zu tragen, aber auch um europäische/internationale Anforderungen (z. B. Richtlinien des Europäischen Rates) in das nationale Recht zu überführen. Die derzeit gültige Version der StrlSchV wurde im Jahr 2018 neu gefasst und seitdem nur im geringen Umfang geändert (die letzte Änderung ist datiert auf den 17. April 2024). Wesentlicher Grund für die Neufassung im Jahr 2018 war die Umsetzung der Richtlinie 2013/59/Euratom (in der veröffentlichten Fassung vom 17. Januar 2014) /EU 14/.

Die Freigabe sowie die möglichen Freigabepfade sind in §§ 31 bis 42 StrlSchV geregelt. Die dort getroffenen Festlegungen betreffen im Wesentlichen Verwaltungsaspekte (z. B. die Beantragung bzw. Erteilung der Freigabe in §§ 32 StrlSchV bzw. § 33 StrlSchV) oder die zur Verfügung stehenden Freigabeoptionen (insb. die uneingeschränkte Freigabe und die spezifische Freigabe in § 35 StrlSchV und § 36 StrlSchV).

Einzig § 42 StrlSchV umfasst Aussagen, die den mit der Freigabe verbundenen Messvorgang tangieren:

- „Der Strahlenschutzverantwortliche [...] hat für jede Masse oder Teilmasse, die auf Grund der Freigabe als nicht radioaktiver Stoff verwendet, verwertet, beseitigt, innegehabt oder an Dritte weitergeben werden soll, zuvor die Übereinstimmung mit dem Inhalt des Freigabebescheides (Hervorhebung Verf.) festzustellen.“ (§ 43 Abs. 1 StrlSchV)

Die zuständige Behörde kann im Rahmen der im Freigabebescheid auferlegten Nebenbestimmungen grundsätzlich auch konkrete Anforderungen an die einzusetzenden Messgeräte oder den Messprozess festlegen.

- „Messungen, die zur Feststellung der Übereinstimmung mit dem Inhalt des Freigabebescheides erforderlich sind (Freimessungen), und ihre Ergebnisse sind von dem Strahlenschutzverantwortlichen, der Inhaber der Freigabe ist, zu dokumentieren.“ (§ 43 Abs. 2 StrlSchV)

In diesem Absatz wird die Dokumentationspflicht festgelegt, insb. muss das für die Freimessung genutzte Messsystem eine Dokumentation der Ergebnisse bzw. (Roh-)Daten erlauben.

In § 86 StrlSchV zur Buchführung und Mitteilung bei der Freigabe wird gefordert, dass die Dokumentation der Freigabe auch die Messstrategie, den Nuklidvektor und – falls eine spezifische Freigabe zur Anwendung kommt – eine Erklärung über den Verbleib sowie eine Annahmeerklärung festhält.

In § 90 StrSchV werden Aussagen zu Strahlungsmessgeräten getroffen. In § 90 Abs. 4 StrlSchV wird festgehalten, dass der Strahlenschutzverantwortliche als Inhaber der Freigabe nach § 33 Abs. 1 StrlSchV dafür zu sorgen hat, „[...] dass bei einer Freimessung nach § 42 Abs. 2 geeignete Strahlungsmessgeräte (Hervorhebung Verf.) verwendet werden.“

Eine Konkretisierung, was diese Eignungsanforderung – auch für die Freimessung – bedeutet, erfolgt in § 90 Abs. 5 StrlSchV. Hier wird festgehalten, dass Strahlungsmessgeräte a.) den Anforderungen des Messzwecks genügen müssen, b.) in ausreichender Zahl vorhanden sein müssen, und c.) regelmäßig auf ihre Funktionstüchtigkeit geprüft und gewartet werden müssen. Zudem werden Anforderungen zur Dokumentationspflicht der Funktionsprüfung festgelegt. Hierzu gehören beispielsweise deren Zeitpunkt und Ergebnis als auch eine Aufbewahrungsfrist für entsprechende Aufzeichnungen von zehn

Jahren. Diese Aufzeichnungen sind der zuständigen Behörde auf Verlangen vorzuzeigen.

Der Begriff des Messzwecks wird zwar nicht explizit erläutert, es ist allerdings aus dem Kontext evident, dass es sich bei der Entscheidungsmessung um eine Konformitätsprüfung handelt, mit der untersucht wird, ob die zur Bewertung heranzuziehenden Freigabewerte eingehalten werden. Messunsicherheiten sind hierbei einzubeziehen, allerdings trifft die StrlSchV keine Aussagen, welche Wahrscheinlichkeiten (Signifikanzniveau) hierfür angenommen werden sollen. Auch wenn dies in der StrlSchV nicht explizit niedergeschrieben steht, ist davon auszugehen, dass die Eignung zudem voraussetzt, dass es keinerlei Hinweise (auch unter Berücksichtigung des Standes von W&T) gibt, nach denen das Messverfahren oder das eingesetzte Messgerät unter den vorliegenden Randbedingungen zu falschen und nicht nachvollziehbaren Messergebnissen führen kann. Insofern ist die Frage, ob die Regelungen im AtG (Schadensvorsorge) bzw. im StrlSchG (Einhaltung der Schutzziele) auch auf die Freigabe und die dafür genutzte Messtechnik zu übertragen sind, praktisch nicht relevant.

Weitere Vorgaben in Anlage 8 StrlSchV können als implizite Anforderung an die Messtechnik gelesen werden. So steht in Anlage 8, Teil A Abs. 1 StrlSchV zu allgemeinen Festlegungen zur Freigabe geschrieben:

„Sofern in den folgenden Teilen B bis G nichts anderes bestimmt ist, gilt Folgendes:

a.) Das Verfahren zum Nachweis der Einhaltung der Freigabewerte richtet sich nach der Art und Beschaffenheit der Stoffe.“

Diese Anforderung verdeutlicht, dass das Verfahren (Vorgehensweise) sich an dem Messobjekt zu orientieren hat. Da auch die Messung selbst sowie die Messtechnik Teil des Verfahrens ist, ist sicherzustellen, dass bei der Eignungsbeurteilung auch die Art und Beschaffenheit der Stoffe berücksichtigt werden.

„b.) Der Nachweis der Einhaltung der Freigabewerte ist anhand von Messungen zu erbringen. Zusätzlich ist die Einhaltung der Oberflächenkontaminationswerte nachzuweisen, wenn eine feste Oberfläche vorhanden ist, an der eine Kontaminationsmessung möglich ist; auch dieser Nachweis ist anhand von Messungen zu erbringen. Im Einzelfall kann die zuständige Behörde auch andere Nachweisverfahren zulassen.“

Auch für Freigabepfade, für die massenspezifische Freigabewerte nach Anlage 8

Tabelle 1 StrISchV einzuhalten sind, ist somit eine zusätzliche Konformitätsprüfung anhand der Oberflächenkontaminationswerte durchzuführen – vorausgesetzt, eine feste Oberfläche ist gegeben. Der Verweis, dass die zuständige Behörde auch andere Nachweise zulassen darf, kann im Einzelfall ggfs. die Flexibilität erhöhen.

„c.) Die zugrunde zu legende Mittelungsmasse für die Ermittlung der spezifischen Aktivität darf 300 kg nicht wesentlich überschreiten.

„d.) Die Mittelungsfläche für die Oberflächenkontamination darf bis zu 1 000 cm² betragen.“

Diese beiden Punkte fordern zwar effektiv keine minimalen Mittelungsgrößen, grundsätzlich halten sie aber fest, dass das gewählte Messverfahren für die zugrunde gelegten Mittelungsgrößen geeignet sein muss. So wäre es denkbar, dass auch größere Mittelungsgrößen zulässig sind, wenn die Messtechnik auch dann nachweislich in der Lage wäre, die Aktivität zu erfassen.

„e.) Bei mehreren Radionukliden ist die Summe der Verhältniszahlen C_i/R_i aus der freizugebenden spezifischen Aktivität (C_i) und den jeweiligen Freigabewerten (R_i) der einzelnen Radionuklide gemäß Anlage 4 Tabelle 1 Spalte 3, 6 bis 11 und 14 zu berechnen (Summenformel), wobei i das jeweilige Radionuklid ist. [...] Bei mehreren Radionukliden ist die Summe der Verhältniszahlen $A_{s,i}/O_i$ aus der vorhandenen Aktivität je Flächeneinheit ($A_{s,i}$) und den jeweiligen Werten der Oberflächenkontamination (O_i) der einzelnen Radionuklide gemäß Anlage 4 Tabelle 1 Spalte 5, 12 und 13 zu berechnen [...] Radionuklide brauchen bei der Summenbildung nicht berücksichtigt zu werden, wenn der Anteil der unberücksichtigten Nuklide an der Summe aller Verhältniszahlen C_i/R_i oder $A_{s,i}/O_i$ 10 Prozent nicht überschreitet.“

In der Praxis wird häufig mit (ggfs. konservativ abdeckenden) Nuklidvektoren gearbeitet, so dass in diesen Fällen zuvorderst das jeweilige Schlüsselnuklid messtechnisch quantifiziert werden muss. Für Fälle, in denen dies nicht möglich ist, müssen Messverfahren genutzt werden, mit deren Hilfe sich Radionuklide, die aufgrund der Voruntersuchungen grundsätzlich in Betracht kommen könnten, quantifizieren lassen. Auch die Betriebshistorie kann Anhaltspunkte für in Betracht kommende Radionuklide liefern.

Für die spezifischen Freigabepfade werden in den weiteren Teilen der Anlage 8 StrlSchV zusätzliche Vorgaben zu Mittelungsgrößen aufgeführt. So darf z. B. für die spezifische Freigabe von Gebäuden, Räumen, Raumteilen und Bauteilen (Anlage 8 Teil D StrlSchV) die Mittelungsfläche bis zu 1 m² betragen, zudem ist die Freimessung grundsätzlich an der stehenden Struktur durchzuführen.

Zusammenfassung

Die StrSchV fordert für Freimessungen den Einsatz geeigneter Strahlungsmessgeräte. Die Eignung ergibt sich primär aus dem Messzweck – dieser ist im Kontext der Entscheidungsmessung die Überprüfung der Einhaltung der zu berücksichtigenden Freigabewerte im Rahmen einer Konformitätsprüfung. Dies setzt voraus, dass ein (massenspezifischer/oberflächenspezifischer) Aktivitätswert aus dem eigentlichen Messwert extrahieren ist und zu berücksichtigende Unsicherheiten quantifiziert werden können. Dies impliziert, dass es auch unter Berücksichtigung des Standes von W&T keinerlei Hinweise gibt, dass das Messverfahren bzw. das für die Freimessung genutzte Messgerät zu nicht nachvollziehbaren (falschen) Messergebnissen führt. Eine Aussage zu dem für die Konformitätsprüfung heranzuziehenden Signifikanzniveau zur Festlegung der einseitigen Irrtumswahrscheinlichkeit wird in der StrlSchV nicht getroffen⁹.

Darüber hinaus werden Anforderungen zu wiederkehrenden Prüfungen und zur Dokumentation getroffen, die in einem weiteren Sinne auch als Anforderung an die eingesetzten Strahlungsmessgeräte gelesen werden können. Zudem werden in der Anlage 8 StrlSchV u. a. grundsätzliche Aussagen zu Mittelungsgrößen getroffen und beispielhafte Auswahlkriterien aufgeführt, die auch als Anforderungen betrachtet werden können.

2.4 Leitfaden zur Stilllegung, zum sicheren Einschluss und zum Abbau von Anlagen oder Anlagenteilen (Stilllegungsleitfaden)

Das Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und nukleare Sicherheit (BMU) hat am 16. September 2021 im Rahmen einer Bekanntmachung die derzeit aktuelle Überarbeitung des „Leitfaden zur Stilllegung, zum sicheren Einschluss und zum Abbau von Anla-

⁹ Die SSK hat im Rahmen einer im Bundesanzeiger veröffentlichten Empfehlung /BMU 17/ für eine messtechnische Überprüfung der Konformität eine einseitige Irrtumswahrscheinlichkeit von maximal 5 % empfohlen (siehe auch Kapitel 2.5).

gen oder Anlagenteilen“ (kurz: Stilllegungsleitfaden) im Bundesanzeiger veröffentlicht /BMU 21/. An diesem Leitfaden haben die für den Vollzug des AtG zuständigen Genehmigungs- und Aufsichtsbehörden der Länder und das Bundesumweltministerium mitgewirkt, so dass der Stilllegungsleitfaden – obwohl er gemäß der Hierarchie per se nicht verbindlich ist – eine hohe praktische Relevanz hat und einen länderübergreifenden Konsens darstellt.

Aussagen zur Freigabe finden sich im Kapitel 6 des Stilllegungsleitfadens. Hier wird zu Beginn des Kapitels zunächst der Bezug zur StrlSchV hergestellt:

„Durch eine Freigabe nach Strahlenschutzverordnung können geringfügig radioaktive Stoffe aus der atom- und strahlenschutzrechtlichen Überwachung entlassen werden.“

Konkretisierend wird aufgeführt, dass eine notwendige Voraussetzung für die Freigabe eines Stoffes mit einer bestimmten Aktivität bzw. spezifischen Aktivität die Unterschreitung festgelegter Freigabewerte (siehe Anlage 4, Tabelle 1 StrSchV) darstellt. Neben der Einhaltung dieser Freigabewerte ist auch die Einhaltung der Festlegungen der Anlage 4 und 8 StrlSchV nachzuweisen, beispielsweise hinsichtlich der Mittelungsgrößen. Es wird darauf verwiesen, dass das 10-Mikrosievert-Konzept die Basis für die Freigabewerte darstellt. Dosisbeiträge, die nicht aus Kontaminationen aus den Tätigkeiten nach § 4 Abs. 1 Satz 1 Nr. 4 StrlSchG resultieren, können außer Acht gelassen werden /SSK 17/. Zudem wird auf § 42 StrlSchV verwiesen, gemäß dem der Inhaber einer Freigabe dazu verpflichtet ist, Freimessungen, die zur Festlegung der Übereinstimmung mit dem Inhalt des Freigabebescheides erforderlich sind, sowie die Ergebnisse der Freimessungen zu dokumentieren. Die zuständige Behörde hat die Einhaltung der im Freigabebescheid festgelegten Anforderungen sowie die Freigabe betreffende Bestimmungen der Stilllegungsgenehmigung nach § 7 Abs. 3 AtG zu kontrollieren.

Hinsichtlich der Messtechnik wird im Stilllegungsleitfaden in Kapitel 6.4 zunächst auf § 90 Abs. 4 StrlSchV verwiesen, in dem die Nutzung geeigneter Strahlungsmessgeräte eingefordert wird. Zudem wird auf § 90 Abs. 5 StrlSchV verwiesen. Dort wird u. a. gefordert, dass die Strahlungsmessgeräte den Anforderungen des Messzwecks genügen und regelmäßig auf ihre Funktionstüchtigkeit geprüft werden müssen. Zudem wird der Grundsatz formuliert, dass die Freimessung so durchzuführen ist, dass die spezifische Aktivität bzw. die Kontamination des Materials nicht unterschätzt werden kann (Konservativität der Messung).

Für die Freimessung von beta- bzw. gamma-kontaminiertem Material wird festgehalten, dass mehrere Messverfahren zur Verfügung stehen – explizit werden die Oberflächenmessung, die Gammaskpektrometrie und die Gesamt-Gamma-Messung aufgeführt. Ohne konkrete Verfahrensbeispiele zu geben, wird ebenso für die Freimessung von alpha-kontaminiertem Material festgestellt, dass hierfür bewährte Verfahren vorliegen. Für die Anwendung der Verfahren sind die Vorgaben der geltenden technischen Normen einzuhalten, insb. wird auf die Normenreihe DIN 25457 verwiesen.

Bezüglich der Festlegung des Messverfahrens stellt der Stilllegungsleitfaden fest:

„Die Festlegung der Messverfahren für die nachfolgenden Orientierungs- und Entscheidungsmessungen erfolgt im Rahmen der Voruntersuchung. Dabei sind in der Regel das Radionuklidgemisch und die relativen Anteile der einzelnen Radionuklide an repräsentativen Materialproben mittels spektrometrischer Messverfahren und gegebenenfalls erforderlicher Radionuklidanalysen zu ermitteln bzw. im Einzelfall können auch bilanzierende Verfahren verwendet werden. Ebenso ist die räumliche Aktivitätsverteilung durch Stichproben an Material oder an Oberflächen zu ermitteln. Aus dem ermittelten Radionuklidgemisch sind die „Leitnuklide“ (gut messbare Radionuklide) festzulegen, über die mit Hilfe des Nuklidvektors bei der Freimessung die Gesamtaktivität sowie die Aktivität der Einzelnuklide abgeleitet werden kann.“

Diese Aussagen betonen einerseits die Bedeutung der Voruntersuchungen im Kontext einer Stilllegungsplanung und weisen andererseits darauf hin, dass die Eignung eines Messverfahrens grundlegend von den zu betrachtenden Radionukliden und deren Zerfallsarten abhängt.

Zusammenfassung

Der Stilllegungsleitfaden verweist für die Eignungsbetrachtung auf die heranzuziehenden Paragraphen zur Freigabe in der StrSchV. Konkretisierend werden für die Freimessung von beta- und gamma-kontaminiertem Material einige oft verwendete Messverfahren hervorgehoben. Zudem legt der Stilllegungsleitfaden dar, dass die Verfahrensauswahl für die Entscheidungsmessung von den Ergebnissen der Voruntersuchungen abhängt. Der Stilllegungsleitfaden verweist auf die geltenden technischen Normen und führt explizit die Normenreihe DIN 25457 auf.

2.5 Empfehlung der SSK – Methodik zur Berücksichtigung von Messunsicherheiten

Die Strahlenschutzkommission (SSK) hat am 15. September 2016 die Empfehlung mit dem Titel „Methodik zur Berücksichtigung von Messunsicherheiten bei messtechnischen Prüfungen der Röntgenverordnung und der Strahlenschutzverordnung“ veröffentlicht, die das Bundesumweltministerium am 9. Februar 2017 im Bundesanzeiger bekannt gegeben hat /BMU 17/. Die für den vorliegenden Bericht wesentlichen Punkte werden in Kapitel 3 dieser Empfehlung aufgeführt. Hinsichtlich der Messtechnik und dem Messprozess sind insb. die dort aufgeführten Punkte 1, 2 und 3 relevant:

„1. Das Ergebnis einer messtechnischen Prüfung muss die Angabe des Messwertes y und der Standardmessunsicherheit $u(y)$ beinhalten.“

„2. Die Bestimmung der Standardmessunsicherheit hat entsprechend dem „Guide to the expression of uncertainty in measurement“ (GUM) (JCGM 100) oder dem Supplement 1 zum GUM (JGCM 101) zu erfolgen. Alternativ [...] dürfen nachvollziehbare konservative Abschätzungen der Messunsicherheiten durchgeführt werden.“

„3. Anforderungen beziehen sich immer auf den wahren Wert $\tilde{y}$ einer Messgröße Y . Da der wahre Wert einer Messgröße aber unbekannt und unerkennbar ist und nur durch einen Messwert y geschätzt wird, können nur Wahrscheinlichkeitsaussagen über den wahren Wert gemacht werden. [...] Mit der Festlegung der Überdeckungswahrscheinlichkeiten gemäß den nachstehenden Empfehlungen liegen die Wahrscheinlichkeiten für richtige Entscheidungen zugunsten von Konformität jeweils mindestens bei 95 % und für falsche Entscheidungen maximal bei 5 % (Hervorhebung Verf.).“

Zusammenfassung

In der SSK-Empfehlung wird zunächst dargelegt, dass sich das Ergebnis einer messtechnischen Prüfung aus dem Messwert und einer zugehörigen Unsicherheit zusammensetzt. Zudem wird eine Anforderung an die Bestimmung der Messunsicherheiten aufgeführt und die Möglichkeit einer konservativen Abschätzung der Messunsicherheiten erläutert. Die SSK-Empfehlung formuliert insb. eine Anforderung an die für Konformitätsprüfung heranzuziehende (einseitige) Irrtumswahrscheinlichkeit, die höchstens 5 % betragen soll. Durch die Veröffentlichung im Bundesanzeiger erhält die Empfehlung eine höhere Bedeutung.

2.6 Empfehlung der ESK-Leitlinien zur Stilllegung kerntechnischer Anlagen

Die Entsorgungskommission (ESK) wurde im Jahr 2008 durch das Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit¹⁰ gegründet. Sie berät das Bundesumweltministerium in allen Angelegenheiten der nuklearen Entsorgung. Der ESK arbeiten die folgenden drei Ausschüsse in speziellen Aufgabenbereichen zu:

- Ausschuss „Abfallkonditionierung, Transporte und Zwischenlagerung“ (AZ)
- Ausschuss „Stilllegung“ (ST)
- Ausschuss „Endlagerung radioaktiver Abfälle“ (EL)

In Rahmen dieser Tätigkeiten hat die ESK am 5. November 2020 die Leitlinien zu Stilllegung kerntechnischer Anlagen (kurz Stilllegungsleitlinien) /ESK 20/ herausgegeben, die gemäß der kerntechnischen Regelwerkspyramide zum untergesetzlichen Regelwerk gehören. Die Stilllegungsleitlinien stellen eine technische Bewertungsgrundlage für die bundesaufsichtliche Prüfung der Genehmigungsverfahren zu Stilllegung und Abbau nach § 7 AtG dar und erhalten darüber eine indirekte Verbindlichkeit. Neben den Anforderungen des gesetzlichen Regelwerks, werden in diesen Leitlinien auch das deutsche untergesetzliche Regelwerk und wichtige *Safety Standards* der IAEA sowie der *Decommissioning Safety Reference Levels Report* der WENRA berücksichtigt.

In den Stilllegungsleitlinien wird auch der Ablauf eines Freigabeverfahrens beschrieben, der im Regelfall die folgenden Verfahrensschritte umfasst:

- Radiologische Charakterisierung/Voruntersuchung
- Abbau von Anlagenteilen
- Dekontamination
- Entscheidungsmessung
- Freigabe und Entsorgung

Die Leitlinien verweisen auf die StrlSchV und beschreiben, dass die einzusetzenden Verfahren zur Freigabe in Abhängigkeit von der Stoffart und dem Entsorgungsziel,

¹⁰ Derzeit Bundesministerium für Umwelt, Klimaschutz, Naturschutz und nukleare Sicherheit (BMUKN)

gemäß §§ 31 – 42 StrlSchV (vgl. Kap. 2.1), festzulegen sind. Es wird aufgeführt, dass bei der Freigabe wesentliche Daten und Größen wie etwa der Nuklidvektor, die Eignung und Kalibrierung der Messeinrichtungen, die Herkunft des Stoffes und ggf. dessen Aktivitätsverteilung zu prüfen sind und die Durchführung stichprobenartiger Kontrollmessungen vorgesehen sein muss.

Sofern bei der Entscheidungsmessung Bezugsflächen zur Anwendung kommen sollen, die oberhalb der Mittelungsflächen gemäß Anlage 8 StrSchV liegen, so ist im Rahmen von Orientierungsmessungen die Homogenität der verbliebenen Restkontamination nachzuweisen. Alle wesentlichen Verfahrensschritte sind im betrieblichen Regelwerk, z. B. in Form von Freigabeablaufplänen und/oder Arbeitsanweisungen verbindlich festzulegen.

Für die Freimessung von Gebäuden und Gebäudeteilen weisen die Stilllegungsleitlinien darauf hin, dass diese grundsätzlich an der stehenden Struktur durchgeführt werden sollen. Ist dies praktisch nicht möglich – z. B. aufgrund nicht auszublenender Quereinstrahlungen – kann von diesem Grundsatz in begründeten Einzelfällen abgewichen werden.

Die Leitlinien schreiben außerdem vor, dass das Stilllegungs-/Restbetriebshandbuch, welches sich in „geeigneter Form“ aus dem Betriebshandbuch ableiten soll, „die Vorgehensweise zur Entsorgung der radioaktiven Abfälle sowie zur Herausgabe/Freigabe von Materialien, von Bodenflächen und von Gebäuden oder Gebäudeteilen“ behandeln soll.

In der Stilllegung kommt den Messeinrichtungen zur Freigabe und Herausgabe aufgrund der hohen Massenströme eine besondere Bedeutung zu, da eine unbemerkte Fehlfunktion dieser Messeinrichtungen zur Verletzung des Schutzzieles „sicherer Einschluss der radioaktiven Stoffe“ führen kann¹¹. Somit werden sie in den Leitlinien als sicherheitstechnisch wichtige Einrichtungen behandelt. Sicherheitstechnisch wichtige Einrichtungen müssen mit der erforderlichen Wirksamkeit und Zuverlässigkeit verfügbar sein. Abweichungen vom bestimmungsgemäßen Betrieb (vgl. Bekanntmachung der „Sicherheitsanforderungen an Kernkraftwerke“ (SiAnf) /BMUV 22/ müssen folglich sicher erkannt

¹¹ Die Nichtverfügbarkeit von Messeinrichtungen zur Freigabe und Herausgabe führt jedoch nicht zu einer Schutzzielverletzung.

werden. Dies geschieht durch entsprechende wiederkehrende Prüfungen oder technische Einrichtungen sowie weitere Maßnahmen zur Qualitätssicherung.

Zusammenfassung

Messeinrichtungen zur Freigabe erhalten in den Stilllegungsleitlinien eine besondere Bedeutung und werden zu den sicherheitstechnisch wichtigen Einrichtungen gezählt. Für die Entscheidungsmessung von Gebäuden und Gebäudeteilen führen die Stilllegungsleitlinien auf, dass diese grundsätzlich an der stehenden Struktur zu erfolgen hat. Die dafür einzusetzende Messtechnik muss demnach den Anforderungen genügen, beispielsweise im Hinblick auf die Ausrichtung des Messgeräts relativ zu den Oberflächen oder im Hinblick auf eine Reduzierung störender Quereinstrahlung.

Die Stilllegungsleitlinien fordern, dass im Betriebsreglement die Vorgehensweise zur Freigabe beschrieben wird. Dies kann beispielsweise auch die Verfahrensauswahl und heranzuziehende Kriterien umfassen, was unmittelbar auch die Verfahrenseignung betrifft.

2.7 Regelprogramm des Kerntechnischen Ausschusses (KTA-Regelprogramm)

Der Kerntechnische Ausschuss (KTA) hat auf dem Gebiet der Kerntechnik die Aufgabe, zu Fragen, bei denen sich basierend auf Erfahrungswerten eine konsensfähige Meinung unter Fachleuten abzeichnet (z. B. Hersteller, Betreiber, Gutachter und Behörden), für sicherheitstechnische Regeln zu sorgen und deren Anwendung zu fördern /KTA 24/. Das aktuelle Regelprogramm des KTA umfasst derzeit 97 Regelvorhaben (Stand: Mai 2025) /KTA 25/. Die einzelnen KTA-Regeln wurden bzw. werden regelmäßig auf ihre Gültigkeit und Relevanz überprüft. Hierzu berichtet der für die jeweilige Regel bestimmte Unterausschuss dem KTA alle fünf Jahre nach Aufstellung einer Regel, ob die Regel unverändert bleiben soll oder ob eine Änderung, Neubekanntmachung oder Aufhebung der Regel erforderlich ist /KTA 94/.

Die Regeln wurden im November 2022 letztmalig aktualisiert, geändert bzw. Regeländerungsentwürfe erarbeitet, so dass eine Gültigkeit der KTA-Regeln bis zum Jahr 2027¹² gegeben ist /KTA 23/.

Aufgrund der Fokussierung der KTA-Regeln auf betriebliche Aspekte finden sich nur wenige explizite Bezugnahmen auf die Freigabe im Allgemeinen (z. B. KTA-Regel 3604 zur Lagerung, Handhabung und innerbetrieblichen Transport radioaktiver Stoffe in Kernkraftwerken /KTA 20/), insb. werden im KTA-Regelwerk keine expliziten Bezüge zu messtechnischen Anforderungen für Freimessungen aufgeführt. Indirekt von Bedeutung sind die KTA-Regel 1201 /KTA 15/ und die KTA-Regel 1301.2 /KTA 22/.

2.7.1 KTA-Regel 1201 – Anforderungen an das Betriebshandbuch

Die KTA-Regel 1201 definiert Anforderungen an das Betriebshandbuch (BHB). Bezüglich der Strahlenschutzordnung des Betriebshandbuches wird für diese in Kapitel 6.5.6 der KTA 1201 u. a. die Beschreibung des Freigabeverfahrens gefordert. Es wird zudem festgehalten, dass bei einem zu hohen Umfang der geforderten Themen (neben dem Freigabeverfahren fordert die KTA-Regel 1201 auch die Beschreibung weiterer Aspekte mit Bezug zu radioaktiven Abfällen und Reststoffen, z. B. Verpacken, radiologische Messungen oder Konditionierung) auch eine eigene Abfall- und Reststoffordnung erstellt werden darf. Die Strahlenschutzordnung als Bestandteil des BHB gehört zu den Sicherheitsspezifikationen und ist als solche – auch bei Änderungen – durch die zuständige Genehmigungs- und Aufsichtsbehörde zustimmungs- bzw. genehmigungspflichtig. Die KTA-Regel 1201 ist gemäß Stilllegungsleitfaden in der gesamten Stilllegung unter Betrachtung des aktuellen Anlagenzustands und des Gefährdungspotenzials anzuwenden. Das BHB ist auch für kerntechnische Anlagen in Stilllegung fortzuschreiben, trägt in der Praxis zur Abgrenzung aber häufig einen anderen Namen, z. B. Restbetriebshandbuch. Aus Gründen der Einfachheit wird im Folgenden aber der Begriff des BHB unabhängig vom Anlagenzustand genutzt.

¹² Für das Jahr 2027 wird die Brennstofffreiheit aller in Stilllegung befindlichen Kernkraftwerke erwartet. Da sich das KTA-Regelwerk hauptsächlich auf den Betrieb kerntechnischer Anlagen fokussiert, soll im Nachgang zum Ausstieg aus der Nutzung der Kernenergie für friedliche Zwecke das KTA-Regelwerk mittelfristig durch Regeln des Bundesumweltministeriums ersetzt werden. Diese Regeln sollen die Bereiche Restbetrieb und Abbau von Kernkraftwerken, Betrieb, Restbetrieb und Abbau von Forschungsreaktoren sowie Zwischenlager und Endlager abdecken /KTA 23/.

2.7.2 KTA-Regel 1301.2 – Berücksichtigung des Strahlenschutzes der Arbeitskräfte bei Auslegung und Betrieb von Kernkraftwerken; Teil 2: Betrieb

In der KTA-Regel 1301.2 werden Anforderungen an Strahlungsmessgeräte und -hilfsmittel für den betrieblichen Strahlenschutz gestellt und hierzu auch der Bezug zu § 90 StrlSchV hergestellt. Die KTA-Regel 1301.2 ist gemäß Stilllegungsleitfaden in der gesamten Stilllegung unter Betrachtung des aktuellen Anlagenzustands und des Gefährdungspotenzials anzuwenden. Es wird insb. festgehalten, dass für die Beurteilung der Eignung der Messgeräte und Messverfahren je nach Anwendung u. a. die DIN EN 60325¹³ /DIN 02/, die DIN ISO 7503 Teile 1 bis 3¹⁴ /DIN 17b/, /DIN 17c/, /DIN 17a/ die DIN EN ISO 11929-1 /DIN 21a/ und die „SSK-Empfehlung Heft 34“ /SSK 03/ zu beachten sind.

Die Regel beschreibt für bestimmte Messgeräte Anforderungen an die Prüfmethode und das Prüfintervall. So ist beispielsweise für Kontaminationsmessgeräte eine Funktionsprüfung vor Gebrauch und eine vierteljährliche Überprüfung der Kalibrierung vorgesehen. Darüberhinausgehende Konkretisierungen zu Anforderungen an die Freimesstechnik ergeben sich nicht.

2.7.3 Zusammenfassung

Die bestehenden KTA-Regeln wurden für den Betrieb entwickelt, sind jedoch im Sinne eines gestuften Ansatzes auch in der Stilllegung unter Betrachtung des aktuellen Anlagenzustands und des Gefährdungspotenzials anzuwenden, so dass Aspekte wie der betriebliche Strahlenschutz im Vordergrund stehen. Die Freigabe wird in den KTA-Regeln nur an wenigen Stellen tangiert. Hervorzuheben ist die Anforderung, die für die Berücksichtigung der Freigabe im Betriebshandbuch gestellt wird.

¹³ DIN EN 60325:2005-0; VDE 0493-2-1:2005-2 – Strahlenschutz-Messgeräte – Alpha-, Beta- und Alpha/Beta-(Betaenergie > 60 keV) Kontaminationsmessgeräte und -monitore (IEC 60325:2002, modifiziert); Deutsche Fassung EN 60325:2004

¹⁴ DIN ISO 7503 von Dezember 2017: Bestimmung der Radioaktivität – Messung der Oberflächenkontamination. Teil 1: Allgemeine Grundlagen (ISO 7503-1:2016), Teil 2: Wischtest (ISO 7503-2:2016) und Teil 3: Gerätekalibrierung (ISO 7503-3:2016)

2.8 Regelungen in Betriebshandbuch sowie innerbetrieblichen Arbeitsanweisungen

Ein wesentlicher Bestandteil des Betriebsreglement – auch für kerntechnische Anlagen in der Stilllegung - ist das BHB. Es umfasst u. a. eine Sammlung an Anweisungen und Regeln, welche die Auslegung, die Überwachung und den Betrieb der Anlage unter Berücksichtigung der Sicherheitsanforderungen zusammenfasst. Die Basis ergibt sich aus den SiAnf sowie der KTA-Regel 1201.

Hinsichtlich der Anforderungen an die eingesetzten Kontaminationsmessgeräte und an die Messtechnik für Freimessungen sind zuvorderst die Strahlenschutzordnung bzw. die Abfall- und Reststoffordnung im BHB heranzuziehen (vgl. Kapitel 2.7). Bei einer kursorischen Sichtung einiger Betriebshandbücher fanden sich in diesen beiden Ordnungen allgemeine Verfahrensanweisungen, die z. B. folgende Aspekte berühren:

- Qualifikation der Messwerkzeuge und –dienstleistungen
- Anlagenweite radiologische Charakterisierung
- Lokale radiologische Analyse
- Lokale radiologische Charakterisierung
- Planung der Freigabestrategie
- Entscheidungsmessung

Konkretisierende Aussagen hinsichtlich der Anforderungen an die Freimesstechniken wurden bei der kursorischen Sichtung auf Ebene der o. g. Ordnungen allerdings nicht identifiziert. Stattdessen wurde auf weitere Vorgaben des Betriebsreglements verwiesen (z. B. Arbeitsanweisungen), die nicht Gegenstand des BHB sind.

2.8.1 Zusammenfassung

Änderungen des BHB, wie sie beispielsweise oftmals beim Übergang in die Stilllegung umgesetzt werden, sind je nach Sicherheitsrelevanz zustimmungs- bzw. genehmigungspflichtig. Gemäß KTA 1201 bedürfen Änderungen an den in den Sicherheitsspezifikationen enthaltenen Angaben der Zustimmung durch die zuständige Genehmigungs- oder Aufsichtsbehörde. Bei der kursorischen Sichtung einiger BHB konnten allerdings keine Aussagen gefunden werden, die die Messverfahrensauswahl und die Eignung von

Messverfahren im Kontext von Freimessungen beschreiben. Stattdessen wurde in den betrachteten BHB auf weitere Betriebsregelungen verwiesen, die allerdings im Rahmen des Eigenforschungsvorhabens nicht eingesehen werden konnten.

2.9 Normenreihe zu Aktivitätsmessverfahren für die Freigabe von radioaktiven Stoffen und kerntechnischen Anlagenteilen (DIN 25457)

In der Normenreihe DIN 25457 werden u. a. Anforderungen an den messtechnischen Nachweis zur Einhaltung der Freigabekriterien gemäß Teil 2, Kapitel 3 StrlSchV festgelegt, so dass ihr – bezogen auf den Messprozess – auch aufgrund ihrer Detaillierung eine wichtige Rolle in der deutschen Freigabepraxis zukommt. Neben diesem messtechnischen Fokus setzt sich die Norm auch mit weiteren Aspekten und Prozessen im Kontext der Freigabe auseinander, u. a. die Vorgehensweise im Freigabeverfahren, mögliche Charakterisierungsstrategien, Hochrechnungsfaktoren und Nuklidvektoren und Modelle zur Auswertung von Einzelmessungen (z. B. Stichprobenverfahren oder repräsentative Messungen).

In den vergangenen Dekaden wurde die Norm wiederholt überarbeitet und umstrukturiert. Zum aktuellen Zeitpunkt (Mai 2025) umfasst sie vier Teile (erstellt vom Arbeitsausschuss NA 062-07-46 AA „Reststofffragen“ im DIN-Normenausschuss Materialprüfung (NMP)):

- DIN 25457-1: Aktivitätsmessverfahren für die Freigabe von radioaktiven Stoffen und kerntechnischen Anlagenteilen – Teil 1: Grundlagen (Mai 2024) /DIN 24a/
- DIN 25457-4: Aktivitätsmessverfahren für die Freigabe von radioaktiven Stoffen und kerntechnischen Anlagenteilen – Teil 4: Kontaminierter und aktivierter Metallschrott (April 2013) /DIN 13/
- DIN 25457-6: Aktivitätsmessverfahren für die Freigabe von radioaktiven Stoffen und kerntechnischen Anlagenteilen – Teil 6: Bauschutt und Gebäude (Juli 2018) /DIN 18/
- DIN 25457-7: Aktivitätsmessverfahren für die Freigabe von radioaktiven Stoffen und kerntechnischen Anlagenteilen – Teil 7: Bodenflächen und Bodenaushub (August 2017) /DIN 17d/

Die Normenreihe DIN 25457 wird derzeit grundlegend überarbeitet. Die Revision des ersten Teils wurde bereits im Mai 2024 abgeschlossen. Die weiteren Teile werden derzeit überarbeitet und zu zwei Teilen restrukturiert. Der Teil 2 wird sich demnach der Frei-

gabe von Reststoffen widmen, ein Entwurf dieses Teils (DIN 25457-2) wurde im Mai 2025 veröffentlicht. Der abschließende Teil 3 soll sich an die Freigabe ortsfester Strukturen richten.

Unabhängig von praktischen Messverfahren wird im ersten Teil zunächst zu den messtechnischen Randbedingungen festgehalten, dass „der Nachweis der Einhaltung der Freigabewerte sowie der Werte der Oberflächenkontaminationen [...] grundsätzlich anhand von Messungen erbracht werden“ muss (vgl. Kapitel 7.1.1 in DIN 25457-1). Zudem dient die „Einzelmessung zur Entscheidung über die Freigabefähigkeit“ und der Prüfung, „ob die obere Grenze des Überdeckungsintervalls¹⁵ den Richtwert unterschreitet“ (vgl. Kapitel 7.2 in DIN 25457-1). Die Einzelmessung ist demnach zuvorderst eine Konformitätsprüfung. Präzisierend wird zudem festgestellt: „Für den Vergleich mit Richtwerten muss die obere Grenze des Überdeckungsintervalls herangezogen werden. Hierbei muss die einseitige Irrtumswahrscheinlichkeit von 5 % zur Festlegung des Überdeckungsintervalls verwendet werden.“ Dies stellt somit einen wesentlichen Parameter zur Einschätzung der Eignung dar. Zur Festlegung der einseitigen Irrtumswahrscheinlichkeit verweist die DIN 25457-1 auf die SSK-Empfehlung aus dem Jahr 2016 (siehe Kapitel 2.5), in der ein Wert von (mindestens) 5 % als ein oberer Schrankenwert aufgeführt wird. Näher begründet wird diese Festlegung in der DIN 25457-1 nicht.

Für die praktische Eignungsbetrachtung haben bestimmte charakteristische Grenzen (neben der oberen Grenze des Überdeckungsintervalls gehören hierzu auch die Erkennungs- und die Nachweisgrenze) eine fundamentale Bedeutung. Die mathematischen Grundlagen und Definitionen dieser Größen werden in der DIN EN ISO 11929 dargelegt, die hierzu auch von der DIN 25457 referenziert wird. Im Anhang A dieses Berichtes ist eine Zusammenfassung dieser charakteristischen Grenzen hinterlegt, die auch ein veranschaulichendes Zahlenbeispiel umfasst.

In der DIN 25457 wird hinsichtlich der messtechnischen Anforderungen zwischen den folgenden Messverfahren unterschieden:

- Direkte Messverfahren der Gesamt-Alpha oder Beta-Oberflächenkontamination
- Indirekte Oberflächen-Gesamtaktivitätsmessung

¹⁵ Für eine Erläuterung und Illustration des Überdeckungsintervalls sei auf Anlage A verwiesen.

- Spektrometrische Verfahren
- Gesamt-Gamma-Aktivitätsmessung

Die Strukturierung der DIN 25457 in anwendungsorientierte Teile spiegelt sich auch in den aufgeführten messtechnischen Anforderungen wider. Im ersten Teil der DIN 25457 werden zunächst allgemeine messtechnische Anforderungen aufgeführt, konkretisierende Anforderungen für bestimmte Anwendungen sind in den weiteren Teilen hinterlegt.

Grundsätzlich können die in der Normenreihe DIN 25457 aufgeführten Anforderungen wie folgt untergliedert werden:

- Anforderungen an den Detektor (z. B. hinsichtlich der Detektorgröße oder dem Detektionsmaterial) und das Messgerät bzw. die Messeinrichtung (z. B. hinsichtlich der Anzeige des Messergebnisses oder mögliche Betriebsmodi)
- Anforderungen an den Messaufbau und die Messgeometrie, z. B. hinsichtlich der Geometrie des Messobjektes oder der Ausrichtung des Detektors bzw. des Messgeräts relativ zum Messobjekt
- Anforderungen an die Kalibrierung und Qualitätssicherung, z. B. im Rahmen wiederkehrender Prüfungen der Funktionstüchtigkeit
- Zudem werden Aussagen zu Berechnungen der Aktivität aus den eigentlichen Messgrößen getroffen und relevante Einflussgrößen einschließlich ihrer Unsicherheiten betrachtet

In den folgenden Unterabschnitten dieses Berichts werden kursorisch die verfahrensspezifischen Anforderungen unter Berücksichtigung der genannten Kategorien zusammengefasst. Die Signalwörter zur Indikation der Schwere der Anforderungen (z. B. „kann“, „soll“ oder „muss“) werden hierzu unverändert übernommen. Für Informationen zu den einzelnen Messverfahren wird auf das Kapitel 6 verwiesen. Diese Zusammenfassung erhebt keinen Anspruch auf Vollständigkeit, sondern soll vielmehr einen repräsentativen Eindruck hinsichtlich der Anforderungen und deren Detailgrad vermitteln, der für einen Vergleich herangezogen werden kann. Für eine vollständige Betrachtung der Anforderungen wird auf die Teile der DIN 25457 verwiesen.

2.9.1 Direkte Messverfahren der Gesamt-Alpha oder Beta-Oberflächenkontamination

Mit Hilfe dieser Verfahren kann die gesamte festhaftende und nicht-festhaftende Alpha- oder Beta-Oberflächenkontamination unmittelbar an Materialien bestimmt werden¹⁶. Auch sind eingedrungene oder überdeckte Kontaminationen nachweisbar, sofern die Dicke der kontaminierten Schicht bzw. der überdeckende Absorptionsschicht die jeweilige Sättigungsschichtdicke nicht überschreitet (d. h. sofern die emittierten Alpha- oder Beta-Teilchen nicht im Material vollständig abgebremst werden).

Die direkten Messverfahren werden zuvorderst für die Messung der Oberflächenkontamination mit Alpha- oder Beta-Strahlung emittierenden Radionukliden genutzt, unter bestimmten Randbedingungen können sie aber auch für die Prüfung massenspezifischer Freigabewerte herangezogen werden. Für aktivierte Materialien ist das Verfahren nicht geeignet.

Grundsätzlich muss die entsprechende Oberfläche für das Messgerät zugänglich sein. Bei Korrosionen, Rissen oder sonstigen porösen Stellen müssen diese separat betrachtet werden. Auch Schmutz- oder Oxidschichten können zu Eignungseinschränkungen führen (Beta-Strahlung) oder eine Eignung ausschließen (Alpha-Strahlung). Grundsätzlich muss für die Ermittlung der Nachweisgrenze die Eindringtiefe der Kontamination berücksichtigt werden.

Die Messungen können entweder stationär (für Alpha- und Beta-Strahlung) oder dynamisch (z. B. für die Messung der Beta-Strahlung bei der Freigabe von Bodenflächen nach DIN 25457-7) durchgeführt werden. Bei dynamischen Messungen ist der Detektor möglichst gleichmäßig in geringem und konstantem Abstand über die Oberfläche zu bewegen, wobei vorab festgelegte minimale Überstreichungszeiten einzuhalten sind. Zur Durchführung dynamischer Messungen können technische Hilfsmittel wie z. B. (motorisierte) Rollwagen eingesetzt werden.

In der DIN 25457 wird im Kontext der direkten Messverfahren wiederholt auf die Normenreihe DIN ISO 7503 verwiesen /DIN 17b/, /DIN 17c/, /DIN 17a/, auf deren Notation und Nomenklatur die Normenreihe DIN 25457 zurückgreift.

¹⁶ Messgeräte, die dieses Messverfahren umsetzen, sind oftmals auch sensitiv für Gamma-Strahlung, allerdings ist die Effizienz für den Nachweis der Gammastrahlung bedingt durch das Detektionssystem geringer als die für den Nachweis von Alpha- bzw. Gammastrahlung.

Einflussgrößen für die Aktivitätsbestimmung

Gemäß Kapitel 8.1.1 der DIN 25457-1 müssen bei der Bestimmung der Oberflächenkontamination sowohl das Oberflächenansprechvermögen $\varepsilon_{id} \cdot S_p$ des Messgerätes als auch die Austrittsfaktoren der kontaminierten Oberfläche berücksichtigt werden. Das Oberflächenansprechvermögen beschreibt das Verhältnis der gemessenen Nettozählrate zur flächenbezogenen Oberflächenemissionsrate bei festgelegten geometrischen Bedingungen. Neben geometrischen Faktoren gibt es zudem eine Abhängigkeit von der Strahlungsart und deren Energie. Sowohl für die Bestimmung des Oberflächenansprechvermögens als auch der Austrittsfaktoren verweist die DIN 25457-1 auf die DIN ISO 7503-3.

In Kapitel 8.1.3 der DIN 25457-1 wird zur Bestimmung einer flächenbezogenen Aktivität A_S mit Hilfe einer Oberflächenkontaminationsmessung folgendes Modell aufgeführt:

$$A_S = C(A) \cdot (\rho_g - \lambda \cdot \rho_0) = \frac{P}{\varepsilon_{id} \cdot f_G \cdot S_p} \cdot (\rho_g - \lambda \cdot \rho_0)$$

Hierbei ist $C(A)$ der aktivitätsbezogene Kalibrierfaktor, ρ_0 ist die Zählrate des Nulleffekts, ρ_g ist die Zählrate der Bruttomessung, λ ist der Faktor zur Berücksichtigung der Variabilität des Nulleffekts als Konsequenz des Einflusses des Messgutes, ε_{id} ist die Nachweiswahrscheinlichkeit des Detektors bei idealer Laborgeometrie, f_G ist der Geometriefaktor zur Berücksichtigung der Geometrie des Messgutes und S_p ist die effektive Detektorfläche. Für die Bestimmung der Nachweis- und Erkennungsgrenzen müssen die aufgeführten Größen und die zugehörigen (Typ-B-)Unsicherheiten berücksichtigt werden.

Die relative Standardunsicherheit für $C(A)$ ergibt sich zu:

$$u_{rel}^2(C(A)) = \frac{u^2(P)}{P^2} + \frac{u^2(\varepsilon_{id})}{\varepsilon_{id}^2} + \frac{u^2(f_G)}{f_G^2} + \frac{u^2(S_p)}{S_p^2}$$

In der Praxis wird häufig ein vereinfachtes Modell für die Größen P , ε_{id} , f_G und S_p genutzt, so dass die Messung zu überschätzenden Ergebnissen führt. Die relative Standardunsicherheit $u_{rel}^2(C(A))$ kann somit vernachlässigt werden.

Die Bestimmung der relativen Messunsicherheiten der Brutto- und Nulleffektzählrate erfolgt durch die folgende Gleichung:

$$u_{rel}^2(\rho_g - \lambda \cdot \rho_0) = \frac{\frac{\rho_g}{t_g} + \lambda^2 \cdot \frac{\rho_0}{t_0} + \rho_0^2 \cdot u^2(\lambda)}{(\rho_g - \lambda \cdot \rho_0)^2}$$

Hierbei bezeichnet t_g die Messzeit der Bruttomessung, t_0 die Messzeit der Nulleffekt-messung und $u^2(\lambda)$ die Messunsicherheit des Parameters λ .

Anforderungen an den Detektor und das Messgerät bzw. die Messeinrichtung

Das Kapitel 8.1.4 der DIN 245457-1 fasst Anforderungen an die Messgeräte zusammen. Demnach müssen die zu verwendenden Alpha- oder Beta-Oberflächenkontaminationsgeräte die Anforderungen der DIN EN 60325 /DIN 02/ erfüllen. Die Messgeräte müssen über eine akustische Alarmanzeige verfügen, zudem sollten sie eine optische Alarmanzeige besitzen. Ein für Entscheidungsmessungen genutztes Messgerät sollte außerdem über eine lineare Skala oder eine digitale Anzeige verfügen.

Anforderungen an den Messaufbau und die Messgeometrie

Hinsichtlich der Messgeometrie muss für die Messung von Alpha- und/oder Beta-Strahlung sowohl der minimal erreichbare und der maximal zulässige Abstand zwischen der empfindlichen Detektoroberfläche und der Oberfläche des Messobjektes bekannt sein.

Da bei porösen Materialien mit eingedrungenen Kontaminationen zu rechnen ist, sind die direkten Messverfahren nur bedingt für Entscheidungsmessungen geeignet – andere Verfahren sind ggfs. zu bevorzugen.

Für stationäre Messungen muss das Messgut in rasterförmige Flächen eingeteilt werden, auf die der Detektor aufgesetzt wird. Wird für die jeweilige Fläche der zugeordnete Freigabewert überschritten, ist die betreffende Fläche zu markieren.

Anforderungen an die Kalibrierung und Qualitätssicherung

Für die Kalibrierung sind geeignete Kalibrierquellen/Kalibrierstrahler nach DIN EN ISO 8769 /DIN 23/ zu verwenden, die Kalibrierung ist unter denselben Messbedingungen wie für die Messung am Messgut durchzuführen.

Die DIN 25457-1 stellt Anforderungen an wiederkehrende Prüfungen bzw. Kalibrierungen bzw. legt dar, unter welchen Voraussetzungen Prüfungen und/oder Kalibriermessungen zu erfolgen haben. Das zeitliche Intervall variiert für die regelmäßige Nutzung des Messgerätes je nach Prüfung von arbeitstäglich bis zu jährlich. So muss beispielsweise mindestens jährlich bzw. zu Beginn einer Messkampagne das Oberflächenansprechvermögen mit einem kalibrierten Flächenstrahler ermittelt werden.

Um allmähliche/langsame Änderungen des Detektorverhaltens leichter zu erkennen, wird die Nutzung von Kontrollkarten empfohlen, in denen beispielsweise die Werte zur Quantifizierung des Oberflächenansprechvermögens oder des Nulleffekts festgehalten werden.

2.9.2 Indirekte Oberflächen-Gesamtaktivitätsmessung

Bei diesem Messverfahren erfolgt die Messung der Oberflächenaktivität indirekt anhand einer entnommenen Wischprobe – das Verfahren ist somit nur für nicht-festhaftende Aktivitäten geeignet. Es wird zuvorderst für unzugängliche bzw. nur schwer zugängliche Oberflächen oder Oberflächenteile (z. B. Ecken und Kanten) verwendet, so dass das Verfahren insb. eine Ergänzung zur direkten Oberflächen-Gesamtaktivitätsmessung von Alpha- und Beta-Strahlern darstellt. Die Messung muss nicht vor-Ort erfolgen, so dass sie ggfs. an einem Ort (Labor) erfolgen kann, an dem eine geringere Nulleffektrate vorliegt, so dass bei gleicher Zeitvorauswahl die Nachweisgrenze geringer ist.

Einflussgrößen für die Aktivitätsbestimmung

Der Entnahmefaktor beschreibt den Anteil der Aktivität, der mit der Wischprobe entnommen wird. Er muss für den jeweiligen Einzelfall ermittelt werden. Da er aber von mehreren Faktoren abhängt (z. B. die Oberflächenbeschaffenheit oder der bei der Probenahme angewendete Druck), ist er schwer zu quantifizieren. Gemäß DIN ISO 7503-2 wird oftmals ein Entnahmefaktor von 0,1 angenommen, der als konservativ eingeschätzt wird. Des Weiteren sind zur Bestimmung der Oberflächen-Gesamtaktivität die Nachweiswahr-

scheinlichkeit des Detektors/Messgeräts, der Emissionswirkungsgrad der Wischprobe sowie ggfs. die Sättigungsschichtdicke der Wischprobe zu beachten.

Für die Bestimmung einer nicht-festhaftenden Aktivität a_r wird nach DIN ISO 7503-2 unter der Annahme eines einfachen Zerfallschemas folgender modellierter Zusammenhang mit der Zählrate genutzt:

$$a_r = \frac{a_w}{S_w \cdot \varepsilon_w} = \frac{P \cdot (\rho_g - \rho_0 \cdot \lambda)}{S_w \cdot \varepsilon_w \cdot \varepsilon}$$

Hierbei ist a_w die gemessene Aktivität der Wischprobe, S_w die beprobte Fläche, ε_w der Entnahmefaktor, ε die Nachweiswahrscheinlichkeit des Detektors für den heranzuziehenden Nuklidvektor, ρ_0 die Zählrate des Nulleffektes, ρ_g die Zählrate der Bruttomesung, λ der Faktor zur Berücksichtigung der Variabilität des Nulleffekts als Konsequenz des Einflusses des Messgutes und P das Verhältnis von Teilchen- oder Photonenerzeugungsrate zu Oberflächenemissionsrate bei einfachem Zerfallsschema.

Für die Bestimmung der Nachweis- und Erkennungsgrenzen müssen die aufgeführten Größen und die zugehörigen Unsicherheiten berücksichtigt werden. Analog zu den direkten Messverfahren erfolgt auch für die indirekten Verfahren in der Praxis oftmals eine konservative Abschätzung der Eingangsgrößen ε , ε_w , S_w und P , so dass zur Festlegung der charakteristischen Grenzen nur die Messunsicherheiten der Brutto- und Nettozählraten herangezogen werden müssen.

Anforderungen an den Detektor und die Messeinrichtung

Zur Messung werden vorzugsweise Proportionalzählrohre oder Szintillationszähler verwendet. Weiterhin sind die Anforderungen zu berücksichtigen, die auch für die direkten Messverfahren gelten.

Anforderungen an den Messaufbau und die Messgeometrie

Die Nulleffektzählrate muss für die Nachweisführung hinreichend niedrig sein. Nach Kapitel 8.2.4 der DIN 25457-1 muss bei der Messung des Nulleffektes die Messzeit mindestens so groß wie die Messzeit der Bruttomesung sein. Zudem muss nach Kapitel 8.2.6 der DIN 25457-1 die Messzeit so gewählt werden, dass für die Messung des Nulleffekts einige Impulse zu erwarten sind. Nach Kapitel 8.2.7 der DIN 25457-1 muss

die auszuwertende Wischprobe in die durch die Kalibrierung festgelegte Position gebracht werden. Ferner gelten die Anforderungen einer stationären Impulszählung bei der Nutzung von direkten Oberflächen-Gesamtaktivitätsmessverfahren.

Anforderungen an die Kalibrierung und Qualitätssicherung

In Ergänzung zu den Anforderungen für die direkten Oberflächen-Gesamtaktivitätsmessverfahren wird als Kalibrierstrahler in Kapitel 8.2.4 der DIN 25457-1 ein Dünnschichtstrahler bekannter Aktivität oder Oberflächenemissionsrate gefordert, der eine der Probe entsprechenden Fläche hat. Zudem muss die Kalibrierung in der gleichen geometrischen Anordnung wie bei der Messung vorgenommen werden. Gemäß Kapitel 8.2.7 der DIN 25457-1 darf weder der Detektor noch seine Umgebung durch die Probe kontaminiert werden.

Analog zu den direkten Oberflächen-Kontaminationsmessverfahren stellt die DIN 25457-1 in Kapitel 8.2.8 Anforderungen an wiederkehrende Prüfungen bzw. Kalibrierungen bzw. unter welchen Voraussetzungen Prüfungen und/oder Kalibriermessungen zu erfolgen haben. Bezüglich der hierfür zu berücksichtigenden Intervalle wird wie folgt unterschieden:

- Maßnahmen, die vor erstmaliger Nutzung eines Messgerätes und nach Reparaturen zu erfolgen haben – hierzu gehören beispielsweise eine Messung des Nulleffektes aller Messpositionen oder die Kalibrierung aller Messpositionen des Messgerätes mit einem kalibrierten Flächenstrahler.
- Maßnahmen, die mindestens arbeitstäglich zu erfolgen haben – hierzu gehören beispielsweise die Kontrolle des Gasflusses bei Nutzung von Proportionalzählern zu Beginn/Ende der Arbeiten oder die Kontrolle der Kalibrierung aller Messpositionen mit geeigneten Prüfstrahlern.
- Maßnahmen, die mindestens monatlich zu erfolgen haben – hierzu gehört die Messung des Nulleffekts aller Messpositionen und Vergleich mit den festgelegten Toleranzbereichen.
- Maßnahmen, die mindestens jährlich oder bei seltener Nutzung zu Beginn einer Messkampagne zu erfolgen haben – hierzu gehören beispielsweise erneut die Kalibrierung aller Messposition des Messgerätes mit einem kalibrierten Flächenstrahler.

Um allmähliche/langsame Änderungen des Detektorverhaltens leichter zu erkennen, wird die Nutzung von Kontrollkarten empfohlen, in denen beispielsweise das Oberflächenansprechvermögen oder der Nulleffekt festgehalten werden.

2.9.3 Spektrometrische Verfahren

Im ersten Teil der DIN 25457 werden im Kapitel 8.3 zu den spektrometrischen Verfahren die Gammaspektrometrie an Materialproben und die In-situ-Gammaspektrometrie betrachtet¹⁷.

Beide Messverfahren dienen zunächst der nuklidspezifischen (Direkt-)Messung emittierter Photonenstrahlung. In der Regel handelt es sich hierbei um Gamma-Strahlung – für die Anwendung ist somit das Vorhandensein mindestens eines messbaren Gamma-Strahlers der relevanten Radionuklide Voraussetzung. Da Gamma-Strahlung aber auch im Zuge bestimmter Alpha- oder Beta-Zerfälle emittiert wird, kann die Gammaspektrometrie für solche Alpha- oder Beta-Strahler auch als indirektes Messverfahren genutzt werden.

Für detaillierte Informationen zur Gammaspektrometrie und zu relevanten Unsicherheiten wird in der DIN 25457-1 auf die DIN EN ISO 20042 /DIN 22/ verwiesen.

2.9.3.1 Gammaspektrometrie an Materialproben

Die Gammaspektrometrie an Materialproben setzt eine Probenentnahme voraus. Die (Frei-)Messung wird in der Regel in einem Laborumfeld durchgeführt, so dass beispielsweise von einer besseren Abschirmung und somit einem geringeren Nulleffekt profitiert werden kann, was bei gleichbleibenden Messzeiten zu einer Reduzierung der Nachweisgrenze führt bzw. führen kann. Das Verfahren wird im Rahmen der Freigabe für unterschiedliche Aufgaben genutzt. Hierzu gehören beispielsweise

- die Ermittlung des Gemischs gammastrahlender Radionuklide und deren räumlicher Verteilung anhand von Stichproben aus einer größeren Materialcharge,

¹⁷ In der DIN 25457-1:2014-12 wurde auch die Alpha-Spektrometrie an Materialproben als spektrometrisches Messverfahren behandelt. Dieses ist allerdings nicht mehr Gegenstand der derzeit gültigen DIN 25457-1. Da auch in den weiteren Teilen der DIN 25457 nur wenige Verweise zur Alpha-Spektrometrie aufgeführt werden, wird die Alphaspektrometrie in dem vorliegenden Kapitel nicht explizit berücksichtigt.

- die Prüfung der Einhaltung der Freigabewerte im Entscheidungsverfahren anhand einer homogenisierten (Schmelz-)Probe oder
- die Prüfung einer größeren Anzahl von Proben unter Verwendung statistischer Auswerteverfahren (siehe Kapitel 5).

Einflussgrößen für die Aktivitätsbestimmung

Gemäß Kapitel 8.3.1.2 der DIN 25457-1 sind die folgenden Unsicherheiten von Relevanz für die Gammaskpektrometrie an Materialproben:

- Für Nulleffektkorrekturen müssen die Messunsicherheiten quantifiziert und berücksichtigt werden. Dies gilt auch für Interferenzkorrekturen durch überlappende Störlinien im Gammaskpektrum.
- Bei Radionukliden mit Kaskadenzerfällen sollten die Korrekturfaktoren und deren Abhängigkeit von Detektor und Probengeometrie bekannt sein. Diese Korrekturfaktoren und deren Unsicherheiten sollten bei der Auswertung berücksichtigt werden.
- Unterschiede zwischen der räumlichen Verteilung der tatsächlich vorliegenden Aktivität und der bei der Kalibrierung angenommenen Aktivitätsverteilung.
- Unterschiede zwischen der tatsächlichen Probe und dem Kalibrierstand hinsichtlich Dichte und Material.

Die Messzeiten für die Entscheidungsmessung müssen so gewählt werden, dass die Nachweisgrenzen, bestimmt nach Vorgaben der DIN EN ISO 11929, nicht höher als die im Freigabeverfahren vorgegebenen Größen liegen.

Anforderungen an den Detektor und die Messeinrichtung

Gemäß Teil 1 der DIN 25457 muss die Messung der Probenaktivität mit einem Halbleiterdetektor mit einer ausreichend guten Energieauflösung erfolgen. Als Referenz wird die Gammalinie mit einer Energie von 1332 keV (Energie des $2^+ \rightarrow 0^+$ Übergang in Ni-60 nach Beta-Zerfall von Co-60) angeführt, für die die Energieauflösung unter 2,5 keV sein muss. Sind niederenergetische Gammaquanten mit Energien unterhalb von 80 keV nachzuweisen, so muss ein Detektor mit einem Kristall mit möglichst dünner Totschicht und einem Fenster mit möglichst geringer Absorption verwendet werden. Es wird aufgeführt, dass gerade für solche niederenergetischen Gamma-Strahler eine besonders gute Übereinstimmung mit den Randbedingungen der Kalibrierung (z. B. hinsichtlich

Geometrie oder Dichte) notwendig ist. Für weitere Hinweise zu Anforderungen an den Detektor wird auf die Norm DIN EN ISO 20042 /DIN 22/ verwiesen.

Anforderungen an den Messaufbau und die Messgeometrie

In Kapitel 8.3.1.5.1 der DIN 24457-1 wird dargelegt, dass die Messungen in einem Bereich mit möglichst geringer Untergrundstrahlung und mit einer geeigneten Abschirmung durchgeführt werden müssen. Zudem muss auf eine möglichst konstante und möglichst geringe Nulleffektzählrate für die bei den Entscheidungsmessungen wichtigen Gamma-Linien über die Dauer der Proben- und Nulleffektmessung geachtet werden.

In Kapitel 8.3.1.5.2 der DIN 25457-1 wird gefordert, dass die auszuwertende Probe in die durch das Kalibrationsverfahren festgelegte Sollposition gebracht werden muss. Es wird angemerkt, dass mechanische Erschütterung, starke Geräuscheinwirkungen, starke Schwankungen von Umgebungsbedingungen oder hochfrequente Störungen in der Spannungsversorgung die Energieauflösung verschlechtern und zu Messfehlern führen können. Eine konkrete, daraus resultierende Anforderung wird nicht formuliert.

Anforderungen an die Kalibrierung und Qualitätssicherung

Die DIN 25457-1 fordert für die Messeinrichtung zwei Arten der Kalibrierung:

- Energiekalibrierung der Messeinrichtung für eine hinreichend gute Korrelation zwischen den Messkanälen und der Photonenenergie:
Diese Energiekalibrierung muss mit geeigneten Kalibrierquellen vorgenommen werden. Die von der Kalibrierquelle emittierten Spektrallinien müssen den interessierenden Energiebereich möglichst gleichmäßig abdecken.
- Effizienzkalibrierung zur Umrechnung der gemessenen Nettopeakflächen der Spektrallinien in die Aktivität der Radionuklide:
Grundsätzlich kann diese sowohl experimentell als auch rechnerisch erfolgen. Zwingende Voraussetzung für eine rechnerische Kalibrierung ist eine vorherige Charakterisierung des Detektors. Eine experimentelle Kalibrierung hat den Nachteil, dass sie jeweils nur für die Geometrie, Dichte und Materialzusammensetzung der verwendeten Referenzquelle gültig ist. Die DIN 25457-1 verweist auf die DIN EN ISO 20042 für weitere Festlegungen hinsichtlich der Effizienzkalibrierung.

Gemäß Kapitel 8.3.1.5.2 der DIN 25457-1 muss darauf geachtet werden, dass durch die Proben weder der Detektor noch seine Umgebung kontaminiert werden. Zudem dürfen sich in der Nähe der Messanordnung keine weiteren radioaktiven Proben befinden, die das Messergebnis beeinflussen.

Die Berechnung der Nachweis-, Erkennungsgrenze und der oberen Grenze des Überdeckungsintervalls muss nach DIN EN ISO 11929 erfolgen. Für weitere Hinweise wird auf DIN EN ISO 20042 verwiesen.

Es wird darauf verwiesen, dass in der Praxis zur Auswertung gammaspektrometrischer Messungen kommerzielle Programme eingesetzt werden. Die DIN 25457-1 führt einige Anforderungen an solche Programme auf, beispielsweise eine Bestimmung der charakteristischen Grenzen nach DIN EN ISO 11929 unter Berücksichtigung der Unsicherheiten bei den Eingangsgrößen oder eine implementierte Radionuklidbibliothek mit wesentlichen Informationen zu den zu untersuchenden gamma-strahlenden Radionukliden. Für die Auswertung der Spektren wird auf DIN EN ISO 20042 verwiesen.

In Kapitel 8.3.1.8 der DIN 25457-1 werden Anforderungen an wiederkehrende Prüfungen bzw. Kalibrierungen festgelegt bzw. aufgeführt, unter welchen Voraussetzungen Prüfungen und/oder Kalibriermessungen zu erfolgen haben. Bezüglich der hierfür zu berücksichtigenden Intervalle wird wie folgt unterschieden:

- Maßnahmen, die vor erstmaliger Nutzung eines Gammaskpektrometers sowie nach dessen Veränderung oder Reparatur zu erfolgen haben: Hierzu gehören beispielsweise die Messung des Nulleffekts, eine Energiekalibrierung und eine Halbwertsbreitenkalibrierung.
- Maßnahmen, die mindestens arbeitstäglich zu erfolgen haben: Hierzu gehören beispielsweise eine Kontrolle auf augenscheinliche Beschädigungen oder eine visuelle Kontrolle der Peakform.
- Maßnahmen, die mindestens monatlich oder bei seltener Nutzung zu Beginn/Ende einer Messkampagne und nach einem Wiederabkühlen des Detektors zu erfolgen haben: Hierzu gehören beispielsweise eine Kontrolle der Effizienzkalibrierung des Messgeräts mit einem geeigneten Kontrollstandard oder die Messung des Nulleffekts.
- Mindestens jährlich und bei Verdacht auf Kontamination und Veränderungen an den Abschirmungen muss eine Messung des Nulleffekts erfolgen.

In Kapitel 8.3.1.8 der DIN 25457-1 wird dargelegt, dass zur Plausibilitätsprüfung der Messergebnisse verschiedene Gamma-Linien des gleichen Nuklids herangezogen werden müssen. Auch für die Ergebnisse der Nuklide einer Zerfallsreihe muss eine solche Kontrollbetrachtung durchgeführt werden, sofern das radioaktive Gleichgewicht nicht gestört ist.

Die Teilnahme an Ringversuchen zur externen Qualitätssicherung wird als sinnvoll eingeschätzt. Um frühzeitig Veränderungen der Messeinrichtung zu erkennen, wird die Nutzung von Qualitätsregelkarten empfohlen, in denen beispielsweise die zeitliche Entwicklung des Nulleffekts oder der Halbwertsbreite dokumentiert wird.

2.9.3.2 In-situ Gammaskpektrometrie

Bei der in-situ Gammaskpektrometrie wird die vom Messobjekt emittierte Photonenstrahlung direkt am Messobjekt, beispielsweise eine Wand, gemessen. Wesentliche Vorteile des Messverfahrens sind eine schnelle Durchführung (da keine Probenaufbereitung notwendig ist), eine Reproduzierbarkeit der Messergebnisse (da die Messung zerstörungsfrei erfolgt), eine Erfassung eingedrungener oder überdeckter Aktivität und eine hohe Repräsentativität der erzielten Messergebnisse. Aufgrund der verhältnismäßig geringen Detektoreffizienz sind die Messzeiten im Vergleich zu zählenden Messverfahren oder solchen Messverfahren, für die Großflächendetektoren zum Einsatz kommen (z. B. Freimessanlagen), vergleichsweise lang.

In der Praxis wird zwischen einem kollimierten und unkollimierten Gammaskpektrometer für in-situ Messungen unterschieden. Durch einen Kollimator wird der effektive Sichtbereich des Detektors signifikant eingeschränkt werden, was u. a. den Nulleffekt reduzieren kann. Allgemein wird in der Normenreihe DIN 25457 die Nutzung eines kollimierten Messgerätes für die meisten Anwendungen empfohlen. Unter geeigneten Randbedingungen können Messungen aber auch mit einem unkollimierten In-situ Gammaskpektrometer erfolgen. Beispielsweise wird in der Norm DIN 25457-7 für Direktmessungen an Bodenflächen explizit aufgeführt, dass Entscheidungsmessungen auch ohne Kollimator durchgeführt werden können, sofern es die lokalen Gegebenheiten zulassen (z. B. keine seitlichen Störstrahler).

In Kapitel 8.3.2.1 der Norm DIN 25457-1 wird angemerkt, dass normative Festlegungen für die in-situ Gammaskpektrometrie auch auf Fassscanner zu übertragen sind.

Einflussgrößen für die Aktivitätsbestimmung

In Kapitel 8.3.2.2 der DIN 25457-1 wird dargelegt, dass prinzipiell die für die Laborgammaspektrometrie relevanten Unsicherheiten auch für die in-situ Gammaskpektrometrie bei der Bewertung der Messergebnisse berücksichtigt werden müssen. Es wird allerdings darauf hingewiesen, dass die Unsicherheiten hinsichtlich der räumlichen Verteilung oftmals den führenden Beitrag stellen, wohingegen Korrekturen von Kaskadenzerfällen aufgrund des größeren Abstands zwischen Detektor und Messobjekt vernachlässigbar sind.

Anforderungen an den Detektor und die Messeinrichtung

Gemäß Kapitel 8.3.2.4 der DIN 25457-1 sollte aufgrund der besseren Energieauflösung ein Halbleiterdetektor verwendet werden. Dieser sollte nur eine geringfügige Richtungsabhängigkeit aufweisen und eine relative Effizienz¹⁸ von etwa 20 – 50 % besitzen. Es wird angemerkt, dass unter günstigen Randbedingungen (z. B. in Bezug auf den Nuklidvektor) trotz ihrer vergleichsweise guten Energieauflösung auch Szintillationsdetektoren anstelle von Germaniumdetektoren verwendet werden können. Der Detektor sollte derart aufgebaut sein, dass Strahlung aus dem hinteren Halbraum grundsätzlich abgeschirmt werden kann.

Werden Kollimatoren genutzt, sollten diese üblicherweise über eine Massenbelegung von 40 – 50 g/cm² senkrecht zur Symmetrieachse des Detektorkristalls verfügen. Der Sichtbereich sollte nicht zu klein gewählt werden. In der Praxis wird oftmals ein Öffnungswinkel von 45 – 55° relativ zur Symmetrieachse genutzt.

Anforderungen an den Messaufbau und die Messgeometrie

Gemäß Kapitel 8.3.2.4 der DIN 25457-1 müssen zur Bestimmung des Aufpunktes der Messfläche sowie zur Abstandsmessung geeignete Einrichtungen verwendet werden. Es wird angemerkt, dass durch die Nutzung geeigneter Hilfsmittel wie z. B. Laser-Distanzmesser keine dominierenden Unsicherheiten entstehen. Die genaue Auslegung

¹⁸ Die relative Effizienz eines Gammadetektors (Germaniumdetektor) beschreibt dessen Wirkungsgrad im Vergleich zu einem NaI-Detektor (Szintillator) mit einer Kantenlänge von drei Zoll. Die Angabe bezieht sich auf eine Punktquelle in einem Abstand von 25 cm, die Photonen mit einer Energie von 1,33 MeV emittiert.

des Kollimators in Bezug auf Öffnungswinkel und Massenbelegung sollte in Abhängigkeit der Messaufgabe und den Begebenheiten am Messort erfolgen.

Für kollimierte in-situ Gammadetektoren muss die Tragkonstruktion den Detektor und den Kollimator voneinander getrennt und mit hoher Stabilität exakt reproduzierbar aufnehmen können. Zudem muss bei der Messung von Bodenflächen bei der Tragkonstruktion auf eine Optimierung der Aspekte Handhabbarkeit und Stabilität bei gleichzeitiger Sicherstellung eines nicht unzulässig abgeschirmten Sichtbereiches geachtet werden.

Die Verarbeitung der Messsignale geschieht in einer kompakten Messelektronik – bestehend aus Hochspannungsversorgung, Spektroskopieverstärker, Analog-Digital-Wandler, Vielkanalanalysator und Datenspeicher – die gleichzeitig auch die Strom- bzw. Spannungsversorgung für den Detektor darstellt. Damit sollte mindestens die aktuelle Messung gespeichert werden können. Es ist zweckmäßig, wenn die gesamte Messeinrichtung auch netzunabhängig betrieben werden kann. Eine elektronische Stabilisierung des Spektrums sollte zur Reduzierung thermischer Effekte vorgesehen werden.

Der Abstand zum Messobjekt muss im Rahmen des Möglichen so gewählt werden, dass der Sichtbereich des Detektors und die vorgegebene Messfläche ähnlich groß sind und die Messfläche vollständig im Sichtbereich liegt.

Gemäß DIN 25457-4 wird bei Messungen an Gebinden (Fassscanner) in der Regel das Messsystem, bestehend aus Detektor und Kollimator, mit seiner Symmetrieachse rechtwinklig zur Rotationsachse angeordnet. Die Messung kann statisch (stabil stehendes Gebinde) oder dynamisch (relative Rotation) erfolgen. Bei statischer Durchführung der Messung wird ein Detektor an einer Halterung fixiert, die gewährleistet, dass die Position des Detektors zum Gebinde festgelegt ist und mit der Kalibrierposition übereinstimmt. Bei dynamischen Messungen sollten der Kollimator und der Abstand zum Gebinde derart gewählt werden, dass der Sichtbereich die gesamte Breite des Gebindes erfasst.

Anforderungen an die Kalibrierung und Qualitätssicherung

Grundsätzlich gelten für die Auswertung der Gammaspektren zunächst die gleichen Anforderungen, wie sie auch für Gammaspektrometer an Labormessplätzen gestellt werden. Dies betrifft beispielsweise die Anforderungen an die in bestimmten Intervallen durchzuführenden Prüfungen.

Die Effizienzkalibrierung erfordert im Vergleich zu Labormessungen oftmals einen höheren Aufwand, da u. a. sichergestellt werden muss, dass die räumliche Verteilung der Radionuklide im Messobjekt durch die der Kalibrierung zugrunde liegenden Annahmen abgedeckt wird. Unsicherheiten hinsichtlich der genauen Verteilung der Aktivität im Messgut und die Abweichung dieser im Vergleich zur für die Kalibrierung unterstellten Geometrie stellen in der Regel den dominierenden Beitrag zur Unsicherheit bei der Auswertung von Entscheidungsmessungen dar.

Eine korrekte Totzeitkorrektur über die gesamte Messkette ist sicherzustellen.

Bei Messungen an Gebinden wird mit Hilfe von Messgut-Blindproben mit definiert eingebrachten Kalibrierstrahlern für die unterschiedlichen Messgutarten der Kalibrierfaktor für das bzw. die Schlüsselnuklid(e) bestimmt.

2.9.4 Gesamt-Gamma-Aktivitätsmessung

Bei einer Gesamt-Gamma-Aktivitätsmessung wird die gesamte Gamma-Strahlung detektiert, die vom Messobjekt emittiert wird. Aus der integralen Intensitätsmessung und unter Berücksichtigung begründeter Annahmen wird anschließend die entsprechende Gamma-Aktivität berechnet. Die Messung wird mit Freimessanlagen (FMA) durchgeführt, die über eine meist quaderförmige Messkammer verfügen, in der ein Wägesystem integriert ist. Nahezu der vollständige Raumwinkel der Messkammer wird durch großflächige Plastiksziintillationsdetektoren erfasst. Nach außen ist die Kammer zur Reduzierung des Einflusses der Umgebungsstrahlung mit einer Abschirmung ausgestattet. Das Messgut kann über Flügeltüren in die Messkammer eingeführt werden. Als Behälter für das zu untersuchende Messgut können beispielsweise 200-Liter-Fässer, 400-Liter-Fässer, Boxen oder Big Bags genutzt werden. Die Türen der Messkammer werden für die Messung geschlossen, nach DIN 25457-1 sind aber auch Messungen bei nicht-geschlossenen Türen grundsätzlich möglich (hieraus ergeben sich aber zusätzliche Anforderungen für die Unsicherheitsbetrachtung). Notwendige Voraussetzung für die Anwendbarkeit ist ein dem Messgut zugehöriger Nuklidvektor, der über einen signifikanten Anteil von Radionukliden mit ausreichend hoher Gamma-Dosisleistungskonstante verfügt. In der Praxis können kurze Messzeiten in der Größenordnung einer Minute erreicht werden, so dass die Massenströme vergleichsweise hoch sind.

Bei der Gesamt-Gamma-Aktivitätsmessung handelt es sich um ein zählendes Verfahren. Zur Bestimmung der massenspezifischen Aktivität werden u. a. Kalibrierfaktoren, der

heranzuziehende Nuklidvektor und die Messwirksamkeit im Nuklidvektor angenommener gammastrahlender Radionuklide berücksichtigt.

Einflussgrößen für die Aktivitätsbestimmung

Alle Eingangsgrößen und damit verbundene Unsicherheiten sind bei der Auswertung von Messungen mit Freimessanlagen im Vorfeld vollständig zu berücksichtigen. Eine wichtige Größe, die das Messergebnis beeinflusst, ist die Selbstabsorption. Dies trifft insb. bei großvolumigen Gebinden mit Nettomassen bis über mehrere 100 kg zu.

Gemäß DIN 25457-1 sind die folgenden Unsicherheiten relevant:

- Unterschiede zwischen der räumlichen Verteilung der tatsächlich vorliegenden Aktivität und der bei der Kalibrierung zugrunde gelegten Verteilung
- Unterschiede bei der Geometrie des Messgutes zwischen Kalibrierung und Messung: Dies betrifft beispielsweise den Füllgrad der Messgeometrie oder die Beschaffenheit des Messguts
- Unterschiede zwischen dem tatsächlich vorliegenden und dem für die Kalibrierung verwendeten Nuklidgemisch
- Schwankungsbreite des Nulleffekts
- Sofern ein Abzug der natürlichen Aktivität erfolgt, sind Schwankungen bei dem Gehalt an natürlichen Radionukliden zu betrachten – dies trifft vor allem auf mineralische Chargen zu.

Anforderungen an den Detektor und die Messeinrichtung

Gemäß DIN 25457-1 verfügt eine FMA typischerweise über 6 bis 24 Szintillationsdetektoren. Die Hochspannungsversorgung erfolgt entweder einzeln oder einheitlich. Diskriminatorschwellen sind für jedes Detektorelement einzeln einstellbar. Die nach außen gerichtete Abschirmung der Messkammer wird durch eine mindestens 5 cm dicke Bleischicht oder eine mindestens 10 cm dicke Stahlschicht erreicht. Die FMA muss grundsätzlich in der Lage sein, Reststoffe in verschiedenen Behältern mit Volumina bis 1 m³ und Nettomassen bis über mehrere 100 kg messtechnisch zu bewerten.

Anforderungen an den Messaufbau und die Messgeometrie

Die Masse jedes Gebindes einer zu prüfenden Charge von Reststoffen wird über die eingebaute Waage ermittelt und in der Software die Nettomasse nach Abzug der Tara-masse berechnet.

Gemäß DIN 25457-1 beeinflusst die Form und Anordnung des Messgutes den Messeffekt, beispielsweise durch Selbstabschirmung. Grundsätzlich muss nach DIN 25457-1 das Messgut nach Messgutart (z. B. Rohrleitungen) sortiert werden, so dass Chargen mit hinreichend gleicher Geometrie und Selbstabschirmung entstehen.

Anforderungen an die Kalibrierung und Qualitätssicherung

In DIN 25457-1 wird aufgeführt, dass während der Messpausen bei geschlossener, leerer Messkammer die detektorspezifische Nulleffektzählrate der Detektoren erfasst werden kann. Dies erlaubt es insb. signifikante Änderungen des Nulleffektes zu erkennen, zu erfassen und ggfs. für nachfolgende Messungen zu berücksichtigen.

Gemäß DIN 25457-1 müssen die Kalibrierungen (Energiekalibrierung und Effizienzkalibrierung) der Freimessanlage mit Referenzstrahlquellen durchgeführt werden. Die Freimessanlage misst die Aktivität grundsätzlich in Leitnuklidäquivalenten, wofür in der Regel Co-60 herangezogen wird. Die Effizienzkalibrierung muss anhand eines Referenzmessgutes oder mittels eines geeigneten Kalibrierkörpers vorgenommen werden. Es wird zwischen einer Basiskalibrierung zur Bestimmung der Detektoreffizienz und einer Geometriekalibrierung zur Berücksichtigung geometrischer Faktoren (Gebindeabmessung, Masse, Füllhöhe, etc.) unterschieden. Die Geometriekalibrierung kann mittels eines Referenzmessguts, eines geeigneten Kalibrierkörpers oder auch durch numerische Simulationen vorgenommen werden.

In Kapitel 8.4.8 der DIN 25457-1 werden Anforderungen aufgeführt, unter welchen Voraussetzungen Prüfungen und/oder Kalibriermessungen zu erfolgen haben. Bezüglich der hierfür zu berücksichtigenden Intervalle wird wie folgt unterschieden:

- Maßnahmen, die vor erstmaliger Nutzung einer Gesamt-Gamma-Messeinrichtung zu erfolgen haben – hierzu gehören beispielsweise die Messung des Nulleffekts, eine Basis-Effizienzkalibrierung mit geeigneten kalibrierten Standards oder eine Geometriekalibrierung.

- Maßnahmen, die mindestens halbjährlich zu erfolgen haben – hierzu gehören beispielsweise eine Kontrolle der Effizienzkalibrierung des Messgerätes mit einer geeigneten Kontrollprobe und eine Kontrolle der Kalibrierung der Waage.
- Maßnahmen, die arbeitstäglich zu erfolgen haben – hierzu gehören beispielsweise eine visuelle Prüfung der Sauberkeit der Messkammer und eine Funktionsprüfung mit einer Kontrollprobe.
- Mehrfach arbeitstäglich hat eine Messung des Nulleffektes zu erfolgen. Dies ist insb. dann notwendig, wenn schwankende Strahlungsfelder vorliegen oder Kontaminationsgefahr durch das Messgut besteht.

In der DIN 25457-1 wird die Führung von Kontrollkarten zur Hinterlegung von Informationen zu Nulleffekt, Effizienzkalibrierungen oder der Kalibrierung der Waage empfohlen, um frühzeitig sowohl kurzfristige als auch allmähliche Veränderungen der Messeinrichtung zu erkennen.

2.9.5 Zusammenfassung

Die wesentliche Voraussetzung für die Freigabe eines radioaktiven Stoffes ist, dass die obere Grenze des Überdeckungsintervalls den heranzuziehenden Richtwert (Freigabewert) unterschreitet. Daraus folgt unmittelbar die wesentliche Eignungsvoraussetzung, dass das einzusetzende Messverfahren diese Anforderung auch erfüllt. Dies setzt voraus, dass die Nachweisgrenze kleiner als der Richtwert ist. Zudem müssen alle relevanten Unsicherheiten, die den Messprozess oder die Bestimmung der Aktivität aus dem Messwert beeinflussen, bestimmt oder abdeckend (konservativ) abgeschätzt werden. Diese Anforderungen sind elementar und verfahrensunabhängig.

Eine triviale Voraussetzung für die Verfahrenseignung ist, dass die emittierte Strahlung der relevanten Radionuklide bzw. des Schlüsselnuklids mit dem Messgerät auch zu erfassen ist. Gerade bei Alpha- oder niederenergetischer Beta-Strahlung ist die Reichweite der Teilchen gering, so dass bereits die Dicke des Eintrittsfenster eine wesentliche Barriere für die Verfahrenseignung darstellen kann.

Die Berechnung eines Aktivitätswerts auf Basis des Messwertes erfolgt mit Hilfe eines Modells. Die benötigten Eingangsparameter sind somit modell- und somit auch verfahrensabhängig. Sie hängen sowohl von intrinsischen Eigenschaften des Messgerätes als auch von Randbedingungen ab, die sich für die Messung ergeben (z. B. Geometrie des

Messgutes). Quantifiziert werden sie, wie in der Normenreihe DIN 25457 dargelegt, durch Kalibrationen. Diese Kalibrationen stellen sicher, dass die Messungen zu realistischen Aktivitätswerten führen und dass die Unsicherheiten für die Konformitätsprüfung ausreichend klein sind. In einigen Fällen können durch konservative Annahmen die zum Teil aufwendigen Kalibrationen und Unsicherheitsbetrachtungen vermieden bzw. der entsprechende Aufwand reduziert werden.

Je nach Messaufbau und Messgeometrie können sich weitere Anforderungen ergeben, die in der Normenreihe DIN 25457 dargelegt werden. Ein weiterer wichtiger Punkt im Kontext der Verfahrenseignung sind qualitätssichernde Maßnahmen, die beispielsweise wiederkehrende Prüfungen in bestimmten zeitlichen Intervallen erfordern.

Die Normenreihe DIN 25457 verweist an einigen Stellen für weitere Konkretisierungen der Anforderungen (z. B. für die Gammaskpektrometrie) auf weitere Normen. Die Normenreihe ist in diesem Sinne nicht als in sich geschlossen zu betrachten.

2.10 Normenreihe zur Bestimmung der charakteristischen Grenzen bei Messungen ionisierender Strahlung (DIN EN ISO 11929)

Die DIN EN ISO 11929 trifft Aussagen zur Bestimmung der charakteristischen Grenzen (Erkennungsgrenze, Nachweisgrenze und Grenzen des Überdeckungsintervalls) bei Messungen ionisierender Strahlung. Die Normenreihe setzt sich aktuell (Stand: Mai 2025) aus vier Teilen zusammen:

- Teil 1: Elementare Anwendungen (DIN EN ISO 11929-1:2021) /DIN 21a/
- Teil 2: Fortgeschrittene Anwendungen (DIN EN ISO 11929-2:2021) /DIN 21b/
- Teil 3: Anwendung von Entfaltungstechniken (DIN EN ISO 11929-3:2021) /DIN 21c/
- Teil 4: Anwendungsleitfaden (DIN EN ISO 11929-4:2024) /DIN 24b/

Die Norm richtet sich an keinen bestimmten metrologischen Messzweck, sie legt vielmehr eine mathematische und statistische Basis grundlegender Größen, die eine fundierte Entscheidung auf Basis einer Messung erst ermöglichen. Für die Konformitätsprüfung in der Freigabe sind insb. die Nachweisgrenze und die obere Grenze des Überdeckungsintervalls von elementarer Bedeutung. Einerseits wird die Nachweisgrenze für die Eignungsbetrachtung herangezogen, andererseits stellt die obere Grenze des Überdeckungsintervalls die Größe dar, die mit dem Richtwert (Freigabewert) zu vergleichen

ist. Da in der DIN 25457 für Unsicherheitsbetrachtungen und für die Bestimmung der charakteristischen Größen auf die DIN EN ISO 11929 verwiesen wird, sollen fundamentale Aussagen der Normenreihe knapp zusammengefasst werden.

In Kapitel 5.2 der DIN EN ISO 11929-1 wird das grundlegende Ziel der Auswertung einer Messung erläutert: „Das Ziel der Auswertung einer Messung ist, einen Schätzwert y einer Messgröße Y und der ihm zugeordneten Standardunsicherheit $u(y)$ zu erhalten.“

Die Standardunsicherheit kann bei nicht-korrelierten Eingangsgrößen unter Berücksichtigung von Sensitivitätskoeffizienten mit Hilfe des Gesetzes zur Fortpflanzung von Unsicherheiten bestimmt werden. Bei korrelierten Eingangsgrößen sind zusätzlich die Kovarianzen zu berücksichtigen.

In Kapitel 5.7 der DIN EN ISO 11929-1 wird für die Nachweisgrenze festgehalten: „[...] die Nachweisgrenze erlaubt eine Entscheidung, ob ein Messverfahren den Anforderungen genügt und daher für den Messzweck geeignet ist.“

Das Überdeckungsintervall ist definitionsgemäß zunächst mehrdeutig (siehe auch Anhang A). Erst durch weitere Festlegungen kann eine Eindeutigkeit erreicht werden. In der Praxis haben sich beispielsweise das kürzeste Überdeckungsintervall oder das probabilistisch symmetrische Überdeckungsintervall etabliert. Zur Festlegung, welches Überdeckungsintervall heranzuziehen ist, wird in der DIN 11929-1 angemerkt: „Die Entscheidung, ob das probabilistisch symmetrische oder das kürzeste Überdeckungsintervall zu berechnen ist, liegt bei der Behörde oder beim Auftraggeber.“

2.11 Dokumente außerhalb der kerntechnischen Regelwerkspyramide

Auch außerhalb der kerntechnischen Regelwerkspyramide existieren Dokumente in Form von Informationspapieren oder Leitfäden, die die Verfahrenseignung thematisieren und ggfs. eine praktische Relevanz haben können. Beispielhaft werden in diesem Abschnitt drei solcher Dokumente hinsichtlich ihrer Aussagen zu messtechnischen Anforderungen zusammengefasst.

2.11.1 Informationspapier der Entsorgungskommission zur Freigabe radioaktiver Stoffe und Herausgabe nicht radioaktiver Stoffe aus dem Abbau von Kernkraftwerken

Die ESK hat im Jahr 2022 ein Informationspapier zur Freigabe radioaktiver Stoffe und Herausgabe nicht radioaktiver Stoffe aus dem Abbau von Kernkraftwerken veröffentlicht /ESK 22/. Dieses Dokument gibt u. a. allgemeine Informationen zu der Freigabe, zu Freigabepfaden und zum praktischen Ablauf der Freigabe.

Es wird dargelegt, dass die Voruntersuchungen (radiologische Charakterisierung) auch dazu dienen, die zu berücksichtigenden Parameter für das Entscheidungsverfahren festzulegen. Die Entscheidungsmessung hat im Rahmen des behördlich zugestimmten Betriebsreglements und des behördlichen Freigabebescheides unter Nutzung geeigneter Messverfahren zu erfolgen. Die Kalibrierung der Messgeräte erfolgt auf Basis der in der Voruntersuchung ermittelten Daten. Es wird aufgeführt, dass für die Umrechnung der Messwerte in vorliegende Aktivitätswerte die Kalibrierungen herangezogen werden.

2.11.2 Freigabeleitfaden des Umweltministeriums Baden-Württemberg

Das Ministerium für Umwelt, Klima und Energiewirtschaft in Baden-Württemberg (UMBW) hat im Jahr 2020 einen Leitfaden zur Freigabe nach StrSchV veröffentlicht /UMBW 20/, der die gesetzlichen Vorgaben des Strahlenschutzrechts, die Zuständigkeiten und Aufgaben des UMBW und die baden-württembergischen Verfahren zur Umsetzung der Freigabe in den kerntechnischen Anlagen und Einrichtungen zusammenfasst. In diesem Leitfaden wird in Kapitel 4.1.5 zunächst festgestellt:

„Die Entscheidungsmessung darf nur mit dafür geeigneten und zugelassen Messgeräten durchgeführt werden. [...] Bei der Messung muss 100 % der freizugebenden Masse und mindestens 90 % der Fläche des Messobjekts erfasst sein. Der Vergleich mit den Freigabewerten nach Anlage 4 Tabelle 1 StrlSchV erfolgt unter Betrachtung von Nuklidvektoren, Korrelationsfaktoren und Grenzimpulsraten.“

Das Kapitel 6 des Leitfadens richtet sich explizit an Messverfahren für die Freigabe. Es wird zunächst festgestellt, dass die folgenden Messverfahren im Rahmen des Freigabeverfahrens genutzt werden können¹⁹:

- Direktmessung der Oberflächenaktivität mittels Kontaminationsmonitor
- Indirekte Messung der Oberflächenaktivität mittels Wischtest
- Spektrometrische Untersuchung nach Probenahme
- In-situ Gammaskpektrometrie
- Gesamt-Gamma-Messung mittels Freimessanlage

Außerdem wird aufgeführt, dass die Eignung dieser Messverfahren vom Freigabepfad abhängen kann. In dem Leitfaden ist eine Tabelle hinterlegt, die übersichtlich die Eignung der im Rahmen der Messungen im Freigabeverfahren verwendeten Messverfahren für unterschiedliche Stoffe und Gegenstände aufführt.

Da die Messverfahren jeweils nicht auf alle Strahlungsarten sensitiv sind (mit in-situ Gammaskpektrometern ist beispielsweise Alpha- oder Beta-Strahlung nicht nachweisbar) und zudem nicht alle Verfahren für die eindeutige Identifizierung der Radionuklide geeignet sind, ist es vorab notwendig, die Nuklidzusammensetzung zu bestimmen: „Auf Basis der ermittelten Nuklidzusammensetzung werden abdeckende Auswerteparameter bestimmt, nämlich der Nuklidvektor für die Messung mittels Freimessanlage, die Korrelationsfaktoren für Messungen mittels Gammaskpektrometrie und die Grenzpulsraten für Messungen mittels Kontaminationsmonitor.“

In den weiteren Unterabschnitten werden u. a. die einzelnen Messverfahren kurz erläutert und wesentliche praktische Anwendungs- und Eignungskriterien aufgeführt. An einigen Stellen wird auf die Teile der DIN 25457 verwiesen, z. B. bezüglich der Probeentnahme für die Laborgammaskpektrometrie. Anforderungen, die sich explizit an die Messtechnik richten, werden in dem Leitfaden nicht durchgehend detailliert dargestellt bzw. begründet.

¹⁹ Diese Verfahrensauswahl stimmt mit den betrachteten Messverfahren der Normenreihe DIN 25457 überein.

2.11.3 Freigabeleitfaden des Fachverband für Strahlenschutz e. V.

Der Fachverband für Strahlenschutz e. V. hat am 8. Dezember 2005 den Leitfaden für die praktische Umsetzung des § 29 StrlSchV (Freigabeleitfaden)“ (kurz: FS-Freigabeleitfaden) veröffentlicht, der innerhalb des Fachverbandes vom Arbeitskreis Entsorgung (AKE) erstellt worden ist, und der allen am Verfahren Beteiligten als Orientierungshilfe dienen soll /AKE 05/. Dieser Freigabeleitfaden befindet sich in der Überarbeitung. Zum Zeitpunkt der Erstellung dieses Berichtes (Mai 2025) wurde die Neufassung noch nicht veröffentlicht.

Obschon dieser Leitfaden bereits etwa 20 Jahre existiert und sich die die Freigaberegungen in der Zwischenzeit weiterentwickelt haben, besitzen grundsätzliche Aussagen zu Anforderungen an die Messtechnik weiterhin Gültigkeit.

Ausgewählte Nachweisverfahren werden in Kapitel 5 des Freigabeleitfadens diskutiert. Hier wird zuvorderst erwähnt, dass zu den nutzbaren Messverfahren und anzuwendenden Messrastern eine Reihe von DIN-Normen existieren. Hierzu gehören (jeweils in ihrer damals gültigen Fassung) die DIN ISO 7503 (Teile 1 und 2), die DIN 25457 (Teile 1, 2, 4, 6 und 7) sowie die DIN 25482 (Teil 1). Als Voraussetzung für die Auswahl eines Messverfahrens wird im Leitfaden ausgeführt: „Die Messverfahren müssen so ausgewählt werden, dass der Nachweis der Einhaltung der Freigabewerte für alle in der jeweiligen Anlage oder Einrichtung relevanten Nuklide gelingt. Bei Anlagen mit komplexen Nuklidvektoren müssen daher zunächst die Schlüsselnuklide ermittelt werden und darauf aufbauend die abdeckenden Freigabewerte der Schlüsselnuklide. Erst danach kann das Messverfahren festgelegt werden.“

Im Leitfaden werden die folgenden Messmethoden bei passenden Randbedingungen als grundsätzlich geeignet aufgeführt:

- Direktmessung zum Nachweis der Oberflächenkontamination
- Indirekte Messung zum Nachweis der Oberflächenkontamination
- Gamma-Gesamtmessung
- In-situ Gammamessung
- Nuklidspezifische Gammamessung an Messchargen

Für diese Messverfahren werden im weiteren Verlauf des Leitfadens in unterschiedlichen Detaillierungsgraden Anforderungen aufgeführt. So wird beispielsweise für die Kontaminations-Direktmessung aufgeführt, dass das Verfahren nur dann angewendet werden kann, wenn die Oberfläche des Gegenstandes auch erfasst werden kann. Zudem wird die Erstellung einer Arbeitsanweisung empfohlen, in der u. a. darauf hingewiesen wird, dass Dämpfungsparameter und Messzeiten so zu wählen sind, dass die erforderliche Nachweisgrenze eingehalten wird.

Für die indirekten Messmethoden zum Nachweis der Oberflächenkontamination werden die Gammanuklidanalyse (im kerntechnischen Bereich) und die Flüssigszintillationsmessung (im Radionuklidlabor) hervorgehoben. In Sonderfällen (insb. bei Alpha- und reinen Beta-Strahlern) sind ggfs. spezielle Analysen notwendig.

Für die Gamma-Gesamtmessung wird die Nutzung einer detaillierten Messanweisung empfohlen. Für die in-situ Gammamessung werden als Voraussetzungen aufgeführt, dass eine hinreichend homogene Aktivitätsverteilung und eine hinreichende Kenntnis über die Eindringtiefe vorliegen.

Darüber hinaus werden in dem FS-Freigabeleitfaden Aussagen und Empfehlungen zum Freigabeverfahren in kerntechnischen und nicht-kerntechnischen Anlagen, zur Dokumentation und zu praktischen Handreichungen getroffen.

3 Analyse und Konsistenz-/Kompatibilitätsbetrachtung der Anforderungen im nationalen Regelwerk

Aufgrund der großen Massenströme steht hinsichtlich der Freigabe oftmals die Stilllegung der Kernkraftwerksflotte im Fokus – auch dem des öffentlichen Interesses. Aber auch sonstige kerntechnische Anlagen müssen zu einem gewissen Zeitpunkt stillgelegt werden. Des Weiteren werden auch in den Betriebsphasen radioaktive Stoffe erzeugt, die ggfs. der Freigabe zugeführt werden können. Außerdem ist die Freigabe ein wichtiger Aspekt für den Betrieb und den Rückbau strahlenschutzrechtlich angezeigter bzw. genehmigter Einrichtungen, zu denen beispielsweise auch nuklearmedizinische Einrichtungen gehören. Die Lagerkapazitäten – auch in den Landessammelstellen – sind beschränkt, und es gilt zudem der Grundsatz, dass radioaktive Stoffe, die der Freigabe zugeführt werden können, auch freigegeben werden müssen. Somit ist ein Minimierungsgebot für als radioaktive Stoffe zu entsorgende Materialien geboten. Die Freigabe unter Berücksichtigung des „De minimis“ Prinzips stellt hier ein etabliertes Werkzeug dar, das wesentlich zur Umsetzbarkeit des Nationalen Entsorgungsprogramms (insb. hinsichtlich der Endlagerung radioaktiver Abfälle in tiefengeologischen Formationen, siehe z. B. /BMU 25/) beiträgt.

Wie das vorangegangene Kapitel zeigt, werden aufgrund der hohen Bedeutung hohe Anforderungen an die Entscheidungsmessung als Grundlage für eine Freigabeentscheidung gestellt. Die daraus resultierenden Anforderungen an die Messtechnik wurden für ausgewählte Gesetze, Verordnungen, Leitfäden und weitere Dokumentenarten zusammengefasst. Hierbei zeigt sich zunächst, dass – wie zu erwarten – die Schwerpunkte dieser Anforderungen stark vom betrachteten Dokument und dessen Zielsetzung abhängen. Zudem spiegelt sich die hierarchische Stellung der Dokumente oftmals auch in der Detailtiefe wider. Zwischen den betrachteten Dokumenten gibt es, wie in Abb. 3.1 dargestellt, eine Vielzahl an explizit aufgeführten bzw. klar nachvollziehbaren Querverweisen.

Auf Ebene der allgemein verbindlichen Gesetzesebene werden messtechnische Anforderungen potenziell nur indirekt durch Bezug zur erforderlichen Schadensvorsorge nach dem Stand von W&T (AtG) bzw. durch Bezug zu zur Einhaltung der Schutzvorschriften nach dem Stand der Technik bzw. dem Stand von W&T (StrlSchG) tangiert. Zudem ist aufgrund des Interpretationsspielraums fragwürdig, ob diese Anforderungen grundsätzlich auch auf die Freigabe und Freimessungen zu übertragen sind. Einzig für die Stillle-

gung kerntechnischer Anlagen nach § 7 Abs. 3 AtG scheint diese Anforderung klar zuzutreffen.

Die Freigabe wird in der zum verbindlichen Regelwerk gehörenden StrlSchV geregelt, deren Regelungsrahmen umfasst auch grundsätzliche Aussagen zu messtechnischen Anforderungen. Die geforderte Eignung der für die Freigabe verwendeten Messverfahren bzw. Messgeräte impliziert, dass es auch unter Berücksichtigung des Standes von W&T keinerlei Hinweise gibt, dass das Messverfahren bzw. das für die Freimessung genutzte Messgerät zu nicht nachvollziehbaren (falschen) Messergebnissen führen darf. Insofern erscheint die Frage, ob die Regelungen im AtG (Schadensvorsorge) bzw. im StrlSchG (Einhaltung der Schutzziele) auch auf die Freigabe und die dafür genutzte Messtechnik zu übertragen sind, praktisch nicht relevant.

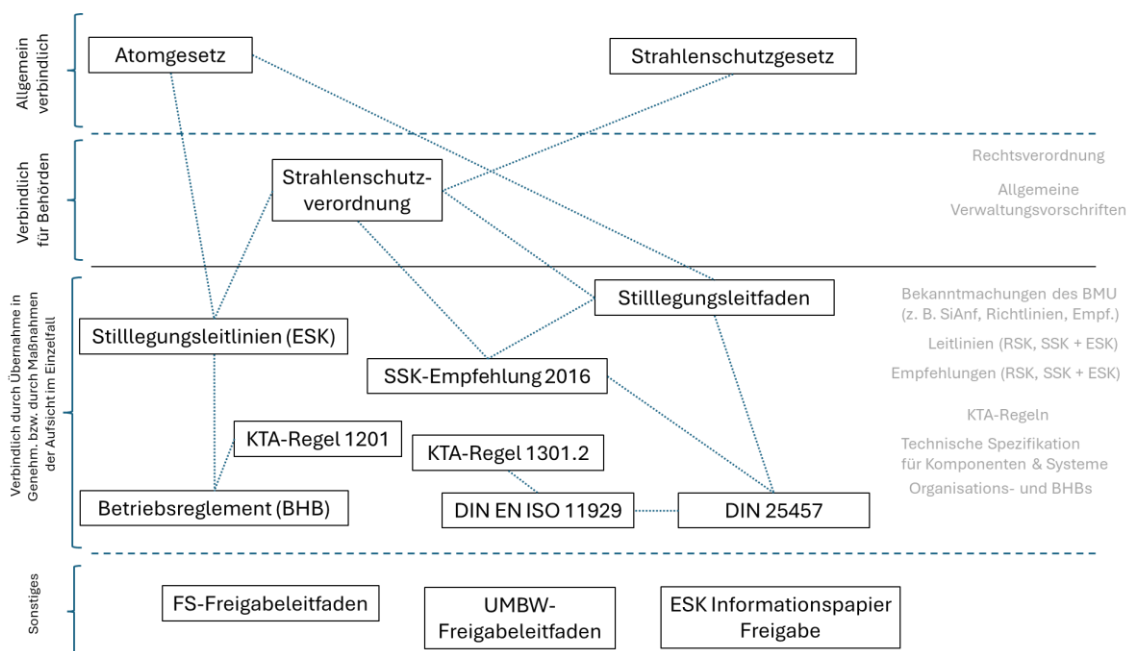


Abb. 3.1 Übersicht der Dokumente, die Bezug zu den messtechnischen Anforderungen nehmen und Darstellung der Querverweise zwischen den Dokumenten der kerntechnischen Regelwerkspyramide

Auf Ebene der Dokumente, die durch Übernahme in Genehmigungen bzw. durch Maßnahmen der Aufsicht im Einzelfall Verbindlichkeit erlangen können, sind zunächst der Stilllegungsleitfaden und die Empfehlungen der beratenden Kommissionen aufzuführen. Sowohl der Stilllegungsleitfaden als auch die Stilllegungsleitlinien geben die insb. für die Freigabepaxis wichtigen Bestimmungen der StrlSchV wieder und ergänzen diese um weitere Aspekte, die für die Betrachtung der Verfahrenseignung und Verfahrensauswahl relevant sind. So wird beispielsweise im Stilllegungsleitfaden darauf verwiesen, dass für

die Entscheidungsmessungen etablierte technische Verfahren zur Verfügung stehen und Beispiele hierfür genannt. In den Stilllegungsleitlinien wird zur Darlegung abgestimmter Regelungen und Vorgehensweisen, die das Freigabeverfahren betreffen, auf das BHB verwiesen. Die aufgeführte SSK-Empfehlung aus dem Jahr 2016 fasst grundsätzliche Aussagen zum Umgang mit Messunsicherheiten zusammen, nach denen beispielsweise die einseitige Irrtumswahrscheinlichkeit von Konformitätsprüfungen (zu denen beispielsweise auch die Entscheidungsmessung gehört) höchstens 5 % betragen sollte.

Die KTA-Regeln verweisen nur am Rande auf die Freigabe, beispielsweise im Kontext der Anforderungen an das Betriebsreglement (KTA 1201) oder im Kontext wiederkehrender Geräteprüfungen (KTA 1301.2). Derzeit gibt es Bestrebungen zur Überarbeitung der KTA-Regeln, um insb. der Tatsache Rechnung zu tragen, dass keines der in Deutschland gelegenen Kernkraftwerke mehr im Betrieb ist bzw. sich die noch bestehenden Kernkraftwerke in unterschiedlichen Phasen der Stilllegung befinden. Für eine solche Überarbeitung könnte möglicherweise auch eine stärkere Berücksichtigung der Freigabe zielführend sein, beispielsweise um alle wesentlichen Anforderungen und heranzuziehenden Dokumente zusammenzustellen.

Die Normenreihen der DIN 25457 und der DIN EN ISO 11929 sowie weitere Normen(-Reihen), auf die in diesen beiden Normenreihen verwiesen wird, sind für die Praxis von hoher Bedeutung. In ihnen werden einerseits die Grundlagen zu den in der Praxis wichtigen charakteristischen Größen und deren Berechnung (DIN EN ISO 11929) gelegt, zum anderen werden u. a. messverfahrensspezifische Anforderungen aufgeführt, die die entscheidende Grundlage zur Einschätzung der Verfahrenseignung bilden (DIN 25457).

Darüber hinaus existieren einige untersetzende Dokumente, die sich mit Anforderungen an Freimesstechnik im weiteren Sinne auseinandersetzen, die nicht zum kerntechnischen Regelwerk gehören. Diese sind primär als praktische Handreichungen zu verstehen, die unterschiedliche Interessensvertreter – z. B. zuständige Behörden und Genehmigungsinhaber – adressiert. So setzt sich der Freigabeleitfaden des Fachverbands für Strahlenschutz beispielsweise auch mit dem Freigabeverfahren für nicht-kerntechnische Anlagen auseinander und spricht somit auch die Betreiber solcher Anlagen (z. B. Radionuklidlaboratorien oder Beschleunigeranlagen) an.

Grundsätzlich ergibt sich entlang der betrachteten Dokumente folgender Konsens hinsichtlich der Anforderungen an Freimesstechnik: Die Entscheidungsmessung stellt eine Konformitätsprüfung hinsichtlich der Einhaltung des heranzuziehenden Freigabewertes

dar. Für den Vergleich werden ein aus dem Messwert bestimmter Aktivitätswert und die zugehörige Unsicherheit herangezogen. Aus diesen wird ein oberer Schrankenwert bestimmt, der eine gewisse Irrtumswahrscheinlichkeit widerspiegelt. Welche Irrtumswahrscheinlichkeit hierfür explizit heranzuziehen ist, wird nur in einem Teil der Dokumente aufgeführt – bezogen auf diejenigen Dokumente, die hier eine Aussage treffen, ist eine einseitige Irrtumswahrscheinlichkeit von 5 % konsensfähig²⁰. Nur in einem Teil der Dokumente werden hinreichend konkrete Aussagen zur Bestimmung von Aktivitätswerten und den dafür benötigten Kalibrationen getroffen. Auch werden nicht in allen Dokumenten messtechnische Verfahren, die grundsätzlich für Entscheidungsmessungen genutzt werden können, erläutert bzw. beispielhaft aufgeführt.

Im folgenden Kapitel 3.1 werden die Aussagen zu Anforderungen an Freimesstechnik, wie sie sich aus der StrISchV und der DIN 25457 ergeben, miteinander verglichen. Abschließend werden in Kapitel 3.2 Möglichkeiten aufgezeigt, um die Anforderungen an Freimesstechnik klarer darzustellen und die Navigation durch die heranzuziehenden Regelungen und Dokumente zu erleichtern.

3.1 Prüfung der StrISchV und der DIN 25457 hinsichtlich der Anforderungen an Freimesstechnik

Für einen Vergleich der Anforderungen an die Freimesstechnik, wie sie in der StrISchV bzw. in der Normenreihe DIN 25457 getroffen werden, sind zunächst deren sehr unterschiedliche Zielsetzungen und Zwecke im regulatorischen Gefüge zu berücksichtigen. Eine vollumfängliche Konsistenzprüfung ist somit praktisch ausgeschlossen, da es für den Großteil der Anforderungen der Normenreihe kein Pendant in der StrISchV gibt. Eine Prüfung hat also zunächst die grundlegenden generischen Anforderungen zu adressieren. Unter der Voraussetzung einer hinreichend großen Übereinstimmung ist dann in einem weiteren Schritt zu prüfen, ob die detaillierten und teils verfahrensspezifischen Anforderungen, wie sie sich aus der Normenreihe DIN 25457 ergeben, auch mit den grundlegenden Anforderungen der StrISchV im Einklang sind.

²⁰ Dies bedeutet, dass die Wahrscheinlichkeit, dass die Konformitätsprüfung ausgehend von dem Messwert positiv beschieden wird, der tatsächliche Messwert aber größer als der Freigabewert ist, bei 5 % liegt.

Die zwei wesentlichen Anforderungen der StrlSchV, die die Messgeräte und den Umgang mit den Messgeräten betreffen, lassen sich wie folgt zusammenfassen:

- Die Strahlungsmessgeräte müssen den Anforderungen des Messzwecks genügen. Der Messzweck der Freimessungen ist eine Konformitätsprüfung zum Nachweis der Einhaltung der aktivitätsbezogenen Freigabewerte. Dies wird zwar nicht explizit in der StrlSchV beschrieben, ist aber aus dem Kontext nachvollziehbar. Die Eignungsbetrachtung schließt auch die heranzuziehenden Mittelungsgrößen ein.
- Die Strahlungsmessgeräte müssen regelmäßig auf ihre Funktionstüchtigkeit geprüft und gewartet werden.

3.1.1 Erfüllung der Anforderungen des Messzwecks

Die Konformitätsprüfung setzt eine Messung voraus, bei der als Ergebnis ein Messwert und eine zugehörige Messunsicherheit festgehalten wird, aus denen sich auf Basis von Kalibrationen (die sich auf realistische Annahmen/Randbedingungen zu stützen haben) ein geeigneter Aktivitätswert und die zugehörige Messunsicherheit bestimmen lassen. Aus diesen beiden Größen ist eine obere Grenze zu bestimmen (wie dies zu geschehen hat, wird in der StrlSchV nicht näher spezifiziert), so dass mit ausreichend hoher Wahrscheinlichkeit für eine erfolgreiche Entscheidungsmessung die tatsächlich vorliegende Aktivität unter diesem Grenzwert liegen muss. Diese obere Grenze wird für den Vergleich mit dem Richtwert (Freigabewert) herangezogen. Für die einseitige Irrtumswahrscheinlichkeit wird in der StrlSchV keine Annahme getroffen und diesbezüglich auch auf keine weitere Quelle verwiesen.

Im ersten Teil der DIN 25457 wird in Kapitel 7.2 der Aspekt der Konformitätsprüfung hervorgehoben und beschrieben. Zudem wird konkretisierend festgestellt, dass für den Vergleich mit Richtwerten die obere Grenze des Überdeckungsintervalls herangezogen werden muss. Die einseitige Irrtumswahrscheinlichkeit für die obere Grenze des Überdeckungsintervalls wird zu 5 % festgelegt. Für die charakteristischen Größen wird auf die Normenreihe DIN EN ISO 11929 verwiesen. Es werden im Folgenden wesentliche Unsicherheiten aufgeführt, die berücksichtigt werden müssen:

- Schwankungsbreite der Aktivitätsanteile der Radionuklide im Radionuklidgemisch in Relation zum Nuklidvektor
- Unsicherheit bei der verwendeten Kalibrierung

- Schwankungsbreite des Entnahmefaktors bei indirekter Oberflächen-Gesamtaktivitätsmessung
- Schwankungsbreite der Geometrie und der Selbstabschirmung des Messguts
- Schwankungsbreite des Nulleffekts

Die Annahme für die einseitige Irrtumswahrscheinlichkeit wird in der DIN 25457 nicht näher begründet, ist aber in Einklang mit der im vorangegangenen Kapitel aufgeführten SSK-Empfehlung aus dem Jahr 2016.

Zusammenfassend kann festgestellt werden, dass die Aussagen der StrISchV und der DIN 25457 grundsätzlich zueinander kompatibel sind. In der DIN 25457 werden Festlegungen getroffen, die für den Messzweck zweckdienlich sind und mit denen die notwendigen freien Parameter der Konformitätsprüfung festgelegt werden.

3.1.2 Regelmäßige Prüfung auf Funktionstüchtigkeit und Wartung

In der StrISchV werden regelmäßige Prüfungen und Wartungen gefordert, allerdings werden (nachvollziehbar) keine Angaben zu einzuhaltenden Prüfungs- bzw. Wartungsintervallen aufgeführt.

In der Normenreihe DIN 25457 werden keine Aussagen zur Wartung getroffen. Auch dies ist nachvollziehbar, da wiederkehrende Wartungen in der Regel Bestandteil der Gerätequalifizierung sind. Im Rahmen der Qualitätssicherung werden in Teil 1 der DIN 25457 für die betrachteten Messverfahren wiederkehrende Maßnahmen und die dafür heranzuziehenden Intervalle oder initiiierende Ereignisse (z. B. Maßnahmen nach Reparaturen oder Maßnahmen zu Beginn/Ende einer Messkampagne) festgelegt. Dies beinhaltet neben der Überprüfung der grundsätzlichen Funktionstüchtigkeit auch Prüfungen der Kalibrierungen oder je nach Messverfahren auch die Kontrolle der Messsignale. So hat für gammaspektrometrische Messungen eine visuelle Kontrolle der Peakform zu erfolgen²¹. Die Vorgaben (siehe Kapitel 2 und Unterabschnitte) sind ausreichend detailliert und als zweckdienlich einzuschätzen.

²¹ In der Praxis kann es zu einer Schleppenbildung (*tailing*) auf der niederenergetischen Seite des Peaks kommen, die oftmals auf Strahlenschäden oder auf Probleme mit der Elektronik hindeutet.

3.1.3 Zweckdienlichkeit weiterer messtechnischer Anforderungen der Normenreihe DIN 25457

Über die o. g. Punkte hinausgehend werden in der DIN 25457 weitere Anforderungen an die Messtechnik gestellt, die grob in vier Kategorien gegliedert werden können:

- Grundlegende Faktoren, die die Eignung beeinflussen
- Anforderung an die Kalibration
- Anforderungen an den Messaufbau (z. B. hinsichtlich der Messgeometrie und ggfs. notwendige Vorbereitungen des Messguts)
- Anforderungen im Kontext der Messdurchführung

Die grundsätzliche Eignung eines Messverfahrens hängt zunächst von der Strahlungsart und den Materialien zwischen der eigentlichen Aktivität und dem Detektorvolumen ab. Alpha- und Beta-Strahlen weisen nur eine geringe Reichweite auf, so dass bereits die Eintrittsfenster der in Betracht gezogenen Detektoren oder dünne, abdeckende Schichten auf den eigentlich kontaminierten Oberflächen, ebenso wie poröse Oberflächen, wesentliche Barrieren für die Eignung darstellen können. Eine gründliche Voruntersuchung sowie ein Verständnis für die relevanten Zerfallsprozesse und der Geometrie des Messobjekts stellen somit notwendige Voraussetzungen dar. Dieser Aspekt wird in der DIN 25457 adäquat beschrieben, beispielsweise durch Verweis auf die Sättigungsdicke bei der direkten Oberflächenkontaminationsmessung.

Die je nach Messverfahren durchzuführenden Kalibrationen sind zwingende Voraussetzung zur Durchführung der Kontaminationsprüfung und setzen ihrerseits eine ausreichend detaillierte Voruntersuchung voraus. Durch die Geometriekalibration (z. B. bei der in-situ Gammaskpektrometrie) werden beispielsweise die Aktivitätsverteilung und deren Eindringtiefe berücksichtigt. Diese kann entweder durch Kalibrationsmessungen oder numerisch erfolgen. Kalibrationsmessungen setzen radioaktiven Quellen mit vergleichbarer Geometrie voraus und sind, insb. bei variierenden Verteilungen, aufwendig in der Durchführung. Die Geometriekalibration mit numerischen Verfahren ist in der Regel mit einem geringeren Aufwand verbunden, setzt aber einen charakterisierten Detektor voraus. Grundsätzlich müssen die Kalibrationen die vorliegenden Randbedingungen hinreichend genau wiedergeben. Ein weiterer wichtiger Faktor ist die Nachweiswahrscheinlichkeit des Messgeräts, die in der Regel sowohl Energie- als auch Teil-

chenabhängig ist. Auch diese ist durch Messungen oder numerische Betrachtungen zu bestimmen.

Die DIN 25457 diskutiert die notwendigen Kalibrationen in einem sinnvollen und zweckdienlichen Umfang. Sie führt auch Möglichkeiten zur konservativen Abschätzung der Eingangsparameter aus, die insb. den Umgang mit Unsicherheiten vereinfachen können. Die Anforderungen an die Kalibrationsmessungen und die je nach Messverfahren dafür einzusetzenden Quellen/Strahler sind für eine praktische Anwendung ausreichend präzise dargelegt.

Neben der grundsätzlichen Eignung hat auch die Geometrie des Messaufbaus Auswirkungen auf die einzelfallbezogene Eignung. Bei der in-situ Messung von Gebäudeteilen mit kollimierten Gammaskpektrometern ist beispielsweise auf einen passenden Abstand und eine adäquate Geometrie des Kollimators zu achten. Auch können, wie oben bereits aufgeführt, Oberflächenversiegelungen die Messung beeinträchtigen und sind entsprechend zu berücksichtigen. Die Geometrie des Messaufbaus ist für die Kalibrationen zu berücksichtigen. Die DIN 25457 betrachtet die Messgeometrie im Kontext der Verfahrensanwendung und -eignung in adäquater Weise.

Schlussendlich ergeben sich Anforderungen, die direkt mit der Messdurchführung zusammenhängen. Wie in der Normenreihe DIN 25457 beschrieben, erlauben es einige Messverfahren, die Messungen – wie z. B. die Messung der Oberflächenkontamination oder die Prüfung von Gebinden – stationär oder dynamisch durchzuführen. Bei einer dynamischen Messung ist darauf zu achten, dass die für die Kalibration getroffenen Annahmen – insb. hinsichtlich des Abstandes zwischen Messgerät und Messgut – jederzeit eingehalten werden. Zudem können Vorgaben zu relativen Rotationsgeschwindigkeiten (Fassmessungen) oder Überstreichgeschwindigkeiten existieren, die auch mit Hilfe technischer Hilfsmittel (Motorisierung) umgesetzt werden können. Die DIN 25457 berücksichtigt Vorgaben, die sich aus der Messdurchführung ergeben, ausreichend präzise.

Grundsätzlich ist festzuhalten, dass die in der DIN 25457 formulierten Anforderungen dem Messzweck dienen und sich keine grundsätzlichen Widersprüche zur StrlSchV identifizieren lassen. In Einzelfällen sind Anforderungen nicht scharf von guten Praktiken zu unterscheiden, eine klarere Unterscheidung und Strukturierung könnte einen Mehrwert darstellen.

3.2 Möglichkeiten zur Verbesserung der Klarheit hinsichtlich der regulatorischen Anforderungen an Freimesstechnik

Grundsätzlich kann festgehalten werden, dass kein unmittelbarer Revisionsbedarf zur Konkretisierung bzw. zur Angleichung der Anforderungen an Freimesstechnik besteht. Die wesentlichen Anforderungen des Regelwerks sind zueinander konsistent bzw. kompatibel, aufgrund der unterschiedlichen Schwerpunkte der betrachteten Dokumente ist allerdings nur für wenige Aspekte eine Deckungsgleiche zu beobachten. Nichtsdestotrotz wurden bei der Auswertung und Analyse einige Aspekte identifiziert, mit denen die Stringenz und Navigation durch die heranzuziehenden Dokumente erhöht werden könnten. Hierzu gehören:

- Es ist ad hoc nicht ersichtlich, welche Vorgaben und Dokumente unterhalb der Gesetzes- bzw. Verfahrensebene zur Einschätzung der Verfahrenseignung heranzuziehen sind, so dass die Navigation durch das Regelwerk gewissen Barrieren unterliegt. So werden beispielsweise in der StrlSchV weder die DIN 25457 noch die DIN EN ISO 11929 referenziert bzw. dargelegt, welche Faktoren oder Quellen für eine detaillierte Auseinandersetzung mit der Verfahrenseignung heranzuziehen sind. Es gibt nachvollziehbare Gründe, solche expliziten Verweise auf Gesetzes- oder Verordnungsebene zu meiden. In Deutschland gibt es mit dem Handbuch Reaktorsicherheit und Strahlenschutz eine regelmäßig gepflegte Übersicht zu den in Deutschland gültigen gesetzlichen und untergesetzlichen Regelungen für die Bereiche nukleare Sicherheit, Endlagerung, Transport radioaktiver Stoffe sowie Schutz vor ionisierender Strahlung /BASE 25/. Dieses Handbuch könnte um einen praktischen Bereich erweitert werden, in dem für bestimmte Fragestellungen – wie z. B. hinsichtlich der regulatorischen Anforderungen an (Frei-)Messtechnik – die wesentlichen zu beachtenden Dokumente zusammengestellt werden. Die Dokumentenbasis ist beschränkt, so dass ggfs. auch Sprachmodelle (KI) als Hilfestellung zweckdienlich genutzt werden könnten.
- Grundsätzlich erscheint eine Klärung des Begriffs der Verfahrenseignung unter Berücksichtigung des Messzwecks in der StrlSchV als sinnvoll. Hierbei könnten insb. der für die Konformitätsprüfung heranzuziehende und aus der Messung extrahierte Aktivitätswert sowie die (mindestens) anzunehmende einseitige Irrtumswahrscheinlichkeit dargelegt werden.
- Die DIN 25457 stellt Anforderungen an den messtechnischen Nachweis. Das Spektrum reicht von der Vermittlung guter Praktiken bis zu zwingenden Anforderungen. In Einzelfällen ist eine klare Abgrenzung zwischen tatsächlicher Anforderung und

guter Praxis nur schwer zu erkennen, so dass eine stärkere Abgrenzung in der Darstellung möglicherweise zielführend sein könnte. Zudem könnten allgemeine (verfahrensunabhängige) Anforderungen an die Messtechnik und damit verbundene Aspekte vorangestellt werden, um so Dopplungen zu vermeiden. Auch die Verweise auf Anforderungen, die sich aus anderen Normen ergeben, stellen aus praktischer Sicht eine Barriere dar.

- Die Erfahrungen in den vergangenen Jahren haben gezeigt, dass sowohl für die Anlagencharakterisierung als auch für die Entscheidungsmessungen ein Optimierungspotenzial bzw. in Teilen auch ein Innovationsbedarf besteht. Die in der Normenreihe DIN 25457 aufgeführten Anforderungen beziehen sich auf etablierte Messverfahren. Welche Anforderungen an innovative/neuartige Messsysteme gestellt werden und wie diese qualifiziert werden könnten, wird hingegen weder in der DIN 25457 noch an anderer Stelle im Regelwerk dargelegt. Eine generisch gehaltene Darstellung (vgl. Kapitel 4) von Eignungsvoraussetzungen (z. B. in Form eines kurzen Leitfadens), die über die allgemeine Anforderung der Konformitätsprüfung hinausgeht, und die auch praktische Erfahrungen berücksichtigt, könnte zweckdienlich sein und einen Mehrwert darstellen. Dies trifft insb. dann zu, wenn – bezogen auf den kern-technischen Bereich – branchenfremde Personen bzw. Einrichtungen in die Entwicklung eingebunden werden.
- Es kann der Eindruck entstehen, dass die Freigabe primär ein Werkzeug ist, das für die Stilllegung der Kernkraftwerksflotte genutzt wird. Dies ist mitnichten so. Die Freigabe ist ein universeller Verwaltungsakt, der zunächst einmal weitestgehend unabhängig von der genauen Entstehung des betrachteten radioaktiven Stoffes ist (vgl. § 31 Abs. 1 StrlSchV). Sie betrifft sowohl Anlagen und Einrichtungen im Betrieb als auch solche in der Stilllegung (bzw. im Rückbau). Zudem betrifft sie sowohl kern-technische Anlagen (im Sinne des AtG) als auch strahlenschutzrechtlich angezeigte bzw. genehmigte Einrichtungen oder Tätigkeiten. In der Praxis zeigt sich oft eine Trennlinie zwischen Atom- und Strahlenschutzrecht, was sich auch in den zuständigen Aufsichts- und Genehmigungsbehörden widerspiegelt. Auch die in Kapitel 2 betrachteten Dokumente richten sich meist eher auf kerntechnische als auf strahlenschutzrechtliche Anlagen, was in Anbetracht der Relevanz bzw. der Massenströme auch nachvollziehbar ist. Grundsätzlich sollten vor dem Hintergrund der Freigabe sowohl die kerntechnischen als auch die strahlenschutzrechtlichen Anlagen betrachtet werden, und es sollte sich über praktische Aspekte (wie z. B. die Methodologie bei der Verfahrensauswahl), auch über diese Trennlinie hinweg, ausgetauscht werden.

4 Einflussfaktoren für die Eignungsbetrachtung und Anforderungen an Messverfahren für die Durchführung von Freimessungen

Die wesentliche Voraussetzung für eine positive Freigabeentscheidung ist eine Messung an dem zu betrachtenden Messobjekt, bei der die obere Grenze des Überdeckungsintervalls den heranzuziehenden Richtwert (Freigabewert) für alle zu betrachtenden Radioisotope unterschreitet – demnach muss auch die Nachweisgrenze jeweils unter dem heranzuziehenden Richtwert liegen. Darüberhinausgehende Anforderungen (ggf. für ausgewählte Messverfahren) erlauben eine Konkretisierung dieser allgemeinen Anforderungen und adressieren insb. die Qualitätssicherung und ein möglichst präzises Verständnis der (möglichst zu minimierenden) Unsicherheiten.

Die Normenreihe DIN 25457 formuliert Anforderungen für ausgewählte Messverfahren, die sich in der Praxis etabliert haben. Für weitere Verfahren – insb. für innovative Messverfahren – existiert eine solche Grundlage nicht. Das Fehlen einer heranzuziehenden Referenz kann in der Praxis sowohl aus der Perspektive des Betreibers/Antragstellers als auch aus Perspektive der zuständigen Aufsichtsbehörde eine Barriere darstellen. Als Anhaltspunkt für eine Eignungs- bzw. Praktikabilitätsbetrachtung und diesbezügliche Anforderungen werden im Folgenden Überlegungen, Faktoren und generische Anforderungen zusammengestellt. Die hierbei zugrundegelegte Strukturierung orientiert sich an der Normenreihe DIN 25457.

4.1 Grundlegende Faktoren und Überlegungen

Ein Großteil innovativer Neuentwicklungen (Messverfahren sowie Messgeräte/Messsysteme) stellt Evolutionen von bereits etablierten Messverfahren bzw. Messgeräten/Messsystemen dar. In der Praxis ist es daher oftmals sinnvoll, zunächst die etablierten Normen auf Überschneidungen (Relevanz) zu prüfen und Anforderungen sinngemäß zu adaptieren – dies trifft auch auf bereits existierende Messverfahren (vgl. Kapitel 6) zu, die in der Normenreihe DIN 25457 nicht bzw. nicht in ausreichender Detaillierung behandelt werden.

Mit innovativen Messverfahren bzw. Messgeräten/Messsystemen kann einerseits das Anwendungsspektrum erweitert werden. Andererseits können Anwendungen adressiert werden, für die zwar grundsätzlich bereits etablierte Messverfahren bzw. Messgeräte/Messsysteme existieren, für die innovative Lösungen aber eine Verbesserung darstel-

len. Für solche Anwendungen, die sowohl mit etablierten als auch mit innovativen Messverfahren zugänglich sind, ist zur Orientierung eine Konsultation der messtechnischen Anforderungen für das jeweils etablierte Messverfahren ratsam.

Für eine Präzisierung der Anforderungen kann es zweckdienlich sein, die wesentlichen Eigenschaften und Anwendungszwecke zu skizzieren. Hierfür können folgende Faktoren Berücksichtigung finden:

- Handhabbarkeit des Messgerätes bzw. der Messeinrichtung:
Handelt es sich um ein leichtes oder um ein portables Messgerät? Ist die Messeinrichtung komplex bzw. soll die Messeinrichtung ausschließlich stationär im Laborumfeld genutzt werden?
- Verwendete Messmethode:
Handelt es sich um ein zählendes oder um ein spektrometrisches Messverfahren? Erfolgt eine Leistungs- bzw. Strommessung?
- Fokus der Anwendung:
Richtet sich das Messgerät bzw. das Messsystem zuvorderst an leicht messbare Radionuklide oder an schwer messbare Radionuklide?
- Ort der Messung:
Erfolgt die Messung in-situ, ex-situ (z. B. an Gebinden) oder im Laborumfeld?
- Erfolgt die Messung statisch und/oder dynamisch?
- Für welchen Freigabepfad soll das Messgerät bzw. das Messsystem genutzt werden?
- Für 100 %-Messungen:
Wie groß sind die zu messenden Massen bzw. Flächen im Vergleich zu den Massen bzw. Flächen einer mit diesem Messgerät durchführbaren Einzelmessung?
- Für Stichprobenmessungen:
Wie viele Stichproben sollen gemessen werden?
- Zeitlicher Aspekt:
Gibt es einen Orientierungswert für den Zeitbedarf einer Einzelmessung?

Für die Berechnung von Aktivitätswerten aus den eigentlichen Messwerten bedarf es eines Modells, für das, je nach Messverfahren, bestimmte Kalibrierfaktoren zu berücksichtigen sind.

sichtigen sind. Sowohl dieses Modell als auch die Kalibrierfaktoren sind darzulegen und zugehörige Unsicherheiten müssen bestimmt werden. Gegebenenfalls können abdeckende konservative Annahmen den Aufwand zur Quantifizierung der Unsicherheiten reduzieren. Es ist allerdings sicherzustellen, dass die konservative Festlegung einzelner Parameter nicht zu deutlichen Änderungen bei den Freigabeentscheidungen führt.

4.2 Allgemeine Einschätzungsfaktoren und Anforderungen

Als Ergebnis der Voruntersuchungen liegen Informationen zur räumlichen Aktivitäts-/Kontaminationsverteilung und zu den vorliegenden Radioisotopen vor. In einem ersten Ansatz kann für die zu betrachtenden Radionuklide zwischen leicht messbaren Radionukliden und schwer messbaren Radionukliden differenziert werden. In der Regel kann ein (lokal repräsentativer) Nuklidvektor gebildet und ein geeignetes Schlüsselnuklid identifiziert werden. Zudem kann die Relevanz von Kaskadenzerfällen eingeschätzt werden, die ggfs. die Komplexität des Modells zur Aktivitätsbestimmung erhöhen können.

Die Materialeigenschaften und Materialzusammensetzungen der kontaminationstragenden Stoffe sind für in-situ Messungen und für die Messung von Chargen/Gebinden als Einsatzrandbedingungen zu beachten. Dies können beispielsweise die Porosität einer Oberfläche (Eindringen von Kontaminationen) oder die effektive Materialdicke (Absorption von Strahlung) sein.

Für Labormessungen ist eine Probenahme notwendig, die entsprechend nachvollziehbar als Prozess dargelegt werden muss. Für die Nutzung bestimmter Messverfahren bzw. Messgeräte/Messsysteme kann zudem auch eine Probenaufarbeitung notwendig sein, wofür beispielsweise nasschemische Trennverfahren eingesetzt werden. Die mit der Probenahme und mit der Probenaufarbeitung verbundenen Unsicherheiten sind zu quantifizieren und zu validieren. Gerade für massenspektrometrische Messverfahren werden nur sehr geringe Mengen an Probenmaterial benötigt. Es ist sicherzustellen, dass die bei der Messung genutzte Probemenge repräsentativ für die gezogene Stichprobe ist. Zur Erhöhung der Repräsentativität sind ggfs. weitere Schritte in der Probenaufbereitung notwendig, z. B. ein Mahlschritt zur Homogenisierung der Korngröße.

Für die direkte Oberflächenkontaminationsmessung von kurzreichweitiger Alpha- und Beta-Strahlung muss die Oberfläche für das Messgerät zugänglich sein. Oberflächliche Verunreinigungen (Schmutz, Oxidschichten) sind ggfs. zu entfernen oder im Modell mit

ausreichender Konservativität zu berücksichtigen. Auch Risse und sonstige potenzielle Eintrittsstellen sind individuell zu berücksichtigen.

In Abhängigkeit der Messmethode und der Eigenschaften des Messgeräts bzw. der Messeinrichtung kann eine Zählratenabschätzung erfolgen, für die ggfs. auch die Totzeit berücksichtigt wird.

4.3 Anforderungen an den Detektor und die Messeinrichtung

Insbesondere Messgeräte für in-situ Messungen müssen für den Messzweck ausreichend robust sein. Bei portablen Messgeräten können Rüstzeiten die Praktikabilität beeinflussen. Äußere Randbedingungen (z. B. Lärm, Vibrationen, Staubbefreiungen) sind derart anzupassen, dass sie keinen wesentlichen Einfluss auf die Messung und das Messergebnis nehmen. Die Anforderungen an die Vorbereitung des Messgeräts bzw. der Messeinrichtung sollten für die Entscheidungsmessungen möglichst gering sein. Dies betrifft beispielsweise die verwendete Elektronik für die Signalbearbeitung und deren Einstellung. Die für die Freimessung verwendeten Geräteeinstellungen (z. B. die Einstellung von Diskriminatoren) müssen protokolliert werden. Bevorzugt sollte sowohl die Einstellung der Parameter als auch die Protokollierung über eine qualifizierte Software geschehen.

Für zählende Messverfahren können Alarmwerte eingestellt werden, die eine ad-hoc Einschätzung des Erfolgs der Freimessung (z. B. durch ein akustisches Signal) wiedergeben. Grundsätzlich sind die aktuellen Messergebnisse in geeigneter Weise darzustellen. Dies kann beispielsweise bei Handmessgeräten durch eine analoge Skala oder eine digitale Anzeige erfolgen. Bei spektrometrischen Messverfahren kann auch das Spektrum simultan zur Messung visualisiert werden.

Spektrometrische Messverfahren müssen in Abhängigkeit der zu erwartenden Radionuklide über ein ausreichend hohes Auflösungsvermögen verfügen, so dass die spektralen Informationen bestimmten Radioisotopen zugeordnet werden können. Hierfür ist insb. der Nuklidvektor heranzuziehen. Überlappungen von zwei oder mehreren Peaks können ggfs. durch simultane Modellierung der Peaks (*Fits*) aufgelöst werden. Vorgaben aus technischen Normen sind zu beachten.

Bei hohen Zählraten können Totzeiten entstehen, die zu einer systematischen Unterschätzung der Aktivität führen können. Eine bedarfsgerechte Totzeitkorrektur ist somit sicherzustellen.

Für die Bestimmung massenspezifischer Aktivitäten in in-situ Messungen oder Messungen an Chargen/Gebinden ist eine Massenbestimmung notwendig, die möglichst in die Messeinrichtung integriert sein sollte.

4.4 Anforderungen an den Messaufbau und die Messgeometrie

Das Messgerät muss sich während der gesamten Messung an der vorgesehen Sollposition befinden und, wie vorgesehen, ausgerichtet sein. Sowohl die Sollposition als auch die Ausrichtung des Messgeräts relativ zum Messobjekt müssen bei der Kalibration berücksichtigt werden. Für die Platzierung und Ausrichtung können geeignete Hilfsmittel verwendet werden. Damit verbundene Unsicherheiten sind zu berücksichtigen. Grundsätzlich haben die Messungen unter den vorgesehenen Randbedingungen zu erfolgen, die auch für die Kalibrationen angenommen wurden.

In Abhängigkeit des Sichtfeldes des eigentlichen Detektors bzw. Messgerät sollten für in-situ Messungen und Messungen an Chargen/Gebinden Abschirmungen zur Reduzierung des Nulleffekts genutzt werden. Die Messung des Nulleffekts muss über einen ausreichend langen Zeitraum erfolgen, um eine geringe statistische Unsicherheit für die Bestimmung des Nulleffekts zu gewährleisten. Zudem sollten Kollimatoren zur Einschränkung des Sichtfeldes auf die zu betrachtenden Bereiche (Raster bei Flächen, bzw. Scheiben/Sektoren bei Gebinden) eingesetzt werden. Auf die Verwendung von Kollimatoren kann u. a. dann verzichtet werden, sofern die Voruntersuchungen keinerlei Hinweise für wesentliche Verletzungen des Homogenitätskriteriums bieten und große Flächen vermessen werden sollen.

4.5 Anforderungen an die Kalibrierung und die Qualitätssicherung

Grundsätzlich müssen Messergebnisse reproduzierbar sein – dies sollte stichprobenhaft geprüft werden (Kontrollmessungen). Zur Bestimmung des prozentualen Anteils dieser Kontrollmessungen können Faktoren wie der Massendurchsatz oder die Anzahl der Freiheitsgrade bei der Durchführung der Messung (z. B. Abstand aus Ausrichtung des Messgeräts relativ zum Messobjekt bei handgeführten Messungen) herangezogen wer-

den. Zudem sollten im Rahmen des technisch Möglichen Konsistenzprüfungen durchgeführt werden, z. B. zur Prüfung des Homogenitätskriteriums.

Die Kalibrierung muss mit geeigneten Kalibrierstrahlern/Strahlungsquellen durchgeführt werden. Die Wahl des Kalibrierstrahlers und dessen Geometrie müssen die Randbedingungen der Freimessungen hinreichend genau erfüllen. Abweichungen sind in der Unsicherheitsbetrachtung zu berücksichtigen.

Die heranzuziehenden charakteristischen Grenzen sollten möglichst nach der einschlägigen Normenreihe DIN EN ISO 11929 bestimmt werden, abweichende Vorgehensweisen sind zu begründen und darzulegen.

Sowohl die Rohdaten als auch die analysierten Daten (nach Kalibrierung) müssen für Freimessungen gesichert werden. Im Messprotokoll muss klar ersichtlich sein, welche Kalibrationen genutzt wurden.

Kontaminationen des Messgerätes bzw. des Messsystems sind möglichst zu vermeiden.

Wiederkehrende Prüfungen sind in bedarfsorientierten Zeitabständen (z. B. monatlich oder jährlich) bzw. zu bestimmten Zeitpunkten (z. B. zu Beginn oder zu Ende einer Messkampagne) durchzuführen, um die Funktionstüchtigkeit und den ordnungsgemäßen Betrieb sicherzustellen. Ein besonderes Augenmerk sollte auf die Kontrolle der Kalibrationen des Messgeräts bzw. Messsystems gelegt werden. Zudem sind regelmäßige Wartungen gemäß der Herstellervorgaben durchzuführen.

Je nach Messverfahren können (digitale) Kontrollkarten geeignet sein, um allmähliche Prozesse, die das Messverhalten des Messgeräts bzw. Messsystems beeinflussen, frühestmöglich zu erkennen. In solchen Kontrollkarten kann beispielsweise der Nulleffekt oder das Auflösungsvermögen festgehalten werden. Art, Weise und Umfang sollten in Abhängigkeit des Messverfahrens festgelegt werden.

5 Abweichende Herangehensweisen zu flächendeckenden Messungen als Grundlagen für Freigabeentscheidungen

Grundsätzlich hat gemäß StrlSchV der Nachweis für die Einhaltung der Freigabewerte durch Messungen zu erfolgen (Anlage 8 Teil A StrlSchV). Dies bedeutet, dass für flächenspezifische Freigabewerte im Allgemeinen die Oberfläche vollständig durch Messungen zu erfassen ist. Für massenspezifische Freigabewerte sind die Masse und in der Regel die Oberfläche durch Messungen zu erfassen („100 % Messung“). Die Vorgaben zu den Mittelungsgrößen nach Anlage 8 StrlSchV sind bei der Messung zu berücksichtigen.

In Abhängigkeit der Ergebnisse der Voruntersuchungen werden mit dem Einverständnis der zuständigen Behörde auch nicht-flächendeckende Messstrategien, beispielsweise für die spezifische Freigabe von Gebäuden, Räumen, Raumteilen und Bauteilen (Anlage 8 Teil D StrlSchV), verfolgt, die in den folgenden Abschnitten kurz beschrieben werden. Nähere Informationen sind u. a. der Normenreihe DIN 25457 zu entnehmen. Grundsätzlich ergeben sich bei der Nutzung nicht (flächen-)deckender Messstrategien zusätzliche Anforderungen an die Messungen und das Freigabeverfahren, die mit einem Mehraufwand verbunden sind. Insbesondere für Stichprobenverfahren sind in der Praxis somit die Vorteile, die sich aus dem reduzierten Aufwand für die Messungen ergeben, gegen den damit verbundenen Mehraufwand abzuwägen.

5.1 Strategie der repräsentativen Messung

Bei der Strategie der repräsentativen Messung wird für eine Gesamtmenge oder eine betrachtete Teilmenge des Messobjekts nur eine Messung genommen, die repräsentativ für diese Menge ist. Die wesentliche Voraussetzung ist somit eine plausible bzw. nachweislich (z. B. im Rahmen der Voruntersuchungen) festgestellte homogene Aktivitätsverteilung in der betrachteten Menge. Die Voraussetzung ist beispielsweise bei eingeschmolzenen Metallen (Schmelzprobe) und oftmals auch für Flüssigkeiten (ggf. nach einer Homogenisierung zur Berücksichtigung möglicher Absetzungen) erfüllt. Die Menge, auf die sich die Messung bezieht, darf größer als die entsprechende Mittelungsgröße sein.

5.2 Strategie der abdeckenden Messung

Bei der Strategie der abdeckenden Messung wird für den gesamten freizugebenden Stoff bzw. für eine bestimmte Teilmenge dieses radioaktiven Stoffes eine einzige Messung an derjenigen Stelle durchgeführt, an der nachweislich die höchste Aktivität zu erwarten ist. Grundlegende Voraussetzung für die Nutzung dieser Strategie ist, dass der berücksichtigten Menge der gleiche Nuklidvektor zugeordnet werden kann. Im Rahmen der Voruntersuchungen ist zu prüfen und nachzuweisen, dass die vorgesehene abdeckende Messung auch tatsächlich abdeckend ist. Zu berücksichtigen ist hierbei die Vorbehandlung des radioaktiven Stoffes (bzw. der betrachteten Teilmenge), die Geometrie, die Betriebshistorie sowie die Materialzusammensetzung. Aktivierungsberechnungen können für die Lokalisierung der Stelle für die abdeckende Messung herangezogen werden. Die Gesamt- bzw. Teilmenge, auf die sich die repräsentative Messung bezieht, darf größer als die entsprechende Mittelungsgröße sein. Die Messstrategie eignet sich insb. für inhomogene Aktivitätsverteilung, der Ansatz ist grundsätzlich konservativ.

5.3 Messstrategie der Stichprobenverfahren

In Anlage 8 Teil D Satz 1 StrlSchV wird für die spezifische Freigabe von Gebäuden, Räumen, Raumteilen und Bauteilen zunächst festgehalten, dass entsprechende Freimessungen grundsätzlich an der stehenden Struktur zu erfolgen haben. Zudem wird dargelegt, dass die Messungen anhand eines geeigneten Stichprobenverfahrens (nicht-flächendeckende Freimessverfahren) durchgeführt werden können. Auch für Bodenflächen werden in der Praxis Stichprobenverfahren genutzt. In Kapitel 7.1.3 der DIN 25457-7 /DIN 17d/ werden drei Beispiele für Stichprobenverfahren für Bodenflächen aufgeführt:

- Messungen mit Messflächen wesentlich kleiner als die heranzuziehende Mittelungsfläche:

Dieser Ansatz kann beispielsweise genutzt werden, wenn Kontaminationsmonitore (je nach Abstand zur zu vermessenden Oberfläche variiert die Messfläche einer Einzelmessung, typischerweise liegt sie im Bereich 100 bis 1.000 cm²) für Freimessungen bei versiegelten Bodenflächen vorgesehen sind. Das Verfahren ist auch anwendbar, wenn anstelle einer in-situ Messung die Messung an Proben erfolgen soll. Die DIN 25457-7 führt aus, dass zum Vergleich mit den Freigabewerten der obere

Vertrauensbereich des Mittelwertes bezüglich der jeweiligen Verteilung und hierfür ein 95 % Vertrauensniveau zu verwenden ist.

- Messungen mit Messflächen wesentlich kleiner als Mittelungsflächen bei Vorliegen eines Teils der Messwerte unterhalb der Erkennungsgrenze
- Stichprobenverfahren zur Prüfung der Einhaltung der Freigabewerte auf einem vorgegebenen Mindestanteil der Rasterflächen

Auch für Gebäude, Räume, Raumteile und Bauteile werden im Kapitel 6.4.3 der DIN 25457-6 /DIN 18/ Beispiele für Stichprobenverfahren aufgeführt:

- Messungen mit Messflächen wesentlich kleiner als die heranzuziehende Mittelungsfläche
- Stichprobenverfahren zur Prüfung der Einhaltung der Freigabewerte auf einem vorgegebenen Mindestanteil der Rasterflächen
- Messungen mit Messflächen in gleicher Größenordnung oder identisch der Mittelungsfläche bei einem Verfahren zur Ermittlung von Messwerten auf der Gesamtfläche

Die Nutzung eines Stichprobenverfahrens verringert die Anzahl der benötigten Freimessungen deutlich, jedoch sind die Anforderungen, die an das Freigabeverfahren gestellt werden, wesentlich höher. Dies betrifft beispielsweise die Voruntersuchungen, mit denen dargelegt werden muss, dass die Aktivitätsverteilung über die betrachtete Oberfläche nicht signifikant variiert. Der Verfahrensaufwand kann sich reduzieren, wenn in der qualitätsgesicherten Betriebs- bzw. Kontaminationsdokumentation keinerlei Hinweise auf lokale radiologische Besonderheiten dokumentiert sind. Zudem gibt es zusätzliche Anforderungen, die sich an die statistische Auswertung richten, z. B. hinsichtlich des heranzuziehenden Merkmalsträgers oder der Festlegung der Prüfgröße.

5.4 Zusammenfassung

Anstelle einer „100 %-Messung“ können in der Praxis andere Messstrategien verfolgt werden, sofern zusätzliche Randbedingungen eingehalten werden. Stichprobenverfahren und repräsentative Messungen setzen beispielsweise für die Messfläche oder die freizugebende Menge eine homogene Aktivitätsverteilung gleicher Zusammensetzung voraus. Grundsätzlich ist das Ziel nicht-flächendeckender Messstrategien eine Redu-

zierung des Messaufwands durch Reduzierung der Anzahl benötigter Freimessungen. Damit einher gehen höhere Anforderungen an das Freigabeverfahren und die notwendigen Voruntersuchungen. So muss beispielsweise für die Anwendung der abdeckenden Messung nachvollziehbar und mit hoher statischer Wahrscheinlichkeit dargelegt werden, dass die Messung auch tatsächlich abdeckend ist.

Die nicht-flächendeckenden Messstrategien stellen keine wesentlichen, zusätzliche Anforderungen an die Messverfahren für die Freimessung, können aber insb. im Rahmen der Stichprobenverfahren die Wahl des Messverfahrens beeinflussen. Kontaminationsmonitore und kollimierte in-situ Gammaspektrometer haben einen verhältnismäßig kleinen bzw. eingeschränkten Messbereich. Durch die Nutzung einer nicht-flächendeckenden Messstrategie kann sich die Einschätzung der Praktikabilität ändern. Zudem kann die Reduzierung der Anzahl an Einzelmessungen die Verfahrensauswahl beeinflussen. So kann beispielsweise für ein Messverfahren, das mit vergleichsweise langen Messzeiten für Einzelmessungen verbunden ist, die praktische Verfahrenseignung aufgrund der reduzierten Anzahl an Messungen höher eingeschätzt werden.

6 Technische Messverfahren für den Radioaktivitätsnachweis und die Bestimmung von Materialzusammensetzungen sowie deren Nutzung im Kontext der Freigabe

Sowohl in der Forschung als auch für industrielle Zwecke kann durch den gezielten Nachweis (Messung) radioaktiver Stoffe vielfältigen Fragestellungen nachgegangen werden. Zu den zahlreichen Anwendungsbereichen gehören beispielsweise:

- Grundlagenphysik, z. B. zur Untersuchung der Kernstruktur durch Messung der Gamma-Strahlung
- Angewandte Physik, z. B. zur Altersbestimmung von (geologischen) Strukturen
- Umweltradiologie, z. B. zur Kontaminationsüberwachung
- Radiologische Charakterisierung, z. B. im Rahmen von Voruntersuchungen zur Freigabe
- Freigabe radioaktiver Stoffe (Entscheidungsmessungen)

Die hierfür eingesetzten Messverfahren unterscheiden sich deutlich in ihrer Funktionsweise und Zielsetzung, so dass die Wahl eines Messverfahrens in Abhängigkeit der vorliegenden Randbedingungen und dem Anwendungszweck erfolgen muss. Je nach Anwendung ergeben sich bestimmte Anforderungsparameter, so dass ein Messverfahren beispielsweise den Anforderungen wissenschaftlicher Laboruntersuchungen genügen kann, es aber für industrielle Anwendungen aus praktischen Erwägungen nicht geeignet ist (z. B. aufgrund der Bedienungskomplexität oder des Aufwands für Probenaufbereitungen).

In diesem Kapitel werden zunächst ausgewählte Messverfahren betrachtet, die für den Radioaktivitätsnachweis bzw. für die Bestimmung von Materialzusammensetzungen genutzt werden. Neben einer allgemeinen Darstellung der Messprinzipien und den wesentlichen Parametern umfasst dies auch eine Skizzierung der Anwendungen im kerntechnischen Bereich. Ein besonderes Augenmerk liegt hierbei auf Anwendungen im Rahmen der Voruntersuchungen und/oder der Freigabe (Entscheidungsmessungen). Wesentliche Verfahrenseigenschaften werden tabellarisch zusammengefasst.

Eingebettet in die Verfahrensbeschreibungen wird kursorisch auf ausgewählte Messgeräte bzw. Messsysteme (insb. solche die im Kontext der Freigabe genutzt werden bzw. genutzt werden könnten) verwiesen und deren Messeigenschaften zusammengefasst.

Zu betonen ist, dass die Auswahl nicht zwingend die Relevanz des Messgerätes (z. B. für Freimessungen) widerspiegelt, vielmehr soll sie einen Eindruck der Eigenschaften praktischer Messgeräte vermitteln. Als Informationsgrundlage wird im Wesentlichen auf zugehörige Datenblätter zurückgegriffen. Sofern möglich, werden hierbei auch Anforderungen der DIN 25457 herangezogen. Zu den betrachteten Messgeräten bzw. Messsystemen gehören:

- Messsystem für in-situ gammaspektrometrische Messungen mit Komponenten von Mirion Technologies
- Messsystem für gammaspektrometrische Labormessungen mit Komponenten von Mirion Technologies
- Gammaspektrometrische Fassmessanlage GAMS 4 (NUVIATech)
- Freimessanlage RTM644-Smart (Mirion Technologies)
- Portabler Kontaminationsmonitor CoMo-170 (NUVIATech)
- Portabler Kontaminationsmonitor LB 124 SCINT (Berthold)
- Wischtest-Messplatz NuWIMP 60-100 (NUVIATech)
- Dosis- und Dosisleistungsmessgerät DoImo I (NUVIATech)
- Flüssigszintillationsmessgerät Hidex 300 SL
- ORTEC Alpha Suite
- Mirion Technologies Alpha Analyst
- IonPlus AMS Messeinrichtungen

6.1 Gammaspektrometrie

Die Gammaspektrometrie ist ein Messverfahren, bei dem eine quantitative Messung der von einem Messgut ausgehenden Photonenstrahlung (insb. Gamma-Strahlung) erfolgt und das Ergebnis in Form eines energieaufgelösten Spektrums dargestellt wird. Da die Energien der Gamma-Quanten spezifisch für Radionuklide sind, können mit dem Verfahren simultan (d. h. mit einer Messung) diejenigen Radioisotope nachgewiesen werden, bei deren Zerfall Photonen/Gamma-Quanten mit einer ausreichenden Energie emittiert werden.

Der Detektor muss zur Trennung energetisch nahe beieinanderliegender spektraler Linien eine ausreichend gute Energieauflösung²² besitzen. Das Energieauflösungsvermögen wird wesentlich durch das Detektionsmaterial bestimmt. Hochreines Germanium (*High-Purity Germanium*, HPGe) ist für hochauflösende Gammaskpektrometrie das etablierte Standardmaterial, andere Detektormaterialien, wie z. B. LaBr₃ oder Si(Li), führen zu einer deutlich schlechteren Energieauflösung /ORT 23/. Das Detektorvolumen hat einen Einfluss auf die Photopeak-Effizienz. Grundsätzlich kann die Gammaskpektrometrie im Vergleich zu anderen zerstörungsfreien Messverfahren auch sehr gut für eingedrungene Kontaminationen (ggf. auch Aktivierungen) eingesetzt werden. Es ist allerdings zu beachten, dass mit zunehmender Tiefe die (Photopeak-)Effizienz aufgrund der steigenden Absorption und der steigenden Bedeutung des Compton-Effekts sukzessive abnimmt.

Die zentrale Komponente einer gammaskpektrometrischen Messeinrichtung ist ein hochauflösender (Halbleiter-)Detektor. Oftmals wird, wie oben geschrieben, HPGe genutzt²³. Die Detektorgeometrie ist für die meisten Anwendungsfälle koaxial. Das aktive Detektionsvolumen wird mit Hilfe einer Hochspannung von etwa 4.000 V ausgebildet. Für einige Detektionsmaterialien (z. B. HPGe) ist für eine möglichst gute Energieauflösung eine aktive Kühlung notwendig, die elektrisch oder mit flüssigem Stickstoff erzielt wird /UMBW 07/, /BUC 12/. Der Detektor ist zusammen mit der notwendigen Elektronik zum Nachweis und zur Verarbeitung der durch die einfallende Strahlung ausgelösten Impulse (Vorverstärker, Vielkanalanalysator (*Multi-Channel Analyser*, MCA) etc.) auf einer speziellen Halte- bzw. Einstellvorrichtung montiert.

Das Messverfahren kann entweder für vor-Ort-Messungen (in-situ) oder für Labormessungen (ex-situ) eingesetzt werden. Bei der in-situ Gammaskpektrometrie ist das Messgerät mobil und kann so für die direkte (zerstörungsfreie) Messung am Messgut genutzt werden. Bei der ex-situ Gammaskpektrometrie wird das zu vermessende Messgut zunächst vor- bzw. aufbereitet (zerstörendes Messverfahren), bevor es im Anschluss z. B. an einem geeigneten (Labor-)Messplatz untersucht wird. Die Gammaskpektrometrie wird u. a. in der Grundlagenforschung (z. B. in der Kernstrukturphysik), der Umweltüberwachung (z. B. ex-situ Auswertung von Filtern) /BUC 12/ oder für Entscheidungsmessungen in der Freigabe /UMBW 07/ genutzt.

²² Die Energieauflösung ist die kleinste Energiedifferenz, die mit Hilfe eines Detektors noch getrennt werden kann.

²³ Je nach Anwendung und betrachteten Radionukliden können aber auch andere Detektormaterialien genutzt werden, die in der Regel mit deutlich geringeren Investitionskosten verbunden sind.

Bei der in-situ Gammaskpektrometrie (siehe Abb. 6.1) kann mit Hilfe der Haltevorrichtung der Detektor je nach Erfordernis flexibel zur zu vermessenden Fläche ausgerichtet werden. In der Praxis (z. B. bei Bodenflächen) wird er meist senkrecht zu dieser Fläche ausgerichtet. Oft werden (seitliche) Abschirmungen des Detektors und Kollimatoren zur Einschränkung des Sichtfeldes genutzt. Zumindest in Teilen erlaubt dies eine Ausblendung der Störstrahlung und führt so zu einer Reduzierung des Untergrunds im Gammaskpektrum²⁴. Aufgrund der Dimensionen und des Gewichtes des Messgerätes (typischerweise bis etwa 100 kg bei Nutzung von Abschirmungen und einem Kollimator) ist die Mobilität und Flexibilität praktischen Einschränkungen (Raumbedarf, Positionierung/Ausrichtung) unterlegen.

Für gammaskpektrometrische Labormessungen (ex-situ) werden die Messgeräte meist deutlich stärker abgeschirmt, zudem werden sie häufig in Raumbereichen mit möglichst geringer Störstrahlung durchgeführt. Bei gleicher Messzeit können so geringere Nachweisgrenzen und Messunsicherheiten erreicht werden. Die ex-situ Messung eignet sich somit insb. für den Nachweis niedriger spezifischer Aktivitäten. Sie wird jedoch auch in Fassmessanlagen (Fassscanner) eingesetzt, die zur (segmentweisen) Messung des Nuklidinventars und der Aktivitätsverteilung von mit radioaktiven Abfällen beladenen Fässern genutzt werden.

Um aus den spektralen Informationen auf die radionuklidspezifischen Aktivitäten rück-schließen zu können, müssen einige Kalibrierungen und Korrekturen berücksichtigt werden. Hierzu gehören insb. das Nachweisvermögen (Photopeak-Effizienz) in Abhängig-keit der Energie (Effizienzkalibrierung²⁵), eine Kalibrierung der Energie-Kanal-Beziehung für den relevanten Energiebereich und die Berücksichtigung geometrischer Einflussfak-toren zur Beschreibung der Aktivitäts- und Materialverteilung (z. B. Geometriefaktor) /UMBW 07/.

Unter geeigneten Randbedingungen erlaubt das Messverfahren grundsätzlich sehr sen-sitive Messungen. So können beispielsweise mit der in-situ Gammaskpektrometrie Nach-weisgrenzen für Radionuklide wie Co-60 (das für Freimessungen häufig als Leitnuklid genutzt wird) im mBq/g-Bereich schon nach 100 s Messzeit erreicht werden /THI 09/.

²⁴ Der Untergrund der spektrometrischen Messung (Nulleffekt) hat starken Einfluss auf die charakteristi-schen Grenzen (z. B. die Nachweisgrenze) und Messunsicherheiten.

²⁵ Insbesondere für niederenergetische Photonenstrahlung bis etwa 150 keV zeigt die Effizienz eine sehr ausgeprägte Energieabhängigkeit, so dass sie auch sehr sensitiv auf Änderungen der Randbedingungen reagiert. Eine Effizienzkalibrierung hat somit die Randbedingungen der eigentlichen Messung möglichst präzise nachzuahmen.

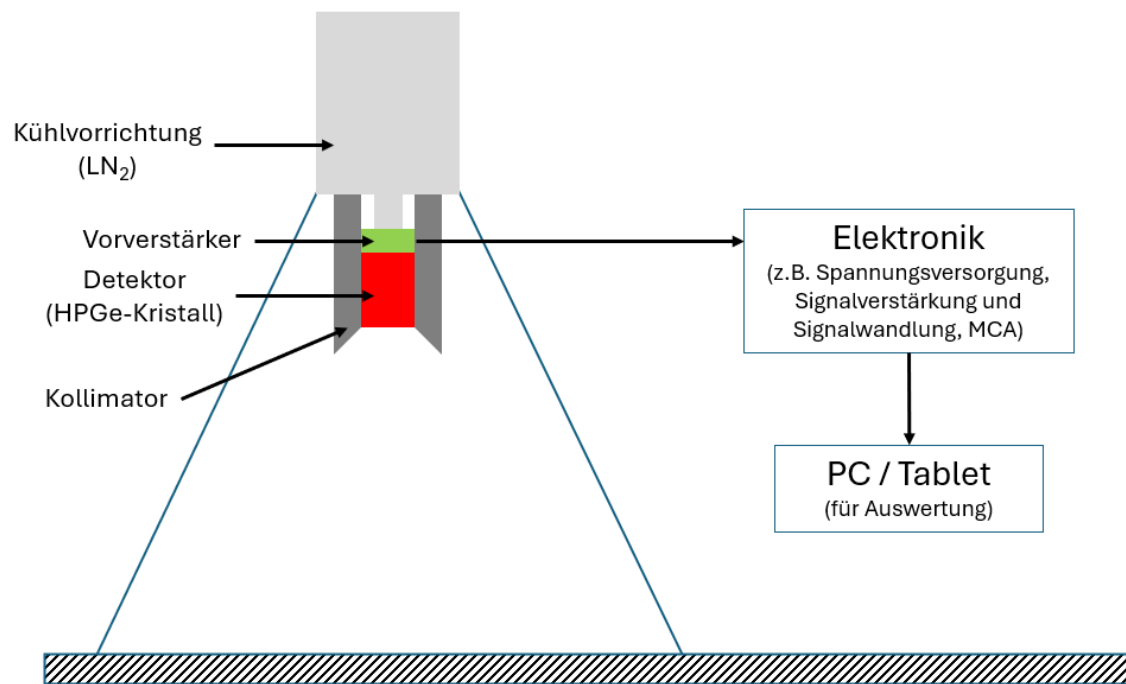


Abb. 6.1 Schematische Darstellung eines Messaufbaus für die in-situ Gammasktometrie

Das Detektorvolumen wird zur Reduzierung des Einflusses seitlicher Störstrahlung abgeschirmt und das Sichtfeld durch einen Kollimator eingeschränkt. Die Kühlvorrichtung dient der Kühlung des Detektors. Für HPGe-Detektoren wird entweder flüssiger Stickstoff oder eine elektrische Kühlung verwendet. Der Detektor befindet sich in einer stabilen Haltevorrichtung (z. B. Dreibein oder Handwagen). Die Ausgangssignale des Vorverstärkers werden elektronisch verarbeitet und anschließend zur Auswertung des Gammaskpektrums an einen PC oder Tablet übermittelt.

6.1.1 Anwendung der Gammaskpektrometrie für Voruntersuchungen und Freimessungen

Gammaskpektrometrische Laboruntersuchungen werden im Rahmen der Voruntersuchungen zur Auswertung von Stichproben verwendet und geben so Aufschluss über relevante Radionuklide und deren räumliche Verteilung (Probenanalytik). Sie können als Entscheidungsmessverfahren zur Prüfung der Einhaltung spezifischer Aktivitäten eingesetzt werden. Gammaskpektrometrische Laboruntersuchungen werden zudem auch für Entscheidungsmessungen an Schmelzproben (spezifische Freigabe von Metallschrott zum Recycling) eingesetzt.

Grundsätzliche Voraussetzung für die Eignung gammaskpektrometrischer Verfahren für Freimessungen ist ein ausreichend hoher Anteil gammastrahlender Radionuklide (z. B. Co-60 oder Cs-137) im heranzuziehenden Nuklidvektor.

Die in-situ Gammaskpektrometrie wird im Kontext der Freigabe von Gebäudestrukturen und Bodenflächen u. a. als Messverfahren für große Oberflächen verwendet und in diesem Rahmen beispielsweise für die Entscheidungsmessung der folgenden Freigabepfade genutzt:

- Spezifische Freigabe von Bodenflächen
- Spezifische Freigabe von Gebäuden zur Wieder- und Weiterverwendung
- Spezifische Freigabe von Gebäuden zum Abriss

Eine entscheidende Voraussetzung für die Anwendbarkeit des Messverfahrens für eine Entscheidungsmessung ist eine möglichst homogene Aktivitäts- bzw. Kontaminationsverteilung. Das Homogenitätskriterium ist bei Bodenflächen und Gebäudeflächen oftmals erfüllt. Dessen Erfüllung muss im Rahmen der Voruntersuchungen verifiziert werden.

Trotz bestimmter nachteiliger Eigenschaften – hierzu gehören neben langen Messzeiten auch der Aufwand zur Herstellung der Einsatzbereitschaft (z. B. Platzierung, Ausrichtung und Inbetriebnahme des Spektrometers) – gehört es aufgrund der folgenden Gründe für die o. g. Freigabepfade zu den Standardmessverfahren:

- Das Messverfahren erlaubt Direktmessungen, es ist somit keine Probennahme und -aufbereitung notwendig.
- Das Messverfahren ist zerstörungsfrei, die Ergebnisse sind also nahezu uneingeschränkt reproduzierbar.
- Eindringene Kontaminationen können bis zu einer gewissen Tiefe nachgewiesen werden.
- Der im Vergleich zu anderen Messverfahren, wie die Oberflächenkontaminationsmessung, hohe Aufwand für die Inbetriebnahme des Messgerätes wird zum Teil durch die großen Messflächen kompensiert.
- Die eigentliche Messung kann auch ohne Personal erfolgen, auch längere Messungen über mehrere Arbeitsschichten hinweg sind somit problemlos möglich.

Für die in-situ Gammaskpektrometrie an Gebinden können z. B. Fassscanner für die Entscheidungsmessungen genutzt werden, bei denen die Einhaltung massenspezifischer Aktivitätswerte zu prüfen ist (z. B. spezifische Freigabe von Bauschutt). Eine mög-

lichst homogene Aktivitätsverteilung ist Voraussetzung für die Anwendbarkeit, zudem sollte das komplette Gebindevolumen messtechnisch erfasst werden können. Fassscanner erlauben zwar nur eine geringe Ortsauflösung, eine sektorielle Betrachtung, die eine qualitative Prüfung des Homogenitätskriteriums erlaubt, ist mit einigen Messgeräten aber möglich.

Wesentliche Verfahrenseigenschaften sind in Tab. 6.1 festgehalten. Im Folgenden werden zur Illustration der Messeigenschaften exemplarisch drei gammaspektrometrische Messsysteme herausgegriffen und wesentliche Eigenschaften und Betriebsparameter zusammengefasst.

Tab. 6.1 Charakteristische Eigenschaften der Gammaskpektrometrie

Eignung für Strahlungsart	Photonenstrahlung (Gamma-Strahlung)
Technische Komplexität	Durchschnittlich (Labormessung) bis hoch (in-situ Messung) - Mobile Messgeräte sind oftmals schwer und können bis zu 100 kg inkl. Kühlung und Kollimatoren wiegen. - Die Elektronik für Pulsaufnahme, Pulsbearbeitung, Signalverstärkung und Analyse ist verhältnismäßig (z. B. im Vergleich zu Oberflächenkontaminationsmessungen) komplex. - Ein Koinzidenzbetrieb mit Veto-Detektoren (oftmals Szintillatoren) zur Reduzierung des Untergrunds ist zwar grundsätzlich möglich, dieser ist im kerntechnischen Bereich aber nicht etabliert.
Bedienungskomplexität	Durchschnittlich (Labormessung) bis hoch (in-situ Messung) - Für Entscheidungsmessungen gibt es qualifizierte Software, die bei der Auswertung des Spektrums unterstützt. - Das Spektrum ist auf Auffälligkeiten (z. B. Form der Peaks oder unerwartete Peaks) zu untersuchen - Für Labormessplätze werden in der Regel nur graduelle Änderungen beobachtet
Messgröße	Energiespektrum der absorbierten Gamma-Strahlung
Einschätzung der Messzeit	Lange Messzeiten aufgrund der vergleichsweise geringen (Photopeak-)Effizienz und der isotopenspezifischen Messung (spektrometrisches Verfahren)
Probennahme	Nicht notwendig (in-situ) bzw. notwendig (Labormessung)
Probenauf- und -vorbereitung	i. A. nicht bzw. nur minimale Probenvorbereitung (z. B. Mahlen) notwendig

Messflächen/Massen	Grundsätzlich können mit der in-situ Gammaskpektrometrie große Messflächen sinnvoll untersucht werden (Voraussetzung: homogene Kontaminationsverteilung). Labormessung: Typischerweise Massen im Bereich von 10 – 1.000 g
Eignung für schwer zugängliche Flächen	Nein
Eignung für die Erfassung eingedrungener Kontamination	In-situ: Ja, abhängig von der Gamma-Energie (typischerweise bis zu einigen cm Tiefe)
Eignung für Entscheidungsmessung	Ja, z. B. für die spezifische Freigabe von Gebäuden oder Bodenflächen

6.1.1.1 Messsystem für in-situ gammaskpektrometrische Messungen mit Komponenten des Unternehmens Mirion Technologies

Mirion Technologies ist ein etablierter Hersteller von Messgeräten für die Strahlungsüberwachung, u. a. führt das Unternehmen mehrere technische Lösungen für die in-situ Gammaskpektrometrie im Portfolio /MIR 25a/. Neben in-situ Gammaskpektrometern schließt dies auch mechanische Hilfsmittel (z. B. Halterungen, Transportwagen oder Kollimatoren) und Softwarepakete zur Auswertung der Gammaskpektren ein, die flexibel miteinander genutzt werden können.

Das Unternehmen bietet Germaniumdetektoren in unterschiedlichen Größen, Geometrien und Dotierungen an. Hierzu gehören auch konventionelle Koaxialdetektoren der SEGe™ (*Standard Electrode Coaxial Ge Detector*)-Reihe /MIR 21/. Die äußere Oberfläche der Detektoren ist mit einem n-Typ Kontakt (eindiffundiertes Lithium) versehen, die innere Oberfläche mit einem p-Typ Kontakt (implantiertes Bor). Der HPGe-Kristall befindet sich im Inneren einer Endkappe. Die Länge und die Durchmesser des Kristalls variieren je nach Detektortyp, so dass auch die relativen Effizienzen je nach Detektortyp zwischen 5 und 150 % (Orientierungswerte) variieren. Auch die Energieauflösung (ausgedrückt in der etablierten Größe *Full Width Half Maximum*, FWHM) variiert je nach Detektortyp. Gemäß Datenblatt der SeGe-Reihe liegt sie bei einer Photonenenergie von 1,3 MeV zwischen 1,75 und 2,40 keV. Beispielhaft herausgegriffen ergeben sich für den Detektortyp GC4018 ein Energieauflösungsvermögen von 1,8 keV bei einer Photonenenergie von 1,3 MeV, ein Peak-zu-Compton Verhältnis von 62 und eine relative Effizienz von mindestens 40 %. Die Endkappe dieses Detektortyps hat einen Durchmesser von 76 mm. Die Anforderungen der DIN 25457 an den Detektor für gammaskpektrometrische

Freimessungen hinsichtlich der Energieauflösung ($< 2,5$ keV bei 1,3 MeV) und der relativen Effizienz (Richtbereich: 20 bis 50 %) sind somit erfüllt.

Für die Detektoren der SEGeTM-Reihe stehen mehrere Kryostaten zur Verfügung, die u. a. hinsichtlich ihrer Größe und ihres Fassungsvermögens variieren. Ein Beispiel ist die Produktlinie SlimlineTM. Kryostaten dieser Produktlinie sind derart konzipiert, dass Detektor und Elektronik ohne überstehende Flansche, Ventile oder Vorstufe in einem zylindrischen Gehäuse untergebracht sind. Für den obigen Detektor erscheint beispielsweise für in-situ Messungen der Kryostat-Typ 79355-7SL geeignet, der über ein Fassungsvermögen von 7 Litern verfügt /MIR 19a/. Durch diesen Kryostaten wird, wie in der DIN 25457 gefordert, der hintere Halbraum weitestgehend abgeschirmt.

Die meisten HPGe-Detektoren des Unternehmens können zusammen mit dem Hilfsmittel ISOXSHLD genutzt werden /MIR 19b/. Hierbei handelt es sich um eine mobile Haltevorrichtung, die optional die Nutzung von Kollimatoren und Bleiabschirmungen erlaubt. Die Bleiabschirmungen in Form von Ringen haben eine Manteldicke von 25 (28,25 g/cm²) bzw. 50 mm (56,5 g/cm²), wodurch interferierende Photonen mit einer Energie von 1 MeV um einen Faktor von etwa 7,5 bzw. 60 abgeschwächt werden. Die DIN 25457 macht keine expliziten Vorgaben für die Flächenbelegung des Kollimators, verweist aber für die Praxis auf gängige Flächenbelegungen zwischen 40 und 50 g/cm². Je nach Typ beträgt der gesamte Öffnungswinkel der Kollimatoren 30, 90 oder 180°. Die DIN 25457 führt Richtwerte für den Öffnungswinkel zwischen 45 und 55° auf. ISOXSHLD verfügt als Hilfsmittel für die Ausrichtung über einen Laser. Es hat vier Räder, so dass das Messsystem entlang von Bodenflächen bewegt werden kann. Für Messungen von Bodenflächen stehen optional zudem stationäre Dreifüße zur Verfügung.

Die Kalibrierungsmethodik ISCOSTM kann für die numerische Effizienzbestimmung für werkseitig charakterisierte Detektoren genutzt werden /MIR 17/. In der entsprechenden Software sind die geeigneten Detektor- und Kryostat-Geometrien und modellierte Probengeometrien hinterlegt. Zur Analyse der Gammaspektren steht die Software GenieTM zur Verfügung /MIR 23a/. Das Softwarepaket erlaubt u. a. die Berücksichtigung der Kalibrierfaktoren, eine Nuklididentifizierung, eine Interferenzkorrektur. Nachweisgrenzen werden nach Vorgabe der Normreihe DIN EN ISO 11929 berechnet.

6.1.1.2 Messsystem für die Gammaspektrometrie an Materialproben

Zu den wesentlichen Komponenten eines gammaspektrometrischen Messsystems im Laborumfeld gehören der HPGe-Detektor, ein Kryostat zur Gewährleistung der Kühlung (z. B. mit flüssigem Stickstoff) und eine Abschirmung zur Unterdrückung der lokalen Störstrahlung. Das Unternehmen Mirion Technologies bietet auch hierfür etablierte Lösungen an.

Die Bleiabschirmung vom Typ 747 ist für die Nutzung von HPGe-Detektoren vorgesehen /MIR 22a/. Damit können der Detektor und die Messkammer, in der sich das Probenmaterial befindet, von einer etwa 10 cm dicken Bleischicht umgeben werden. Das Innere der Messkammer ist zudem durch eine 1 mm dicke Zinnschicht und 1,6 mm dicke Kupferschicht zur Reduzierung von Blei-Röntgenstrahlung ausgekleidet. Die Unterseite der Abschirmung hat eine ausreichend große Bohröffnung um Kryostaten der Serien Flanged™ /MIR 19c/ oder Slimline™ /MIR 19a/ aufzunehmen. Die Nutzung von Kryostaten mit Ferndetektorkammern wie beispielsweise das Modell 7500-RDC-8 hat den Vorteil, dass mit diesen auch die Vorstufe des HPGe-Detektors abgeschirmt werden kann. Als Detektor können beispielsweise konventionelle koaxiale Detektoren wie der o. g. Detektortyp GC4018 eingesetzt werden.

6.1.1.3 Fassmessanlage GAMS4 des Unternehmens NuviaTech

Das Unternehmen Nuvia Instruments GmbH ist ein Anbieter für standardisierte und individualisierte Messlösungen und offeriert u. a. ein breites Spektrum an Messtechnik für kerntechnische Anlagen /NUV 25/, /NUV 20a/. Das automatisierte Messsystem GAMS4 wurde für Freimessungen von 200-Liter-Fässern entwickelt, die mit schwach radioaktiven Abfällen befüllt wurden /NUV 21/.

Über ein automatisches Förderband gelangt das zu messende Fass in die eigentliche Messkammer. Das Innere der Messkammer ist gegen äußere Störstrahlung mit 100 mm Blei ausgekleidet. Das Blei ist innenliegend mit 1 mm Kupfer und 0,5 mm Zinn beschichtet. In der Messkammer befindet sich das Fass auf einem Drehteller, so dass eine gleichförmige Rotation des Fasses möglich ist. Über eine eingebaute Waage kann die Masse des Gebindes im Bereich bis zu 600 kg mit einer Präzision von 0,2 kg bestimmt werden. Als Detektoren werden standardmäßig elektrisch gekühlte HPGe-Detektoren des Unternehmens ORTEC verwendet, es können allerdings auch andere, ggfs. auch Stickstoffgekühlte HPGe-Detektoren eingesetzt werden. Die (fixierte) vertikale Anordnung der De-

tektoren erlaubt eine Messung über die volle Höhe. Die Messzeit der einzelnen Detektoren kann variieren, die minimale Messzeit beträgt nach Herstellerangaben etwa fünf Minuten. Der Einsatz von Kollimatoren mit Öffnungswinkeln von bis zu 90° ist – wie von der DIN 25457 empfohlen – vorgesehen. Die Effizienzkalibration kann für charakterisierte Detektoren numerisch erfolgen. Das Messsystem ist sensitiv für Photonen im Energiebereich von 50 keV bis 3 MeV.

Die vorgesehenen Detektoren haben eine relative Effizienz von über 50 % und eine Energieauflösung von unter 2,3 keV für Photonen mit einer Energie von 1,33 MeV. Sie erfüllen somit die entsprechenden Anforderungen der DIN 25457. Mit Hilfe der Software des Herstellers werden die Gammaspektren analysiert und isotopenspezifische massenspezifische Aktivitäten ermittelt. In der Software ist die Nutzung von Radionuklidatendatenbanken vorgesehen. Aus den beobachteten Aktivitätsverteilungen wird die Homogenität der Aktivität bewertet. Die Nachweisgrenzen sind Gebinde- und Isotopenabhängig. Für Cs-137 beträgt sie etwa 70 Bq pro Fass (Annahmen: 200-Liter-Fass, Material mit einer Dichte von 0,8 g/cm³, Datenaufnahme über 60 s und Nutzung von HPGe-Detektoren mit einer jeweiligen relativen Effizienz von 35 %).

6.2 Gesamt-Gamma-Aktivitätsmessung

Die Gesamt-Gamma-Messung ist ein Messverfahren zur Quantifizierung der Gesamtaktivität von Radionukliden in einem Messgut, die Gamma-Strahlung emittieren. Hochauflösende spektroskopische Informationen, die präzise Rückschlüsse auf die vorhandenen Radionuklide erlauben, sind mit diesem Messverfahren in der Regel nicht zugänglich. Das Messgut muss der Messeinrichtung zugeführt werden, typischerweise in Form von Gebinden, Containern oder Gitterboxen. In-situ Messungen sind mit diesem Verfahren somit nicht durchführbar. Das Messverfahren ist für ein breites Materialspektrum geeignet, das insb. lose mineralische Materialien (z. B. Bauschutt) als auch feste metallische Materialien (z. B. Armaturen) umfasst.

Wesentlicher Bestandteil der Messeinrichtung (Freimessanlage, FMA) ist eine quaderförmige Kammer, in der das Messgut platziert wird. Die Messkammer verfügt in der Regel über ein oder zwei Flügeltüren, über welche die Messkammer mit dem Messgut beschickt werden kann. Für das Erreichen einer möglichst hohen Nachweiswahrscheinlichkeit (Detektion der emittierten Gamma-Strahlung) ist nahezu der komplette Raumwinkel von mehreren, großflächigen Detektoren umgeben, die über eine möglichst gute relative Effizienz verfügen. Da das Auflösungsvermögen nur eine

untergeordnete Rolle spielt, werden als Detektoren für gewöhnlich großflächige (Plastik-)Szintillatoren eingesetzt. Die durch Wechselwirkungen der Gamma-Strahlung mit dem Detektormaterial erzeugten Photonen werden detektiert und verstärkt. Hierzu werden z. B. Photomultiplier genutzt. Die Detektoren erlauben grundsätzlich die Messung der Gamma-Energie, die Energieauflösung ist i. A. aber für eine spektroskopische bzw. spektrometrische Messung unzureichend. Aufgrund der massiven Messgüter wird zudem nur ein Teil der Photonenenergien vollständig in den Detektoren absorbiert. Compton-Streuungen im Messgut führen zu einem vergleichsweise hohen Untergrund im Gammaspektrum. Die Detektoren sind oftmals mit Diskriminatoren verbunden, mit denen Ereignisse mit einer Energie unterhalb einer Schwellenergie unterdrückt werden können. Die Ausgangssignale der Einzeldetektoren werden aufaddiert und eine Zählrate bestimmt (zählendes Messverfahren). Die Masse des Messguts wird über eine eingebaute Waage ermittelt, die Nettomasse wird durch Tara-Abzug berechnet. Zur Bestimmung von (isotopenspezifischen) Aktivitäten sind Informationen zum Nuklidvektor (das Material muss dem gleichen Nuklidvektor zugeordnet werden können) und verhältnismäßig aufwendige Kalibrationen notwendig. Mit diesen Kalibrationen werden u. a. die Detektoreffizienz ermittelt und die Geometrie des Messguts berücksichtigt. Häufig werden hierfür vereinfachende Annahmen (z. B. homogene Beladung mit einer effektiven Dichte bis zu einer bestimmten Füllhöhe) herangezogen. Zur Reduzierung des Nulleffektes wird die Messkammer ummantelt, hierfür werden in der Regel Stahl oder Blei mit einer Schichtdicke von bis zu 10 cm verwendet.

Die Größe der Anlage variiert je nach Anwendungszweck. Es existieren sowohl kompakte Anlagen mit einem Innenvolumen im Bereich einiger Kubikdezimeter als auch großvolumige Anlagen für Messgüter mit Volumen im Bereich eines Kubikmeters. Ebenso wie die geometrische Größe variiert auch die Anzahl der Detektoren je nach Anwendungszweck und Größe der Messeinrichtung. Für großvolumige FMA werden in der Regel 24 Einzeldetektoren (vier je Quaderseite) verwendet. Durch die Nutzung mehrerer Detektoren können bei ausreichender Ausprägung auch Inhomogenitäten erkannt werden.

Als qualitätssichernde Maßnahme können einige FMA mit einem zusätzlichen Detektormodul ausgestattet werden, mit dem der Nulleffekt gemessen werden kann. Zudem verfügen vereinzelte FMA auch über einen zusätzlichen Zugang zur Messkammer, der für ein hochauflösendes Gammaspektrometer genutzt werden kann. Dies erlaubt eine simultan zur eigentlichen Messung verlaufende Messung des Gammaspektrometers und

ermöglicht somit, abhängig von der Messzeit, eine qualitative Prüfung des dem Messgut zugeordneten Nuklidvektors. Eine schematische Darstellung des Funktionsprinzips ist in Abb. 6.2 dargestellt.

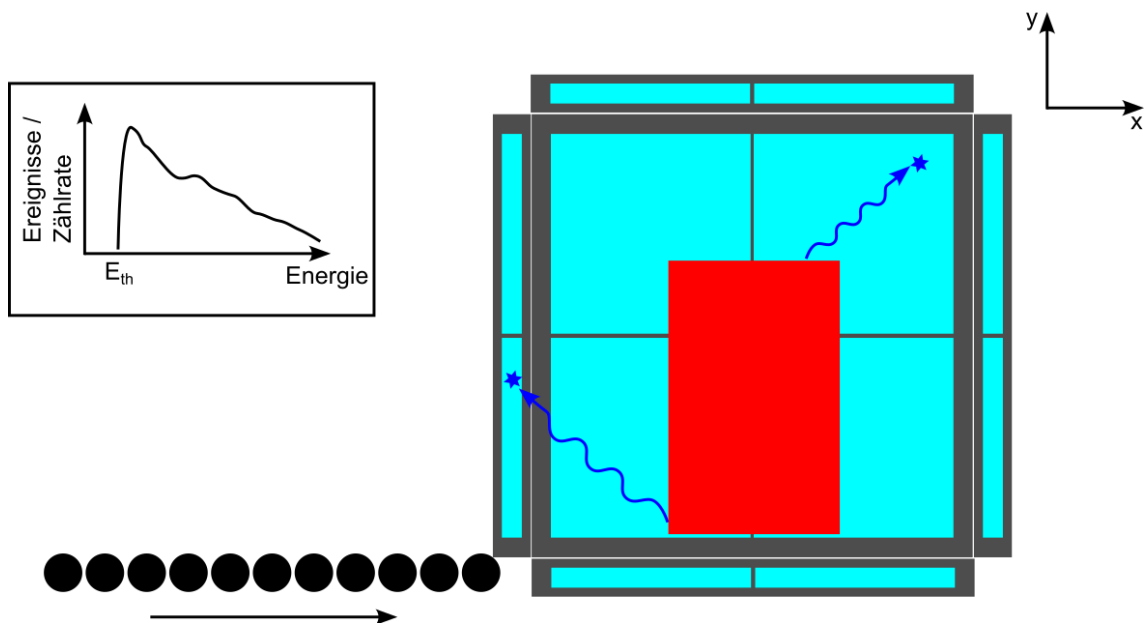


Abb. 6.2 Schematische Darstellung des Funktionsprinzips einer Freimessanlage (Querschnitt)

Das Messobjekt (rot) wird über ein (automatisches) Fördersystem in die Messkammer transportiert und zunächst gewogen. Auf den sechs Innenseiten der Kammer sind großflächige Szintillatoren (hellblau) installiert, in denen einfallende Gamma-Strahlung (blau) detektiert werden kann. Das Inlay zeigt ein exemplarisches Ereignis- bzw. Zählraten-Spektrum in Abhängigkeit der Energie und einer voreingestellten Schwellenenergie E_{th} .

6.2.1 Anwendung der Gesamt-Gamma-Aktivitätsmessung für Freimessungen

Die Gesamt-Gamma-Aktivitätsmessung wird für diejenigen Freigabepfade genutzt, für die massenspezifische Aktivitäten herangezogen werden. Dies betrifft sowohl die uneingeschränkte Freigabe als auch die spezifische Freigabe von Bauschutt, Bodenflächen sowie festen Stoffen zur Beseitigung auf Deponien oder in Verbrennungsanlagen. Von übergeordneter Bedeutung sind hierbei die im Vergleich zu anderen Messverfahren hohen Massendurchsätze, die mit FMA erzielt werden können. Sie gehören zu den integralen Messgeräten, die in Kernkraftwerken vor Ort eingesetzt werden /THI 09/, /TÜV 17/, /JAN 23/. Im Routinebetrieb können, bezogen auf Co-60 als Leitnuklid, Nachweisgrenzen von unter 10 mBq/g erreicht werden /THI 09/.

Die der Entscheidungsmessung zugeführten radioaktiven Stoffe werden in vordefinierte Gebinde (z. B. 200-Liter-Fässer, Gitterboxen oder Big Bags) eingebracht. Dadurch können Messgutchargen erstellt werden, die ähnliche Geometrien haben, so dass Effekte wie die Selbstabschirmung vergleichbar bewertet werden können. Bei den Messungen wird der Fokus auf Nuklidäquivalente, häufig in Form von Co-60-Äquivalenten, gelegt, die erst in der Software mit zusätzlichen Informationen, wie dem unterstellten Nuklidvektor oder der Art und Masse des Messgutes, zu einer Gesamtaktivität sowie isotopenspezifischen Aktivitäten umgerechnet werden.

Das Messverfahren wird in der Normenreihe DIN 25457 aufgeführt, so dass eine fundierte Darlegung der praktischen Anforderungen (z. B. hinsichtlich der notwendigen Kalibrationen oder des Prüfaufwands) existiert. Aufgrund der Bedeutung von FMA für die Freigabe wurden Ringversuche durchgeführt, bei denen die Performance unterschiedlicher FMA für standardisierte Gebinde untersucht und verglichen wurde /THI 09/.

Wesentliche Verfahrenseigenschaften sind in Tab. 6.2 hinterlegt. Im Folgenden wird zur Illustration der Messeigenschaften exemplarisch eine FMA herausgegriffen und deren wesentliche Betriebsparameter zusammengefasst.

6.2.1.1 Mirion RTM644-Smart Gamma Clearance Monitor

Mirion Technologies bietet (früher unter dem Namen RADOS) mehrere Gesamt-Gamma-Messanlagen an, die für unterschiedliche Messgutgrößen konzipiert wurden, und die für Freimessungen sowohl im industriellen Umfeld als auch in der Forschung Anwendung finden bzw. fanden /WAL 15/, /FRO 20/.

Zu den angebotenen Messeinrichtungen gehört auch die FMA vom Typ RTM644-Smart, die für Freimessungen großvolumiger Gebinde konzipiert wurde /MIR 23b/. Sie ist ausgelegt für Massen bis 1.000 kg und kann Massendurchsätze von bis zu 16 Mg pro Stunde erreichen. Die Messkammer mit einem Innenvolumen von etwa 1,9 m³ verfügt über Pendeltüren und ein automatisches Kettenfördersystem.

Tab. 6.2 Charakteristische Eigenschaften der Gesamt-Gamma-Aktivitätsmessung

Eignung für Strahlungsart	Photonenstrahlung (Gamma-Strahlung)
Technische Komplexität	Durchschnittlich bis hoch - Ortsfeste Messeinrichtung, die über eine abgeschirmte Messkammer verfügt und mit großflächigen Detektoren (oftmals (Plastik-) Szintillatoren) ausgestattet ist. - Die Detektoren sind an eine Messelektronik gekoppelt.
Komplexität Bedienung	Gering bis hoch Im Betrieb lässt sich die Messeinrichtung mit geringem Aufwand bedienen. FMA sind zuvorderst für den industriellen Einsatz konzipiert. Ein grundlegendes Verständnis der Einflussfaktoren (z. B. Quellen für Fluktuationen des Nulleffekts) wird vorausgesetzt. Die Anforderungen an die Kalibrierung der Messeinrichtung sind hoch, zudem sind auch im täglichen Betrieb regelmäßige Kontrollen der Kalibrationen durchzuführen.
Messgröße	Zählrate bzw. ein Energiespektrum der absorbierten Gamma-Strahlung (schlechte Auflösung)
Einschätzung der Messzeit	Kurze Messzeiten im Bereich von einer bis mehreren Minute(n)
Probennahme	Entfällt, das Messgut wird in einem geeigneten Gebinde der FMA zugeführt.
Probenauf- und -vorbereitung	Entfällt
Messflächen/Massen	Mit dem Messverfahren werden massenspezifische Aktivitäten bestimmt. Es können Volumen bis zu 1 m ³ und Massen bis zu wenigen 100 kg gemessen werden.
Eignung für schwer zugängliche Flächen	Nein
Eignung für die Erfassung eingedrungener Kontamination	Grundsätzlich ist diese Eignung gegeben. Das Messverfahren unterscheidet nicht zwischen einer Oberflächen- oder Volumenkontamination.
Eignung für Entscheidungsmessung	Ja, z. B. für die uneingeschränkte Freigabe oder bestimmte spezifische Freigabepfade (z. B. feste Stoffe zur Beseitigung auf Deponien)

Eine Waage zur Bestimmung der Masse des Messobjektes ist integriert. Die Detektion der Gamma-Strahlung erfolgt über 24 Kunststoff-Szintillatoren, die über ein aktives Volumen von 303 Litern verfügen.

Die Niederenergieschwelle zur Detektion der Photonen beträgt 80 keV, der Messbereich liegt zwischen 10 und 1E6 Bq. Die Abschirmung der Messkammer zur Reduzierung des Einflusses der Störstrahlung wird – im Einklang mit der Anforderung der DIN 25457 – durch modular konfigurierbare Bleiabschirmungen mit Dicken von 50 bzw. 75 mm realisiert. Im Datenblatt werden für die Isotope Co-60, Cs-137 und Ba-133 beispielhafte Erkennungsgrenzen (*detection limits*) für ausgewählte Randbedingungen (Punktquelle im Zentrum der Kammer, Irrtumswahrscheinlichkeit 10 %, Störstrahlung mit einer Zählrate von 2.400 cps (gemessen über fünf Minuten)) angegeben, die für Messzeiten zwischen 10 und 180 s einige 10 bis einige 100 Bq betragen. Grundsätzlich fallen die Erkennungsgrenzen mit steigender Messzeit, so reduziert sich beispielsweise die Erkennungsgrenze für Co-60 von 116 Bq (10 s) auf 34 Bq (180 s). Im Vergleich zu Co-60 ist die Erkennungsgrenze für Cs-137 aufgrund der unterschiedlichen Gamma-Energien etwa doppelt so hoch bei gleicher Messzeit. Zur Bestimmung der charakteristischen Grenzen wird die DIN EN ISO 11929 herangezogen. Der Nuklidvektor und die anzunehmenden Freigabewerte sind konfigurierbar. Die Anlage verfügt laut Herstellerangaben über Möglichkeiten zur (rudimentären) Verifizierung des angenommenen Nuklidvektors. Bei einer Aktivitätsüberschreitung wird ein visueller und hörbarer Kontaminationsalarm ausgegeben.

6.3 Direkte Oberflächenkontaminationsmessverfahren

Das direkte Oberflächenkontaminationsmessverfahren dient dem Nachweis festhaftender und nicht-festhaftender Kontaminationen auf Oberflächen. Es wird meist in-situ verwendet, kann aber auch für Messobjekte genutzt werden, die vorab aus ihrer Einbaulage entfernt wurden (z. B. aufgrund einer schlechten Zugänglichkeit des Objektes in Einbaulage). Entsprechende Messgeräte sind grundsätzlich empfindlich für Alpha-, Beta- und Gamma-Strahlung. In der Praxis werden Alpha- und Beta-/Gamma-Kontaminationen simultan oder selektiv gemessen. Die einfallende Strahlung in Form von Teilchen oder Photonen wird in zählbare Impulse umgewandelt. Das Messverfahren ist somit weder energieaufgelöst noch nuklidspezifisch, eine Bestimmung bzw. Verifizierung der (angenommenen) Nuklidzusammensetzung ist somit nicht möglich. Als aktives Detektorvolumen werden heutzutage überwiegend Szintillatoren eingesetzt. Insbesondere für ältere Messgeräte wurden auch gasgekühlte Detektoren (z. B. Xenon) genutzt, die nach dem Zählrohrprinzip (Geigerzähler oder Proportionalzähler) funktionierten. Eine schematische Darstellung des Messprinzips ist in Abb. 6.3 abgebildet.

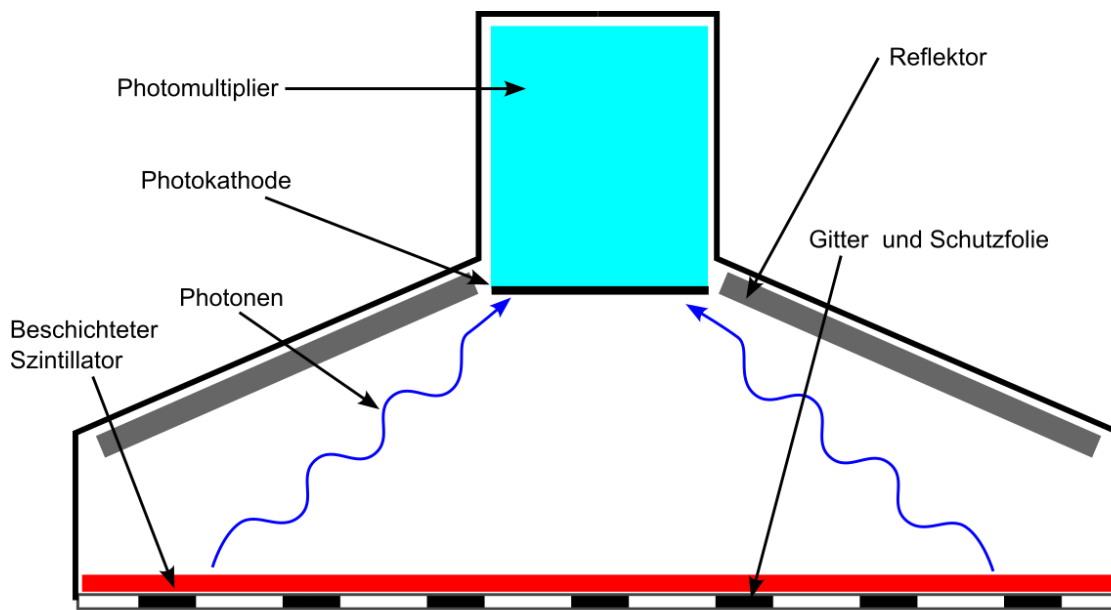


Abb. 6.3 Schematische Darstellung der Funktionsweise eines Kontaminationsmessgerätes

Das Messgerät ist auf der Unterseite (die in der Regel parallel zur Oberfläche des Messobjektes ausgerichtet ist) mit einem Gitter geschützt. Oberhalb des Gitters befindet sich eine Schutzfolie. Der Szintillator ist auf der Unterseite zur Detektion der Alpha-Strahlung beschichtet, z. B. mit Zinksulfid. Der Nachweis der Beta- und Gamma-Strahlung erfolgt direkt im Szintillator. Emittierte Photonen gelangen zur Photokathode, herausgeschlagene Elektronen werden im Photomultiplier vervielfacht.

Das Messgerät wird während der Messung in geringem Abstand zum Messobjekt gehalten (stationäre Messung) bzw. langsam parallel zur Oberfläche (dynamische Messung) bewegt. Unter Berücksichtigung der Kalibrierfaktoren und der Nachweiswahrscheinlichkeit wird aus der Zählrate eine flächenbezogene Aktivität bestimmt. Die Nachweiswahrscheinlichkeit ist strahlungsabhängig, so dass zur Aktivitätsbestimmung die Zusammensetzung der Kontamination bekannt sein muss.

Die Komplexität der Messgeräte ist im Vergleich zu Messgeräten anderer Messverfahren gering. Kleinere Reparaturen wie der Austausch der Schutzfolie können in der Regel vor Ort und ohne Fremdpersonal durchgeführt werden. Etablierte Messgeräte sind robust, kompakt und aufgrund des geringen Gewichtes handtragbar. Die Messoberfläche ist durch die Oberfläche des Detektors beschränkt und liegt typischerweise im Bereich von 200 cm². Für aussagekräftige Ergebnisse muss die Messgeometrie den Vorgaben (Annahmen der Kalibrierung) entsprechen. Die Nutzung von Hilfsmitteln (z. B. mobile Bodenmessenrichtungen, mit denen der Abstand zwischen Detektor(en) und Messobjekt konstant gehalten werden kann) kann zweckdienlich sein.

6.3.1 Anwendung direkter Oberflächenkontaminationsmessverfahren für Voruntersuchungen und Freimessungen

Das Messverfahren wird für den Nachweis von Oberflächenkontaminationen verwendet, die auf Alpha- oder Beta-Strahler zurückzuführen sind. Für die Detektion von Gamma-Strahlung ist das Messverfahren, aufgrund der geringen Dicke des Detektorvolumens, nur bedingt geeignet. Als zählendes Messverfahren erlaubt es keine direkten Rückschlüsse auf die vorliegenden Radioisotope, so dass es für die Charakterisierung im Rahmen der Voruntersuchung i. A. nicht bzw. nur zu einer groben Orientierung herangezogen werden kann. Für aktivierte Materialien oder eingedrungene Kontaminationen ist das Verfahren aufgrund der Absorption der Alpha- bzw. Betastrahlung im Material i. A. ungeeignet. Demnach sollte die zu messende Oberfläche unbeschädigt sein, so dass eingedrungene Kontaminationen auszuschließen sind. Durch die Wahl konservativer Kalibrierfaktoren können Einschränkungen für die Anwendbarkeit reduziert werden (vgl. DIN 25457-1). Feste Stoffe mit einer wohldefinierten Oberfläche, Metallschrott oder geschlossene Gebäudeoberflächen stellen mögliche Messobjekte dar.

Das Messverfahren gehört zu den Standardverfahren für Entscheidungsmessungen, für deren Bewertung oberflächenbezogene Aktivitäten herangezogen werden müssen. Für die Anwendbarkeit des Messverfahrens für Freimessungen müssen Voraussetzungen, die beispielsweise die Oberflächenbeschaffenheit oder die Zugänglichkeit betreffen, erfüllt sein. Diese Anforderungen werden in den Normenreihe DIN 25457, ggfs. unter Verweis auf weitere Normenreihen wie die DIN ISO 7503, detailliert beschrieben.

Da grundsätzlich die vollständige Oberfläche des Messobjektes gemessen werden muss, kann insb. bei ausgedehnten Messoberflächen die praktische Verfahrenseignung durch die geringe Messfläche eingeschränkt sein. Die Nutzung von (teilautomatisierten) Hilfsmitteln kann zweckdienlich sein und den (Personal-)Aufwand reduzieren.

Wesentliche Eigenschaften des Messverfahrens sind in Tab. 6.3 aufgeführt. Im Folgenden werden zur Illustration der Messeigenschaften exemplarisch zwei Kontaminationsmonitore herausgegriffen und wesentliche Betriebsparameter zusammengefasst.

Tab. 6.3 Charakteristische Eigenschaften der direkten Oberflächenaktivitätsmessung

Eignung für Strahlungsart	Alpha- und Beta-Strahlung; mit Einschränkung auch Photonenstrahlung (Gamma-Strahlung)
Technische Komplexität	Gering Kompakte und handtragbare Messgeräte
Komplexität Bedienung	Gering Die Bedienung ist grundsätzlich einfach, die korrekte Handhabung (z. B. Überstreichzeiten oder die Einhaltung des vorgegebenen Abstandes) setzt Sorgfalt voraus.
Messgröße	Impulse bzw. Zählrate
Einschätzung der Messzeit	Kurze Messzeiten, Größenordnung 10 s
Probennahme	Nein (In-situ Messung)
Probenauf- und -vorbereitung	Nein
Messflächen (Massen)	Kleine Messflächen, typischerweise im Bereich von 200 cm ²
Eignung für schwer zugängliche Flächen	Ja, aber mit Einschränkungen. Das Messgerät ist kompakt, zudem können ggfs. Hilfsmittel (z. B. Rohrsonden) verwendet werden.
Eignung für die Erfassung eingedrungener Kontamination	Nein (bezogen auf Alpha- und Beta-Strahlung)
Eignung für Entscheidungsmessung	Grundsätzlich ist die Eignung für oberflächenbezogene Richtwerte gegeben, z. B. im Rahmen der spezifischen Freigabe von Gebäuden zur Weiterverwendung bzw. von Gebäuden zum Abriss.

6.3.1.1 NUVIATech CoMo-170 Kontaminationsmonitor

Der tragbare Kontaminationsmonitor CoMo-170 von NUVIATech hat ein geringes Gewicht von 800 g und eine Detektorgröße von 170 cm² /NUV 20b/. Als Detektor wird ein dünnschichtiger Plastiksintillationsdetektor mit ZnS-Beschichtung eingesetzt. Der Detektor ist somit sensitiv für Alpha- als auch für Beta-/Gamma-Strahlung. Auf der Unterseite befinden sich ein engmaschiges Wabengitter und zwei aluminiumbedampfte Mylarfolien mit einer Dicke von jeweils 2 µm. Der Nulleffekt beträgt für den Alpha-Kanal etwa 0,1 cps und für den Beta-/Gamma-Kanal etwa 9 bis 13 cps. Repräsentative Empfindlichkeiten wurden nach ISO 7503-1 bestimmt und liegen typischerweise im Bereich einiger 10 %. Für Am-241 (Alpha-Strahler) beträgt sie beispielsweise ca. 56 %, für den niederenergetischen Beta-Strahler C-14 beträgt sie ca. 40 %. In den Einstellungen des Mess-

gerätes kann festgelegt werden, ob die Messung nach DIN ISO 7503 erfolgen soll und/oder ob die charakteristischen Grenzen nach DIN EN ISO 11929 bestimmt werden sollen. Die heranzuziehende Fehlerwahrscheinlichkeit für die Nachweisgrenze und den Vertrauensbereich für die Ermittlung nach DIN EN ISO 11929 kann angepasst werden. Das Messgerät verfügt, im Einklang mit der Anforderung der DIN 25457, über eine akustische und optische Alarmfunktion bei Überschreitung von Schwellwerten.

6.3.1.2 Berthold LB 124 SCINT Kontaminationsmonitor

Das Unternehmen Berthold bietet u. a. technische Lösungen für den Strahlenschutz an. Hierzu gehören auch Kontaminationsmessgeräte wie die tragbaren Kontaminationsmonitore der Serie LB 124 SCINT /BER 24/, die für die gleichzeitige und getrennte Messung von Alpha- und Beta-/Gamma-Strahlung konzipiert sind.

Das Basismessgerät LB 124 SCINT verfügt über einen ZnS(Ag) Szintillationsdetektor mit einer empfindlichen Oberfläche von 170 cm². Das Eintrittsfenster besteht aus metallisiertem Kunststoff mit einer Flächenbelegung von 0,4 mg/cm². Das Schutzgitter erlaubt laut Herstellerangaben eine Transmission von 80 %. Das Messgerät wiegt 1,3 kg und ist somit gut zu handhaben. Der Nulleffekt beträgt für den Alpha-Kanal etwa 0,1 cps und für den Beta-/Gamma-Kanal etwa 10 cps. Typische Empfindlichkeiten wurden nach Vorgaben der ISO 7503-1 bestimmt und liegen typischerweise im Bereich einiger 10 %. Für Am-241 beträgt sie beispielsweise ca. 44 %, für den niederenergetischen Beta-Strahler C-14 beträgt sie ca. 29 %. Der Messbereich reicht für den Alpha-Kanal bis etwa 5.000 cps und für den Beta-/Gamma-Kanal bis etwa 50.000 cps. Für die Bestimmung der Kalibrierfaktoren wird die ISO 7503-1 herangezogen, für die charakteristischen Grenzen wird die DIN EN ISO 11929-1 berücksichtigt. Das Messgerät verfügt im Einklang mit der DIN 25457 über eine akustische und optische Alarmfunktion bei Überschreitung von Schwellwerten.

6.4 Indirekte Oberflächenkontaminationsmessverfahren

Bei den indirekten Oberflächenkontaminationsmessverfahren erfolgt die Kontaminationsmessung indirekt mit Hilfe einer Wischprobe. Voraussetzung für die Anwendbarkeit des Verfahrens ist somit eine nicht-festhaftende Oberflächenkontamination. Der Wischtest erfolgt meist durch Abwischen der Oberfläche mit (un-)perforierten Trägern aus Baumwollgewebe (Filterpapier). Zur Durchführung des Wischtests existiert mit der DIN ISO 7503-2 eine detaillierte praktische Orientierungshilfe. Die für die Wischtest ein-

gesetzten Filterpapiere haben typischerweise einen Durchmesser zwischen 60 und 220 mm. Die Wischtestprobe wird anschließend in einem geeigneten Messgerät, das in den Grundzügen oftmals denen der direkten Oberflächenkontaminationsmessung ähnelt, gemessen /UMBW 20/, /DIN 24a/. Einige Messgeräte verfügen über Probenwechsler und erlauben so einen teilautomatisierten Betrieb.

Als Detektoren werden heutzutage meist beschichtete dünnsschichtige (Plastik-)Szintillatoren (siehe Kapitel 6.3) eingesetzt. Die Kalibrierung der Wischtest-Messplätze wird in DIN ISO 7503-1 beschrieben. Auf das Messverfahren wird in der Praxis zurückgegriffen, wenn die Randbedingungen (z. B. unzugängliche Oberflächen) keine direkte Oberflächenkontaminationsmessung erlauben. Zudem können gekrümmte Oberflächen problematisch für die Nutzung direkter Messverfahren sein. Auch können starke Störstrahlungen im Einzelfall die Eignung direkter Messverfahren negativ beeinflussen.

6.4.1 Anwendung indirekter Oberflächenkontaminationsmessverfahren für Voruntersuchungen und Entscheidungsmessungen

Die indirekte Oberflächenkontaminationsmessung ist für die Entscheidungsmessung im Freigabeverfahren grundsätzlich geeignet, aufgrund der i. A. mit dem Verfahren einhergehenden Unsicherheiten (bedingt durch die nichtmessbaren Anteile der festhaftenden Kontaminationen oder durch Unsicherheiten bei der Bestimmung des Entnahmefaktors), wird es in der Praxis jedoch eher als unterstützendes Verfahren zu weiteren Messmethoden oder im Rahmen der Voruntersuchung eingesetzt /SSK 02/, /UMBW 20/.

Wesentliche Eigenschaften des Messverfahrens sind in Tab. 6.4 zusammengefasst. Im Folgenden wird zur Illustration der Messeigenschaften exemplarisch ein Wischtestmessplatz herausgegriffen und dessen wesentliche Betriebsparameter zusammengefasst.

Tab. 6.4 Charakteristische Eigenschaften der indirekten Oberflächenaktivitätsmessung

Eignung für Strahlungsart	Alpha- und Beta-Strahlung; mit Einschränkung auch Photonenstrahlung (Gamma-Strahlung)
Technische Komplexität	Gering Messgeräte nutzen die gleichen Messprinzipien wie Messgeräte für den direkten Oberflächenkontaminationsnachweis. Messgeräte verfügen oftmals über einen (automatisierten) Probenwechsler.
Komplexität Bedienung	Gering Die Anforderungen an die Bedienung der Wischtestmessplätze sind gering. Zur ordnungsgemäßen Durchführung der Wischtests ist eine Einweisung notwendig.
Messgröße	Impulse bzw. Zählrate
Einschätzung der Messzeit	Gering bis durchschnittlich (u. a. abhängig vom Entnahmefaktor)
Probennahme	Ja (Wischtest)
Probenauf- und -vorbereitung	Nein
Messflächen/Massen	Die Größe der abzuwischenden Oberfläche wird vorab festgelegt und liegt oftmals im Bereich von 100 cm ² .
Eignung für schwer zugängliche Flächen	Ja
Eignung für die Erfassung eingedrungener Kontamination	Nein
Eignung für Entscheidungsmessung	Ja (oberflächenbezogene Richtwerte), allerdings mit Einschränkungen aufgrund verhältnismäßig großer Unsicherheiten (Unsicherheit für Entnahmefaktor)

6.4.1.1 NUVIA Tech Wischtest-Messplatz NuWIMP 60-100

Der Wischtest-Messplatz NuWIMP 60-100 /NUV 20c/ verfügt über einen automatisierten Probenwechsler für bis zu 100 Proben. Der Messplatz erlaubt die simultane und selektive Messung von Alpha- und Beta-/Gamma-Kontaminationen.

Es können sowohl Wischtestproben als auch Aerosolfilter mit einem Durchmesser von bis zu 60 mm ausgewertet werden. Als Detektor wird ein dünnschichtiger Plastiksintillationsdetektor mit einer ZnS-Beschichtung eingesetzt. Die Detektorabschirmung ist in dem Photomultiplier integriert. Die eingesetzte Kalibriersoftware berücksichtigt die DIN ISO 7503, die charakteristischen Grenzen werden nach DIN EN ISO 11929 ermittelt.

6.5 Dosisleistungsmessverfahren

Das Dosisleistungsmessverfahren dient der Messung der örtlichen Dosis pro Zeit (Dosisleistung). Das Ergebnis wird direkt am Messgerät in einer passenden Einheit, z. B. $\mu\text{Sv/h}$, angezeigt. Viele Messgeräte bieten zudem die Möglichkeit, als Ergebnis auch die Dosis, die Umgebungsäquivalentdosis $H^*(10)$ bzw. die Umgebungsäquivalentdosisleistung $H^*(10)$ darzustellen.

Bei diesem Messverfahren werden zur Detektion der Strahlung in der Regel gasgefüllte Detektoren, oftmals in Form von Geiger-Müller-Zählrohren, eingesetzt. Einfallende Strahlung gelangt durch ein Eintrittsfenster in das (gas-gefüllte) aktive Detektorvolumen und erzeugt dort durch Ionisation freie Elektronen, die durch das angelegte elektrische Feld beschleunigt werden und zur Anode wandern. Je nach Stärke des elektrischen Feldes können die Elektronen ggfs. weitere Elektronen freisetzen (Lawinenbildung) – dies ist z. B. für das Geiger-Müller-Zählrohr der Fall. Dieses hat eine zylindrische Geometrie, bei der der äußere Mantel die Kathode und ein zentral liegender Draht die Anode bilden. Das Funktionsprinzip ist in Abb. 6.4 dargestellt. Das Geiger-Müller-Zählrohr misst Impulse, zur Identifikation der Teilchenart oder zur Energiebestimmung ist es ungeeignet. Geiger-Müller-Zählrohre haben eine verhältnismäßig lange Totzeit im Bereich von $100\ \mu\text{s}$, Sättigungseffekte bei hohen Zählraten sind somit zu berücksichtigen.

Das aktive Detektorvolumen ist aufgrund der Gasfüllung abgeschlossen, so dass es insb. für den Nachweis von Gamma-Strahlung geeignet ist. Es kann allerdings bei entsprechender Wahl des Eintrittsfensters (geringe Massenbelegung) auch für den Nachweis von Beta- oder sogar Alpha-Strahlung genutzt werden.

Die wesentlichen Komponenten eines Dosisleistungsmessgeräts auf Basis eines Geiger-Müller-Zählers sind neben dem Zählrohr – typischerweise gefüllt mit Argon oder Xenon – ein Hochspannungsmodul und eine impulsverarbeitende Elektronik. Letztere wandelt die im Zählrohr erzeugten Spannungssignale in digitale Impulse. Damit das Messgerät zuverlässige und reproduzierbare Messwerte liefert, sind regelmäßige Kalibrierungen erforderlich.

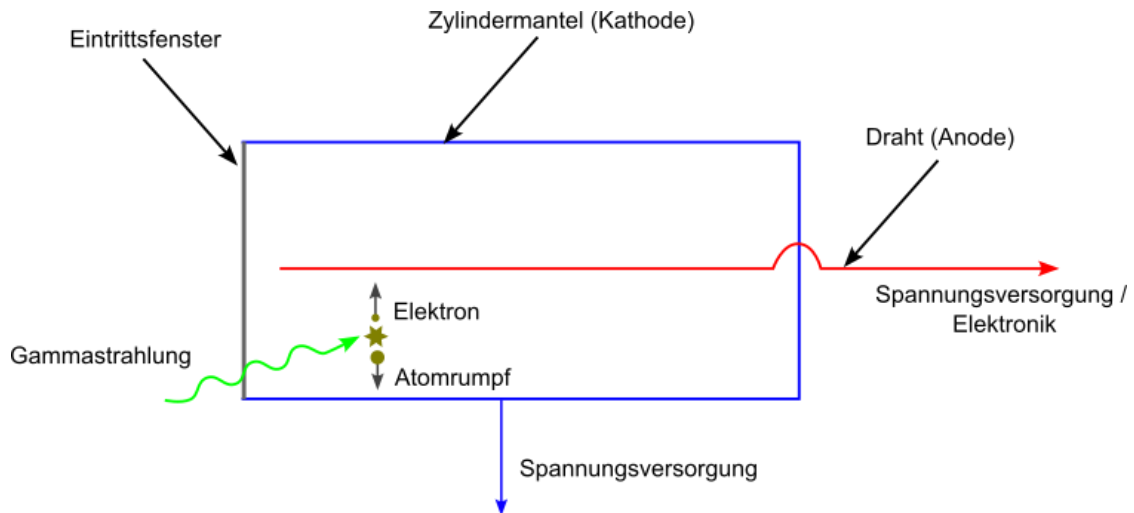


Abb. 6.4 Illustration des Funktionsprinzips eines Geiger-Müller Zählrohrs

Die Messgeräte sind für den Fall, dass nur Photonenstrahlung nachgewiesen soll, sehr robust und kompakt. Die Empfindlichkeit der Messgeräte steigt bei Nutzung dünner Eintrittsfenster, wie sie für den Beta- bzw. Alpha-Nachweis benötigt werden. Die Investitionskosten sind vergleichsweise gering. Die Messgeräte können sowohl mobil als auch stationär eingesetzt werden, sowohl in-situ als auch ex-situ Messungen (z. B. an Proben) sind somit möglich.

6.5.1 Anwendung der Dosisleistungsmessung für Voruntersuchungen und Entscheidungsmessungen

Die Dosisleistungsmessung dient vor allem dem praktischen Strahlenschutz sowohl in nach Strahlenschutz genehmigte Tätigkeiten/Anlagen (z. B. Beschleunigeranlagen) als auch in kerntechnischen Anlagen. Das Messverfahren dient der Bestimmung lokaler Ortsdosisleistungen und wird im Rahmen der Voruntersuchungen z. B. für Kartierungszwecke genutzt. Für Freimessungen ist es praktisch ungeeignet.

Wesentliche Messverfahreenseigenschaften sind in Tab. 6.5 zusammengefasst. Im Folgenden wird zur Illustration der Messeigenschaften exemplarisch ein Dosisleistungsmessgerät herausgegriffen und auf wesentliche Betriebsparameter verwiesen.

Tab. 6.5 Wesentliche Charakteristika des Dosisleistungsmessverfahrens

Eignung für Strahlungsart	Photonenstrahlung (Gamma-Strahlung)
Technische Komplexität	Gering Zählrohre sind robuste Geräte mit einem einfachen Aufbau.
Komplexität Bedienung	Gering Kompakte Messgeräte mit verhältnismäßig wenigen einzustellenden Parametern
Messgröße	(Gamma-)Dosis bzw. (Gamma-)Dosisleistung
Einschätzung der Messzeit	Sehr kurze Messzeiten für Einzelmessungen Das Verfahren dient primär kontinuierliche Messungen des Ist-Wertes.
Probennahme	Das Messverfahren dient zuvorderst der Messung der lokalen Dosisleistung, eine Nutzung im Kontext von Proben ist aber grundsätzlich nicht ausgeschlossen.
Probenauf- und -vorbereitung	Nein
Messflächen/Massen	Nicht zutreffend Das Gerät dient der lokalen Dosisleistungsmessung.
Eignung für schwer zugängliche Flächen	Nicht zutreffend (s. o.)
Eignung für die Erfassung eingedrungener Kontamination	Nicht zutreffend (s. o.)
Eignung für Entscheidungsmessung	Nein – Nutzung als Hilfsmittel bzw. zur Orientierung

6.5.1.1 NUVIA Tech Dosis- und Dosisleistungsmonitor DoMo I

Der Dosisleistungsmonitor DoMo I ist für mobile Niederdosisleistungsmessungen in einem Bereich von 1 $\mu\text{Sv/h}$ bis 100 mSv/h ausgelegt /NUV 20d/. Der Nachweis erfolgt über ein integriertes Geiger-Müller-Zählrohr. Das Messgerät ist sensitiv für Gamma-Strahlung im Energiebereich von 45 keV bis etwa 1,3 MeV. Auf dem Display des Messgerätes werden simultan Dosis und Dosisleistung angezeigt, zudem können die Umgebungsäquivalentdosis $H^*(10)$ bzw. die Umgebungsäquivalentdosisleistung $H^*(10)$ dargestellt werden. Es können Schwellwerte für Dosis und Dosisleistung eingestellt werden, bei deren Überschreitung eine optische oder akustische Warnung erfolgt. Das Messgerät ist kompakt und hat ein geringes Gewicht von unter 300 g. In Verbindung mit externen Kontaminationssonden können auch Aktivitäten oder flächenbezogene Aktivitäten ermittelt werden.

6.6 Flüssigszintillationsmessverfahren

Die Flüssigszintillationsmessung (*Liquid Scintillation Counting*, LSC) ist ein hochsensitives radiometrisches Verfahren für den Nachweis von Radionukliden, die Beta-Strahlung emittieren oder die durch Elektroneneinfang zerfallen. Zudem existieren auch LSC-Messgeräte, die für den Alpha-Nachweis geeignet sind.

Das Messprinzip der LSC nutzt grundsätzlich das in Kap. 6.2 erläuterten Prinzip der Szintillation. Der grundlegende Unterschied zur Festkörperszintillatoren ist, dass die Lichtemission in einem flüssigen Szintillatorcocktail²⁶(LSC-Cocktail) entsteht, in dem die Probe idealerweise homogen gelöst ist. Die Anzahl der erzeugten Photonen eines Zerfalls ist proportional zur Zerfallsenergie. Abhängig vom Messgerät ist das Proben-LSC-Cocktail Gemisch von zwei bis drei Photomultipliern umgeben, die beispielsweise koinzidente Messungen erlauben. Das Funktionsprinzip ist in Abb. 6.5 dargestellt.

Durch die Mischung aus Probe und LSC-Cocktail entfallen Strahlungsverluste nahezu gänzlich, so dass dieses Verfahren eine sehr hohe Nachweiswahrscheinlichkeit erlaubt. Als Ergebnis der Messung liegt ein energieaufgelöstes Beta-Spektrum vor. Darüber hinaus kann die LSC durch die Anwendung von Alpha-Beta-Diskriminierung auch zur Messung von Alpha-Strahlern in Proben verwendet werden, die gleichzeitig Beta-Strahler enthalten /HOU 18/. Die verwendeten Szintillatoren sind, ebenso wie die verwendeten Lösungsmittel, konjugierte organische Verbindungen wie PPO (2,5-Diphenyloxazol) oder auch PBD (2-Phenyl-5-(4-biphenyl)-1,3,4-oxadiazol) /NAT 04/.

Das Messverfahren setzt eine Probenahme, (chemische) Probenaufbereitung und Auflösung der aufbereiteten Probe im LSC-Cocktail voraus, es gehört somit zu den zerstörenden Messverfahren. Die Ausgangsproben können fest, flüssig oder gasförmig sein. Die Probe sollte idealerweise zu keinen Quencheffekten führen. Diese Effekte können physikalischer, optischer oder chemischer Art sein sowie durch Ionisation ausgelöst werden. Sie führen dazu, dass durch eine Verschiebung bzw. Stauchung des Spektrums die Daten fehlinterpretiert werden können oder nicht auswertbar sind. Physikalische Quencheffekte entfallen, wenn die Probe homogen im LSC-Cocktail gemischt ist. Chemische Quencheffekte treten am häufigsten auf und entstehen, wenn die Energie der Strahlung in Form von Wärme anstatt von Licht abgegeben wird. Quencheffekte

²⁶ Fertige Mischung aus einem oder mehreren organischen Szintillatoren und Lösungsmitteln

durch Ionisation treten auf, wenn durch die Ionisation temporäre oder dauerhafte Schäden in den angeregten Molekülen entstehen /HOU 18/.

Der Kalibrierungsaufwand bei der LSC ist abhängig von der Bandbreite des Nuklidgemisches und vom Aufbau des Messgerätes (Nutzung von zwei- oder dreifachen Koinzidenzen). Der Aufwand kann durch effiziente chemische Aufarbeitung und Abtrennung erheblich reduziert werden. Zur Reduzierung von Unsicherheiten ist ein stabiler und möglichst geringer Untergrund notwendig, der keinen signifikanten Schwankungen unterliegt. Durch entsprechende Abschirmung kann das äußere Strahlungsfeld gut kontrolliert werden. Der Untergrund wird besonders durch die Chemo- und Photolumineszenz in der Probe beeinflusst und muss entsprechend berücksichtigt werden.

Bei Messgeräten mit drei Photomultipliern kann die Methode des *Triple-to-Double Coincidence Ratio* (TDCR) genutzt werden, die eine Absolutmessung von Radionukliden mittels LSC erlaubt /BRO 88/. Mit Hilfe dieser Methode kann die Zählausbaute aus dem experimentell bestimmten Verhältnis der dreifachen Koinzidenzen zu den zweifachen Koinzidenzen bestimmt werden. Sie nutzt aus, dass dreifache Koinzidenzen im Vergleich zu zweifachen Koinzidenzen deutlich stärker von Quencheffekten beeinflusst werden – das Maß des Quenches ist somit im TDCR-Wert inkludiert. Die TDCR-Methode benötigt oftmals keinen externen Standard und keine Kalibrierung. Typischerweise gibt der TDCR-Wert bei reinen Beta-Strahlern die Zählausbeute mit einer Genauigkeit von etwa 15 % an /HID 25/.

Die Messzeit hängt zu wesentlichen Teilen von der Aktivität, dem örtlichen Nulleffekt, dem eingesetzten Messgerät und der benötigten Genauigkeit des Messergebnisses ab. Typischerweise betragen die Messzeiten einige Minuten bis einige Stunden /NAT 04/, /SCH 23a/, /KRA 05/.

Mit der DIN EN ISO 19361 existiert eine Norm, die sich an die Bestimmung der Aktivität von Beta-Strahlern mit Hilfe von Flüssigszintillationsmessverfahren richtet /DIN 20/.

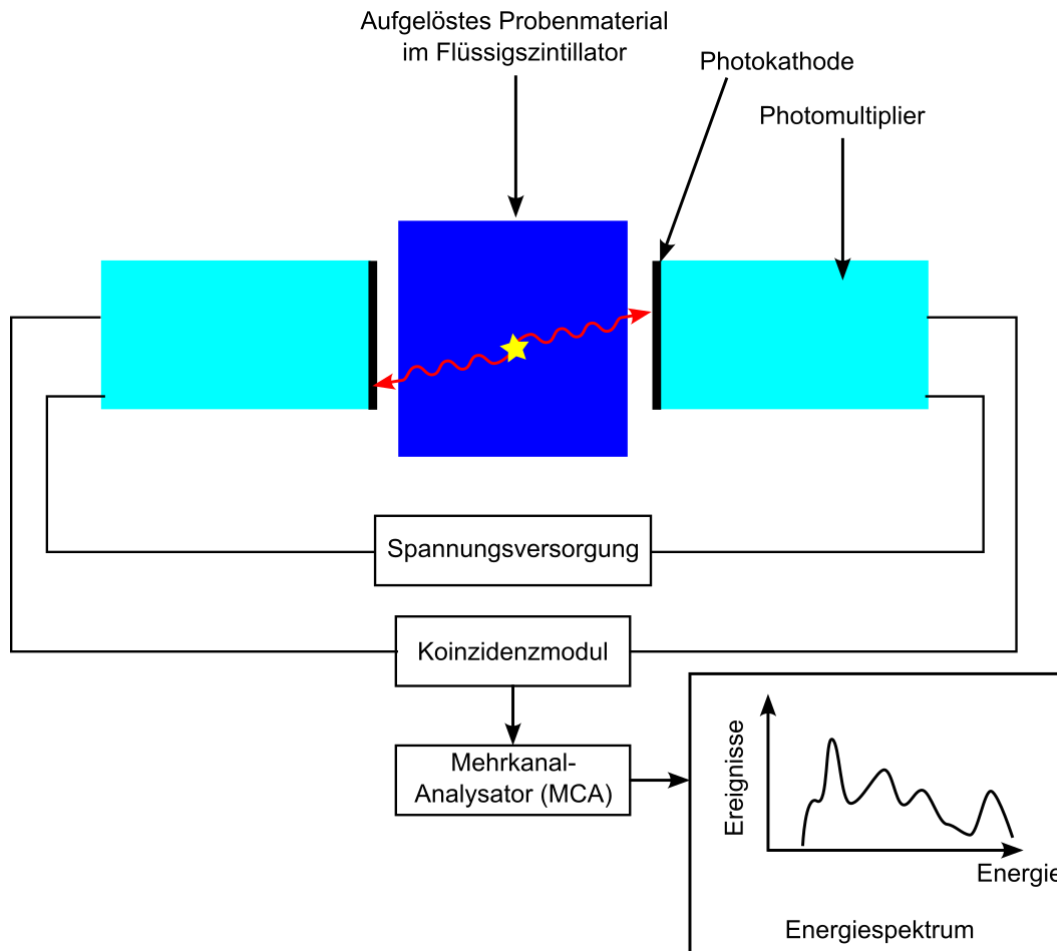


Abb. 6.5 Schematische Darstellung der Funktionsprinzips des Flüssigszintillationsmessverfahrens

6.6.1 Anwendung der Flüssigszintillationsmessung für Voruntersuchungen und Freimessungen

Das Messverfahren wird seit dem Ende der 1960er Jahre genutzt und findet im Kontext der Freigabe überwiegend für Voruntersuchungen Anwendung, bei denen u. a. Materialproben (z. B. Materialstücke oder Bohrproben) sowie Oberflächenproben (z. B. Kratzproben oder Wischtests) analysiert werden /BER 05/, /HOU 18/. Es kann für ein breites Nuklidspektrum genutzt werden. Insbesondere für den Nachweis schwer messbarer Radionuklide wie Cl-36, Ca-41 oder Sr-90 findet es im kerntechnischen Rückbau Anwendung /HOU 18/. Für Entscheidungsmessungen wird es, aufgrund des mit der Messung verbundenen Aufwands, nur bei Bedarf eingesetzt.

Wesentliche Eigenschaften des Messverfahrens sind in Tab. 6.6 aufgeführt. Im Folgenden wird zur Illustration der Messeigenschaften exemplarisch ein LSC-Messgerät betrachtet und dessen wesentliche Betriebsparameter zusammengefasst.

Tab. 6.6 Charakteristische Eigenschaften der Flüssigszintillationsmessung

Eignung für Strahlungsart	Beta-Strahlung und Alpha-Strahlung
Technische Komplexität	Durchschnittlich In der Regel stationäre (Tisch-)Messgeräte mit eingearbeiteter Bleiabschirmung und einem externen Computer zur Auswertung. Portable Messgeräte existieren, sind aber in der Anwendung limitiert.
Komplexität Bedienung	Durchschnittlich Die Durchführung der Messung verläuft bei vielen Systemen automatisiert. Die Daten (Energiespektrum) müssen ausgewertet werden, ggfs. sind Kalibrationen durchzuführen.
Messgröße	Energiespektrum der absorbierten Beta-Strahlung
Einschätzung der Messzeit	Die Messzeit ist abhängig von mehreren Faktoren (z. B. Aktivität des Probenmaterials, Strahlungsenergie, Messaufbau). Typische Messzeiten liegen im Bereich von einigen Sekunden bis zu einigen Stunden.
Probennahme	Ja
Probenauf- und -vorbereitung	Ja
Messflächen / Massen	Geeignet für Stichprobenmessungen anhand flüssiger Phiolen mit typischen Volumina im Bereich einiger 10 ml.
Eignung für schwer zugängliche Flächen	Ja (Probennahme notwendig)
Eignung für die Erfassung eingedrungener Kontamination	Ja (z. B. anhand von Proben entlang eines Tiefenprofils)
Eignung für Entscheidungsmessung	Das Messverfahren ist für Stichprobenmessungen und unter bestimmten Randbedingungen grundsätzlich auch für Entscheidungsmessungen geeignet, es gehört allerdings aufgrund des Aufwands nicht zu den bevorzugten Messverfahren. Anwendung findet es z. B. für den Nachweis niederenergetischer Beta-Strahler.

6.6.1.1 Hidex 300 SL Automatic TDCR Liquid Scintillation Counter

Hidex Oy ist ein finnisches Technologieunternehmen, das sich auf Lösungen für die bio-wissenschaftliche Forschung, Strahlungsmessung und Nuklearmedizin konzentriert. Das Unternehmen bietet einige Flüssigszintillationszähler an, hierzu gehört auch das Messgerät Hidex 300 SL /HID 15/. Das Messgerät verfügt über einen automatischen Probenwechsler und hat eine Kapazität für 40 LSC-Phiolen (20 ml) bzw. 96 LSC-Mini-phiolen. Das Detektionssystem besteht aus drei Photomultiplerröhren. Das Messgerät

nutzt die TDCR-Technik, so dass der Aufwand für Kalibrationen deutlich reduziert wird. Auch auf die Nutzung von Quenchkurven kann für bestimmte Anwendungen verzichtet werden. Das Messgerät kann sowohl für den Nachweis von Beta-Strahlern (Energiebereich 2 bis 2.000 keV) als auch von Alpha-Strahlern (Energiebereich 100 – 10.000 keV) eingesetzt werden.

Das Messgerät wird beispielsweise zur Messung reiner Beta-Strahler (z. B. H-3, C-14 oder Ni-63), optional zur Messung von Alpha-Strahlern (z. B. U-238, Ra-226, Rn-222 oder Po-210), oder für die Analytik von S-90/Y-90 in der Routineüberwachung bzw. von Sr-89/Sr-90 im Ereignisfall eingesetzt. Es kann auch für Wischtestmessungen verwendet werden (z. B. für den Nachweis der Beta-Strahler H-3, C-14, Ni-63).

Zur Auswertung der Daten wird eine Software genutzt, in der Berechnungsfunktionen nach der Normenreihe DIN EN ISO 11929 integriert sind.

6.7 Alpha-Spektrometrie

Die Alpha-Spektrometrie ist ein Messverfahren, bei dem eine qualitative Messung zum Nachweis der von einem Messgut ausgehenden Alpha-Strahlung in Form eines Energiespektrums erfolgt. Das Energiespektrum erlaubt Rückschlüsse auf die kinetischen Energien der Alpha-Teilchen und somit auch auf die ursächlichen Radionuklide. Prinzipiell kann das Messverfahren sowohl in-situ als auch ex-situ eingesetzt werden. Bei in-situ Messungen ist zu beachten, dass die freie Wegstrecke, durch die sich ein Alpha-Teilchen in Luft bewegen kann, sehr kurz ist (einstelliger Zentimeterbereich). Die Verfahrenseignung und die Aussagekraft einer Messung sind somit von lokalen Randbedingungen abhängig (z. B. Umfang der Alpha-Kontamination, Eindringtiefe, Geometrie des Messstücks).

Je nach Anwendung kommen sowohl verschiedene Detektoren als auch verschiedene Signalumformer zum Einsatz. Für eine einfache in-situ Messung werden Geiger-Müller-Zähler verwendet, welche mit einem sehr dünnen Eintrittsfenster mit Dicken im Micrometer-Bereich (Massenbelegungen im Bereich weniger mg/cm²) ausgestattet sind. Diese Art von Detektor liefert jedoch keine Energieinformation und eignet sich somit nur für den grundsätzlichen Nachweis von Alpha-Strahlung /KNO 10/. Eine weitere Möglichkeit ist der Einsatz von Dünnschicht-Szintillatoren, in denen die Alpha-Teilchen vollständig abgebremst (absorbiert) werden /KNO 10/.

Für ex-situ Messungen werden häufig LSC-Messgeräte (Probenaufbereitung) oder Silizium-Halbleiterdetektoren verwendet. Bei den eingesetzten Siliziumdetektoren handelt es sich meist um sog. passivierte, implantierte planare Siliziumdetektoren (PIPS). Die Alpha-Teilchen werden in der Verarmungszone gestoppt und bilden Elektronen-Loch-Paare. Der erzeugte elektrische Impuls ist direkt proportional zur (kinetischen) Energie der Teilchen. Die elektronischen Signale werden verstärkt und bearbeitet. Mit Hilfe eines Vielkanalanalysators wird ein Energiespektrum erstellt.

6.7.1 Anwendung der Alpha-Spektrometrie für Voruntersuchungen und Freimessungen

Da Alpha-Strahler in der Regel zu den schwer-messbaren Radionukliden gehören und die Messung schwer-messbarer Radionuklide für Freimessungen möglichst vermieden wird (bevorzugte Nutzung leicht-messbarer Radionuklide als Leitnuklide), gehört die Alpha-Spektrometrie zu den tendenziell selten eingesetzten Messverfahren. Im Rahmen der Voruntersuchungen dient es der Lokalisierung und Quantifizierung von Alpha-Kontaminationen.

Wesentliche Eigenschaften des Messverfahrens sind in Tab. 6.7 aufgeführt. Im Folgenden werden zur Illustration der Messeigenschaften exemplarisch Messgeräte zweier Hersteller betrachtet und deren wesentliche Betriebsparameter zusammengefasst.

Tab. 6.7 Charakteristische Eigenschaften der Alpha-Spektrometrie

Eignung für Strahlungsart	Alpha-Strahlung
Technische Komplexität	Durchschnittlich (Labormessung) Stationäres Messgerät mit einem oder mehreren Messkammern, in denen Halbleiterdetektoren auf Siliziumbasis, typischerweise 1 – 2 mm dick, verbaut sind. Dazu gehört eine Vakuumpumpe, Elektronik zur Signalverstärkung und -bearbeitung (Spektroskopie), ein MCA und ein PC zur Auswertung. Idealerweise sollte der Probendurchmesser für eine optimale Messeffizienz dem Detektordurchmesser entsprechen.
Komplexität Bedienung	Durchschnittlich
Messgröße	Energiespektrum der absorbierten Alpha-Strahlung
Einschätzung der Messzeit	Die Messzeit ist abhängig von Faktoren wie der Aktivität des Probenmaterials, Probenaufbereitung oder der Qualität des Vakuums. Typische Messzeiten liegen im Bereich von einigen Sekunden bis zu einigen Stunden.
Probennahme	Ja
Probenauf- und -vorbereitung	Ja
Messflächen / Massen	Die Messfläche hängt insb. vom verwendeten Detektor bzw. der vorgesehenen Probengröße ab (typischerweise im Bereich einiger 10 cm ²).
Eignung für schwer zugängliche Flächen	Ja, wenn eine Probennahme möglich ist.
Eignung für die Erfassung eingedrungener Kontamination	Ja (mehrere Proben entlang eines Tiefenprofils)
Eignung für Entscheidungsmessung	Ja, sofern Alpha-Strahler zwingend direkt identifiziert und quantifiziert werden müssen.

6.7.1.1 AMETEK ORTEC Alpha Suite

ORTEC vertreibt unter dem Markennamen Alpha Suite eine komplette Serie modularer Alpha-Spektrometer, die in verschiedenen Konfigurationen (z. B. Alpha Aria, Alpha Duo, Alpha Mega und Alpha Ensemble) angeboten werden /ORT 25/. Diese Messsysteme verwenden eine robuste Vakuumkammer aus nickelschichtveredeltem Messing, die für eine einfache Dekontamination ausgelegt ist, und kombinieren Vorverstärker, HV-Versorgung sowie einen integrierten digitalen Mehrkanal-Analysator (MCA) in einem kompakten Gehäuse. Die Alpha Aria- und Alpha Duo-Messsysteme sind auf Proben mit einem Durchmesser bis zu 51 mm ausgelegt, während das Messsystem Alpha Mega

großflächige Proben mit einem Durchmesser bis 106 mm aufnehmen kann. In der Alpha Ensemble-Konfiguration können bis zu vier Module beliebig kombiniert werden. Die Vakuumregelung erfolgt computerunterstützt und erlaubt eine Einstellung des Drucks zwischen 25 mbar und 250 mbar. Durch sog. RCAP-Module (*Recoil Contamination Avoidance Package*) können Kontaminationsartefakte durch Tochterprodukte minimiert werden /ORT 17/. Hierzu wird der Impuls der positiv geladenen Rückstoß-Ionen verringert, indem man den Druck in der Vakuumkammer erhöht und die Probenhalter auf ein negatives Potential legt, um die Ionen vom Detektor abzustößen. Ein Nebeneffekt ist jedoch eine schlechtere Energieauflösung.

Die Systeme haben ein typisches Energieauflösungsvermögen von ≤ 20 keV FWHM bei einer Energie von 5,486 MeV. Eine Effizienz von über 25 % ist für Am-241 für Messungen nahe am Messobjekt möglich. Die Hintergrundzählrate oberhalb von 3 MeV liegt im Bereich von 1 c/h. Die Messzeit pro Probe variiert je nach Aktivität und notwendiger Statistik. Durch das modulare Design lässt sich der Probendurchsatz von einigen Dutzend bis zu mehreren 100 Proben pro Tag skalieren.

6.7.1.2 Mirion Technologies Alpha Analyst

Mirion Technologies (ehemals Canberra) bietet eine ähnliche Produktpalette unter dem Namen Alpha Analyst. Hierbei handelt sich um vollintegrierte Alpha-Spektrometer, welche aus elektronisch gesteuerter Vakuum- und HV-Versorgung, Vorverstärker sowie MCA bestehen /MIR 22b/. Über Ethernet kann das System mit der ebenfalls von Mirion Technologies entwickelten Apex-Alpha-Software kommunizieren. Die Software übernimmt automatisierte Kalibrierungen, qualitätssichernde Prüfungen und Batch-Abläufe.

Die modulare Architektur erlaubt den Betrieb mehrerer Detektor-Kammern im Parallelbetrieb, um beispielsweise den Probendurchsatz auf bis zu mehrere Dutzend Proben pro Tag zu steigern. Typische Energieauflösungen der eingesetzten PIPS-Detektoren liegen bei ≤ 20 keV FWHM bei 5,486 MeV und Hintergrundraten unter 0,05 c/h·cm² /MIR 22c/. Die Messzeiten bewegen sich in Abhängigkeit von Aktivität und geforderter Statistik zwischen 30 min. und mehreren Stunden pro Probe, wobei der Nutzer flexibel zwischen Einzelmessungen und automatisierten Batch-Läufen wählen kann.

6.8 Massenspektrometrie

Die Massenspektrometrie (MS) ist eine Klasse von Messverfahren, bei denen Moleküle und Atome in gasförmiger Phase ionisiert und entsprechend ihres Masse-zu-Ladungs-Verhältnisses (m/q) getrennt und detektiert werden. Massenspektrometrische Verfahren gehören somit zu den zerstörenden Messverfahren, für die in der Regel eine Probenahme und ggfs. auch eine Probenaufbereitung notwendig ist. Die MS ist i. A. nicht selektiv für Radioisotope, sie liefert vielmehr Informationen zu atomaren und molekularen Zusammensetzungen. Aufgrund der Größe und Komplexität sind massenspektrometrische Messeinrichtungen zuvorderst für ex-situ Messungen konzipiert. Theoretisch sind in-situ Messungen mit kleineren Messsystemen, wie etwa dem LA-ICP-MS („*Laser Ablation – Inductively Coupled Plasma – Mass Spectrometry*“), nicht ausgeschlossen.

In der Praxis wird zwischen massenspezifischen, nuklidspezifischen und isotopenspezifischen Messverfahren unterschieden:

- Massenspezifische Verfahren umfasst alle Verfahren, welche Atome und Moleküle nach ihrem Masse-zu-Ladungsverhältnis (m/q) trennen. Beispiele hierfür sind etwa Quadrupol-, Flugzeit- oder Ionenfallen-basierte Analysatoren.
- Nuklidspezifische Verfahren (häufig Beschleunigermassenspektrometrie (AMS) oder induktiv gekoppelte Plasma-Massenspektrometrie (ICP-MS)) werden für den empfindlichen Nachweis sehr seltener Radionuklide (z. B. C-14 oder Be-10 in Umweltproben) genutzt. Die AMS unterdrückt molekulare Isobare nahezu vollständig und trennt mit ausreichend hohen Beschleunigerenergien sogar atomare Isobare, d. h. Atome mit gleicher Massenzahl, aber unterschiedlicher Kernladungszahl /HOF 13/.
- Zu den isotopenspezifischen Verfahren gehören z. B. die Multi-Collector ICP-MS (MC-ICP-MS) sowie Abwandlungen wie die Thermal Ionization Mass Spectrometry (TIMS) oder die Isotope-Ratio MS (IRMS). ICP-MS nutzt mehrere Faraday-Becher, um simultan mehrere Isotope zu messen.

Einsatz findet die MS in ihren verschiedenen Varianten in unterschiedlichen Bereichen der Wissenschaft und Medizin, z. B. in pharmazeutische Forschungen zur Wirkstoffentwicklung, zur Umweltanalytik, zur Forensik, für geowissenschaftliche Untersuchungen, zur Werkstoffforschung oder in der Biotechnologie /WAT 11/.

Der Aufbau einer massenspektrometrischen Messeinrichtung gliedert sich in der Regel in drei Bereiche. Zunächst werden in einer Ionenquelle neutrale Moleküle (Atome) ionisiert und feste/flüssige Bestandteile in die Gasphase überführt. Im zweiten Bereich werden verschiedene Arten von Analysatoren eingesetzt, um den Ionenstrahl nach m/q aufzutrennen. Typische Analysatoren sind Quadrupole, Sektorfeld-Analysatoren, Flugzeitanalysatoren oder Ionenfallen. Der dritte Bestandteil ist der Detektor bzw. das Detektionssystem. In diesem werden die eingehenden Ionen erfasst und entsprechende elektrische Signale erzeugt. Je nach relativer Häufigkeit und Energie der Ionen kommen hierbei verschiedene Arten von Detektoren zum Einsatz. Dies reicht von einfachen Faraday-Bechern – metallische Becher, die die eingehende Ladung detektieren – bis hin zu mehrfach segmentierten Multi-Anoden-Detektoren.

Im Falle der Beschleunigermassenspektrometrie (vgl. Abb. 6.6) wird zusätzlich ein Teilchenbeschleuniger (häufig: Tandembeschleuniger) eingesetzt. Dieser erfüllt drei wichtige Funktionen:

- Durch eine dünne Schicht aus Gas oder eine dünne Folie werden Molekülverbindungen zerstört, wodurch eine große Anzahl der verbliebenen Isobare eliminiert wird.
- Bei diesen Wechselwirkungen werden höhere Ladungszustände bevölkert, was die Separation (m/q) verbessert und wiederum Isobare unterdrückt.
- Durch die Beschleunigung können höhere Energien erreicht werden, was mit Hilfe der nachgeführten Detektoren (häufig Flugzeitspektrometer oder Energieverlustmessung in gasgefüllten Detektoren) zu einer besseren Separation führt /WAT 11/.

Eine entscheidende Voraussetzung für alle massenspektrometrischen Messverfahren ist eine mehr oder weniger intensive Aufbereitung der zu untersuchenden Proben. In einigen Fällen und je nach gewünschter Tiefe der Analyse müssen die Proben lediglich entnommen, zerkleinert und – ohne Verunreinigungen hinzuzufügen – in die Quelle des MS gegeben werden. Dies ist etwa dann denkbar, wenn die Probe in der Quelle verbrannt und damit in die nötige gasförmige Phase gebracht werden kann. Beispiele hierfür sind Untersuchungen zu Holz, Graphit und Betonproben.

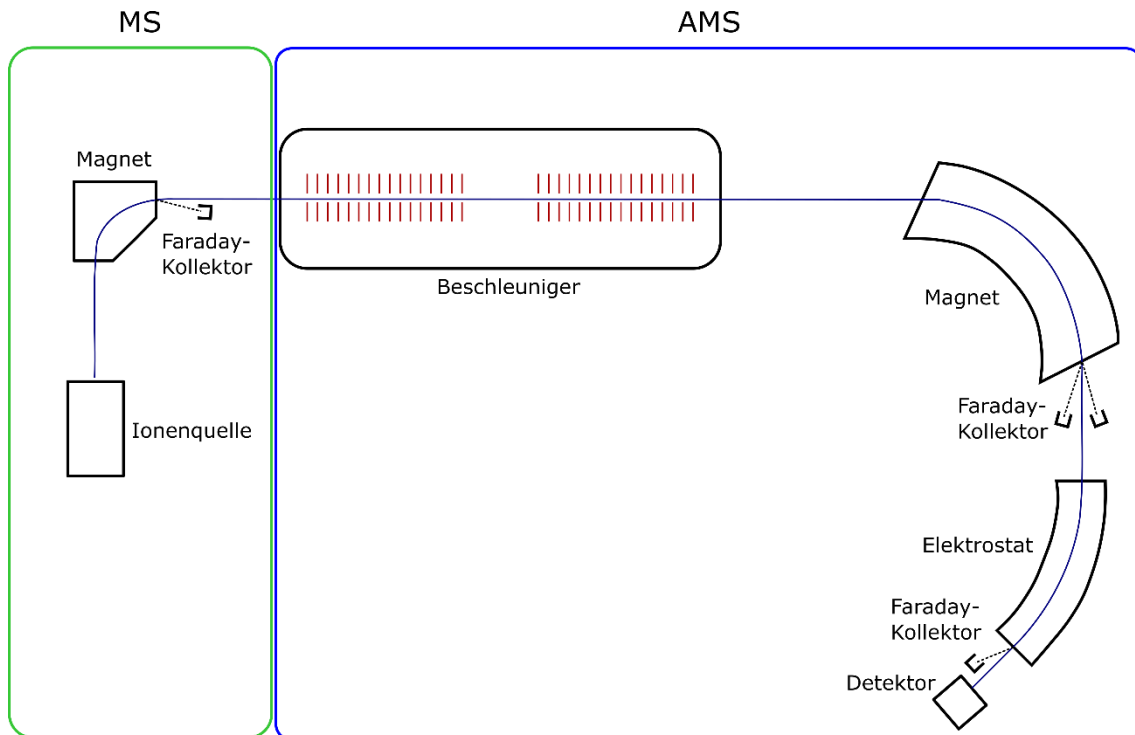


Abb. 6.6 Schematische Darstellung eines MS/AMS-Aufbaus

In den meisten Fällen – insb. in Fällen, bei denen besonders stark ausgeprägte Isobare unterdrückt werden müssen – ist die Durchführung einer chemischen Probenaufbereitung zwingend erforderlich, ehe die Probe untersucht werden kann. Im Rahmen dieses Prozesses werden in mehreren Schritten für die Messung störende Elemente entfernt, z. B. ist Kalium für die Messung von Kalzium abzutrennen, für die Messung von Beryllium ist Bor abzutrennen. Wichtig hierbei ist der sorgsame und saubere Umgang mit dem Probenmaterial zur Vermeidung von Verunreinigungen.

Im Anschluss an eine Messung wird das zuvor aufgenommene Massenspektrum ausgewertet. Hierzu werden etwa Peaks gerastert, Hintergrundrauschen subtrahiert, Fragmentierungsmuster interpretiert und Isotopenverteilungen berechnet. Für quantitative Analysen werden Kalibrierkurven angelegt und interne Standards herangezogen, um Matrixeffekte zu kompensieren. Abschließend liefert die Auswertung konkrete Konzentrationsangaben, Identitätsbestätigungen und – bei strukturellen Fragestellungen – Informationen über Sequenz, Substitutionsmuster oder Nuklidzusammensetzung. Wichtig hierbei ist, dass diese Verfahren in der Regel nur verhältnismäßige Aussagen über die Zusammensetzung einer Probe ermöglichen. Das bedeutet, dass zunächst nur Verhältnisse der Häufigkeiten einer gemessenen Masse zu einer anderen gemessenen Masse bestimmt werden, nicht aber eine absolute Zahl von Molekülen/Atomen einer Masse in

dieser Probe. Grund hierfür ist vor allem der nur sehr aufwendig zu quantifizierende Verlust von Molekülen/Atomen in allen Bereichen des Massenspektrometers.

Generell zeichnet sich MS durch außerordentlich niedrige Nachweisgrenzen (teilweise im fg-Bereich) und einen weiten dynamischen Bereich (bis 1E8) aus. In einigen Fällen können auch mehrere Nuklide simultan nachgewiesen werden. Messverfahren wie die ICP-MS erreichen Nachweisgrenzen im ppt²⁷- bis ppq²⁸-Bereich und erlauben mit Messzeiten von 1 – 3 min. pro Probe einen hohen Probendurchsatz. Des Weiteren ist ein großer Vorteil dieser Methoden, dass Radioisotope gemessen werden können, welche eine sehr lange Halbwertszeit haben bzw. in sehr geringen Umfang in der Probe vorkommen.

6.8.1 Anwendungen der Massenspektrometrie in Kontext der Freigabe

Massenspektrometrische Messverfahren sind für Freimessungen nicht etabliert, was im Wesentlichen auf drei Faktoren zurückzuführen ist:

- Das Messverfahren ist für den Messzweck praktisch nur im Laborumfeld einzusetzen.
- Der Einsatz des Messverfahrens setzt eine zum Teil aufwendige Probenaufbereitung voraus. Diese ist zeit- und personalintensiv, zudem kann es zu Verunreinigungen kommen.
- Die Bestimmung von spezifischen Aktivitäten aus den Messergebnissen (Isotopenverhältnisse) ist aufwendig, zugehörige relative Unsicherheiten sind vergleichsweise groß.

Massenspektrometrische Anwendungen beschränken sich auf vereinzelte Messungen im Rahmen von Voruntersuchungen bzw. zur radiologischen Charakterisierung.

Im Rahmen der GRS-Vorhaben 15S9410A (Charakterisierung und Quantifizierung von C-14 in Reaktorgrazit mittels Beschleuniger-Massenspektrometrie) und 3621E03520 (Entwicklung eines AMS-Messsystems zur radiologischen Charakterisierung von aktivierten Reaktorkomponenten in der Stilllegung hinsichtlich der Freigabefähigkeit /GRS 24a/) wurden in Zusammenarbeit mit verschiedenen Verbundpartnern, Unter-

²⁷ parts per trillion (1:1E12)

²⁸ parts per quadrillion (1:1E15)

suchungen zur Einsatzfähigkeit von AMS-Systemen bei der Freimessung durchgeführt. In diesen konnte gezeigt werden, dass sich die AMS grundsätzlich für Freimessungen eignet, dass jedoch immer ein erheblicher Aufwand für die Probenaufbereitung, Messung und Auswertung anfällt. Aus diesem Grund würde sich die AMS eher als Verfahren zur Sondernuklidanalyse eignen.

Wesentliche Eigenschaften des Messverfahrens sind in Tab. 6.8 zusammengefasst. Im Folgenden werden exemplarisch kommerziell erhältliche AMS-Messeinrichtungen eines Herstellers betrachtet.

6.8.1.1 IonPlus AMS-Messeinrichtungen

Aufgrund des wissenschaftlichen Hintergrunds vieler Anwendungen sind Messeinrichtungen für die AMS meist groß und leistungsstark. Ein etablierter Hersteller kleinerer Messeinrichtungen ist die IonPlus AG. Das Unternehmen entwickelt seit einigen Jahren kompakte Messsysteme hauptsächlich für die Radiokarbondatierung (C-14) und für den Nachweis anderer, häufig genutzter Sondernuklide wie Be-10, Al-26, Ca-41, I-129, Uranisotope, Plutoniumisotope oder Isotope weiterer Aktinide. Das MILEA-System besteht aus einem Niederenergie-Separator (90° Elektrostat und 90° Magnet), gefolgt von einer kleinen Beschleunigersektion mit einer Spannung von 300 kV, einem Hochenergie-Separator (90° Magnet, 120° Elektrostat, 110° Magnet) sowie einem Gas-Ionisationsdetektor. Die gesamte Messeinrichtung hat eine Aufbaufläche von 3,5 x 7 m². Messungen haben gezeigt, dass das System im Hinblick auf U-236 und U-238 eine Sensitivität von etwa 0,5E-12 erreicht. Der vorrangige Einsatzzweck ist allerdings die Radiokarbondatierung /ION 25/.

Darüber hinaus existieren Anbieter wie National Electrostatics Corp. (NEC) und High Voltage Engineering Europa B.V. (HVEE), die größere Beschleunigersysteme mit Beschleunigerspannungen von einem MV und mehr anbieten. Diese richten sich allerdings zuvorderst an den Einsatz in der Grundlagenforschung und sind somit nicht für den kommerziellen Einsatz konzipiert (z. B. hinsichtlich des Probendurchsatzes).

Tab. 6.8 Charakteristische Eigenschaften der Massenspektrometrie

Eignung für Strahlungsart	Nicht zutreffend; Nutzung für die Messung (relativer) Elementhäufigkeiten oder (relativer) Isotopenhäufigkeiten bzw. für die Bestimmung von Isotopenverhältnissen
Technische Komplexität	Hoch bis sehr hoch Stationäre Messgeräte bzw. Messeinrichtungen, die zum Teil aus mehreren raumausfüllenden Komponenten bestehen. Zu den Komponenten gehören eine Ionenquelle, je nach System ein oder zwei Magneten (Analysator) sowie Module zum Abfangen oder Kontrollieren des Ionenstrahls. Für die AMS werden zudem ein Beschleuniger sowie geeignete Detektoren benötigt.
Komplexität Bedienung	Durchschnittlich bis hoch (abhängig vom Messgerät bzw. der Messeinrichtung)
Messgröße	(Relatives) Massenspektrum
Einschätzung der Messzeit	Durchschnittlich, die Messzeit liegt im Bereich einiger Minuten bis einige zehn Minuten.
Probennahme	Ja
Probenauf- und -vorbereitung	Ja
Messflächen /Massen	Nicht zutreffend (s. o.)
Eignung für schwer zugängliche Flächen	Ja, sofern eine Probennahme möglich ist.
Eignung für die Erfassung eingedrungener Kontamination	Ja (z. B. anhand mehrerer Proben entlang eines Tiefenprofils)
Eignung für Entscheidungsmessung	Grundsätzlich möglich, Messungen sind aber mit einem hohen Aufwand verbunden.

6.9 Röntgenfluoreszenzanalyse

Die Röntgenfluoreszenzanalyse (RFA) nutzt den photoelektrischen Effekt, bei dem Photonen (z. B. Röntgen- oder Gamma-Strahlen) Elektronen aus den inneren Schalen eines Atoms ausschlagen und die angeregten Atome anschließend charakteristische Fluoreszenzstrahlung emittieren, sobald Elektronen aus höheren Energieniveaus nachrücken.

Dieses Messverfahren ermöglicht die qualitative und quantitative Bestimmung der elementaren Zusammensetzung von Proben und ist dabei zerstörungsfrei. Die Nachweisgrenzen liegen abhängig von Matrixeffekten und eingesetzter Detektortechnologie typi-

scherweise im Bereich von 0,1 µg/g bis einigen Mikrogramm pro Gramm (ppm). Das Verfahren ist für Elemente ab Ordnungszahl $Z = 5$ (Bor) anwendbar. Bei leichten Elementen verschlechtern sich Sensitivität und Genauigkeit aufgrund starker Absorption der emittierten Röntgenstrahlen im Probenmaterial. Die Anregung kann durch polychromatische Röntgenröhren, radioaktive Primärstrahler oder Synchrotronstrahlung erfolgen, wobei jede Quelle spezifische Vor- und Nachteile hinsichtlich Intensität, Strahldivergenz und Handhabbarkeit aufweist. Die Auswertung erfolgt entweder energiedispersiv (energiedispersive Röntgenfluoreszenzanalyse, EDXRF) mittels Halbleiterdetektoren oder wellenlängendispersiv (wellenlängendispersive Röntgenfluoreszenz, WDXRF) mithilfe von Analysatorkristallen, die das Fluoreszenzspektrum nach dem Bragg'schem Gesetz auftrennen.

In-situ RFA-Messgeräte – oft handgehaltene Spektrometer – erlauben die direkte Analyse von Oberflächen ohne Probenentnahme, was besonders für Kontaminationsprüfungen von Anlagenkomponenten vorteilhaft ist. Diese tragbaren Geräte verwenden in der Regel radioaktive Primärstrahler wie Cd-109 oder Am-241 oder kleine Röntgenröhren mit Kupfer- oder Rhodium-Anode. Es werden kurze Messzeiten von wenigen Sekunden pro Ortspunkt erreicht. Aufgrund unregelmäßiger Oberflächenrauigkeit und variabler Luftspalte zwischen Probe und Analysator erfordern in-situ Messungen komplexe Methoden bei der Kalibrierung /POT 01/ und oftmals Monte-Carlo-basierte Korrekturen /GAU 00/. Die Arbeiten auf diesem Gebiet werden derzeit vor allem auf wissenschaftlicher Ebene geführt und sind noch nicht Bestandteil von Normen.

Ex-situ Laborspektrometer hingegen arbeiten mit leistungsstarken WDXRF- oder EDXRF-Systemen. Diese Messsysteme erreichen Nachweisgrenzen im niedrigen ppm- bis ppb-Bereich. Ex-situ Analysen bieten somit eine deutlich höhere Präzision und Wiederholbarkeit, erfordern jedoch Probenentnahme und -transport sowie Laborinfrastruktur und verlängerte Analysezeiten.

Ein wesentlicher Vorteil des Messverfahrens liegt darin, dass auch nicht-radioaktive Elemente sowohl in oxidischer als auch in metallischer Form detektiert werden können. Andere Messverfahren, wie etwa die Gamma-Spektrometrie, können nur für Radioisotope genutzt werden – die RFA kann somit als komplementäres Messverfahren eingesetzt werden /WES 12/.

In der Kerntechnik beschränken sich Anwendungen der RFA oftmals auf die Materialcharakterisierung von Brennelementen, Leichtwasserreaktorbauteilen und Dekontami-

nationsrückständen. Diese dienen dem Nachweis von Spurenmetallen in Uran- und Thoriumoxid-Materialien. Handgehaltene RFA dienen der schnellen Kartierung von Metalloberflächen auf Pb, U und Pu, um zu dekontaminierende Flächen zu lokalisieren. Weitere Einsatzfelder umfassen die Analyse von Strukturmaterialien wie Rostproben, Lackschichten und Dichtungen, um radioaktive Adsorptionsprozesse zu verstehen und Alterungsmechanismen vorherzusagen /DIN 21d/. Für Voruntersuchungen und Freimessungen ist das Messverfahren in der Regel nicht von praktischer Bedeutung.

Wesentliche Verfahrenseigenschaften sind in Tab. 6.9 zusammengefasst.

Tab. 6.9 Charakteristische Eigenschaften der Röntgenfluoreszenzanalyse

Eignung für Strahlungsart	Nicht zutreffend; Bestimmung der elementaren Zusammensetzung, unabhängig von der Strahlungsart
Technische Komplexität	Durchschnittlich Leichte portable, handtragbare oder schwere stationäre Messgeräte
Komplexität Bedienung	Gering bis durchschnittlich Handtragbar: Einfache Bedienung Portabel, stationär: Einweisung für eine mögliche Probenaufbereitung und die Auswertung der Ergebnisse notwendig
Messgröße/Massen	Energiespektrum (Röntgenstrahlung)
Einschätzung der Messzeit	Abhängig von Anregungsquelle und der Häufigkeit des Elements, typische Messzeiten liegen im Bereich von wenigen Sekunden bis wenige Minuten.
Probennahme	Handtragbar: Nein Portabel, stationär: Ja
Probenauf- und -vorbereitung	Abhängig von der Probenmatrix
Messflächen/Massen	Nicht zutreffend (s. o.)
Eignung für schwer zugängliche Flächen	Ja, sofern eine Probennahme möglich ist.
Eignung für die Erfassung eingedrungener Kontamination	Ja (z. B. anhand mehrerer Proben entlang eines Tiefenprofils)
Eignung für Entscheidungsmessung	Das Messverfahren ist in der Regel für Entscheidungsmessungen nicht von Bedeutung.

6.10 Neutronenaktivierungsanalyse

Bei der Neutronenaktivierungsanalyse (NAA) werden die Isotope in einer Probe durch Neutronenbeschuss aktiviert, so dass (zumindest kurzfristig) ein neutronenreicheres,

energetisch angeregtes Isotop erzeugt wird. Durch Emission einer oder mehrerer Gamma-Quanten ((n, γ)-Reaktion) gelangt dieses Isotop anschließend in den Grundzustand. Da die emittierte Gamma-Strahlung charakteristisch für jedes Isotop ist, können durch die energie-aufgelöste Detektion der Gamma-Strahlung die zugehörigen Isotope identifiziert werden. Das Verfahren erlaubt somit Rückschlüsse auf die isotopische Zusammensetzung. Es ist sowohl für stabile Isotope als auch für Radioisotope anzuwenden.

Der Wirkungsquerschnitt für den Neutroneneinfang ist abhängig von dem einfangenden Isotop und der Energie des Neutrons. Bei den Neutronen handelt es sich überwiegend um thermische Neutronen (kinetische Energien im Bereich von 0,025 eV). Für die meisten Isotope ist der Einfangswirkungsquerschnitt für Neutronen dieses Energiebereichs verhältnismäßig hoch. Es gibt allerdings auch Isotope, für die dies nicht der Fall ist, so dass Neutronen höherer Energie (Resonanzen) benötigt werden.

Die Empfindlichkeit des Messverfahrens reicht üblicherweise bis in den ppb- oder niedrigsten ppm-Bereich, insb. für Elemente mit großen Wirkungsquerschnitten und geeigneten Halbwertszeiten.

Matrixeffekte sind gering, da die Sekundärstrahlung des Neutronenfeldes die Probe homogen durchdringt, wodurch in vielen Fällen auf aufwendige chemische Aufschlüsse verzichtet werden kann /HAM 13/.

Zur Detektion der emittierten Gamma-Strahlung werden in der Regel HPGe-Detektoren (vergleiche Kapitel 6.1) eingesetzt. Ein ausreichend hoher Neutronenfluss ist Voraussetzung, so dass NAA-Messeinrichtungen häufig auf intensive Neutronenquellen zurückgreifen. Hierzu können beispielsweise Forschungsreaktoren genutzt werden, die einen typischen (thermischen) Neutronenfluss von $1E11$ bis $1E14$ Neutronen pro $s \cdot cm^2$ für die Aktivierungsuntersuchung bereitstellen können. Eine Probennahme ist somit im Regelfall notwendig. Die Anforderungen an die Probenaufbereitung sind gering, oftmals ist keine Probenvorbereitung notwendig. Die Proben haben meist ein Volumen im Bereich einiger zehn cm^3 .

Zum Einsatz kommt die NAA für den Nachweis von Spurenelementen bzw. Verunreinigungen wie Samarium, Gadolinium oder anderen Neutronenabsorbern im μg -Bereich. Im kerntechnischen Umfeld findet die NAA kaum Anwendung, was insb. auf die sehr hohen instrumentellen Anforderungen zurückzuführen ist. Ein Beispiel für eine kerntechnische Anwendung ist die Charakterisierung heterogener Abfälle in

großvolumigen Gebinden (200-Liter-Fässer), wofür aufgrund der Dimensionen schnelle Neutronen genutzt werden /MIL 17/. Für Messungen im Rahmen der Freigabe ist das Verfahren praktisch irrelevant.

Wesentliche Verfahrenseigenschaften sind in Tab. 6.10 zusammengefasst.

Tab. 6.10 Charakteristische Eigenschaften der Neutronenaktivierungsanalyse

Eignung für Strahlungsart	Nicht zutreffend; Bestimmung der isotopischen Zusammensetzung, unabhängig von der Strahlungsart
Technische Komplexität	Sehr hoch Die Proben müssen vorab in einer Neutronenquelle aktiviert werden. Zudem werden Messgeräte für den Nachweis der Gamma-Strahlung benötigt (z. B. Festkörperszintillatoren, Halbleiterdetektoren oder gasgefüllte Zählrohre), ggfs. müssen die Detektoren zudem gekühlt werden.
Komplexität Bedienung	Sehr hoch, insb. durch die notwendige Aktivierung
Messgröße	Energiespektrum der absorbierten Gamma-Strahlung
Einschätzung der Messzeit	Lange Aktivierungs- und Halbwertszeit-abhängige Messzeiten (vgl. Gammaspektrometrie)
Probennahme	Ja
Probenauf- und -vorbereitung	Nein, in seltenen Fällen ist je nach Fragestellung eine Aufarbeitung notwendig
Messflächen / Massen	Nicht zutreffend (s. o.)
Eignung für schwer zugängliche Flächen	Ja, sofern eine Probennahme möglich ist.
Eignung für die Erfassung eingedrungener Kontamination	Ja (z. B. anhand mehrerer Proben entlang eines Tiefenprofils)
Eignung für Entscheidungsmessung	Das Messverfahren ist aufgrund des Aufwands in der Regel für Entscheidungsmessungen nicht von Bedeutung.

6.11 Atomemissions- und Atomabsorptionsspektrometrie

Die Atomabsorptionsspektrometrie (AAS) und die Atomemissionsspektrometrie (AES) dienen der Bestimmung elementarer Zusammensetzung in Proben. In der AAS absorbieren freie Atome (Gaszustand) einer Probe spezifische Wellenlängen aus einer Linienlichtquelle, typischerweise einer Hohlkathodenlampe, und die Intensitätsminderung wird zur quantitativen Analyse herangezogen. Die AES beruht hingegen auf der Emission charakteristischer Strahlung, wenn Atome oder Ionen (eines Probenmaterials) in einem

energetischen Anregungsfeld (etwa einer Flamme, einem Lichtbogen, Funkenentladung oder einem induktiv gekoppelten Plasma) auf hohe Anregungszustände gehoben werden und beim Übergang in energetisch niedrigere Zustände Photonen emittieren.

Die Nachweisgrenzen der AAS liegen typischerweise im ppb- bis ppm-Bereich. Die AES, insb. in Form der induktiv gekoppelten Plasma-optischen Emissionsspektrometrie (*inductively coupled plasma - optical emission spectrometry*, ICP-OES), erlaubt durch die hohen Plasmatemperaturen von 6.000 – 12.000 K den simultanen Nachweis von bis zu 70 Elementen und erreicht oft niedrigere ppt-Grenzwerte für viele Metalllinien.

Ein AAS-Spektrometer besteht im Wesentlichen aus einer Lichtquelle, einer Atomisierungszone, einem Monochromator und einem Detektor. Als Lichtquellen dienen klassische Hohlkathodenlampen, elektrodenlose Entladungslampen oder Superlampen, die element-charakteristische Linien emittieren. Die Probe wird über eine Flamme (Luft-Acetylen oder Lachgas-Acetylen), einen Graphitrohrfurnen oder Hydrid-/Kaldampfgenerator in freie Atome überführt. Dies geschieht bei Temperaturen von etwa 2.800 K (Flamme) bis 3.000 K (Graphitrohr). Der Monochromator trennt die Analyselinien von Untergrundspektren, während die Intensitätsmessung mit einem Photomultiplier oder einem Halbleiterdetektor erfolgt /WEL 12/.

Im Gegensatz zu anderen, häufig eingesetzten Methoden, wie etwa der Gammastrahlenspektroskopie, werden bei dieser Methode keine isotopenspezifische Aktivitätskonzentrationen (Bq/g) gemessen, sondern Gesamtelementkonzentrationen ($\mu\text{g/g}$ bis ppt). In der Kerntechnik wurden bzw. werden AAS und AES selten eingesetzt. Anwendungsbeispiele sind die Spurenanalyse von Verunreinigungen in Brennstoffmaterialien (UO_2 , ThO_2) oder Korrosionsstudien an Strukturwerkstoffen. Für Messungen im Kontext der Freigabe hat das Messverfahren praktisch keine Relevanz.

Wesentliche Verfahrenseigenschaften sind in Tab. 6.11 zusammengefasst.

Tab. 6.11 Charakteristische Eigenschaften der Atomemissions- und Absorptions-spektrometrie

Eignung für Strahlungsart	Unabhängig von der Strahlungsart, Bestimmung der (relativen) elementaren Zusammensetzung
Technische Komplexität	Durchschnittlich bis hoch Stationäre Messgeräte
Komplexität Bedienung	Durchschnittlich bis hoch
Messgröße	Wellenlängenspektrum
Einschätzung der Messzeit	Typische Messzeiten im Bereich einiger Minuten
Probennahme	Ja
Probenauf- und -vorbereitung	Ja, die Probe muss verdampfbar sein.
Messflächen/Massen	Nicht zutreffend
Eignung für schwer zugängliche Flächen	Ja, sofern eine Probennahme möglich ist.
Eignung für die Erfassung eingedrungener Kontamination	Ja (z. B. anhand mehrerer Proben entlang eines Tiefenprofils)
Eignung für Entscheidungsmessung	Das Messverfahren ist in der Regel für Entscheidungsmessungen nicht von Bedeutung.

6.12 Zusammenfassung

In den vergangenen Dekaden wurde eine Vielzahl an Messverfahren entwickelt, die sich an den Nachweis unterschiedlicher Strahlungsarten oder für die Bestimmung von Materialzusammensetzungen richten. Ein grundlegendes Unterscheidungsmerkmal ergibt sich anhand der Eignung für die Identifizierung bestimmter Radioisotope bzw. Elemente: Spektrometrische Messverfahren wie die Gammaskpektrometrie geben sehr präzise Auskunft über die Zusammensetzung der aktivitätstragenden Kontamination, während zählende bzw. integrierende Messverfahren, wie die Oberflächenaktivitätsmessverfahren oder die Gesamt-Gamma-Aktivitätsmessung, Informationen zum Nuklidvektor benötigen, um isotopenspezifische Aktivitäten zu ermitteln.

Für die Entscheidungsmessungen gehören das Oberflächenkontaminationsmessverfahren, die in-situ Gammaskpektrometrie und das Gesamt-Gamma-Aktivitätsmessverfahren zu den häufig eingesetzten Messverfahren. Diese Messverfahren profitieren auch von ihrer Berücksichtigung in der Normenreihe DIN 25457. Ergänzend gibt es eine zweite Kategorie von Aktivitätsmessverfahren, die unter bestimmten Randbedingungen für Freimessungen (z. B. für den Nachweis schwer messbarer Radionuklide) genutzt bzw. für Voruntersuchungen herangezogen werden. Zu dieser Verfahrenskategorie gehören bei-

spielsweise das Flüssigszintillationsmessverfahren oder die Alpha-Spektrometrie. Zudem gibt es eine dritte Klasse an Messverfahren, die sich für Freimessungen bis dato nicht etabliert haben und die auch im Rahmen der Voruntersuchungen nicht oder nur sehr sporadisch (z. B. für Machbarkeitsstudien) genutzt werden.

7 Innovative Messverfahren und Messgeräte für den Radioaktivitätsnachweis zur Anwendung für Voruntersuchungen und Freimessungen

Grundsätzlich zeigen die Erfahrungen der vergangenen Jahre, dass die Fähigkeiten etablierter Messverfahren den grundlegenden Anforderungen, die sich für die Voruntersuchungen und Freimessungen ergeben, genügen. Jedoch zeigt die Praxis auch, dass unter bestimmten Randbedingungen etablierte Messverfahren an die Grenzen der Praktikabilität gelangen. Dies kann zur Folge haben, dass die benötigten Messungen nur mit höherem Aufwand (z. B. weil aufgrund einer schlechter Zugänglichkeit des Messobjektes bzw. der Messfläche auf ein anderes Messgerät oder Messverfahren zurückgegriffen werden muss) durchgeführt werden können. Dies ist in der Regel mit höheren Kosten und ggfs. mit höheren Messunsicherheiten verbunden. Zudem zeigt die Praxis auch, dass die bestehenden Messverfahren und Messgeräte für den Nachweis eingedrungener Kontamination gewissen Limitierungen unterliegen. Es existiert somit ein Innovationsbedarf, der von mehreren Zielsetzungen getrieben wird. Hierzu gehören beispielsweise:

- Entwicklung innovativer Verfahren für definierte Einsatzzwecke (z. B. Nachweis schwer messbarer Radionuklide)
- Entwicklung innovativer Verfahren für die Tiefencharakterisierung bzw. für den Nachweis eingedrungener Kontaminationen
- Erhöhung der Prozesssicherheit (z. B. durch Verifizierungs-/Falsifizierungsmöglichkeiten)
- Erhöhung der Präzision des Messergebnisses (Reduzierung von Unsicherheiten)

Dass es für die Stilllegung Potenzial für innovative Verfahren gibt, wird auch auf Bundesebene anerkannt. Das bereits seit einigen Jahren existierende Förderkonzept FORKA (Forschung für den Rückbau kerntechnischer Anlagen) des Bundesministeriums für Forschung, Technologie und Raumfahrt unterstützt (technische) Innovationen in den Bereichen Zerlege- und Dekontaminationsverfahren, Freigabe, Behandlung radioaktiver Abfälle, Abfalldeklaration und Zwischenlagerung, Umwelt- und Strahlenschutz sowie Mensch, Technik und Organisation und richtet sich im Wesentlichen an Forschungverbünde aus Forschungseinrichtungen und Unternehmen der kerntechnischen Branche /BMBF 23/. Seit Beginn des Fördervorhabens wurden mehrere Projekte unterstützt, die die Entwicklung innovativer Messverfahren bzw. Messgeräte für Charakterisierungs-

zwecke oder für die Freigabe verfolgten. Zu den kürzlich abgeschlossenen bzw. derzeit laufenden Projekten gehören /GRS 24b/:

- Entwicklung von Messtechnik zur Beprobung kontaminierter Betonbaukörper kerntechnischer Anlagen während des Rückbaus (KOBKA), Förderkennzeichen 15S9434 (Laufzeit: 1. September 2021 – 31. Mai 2025)
- Radiologische Charakterisierung von kerntechnischen Anlagen und Gebäuden mittels kollimationsfreier, richtungsaufgelöster in-situ Gammaskpektrometrie (QGRIS), Förderkennzeichen 15S9431 (Laufzeit: 1. Juni 2021 – 31. Dezember 2024)
- Charakterisierung und Dekontamination von i-Grafiten (i-GraDe), Förderkennzeichen 15S9442 (Laufzeit: 1. Juni 2023 – 31. Oktober 2026)

Dieser Innovationsbedarf beschränkt sich nicht auf den nationalen Rahmen, auch international werden innovative Verfahren für Charakterisierungs- oder Freigabezwecke entwickelt. Hierbei zeigen sich sowohl Überschneidungen (z. B. grundlegende Problemstellungen wie die Tiefencharakterisierung von Betonstrukturen oder die Entwicklung von in-situ Messgeräten) als auch Unterschiede, die auf das jeweils landesspezifische nukleare Programm zurückzuführen sind.

Grundsätzlich zeigt sich, dass Aktivitäten zur Entwicklung innovativer Verfahren für Charakterisierungszwecke im Vergleich zu innovativen Messverfahren zu Freigabezwecken stärker ausgeprägt sind. Dies lässt sich im Wesentlichen auf zwei Faktoren zurückführen: Die radiologischen Voruntersuchungen stellen eine tragende Säule für die Projektplanung dar – es werden somit (möglichst zerstörungsfreie) Messverfahren benötigt, mit denen aussagekräftige Messungen durchgeführt werden können. Zudem sind die Anforderungen an Messverfahren bzw. Messgeräte für Freimessungen deutlich höher als solche für die Voruntersuchungen.

In diesem Kapitel werden ausgewählte innovative Messgeräte vorgestellt, die für Anwendungen im Kontext der Freigabe (ggfs. für Voruntersuchungen) konzipiert wurden. Sofern zutreffend, werden Bezüge zu regulatorischen Anforderungen aufgeführt.

7.1 Simultane Gesamt-Gamma-Aktivitätsmessung und gammaspektrometrische Messung

Die Messung der Gesamt-Gamma-Aktivität erfolgt mit Freimessanlagen, die für unterschiedliche Chargengrößen bis etwa 1 m³ konzipiert sind (siehe Kapitel 6.2). Zur Detektion der Gamma-Strahlung werden großflächige Szintillationsdetektoren eingesetzt, deren Energieauflösungsvermögen für die Bestimmung der radioisotopischen Zusammensetzungen in der Regel unzureichend ist. Grundsätzlich liegen zwar spektrale Informationen der einzelnen Detektoren vor, diese eignen sich allerdings nur für sehr rudimentäre Prüfungen. Eine quantitative Kontrolle des Nuklidvektors zum Zwecke einer Verifizierung oder Falsifizierung ist beispielsweise praktisch ausgeschlossen.

Vereinzelt führen Technologieanbieter Freimessanlagen in ihren Portfolios, die über einen (oder mehrere) kreisförmige(n) Zugang (Zugänge) zur Messkammer verfügen, der (die) die Durchführung gammaspektrometrischer Messungen ermöglicht (ermöglichen), die simultan zur eigentlichen Messung erfolgen. Solche optionalen Zugänge sind z. B. bei einigen großen Freimessanlagen mit 24 Detektionseinheiten (vier Detektionseinheiten pro Oberfläche) vorhanden. Die Zugänge befinden sich meist im Zentrum einer oder mehrerer Oberflächen.

Der VKTA – Strahlenschutz, Analytik & Entsorgung Rossendorf e. V. (VKTA) nutzt eine Freimessanlage, die mit einem HPGe-Detektor ausgestattet werden kann /JAN 23/. Die Erfahrungen zeigen, dass durch die messbegleitende Aufnahme des Gammaspektrums deutlich größere Messzeiten notwendig sind (diese ergeben sich überwiegend aus den unterschiedlichen Detektorvolumen) und Nachweisgrenzen mit steigenden Messzeiten fallen. Eine Routinenutzung dieser Methode zur Prüfung des herangezogenen Nuklidvektors ist somit – insb. für Einrichtungen mit einheitlichen bzw. standardisierbaren Nuklidvektoren – nicht praktikabel. Stichprobenartige Simultanmessungen können allerdings der Qualitätssicherung dienen. Auch die ESK stellt fest, dass z. B. für Forschungsanlagen, für die die Nuklidvektoren einer höheren Variabilität unterliegen, eine Kombination aus Freimessanlage und einer simultanen gammaspektrometrischen Messung zielführend sein kann /ESK 25/.

7.2 Sektorielle Fassmessanlage ASGS (AiNT/Mirion)

Konventionelle Fassmessanlagen unterteilen das zu vermessende Gebinde bzw. Fass entlang der Symmetrieachse in Scheibensegmente. Für die Kalibration werden für diese

Segmente gleichförmige Aktivitätsverteilungen angenommen. Dies führt in der Praxis zu einer Überschätzung der tatsächlich vorliegenden Aktivität, was zu einem erhöhten Arbeitsaufwand (z. B. Arbeitsschutz/Strahlenschutz) und zu Mehrkosten (z. B. Entsorgungskosten und aufwandsbedingte Mehrkosten) führen kann.

Zusammen mit dem Aachen Institute for Nuclear Training (AINT) hat Mirion Technologies ASGSTM (Advanced Sectorial Gamma Scanner) entwickelt /MIR 25b/. Die Messeinrichtung orientiert sich am Grundprinzip eines Fassscanners, die wesentliche Änderung ergibt sich aus der Unterteilung der Segmente in Sektoren. Dies setzt voraus, dass das Sichtfeld des Gamma-Detektors eingeschränkt und insb. nicht die komplette Breite des Gebindes erfasst wird. In Verbindung mit einer angepassten Berechnungsmethode können aus den Messwerten Rückschlüsse auf die Aktivitätsverteilung bzw. etwaige Inhomogenitäten gezogen werden, womit Unsicherheiten ggfs. reduziert werden können. Neben den Gamma-Detektoren verfügt die Messeinrichtung auch über Messgeräte zur Bestimmung der Oberflächendosisleistung und über ein automatisches Wiegesystem. Die Steuerungssoftware basiert auf der etablierten Software GenieTM.

Die Anlage dient vordergründig der Charakterisierung geschlossener und mit radioaktiven Abfällen gefüllter Gebinde.

7.3 Entwicklung von Messtechnik zur Beprobung kontaminierter Betonbaukörper kerntechnischer Anlagen während des Rückbaus (KOBKA)

In der Vergangenheit sind vereinzelt Fälle aufgetreten, in denen erst im Verlauf der Stilllegung (unerwartet) Kontaminationen aufgefunden wurden, welche die Stilllegungsplanung wesentlich beeinflusst haben. In der Folge solcher unerwarteter Kontaminationsfunde kommt es zu Projektverzögerungen, die häufig mit deutlichen Mehrkosten verbunden sind. Ein Beispiel für ein Stilllegungsprojekt, für das dies der Fall gewesen ist, ist die Stilllegung des Kernkraftwerks Stade (KKS), in dessen Verlauf Kontaminationen in den Betonstrukturen des unteren Teil des Reaktorsicherheitsbehälters nachgewiesen wurden /WIL 24/. Auch im Kernkraftwerk Greifswald wurden erst im Stilllegungsverlauf tief in Gebäudeteile eingedrungene Kontaminationen erkannt, die zu einem erheblichen Mehraufwand geführt haben bzw. führen /SCH 24/.

Diese Kontaminationsfunde sind oftmals auf ausgetretenes kontaminiertes Wasser zurückzuführen und treten hauptsächlich entlang von Arbeitsfugen zwischen Betonabschnitten auf. Zudem sind auch Grenzschichten zwischen Betonmatrix und Durchdringungen, Bereiche entlang von Fugen, Schalungen oder Rissen anfällig für die tieferliegende Akkumulation von Kontaminationen.

Im Rahmen der Voruntersuchungen werden entsprechend des Standes der Technik Kernbohrungen (Proben) und Laboranalysen der Proben (Bohrmehlproben) durchgeführt. Die Anzahl der Kernbohrungen ist in der Praxis häufig aufgrund eingeschränkter Zugänglichkeiten, den damit verbundenen Kosten und baustatischer Randbedingungen beschränkt. Typischen Bohrkerne haben einen Durchmesser im Bereich von 5 bis 10 cm. Eine Reduzierung des Kernbohrprobendurchmessers würde es erlauben, die Probenanzahl zu erhöhen, um so Unsicherheiten zu reduzieren.

Im Rahmen des Vorhabens KOBKA (Förderung durch FORKA, Laufzeit: 1. September 2021 – 31. August 2024) hat sich ein Konsortium mit der Entwicklung innovativer Messtechnik zur Beprobung und zur in-situ Messung in kompakten Bohrlöchern beschäftigt /BER 23/, /HAM 24/. So wurden in dem Projekt u. a. eine faseroptische Strahlungs-sonde (Szintillatormaterial: Mit Cer dotierter Gadolinium-Aluminium-Gallium-Granat-Kristall (Ce:GAGG)) für Bohrlochdurchmesser ab ca. 2,5 cm entwickelt. Mit diesem Messgerät sollen rudimentäre spektroskopische Messungen, u. a. zur Unterscheidung von Cs-137 und Co-60, durchgeführt werden können (abschließende Ergebnisse lagen zum Zeitpunkt der Erstellung dieses Berichtes nicht vor). Des Weiteren beschäftigte sich das Projekt mit der Entwicklung einer laserbasierten Analytik in schmalen Bohrlöchern. Der Beton wird hierzu in einem ersten Schritt durch Laserablation sukzessive abgetragen, in einem zweiten Schritt ist die Untersuchung des Materialabtrags vorgesehen. Zudem wurden im Vorhaben eine massenspektrometrische und eine optische Spektrometrie evaluiert. Auch hier lagen zum Zeitpunkt der Erstellung dieses Berichtes keine abschließenden Ergebnisse vor.

Das Projekt richtete sich an die Entwicklung von Messgeräten für die Voruntersuchungen (Erkennung von Kontamination). Eine Nutzung entsprechender Messgeräte für Entscheidungsmessungen erscheint zum jetzigen Zeitpunkt als unwahrscheinlich.

7.4 Rohrmolch für in-situ gammaspektrometrische Untersuchungen von Rohren und Durchführungen in Einbaulage

Rohrleitungen und Wanddurchführungen mit geringem Innendurchmesser stellen im Kontext der Freigabe (z. B. Konformitätsprüfung mit Freigabewerten nach Anlage 4 Tabelle 1 Spalte 13 StrlSchV für die spezifische Freigabe von Gebäuden zum Abriss) aus mehreren Gründen eine Herausforderung dar: Zum einen treten sie in kerntechnischen Anlagen sehr oft auf, zum anderen sind etablierte Messgeräte (z. B. zylindrische Rohrsonden mit Szintillationsdetektoren für Messungen der Gamma-Dosisleistung) oftmals für die in-situ Durchführung einer Entscheidungsmessung ungeeignet. In der Praxis kommt es daher vor, dass Rohre oder Durchführungen zunächst freigelegt (z. B. durch Stemmen) und die Entscheidungsmessungen anschließend je nach Bedarf mit herkömmlichen Gammaspektrometern oder Kontaminationsmonitoren durchgeführt werden. Dies führt zu höheren Kosten, erhöht den Zeitaufwand und führt aufgrund des Abbruchmaterials zu zusätzlichen Massen, die den Entscheidungsmessungen zugeführt werden müssen.

Die Safetec GmbH hat einen kompakten Rohrmolch entwickelt, mit dem unter bestimmten Randbedingungen Entscheidungsmessungen (z. B. im Rahmen der spezifischen Freigabe von Gebäuden zum Abriss) in-situ und aus dem Inneren der Rohre (bzw. der Durchführungen) heraus durchgeführt werden können /SCH 23b/, /OPI 24/. Dieser Rohrmolch nutzt zur Detektion einfallender Gamma-Strahlung einen Europium dotierten Strontium-Iodid ($\text{SrI}_2(\text{Eu})$) Szintillationskristall mit einem Volumen von etwa $50 \times 25 \times 25 \text{ mm}^3$. Im Vergleich zu anderen Szintillationsmaterialien weist $\text{SrI}_2(\text{Eu})$ eine vergleichsweise gute Energieauflösung (spektrale Energieauflösung unter 4,5 % bei einer Gamma-Energie von 662 keV (Cs-137) für einen Kristall der o. g. Größe) auf. Der Detektor muss zudem in der Regel nicht gekühlt werden.

Die DIN 25457 stellt für in-situ Gammaspektrometer fest, dass in Abhängigkeit des Messzwecks auch Szintillationsdetektoren eingesetzt werden können, dementsprechend wird für in-situ Gammaspektrometer auch kein bestimmtes Auflösungsvermögen gefordert.

Das Messgerät ist zuvorderst für Entscheidungsmessungen konzipiert, für die Co-60 oder Cs-137 als Leitnuklide genutzt werden. Ein Ziel der Entwicklung war es, anthropogene und primordiale Radionuklide voneinander unterscheiden zu können. Die geringste Energiedifferenz zwischen Gamma-Linien aus dem Zerfall von Co-60 bzw. Cs-137 und

natürlichen Gamma-Linien tritt für die Gamma-Linien mit Energien von 662 keV (Cs-137) und 609 keV (Bi-214) auf. Die Energieauflösung des Detektors ist ausreichend, um diese beiden Linien voneinander trennen zu können. Die Richtungsabhängigkeit des Detektors wurde für Zylindersymmetrien untersucht. Für die Effizienz konnte für die vorgegebene Geometrie keine signifikante Richtungsabhängigkeit beobachtet werden. Für die Berechnung der charakteristischen Grenzen (z. B. Nachweisgrenze) mit einem Vertrauensniveau von 95 % wird die Normenreihe DIN EN ISO 11929 herangezogen. Für Oberflächenkontaminationen liegen typische Messzeiten für Cs-137 und Co-60 im Bereich einer Minute /SCH 23b/, /OPI 24/.

Der Detektor ist in einem feinmaschigem Exoskelett fixiert. Das Exoskelett ist im vorderen und hinteren Bereich jeweils mit drei Federarmen verbunden, an deren Ende sich Rollen befinden. Dieser Federmechanismus erlaubt ein Verspannen des Rohrmolchs im Rohr und ermöglicht es, diesen zentral in zylindrischen Geometrien zu positionieren. Zudem ist der Rohrmolch hierdurch auch für unterschiedliche Rohrrinnendurchmesser geeignet (Konzeption für Innendurchmesser zwischen 4 und 10 cm). Die eigentlichen Messungen erfolgen segmentweise in Schritten von etwa 5 cm (Länge des Kristalls). Für Rohre/Durchführungen mit starken Krümmungen ist der Rohrmolch nur bedingt geeignet /SCH 23b/, /OPI 24/.

7.5 Individuell angepasstes Messsystem zur Durchführung der Freigabe des Sicherheitsbehälters im Kernkraftwerk Stade

Für die in Deutschland eingesetzten Typen von Druckwasserreaktoren hat der Sicherheitsbehälter eine kugelförmige Geometrie mit einem Innendurchmesser von etwa 50 m. Der Sicherheitsbehälter des KKS weist beispielsweise einen Innendurchmesser von 48 m und eine Manteldicke von 3 cm auf. Der Sicherheitsbehälter besteht aus Stahl /DEG 23/. Die Randbedingungen führen hinsichtlich der Entscheidungsmessungen (Bestimmung der Oberflächenkontamination sowohl auf der Innen- als auch auf der Außenseite des Sicherheitsbehälters) zu Herausforderungen, z. B. aufgrund des Bedarfs an Messungen in großen Höhen bei gleichzeitiger Berücksichtigung der Krümmung der Gesamtstruktur.

Das Freigabekonzept im KKS sah eine Unterteilung in unterschiedlich groß-dimensionierte Teilflächen vor, wobei der äquatornahe Bereich (Bereich zwischen +10,2 und +42,0 m) mit Abstand der größte Bereich gewesen ist. Vor der Durchführung der Messungen wurde die Oberfläche gereinigt und entschichtet. Zur Reduzierung des

Arbeits- und Materialaufwands (z. B. Vermeidung von Gerüstbauten) entschied man sich für die Nutzung eines ferngesteuerten Systems. Angestrebt wurde eine uneingeschränkte Freigabe gemäß Anlage 4 Tabelle 1 Spalten 3,5 StrISchV auf Basis nicht-flächendeckender Messungen und Beprobungen. Als Grundlage für das statistische Verfahren wurde die DIN 25457-6 herangezogen /WIL 24/.

Für die Freigabemessungen wurden Magnetcrawler eingesetzt, die mit der Messtechnik ausgestattet wurden. Diese verfügen zur Positionierung der Messgeräte über einen Antrieb, vier Räder an der Vorderachse und zwei weitere Räder an der Hinterachse. Als Messgeräte wurden direkte Oberflächenkontaminationsmessgeräte zur stationären Bestimmung von Beta-Kontaminationen (Berthold LB 124 SCINT) und hochauflösende Gamma-Detektoren (HPGe) eingesetzt. Für die HPGe-Detektoren wurden sowohl eine Stickstoffkühlung als auch ein elektrisches Kühlsystem eingesetzt. /DEG 23/

Für die äußere Oberfläche des Sicherheitsbehälters wurde zur Ausrichtung und Positionierung der Messgeräte auf die äußere Drehleiter als Hilfsmittel zurückgegriffen. Für die gammaspektrometrischen Messungen wurde ein Kollimator (180° Öffnung) genutzt. Für die innere Oberfläche erfolgte die Ausrichtung und Positionierung anhand von Polar- und Azimutwinkel, zudem wurde zur Ausrichtung ein Linienlaser als Hilfsmittel eingesetzt. Diese Messungen wurden ohne Kollimator durchgeführt. Sowohl für die Stichprobenmessungen auf der inneren als auch der äußeren Oberfläche des Sicherheitsbehälters wurden die Messzeiten auf 5.400 s festgelegt /WIL 24/.

Eine entscheidende Anforderung der DIN 25457 betrifft die Platzierung und Ausrichtung des Detektors relativ zum Messobjekt. Der eingesetzte Magnetcrawler erscheint hierfür ausreichend stabil und manövrierfähig. Zudem wurden, wie in der DIN 25457 empfohlen, Hilfsmittel zur Reduzierung von Unsicherheiten (Laser) verwendet. Bei der Nutzung eines solchen Messsystems ist insb. sicherzustellen, dass Schwingungen die Messungen (z. B. hinsichtlich des Auflösungsvermögens) nicht wesentlich beeinflussen.

7.6 Zusammenfassung

Sowohl national als auch international besteht ein großes Interesse an der (Weiter-)Entwicklung innovativer Aktivitätsmessverfahren bzw. an punktuellen Verbesserungen etablierter Messverfahren, beispielsweise um Messverfahren für bestimmte Messaufgaben nutzen zu können. In Deutschland werden entsprechende F&E-Projekte häufig über das Förderkonzept FORKA unterstützt, zudem gibt es Beispiele für projektorientierte

Weiterentwicklungen durch Dienstleister. Oftmals werden diese F&E-Arbeiten durch eine der vier folgenden Triebfedern motiviert:

- Adaption existierender Messgeräte und Messsysteme an bestimmte Randbedingungen

Dies betrifft Anwendungsfälle, für die die Durchführung der Messungen mit etablierten Messgeräten grundsätzlich zwar möglich, diese aber mit einem zusätzlichen Aufwand verbunden ist. Zudem können Sekundärabfälle erzeugt werden. Ein Beispiel für eine derart motivierte Innovation ist die Entwicklung des Rohrmolchs durch das Unternehmen Safetec (siehe Kapitel 7.4) oder das vorgestellte Messsystem für Freimessungen am Sicherheitsbehälter des KKS (siehe Kapitel 7.5).

- Erhöhung der Präzision bzw. Verringerung von Konservativitäten zur Aufwands- und Kostenreduzierung

Ein Zurückgreifen auf zu hohe Konservativitäten kann z. B. dazu führen, dass eine Freigabe auf Basis des Messergebnisses der Entscheidungsmessung nicht erfolgen kann, obschon die tatsächlich vorliegende Aktivität eine Freigabe zulassen würde oder radioaktive Abfälle zu hoch eingestuft werden. Dies ist zum einen kostenintensiv, zum anderen beansprucht es wertvolle Entsorgungs- bzw. Endlagerungskapazitäten. Konservativitäten können beispielsweise dann zu hoch sein, wenn eine präzise Bestimmung der Unsicherheiten aus praktischen Erwägungen (Mehraufwand) für die genutzten Messgeräte bzw. Messsysteme nicht erfolgt. Ein Beispiel für eine derart motivierte Innovation ist die Entwicklung der sektoriellen Fassmessanlage ASGS (siehe Kapitel 7.2).

- Erhöhung der Prozesssicherheit

Durch zusätzliche Prüfschritte oder eine Reduzierung von Verfahrenskomplexitäten (z. B. durch fehleranfällige Messtechnik) kann ein Messverfahren robuster werden. Dies kann beispielsweise zur Prüfung von Unterschieden zwischen Annahmen und den tatsächlich vorliegenden Bedingungen dienen. Ein Beispiel hierfür ist die Nutzung modifizierter Freimessanlagen, die parallel verlaufende spektrometrische Messungen erlauben. Die daraus resultierenden Informationen können zur Verifizierung bzw. Falsifizierung des angenommenen Nuklidvektors herangezogen werden (siehe Kapitel 7.1).

- Erhöhung der Robustheit der Projektplanung

Im Rahmen der Voruntersuchungen werden eine Vielzahl an in-situ Messungen und Messungen an Proben vorgenommen, die als Grundlage für die Projektplanung und zur Erarbeitung des Entsorgungs- und Freigabekonzepts genutzt werden. Praktisch

ist die Anzahl dieser Messungen beschränkt. Dies wird z. B. durch den hohen Aufwand begründet, kann aber auch mit messverfahrensspezifischen Randbedingungen zusammenhängen. Vereinzelt wurden sowohl national als auch international in Beton eingedrungene Kontaminationen erst im Verlauf der Stilllegung erkannt. Da dies zu einem erheblichen Mehraufwand führt, gibt es auch weiterhin ein großes Interesse an der Entwicklung innovativer Messverfahren bzw. Messgeräte für den Nachweis eingedrungener Kontamination. Ein Beispiel hierfür ist das Projekt KOBKA (siehe Kapitel 7.3).

Bezogen auf entsprechende F&E-Projekte zeigt sich, dass sich diese tendenziell stärker auf Messverfahren zur Charakterisierung als auf Messverfahren für die Durchführung der Freimessungen konzentrieren. Dies ist einerseits ein Indikator dafür, dass die für Freimessungen eingesetzte Messtechnik die Anforderungen erfüllt. Andererseits sind die Anforderungen an Messverfahren bzw. Messgeräte für Freimessungen höher als jene für radiologische Charakterisierungen im Rahmen von Voruntersuchungen, was wiederum mit einem höheren Qualifizierungsaufwand für die Messgeräte verbunden ist. Bezogen auf innovative Messverfahren für Freimessungen liegt der Schwerpunkt der Weiterentwicklungen auf punktuellen Verbesserungen der Praktikabilität.

8 Zusammenfassung und Ausblick

Der vorliegende Bericht konzentrierte sich auf Fragestellungen im Kontext zweier Themenfelder:

- Regulatorische Anforderungen an Strahlungsmessgeräte für Entscheidungsmessungen und Prüfung auf Konsistenz bzw. Kompatibilität (siehe Kapitel 2 und Kapitel 3)
- Messverfahren für den Radioaktivitätsnachweis und zur Bestimmung von Materialzusammensetzungen sowie deren Nutzung im Rahmen der Freigabe (siehe Kapitel 6 und Kapitel 7)

Darüber hinaus wurden unter Berücksichtigung der o. g. Anforderungen generische Anforderungskriterien im Rahmen der Entscheidungsmessungen (siehe Kapitel 4) und Herangehensweisen abweichend zu „100 % Messungen“ (siehe Kapitel 5) zusammengefasst.

Die Auseinandersetzung mit den regulatorischen Anforderungen hat zunächst gezeigt, dass eine Vielzahl an Dokumenten und Leitfäden existiert, die relevante Aussagen zu messtechnischen Anforderungen treffen bzw. hierfür auf andere Dokumente verweisen. Zwischen den Dokumenten gibt es eine Vielzahl an Querverweisen, die oftmals allerdings nicht explizit niedergeschrieben sind bzw. die sich aus der Interpretation des Regelwerks ergeben. Für die Betrachtung der messtechnischen Anforderungen sind die StrlSchV sowie die Normenreihen DIN 25457 und DIN EN ISO 11929 von besonderer Relevanz. Die StrlSchV hebt hervor, dass die Strahlungsmessgeräte dem Messzweck zu genügen haben. Im Falle der Entscheidungsmessung ist der Messzweck die Konformitätsprüfung zum Nachweis der Einhaltung isotopenspezifischer Freigabewerte. Da jedes Messergebnis Unsicherheiten unterliegt, ist es zwingend notwendig, dass diese auch für die Konformitätsprüfung berücksichtigt werden. Herangezogen wird für gewöhnlich eine einseitige Irrtumswahrscheinlichkeit von 5 %, die im Einklang mit einer SSK-Empfehlung aus dem Jahr 2016 steht. Zudem wird in der StrlSchV die Notwendigkeit regelmäßiger Prüfungen der Messgeräte bzw. Messeinrichtungen auf Funktionstüchtigkeit hervorgehoben.

Wie ad hoc zu vermuten, variiert der Detailgrad der aufgeführten Anforderungen entlang der betrachteten Dokumente. Im Allgemeinen nimmt dieser hin zur Spitze der kerntechnischen Regelwerkspyramide ab und die Aussagen werden in diesem Zuge zunehmend generischer. Die Normenreihe DIN 25457 formuliert detaillierte Anforderungen an vier

etablierte Messverfahren, die für die Freigabepraxis besonders relevant sind. Die Normenreihe DIN EN ISO 11929 fasst ergänzend die mathematischen/statistischen Grundlagen zur Bestimmung der charakteristischen Grenzen (Erkennungsgrenze, Nachweisgrenze und obere Grenze des Überdeckungsintervalls) zusammen.

Aufgrund der unterschiedlichen Detaillierungsgrade und Schwerpunkte ist ein übergreifender Vergleich der aufgeführten Anforderungen auf Konsistenz nicht zielführend. Vielmehr eignet sich eine Kompatibilitätsprüfung als Herangehensweise. Hierbei ergaben sich keine grundsätzlichen Diskrepanzen hinsichtlich der Anforderungen, welche die einzelnen Dokumente aufführen. Trotzdem wurden Möglichkeiten zur Verbesserung identifiziert, die u. a. die Navigation durch das Regelwerk und unterstützende Leitfäden tangieren. Die Freigabe im Rahmen der Stilllegung kerntechnischer Anlagen steht oftmals im Zentrum des (öffentlichen) Interesses und der existierenden Leitfäden. Grundsätzlich sollten vor dem Hintergrund der Freigabe sowohl die kerntechnischen als auch die strahlenschutzrechtlichen Anlagen betrachtet und sich über praktische Aspekte (wie z. B. die Methodologie bei der Verfahrensauswahl) auch über diese Trennlinie hinweg ausgetauscht werden. Hinsichtlich innovativer Messverfahren bzw. Messgeräte erscheint eine Hilfestellung zu grundlegend einzuhaltenden Anforderungen (z. B. in Form eines Leitfadens) wünschenswert.

Die Auseinandersetzung mit den Aktivitätsmessverfahren und den Messverfahren zur Bestimmung der Materialzusammensetzung haben gezeigt, dass grundsätzlich ein breites Spektrum an Messverfahren zur Verfügung steht, von dem nur ein Teil regelmäßig für Freimessungen genutzt wird. Hervorzuheben sind hierbei das Oberflächenkontaminationsmessverfahren, die in-situ Gammaskpektrometrie und das Gesamt-Gamma-Aktivitätsmessverfahren. Darüber hinaus werden für Voruntersuchungen und bestimmte Freimessungen im Einzelfall weitere Messverfahren verwendet (z. B. Dosisleistungsmessverfahren oder Flüssigszintillationsmessverfahren). Eine dritte Klasse an Messverfahren hat sich zum aktuellen Zeitpunkt weder für Freimessungen noch für Voruntersuchungen in der Breite etabliert bzw. wird nur in Einzelfällen verwendet.

F&E-Aktivitäten finden auch zur Entwicklung innovativer Aktivitätsmessverfahren/-geräte bzw. zur Weiterentwicklung etablierter Messverfahren und -geräte statt. Ausgewählte innovative Messverfahren bzw. Messgeräte wurden in diesem Bericht vorgestellt, wofür auch die Motivation der entsprechenden F&E-Projekte tangiert wurde. Hierzu gehören die Adaption existierender Messgeräte und Messsysteme an bestimmte, praktisch vorliegende Randbedingungen, die Erhöhung der Präzision der Messung bzw. die

Verringerung von Konservativitäten, die Erhöhung der Prozesssicherheit sowie die Verbesserung der Robustheit der Stilllegungsplanung.

Die Freigabe ist ein zentraler Baustein für die Umsetzbarkeit des Nationalen Entsorgungsprogramms. Die Akzeptanz der Freigabe ist somit von übergeordneter Bedeutung. Hieraus ergeben sich hohe Anforderungen, die neben den eigentlichen Messgeräten auch deren Nutzung betreffen. Erst unter Berücksichtigung von Kalibrationen können aus den durchgeführten Messungen flächen- bzw. massenbezogene Aktivitätswerte bestimmt werden. Die Messungen müssen unter möglichst identischen Randbedingungen wie jenen der Kalibrationsmessungen erfolgen. Die Aussagekraft der Messungen ist somit zu einem gewissen Teil abhängig von der Bedienung und Handhabung. Abweichungen von diesen Randbedingungen könnten das Messergebnis beeinflussen. Die Prozesssicherheit ist somit von zentraler Bedeutung, mögliche Verbesserungspotenziale sollten vor dem Hintergrund der Prozesssicherheit möglichst ausgeschöpft werden.

Literaturverzeichnis

- /AKE 05/ Arbeitskreis Entsorgung des Fachverband für Strahlenschutz e.V.:
Leitfaden für die praktische Umsetzung des § 29 StrlSchV
(Freigabeleitfaden). 8. Dezember 2005.
- /ATG 22/ Gesetz über die friedliche Verwendung der Kernenergie und den Schutz
gegen ihre Gefahren (Atomgesetz) (AtG) zuletzt geändert 4. Dezember
2022.
- /BASE 24/ Bundesamt für die Sicherheit der nuklearen Entsorgung (BASE): Auflistung
kerntechnischer Anlagen in der Bundesrepublik Deutschland. Dezember
2024.
- /BASE 25 / Bundesamt für die Sicherheit der nuklearen Entsorgung (BASE): Handbuch
Reaktorsicherheit und Strahlenschutz. Stand vom April 2025, erreichbar
unter https://www.base.bund.de/de/service/gesetze-regelungen/handbuch-reaktorsicherheit-strahlenschutz/rsh-handbuch-reaktorsicherheit-strahlenschutz_inhalt.html, abgerufen am Mai 2025.
- /BER 05/ Bertram-Berg, A.: Leitfaden für die praktische Umsetzung des § 29
StrlSchV, (Freigabeleitfaden). Fachverband für Strahlenschutz,
Publikationsreihe Fortschritte im Strahlenschutz, 3. Aufl.: Köln, 2005.
- /BER 23/ Wolfgang Bertram, Uwe Hampel: KOBKA: Entwicklung von Messtechnik
zur Beprobung kontaminierter Betonstrukturen im Sicherheitsbehälter von
Druckwasserreaktoren während des Kraftwerksrückbaus. Präsentation,
KONTEC 2023, 2023.
- /BER 24/ Berthold Technologies GmbH & Co. KG: Portable Contamination Monitors -
LB 124 SCINT SERIES. 2024.
- /BMBF 23/ Bundesministerium für Bildung und Forschung: Bekanntmachung - BMBF,
Richtlinie zur Förderung von Projekten zum Förderkonzept FORKA -
Forschung für den Rückbau kerntechnischer Anlagen, Bundesanzeiger
vom 07.12.2023. 7. Dezember 2023.

- /BMU 17/ Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz, Bau und Reaktorsicherheit:
Bekanntmachung einer Empfehlung der Strahlenschutzkommission –
Methodik zur Berücksichtigung von Messunsicherheiten bei
messtechnischen Prüfungen der Röntgenverordnung und der
Strahlenschutzverordnung – vom 15. September 2016. 9. Februar 2017.
- /BMU 21/ Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und nukleare Sicherheit:
Leitfaden zur Stilllegung, zum sicheren Einschluss und zum Abbau von
Anlagen oder Anlagenteilen nach § 7 Atomgesetz. 16. September 2021.
- /BMU 25/ Bundesministerium für Umwelt, Klimaschutz, Naturschutz und nukleare
Sicherheit: Strategische Umweltprüfung zum Nationalen
Entsorgungsprogramm, Umweltbericht für die Behörden- und
Öffentlichkeitsbeteiligung. Mai 2025.
- /BMUV 22/ Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz, nukleare Sicherheit und
Verbraucherschutz: Sicherheitsanforderungen an Kernkraftwerke. 2022.
- /BUC 12/ Bucher, B., Haug, T., Kaden, M., Lovranich, E., Sargent, P., Steinkopff, T.,
Wicke, A.: Empfehlung zur Überwachung der Umweltradioaktivität. 2012.
- /DEG 23/ Bastian Degner: Neue Technik für die Vorbereitung und Messungen zur
Freigabe im KKS. Präsentation, KONTEC 2023, 2023.
- /DIN 02/ DIN Deutsches Institut für Normung e. V.: Strahlenschutz-Messgeräte -
Alpha-, Beta- und Alpha/Beta- (Betaenergie > 60 keV)
Kontaminationsmessgeräte und -monitore (IEC 60325:2002, modifiziert);
Deutsche Fassung EN 60325:2004. DIN EN 60325:2005-2:2002-02, 2002.
- /DIN 13/ DIN Deutsches Institut für Normung e. V.: Aktivitätsmessverfahren für die
Freigabe von radioaktiven Stoffen und kerntechnischen Anlagenteilen.
25457-4:2013-04, 17.240; 27.120.10, 2013.
- /DIN 14/ DIN Deutsches Institut für Normung e. V.: Aktivitätsmessverfahren für die
Freigabe von radioaktiven Stoffen und kerntechnischen
Anlagenteilen.2014-12, 2014.

- /DIN 17a/ DIN Deutsches Institut für Normung e. V.: Bestimmung der Radioaktivität - Messung und Bewertung der Oberflächenkontamination - Teil 3: Gerätekalibrierung (ISO 7503-3:2016). DIN ISO 7503-3:2017-12, 2017.
- /DIN 17b/ DIN Deutsches Institut für Normung e. V.: Bestimmung der Radioaktivität - Messung und Bewertung der Oberflächenkontamination - Teil 1: Allgemeine Grundlagen (ISO 7503-1:2016). DIN ISO 7503-1:2017-12, 2017.
- /DIN 17c/ DIN Deutsches Institut für Normung e. V.: Bestimmung der Radioaktivität - Messung und Bewertung der Oberflächenkontamination - Teil 2: Wischtest (ISO 7503-2:2016). DIN ISO 7503-2:2017-12, 2017.
- /DIN 17d/ DIN Deutsches Institut für Normung e. V.: Aktivitätsmessverfahren für die Freigabe von radioaktiven Stoffen und kerntechnischen Anlagenteilen. 25457-7:2017-08, 13.-030.30; 17.240, 2017.
- /DIN 18/ DIN Deutsches Institut für Normung e. V.: Aktivitätsmessverfahren für die Freigabe von radioaktiven Stoffen und kerntechnischen Anlagenteilen. 25457-6:2018-07, 17.240;27.120.10, 2018.
- /DIN 20/ DIN Deutsches Institut für Normung e. V.: Nachweis der Radioaktivität. DIN EN ISO 19361:2020, 2020.
- /DIN 21a/ DIN Deutsches Institut für Normung e. V.: Bestimmung der charakteristischen Grenzen (Erkennungsgrenze, Nachweisgrenze und Grenzen des Überdeckungsintervalls) bei Messungen ionisierender Strahlung – Grundlagen und Anwendungen. DIN EN ISO 11929-1:2021-11, 2021.
- /DIN 21b/ DIN Deutsches Institut für Normung e. V.: Bestimmung der charakteristischen Grenzen (Erkennungsgrenze, Nachweisgrenze und Grenzen des Überdeckungsintervalls) bei Messungen ionisierender Strahlung – Grundlagen und Anwendungen. DIN EN ISO 11929-2:2021-11, 2021.

- /DIN 21c/ DIN Deutsches Institut für Normung e. V.: Bestimmung der charakteristischen Grenzen (Erkennungsgrenze, Nachweisgrenze und Grenzen des Überdeckungsintervalls) bei Messungen ionisierender Strahlung – Grundlagen und Anwendungen. DIN EN ISO 11929-3:2021-11, 2021.
- /DIN 21d/ Ding, H., Dixon Wilkins, M. C., Gausse, C., Mottram, L. M., Sun, S., Stennett, M. C., Grolimund, D., Tappero, R., Nicholas, S., Hyatt, N. C., Corkhill, C. L.: Safely probing the chemistry of Chernobyl nuclear fuel using micro-focus X-ray analysis. Journal of Materials Chemistry A, Bd. 9, Nr. 21, S. 12612–12622, DOI 10.1039/D0TA09131F, 2021.
- /DIN 22/ DIN Deutsches Institut für Normung e. V.: Bestimmung der Radioaktivität. DIN EN ISO 20042:2022-06, 2022.
- /DIN 23/ DIN Deutsches Institut für Normung e. V.: Bestimmung der Radioaktivität. DIN EN ISO 8769:2023-09, 2023.
- /DIN 24a/ DIN Deutsches Institut für Normung e. V.: Aktivitätsmessverfahren für die Freigabe von radioaktiven Stoffen und kerntechnischen Anlagenteilen. DIN 25457-1:2024-05, 17.240; 27.120.10, 76 S., 2024.
- /DIN 24b/ DIN Deutsches Institut für Normung e. V.: Bestimmung der charakteristischen Grenzen (Erkennungsgrenze, Nachweisgrenze und Grenzen des Überdeckungsintervalls) bei Messungen ionisierender Strahlung – Grundlagen und Anwendungen. DIN EN ISO 11929-4:2024-03, 2024.
- /ESK 20/ Entsorgungskommission (ESK): Leitlinien zur Stilllegung kerntechnischer Anlagen, Empfehlung der Entsorgungskommission. 5. November 2020.
- /ESK 22/ Entsorgungskommission (ESK): Freigabe radioaktiver Stoffe und Herausgabe nicht radioaktiver Stoffe aus dem Abbau von Kernkraftwerken, Informationspapier - Langfassung mit ausführlichen Erläuterungen. 1. September 2022.

- /ESK 25/ Entsorgungskommission (ESK): Stellungnahme der Entsorgungskommission - Zuverlässigkeitsverbessernde Maßnahmen bei der Nuklidvektorzuzuordnung im Freigabeverfahren. April 2025.
- /EU 11/ Rat der Europäische Union: Richtlinie 2011/70/Euratom des Rates vom 19. Juli 2011 über einen Gemeinschaftsrahmen für die verantwortungsvolle und sichere Entsorgung abgebrannter Brennelemente und radioaktiver Abfälle. Amtsblatt der Europäischen Union, 19. Juli 2011.
- /EU 14/ Richtlinie 2013/59/Euratom des Rates vom 5. Dezember 2013 zur Festlegung grundlegender Sicherheitsnormen für den Schutz vor den Gefahren einer Exposition gegenüber ionisierender Strahlung und zur Aufhebung der Richtlinien 89/618/Euratom, 90/641/Euratom, 96/29/Euratom, 97/43/Euratom und 2003/122/Euratom zuletzt geändert 17. Januar 2014.
- /EÜG 21/ Gesetz zur Regelung des Übergangs der Finanzierungs- und Handlungspflichten für die Entsorgung radioaktiver Abfälle der Betreiber von Kernkraftwerken (EntsorgÜG) in der Fassung vom 25. Juni 2021, zuletzt geändert 27. Januar 2017.
- /FRE 19/ Prof Dr. Walter Frenz (Hrsg.): Atomrecht, Atomgesetz und Ausstiegsgesetze. Nomos Verlagsgesellschaft, 2019.
- /FRO 20/ Frosio, T., Mena, N., Dumont, G., Aberle, F.: New methodology for in-situ classification of radiological items with a clearance monitor system. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, Bd. 966, S. 163847, DOI 10.1016/j.nima.2020.163847, 2020.
- /GAU 00/ Gauvin, R., Lifshin, E.: Simulation of X-Ray Emission from Rough Surfaces. Microchimica Acta, Bd. 132, Nr. 2-4, S. 201–204, DOI 10.1007/s006040050012, 2000.
- /GRS 24a/ Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH: Entwicklung eines AMS-Messsystems zur radiologischen Charakterisierung

von aktivierten Reaktorkomponenten in der Stilllegung hinsichtlich der Freigabefähigkeit. 2024.

- /GRS 24b/ GRS Projektträger: Fortschrittsbericht Forschungsvorhaben zum Förderkonzept "FORKA - Forschung für den Rückbau kerntechnischer Anlagen", Berichtszeitraum 1. Januar - 30. Juni 2024. 2024.
- /HAM 13/ Hamidatou, L., Slamene, H., Akhal, T., Zourane, B.: Concepts, Instrumentation and Techniques of Neutron Activation Analysis. In: Imaging and Radioanalytical Techniques. DOI 10.5772/53686.
- /HAM 24/ Uwe Hampel: Measurement techniques for the analysis of contaminated concrete structures in the containment of pressurized water reactors during power plant decommissioning. Präsentation, Kerntechnik 2024, 2024.
- /HID 15/ Hidex Oy: Hidex 300 SL, Automatic TDCR Liquid Scintillation Counter. 6 S., 2015.
- /HOF 13/ Hoffmann, E. de: Mass Spectrometry, Principles and Applications. 3. Aufl., 503 S., ISBN 9780470512135, DOI Edmond, John Wiley & Sons Incorporated: Newy York, 2013.
- /HOU 18/ Hou, X.: Liquid scintillation counting for determination of radionuclides in environmental and nuclear application. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, Nr. 318, S. 1597–1628, 2018.
- /IAEA 23/ International Atomic Energy Agency: Application of the Concept of Clearance. General Safety Guide, Nr. 18, 150 S., 2023.
- /ION 25/ Ionplus AG: AMS Overview, Comparison of Ionplus AMS Instruments. 1 S., erreichbar unter <https://www.ionplus.ch/ams-overview>, abgerufen am 1. Juli 2025.
- /JAN 23/ Jansen, S.: Überblick über Freigabe-Messverfahren. Präsentation, VDI-Fachkonferenz "Rückbau kerntechnischer Anlagen", 5. Juli 2023.
- /KNO 10/ Knoll, G. F.: Radiation detection and measurement. 4. Aufl., 830 S., ISBN 9780470131480, Wiley: Hoboken, NJ, 2010.

- /KRA 05/ Krammer, M.: Szintillatoren. Institut für Hochenergiephysik der ÖAW, erreichbar unter , Stand von 2005.
- /KTA 94/ Der Kerntechnische Ausschuss (KTA): Verfahrensordnung für die Erarbeitung sicherheitstechnischer Regeln des KTA. 12 S., Juni 1994.
- /KTA 15/ Der Kerntechnische Ausschuss (KTA): KTA 1201 Anforderungen an das Betriebshandbuch. November 2015.
- /KTA 20/ Der Kerntechnische Ausschuss (KTA): KTA 3604 Lagerung, Handhabung und innerbetrieblicher Transport radioaktiver Stoffe (mit Ausnahme von Brennelementen) in Kernkraftwerken. Dezember 2020.
- /KTA 22/ Der Kerntechnische Ausschuss (KTA): KTA 1301.2 Berücksichtigung des Strahlenschutzes der Arbeitskräfte bei Auslagung und Betrieb von Kernkraftwerken, Teil 2: Betrieb. November 2022.
- /KTA 23/ Der Kerntechnische Ausschuss (KTA): Sachstand zur Ablösung des KTA-Regelwerks durch BMUV-Regeln. August 2023.
- /KTA 25/ Der Kerntechnische Ausschuss (KTA): KTA-Regelprogramm / KTA Program of Standards. Stand vom 18. Januar 2025, erreichbar unter https://www.kta-gs.de/common/regel_prog1.htm, abgerufen am 4. Juni 2025.
- /KTA 24/ Der Kerntechnische Ausschuss (KTA): Kerntechnische Ausschuss (KTA). Erreichbar unter <https://www.kta-gs.de/>, abgerufen am 25. Juli 2024.
- /MIL 17/ Mildenerger, F.: Neutronenaktivierungsanalyse mit gepulsten 14 MeV Neutronen zur Charakterisierung heterogener radioaktiver Abfälle. Dissertation, 145 S., Fakultät für Georessourcen und Materialtechnik, Rheinisch-Westfälische Technische Hochschule Aachen, 2017.
- /MIR 25a/ Mirion Technologies, Inc.: Produkte von Mirion Technologies, Spektroskopie und wissenschaftliche Analysesysteme. Erreichbar unter <https://www.mirion.com/de/products/technologies/spectroscopy-scientific-analysis?category=Gammaskopie#product-category-heading>, abgerufen am 23. Juni 2025.

- /MIR 25b/ Mirion Technologies, Inc.: ASGS - Advanced Sectorial Gamma Scanner (Produktdatenblatt).
- /MIR 17/ Mirion Technologies, Inc.: ISOCS Calibration Software Data Sheet. 2017.
- /MIR 19a/ Mirion Technologies, Inc.: Slimline Cryostats Data Sheet. 2019.
- /MIR 19b/ Mirion Technologies, Inc.: ISOXSHLD Data Sheet. 2019.
- /MIR 19c/ Mirion Technologies, Inc.: Flanged Cryostats Datasheet. 2019.
- /MIR 21/ Mirion Technologies, Inc.: Standard Electrode Coaxial Ge Detectors. 2021.
- /MIR 22a/ Mirion Technologies, Inc.: 747/747E Lead Shield Data Sheet. 2022.
- /MIR 22b/ Mirion Technologies, Inc.: Alpha Analyst Integrated Alpha Spectrometer Data Sheet. 2022.
- /MIR 22c/ Mirion Technologies, Inc.: Considerations for Choosing an Alpha Spectroscopy PIPS Detector. Erreichbar unter <https://www.mirion.com/discover/knowledge-hub/product-literature/technical-papers/considerations-for-choosing-an-alpha-spectroscopy-pips-detector>, abgerufen am 1. Juli 2025.
- /MIR 23a/ Mirion Technologies, Inc.: Genie Spectroscopy Software Suite Datasheet. 2023.
- /MIR 23b/ Mirion Technologies, Inc.: RTM644-Smart. 2023.
- /NAT 04/ National Diagnostics Laboratory Staff: Principles and Applications of Liquid Scintillation Counting, A Primer for Orientation. Pennsylvania State University, 2004.
- /NUV 25/ NUVIA Tech Instruments: Homepage von NUVIA Tech Instruments. Erreichbar unter <https://www.nuviatech-instruments.com/de>, abgerufen am 23. Juni 2025.
- /NUV 20a/ NUVIA Tech Instruments: Messtechnik für Kerntechnische Anlagen. 2020.

- /NUV 20b/ NUVIA Tech Instruments: CoMo-170/-300 Datenblatt. 2020.
- /NUV 20c/ NUVIA Tech Instruments: NuWIMP 60-100 Wischtest-Messplatz mit automatischem Probenwechsler. 2020.
- /NUV 20d/ NUVIA Tech Instruments: DoIMo Dosis- und Dosisleistungsmonitor. 2020.
- /NUV 21/ NUVIA Tech Instruments: GAMS4 Fully automated low level waste assay system, Specification Sheet. 2021.
- /OPI 24/ Lucas Opitz: Anwendung eines innovativen Messsystems in der GeDuF. Präsentation, 13. Freigabesymposium, 11. September 2024.
- /ORT 17/ ORTEC: RCAP-2, Ion Recoil Contamination Avoidance Package (for Alpha Spectrometers). 2017.
- /ORT 23/ ORTEC: Lanthanum Bromide Scintillation Detectors. Erreichbar unter <https://www.ortec-online.com/-/media/ametektortec/brochures//lanthanum-a4.pdf?la=en&revision=d0668b33-d137-4b13-80bd-bfece765f036>, abgerufen am 15. Juli 2025.
- /ORT 25/ ORTEC / AMETEK: Alpha Suite Alpha Spectrometers. Erreichbar unter <https://www.ortec-online.com/products/radiation-detectors/alpha-spectroscopy-systems/spectrometers/alpha-suite>, abgerufen am 1. Juli 2025.
- /POT 01/ Potts, P. J., Ellis, A. T., Kregsamer, P., Marshall, J., Streli, C., MWest, M., Wobrauschek, P.: Atomic Spectrometry Update. X-ray fluorescence spectrometry. Journal of Analytical Atomic Spectrometry, Bd. 16, Nr. 10, S. 1217–1237, DOI 10.1039/b106821k, 2001.
- /SCH 23a/ Schubert, F., Kallmeyer, J.: Liquid scintillation counting at the limit of detection in biogeosciences. Frontiers in microbiology, Bd. 14, S. 1194848, DOI 10.3389/fmicb.2023.1194848, 2023.
- /SCH 23b/ Jessica Schneider: Anwendung eines innovativen Messsystems in der GeDuF. Präsentation, KONTEC 2023, 2023.

- /SCH 24/ Marcus Schwartz: Umgang mit eindringender Kontamination - Auswirkung auf die Gebäudefreimessung. Präsentation, 13. Freigabesymposium, 11. September 2024.
- /SSG 24/ Gesetz zum Schutz vor der schädlichen Wirkung ionisierender Strahlung (Strahlenschutzgesetz - StrlSchG) (StrlSchG) in der Fassung vom 23. Oktober 2024.
- /SSK 17/ Strahlenschutzkommission (SSK): Freigabe von Materialien, Gebäuden und Bodenflächen mit geringfügiger Radioaktivität aus anzeige- und genehmigungspflichtigen Umgang. 1998.
- /SSK 02/ Strahlenschutzkommission (SSK): Bekanntmachung einer Empfehlung der Strahlenschutzkommission (Anforderungen an die Kontaminationskontrolle beim Verlassen eines Kontrollbereichs [§ 44 der Strahlenschutzverordnung]). 2002.
- /SSK 03/ Strahlenschutzkommission (SSK): Heft 34: Anforderungen an die Kontaminationskontrolle beim Verlassen eines Kontrollbereiches (§ 44 StrlSchV). 2003.
- /SSV 24/ Verordnung zum Schutz vor der schädlichen Wirkung ionisierender Strahlung (Strahlenschutzverordnung (StrlSchV)) in der Fassung vom 23. Oktober 2024, zuletzt geändert 29. November 2018.
- /THI 09/ Thierfeld, S.: Stilllegung und Rückbau kerntechnischer Anlagen, Erfahrungen und Perspektiven Erfahrungen und Perspektiven. 193 S., 2009.
- /TÜV 17/ TÜV SÜD: Gutachten zur Stilllegung und zum Abbau von Anlagenteilen des Kernkraftwerks Philippsburg, Block 1 (KKP 1). 2017.
- /UMBW 07/ Umweltministerium Baden-Württemberg, Forschungszentrum Karlsruhe GmbH, Wiederaufbereitungsanlage Karlsruhe Rückbau- und EntsorgungsgmbH und TÜV SÜD Energietechnik GmbH: Messstrategien für die In-situ-Gammaspektrometrie bei Freimessungen von Gebäuden und Bodenflächen nach § 29 StrlSchV. 2007.

- /UMBW 20/Ministerium für Umwelt, Klima und Energiewirtschaft Baden-Württemberg:
Leitfaden zur Freigabe nach Teil 2 Kapitel 3 der Strahlenschutzverordnung.
64 S., 2020.
- /WAL 15/ Nick Walter: Development of an In-Situ Radiological Classification
Technique for Material from CERN's Accelerator Facilities. Dissertation,
Technische Universität München: München, 2015.
- /WAT 11/ Watson, T. J., Sparkman, D. O.: Introduction to mass spectrometry,
Instrumentation, applications and strategies for data interpretation. 4. Aufl.,
819 S., ISBN 9780470516898, John Wiley & Sons: Chichester, England,
Hoboken, NJ, 2011.
- /WEL 12/ Welz, B.: Atomabsorptionsspektrometrie. 1024 S., ISBN 9783527283057,
John Wiley & Sons: Hoboken, 2012.
- /WES 12/ West, M., Ellis, A. T., Potts, P. J., Streli, C., Vanhoof, C., Wegrzynek, D.,
Wobrauschek, P.: Atomic spectrometry update—X-ray fluorescence
spectrometry. Journal of Analytical Atomic Spectrometry, Bd. 27, Nr. 10, S.
1603, DOI 10.1039/C2JA90045A, 2012.
- /WIL 24/ Hans-Georg Willschütz, Bastian Degner: Freigabe des Sicherheitsbehälters
im Kernkraftwerk Stade - von der Testphase bis zur
Freigabedokumentation. Präsentation, 13. Freigabesymposium, 11.
September 2024.

Abbildungsverzeichnis

Abb. 1.1	Abschätzung der Entsorgungskommission (ESK) zu Massenflüssen aus dem Kontrollbereich eines repräsentativen Kernkraftwerks (Druckwasserreaktor) in Deutschland /ESK 22/	3
Abb. 2.1	Nationale Regelwerkspyramide	6
Abb. 3.1	Übersicht der Dokumente, die Bezug zu den messtechnischen Anforderungen nehmen und Darstellung der Querverweise zwischen den Dokumenten der kerntechnischen Regelwerkspyramide.....	52
Abb. 6.1	Schematische Darstellung eines Messaufbaus für die in-situ Gammaskpektrometrie	75
Abb. 6.2	Schematische Darstellung des Funktionsprinzips einer Freimessanlage (Querschnitt).....	83
Abb. 6.3	Schematische Darstellung der Funktionsweise eines Kontaminationsmessgerätes.....	87
Abb. 6.4	Illustration des Funktionsprinzip eines Geiger-Müller Zählrohrs	94
Abb. 6.5	Schematische Darstellung der Funktionsprinzips des Flüssigszintillationsmessverfahrens	98
Abb. 6.6	Schematische Darstellung eines MS/AMS-Aufbaus.....	106
Abb. A.1	Illustration der charakteristischen Grenzen und ihrer Zusammenhänge.....	159

Tabellenverzeichnis

Tab. 6.1	Charakteristische Eigenschaften der Gammaspektrometrie.....	77
Tab. 6.2	Charakteristische Eigenschaften der Gesamt-Gamma-Aktivitätsmessung.....	85
Tab. 6.3	Charakteristische Eigenschaften der direkten Oberflächenaktivitätsmessung	89
Tab. 6.4	Charakteristische Eigenschaften der indirekten Oberflächenaktivitätsmessung	92
Tab. 6.5	Wesentliche Charakteristika des Dosisleistungsmessverfahrens	95
Tab. 6.6	Charakteristische Eigenschaften der Flüssigszintillationsmessung	99
Tab. 6.7	Charakteristische Eigenschaften der Alpha-Spektrometrie	102
Tab. 6.8	Charakteristische Eigenschaften der Massenspektrometrie	109
Tab. 6.9	Charakteristische Eigenschaften der Röntgenfluoreszenzanalyse	111
Tab. 6.10	Charakteristische Eigenschaften der Neutronenaktivierungsanalyse	113
Tab. 6.11	Charakteristische Eigenschaften der Atomemissions- und Absorptionsspektrometrie	115

Abkürzungsverzeichnis

AAS	Atomabsorptionsspektrometrie
AES	Atomemissionsspektrometrie
AINT	Aachen Institute for Nuclear Training
AKE	Arbeitskreis Entsorgung
AMS	Beschleunigermassenspektrometrie (accelerator mass spectrometry)
AtG	Gesetz über die friedliche Verwendung der Kernenergie und den Schutz gegen ihre Gefahren (kurz: Atomgesetz)
BHB	Betriebshandbuch
BMU	Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und nukleare Sicherheit (bis Dezember 2013)
BMUKN	Bundesministerium für Umwelt, Klimaschutz, Naturschutz und nukleare Sicherheit (seit Mai 2025)
cps	Impulse pro Sekunde (counts per second)
EntsorgÜG	Gesetz zur Regelung des Übergangs der Finanzierungs- und Handlungspflichten für die Entsorgung radioaktiver Abfälle der Betreiber von Kernkraftwerken (kurz: Entsorgübergangsgesetz)
ESK	Entsorgungskommission
F&E	Forschung und Entwicklung
FMA	Freimessanlage
FORKA	Forschung für den Rückbau kerntechnischer Anlagen
FWHM	Full Width Half Maximum
GUM	Guide to the expression of uncertainty in measurement
HDR	Heißdampfreaktor Grosswelzheim
HPGe	Hochreines Germanium (High-Purity Germanium)
ICP-MS	Induktiv gekoppelte Plasma-Massenspektrometrie
KKN	Kernkraftwerk Niederaichbach
KKS	Kernkraftwerk Stade
KTA	Kerntechnischer Ausschuss

LSC	Flüssigszintillationsmessung (liquid scintillator counting)
MCA	Mehrkanalanalysator (multi-channel analyser)
MS	Massenspektrometrie
NAA	Neutronenaktivierungsanalyse
NMP	DIN-Normenausschuss Materialprüfung
ppb	parts per billion
ppm	parts per million
ppq	parts per quadrillion
ppt	parts per trillion
RFA	Röntgenfluoreszenzanalyse
RSK	Reaktor-Sicherheitskommission
SiAnf	Sicherheitsanforderungen an Kernkraftwerke
SSK	Strahlenschutzkommission
StrlSchG	Gesetz zum Schutz vor der schädlichen Wirkung ionisierender Strahlung (kurz: Strahlenschutzgesetz)
StrlSchV	Verordnung zum Schutz vor der schädlichen Wirkung ionisierender Strahlung (kurz: Strahlenschutzverordnung)
UMBW	Umweltministerium Baden-Württemberg
VAK	Versuchsatomkraftwerk Kahl
VB	Vertrauensbereich
W&T	Wissenschaft und Technik

Glossar

Alarmwert

„Messtechnische Vorgabe zum Nachweis der Unterschreitung der Freigabewerte unter Berücksichtigung der bei der Freigabe anzuwendenden Summenformel, bezogen auf das jeweilige Messverfahren oder Messgerät unter Berücksichtigung der Unsicherheit“

Quelle: DIN 25457-1:2024-05

Bruttoeffekt

„Messeffekt, der durch den Nulleffekt und den Nettoeffekt bewirkt wird“

Quelle: DIN EN ISO 11929-1 (VDE 0493-9291):2021-11

Charakteristische Grenzen

Zusammenfassender Überbegriff für Erkennungsgrenze, Nachweisgrenze und obere Grenze des Überdeckungsintervalls

Dynamische Messung

„Messung, bei der der Detektor über die zu messende Fläche bewegt oder bei der das Messgut am Detektor vorbeigeführt wird“

Quelle: DIN 25457-1:2024-05

Entscheidungsmessung

„Messung, deren Ergebnisse durch Vergleich mit den Freigabewerten eine Entscheidung über die Freigabe des Messgutes ermöglichen“

Quelle: DIN 25457-1:2024-05

Erkennungsgrenze

„Schätzwert der Messgröße, bei dessen Überschreitung durch ein aktuelles Ergebnis einer Messung mit einem Messverfahren, das einen physikalischen Effekt quantifiziert, entschieden wird, zu folgern, dass der physikalische Effekt vorliegt“

Quelle: DIN EN ISO 11929-1 (VDE 0493-9291):2021-11

Ex situ

Lateinischer Fachbegriff, Antonym zu „in situ“. Bedeutung: Außerhalb der ursprünglichen Position bzw. Lage.

Freigabewert

„Gesetzliche oder behördliche Vorgabe für die massen- oder flächenbezogene Aktivität eines Radionuklids, die einzuhalten ist, damit das Messobjekt freigegeben werden kann und für die bei Vorliegen eines Radionuklidgemisches die bei der Freigabe anzuwendenden Summenformel gemäß StrlSchV einzuhalten ist“

Quelle: DIN 25457-1:2024-05

Freimessungen

„Messungen, die zur Feststellung der Übereinstimmung mit dem Inhalt des Freigabebescheides erforderlich sind.“

Quelle: § 42 Abs. 2 StrlSchV

Geometriefaktor

„Verhältnis von Flussdichte von ungestreuter Photonen, gemessen am Ort des Detektors, zur Photonenemissionsrate der betrachteten Flächen oder Masseneinheit“

Quelle: DIN 25457-1:2024-05

Grenzen des Überdeckungsintervalls

„Werte, die ein Überdeckungsintervall definieren“

Quelle: DIN EN ISO 11929-1 (VDE 0493-9291):2021-11

In situ

Lateinischer Fachbegriff, Bedeutung: in der ursprünglichen Position bzw. Lage

Kalibrierung

„Ermitteln des Zusammenhangs zwischen Messwert [...] oder Erwartungswert [...] der Ausgangsgröße [...] und dem zugehörigen wahren [...] oder richtigen Wert [...] der als Eingangsgröße [...] vorliegenden Messgröße [...] für eine betrachtete Messeinrichtung [...] bei vorgegebenen Bedingungen“

Quelle: DIN 1319-1:1995-1

Messeinrichtung

„Gesamtheit aller Messgeräte [...] und zusätzlicher Einrichtungen zur Erzielung eines Messergebnisses [...]“

Quelle: DIN 1319-1:1995-1

Messergebnis

„Satz von Größenwerten, der einer Messgröße zuzuordnen ist, zusammen mit jeder ansonsten verfügbaren relevanten Information“

Quelle: JCGM 200:2012

Messfläche

„Fläche, aus der das Messgerät seinen Messeffekt bezieht, bzw. bei Proben die Fläche, die das eingesammelte Material eingenommen hat“

Quelle: DIN 25457-1:2024-05

Messmethode

„Generische Beschreibung der logischen Organisation der Arbeitsvorgänge, die bei einer Messung ausgeführt werden“

Quelle: JCGM 200:2012

Messprinzip

„Physikalische Grundlage der Messung [...]“ Beispiel: Die Lorentzkraft als Grundlage einer Messung der elektrischen Stromstärke.

Quelle: DIN 1319-1:1995-1

Messung

„Prozess, experimentell einen oder mehrere Wert(e) einer Größe zu bestimmen, die vernünftigerweise der Größe zugeordnet werden können“

Quelle: JCGM 200:2012

Messunsicherheit

„Nicht-negativer Parameter, der die Streuung der Werte charakterisiert, die vernünftigerweise der Messgröße auf der Grundlage der benutzten Informationen zugeordnet werden können“

Quelle: JCGM 200:2012

Messverfahren

„Genaue Beschreibung einer Messung nach einem oder mehreren Messprinzipien und einer gegebenen Messmethode, basierend auf einem Modell der Messung, einschließlich aller Berechnungen zur Erlangung eines Messergebnisses“

Quelle: JCGM 200:2012

Mittelungsfläche

„Maximale Fläche, über die die gemessene Aktivität für den Vergleich mit den Freigabewerten gemittelt werden darf“

Quelle: DIN 25457-1:2024-05

Mittelungsgröße

„Gesetzliche oder behördliche Vorgabe für die anzuwendende Mittelungsmasse oder -fläche beim Nachweis der Einhaltung der Freigabewerte“

Quelle: DIN 25457-1:2024-05

Mittelungsmasse

„Maximale Masse, über die die gemessene Aktivität für den Vergleich mit den Freigabewerten gemittelt werden darf“

Quelle: DIN 25457-1:2024-05

Nachweisgrenze

„Kleinsten wahrer Wert der Messgröße, der mit einer vorgegebenen Wahrscheinlichkeit durch das Messverfahren erkannt wird“

Quelle: DIN EN ISO 11929-1 (VDE 0493-9291):2021-11

Nettoeffekt

„Beitrag der möglichen Strahlung eines Messobjekts (z. B. einer Strahlungsquelle oder eines Strahlungsfeldes) zum Messeffekt“

Quelle: DIN EN ISO 11929-1 (VDE 0493-9291):2021-11

Nuklidvektor

„Auf 100 % normierte Aktivitätsanteile von Radionukliden in oder auf einem Material, welche für die Entscheidungsmessung relevant sind“

Quelle: DIN 25457-1:2024-05

Nulleffekt

„Messeffekt, der durch andere Strahlungsquellen als die des Messobjekts selbst bewirkt wird“

Quelle: DIN EN ISO 11929-1 (VDE 0493-9291):2021-11

Radionuklidgemisch

„in einem freizugebenden Objekt oder in einem Teilbereich davon vorkommende Radio-

nuklide (Alpha-, Beta-, Gamma- und Elektroneneinfang-Strahler und Isomere“

Quelle: DIN 25457-1:2024-05

Repräsentative Probe

„Probe, deren Eigenschaften weitestgehend den interessierenden Durchschnittseigenschaften der Gesamtmenge des Prüfgutes entsprechen“

Quelle: DIN 25457-1:2024-05

Richtwert

„Vorgabe zum Nachweis der Unterschreitung der Freigabewerte unter Berücksichtigung der bei der Freigabe anzuwendenden Summenformel und ggf. administrativer Vorgaben (z. B. Schwellenwerte).“

Quelle: DIN 25457-1:2024-5

Sättigungsschichtdicke

„Schichtdicke eines radioaktiven Stoffs, die der maximalen Reichweite seiner α - bzw. β -Strahlung entspricht“

Quelle: DIN 25457-1:2024-05

Schlüsselnuklid

„messtechnisch einfach erfassbares Radionuklid, über dessen Messung das Aktivitätsinventar schwierig zu messender Radionuklide rechnerisch bestimmt werden kann“

Quelle: DIN 25457-1:2024-05

Stationäre Messung

„Messung bei ortsfester Anordnung des Detektors zur zu messenden Fläche“

Quelle: DIN 25457-1:2024-05

Voruntersuchung

„Untersuchung zur Feststellung der Radionuklide, ihrer relativen Aktivitätsanteile sowie ihrer räumlichen Verteilung“

Quelle: DIN 25457-1:2024-05

A Anhang: Definitionen für die charakteristischen Grenzen (Erkennungsgrenze, Nachweisgrenze und Grenzen des Vertrauensbereichs) gemäß DIN EN ISO 11929-1:2021 und eine beispielhafte Veranschaulichung für eine impulszählende Messung

Einer Entscheidungsmessung liegen Wahrscheinlichkeitsannahmen zugrunde. Für die Beschreibung charakteristischer Grenzen werden die wie folgt definierten Wahrscheinlichkeiten verwendet:

- α repräsentiert die Wahrscheinlichkeit für eine falsche Entscheidung zugunsten des Vorliegens eines bestimmten physikalischen Effekts.
- β repräsentiert die Wahrscheinlichkeit für eine falsche Entscheidung zugunsten des Nicht-Vorliegens eines bestimmten physikalischen Effekts
- $1-\gamma$ repräsentiert die Wahrscheinlichkeit zu einem definierten Überdeckungsintervall

Die Wahrscheinlichkeiten α , β und $1-\gamma$ sind anwendungsorientiert festzulegen. In der Praxis wird häufig ein (gemeinsamer) Wert von 0,05 angenommen.

Erkennungsgrenze für die Messgröße

Die Erkennungsgrenze y^* für eine bestimmte Messgröße (dies kann beispielsweise eine spezifische Aktivität, ausgedrückt in Bq/g, sein) ist durch die Bedingung definiert, dass die Wahrscheinlichkeit, ein primäres Messergebnis y zu erhalten, das größer als die Erkennungsgrenze y^* ist, wenn der wahre Wert $\tilde{y}$ gleich null ist (Nulleffekt), gleich α ist. Formal ausgedrückt (vgl. Kapitel 5.6, Formel 6 DIN 11929-1:2021):

$$P(y > y^* | \tilde{y} = 0) = \alpha$$

Wenn ISO/IEC Guide 98-3 für die Ermittlung der Unsicherheiten genutzt wird, kann y^* oftmals wie folgt bestimmt werden:

$$y^* = k_{1-\alpha} \tilde{u}(0)$$

Hierbei ist $k_{1-\alpha}$ das Quantil der standardisierten Normalverteilung zur Wahrscheinlichkeit $1 - \alpha$, die in tabellierter Form vorliegen. Die Funktion $\tilde{u}(\tilde{y})$ beschreibt die Standardunsicherheit als Funktion eines angenommen wahren Wertes $\tilde{y}$.

Die Erkennungsgrenze y^* stellt somit einen Schwellwert dar: Liegt das Messergebnis y oberhalb dieses Schwellwerts, so kann mit einer Wahrscheinlichkeit $1 - \alpha$ gefolgert werden, dass der physikalische Effekt (z. B. eine Kontamination) vorliegt. Sofern $y < y^*$, kann das Ergebnis nicht dem Effekt zugeordnet werden (dies bedeutet aber nicht notwendigerweise, dass der Effekt nicht vorliegt).

Nachweisgrenze für die Messgröße

Die Nachweisgrenze $y^\#$ ist als kleinster wahrer Wert der Messgröße definiert, die folgende Bedingung erfüllt (vgl. Kapitel 5.7, Formel 8 DIN 11929-1:2021):

$$P(y < y^* | \tilde{y} = y^\#) = \beta$$

Wenn ISO/IEC Guide 98-3 für die Ermittlung der Unsicherheiten genutzt wird, kann y^* oftmals wie folgt bestimmt werden:

$$y^\# = y^* + k_{1-\beta} \cdot \tilde{u}(y^\#)$$

Die Nachweisgrenze $y^\#$ ist somit definitionsgemäß immer größer als die Erkennungsgrenze y^* , zudem besteht eine Korrelation mit der Erkennungsgrenze y^* . Sie stellt den kleinsten wahren Wert der Messgröße dar, für den bei der Anwendung der Entscheidungsregel auf Basis der Erkennungsgrenze die Wahrscheinlichkeit dafür, fälschlicherweise anzunehmen, dass der physikalische Effekt vorliegt, höchstens gleich der vorgegebenen Wahrscheinlichkeit β ist.

Die Nachweisgrenze ist von fundamentaler Bedeutung für die Eignungsbetrachtung eines Messverfahrens. Für eine Eignung ist es zwingend notwendig, dass die Nachweisgrenze $y^\#$ kleiner als ein festgelegter Richtwert y_r der Messgröße (z. B. ein isotonenspezifischer Freigabewert) ist. Für den Fall $y^\# > y_r$ ist das Messverfahren bezüglich der Anforderungen für den vorgesehenen Messzweck zunächst nicht geeignet. Hier ist allerdings zu beachten, dass es oftmals genügt, die Messung über einen längeren Zeitraum durchzuführen, da hierdurch die entsprechende Standardunsicherheit $\tilde{u}(\tilde{y})$ und somit auch die Nachweisgrenze reduziert wird.

Grenzen des Überdeckungsintervalls

Das Überdeckungsintervall ist definiert als dasjenige Intervall, das auf Grundlage der verfügbaren Informationen den Bereich möglicher wahrer Werte einer Messgröße mit einer vorgegebenen Wahrscheinlichkeit enthält. Die Wahrscheinlichkeit zum Überdeckungsintervall der Messgröße ist gegeben durch $1 - \gamma$, häufig wird hierfür ein Wert von 0,95 herangezogen. Dementsprechend sind die Grenzen des Überdeckungsintervalls diejenigen Werte, die ein bestimmtes Überdeckungsintervall definieren.

Ohne weitere Festlegungen ist diese Definition der Grenzen des Überdeckungsintervalls mehrdeutig. Diese Mehrdeutigkeit resultiert insb. aus fehlenden Festlegungen zur Symmetrie der Verteilung oder der Art der Verteilung. Grundsätzlich sind für ein nicht näher spezifiziertes Überdeckungsintervall die untere bzw. obere Grenze y_{low}, y_{up} definiert durch (vgl. Kapitel 5.8, Formel 10 DIN 11929-1:2021):

$$P(\tilde{y} \in [y_{low}, y_{up}] | y, u(y), Y \geq 0) = 1 - \gamma$$

Darüber hinaus sind in der Praxis insb. die Grenzen des probabilistisch symmetrischen Überdeckungsintervalls ($y^<, y^>$) und die Grenzen des kürzesten Überdeckungsintervalls ($y^<, y^>$) etabliert. Welche dieser Grenzen im Kontext der Freigabe für die Berechnung herangezogen werden müssen, liegt bei der Behörde.

- Für eine Überdeckungswahrscheinlichkeit $1 - \gamma$ sind die Grenzen des probabilistisch symmetrischen Überdeckungsintervalls ($y^<, y^>$) definiert durch (vgl. Kapitel 5.8, Formel 11 DIN 11929-1:2021):

$$P(\tilde{y} < y^< | y, u(y), Y \geq 0) = P(\tilde{y} > y^> | y, u(y), Y \geq 0) = \gamma/2$$

Wenn ISO/IEC Guide 98-3 für die Ermittlung der Unsicherheiten genutzt wird, können die beiden Grenzen eindeutig wie folgt berechnet werden (vgl. Kapitel 5.8, Formel 12 DIN 11929-1:2021):

$$y^< = y - k_p u(y), \text{ mit } p = \omega \cdot (1 - \gamma/2)$$

$$y^> = y + k_q u(y), \text{ mit } q = (1 - \omega \gamma/2)$$

Die Werte k_p , k_q sind die Quantile der standardisierten Normalverteilung zu den Wahrscheinlichkeiten p und q , die Hilfsvariable ω ist definiert durch:

$$\omega = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{y/u(y)} dv e^{-v^2/2}$$

- Für eine Überdeckungswahrscheinlichkeit $1 - \gamma$ sind die Grenzen des kürzesten Überdeckungsintervalls ($y^<$, $y^>$) eindeutig definiert durch (vgl. Kapitel 5.8, Formel 13 DIN 11929-1:2021):

$$P(\tilde{y} \in [y^<, y^>] \mid y, u(y), Y \geq 0, \min(y^>, y^<)) = 1 - \gamma$$

Wenn ISO/IEC Guide 98-3 für die Ermittlung der Unsicherheiten genutzt wird, können die beiden Grenzen des kürzesten Überdeckungsintervalls wie folgt berechnet werden (vgl. Kapitel 5.8, Formel 14 DIN 11929-1:2021):

$$y^< = y - k_p u(y)$$

$$y^> = y + k_p u(y)$$

Hierbei ist die Variable p definiert durch:

$$p = \omega \cdot \left(1 + \omega^{1-\gamma/2}\right)$$

Für den Fall, dass für die untere Grenze $y^<$ ein Wert kleiner als Null berechnet wird, werden folgende beiden Grenzen des kürzesten Überdeckungsintervalls genutzt:

$$y^< = 0$$

$$y^< = y + k_q u(y), \text{ mit } q = 1 - \omega\gamma$$

In der Literatur wird die obere Grenze oftmals auch als obere Grenze des Vertrauensbereiches (VB) bezeichnet. Insbesondere für zählende Verfahren wird in der Praxis am Messgerät für den Nachweis der Unterschreitung des Freigabewertes ein Alarmwert eingestellt (siehe nachfolgende Erläuterung). Unter der vereinfachenden Annahme eines verschwindenden Nulleffekts ist dieser Alarmwert notwendigerweise größer als die Erkennungsgrenze und kleiner als der aus dem Freigabewert bestimmte Messwert.

In Abb. A.1 sind die charakteristischen Grenzen illustriert.

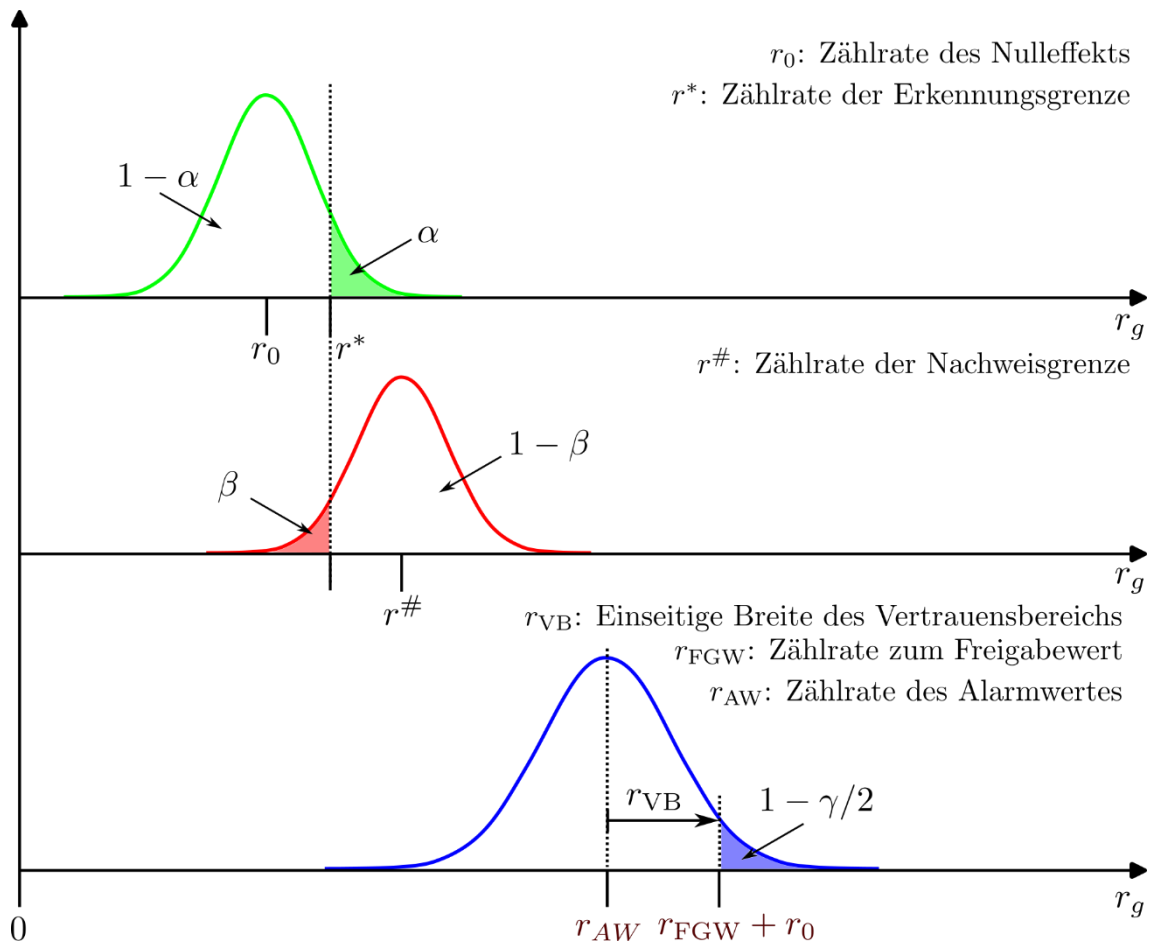


Abb. A.1 Illustration der charakteristischen Grenzen und ihrer Zusammenhänge

Erläuterung der charakteristischen Grenzen anhand einer Impulszählung mit Zeitvorwahl

Beispielhaft wird eine impulszählende Messung betrachtet. Die Nulleffektmessung über eine Messzeit t_0 (Einheit: s) führt zu einer Nulleffektzählrate r_0 (Einheit: 1/s). Die eigentliche Messung (Bruttoeffektmessung) über eine Messzeit t_g führt zu einer Bruttoeffektzählrate r_g . Die Fehlerwahrscheinlichkeiten α, β, γ werden zu 0,05 festgelegt, so dass sich für die Quantile der standardisierten Normalverteilung $k_{1-\alpha}$, $k_{1-\beta}$ und $k_{1-\gamma}$ ein Wert von 1,6449 ergibt.

Für die Zählrate der Nachweisgrenze ($r^{\#}$) und die Zählrate der Erkennungsgrenze (r^*) gelten für hinreichend große $r_0 t_0 \geq 10$ gemäß DIN 25457-1:2014-12 Anhang D (Formel D.4 und Formel D.5) /DIN 14/:

$$r^{\#} = (k_{1-\alpha} + k_{1-\beta}) \sqrt{\frac{r_0}{t_0} + \frac{r_0}{t_g}}$$

$$r^* = k_{1-\alpha} \sqrt{\frac{r_0}{t_0} + \frac{r_0}{t_g}}$$

Der zu berücksichtigende Freigabewert a_{FGW} (Einheit: Bq/cm²) kann unter Berücksichtigung der relevanten Kalibrierfaktoren gemäß DIN 25457-1:2014-12 Anhang D, Formel D.6 in eine Zählrate umgerechnet werden:

$$r_{FGW} = a_{FGW} \cdot \varepsilon_{D,NV} \cdot \varepsilon_M \cdot f_G$$

Hierbei ist $\varepsilon_{D,NV}$ das Oberflächenansprechvermögen (Einheit: cm²/(s*Bq)), ε_M der Emissionswirkungsgrad des Messgutes und f_G der die Geometrie des Messguts beschreibende Geometriefaktor.

Gemäß DIN 25457-1:2014-12 Anhang D, Formel D.3, lässt sich die einseitige Zählrate des Vertrauensbereich r_{VB} wie folgt bestimmen:

$$r_{VB} = k_{1-\gamma/2} \sqrt{\frac{r_0}{t_0} + \frac{r_g}{t_g}}$$

Hiermit lässt sich der Alarmwert wie folgt bestimmen:

$$r_{AW} = r_0 + r_{FGW} - r_{VB}$$

Die einseitige Zählrate des Vertrauensbereichs r_{VB} und der Alarmwert lassen sich wie in DIN 25457-1:2014-12, Kapitel 4.2.7.2.1 (Formel 28 und Formel 29) auch konservativ und unabhängig von r_g wie folgt berechnen:

$$r_{AW,konservativ} = r_0 + r_{FGW} + \frac{k_{1-\gamma/2}^2}{2t_g} - \frac{1}{2} \sqrt{\frac{4 \cdot r_{FGW} \cdot k_{1-\gamma/2}^2}{t_g} + \frac{k_{1-\gamma/2}^4}{t_g^2} + 4 \cdot k_{1-\gamma/2}^2 \cdot r_0 \left(\frac{1}{t_0} + \frac{1}{t_g} \right)}$$

$$r_{VB,konservativ} = k_{1-\gamma/2} \sqrt{\frac{r_0}{t_0} + \frac{r_{AW,konservativ}}{t_g}}$$

Zahlenbeispiel für eine Impulsmessung

Eine Nulleffektmessung über 60 s führt zu einer Nettozählrate r_0 von 5 cps. Die Bruttoeffektmessung wird auch über 60 s durchgeführt und führt zu einer Bruttoeffektzählrate von 15 cps. Die entsprechenden Kalibrierfaktoren sind wie folgt bestimmt worden: $\varepsilon_M = 0,8$, $\varepsilon_{D,NV} = 15 \text{ cm}^2/(\text{s Bq})$, $f_G = 1$. Vereinfachend wird angenommen, dass die Kalibrierfaktoren keiner Unsicherheit unterliegen. Der einzuhaltende Freigabewert (Richtwert) beträgt 1 Bq/cm^2 .

Daraus ergeben sich unter Verwendung der o. g. Formeln für die Zählrate zum Freigabewert r_{FGW} , die Zählrate zur Erkennungsgrenze r^* und die Zählrate zur Nachweisgrenze $r^\#$:

$$r_{FGW} = 12 \text{ cps} \quad \text{und} \quad r_{FGW} + r_0 = 17 \text{ cps}$$

$$r^* = 0,67 \text{ cps} \quad \text{und} \quad r^* + r_0 = 5,67 \text{ cps}$$

$$r^\# = 1,34 \text{ cps} \quad \text{und} \quad r^\# + r_0 = 6,34 \text{ cps}$$

Da die Bedingung $r^\# < r_{FGW}$ erfüllt ist, ist die entsprechende Messung grundsätzlich für die Entscheidungsmessung geeignet.

Für die Zählrate des Vertrauensbereiches r_{VB} und den Alarmwert r_{AW} folgen:

$$r_{VB} = 0,67 \text{ cps}$$

$$r_{AW} = 16,33 \text{ cps}$$

Für die konservative Herangehensweise ergeben sich für die Zählrate des Vertrauensbereiches $r_{VB,konservativ}$ und die Zählrate für den Alarmwert $r_{AW,konservativ}$:

$$r_{VB,konservativ} = 0,97 \text{ cps}$$

$$r_{AW,konservativ} = 16,03 \text{ cps}$$

Die Bruttozählrate r_g beträgt 15 cps und ist somit geringer als der Alarmwert r_{AW} als auch geringer als der konservativ bestimmte Alarmwert $r_{AW,konservativ}$. Die Entscheidungsmessung ist somit erfolgreich.

**Gesellschaft für Anlagen-
und Reaktorsicherheit
(GRS) gGmbH**

Schwertnergasse 1
50667 Köln

Telefon +49 221 2068-0

Telefax +49 221 2068-888

Boltzmannstraße 14

85748 Garching b. München

Telefon +49 89 32004-0

Telefax +49 89 32004-300

Kurfürstendamm 200

10719 Berlin

Telefon +49 30 88589-0

Telefax +49 30 88589-111

Theodor-Heuss-Straße 4

38122 Braunschweig

Telefon +49 531 8012-0

Telefax +49 531 8012-200

www.grs.de

ISBN 978-3-911727-22-8