



## **STELLUNGNAHME der Entsorgungskommission**

### **Zuverlässigkeitsverbessernde Maßnahmen bei der Nuklidvektorzuordnung im Freigabeverfahren**

#### **INHALTSVERZEICHNIS**

<b>1</b>	<b>Beratungsauftrag an die Entsorgungskommission</b>	<b>2</b>
<b>2</b>	<b>Begriffsdefinitionen</b>	<b>3</b>
<b>3</b>	<b>Fehlzuordnung von Nuklidvektoren, deren Ursachen und Auswirkungen</b>	<b>4</b>
<b>4</b>	<b>Maßnahmen für eine zuverlässige Nuklidvektorzuordnung</b>	<b>8</b>
<b>5</b>	<b>Maßnahmen zur Überprüfung der Nuklidvektorzuordnung</b>	<b>13</b>
<b>6</b>	<b>Weitere Freimessmethoden</b>	<b>15</b>
<b>7</b>	<b>Fazit</b>	<b>18</b>
<b>8</b>	<b>Empfehlung</b>	<b>19</b>
<b>9</b>	<b>Unterlagen</b>	<b>20</b>
	<b>Anhang: Vorgaben des gesetzlichen und untergesetzlichen Regelwerks</b>	<b>21</b>

## 1 Beratungsauftrag an die Entsorgungskommission

Bei Abbau und Entsorgung von Reststoffen in stillgelegten kerntechnischen Anlagen fallen große Mengen an Stoffen und Gegenständen an, die aufgrund gesetzlicher Vorgaben (§ 2 (5) Entsorgungsübergangsgesetz) einer Freigabe zuzuführen sind. Hintergrundinformationen zum Themenbereich der Freigabe radioaktiver Stoffe finden sich z. B. in dem Informationspapier der ESK vom 01.09.2022<sup>1</sup>. In der Regel enthalten freizugebende Reststoffe ein Gemisch mehrerer Radionuklide, die sich in ihrer für die Freigabe zulässigen massen- oder oberflächenbezogenen Aktivität (Freigabewert) unterscheiden. Für die messtechnische Beurteilung der Zulässigkeit einer Freigabe werden sogenannte Nuklidvektoren definiert, die die prozentuale Zusammensetzung der Gesamtaktivität durch die einzelnen Radionuklide darstellen.

Zunächst erfolgt durch Voruntersuchungen i. d. R. in Form von Probenahmen eine radiologische Charakterisierung. Bei dieser werden ausgehend von der Betriebshistorie an repräsentativen Stellen für die Anlage bzw. den Anlagenabschnitt oder das System Proben genommen, anhand derer das Radionuklidgemisch sowie die räumliche Verteilung der Aktivität ermittelt werden. Hierbei werden bei Bedarf durch eine sogenannte Sondernuklidanalyse alle relevanten Radionuklide (Alpha-, Beta- und Gammastrahler) bestimmt, welche rechnerisch berücksichtigt werden, sofern diese mit dem Messverfahren im Freigabeprozess nicht direkt messbar sind. Wichtig ist, dass die so abgeleiteten Nuklidvektoren für die Freigabe jeweils mindestens ein nachweisbares Radionuklid (Leitnuklid) enthalten, welches durch das eingesetzte Messverfahren direkt messbar ist. Im Freigabeprozess nicht direkt nachweisbare Radionuklide können über die Messung dieser Leitnuklide und über zuvor festgelegte Korrelationsparameter berücksichtigt werden. Der Nuklidvektor muss bezogen auf die Stoffe und Gegenstände, auf die er angewendet werden soll, abdeckend sein oder die mit dem Nuklidvektor verbundenen Unsicherheiten sind zu berücksichtigen (DIN 25457-1:2024-05, Abschnitte 6.2 und 7.2).

Voraussetzung für eine Freigabe ist gemäß Strahlenschutzverordnung (StrlSchV), Anlage 8, Teil A, Nr. 1 e, dass die Summe der Verhältniszahlen  $C_i/R_i$  („Summenformel“) aus der freizugebenden spezifischen Aktivität ( $C_i$ ) und den jeweiligen Freigabewerten ( $R_i$ ) der einzelnen Radionuklide ( $i$ ) den Wert 1 nicht überschreitet. Radionuklide brauchen gemäß der StrlSchV bei der Summenbildung nicht berücksichtigt zu werden, „wenn der Anteil der unberücksichtigten Nuklide an der Summe aller Verhältniszahlen  $C_i/R_i$  [...] 10 Prozent nicht überschreitet“ („10 %-Regel“).

Durch die Messungen der spezifischen Aktivität der Leitnuklide im Freigabeprozess werden also auch die spezifischen Aktivitäten der relevanten nicht messbaren Radionuklide<sup>2</sup> berücksichtigt. Voraussetzung ist dabei, dass bei einem (möglichen) Vorkommen von mehreren Nuklidvektoren eine korrekte Zuordnung von freizumessendem Stoff oder Gegenstand zum jeweiligen Nuklidvektor erfolgt. Die Anwendung eines falschen Nuklidvektors kann zu Über- oder Unterschätzungen von spezifischen Aktivitäten führen. Im Falle einer Unterschätzung einer spezifischen Aktivität kann dies im Einzelfall zu einer fehlerhaften Freigabeentscheidung führen. Eine Unterschätzung der spezifischen Aktivität ist dabei nicht zwangsläufig mit einer

---

<sup>1</sup> ESK- Informationspapier „Freigabe radioaktiver Stoffe und Herausgabe nicht radioaktiver Stoffe aus dem Abbau von Kernkraftwerken“ vom 01.09.2022 (<https://www.entsorgungskommission.de/de/beratungsergebnisse>)

<sup>2</sup> Als nicht messbar werden hier vereinfachend diejenigen Radionuklide bezeichnet, die im Rahmen der Entscheidungsmessung nicht detektiert werden können.

Unterschätzung der Exposition verbunden, muss also nicht in jedem Fall eine Verletzung des Dosiskriteriums für die Freigabe darstellen.

Aufgrund von vorgekommenen Vertauschungen von Nuklidvektoren in deutschen Anlagen hat das BMUV die ESK unter Beteiligung der SSK um Stellungnahme zu folgenden Fragen gebeten:

*Frage 1: „Welche wahrscheinlichsten und welche ungünstigsten Fehlzuordnungen von Nuklidvektoren lassen sich erfahrungsgemäß benennen, welche Ursachen kommen in Frage und welche Abweichungen bei der Aktivitätsbestimmung in Freimessanlagen können beispielhaft erwartet werden?“*

*Frage 2: „Welche möglichen oder bereits eingesetzten Maßnahmen für eine zuverlässige Zuordnung von Nuklidvektoren zu freizumessenden Stoffen und Gegenständen sind der ESK bekannt, z. B. eine Kombination von Gesamt-gamma-Freimessanlagen mit einer In-situ-Gammaspektrometrie?“*

*Frage 3: „Wie können die Maßnahmen zur zuverlässigen Zuordnung von Nuklidvektoren als auch Maßnahmen zur Überprüfung der Zuordnung hinsichtlich ihrer Wirksamkeit und Eignung für die Praxis, insbesondere unter Berücksichtigung hoher Massendurchsätze, bewertet werden, und welche Maßnahmen bewertet die ESK als geeignet?“*

*Frage 4: „Welche weiteren Freimessmethoden bzw. Verfahren gegenüber der Freimessanlage sind bekannt und wie bewertet die ESK diese hinsichtlich Zuverlässigkeit der Einhaltung von Freigabewerten gerade auch in Bezug auf die Nuklidvektorzusammenfassung? Darüber hinaus, welche zu diesen Methoden und Verfahren ergänzenden Maßnahmen zur Erhöhung der Zuverlässigkeit können ggf. empfohlen werden?“*

Um dem Beratungsauftrag des BMUV nachzukommen, hat der ESK-Ausschuss STILLEGUNG (ST) in seiner 93. Sitzung am 25.01.2024 die Ad-hoc-Arbeitsgruppe NUKLIDVEKTOREN (AG NV) eingerichtet, der neben Mitgliedern der ESK und des ESK-Ausschusses ST auch Mitglieder des SSK-Ausschusses „Angewandter Strahlenschutz und Strahlenschutz bei Anlagen“ (A7) angehörten. Die Ad-hoc-Arbeitsgruppe hat in acht Sitzungen von Juli 2024 bis Februar 2025 den Entwurf einer Stellungnahme erarbeitet und diesen dem Ausschuss ST in seiner 99. Sitzung am 05.02.2025 und in der 100. Sitzung am 19.03.2025 vorgestellt. Außerdem wurde der Beratungsstand in der 103. Sitzung des A7 am 21.11.2024 vorgestellt und diskutiert. Die ESK hat in ihrer 122. Sitzung am 03./04.04.2025 über das Beratungsergebnis beraten und die vorliegende Stellungnahme verabschiedet.

## **2 Begriffsdefinitionen**

### Nuklidverteilung:

Eine Nuklidverteilung stellt tatsächliche Aktivitätsverhältnisse für verschiedene Radionuklide einer analysierten Probe bzw. eines Stoffes dar.

### Nuklidvektor:

Der Nuklidvektor gibt die Anteile der Aktivität der Einzelnuclide an der Gesamtaktivität wieder.

Ein Nuklidvektor ist ein abstrakt gewähltes Konstrukt aus verschiedenen Radionukliden, welches dazu dient, sicherzustellen, dass zu seinem Geltungsbereich gehörende Nuklidverteilungen bei Verwendung z. B. eines Gesamt-gamma-Messverfahrens bezüglich der jeweiligen Freigabewerte gemäß Anl. 4 Tab. 1 StrlSchV und unter Berücksichtigung der Summenformel konservativ abgedeckt sind.

Dabei kann das Konstrukt einer real gegebenen Nuklidverteilung entsprechen, muss es aber nicht. Im Allgemeinen orientiert sich die Auswahl der Radionuklide im Rahmen der Herleitung/Definition eines Nuklidvektors an Radionukliden, die auf der entsprechenden kerntechnischen Anlage zu erwarten sind und für die Freigabe relevant sind. Nuklidvektoren unterliegen einer Zerfallskorrektur.

### **3 Fehluordnung von Nuklidvektoren, deren Ursachen und Auswirkungen**

*Frage 1: Welche wahrscheinlichsten und welche ungünstigsten Fehluordnungen von Nuklidvektoren lassen sich erfahrungsgemäß benennen, welche Ursachen kommen in Frage und welche Abweichungen bei der Aktivitätsbestimmung in Freimessanlagen können beispielhaft erwartet werden?*

In der überwiegenden Anzahl der stillgelegten deutschen Kernkraftwerke wird die Nuklidverteilung während des Abbaus der Anlage durch die Aktivierungsprodukte Fe-55, Co-60 und Ni-63 dominiert. In den ersten Jahren nach der Abschaltung tragen darüber hinaus weitere Aktivierungsprodukte wie z. B. Mn-54, Co-58, Zn-65, Nb-95, Zr-95, Ag-110m oder Sb-125 zur Nuklidverteilung bei.

Aufseiten der Spaltprodukte spielen während des Abbaus der Anlage die Isotope Sr-90 und insbesondere Cs-137 eine Rolle in Bezug auf die Kontamination kerntechnischer Kontrollbereiche.

Die in Bezug auf die Ableitung radioaktiver Stoffe im Normalbetrieb eines Kernkraftwerks dominierenden Radionuklide H-3 und C-14 treten aufgrund ihrer Flüchtigkeit nur in wenigen kontaminierten Stoffen in hohen Anteilen auf.

Im Falle aktivierter Betonstrukturen können u. a. die Radionuklide H-3, Ca-41, Co-60, Ba-133 sowie verschiedene Europiumisotope in nennenswerten Anteilen auftreten.

In einzelnen – vor allem älteren – Kernkraftwerken ist es durch Brennstabschäden zu einem Eintrag von Kernbrennstoff in das Primärkühlmittel gekommen. Bestrahlter Kernbrennstoff enthält eine Vielzahl langlebiger Alphastrahler (z. B. diverse Plutonium- und Curiumisotope) einschließlich des alpha- und gammastrahlenden Radionuklids Am-241. Alphastrahler spielen in der Freigabe nur in wenigen älteren Anlagen eine so große Rolle, dass sie in Anteilen von mehreren Prozent zur Gesamtaktivität der Kontamination beitragen. In Wiederaufarbeitungsanlagen ist stellenweise mit teils deutlich höheren Anteilen an Alphastrahlern zu rechnen.

Bei der Freigabe radioaktiver Stoffe wird der Freigabewert eines Radionuklids durch diverse Faktoren bestimmt, wie z. B. physikalische und biologische Halbwertszeit (Verbleib im Körper im Falle von Inkorporation), die beim radioaktiven Zerfall freigesetzte Energie, die Strahlungsart, Expositionspfade und deren Modellierung. Bei stillgelegten Kernkraftwerken kann in Bezug auf die Freigabe die Zahl der potenziell

dosisrelevanten Radionuklide stark eingegrenzt werden. Dies sind i. d. R. Co-60, Sr-90, Cs-137 und Alphastrahler (hier insbesondere Am-241) sowie in seltenen Fällen C-14 und Isotope des Europiums.

Für andere kerntechnische Einrichtungen (z. B. Hochtemperatur- und Forschungsreaktoren) entsprechen die relevanten Nuklide i. d. R. den o. g., auch wenn in bestimmten Bereichen andere Aktivitätsverhältnisse, insbesondere erhöhte Sr-90-Aktivitäten bei Hochtemperaturreaktoren, auftreten können. In Anlagen der Urananreicherung und Brennelementfertigung dominieren Uranisotope und ihre Tochternuklide. Dies wird bei der Festlegung von Freimesstrategien berücksichtigt.

Aus der Betrachtung der dosisrelevanten Radionuklide resultieren auch direkt die ungünstigsten Fehlzusammenhänge von Nuklidvektoren:

Die wahrscheinlichste Fehlzusammenhang liegt aufgrund der Dominanz der beiden Nuklide in einem fehlerhaften Verhältnis von Co-60 zu Cs-137 in der Anlagenkontamination. Bedingt durch die sehr unterschiedlichen Entstehungs- und Transportprozesse dieser beiden Radionuklide können sowohl Co-60 als auch Cs-137 in Nuklidgemischen (nach Anwendung der sogenannten „10 %-Regel“, mit der nicht dosisrelevante Radionuklide unberücksichtigt bleiben können) jeweils in Anteilen von 0 % bis zu 100 % vorkommen und sie sind nicht miteinander korreliert.

Beide Nuklide weisen einen Freigabewert für die uneingeschränkte Freigabe von 0,1 Bq/g auf, das Ansprechvermögen („Impulse/Sekunde pro Becquerel“) in einer klassischen Freimessanlage mit Großflächen-Szintillationsdetektoren im Hinblick auf die beiden Nuklide unterscheidet sich jedoch um etwa einen Faktor von 3. Bei Messgeometrien mit starker Selbstabschirmung des Messguts (z. B. bei Ansatz einer inhomogenen Aktivitätsverteilung im Material) kann dieser Unterschied im Ansprechvermögen auch durchaus bei einem Faktor 5 liegen. Co-60 ist hier aufgrund der Emission zweier Photonen pro Zerfall, der hohen Emissionswahrscheinlichkeiten und der hohen Gammaenergien besser detektierbar als Cs-137. Dies führt dazu, dass Kalibrierungen einer Freimessanlage, die von einem hohen Co-60-Anteil in der Kontamination ausgehen, bei der uneingeschränkten Freigabe anfällig für eine Unterschätzung der Summenformelausschöpfung im Messgut sind, wenn in Wirklichkeit eine Cs-137-dominierte Kontamination vorliegt.

Im Falle einer Freigabe nach Anlage 4 Tabelle 1 Spalte 6 StrlSchV (Bauschutt > 1.000 Mg/a) und Spalte 10 (Beseitigung auf einer Deponie bis 1.000 Mg/a) wäre bei Annahme einer Co-60-Kontamination bei eigentlich vorliegender Kontamination mit Cs-137 der oben angesprochene Faktor 3 als Unterschied des Ansprechvermögens durch den höheren Freigabewert des Cs-137 abgedeckt.

Im Falle einer Fehlzusammenhang kommt es nicht darauf an, ob dadurch die spezifische Gesamtaktivität des Messguts unterschätzt wird, sondern darauf, ob der Ausschöpfungsgrad der Summenformel – bezogen auf den zutreffenden Nuklidvektor – nicht größer als 100 % wird. Die StrlSchV fordert hier, dass die Summenformel auf dem Maßstab der zulässigen Mittelungsmasse (i. d. R. maximal 300 kg) einen Wert von < 1 annimmt. Mit Blick auf die Frage der Einhaltung des De-minimis-Konzepts der Freigabe sollte aber auch folgender Punkt nicht außer Acht gelassen werden: Die Freigabewerte für die uneingeschränkte Freigabe des IAEA Safety Guide RS-G-1.7 [1], auf denen die Werte in der StrlSchV basieren, sind im IAEA Safety Report Series No. 44 [2] hergeleitet. Die in [2] berechnete Dosis pro Bq/g ist für Cs-137 um den Faktor 3,85 niedriger als für Co-60. Erst durch die Rundung auf ganze Zehnerpotenzen bei der Umrechnung in den Freigabewert

ergibt sich die Identität des Freigabewerts von Co-60 und Cs-137. Ohne Rundung wäre der Freigabewert von Cs-137 um den Faktor 3,85 höher. Die in [2] durchgeführte Rundung wird dort damit begründet, dass die Genauigkeit der radiologischen Modelle keine höhere Präzision der Ergebnisse rechtfertigen würde. Eine Verwechslung von Co-60 und Cs-137 (d. h. Co-60 angenommen, Cs-137 vorliegend) würde daher zwar im Sinne der StrlSchV rechnerisch zu einer fehlerhaften Ermittlung der Summenformelausschöpfung führen und somit im Falle einer unbemerkten Überschreitung des Werts von 1 für die Summenformel gegen den erteilten Freigabebescheid verstoßen, ein Verstoß gegen das Dosiskriterium der Freigabe lässt sich daraus jedoch nicht notwendigerweise ableiten.

Ein Verstoß gegen das Dosiskriterium der Freigabe ergibt sich ebenfalls nicht bei einer fälschlichen Annahme von Co-60 statt Cs-137 bei der Freigabe nach Anlage 4 Tabelle 1 Spalte 8 (Beseitigung auf Deponien bis 100 Mg/a) und Spalte 9 (Beseitigung in Verbrennungsanlagen bis 100 Mg/a). Der Freigabewert für Cs-137 ist hier zwar nur um den Faktor 1,67 (Spalte 8) bzw. 1,43 (Spalte 9) höher als der Freigabewert für Co-60, was aber nicht auf der Expositionsermittlung beruht, sondern auf einer Begrenzung der Freigabewerte für Cs-137 durch die bei deren Herleitung noch gültige Freigrenze von 10 Bq/g. Aus der Expositionsermittlung ergaben sich dagegen rechnerisch zulässige spezifische Cs-137-Aktivitäten von 27,07 Bq/g (Spalte 8) bzw. 28,42 Bq/g (Spalte 9), also Verhältnisse der Freigabewerte von Cs-137 zu Co-60 von 4,3 (Spalte 8) bzw. 4,0 (Spalte 9) [3, S. 29ff], was praktisch identisch mit dem Verhältnis der Ansprechvermögen der Radionuklide Co-60 und Cs-137 in der Freimessanlage ist. Das sich aus der Expositionsermittlung ohne weitere Rundung ergebende Verhältnis der Werte der Oberflächenkontamination sowie der Freigabewerte von Cs-137 zu Co-60 ist in Tabelle 1 für hier einschlägige Freigabeoptionen der StrlSchV aufgeführt.

Tabelle 1: Werte der Oberflächenkontamination und Freigabewerte für Co-60 und Cs-137 sowie deren Verhältnis nach StrlSchV und gemäß der Dosisermittlung bei der Herleitung

Spalte in Anlage 4 Tabelle 1 StrlSchV	Einheit	Freigabewert		Verhältnis der Freigabewerte Cs-137/Co-60	
		Co-60	Cs-137	gemäß StrlSchV	aus Dosisermittlung
Sp. 3: Uneingeschränkte Freigabe	Bq/g	0,1	0,1	1	3,85*
Sp. 5: Oberflächenkontamination	Bq/cm <sup>2</sup>	1	1	1	4*
Sp. 6: Bauschutt > 1.000 Mg/a	Bq/g	0,09	0,4	4,44	4,49*
Sp. 8: Deponierung < 100 Mg/a	Bq/g	6	10	1,67	4,32**
Sp. 9: Verbrennung < 100 Mg/a	Bq/g	7	10	1,43	4,00**
Sp. 10: Deponierung < 1.000 Mg/a	Bq/g	2	8	4	4,32*
Sp. 11: Verbrennung < 1.000 Mg/a	Bq/g	2	3	1,5	1,51*
Sp. 14: Metallschrott Rezyklierung	Bq/g	0,6	0,6	1	1*
* ohne Rundung des Freigabewerts					
** ohne Deckelung des Freigabewerts von Cs-137 auf die damalige Freigrenze von 10 Bq/g und ohne Rundung des Freigabewerts					

Nur in den Fällen Spalte 11 und Spalte 14 (Tabelle 1) könnte es bei einer signifikanten Fehlzuordnung des Co-60/Cs-137-Verhältnisses zu einer Verletzung des Dosiskriteriums der Freigabe kommen.

Die Radionuklide C-14 und Sr-90 sind in Leichtwasserreaktoren nur in sehr begrenzten Anlagenbereichen relevant, so beispielsweise in Teilen der Abgasanlage und in SWR-Turbinenkondensatoren. Europiumisotope stellen einen signifikanten Anteil der Gesamtaktivität nur in aktivierten mineralischen Strukturen dar (Bioschild). In Hochtemperaturreaktoren können demgegenüber C-14 und Sr-90 eine stärkere Rolle bei der Summenformelausschöpfung als in Leichtwasserreaktoren spielen.

Die Nicht-Beachtung von C-14 und Sr-90 in Nuklidvektoren von Leichtwasserreaktoren ist in den meisten Fällen unproblematisch, da sie dort nur in sehr begrenzten Anlagenbereichen in hohen Anteilen auftreten (siehe oben). Hierbei ist allerdings essenziell, dass entsprechendes radiologisches Erfahrungswissen vorhanden ist und somit bei der Radiologischen Charakterisierung dieser potenziell C-14- und Sr-90-kontaminierten Systeme besonderes Augenmerk auf entsprechende Sondernuklidanalysen gelegt wird. Freigaberelevante Oberflächenkontaminationen mit diesen beiden reinen Betastrahlern sind jedoch z. B. im Rahmen von Voruntersuchungen und Orientierungsmessungen erkennbar, da die hierbei häufig zum Einsatz kommenden Oberflächenkontaminationsmonitore reine Betastrahler detektieren können. Bei qualifizierter Messdurchführung können daher mit reinen Betastrahlern kontaminierte Teile bereits im Vorfeld der Entscheidungsmessung aussortiert werden.

Die Nicht-Beachtung von Alphastrahlern im Nuklidvektor führt üblicherweise nur zu geringfügigen Fehlern bei der Freimessung. Sie kann nur in denjenigen Anlagen ein Problem darstellen, die Alpha-Anteile im Nuklidvektor von mindestens einigen Prozent aufweisen. In diesen Anlagen sind jedoch spezifische Prozesse etabliert, um Unterschätzungen von Alpha-Anteilen zu verhindern.

Als Gründe für Fehlzuordnungen können exemplarisch folgende Ursachen benannt werden:

- 1 Unzureichender Analysenumfang im Rahmen der radiologischen Charakterisierung, z. B. Verzicht auf Sondernuklidanalysen bei Reststoffen, die signifikante Anteile von reinen Alpha- oder Betastrahlern aufweisen können. Stattdessen Anwendung von Standardkorrelationen auf Systeme, für die diese Standardkorrelationen nicht passen.
- 2 Verwendung von Nuklidvektoren, die aus gemittelten Nuklidanteilen gebildet werden ohne ausreichende Berücksichtigung der DIN 25457-1:2024-05, Abschnitte 6.2 und 7.2 (s. Anhang) auf dem Maßstab der zulässigen Mittelungsgrößen („Entweder einen konservativen Nuklidvektor verwenden oder Durchführung einer Typ-B-Unsicherheitsbetrachtung“). Dies kann sowohl die gammaspektrometrisch erfassbaren Schlüsselnuclide als auch die Sondernuklide betreffen.
- 3 Versehentliche Vertauschung der Nuklidvektorzusammenfassung oder unbeabsichtigte Veränderung der Nuklidverteilung von Gebinden durch menschliches Fehlhandeln ggf. in Verbindung mit unklaren Prozessen zur Nuklidvektorfestlegung, zur Reststoffsammlung und -behandlung sowie zur Gebindekennzeichnung.

In Anbetracht der Fehler 2 und 3 der obigen Aufzählung ergibt sich folgende Empfehlung:

Die ESK empfiehlt, dass Kontrollproben entnommen und gammaspektrometrisch ausgewertet werden, wenn der Nuklidvektor in Bezug auf die verschiedenen Gammastrahler nicht für alle anlagenweit vorkommenden Nuklidverteilungen abdeckend festgelegt ist und ein festzulegender Aktivitätsschwellenwert im Zuge der

Entscheidungsmessung überschritten ist. Die Höhe des Aktivitätsschwellenwerts sollte sich an der Konservativität des Nuklidvektors orientieren („Wie groß könnte die realistischere mögliche Unterschätzung der Summenformelausschöpfung bzw. der Dosiermittlung bei Fehlzuordnung des Nuklidvektors ausfallen?“). Wenn eine solche Kontrollmessung eine deutliche Abweichung der Verteilung der Gammastrahler gegenüber dem Nuklidvektor ergibt, so ist zu klären, ob in Verbindung mit der enthaltenen Aktivität die Summenformel noch eingehalten ist. Ist dies nicht der Fall, so sind auch die übrigen Gebinde der Charge zu bewerten und das Vorgehen mit der atomrechtlichen Aufsichtsbehörde abzustimmen.

Kontrollprobenauswertungen mittels Sondernuklidanalysen würden das Auftreten des Fehlers 1 vermeiden, jedoch ist es nicht zweckmäßig, grundlegende Schwächen der Radiologischen Charakterisierung im Rahmen der Durchführung von Freigabemessungen zu beseitigen. Hier ist es von hoher Bedeutung, ein robustes Verfahren für die Radiologische Charakterisierung im betrieblichen Regelwerk festzuschreiben und durch die zuständige atomrechtliche Aufsichtsbehörde freigeben zu lassen. Aus Sicht der ESK ist die Durchführung einer schrittweisen Radiologischen Charakterisierung, deren Detaillierungsgrad im Freigabeprozess am höchsten ist, mittlerweile „good practice“ in Deutschland.

#### **4 Maßnahmen für eine zuverlässige Nuklidvektorzusammenfassung**

*Frage 2: Welche möglichen und bereits eingesetzten Maßnahmen für eine zuverlässige Zusammenfassung von Nuklidvektoren zu freizumessenden Stoffen und Gegenständen sind der ESK bekannt, z. B. eine Kombination von Gesamt-gamma-Freimessanlagen mit einer In-situ-Gammasspektrometrie?*

In kerntechnischen Anlagen sind entlang des gesamten Freigabeprozesses verschiedene Maßnahmen implementiert, um eine sichere Zusammenfassung des entsprechenden Nuklidvektors zu dem freizugebenden Material oder Gegenstand zu gewährleisten.

Diese unterschiedlichen Maßnahmen beziehen sich auf folgende wesentliche Schritte des Freigabeprozesses:

- a) Probenahme zur Nuklidvektorzusammenfassung,
- b) Messung im betriebseigenen Labor,
- c) Messungen in externen Laboren,
- d) Festlegung des Nuklidvektors,
- e) Abbau der Komponenten,
- f) Bearbeitung,
- g) Freimessung und
- h) Lagerung der Proben und Gebinde bis zur Entsorgung/Freigabe.

##### a) Probenahme zur Nuklidvektorzusammenfassung:

- Betrachtung der Systemeigenschaften und der Betriebshistorie, um geeignete Probenahmestellen, -verfahren und Analysemethoden auszuwählen.
- Ermittlung des Nuklidvektors mittels mit Sachverständigen abgestimmten Probenahme-programmen.

- eindeutige Kennzeichnung der Proben und Zuordnung zu Abbaubereichen (Probenahmestellen):
  - Aufkleber und
  - Fotoprotokoll.
- Probendatenbank inkl. Messergebnisse.
- Validierung von Berechnungen/Simulationen von Aktivitätsaufbau in Systemen durch Probenahme und Messung, so diese für die Bestimmung und Zuordnung eines Freigabenuklidvektors herangezogen werden.
- Archivierung exemplarischer Proben bis Freigabe abgeschlossen.

Die Basis für die Ermittlung der Nuklidverteilung ist eine repräsentative Beprobung der Materialien und Systembereiche sowie eine ausreichend sensitive Analyse der Proben.

Die Auswahl der Probenahmestellen erfolgt unter Beachtung der Systemeigenschaften (verschiedene Temperatur-, Druck- und Strömungsbereiche, vor/hinter Filter, Bereiche mit unterschiedlicher Wasserchemie, etc.) und wird mit der Aufsichtsbehörde bzw. dem von ihr hinzugezogenen unabhängigen Sachverständigen abgestimmt.

Um eine Verwechslung der Proben zu vermeiden und eine nachvollziehbare Zuordnung sicherzustellen, werden Proben und Probenahmestellen eindeutig gekennzeichnet. Hierbei kommen sowohl Kennzeichnungsaufkleber als auch Fotoprotokolle zum Einsatz.

Es wird auf eine ausreichende Anzahl der Proben sowie auf eine geeignete Auswahl der Probenahme- und Analyseverfahren geachtet, um auch schwer messbare Nuklide detektieren bzw. ausschließen zu können.

Ferner werden die Probeninformationen und die Analyseergebnisse in Datenbanken verwaltet und ggf. auch exemplarische Rückstellproben bis zum Abschluss der Freigabe aufbewahrt. Soll die Zuordnung eines Nuklidvektors anhand von Berechnungen und Simulationen zum Aktivitätsaufbau (z. B. Aktivierungsberechnung anhand des Neutronenflusses) erfolgen, so werden diese Berechnungen ggf. durch Probenahmen und Messungen verifiziert.

b) Messung im betriebseigenen Labor:

- Qualifizierte Messgeräte,
- geschultes Personal,
- durch Sachverständige geprüfte Geometrien/Kalibrierungen,
- Auswertung mit Qualitätssicherung (z. B. Vier-Augen-Prinzip) und
- Plausibilitätsprüfung anhand von Vergleichsproben und der Betriebshistorie.

Bei der Analyse der Proben zur Bestimmung der Nuklidverteilung kommen in den betriebeigenen Laboren nur qualifizierte Messverfahren zum Einsatz. Die Messgeräte und -verfahren entsprechen den einschlägigen Regeln der Technik und sind von der Aufsichtsbehörde bzw. dem von ihr hinzugezogenen unabhängigen Sachverständigen geprüft. Dies gilt auch bzw. insbesondere für die verschiedenen Kalibrierungen in Abhängigkeit der Art und Geometrie der Messgüter.

Die Messungen werden von geschultem Personal durchgeführt, ausgewertet und sind im innerbetrieblichen Regelwerk, einschließlich der Maßnahmen zur Qualitätssicherung, beschrieben (z. B. Analysehandbuch).

c) Messungen in externen Laboren (z. B. Sondernuklidanalyse):

- Auswahl der Analyseverfahren bei der Beauftragung;
- Berücksichtigung von Sondernukliden bei der Analyse, um deren Vorkommen zu prüfen/auszuschließen,
- Nutzung von anerkannten Laboren und
- Qualitätssicherung der Messergebnisse (Plausibilitätsprüfung durch den Auftraggeber).

Für die Bestimmung der Nuklidverteilung, insbesondere für eine Sondernuklidanalytik, werden auch externe Labore genutzt. Es werden hierfür nur von der zuständigen atomrechtlichen Aufsichtsbehörde anerkannte Labore beauftragt und die Ergebnisse durch die Betreiber der beauftragenden kerntechnischen Analyse auf Plausibilität geprüft (z. B. anhand von vergleichbaren Messungen und der Betriebshistorie).

d) Festlegung des Nuklidvektors:

- Verwendung von standardisierten Rechenroutinen,
- Festlegung des Nuklidvektors mit Beteiligung des Sachverständigen,
- Interne Prüfung / Qualitätssicherung (z. B. Vier-Augen-Prinzip) und
- Nutzung eines Reststoffverfolgungsprogramms zur rückverfolgbaren Dokumentation.

Die Festlegung des Nuklidvektors anhand der jeweiligen Nuklidverteilung, die aus der Analytik erhalten wurde, erfolgt unter Beachtung der Vorgaben der StrlSchV und der einschlägigen DIN-Normen mit standardisierten Rechenroutinen. Diese sind durch die Aufsichtsbehörde bzw. durch den von ihr hinzugezogenen unabhängigen Sachverständigen geprüft.

Die Betreiber prüfen die Nuklidvektorfestlegung durch eine zweite Person (Vier-Augen-Prinzip) und dokumentieren das Ergebnis in einem Reststoffverfolgungsprogramm. Die Eingabe bzw. Änderung von Nuklidvektoren ist nur bestimmten Personen gestattet und wird dokumentiert.

e) Abbau der Komponenten:

- Eindeutige Kennzeichnung,
- Personalschulung (professionelles Handeln),
- Arbeitsvorbereitungsgespräche unter Beachtung der radiologischen Vorgaben zur Sortierung; Besonderheiten etc.,
- nuklidvektorreine Sortierung des abgebauten Materials (an der Abbaustelle) und
- Abdeckung der Boxen/Transportbehälter (zur Vermeidung von Querkontamination und unkontrollierter Zufuhr von Material).

Die für die Freigabe vorgesehenen Materialien und Systembereiche sind im Abbaubereich eindeutig und gut sichtbar zu kennzeichnen, sodass eine nuklidvektorreine Sortierung bereits beim Abbau erfolgen kann. Weitere Maßnahmen zur Sicherstellung einer korrekten Nuklidvektorzurordnung sind z. B. die Festlegung einer nuklidvektorreinen Abbaureihenfolge oder die Abdeckung von beladenen Transportbehältern zur Vermeidung von Querkontamination oder der unkontrollierten Zufuhr von Material. Das Personal wird durch geeignete Schulungen im Vorfeld der Tätigkeiten sowie im Rahmen von Arbeitsvorbereitungsgesprächen unmittelbar vor Beginn des Abbaugewerks bzgl. der Radiologie sensibilisiert (z. B. Schulung in professionellem Handeln, Human Performance Optimization).

f) Bearbeitung:

- Nuklidvektorreine Bearbeitung (Nachzerlegung, Dekontamination),
- Zwischenreinigung der Maschinen bei Materialwechsel (verschiedene Nuklidvektoren),
- Check der Nuklidvektor-Übertragung/-Mitführung (Mutter-/Tochter-Gebinde), d. h. bei der Aufteilung von Material auf mehrere Behältnisse und
- Messung/Kontrolle von Leergebinden.

Bei der weiteren Zerlegung und Dekontamination der Materialien wird darauf geachtet, dass keine Materialien mit unterschiedlichen Nuklidvektoren gemischt werden. In jeder Bearbeitungsanlage wird nur Material des gleichen Nuklidvektors gehandhabt und die Maschinen sind vor einem Materialwechsel zu reinigen, um eine Querkontamination zu vermeiden.

Da im Zuge der Dekontamination und Nachzerlegung Kennzeichnungen – auch des Nuklidvektors – auf dem Material notwendigerweise entfernt und die Materialien in andere Transportbehälter umgepackt werden, wird die korrekte Zuordnung bzw. Beibehaltung der Nuklidvektordinformationen beachtet. Hierzu werden die Kennzeichnungen auf den Gebinden vor und nach der Bearbeitung („Mutter-Tochter-Beziehung“) kontrolliert und mit den Informationen im Reststoffverfolgungsprogramm abgeglichen.

Generell wird bei der Qualifizierung von Dekontaminationsverfahren betrachtet, ob es zu einer ungünstigen Veränderung des Nuklidvektors kommt, die ggf. zu berücksichtigen ist.

Eine regelmäßige Kontaminationskontrolle und ggf. Dekontamination von leeren Behältnissen vor der erneuten Verwendung beugt ebenfalls einer Querkontamination vor.

g) Freimessung:

- Möglichst automatisches Einlesen des Nuklidvektors in die Freimessanlage (FMA),
- möglichst Verriegelung: Keine Messung ohne geprüften Nuklidvektor!
- Qualitätssicherung der Freimessprotokolle und der Freigabedokumentation,
- stichprobenartige In-situ-Gammaspektrometrie von Gebinden (oder repräsentativen Materialproben aus den Gebinden) als separate Messung zusätzlich zur FMA zur Überprüfung des Nuklidvektors,

- Auswahlkriterien z. B. Grad der Ausschöpfung der Freigabewerte, besondere Nuklidverteilungen, Freigabepfad etc. und
- Kontrolle der Freimessung und Dokumentation durch die Aufsichtsbehörde oder ihren Sachverständigen, auch durch unabhängige Messungen.

Da die Freimessung z. B. in einer Gesamt-gamma-Freimessanlage ein entscheidender Schritt für die Freigabeentscheidung darstellt, ist neben dem validierten Messverfahren und der Anwendung der korrekten, messgut- und geometrieabhängigen Kalibrierung die Zuordnung des Nuklidvektors von großer Bedeutung. Idealerweise wird der zugeordnete Nuklidvektor automatisiert bzw. teilautomatisiert in die Freimessanlage eingelesen. Dies erfolgt z. B. durch einen Bar- oder QR-Code auf den Messgutträgern/Transportbehältern in Verbindung mit einer Datenbank (bzw. einem Reststoffverfolgungsprogramm). Eine zusätzliche Kontrolle aller o. g. Punkte durch das geschulte Bedienpersonal sowie die Beschreibung des Messvorgangs mit entsprechenden Prüfschritten im innerbetrieblichen Regelwerk ist obligatorisch.

Eine unabhängige Kontrolle des Nuklidvektors kann durch eine stichprobenhafte Bestimmung des Nuklidverhältnisses an einzelnen Gebinden einer Freigabecharge mittels Probennahme und Labor-Gammaspektrometrie oder mittels In-situ-Gammaspektrometrie erfolgen. Aufgrund des Zeitbedarfs für die Gammaspektrometrie werden diese Kontrollmessungen i. d. R. im Anschluss an die Gesamt-gamma-Messung, aber vor der Freigabeentscheidung durch den Strahlenschutzverantwortlichen (SSV), der Inhaber der Freigabe ist, durchgeführt. Auswahlkriterien für diese Kontrollmessung sind z. B. der Grad der Ausschöpfung des Freigabewerts oder besondere zugeordnete Nuklidvektoren. Wenn eine solche Kontrollmessung eine deutliche Abweichung der Verteilung der Gammastrahler gegenüber dem Nuklidvektor ergibt, so ist zu klären, ob in Verbindung mit der enthaltenen Aktivität die Summenformel noch eingehalten ist. Ist dies nicht der Fall, so sind auch die übrigen Gebinde der Charge zu bewerten und das Vorgehen mit der atomrechtlichen Aufsichtsbehörde abzustimmen (vgl. Empfehlung).

Vor der Feststellung der Freigabefähigkeit durch den SSV bzw. seinen Strahlenschutzbeauftragten (SSB) erfolgt eine Kontrolle der Dokumentation inkl. der korrekten Zuordnung und Mitführung des Nuklidvektors anhand der vorliegenden Informationen (Systemzuordnung, Fotoprotokolle, Messprotokolle etc.).

Des Weiteren hat die Aufsichtsbehörde die Möglichkeit, die Freigabeentscheidung durch eigene Messungen, Begleitung des Freigabeprozesses des Betreibers und Kontrolle der Freigabedokumentation nachzuvollziehen.

#### h) Lagerung der Proben und Gebinde bis zur Entsorgung/Freigabe:

- Gesichertes Lagern der Proben vor Zugriff Dritter, um Hinzufügen von Material zu verhindern und
- Verplombung von Gebinden (Containern etc.).

Um eine Verwechslung von Proben und Gebinden oder eine Querkontamination nach der Entscheidungsmessung zu verhindern, werden diese so gelagert, dass sie vor dem Zugriff Dritter geschützt

sind. Abdeckungen und/oder Verplombungen von Lagerbehältern stellen sicher, dass kein Material entfernt oder hinzugefügt wird.

Die in diesem Kapitel dargestellten Maßnahmen für eine zuverlässige Nuklidvektorzuordnung sind nach Auffassung der ESK bewährte Praxis in kerntechnischen Anlagen.

Die Kombination von Gesamt-gamma-Freimessanlagen mit einer In-situ-Gammaspektrometrie wird in Kapitel 5 genauer betrachtet.

## **5 Maßnahmen zur Überprüfung der Nuklidvektorzuordnung**

*Frage 3: Wie können die Maßnahmen zur zuverlässigen Zuordnung von Nuklidvektoren als auch Maßnahmen zur Überprüfung der Zuordnung hinsichtlich ihrer Wirksamkeit und Eignung für die Praxis, insbesondere unter Berücksichtigung hoher Massendurchsätze, bewertet werden, und welche Maßnahmen bewertet die ESK als geeignet?*

Zur Sicherstellung einer rechtskonformen Freigabe radioaktiver Reststoffe ist durch den Strahlenschutzverantwortlichen, der Inhaber der Freigabe ist, ein Freigabeprozess zu etablieren, der entsprechende, im Rahmen des Gesamtprozesses ausreichende Qualitätssicherungsschritte enthält. Hierzu kann aus der Auflistung zu Frage 2 eine zielführende Auswahl getroffen werden. Der Prozess wird mit der zuständigen Aufsichtsbehörde abgestimmt.

Bei der technischen Umsetzung des Freigabeprozesses kann die Zuverlässigkeit erhöht werden, indem händisch zu bedienende Schnittstellen minimiert werden, um einer Fehlzuordnung eines Nuklidvektors und weiterer, für die Freigabemessung relevanter Messparameter zu den freizugebenden Materialien vorzubeugen. So kann beispielweise ein automatisiertes datenbankgestütztes Einlesen von dem Material zugeordneten Daten (Nuklidvektor, Kalibrierungen, Geometrien) in die zur Entscheidungsmessung verwendeten Messeinrichtungen erfolgen. Ebenso findet die Plausibilitätsprüfung im Hinblick auf die dem freizugebendem Material zugewiesenen Messparameter inkl. Nuklidvektor statt, bei der das Vier-Augen-Prinzip, z. B. bei der Kontrolle der Freigabedokumentation, zur Anwendung kommt.

Eine zusätzliche qualitätssichernde Maßnahme kann eine stichprobenartige gammaspektrometrische Messung darstellen, durch die sich die Verwendung eines geeigneten Nuklidvektors bei der Entscheidungsmessung verifizieren lässt. Unabhängige Messungen von dritter Seite (Gutachter, Aufsichtsbehörde) dienen ausschließlich der behördlichen Aufsicht. Das betreiberseitig zu etablierende Freigabeverfahren muss unabhängig davon verlässliche Aussagen zur Freigabefähigkeit des Materials ermöglichen.

Zur Beurteilung der Praktikabilität der Kombination einer Freimessanlage mit einem High-Purity-Germanium-Detektor (HPGe-Detektor) kann auf den Bericht der GRS gGmbH [4] zurückgegriffen werden. Im Abbau der kerntechnischen Anlagen kommt es auch auf einen hohen Durchsatz bei der Freigabe von Chargen an. In ihrem Bericht [4] schätzt die GRS gGmbH im Auftrag der ESK die Messdauern der Freimessung mit einem HPGe-Detektor, wie er in der In-situ-Gammaspektrometrie verwendet wird, ab. In den Tabellen 3-1 und 3-2 gibt sie simulierte Messdauern eines HPGe-Detektors für die Nuklide Co-60 und

Cs-137 an, welche die wahrscheinlichste Fehlzuordnung darstellen und in praktisch allen Kernkraftwerken in signifikanter Menge auftreten (vgl. Frage 1).

Bei der Durchführung einer Gesamt-gamma-Messung mittels FMA ist im Regelfall eine Messzeit von 20 s bis 100 s ausreichend, um den Nachweis der Unterschreitung der Werte aus der Anlage 4, Tabelle 1, Spalte 3, StrlSchV zu erreichen. Die GRS kommt in [4] zu dem Ergebnis, dass für ein 50/50-Gemisch aus Co-60 und Cs-137 bei einer Chargenmasse von 100 kg und dem Freigabeziel der uneingeschränkten Freigabe die Messzeit in der Größenordnung von 45 Minuten liegen würde, bis beide Peaks im Spektrum sichtbar werden. Diese Messzeiten sind im Hinblick auf einen hohen Massendurchsatz bei der Stilllegung von kerntechnischen Anlagen ungünstig. Bei kürzeren Messzeiten ergeben sich wenig quantifizierbare Aussagen über das Co-60/Cs-137-Verhältnis, insbesondere bei Massen von deutlich unter 300 kg.

Bei einigen Freigabepfaden – insbesondere bei der uneingeschränkten Freigabe – wird im Rahmen der Entscheidungsmessung mittels Freimessanlagen nicht nur die Unterschreitung der massenspezifischen Freigabewerte, sondern auch die Unterschreitung der Werte der Oberflächenkontamination gemäß Anl. 4 Tabelle 1 Spalte 5 StrlSchV nachgewiesen. Auch dieser Nachweis würde bei Verwendung gammaspektrometrischer Detektoren in der Freimessanlage zu stark erhöhten Messdauern führen. Dies gilt nicht nur bei Verwendung der Mittelungsfläche von 1.000 cm<sup>2</sup> gemäß StrlSchV, sondern auch noch bei der Verwendung erhöhter Mittelungsflächen von z. B. 1 m<sup>2</sup>. Wenn im Rahmen der Entscheidungsmessung kein Nachweis über die Einhaltung der Oberflächenkontamination geführt werden muss und in Fällen, bei denen die zulässige spezifische Aktivität zur Freigabe oberhalb von 0,5 Bq/g liegt, reduziert sich die Messzeit eines in der Freimessanlage installierten gammaspektrometrischen Detektors allerdings auf Werte, die nicht mehr wesentlich oberhalb typischer Messdauern von Freimessanlagen liegen.

Aus [5] liegen bereits praktische Erfahrungen aus der Kombination einer FMA mit einer gammaspektrometrischen Messung aus dem VKTA – Strahlenschutz, Analytik & Entsorgung Rossendorf e. V. (VKTA) vor. Sie weist darauf hin, dass für die Simulationsergebnisse in [4] optimale Randbedingungen unterstellt wurden. Soll messbegleitend ein Gammaskpektrum aufgenommen werden, so sind größere Messzeiten notwendig. Je größer die Messzeit, desto belastbarer ist das Spektrum und desto mehr Gammastrahler lassen sich identifizieren. Es ist also offensichtlich, dass im Falle einer die Gesamt-gamma-Messung begleitenden Spektrometrie ein Optimum aus spektrometrischen Informationen und im Rahmen des Massenbewertungsprozesses zur Verfügung stehender Messzeit gefunden werden muss. Die Messzeit muss ggf. im Laufe des Stilllegungsprozesses angepasst werden, je nachdem welche Nuklide in den Gebinden zu erwarten sind. Aus [5] kann entnommen werden, dass es beim VKTA einen Mehrwert bietet, ein aufgenommenes Gammaskpektrum zu nutzen, um besonders bei Vorliegen von Nuklidvektoren mit größeren Unsicherheiten den Grad der Konservativität des Deklarationsnuklidvektors in dem Maß zu senken, wie sich Informationen aus dem begleitend aufgenommenen Gammaskpektrum gewinnen lassen. Daher ist festzustellen, dass für Anlagen, bei denen die Nuklidverhältnisse weniger einheitlich und standardisierbar sind, wie beispielsweise Forschungsanlagen, eine Kombination aus Gesamt-gamma-Freimessanlagen mit einer zeitgleichen In-situ-Gammaskpektrometrie zielführend sein kann. Bei geringen Mengen an abzubauenen Massen ist die Messzeit der Entscheidungsmessung der weniger bestimmende Faktor, was den Durchsatz des Gesamtprozesses angeht. Daher kann eine zusätzliche In-situ-Gammaskpektrometrie hierbei die Sicherheit und die Plausibilität der verwendeten Nuklidvektoren erhöhen. Dies setzt ebenfalls voraus, dass bei der Auswertung der Gammaskpektren nicht nur technische, sondern auch wissenschaftliche Expertise beim Personal vorhanden

sein muss, da derartige Messungen nicht vollständig standardisierbar sind, was einem industriellen Einsatz mit hohem Massendurchsatz in Leistungsreaktoren im Abbau entgegensteht.

In einer Präsentation der GRS [6] in der 99. Sitzung des ESK-Ausschusses ST am 05.02.2025 wurde die Fallstudie der FRM-03 vorgestellt, die als reine Gammaskpektrometrie-Freimessanlage im Kernkraftwerk Tschernobyl zur Freigabe von Metallschrott eingesetzt wird und sich aktuell im Probetrieb befindet. Die Anlage kann für Chargen von mehreren tausend Kilogramm verwendet werden, wobei die Aktivitätsbestimmung in mehreren Sektoren erfolgt, deren Masse jeweils nicht mehr als 1.000 kg beträgt. Bei Cs-137-Aktivitäten von mehreren MBq im Messgut war exemplarisch mit einer Messzeit von 80 s eine quantitative Bestimmung der Aktivität möglich. Geringe Chargenmassen im Bereich von 100 kg oder die Überprüfung der Oberflächenkontamination des Materials auf Mittelungsflächen von 1 m<sup>2</sup> waren keine Anforderung im Rahmen der Fallstudie. Für die ESK ergeben sich aus dem Bericht der GRS [6] keine von der VKTA-Darstellung und den Simulationsergebnissen der GRS [4] abweichenden Schlussfolgerungen bezüglich der Massentauglichkeit und des Durchsatzes bei der uneingeschränkten Freigabe geringerer Massen der Messchargen oder beim erforderlichen Nachweis der Unterschreitung von Oberflächenkontaminationswerten.

Eine Kombination von Gesamt-gamma-Freimessanlagen mit einer zeitgleichen In-situ-Gammaskpektrometrie oder einer begleitenden stichprobenartigen gammaskpektrometrischen Messung ist u. a. aufgrund der erhöhten Messdauer und weiterer messtechnischer Randbedingungen der Gammaskpektrometrie im Hinblick auf die Massenfähigkeit des Freigabeprozess aus Sicht der ESK unter praktischen Gesichtspunkten allgemein nicht zielführend. In begründeten Einzelfällen, z. B. wenn Gebinden kein konservativer Nuklidvektor zugeordnet werden kann, oder in Anlagen, die im Freigabeverfahren nur geringe Massendurchsätze erreichen müssen (z. B. in Forschungseinrichtungen), können derartige Messeinrichtungen jedoch sinnvoll sein. Eine Anwendung der Kombination kann hier im Einzelfall individuell und anlagenspezifisch festgelegt werden.

## **6 Weitere Freimessmethoden**

*Frage 4: Welche weiteren Freimessmethoden bzw. Verfahren gegenüber der Freimessanlage sind bekannt und wie bewertet die ESK diese hinsichtlich Zuverlässigkeit der Einhaltung von Freigabewerten gerade auch in Bezug auf die Nuklidvektorzugeordnetung? Darüber hinaus, welche zu diesen Methoden und Verfahren ergänzenden Maßnahmen zur Erhöhung der Zuverlässigkeit können empfohlen werden?*

Weitere Freimessmethoden sind:

- a) Gammaskpektrometrische Auswertung repräsentativer Proben (z. B. bei homogenisierbaren Messgütern),
- b) Oberflächen-Kontaminationsdirektmessung,
- c) In-situ-Gammaskpektrometrie,
- d) Massenspektrometrie (z. B. Brennelementfertigung) und
- e) Förderbandmesseinrichtungen.

a) Gammaspektrometrische Auswertung repräsentativer Proben

Bei der Auswertung repräsentativer Proben kommt i. d. R. als Messverfahren die Gammaspektrometrie zum Einsatz, die in Bezug auf gammastrahlende Radionuklide quantitative nuklidspezifische Aussagen ermöglicht. Sofern die Messgüter gut homogenisierbar sind (z. B. Flüssigkeiten), ist diese Methode als zuverlässig in Bezug auf die Nuklidvektorzuzuordnung und damit auch zur Bewertung der Einhaltung von Freigabewerten einzustufen. Außerdem bietet sich die Gammaspektrometrie von Proben in den Fällen an, wo Kontrollproben aus Freimesschargen entnommen werden, die in einer Freimessanlage gemessen wurden (vgl. Empfehlung). Diese Kontrollproben dienen ausschließlich der Überprüfung des Nuklidvektors und nicht der Überprüfung der Einhaltung von Freigabewerten. Der Grund hierfür liegt darin, dass Freimesschargen zwar in Bezug auf ihre Nuklidverteilung aufgrund gleicher Raum-/Systemzugehörigkeit i. d. R. eine einheitliche Nuklidverteilung aufweisen, dass jedoch die Aktivitätsverteilung innerhalb der Freimesscharge bei Feststoffen nicht immer homogen ist. Die Auswertung der Kontrollproben liefert daher den Nachweis, dass die Kalibrierung der Freimessanlage sicherstellt, dass die Summenformelausschöpfung im Rahmen der Entscheidungsmessung nicht unterschätzt wurde.

b) Oberflächen-Kontaminationsdirektmessung

Die Oberflächen-Kontaminationsdirektmessung erfolgt i. d. R. mit Geräten, die sensitiv auf Betastrahlung sind (z. B. gasgefüllte Zählrohre oder Szintillationsdetektoren mit entsprechend dünnen Folien, die das Eindringen von Betastrahlung in das Zählrohrvolumen bzw. in den Detektor ermöglichen). Die Oberflächen-Kontaminationsdirektmessung kommt überwiegend für Vormessungen/Orientierungsmessungen zum Einsatz, um kontaminierte Messgüter bereits vor der Entscheidungsmessung identifizieren und aussortieren zu können. Bei dieser Messmethode ergibt sich in Kombination mit einer Entscheidungsmessung mittels Freimessanlage der Vorteil, dass bei den Vormessungen Radionuklide wie Sr-90 und Cs-137 detektiert werden können, die gegenüber Co-60 an der Freimessanlage ein schlechteres Ansprechvermögen aufweisen (das von Sr-90 ist sogar äußerst gering). Wenn ausschließlich mittels Oberflächenkontaminations-Direktmessungen eine Entscheidungsmessung durchgeführt wird, ist Folgendes zu beachten: Auch hier ist die Wahl des Kalibriernuklids entscheidend für die Konservativität der Entscheidungsmessung. Deswegen wird häufig eine Co-60-Kalibrierung verwendet, da Co-60 aufgrund der niedrigeren Beta-Energien im Vergleich zu Sr-90 und Cs-137 ein schlechteres Ansprechvermögen auf Betastrahlung bei Beta-sensitiven Kontaminationsmonitoren aufweist. Da Betastrahlung jedoch nicht in der Lage ist, das Messgut selbst zu durchdringen, ist es hier erforderlich, dass die Messgutoberfläche möglichst flächendeckend mit dem Messgerät erfasst werden kann. Bei Entscheidungsmessungen mittels Kontaminationsdirektmessungen muss darüber hinaus beachtet werden, dass neben der Einhaltung der zulässigen Werte für die Oberflächenkontamination parallel die Unterschreitung massenspezifischer Freigabewerte nachzuweisen ist. Daraus resultieren Anforderungen an die minimal erforderliche Materialstärke. Für sehr dünne Messgüter, wie z. B. dünne Bleche, kann daher die Oberflächen-Kontaminationsdirektmessung i. d. R. nicht als alleiniges Messverfahren für die Entscheidungsmessung zum Einsatz kommen. In der Praxis kommt dieses Messverfahren daher z. B. bei der Freimessung von metallischen Großkomponenten zum Einsatz.

c) In-situ-Gammaspektrometrie

Die In-situ-Gammaspektrometrie stellt ein Messverfahren dar, das im kerntechnischen Bereich zur Messung von Gebäudeoberflächen, Bodenflächen oder auch im Rahmen der radiologischen Charakterisierung von Betriebsabfällen zum Einsatz kommt. Im Rahmen der Kapitel 4 und 5 wurde bereits eine mögliche Kombination der In-situ-Gammaspektrometrie mit einer Freimessanlage diskutiert. An dieser Stelle geht die ESK daher auf die eigenständige Verwendung der In-situ-Gammaspektrometrie für Entscheidungsmessungen im Freigabeverfahren ein. Die In-situ-Gammaspektrometrie besitzt eine sehr gute Energieauflösung, die in der Lage ist, alle typischen in der Stilllegung auftretenden Gammastrahler zu unterscheiden. Die Vielzahl der Messkanäle und die i. d. R. ziemlich geringen Detektorvolumina (verglichen mit Großflächen-Szintillationsdetektoren) führen jedoch zu einer verhältnismäßig geringen Zahl an Nettoimpulsen pro Messkanal und damit zu erhöhten zählstatistischen Unsicherheiten. Dies hat Konsequenzen für die Messzeit in-situ-gammaspektrometrischer Messungen, die häufig im Bereich zwischen fünf Minuten und einer Stunde liegen. Die Verwendung der In-situ-Gammaspektrometrie bei Freimessungen von Gebäudeoberflächen hat den Vorteil, dass auch eingedrungene Kontamination in einigen Millimetern bis zu wenigen Zentimetern Tiefe noch mit gutem Ansprechvermögen detektiert werden kann. Die Priorität der Freimessung an der stehenden Struktur ist in der StrlSchV fixiert und basiert auf dem Erfordernis, gut messbare Kontaminationen an der Oberfläche von Gebäudestrukturen zu identifizieren und zu entfernen, bevor abrissbedingte Homogenisierungsschritte das kontaminierte Material mit kontaminationsfreiem Material aus dem Wandinneren vermischen, was eine spätere Entfernung von Aktivitätsansammlungen stark erschwert.

d) Massenspektrometrie:

Für Uranisotope und andere langlebige Nuklide, die gammaspektrometrisch nicht einfach zu detektieren sind, kann die massenspektrometrische Analyse von Proben als Messmethode für eine Freigabe von Materialien verwendet werden. Dies gilt für Materialien, von denen repräsentative Proben entnommen werden können (z. B. Schüttgüter oder Flüssigkeiten). Z. B. werden in Schweden sowohl feste als auch flüssige Abfälle aus der Brennelementfertigung durch ICP-MS-Analyse (Massenspektrometrie mit induktiv gekoppeltem Plasma) freigegeben. Diese Messmethode lässt Rückschlüsse auf einzelne Nuklide zu und weist bei sehr langlebigen Radionukliden (z. B. diversen Uranisotopen) sehr niedrige Nachweisgrenzen für die spezifische Aktivität auf. Das Messverfahren ist jedoch kosten- und zeitintensiv und für gängige Reaktornuklide wie z. B. Co-60, Sr-90 oder Cs-137 ungeeignet und daher primär als ergänzendes Verfahren bei der Freimessung von Abfällen aus der Brennelementfertigung anzusehen.

e) Förderbandmesseinrichtungen

Förderbandmessenanlagen, wie z. B. [7] stellen an sich kein zusätzliches Messverfahren dar, da die hier zum Einsatz kommenden Detektoren auch in anderen Messeinrichtungen zum Einsatz kommen. Es kann sich hierbei um gammaspektrometrische Messeinrichtungen oder um die bereits angesprochenen Detektoren zur Bestimmung der Oberflächenkontamination (z. B. Beta-sensitive Szintillationsdetektoren) handeln. Unterschiede zu anderen Messeinrichtungen – insbesondere gegenüber

„klassischen“ Freimessanlagen – liegen hierbei in der geringeren Abschirmung der Messeinrichtung gegenüber der Umgebungsstrahlung, der nuklidspezifischen Auflösung durch Gammaskopie und der damit einhergehenden relativ geringen Detektorvolumina. Diese Faktoren ermöglichen zwar die Unterscheidung verschiedener Gammastrahler sowie die parallel mögliche Erfassung reiner Betastrahler, es gibt jedoch demgegenüber diverse Faktoren, die zu einer Verlängerung der Messzeit und zu zusätzlichen Typ-B-Messunsicherheiten führen können:

Die Messung auf dem Förderband erfordert zum einen ein gut homogenisierbares Schüttgut wie z. B. Erdreich. Selbst gebrochener Bauschutt weist größere Inhomogenitäten auf und quantitative Beta-Direktmessungen sind hier i. d. R. nicht möglich.

## 7 Fazit

In Bezug auf mögliche Überschreitungen von Freigabewerten ist zu beachten, dass die Frage, welche Nuklidvektorzusammenstellung als konservativ anzusehen ist, davon abhängt, ob eine Überprüfung der Einhaltung massenspezifischer Freigabewerte oder eine Überprüfung der Einhaltung der Werte für die Oberflächenkontamination erfolgt. Da hier sowohl Beta-sensitive Detektoren (Oberflächendirektmessung) als auch Gamma-sensitive Detektoren (z. B. Freimessanlage) zum Einsatz kommen, ist eine Definition eines einzigen „abdeckenden“ Nuklidvektors oft nicht möglich. In einigen kerntechnischen Anlagen ist man daher zu der einfachen und konservativen Festlegung gelangt, zwei Nuklidvektoren für die Auswertung der Entscheidungsmessung zu verwenden. Für Entscheidungsmessungen mittels Oberflächen-Kontaminationsdirektmessung kommen hier Nuklidvektoren zur Anwendung, die den Co-60-Anteil im Messgut tendenziell überschätzen, für Messungen mit der Freimessanlage kommen Nuklidvektoren zum Einsatz, die den Cs-137-Anteil im Messgut tendenziell überschätzen. Dies gilt insbesondere im Fall der uneingeschränkten Freigabe.

In Bezug auf ein fehlerhaft angesetztes Co-60/Cs-137-Verhältnis kann es zwar zu einer fehlerhaften Bestimmung der Summenformelausschöpfung kommen, ein Verstoß gegen das Dosiskriterium der Freigabe resultiert daraus aber i. d. R. nicht (vgl. Kap. 3 dieser Stellungnahme). Ausnahmen hiervon können im Falle der Freigabe von Stoffen zur Beseitigung in Verbrennungsanlagen < 1.000 Mg/a oder im Falle der Freigabe von Metallschrott zum Recycling auftreten. Dies ist im Rahmen der Festlegung der Aktivitätsschwellenwerte der Kontrollproben (vgl. Empfehlung) zu berücksichtigen.

Insbesondere dann, wenn Nuklidvektoren zur Anwendung kommen, die nicht im o. g. Sinne konservativ definiert worden sind und Aktivitätsschwellenwerte überschritten werden, ist es zum Nachweis der Unterschreitung eines Summenformelwertes von 1 erforderlich, die Eignung des verwendeten Nuklidvektors zu überprüfen.

Unabhängig vom Messverfahren der Entscheidungsmessung ist es geübte Praxis, alle nicht messbaren Nuklide, wie z. B. Alphastrahler oder Sr-90, im Nuklidvektor zu überschätzen.

Zusätzliche Detektoren, die nicht gammastrahlende Radionuklide detektieren könnten, bieten beim Abbau von Kernkraftwerken mit Leichtwasserreaktoren keinen relevanten Sicherheitsgewinn. Die Erfassung der aus dem Messgut emittierten Gammastrahlung ist gegenüber dem Auftreten inhomogener lokaler

Aktivitätsverteilung deutlich robuster. Die empfohlenen Kontrollproben werden von der ESK als ausreichend wirksam und geeignet angesehen. Sie stehen hohen Massendurchsätzen im Freigabeprozess nicht entgegen.

Um den Anteil vermuteter Freigabewertüberschreitungen bei eigentlich freigabefähigen Messgütern zu minimieren, kann eine Nachbewertung von Messchargen erfolgen, die die Alarmwerte bei der Entscheidungsmessung nur geringfügig überschritten haben. Hierfür kann ein realitätsnaher Nuklidvektor zur Anwendung kommen, dessen Anwendbarkeit auf das konkrete Gebinde durch entsprechende Probenauswertungen oder In-situ-Gammaspektrometrie belegt werden muss.

Zusammenfassend kommt die ESK zu dem Schluss, dass die in deutschen kerntechnischen Anlagen etablierten Freigabeverfahren eine zuverlässige Einhaltung der Anforderungen der StrlSchV ermöglichen. Zusätzliche nuklidspezifische Messeinrichtungen in Freimessanlagen sieht sie – insbesondere mit Blick auf stillgelegte Kernkraftwerke – grundsätzlich nicht als notwendig an (vgl. Empfehlung). In begründeten Einzelfällen, z. B. wenn Gebinden kein konservativer Nuklidvektor zugeordnet werden kann, oder in Anlagen, die im Freigabeverfahren nur geringe Massendurchsätze erreichen müssen (z. B. in Forschungseinrichtungen), können derartige Messeinrichtungen jedoch sinnvoll sein.

Weitere alternative Freimesseinrichtungen – wie z. B. Förderbandmessanlagen – können in Spezialfällen zur Anwendung kommen, wenn homogenisierbares Material wie z. B. Erdreich gemessen werden soll.

## **8 Empfehlung**

Die ESK empfiehlt, dass Kontrollproben entnommen und gammaspektrometrisch ausgewertet werden, wenn der Nuklidvektor in Bezug auf die verschiedenen Gammastrahler nicht für alle anlagenweit vorkommenden Nuklidverteilungen abdeckend festgelegt ist und ein festzulegender Aktivitätsschwellenwert im Zuge der Entscheidungsmessung überschritten ist. Die Höhe des Aktivitätsschwellenwerts sollte sich an der Konservativität des Nuklidvektors orientieren („Wie groß könnte die realistischere mögliche Unterschätzung der Summenformelausschöpfung bzw. der Dosisermittlung bei Fehlzuordnung des Nuklidvektors ausfallen?“). Wenn eine solche Kontrollmessung eine deutliche Abweichung der Verteilung der Gammastrahler gegenüber dem Nuklidvektor ergibt, so ist zu klären, ob in Verbindung mit der enthaltenen Aktivität die Summenformel noch eingehalten ist. Ist dies nicht der Fall, so sind auch die übrigen Gebinde der Charge zu bewerten und das Vorgehen mit der atomrechtlichen Aufsichtsbehörde abzustimmen.

## 9 Unterlagen

- [1] IAEA Safety Standards Series  
Application of the Concepts of Exclusion, Exemption and Clearance  
Safety Guide  
No. RS-G-1.7, 2004
  
- [2] IAEA Safety Reports Series  
Derivation of Activity Concentration Values for Exclusion, Exemption and Clearance  
No. 44, 2005
  
- [3] Empfehlung der Strahlenschutzkommission  
Freigabe von Stoffen zur Beseitigung  
Verabschiedet in der 213. Sitzung der Strahlenschutzkommission am 06.12.2006
  
- [4] Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH  
Monte-Carlo-Simulation zur Abschätzung der Auswirkungen unterschiedlicher  
Nuklidverhältnisse der Radionuklide Cs-137 und Co-60 im Nuklidvektor auf die  
Freigabeentscheidung bei Messungen mit einer Gesamt-Gamma-Freimessanlage  
BMUV Vorhaben 4724E03220 vom Oktober 2024
  
- [5] VKTA – Strahlenschutz, Analytik & Entsorgung Rossendorf e. V.  
Arbeitsbericht KS-55/2024, Verwendung der in Freimessanlagen gewonnenen  
Ergebnisse des Gammaskpektrometers zur Überprüfung des Nuklidvektors,  
Revision 0 vom 11.11.2024
  
- [6] Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH  
FRM-03 - Freimessanlage am Standort Tschernobyl  
Präsentation im Rahmen der 99. Sitzung des ESK-Ausschusses STILLLEGUNG  
05.02.2025
  
- [7] Nuclear Engineering Seibersdorf GmbH  
Freimessung von Schüttgütern mit der Erdmessanlage der Nuclear Engineering  
Seibersdorf  
Präsentation im Rahmen des TÜV Nord Freigabesymposiums  
11.09.2024

## **Anhang: Vorgaben des gesetzlichen und untergesetzlichen Regelwerks**

StrlSchV, Anlage 8 Teil A Nr. 1b:

*„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.“*

ESK-Empfehlung „Leitlinien zur Stilllegung kerntechnischer Anlagen“ vom 05.11.2020, Abschnitt 5:

Durch administrative Regelungen ist sicherzustellen, dass die radiologische Charakterisierung im Rahmen der Freigabe der Festlegung endgültiger Nuklidvektoren und abdeckender Messgeometrien dient.

ESK-Empfehlung „Leitlinien zur Stilllegung kerntechnischer Anlagen“ vom 05.11.2020, Abschnitt 7.3:

Das Freigabeverfahren muss die Prüfung wesentlicher Daten (Nuklidvektor, Eignung und Kalibrierung der Messeinrichtungen, Herkunft des Stoffs und gegebenenfalls Aktivitätsverteilung) sowie stichprobenartige Kontrollmessungen ermöglichen.

„Leitfaden zur Stilllegung, zum sicheren Einschluss und zum Abbau von Anlagen oder Anlagenteilen nach § 7 Atomgesetz“ vom 16.09.2021, O.-Ziffer 6.4:

*„Die Freimessung erfolgt nach den Maßgaben des Freigabebescheids. [...] Die Freimessung ist so durchzuführen, dass die spezifische Aktivität bzw. die Kontamination des Materials nicht unterschätzt werden kann (Konservativität der Messung).“*

DIN 25457-1: „Aktivitätsmessverfahren für die Freigabe von radioaktiven Stoffen und kerntechnischen Anlagenteilen - Teil 1: Grundlagen“; Abschnitt 6.2

*„Die für die Freigabeentscheidung gewünschte Konservativität ist bei abdeckenden Nuklidvektoren durch deren Berechnung gegeben. Bei anderen Berechnungsverfahren für Nuklidvektoren kann sie durch die Anwendung von Schwellenwerten sichergestellt werden. Dabei geben die Schwellenwerte an, bis zu welchem Prozentsatz die Freigabewerte ausgeschöpft werden dürfen. Die Schwellenwerte können sich dabei unter anderem an der Variabilität des Messeffekts beim abgeleiteten Freigabewert der Nuklidgemische des zugehörigen Probenensembles orientieren, die zur Berechnung des Nuklidvektors herangezogen wurden. Der Schwellenwert ist dabei von der gewählten Freigabeoption und den nuklidspezifischen Ansprechvermögen des eingesetzten Messgerätes abhängig.*

*[...]*

*Bei ausreichender Konservativität des gewählten Nuklidvektors und der Schwellenwerte kann die Typ B-Unsicherheit des Nuklidvektors nach Abschnitt 7.2 unberücksichtigt bleiben.“*

(Anmerkung: Der Abschnitt 7.2 der DIN 25457-1 regelt die Randbedingungen für die Entscheidungsmessungen unter Berücksichtigung der Anforderungen der DIN ISO 11929).

DIN 25457-1: „Aktivitätsmessverfahren für die Freigabe von radioaktiven Stoffen und kerntechnischen Anlagenteilen - Teil 1: Grundlagen“; Abschnitt 7.2:

*„Das primäre Messergebnis muss mit der Erkennungsgrenze verglichen werden. Falls das primäre Messergebnis größer als die Erkennungsgrenze ist, sind mit mindestens 95-%iger Wahrscheinlichkeit künstliche radioaktive Stoffe im Messgut vorhanden und es muss die obere Grenze des Überdeckungsintervalls bestimmt werden.*

*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.“*