

# Ressortforschungsberichte zur kerntechnischen Sicherheit und zum Strahlenschutz

**Empfehlungen zur Ermittlung der Repräsentativität von  
Nuklidvektoren bei Freigabemessungen**

**- Vorhaben 3604S04441**

Auftragnehmer: Verein für Kernverfahrenstechnik und Analytik Rossendorf (VKTA) e.V., Dresden

Matthias Bothe

Das Vorhaben wurde mit Mitteln des Bundesministeriums für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit (BMU) und im Auftrag des Bundesamtes für Strahlenschutz (BfS) durchgeführt.

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

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

**BfS-RESFOR-01/09**

Bitte beziehen Sie sich beim Zitieren dieses Dokumentes immer auf folgende URN:  
**urn:nbn:de:0221-2009011228**

Salzgitter, April 2009

## Kurzzusammenfassung

Die Festlegung eines Nuklidvektors stellt einen wichtigen Aspekt des Verfahrens zur Freigabe größerer Stoffmengen nach § 29 der Strahlenschutzverordnung dar. Die Anwendung des Nuklidvektors für die Freigabe ist aber nur dann zulässig, wenn er repräsentativ bzw. ausreichend konservativ für die freizugebende Stoffmenge ist. Ziel dieses Projektes war es, Empfehlungen für die repräsentative Ermittlung von Nuklidvektoren zu erarbeiten.

Bei der Zusammenstellung der bisherigen Praxis durch Einholung von Informationen der Landesbehörden und Betreiber zeigte sich, dass neben der Probenahme und Analyse von Proben auch Aktivierungs- und Abbrandrechnungen zur Ermittlung der Nuklidvektoren genutzt wurden. In den meisten Fällen wurden abdeckende Nuklidvektoren und nur in seltenen Fällen Nuklidvektoren auf statistischer Grundlage oder durch Mittelwertbildung berechnet. Bisher ermittelte Nuklidvektoren wurden in einer Excel-Datei erfasst.

Zum Begriff der Repräsentativität ließen sich folgende Aussagen ableiten:

- Die Repräsentativität muss nur im Bezug auf die zu untersuchenden Eigenschaften gewährleistet sein, im Falle des Nuklidvektors also auf die Verhältnisse der Nuklide zueinander.
- Die Repräsentativität lässt sich nicht an Merkmalen der Probe festmachen, sondern muss durch die Richtigkeit und Reproduzierbarkeit des Verfahrens gesichert werden.
- Repräsentativität kann mit vernünftigem und dem Zweck angemessenem Aufwand nicht absolut, sondern nur zu einem festzulegenden Konfidenzniveau erreicht werden. Von der Strahlenschutzkommission wurde ein Vertrauensniveau von 95 % akzeptiert, das auch in zwei einschlägigen Normen enthalten ist.

Im Bericht sind die möglichen Vorgehensweisen bei der Ermittlung repräsentativer Nuklidvektoren beschrieben. Die konkrete Gestaltung des Untersuchungsprogramms ist von der Zielstellung und der radiologischen Situation des zu untersuchenden Objekts abhängig. Für die einzelnen Schritte lassen sich aber verschiedene Möglichkeiten und Regeln für ein sachgerechtes Vorgehen beschreiben. Bei der Erstellung der Probenahmestrategie ist die Kompetenz des Bearbeiters der entscheidende Faktor für die Richtigkeit. Ähnliches gilt bei der Durchführung der Probenahme für den Probennehmer.

Für die Berechnung des repräsentativen Nuklidvektors gibt es drei mögliche Herangehensweisen:

- Berechnung eines abdeckenden Nuklidvektors (konservativ, nicht repräsentativ),
- Berechnung auf statistischer Grundlage (konservativ und repräsentativ),
- Berechnung durch Mittelwertbildung (repräsentativ aber nicht konservativ).

Die Ergebnisse des Projektes sollen zur Vereinfachung des Vorgehens beitragen, den Aufwand für die Herleitung und Begründung konkreter Maßnahmen verringern und die Abstimmung mit Gutachtern und Behörden erleichtern.

## Inhaltsverzeichnis

Inhalt	Seite
Inhaltsverzeichnis .....	4
Tabellenverzeichnis .....	6
Anhangsverzeichnis .....	6
1 Einleitung.....	7
2 Aufgabenstellung.....	8
3 Erfassung bisheriger Freigabeverfahren .....	9
3.1 Praxis bei der Ermittlung der Nuklidvektoren.....	9
3.2 Erstellung einer Datei bekannter Nuklidvektoren.....	16
4 Begriffsdefinitionen.....	18
4.1 Begriffe aus dem Bereich der Probenahme.....	18
4.2 Nuklidvektor und Begriffe im Umfeld .....	19
4.3 Repräsentativität des Nuklidvektors .....	21
5 Herangehensweise zur Ermittlung repräsentativer Nuklidvektoren .....	23
6 Arbeitsschritte bei der Ermittlung von Nuklidevektoren.....	27
6.1 Historische Erkundung und Abgrenzung von Bereichen .....	27
6.2 Auswahl der relevanten Nuklide .....	30
6.3 Erstellung eines Probenahmemessprogramms .....	33
6.3.1 Allgemeines .....	33
6.3.2 Probenarten und Probenahmeverfahren .....	34
6.3.3 Probenzahl und Probenahmestellen.....	35
6.3.4 Probenmenge.....	41
6.3.5 Dokumentation .....	42
6.3.6 Probenahmezeitraum .....	43
6.4 Durchführung von erkundenden Messungen vor Ort.....	43
6.5 Probenahme .....	44
6.6 Probenvorbereitung.....	45
6.6.1 Allgemeines .....	45
6.6.2 Flüssigkeiten.....	45
6.6.3 Schlämme.....	46
6.6.4 Feststoffe.....	46
6.6.5 Oberflächenschichten .....	47
6.7 Analytik.....	47

6.8	Berechnung der Nuklidvektoren .....	56
6.8.1	Allgemeines .....	56
6.8.2	Berechnung abdeckender Nuklidvektoren .....	61
6.8.3	Berechnung von Nuklidvektoren auf statistischer Grundlage .....	63
6.8.4	Berechnung von Nuklidvektoren durch Mittelwertbildung .....	68
6.9	Aktualisierung von Nuklidvektoren.....	69
7	Zusammenstellung der Empfehlungen.....	70
7.1	Allgemeines .....	70
7.2	Historische Erkundung und Abgrenzung von Bereichen .....	72
7.3	Erstellung eines Probenahmemessprogramms .....	72
7.4	Durchführung von erkundenden Messungen vor Ort und Probenahme .....	75
7.5	Probenvorbereitung und Analytik.....	76
7.6	Berechnung und Aktualisierung der Nuklidvektoren .....	78
7.6.1	Allgemeines .....	78
7.6.2	Berechnung abdeckender Nuklidvektoren .....	79
7.6.3	Berechnung von Nuklidvektoren auf statistischer Grundlage .....	80
7.6.4	Berechnung von Nuklidvektoren durch Mittelwertbildung .....	82
7.6.5	Aktualisierung von Nuklidvektoren.....	82
8	Zusammenfassung .....	83
9	Literatur .....	90

## Tabellenverzeichnis

Tab.-Nr.	Titel	Seite
Tabelle 1:	Zusammenstellung von Stilllegungsvorhaben.....	10
Tabelle 2:	Häufigkeit der Anwendung der Freigabeoptionen.....	11
Tabelle 3:	Übersicht über relevante Radionuklide .....	32
Tabelle 4:	Mindestvolumen der Laborprobe in Abhängigkeit von der Korngröße/Stückigkeit [8].....	41
Tabelle 5:	Faktoren $f_{F,Co-60,i}$ für das Schlüsselnuklid Co-60.....	52
Tabelle 6:	Faktoren $f_{F,Cs-137,i}$ für das Schlüsselnuklid Cs-137.....	53
Tabelle 7:	Faktoren $f_{F,Am-241,i}$ für das Schlüsselnuklid Am-241 .....	54
Tabelle 8:	Ermittlung des verkürzten Nuklidvektors.....	59
Tabelle 9:	Ermittlung des verkürzten Nuklidvektors flächen- und massebezogen .....	60

## Anhangsverzeichnis

Anh.-Nr.	Titel
Anhang 1:	CD-ROM mit Excel-Datei „Übersicht über Nuklidvektoren“

## 1 Einleitung

In der Strahlenschutzverordnung von 2001 ist im § 29 die Freigabe geringfügig aktivierter oder kontaminierter Stoffe geregelt. Die Freigabe ist dann möglich, wenn die in Anlage III Tabelle 1 in den Spalten 4 bis 10a aufgeführten Freigabewerte in der Summe aller Nuklide (gemäß der Summenformel nach StrlSchV Anlage IV Punkt 1 Buchstabe e) unterschritten werden. Zur Vereinfachung dieses Nachweises ist es möglich, sich bei einem Nuklidgemisch auf ein leicht messbares Schlüsselnuclid zu beziehen, wenn davon auszugehen ist, dass die Aktivitäten der Nuklide eines Nuklidgemisches in einem festen Verhältnis zu einander stehen und dieses Nuklidverhältnis bekannt ist. Dieses Nuklidverhältnis wird Nuklidvektor genannt. Voraussetzung dafür ist allerdings, dass der an Hand von Stichproben ermittelte Nuklidvektor repräsentativ für das freizugebende Material ist bzw. bei leicht schwankenden Nuklidverhältnissen ausreichend konservativ abgeschätzt wurde.

Bisher gibt es keine Regelungen bzw. Empfehlungen wie ein repräsentativer Nuklidvektor ermittelt werden kann. Die Einschätzung der Repräsentativität erfolgt jeweils durch die Antragsteller, die zuständigen Behörden und die von diesen beauftragten Gutachter.

Die zurzeit gültigen Normen zur Freigabe radioaktiver Reststoffe und kerntechnischer Anlagenteile, DIN 25457 Teile 1, 2, 4, 5, 6 und 7 [1], [2], [3], [4], [5], [6], beschreiben die Messverfahren und die Vorgehensweise bei der Freigabe allgemein. Sie enthalten aber keine Vorgaben für das Vorgehen zur Ermittlung der Nuklidvektoren in konkreten Fällen. Hier wird mit Formulierungen wie „repräsentative Stichprobe“, „geeignetes Messverfahren“, „hinreichend niedrige Nachweisgrenze“ und „vorgegebenes Schema“ eines Messrasters gearbeitet. Der „Freigabeleitfaden“ [7] des Arbeitskreises Entsorgung des Fachverbandes für Strahlenschutz e. V. gibt zwar Hinweise für den Ablauf von Freigabeverfahren, es sind aber keine Angaben zur Repräsentativität von Proben und zu den Anforderungen an Messverfahren enthalten.

Aus diesen Gründen hat das Bundesamt für Strahlenschutz die Erstellung von Empfehlungen zur Ermittlung repräsentativer Nuklidvektoren in Auftrag gegeben.

Der Verein für Kernverfahrenstechnik und Analytik Rossendorf e. V., als Auftragnehmer des Projektes, hat die Firma Safetec GmbH Heidelberg als Nachauftragnehmer eingebunden. Diese hat ihre Erfahrungen beim Rückbau und der Freigabe kerntechnischer Anlagen eingebracht.

Die Ergebnisse des Projektes sollen zur Vereinfachung des Vorgehens beitragen. Die Zusammenstellung von möglichen Herangehensweisen zur Ermittlung repräsentativer Nuklidvektoren soll den Betreibern von Anlagen die Aufstellung und Durchführung entsprechender Probenahmemessprogramme und die Berechnung der Nuklidvektoren erleichtern. Das Vorgehen kann und muss aber auf die Zielstellung der Freigabe und die radiologische Situation der jeweiligen Anlage angepasst werden. Durch die Anwendung der Empfehlungen lässt sich der Aufwand für die Herleitung und Begründung konkreter Maßnahmen verringern und die Abstimmung mit Gutachtern und Behörden vereinfachen. In einzelnen Fällen können Abweichungen von den hier vorgeschlagenen Wegen sinnvoll sein, sie sind dann entsprechend zu begründen.

## 2 Aufgabenstellung

Im Rahmen des Vorhabens sollte in einem ersten Schritt die Praxis bei der Festlegung von Nuklidvektoren möglichst umfassend ermittelt und die Vorgehensweise darauf hin bewertet werden, wie die Repräsentativität des Nuklidvektors definiert ist. Dabei war von den Informationen auszugehen, die auf Grund der Buchführungspflicht (§ 70 der Strahlenschutzverordnung) den zuständigen Behörden der Länder zur Verfügung stehen. Das betrifft die seit Inkrafttreten der Strahlenschutzverordnung 2001 eingegangenen Anträge auf Freigabe großer Stoffmengen, für die typischerweise Nuklidvektoren ermittelt werden. Kleinere Mengen von Abfällen aus Forschung und Medizin, die nicht stichprobenartig, sondern vollständig auf ihre Radioaktivität hin untersucht werden, sollten nicht berücksichtigt werden.

In Ergänzung zur Praxis der Länder waren Literaturrecherchen durchzuführen und hinsichtlich der Verfahren zur Ermittlung repräsentativer Nuklidvektoren zu bewerten.

Auf Grundlage der gewonnenen Informationen sollten die bisher ermittelten Nuklidvektoren in einer Excel-Datei zusammengestellt werden. Es war zu untersuchen, ob es für unterschiedliche kerntechnische Anlagen typische Nuklidvektoren gibt. Beispiele untypischer Nuklidvektoren z. B. auf Grund von Störfällen, sollten beschrieben werden.

Die Ergebnisse dieses ersten Teils des Vorhabens sind im Kapitel 3 des Berichtes und der als Anlage beigefügten Excel-Datei dargestellt. Aus Gründen der Vertraulichkeit gegenüber den Betreibern von Anlagen und auf Wunsch des Bundesamtes für Strahlenschutz als Auftraggeber werden mit Ausnahme bereits anderenorts veröffentlichter Daten, alle Informationen in anonymisierter Form dargestellt.

Auf der Basis dieser Untersuchungen sowie eigener Überlegungen sollte in einem zweiten Schritt ein Empfehlungsentwurf zur Ermittlung repräsentativer Nuklidvektoren erarbeitet werden.

Ausgehend von einer Definition des Begriffs „Repräsentativität des Nuklidvektors“ waren grundlegende Kriterien für die Verfahren zur Ermittlung von Nuklidvektoren zu erstellen. Dabei sollte besonders auf die Mindestforderungen an Messmethoden und Auswertung sowie die Berücksichtigung nicht nachgewiesener Radionuklide bei der Festlegung des Nuklidvektors eingegangen werden.

Im Kapitel 4 des vorliegenden Berichtes wird der Begriff „Repräsentativität des Nuklidvektors“ erläutert. Vorausgehend sind weitere Begriffe im Zusammenhang mit dem Nuklidvektor und der Probenahme definiert.

Das prinzipielle Herangehen zur Ermittlung repräsentativer Nuklidvektoren ist im Kapitel 5 dargestellt und die dazu erforderlichen Arbeitsschritte im Kapitel 6.

Eine Zusammenstellung der in den Kapiteln 5 und 6 abgeleiteten und erläuterten Empfehlungen enthält auf Wunsch des Auftraggebers das Kapitel 7.



### **3 Erfassung bisheriger Freigabeverfahren**

#### **3.1 Praxis bei der Ermittlung der Nuklidvektoren**

Zur Einholung der Informationen zu bisher durchgeführten Freigabeverfahren wurden zunächst die Landesbehörden in Bundesländern, in denen sich entsprechende Einrichtungen befinden, angeschrieben und um ihre Mitwirkung gebeten.

In der Tabelle 1 sind aus der Literatur [46] und [71] und aus eigener Kenntnis relevante Objekte in den einzelnen Bundesländern zusammengestellt. Es handelt sich dabei um Anlagen, die stillgelegt sind, sich in Stilllegung befinden oder deren Stilllegung in den nächsten 5 Jahren bevorsteht.

Mit Hilfe der Landesbehörden waren die durchgeführten Freigaben großer Stoffmengen möglichst vollständig zu erfassen, für die typischerweise Nuklidvektoren ermittelt werden. Kleinere Mengen von Abfällen aus Forschung und Medizin, die nicht stichprobenartig, sondern vollständig auf ihre Radioaktivität hin untersucht werden, sollten nicht berücksichtigt werden. Zu den Freigabevorgängen wurden möglichst detaillierte Informationen erfragt, die eine Übersicht über die dabei verwendeten Nuklidvektoren und deren Erstellung ermöglichen.

Die Reaktionen der Landesbehörden auf die Anfrage waren sehr unterschiedlich und reichten von Ablehnung der Mitarbeit bis hin zu bereitwilligen und detaillierten Zuarbeiten. Durch weitere Erläuterung der Zielstellung und des Charakters des Projektes konnten aber aus allen relevanten Bundesländern Informationen erhalten werden.

In einem zweiten Schritt wurde auch Kontakt mit ausgewählten Betreibern kerntechnischer Anlagen und Gutachtern aufgenommen, um weitere Angaben zu den Nuklidvektoren, den Verfahren zu ihrer Ermittlung und zur Sicherung der Repräsentativität zu erhalten.

Bei der Literaturrecherche wurden fast ausschließlich in den Proceedings von Tagungen Angaben zu den Nuklidvektoren und der Verfahrensweise zu ihrer Ermittlung gefunden. Dabei ist in den meisten Fällen die Ermittlung der Nuklidvektoren nur in groben Zügen beschrieben, so dass eine Beurteilung der Repräsentativität nicht mal ansatzweise möglich ist. Das Vorgehen beim Rückbau des Kernkraftwerks Stade wird hingegen in den letzten Jahren detailliert und nachvollziehbar beschrieben [10], [28], [30], [31], [38], [50], [51], [52].

Daneben gibt es auch Angaben zur Ermittlung der Nuklidvektoren bei folgenden Projekten:

- Forschungsreaktor der Medizinischen Hochschule Hannover [41]
- Versuchsatomkraftwerk (VAK) Kahl [42].
- Radiochemische Labors im Institut für Sicherheits- und Reaktorforschung (ISR) des Forschungszentrums Jülich [34]
- Kernkraftwerk Biblis [35]
- Forschungsreaktoren des Deutschen Krebsforschungszentrums Heidelberg [53]
- Wiederaufbereitungsanlage Karlsruhe (WAK) [60].

Tabelle 1: Zusammenstellung von Stilllegungsvorhaben

Bundesland	Ort	Anlage
Baden-Württemberg	Karlsruhe	Forschungsreaktor MZFR Forschungsreaktoren KNK-I/II Forschungsreaktor FR-2 Wiederaufbereitungsanlage WAK kerntechnische Anlagen MILLI kerntechnische Anlage PUTE radiochemische Labors
	Heidelberg	Forschungsreaktoren des DKFZ HD-I /-II
	Neckarwestheim	Kernkraftwerk GKN-1
	Obrigheim	Kernkraftwerk KWO
	Phillipsburg	Kernkraftwerk KKP-1
Bayern	Essenbach	Kernkraftwerk Isar KKI-1
	Großweilzheim	Heißdampfreaktor HDR
	Gundremmingen	Kernkraftwerk KRB-A
	Kahl	Versuchskraftwerk VAK
	Karlstein	Brennelementewerk Siemens AG Anlage zur Volumenreduzierung schwach radioaktiver Abfälle ARAK
	München	Forschungsreaktor FRM-1
	Niederaichbach	Kernkraftwerk KKN
Berlin	Berlin	Forschungsreaktor des HMI (BER-I) Auerwerke
Brandenburg	Rheinsberg	Kernkraftwerk KKR
Hessen	Frankfurt	Forschungsreaktor der Universität FRF
	Hanau	Produktionsanlagen NUKEM-A Siemens Brennelementewerk
	Biblis	Kernkraftwerk KWB-A
Mecklenburg-Vorpommern	Greifswald	Kernkraftwerk KGR-1 bis -5
Niedersachsen	Braunschweig	Forschungsreaktor der Physikalisch- Technischen Bundesanstalt (FMRB)
	Hannover	Forschungsreaktor der Medizinischen Hochschule (FRH)
	Lingen	Kernkraftwerk KWL
	Stade	Kernkraftwerk KKS
	Esenshamm	Kernkraftwerk Unterweser KKU
Nordrhein-Westfalen	Hamm-Uentrop	Kernkraftwerk THTR
	Jülich	Forschungsreaktor Merlin (FRJ-1) Forschungsreaktor AVR radiochemische Labors
	Würgassen	Kernkraftwerk KWW
Rheinland-Pfalz	Mainz	Forschungsreaktor der Universität Neutronengenerator
	Mülheim-Kärlich	Kernkraftwerk KMK
Sachsen	Dresden- Rossendorf	Forschungsreaktor RFR Forschungsreaktor RRR Forschungsreaktor RAKE Wiederaufbereitungsanlage AMOR Zyklotron abwassertechnische Anlagen
	Zittau	Forschungsreaktor der Technischen Hochschule ZLFR

Außerdem flossen die Erfahrungen der das Projekt durchführenden Firmen, Verein für Kernverfahrenstechnik und Analytik Rossendorf e. V. und Safetec GmbH Heidelberg, ein. Beide waren in den letzten Jahren intensiv an verschiedenen Projekten der Stilllegung kerntechnischer Anlagen und auch direkt an der Ermittlung von Nuklidvektoren beteiligt.

Aus den gesammelten Informationen ergibt sich nachfolgendes Bild hinsichtlich der Praxis bei den Freigabeverfahren, bei denen mit Nuklidvektoren gearbeitet wurde.

Die Angaben stammen aus zehn Bundesländern, in denen folgende Anlagentypen (Anzahl in Klammern) erfasst wurden:

- Kernkraftwerke im Betrieb (5)
- Kernkraftwerke im Rückbau (8)
- Forschungsreaktoren im Rückbau (12)
- radiochemische Labors (4)
- Wiederaufbereitung von abgebrannten Brennstäben (2)
- Brennelementfertigung (2).

Dabei wurden alle Freigabeoptionen der Strahlenschutzverordnung Anlage III Tabelle 1 (Spalten 4 bis 10a) genutzt, allerdings in sehr unterschiedlicher Häufigkeit und mit stark unterschiedlichen Massen. Auf Grund der lückenhaften Angaben lassen sich nur unvollständige Aussagen zur Häufigkeit der Freigabeoptionen in Bezug auf ihre Anwendung in den einzelnen kerntechnischen Anlagen machen.

Tabelle 2: Häufigkeit der Anwendung der Freigabeoptionen

<b>Freigabeoption nach StrlSchV Anl. III Tabelle 1 Spalte Nr.</b>	<b>Anzahl der Anlagen</b>
4 (Oberflächenkontamination)	15
5 (uneingeschr. Freigabe feste Stoffe und Flüssigkeiten)	20
6 (uneingeschr. Freigabe Bauschutt u. Bodenaushub > 1000 t/a)	11
7 (uneingeschränkte Freigabe Bodenflächen)	5
8 (uneingeschr. Freigabe Gebäude zur Wieder-/Weiterverwendung)	8
9 (Freigabe feste Stoffe und Flüssigkeiten zur Beseitigung)	12
10 (Freigabe von Gebäuden zum Abriss)	10
10a (Freigabe von Metallschrott zur Rezyklierung)	3

In mindestens sechs der zehn Bundesländer wurden zusätzlich zu den Freigabeoptionen der Anlage III Tabelle 1 auch Freigaben nach Einzelfallbetrachtungen durchgeführt.

Die in den einzelnen Vorgängen freigegebenen Materialien sind sehr vielfältig:

- Flüssigkeiten (z. B. Reinigungslösung, Schmierstoffe)
- Bauschutt
- Gebäude zum Abriss
- Baumaterialien (z. B. Isoliermaterial, Fußbodenbelag, Kabel, Glas, Holz, Dachpappe, Asbest)
- Bodenaushub
- Stahl, Edelstahl (z. B. Behälter, Rohrleitungen)
- andere Metalle (z. B. Aluminium, Blei, Messing)
- Schlämme (z. B. Chemieschlamm, Klärschlamm)
- Textilien (z. B. Kontrollbereichswäsche)
- Eindampfrückstände
- Filtermaterial
- Gebäude zur Wieder-/Weiterverwendung (z.B. Laborräume)

Auf Grund der Auskünfte der Landesbehörden, die allerdings nicht vollständig waren, lassen sich die Massen folgendermaßen zuordnen:

- |   |           |
|---|-----------|
| • uneingeschränkte Freigabe fester Stoffe und Flüssigkeiten | 32.300 t  |
| • uneingeschränkte Freigabe von Bauschutt und Bodenaushub   | 96.700 t  |
| • Freigabe fester Stoffe und Flüssigkeiten zur Beseitigung  | 55.600 t  |
| • Gebäude zum Abriss  | 101.100 t |

Als Mittelungsmassen wurden im Allgemeinen maximal, die in der Strahlenschutzverordnung Anlage IV genannten 300 kg und als Mittelungsflächen maximal 1000 cm<sup>2</sup> für Gegenstände und 1 m<sup>2</sup> für Gebäude verwendet.

In drei Bundesländern wurde nach Einzelfallprüfungen davon abgewichen und folgende Mittelungsmassen bzw. -flächen für konkrete Freigabevorhaben festgelegt:

Messung von festen Stoffen in der Freimessanlage	3 bzw. 5 m <sup>2</sup>
Messung von festen Stoffen mittels In-situ-Gammaspektrometrie	20 m <sup>2</sup>
Messung von Gebäuden mit möglicher Kontamination	2 m <sup>2</sup>
Messung von Gebäuden mit unwahrscheinlicher Kontamination	20 m <sup>2</sup>
Messung von Bauschutt	10 t
Messung von Bodenaushub	1 t

Über die Anwendung des 10 %-Abschneidekriteriums nach Anlage IV der Strahlenschutzverordnung wurde aus 4 Bundesländern berichtet.

In einem Bundesland gilt in bestimmten Fällen das 10 %-Abschneidekriterium nur für Beta-Strahler, bei Alphastrahlern gilt ein Abschneidekriterium von 1 %. Weiterhin wurde hier festgelegt, dass bei Nukliden, bei denen aus der Betriebshistorie ein Vorhandensein unterstellt wird, Nachweisgrenzen als Messwerte für den zu erstellenden Nuklidvektor berücksichtigt werden. Die Probenahmen sollen so durchgeführt werden, dass vorhandene Maxima erfasst werden. In die Nuklidvektoren sollen dann die maximalen Verhältnisse der vor Ort schlecht messbaren Nuklide (z. B. Sr-90+, Alpha-

strahler) einfließen. Dadurch soll eine ausreichende Konservativität des Nuklidvektors sichergestellt werden.

Mit Ausnahme dieses Bundeslandes wurde von den anderen Bundesländern angegeben, dass es keine länderspezifischen Regelungen zur Ermittlung des Nuklidvektors gibt.

Von den jeweiligen Länderbehörden wurde angegeben, dass die Antragsteller die Repräsentativität der Nuklidvektoren nachgewiesen haben und dass dies durch die Gutachter und die behördliche Kontrolle bestätigt werden konnte. Dazu wurden aber keine detaillierten Angaben gemacht.

Bei den meisten Verfahren, über die von den Länderbehörden berichtet wurde, bestand das Bestreben von Seiten der Antragsteller, die Zahl der Nuklidvektoren möglichst gering zu halten.

Die Zahl der in den erfassten Nuklidvektoren enthaltenen Nuklide variiert zwischen 4 und 26.

In drei Fällen wurde angegeben, dass für die Nuklidvektoren alle 2 Jahre eine Zerfallskorrektur durchgeführt wird. Von zwei Anlagen wurde angegeben, dass eine Korrektur des Nuklidvektors erfolgt, wenn sich der Anteil eines Nuklids um den Faktor 2 ändert.

Es wurde beobachtet, dass die Länderbehörden bei den Freigabebeanträgen zum Teil nur die verkürzten Nuklidvektoren nach Anwendung des 10 %-Abschneidekriteriums mitgeteilt bekommen, ohne dass dies besonders vermerkt wurde.

Zu den untersuchten Probenzahlen für die Ermittlung von Nuklidvektoren in Kernkraftwerken bzw. Forschungsreaktoren wurden von verschiedenen Betreibern nachfolgende Angaben gemacht, die aber kein repräsentatives Bild geben.

- 70 Proben, davon 11 auch radiochemisch untersucht
- 600 Proben, davon 60 auch radiochemisch untersucht
- für die Ermittlung der Nuklidvektoren
  - mindestens eine repräsentative Probe je 1000 kg Material ohne feste Oberfläche
  - mindestens eine repräsentative oberflächennahe Probe je 10 m<sup>2</sup> bei handhabbaren Oberflächen
  - mindestens 1 repräsentative Probe (2 cm tief) je 100 m<sup>2</sup> bei Gebäudeflächen, dabei sind Eindringverhalten und Störstellen zu berücksichtigen
  - mindestens 1 repräsentative Probe (5 cm tief) je 1000 m<sup>2</sup> bei Bodenflächen, dabei sind Eindringverhalten und Beschaffenheit der Bodenoberfläche zu berücksichtigen
  - mindestens 5 Proben je Raum
- ca. 1600 Proben, davon ca. 40 auch radiochemisch untersucht bei ca. 40 Teilsystemen des Kernkraftwerks Stade (Stand 2006) [52]

Die Nuklidvektoren wurden in den meisten Fällen als abdeckende Nuklidvektoren gebildet.

Für das Kernkraftwerk Stade wird in der Literatur [10], [28], [30], [31], [38], [50], [51], [52] über die Berechnung optimierter Nuklidvektoren berichtet und darauf verwiesen, dass dieses Verfahren auch beim Kernkraftwerk Würgassen eingesetzt wurde.

Für die Freigabe von Radiochemischen Labors im Institut für Sicherheits- und Reaktorforschung (ISR) des Forschungszentrums Jülich wurden 12 Nuklidvektoren gebildet. Diese relativ große Zahl an Nuklidvektoren für einen kleinen räumlichen Bereich wird damit begründet, dass in den einzelnen Labors mit sehr unterschiedlichen Radionukliden eines breiten Spektrums (Th, U, Co-60, Sr-90+, Tc-99, Cs-137+, Np, Pu, Am, Cm) umgegangen wurde [34].

Im Kernkraftwerk Biblis decken 14 Nuklide bei allen Freigabearten mindestens 90 % der möglichen Ausschöpfung der Freigabewerte ab [35].

Für die Wiederaufbereitungsanlage Karlsruhe (WAK) wurden im Rahmen des Rückbaus Nuklidvektoren für die Deklaration von radioaktiven Abfällen ermittelt. Das Vorgehen zur Ermittlung der Nuklidvektoren wurde in der Literatur folgendermaßen beschrieben [60]:

Auf Grund der Betriebsdaten zur Nuklidzusammensetzung in den einzelnen Prozessschritten wurde die Anlage in 12 Systeme gegliedert, für die jeweils ein ähnlicher Nuklidvektor zu erwarten ist. Aus dem Betrieb der Anlage gab es auch Erfahrungen über die Anreicherung einzelner Nuklide (z. B. Ru-106+, Tc-99, Np-237+) in verschiedenen Anlagenteilen, daher wurde die Nutzung der Betriebsdaten zur Ermittlung der Nuklidvektoren als nicht ausreichend angesehen und entsprechende Probenahmen und Analysen durchgeführt. Die relevanten Nuklide waren auf Grund von Abbrandrechnungen der aufbereiteten Kernbrennstäbe bekannt. Die Nuklide Co-60, Ru-106+, Sb-125+, I-129, Cs-134, Cs-137+, Eu-154, Eu-155 und Am-241 wurden gammaspektrometrisch und die Nuklide Sr-90+, Tc-99, Np-237+, Cm-244 sowie die Uran- und Plutoniumisotope radiochemisch bestimmt. Auf Grund der unterschiedlichen Korrelation der Nuklide in den Systemen der Anlage wurden die drei Nuklide Co-60, Cs-137+ und Am-241 als Schlüsselnuclide für jeweils einen Bereich ausgewählt:

- Co-60 für den Head End Bereich, d. h. die drei Systeme Brennelement-Transportbehälterreinigung, Brennelement-Lagerung und Wasserreinigung des Brennelement-Lagerbeckens, in diesen Systemen beträgt der Cs-137+-Anteil nur 20 %, 3 % bzw. 1 % des Co-60-Anteils
- Cs-137+ für den Bereich der mechanischen Zerlegung der Brennstäbe und der chemischen Wiederaufarbeitung
- Am-241 und die Uranisotope für die Anlagenbereiche der Endprodukte Uran und Plutonium.

Die anderen analysierten Nuklide wurden als Unterschlüsselnuklide verwendet. Ihnen, wie auch den oben genannten Hauptschlüsselnukliden, wurden auf Grund des jeweils ähnlichen chemischen Verhaltens bzw. radioaktiven Zerfalls, die auf Grund der Abbrandrechnung bekannten aber nicht analysierten Nuklide folgendermaßen zugeordnet:

Co-60: Be-10, Cl-36, Ar-39, Mn-54, Fe-55, Ni-59, Ni-63, Nb-94, Mo-93, Sn-119m  
Zr-93+, Zr-95  
Sr-90+: Pd-107, Cd-113m, Sn-126, Pb-210+, Ra-226+, Ra-228+  
Sb-125: Se-79  
Cs-137+: H-3, C-14, Rb-87, Ag-108m+, Cs-135  
Eu-154: Ce-144+, Pm-147, Sm-151, Eu-152, Ac-227+  
Cm-244: Am-242m+, Am-243+, Cm-242, Cm-243, Cm-245, Cm-246, Cm-247,  
Cm-248, Kr-85 unter Berücksichtigung der Spontanspaltung  
U-Isotope: Th-228+, Th-229+, Th-230, Th-232, Pa-231.

Für die Zwecke der Freigabe werden die Nuklidvektoren durch erneute Probenahmen und nachfolgende Analytik überprüft und entsprechend angepasst.

Bei einigen Reaktoren wurden auch Aktivierungsrechnungen in Kombination mit Probenahme und Analytik zur Ermittlung der Nuklidvektoren von aktivierten Materialien eingesetzt.

Gelegentlich wurden aber aus Sicht des Betrachters Schwachstellen bei der Umsetzung des Nuklidvektorkonzepts deutlich. Beispiele dafür sind:

- Erstellung des Nuklidvektors an Hand weniger Proben ohne die Homogenität des Materials zu überprüfen
- Vermengung mehrerer Nuklidvektoren unterschiedlichen Materials oder unterschiedlicher Herkunft zu einem übergreifenden Nuklidvektor durch einfache Mittelung
- Anwendung des Nuklidvektors eines Materials auf andere Materialien ohne Überprüfung, ob der Nuklidvektor auch auf dieses zutrifft
- Erstellung eines Nuklidvektors ohne Beachtung der Herkunft der Radionuklide aus Aktivierung (Grundmaterial) oder Kontamination (Oberfläche)
- Anwendung des 10 %-Abschneidekriteriums auf den ungewichteten Nuklidvektor
- nicht alle relevanten Nuklide bei der Analytik oder Berechnung des Nuklidvektors berücksichtigt
- keine Angabe des Bezugsdatums des Nuklidvektors bzw. keine Gültigkeitsdauer

Dies zeigt, dass es durchaus sinnvoll ist, Empfehlungen zur Ermittlung repräsentativer Nuklidvektoren zu erarbeiten.

### 3.2 Erstellung einer Datei bekannter Nuklidvektoren

Im Rahmen des Projektes wurden für bisher durchgeführte Freigabeverfahren gemäß § 29 StrlSchV die Daten über die freigegebenen Materialien, die zugehörigen Nuklidvektoren und die zur Beurteilung der Repräsentativität relevanten Informationen gesammelt und in geeigneter Weise zusammengestellt. Dabei waren nur die Anträge auf Freigabe größerer Stoffmengen relevant. Kleine Mengen Abfälle aus Forschung und Medizin, die nicht stichprobenartig, sondern vollständig auf ihre Radioaktivität untersucht werden, sollten nicht betrachtet werden. Die Informationen wurden erhalten auf Grund von:

- Tätigkeit der Auftragnehmer dieser Studie bei der Ermittlung von Nuklidvektoren
- Tätigkeit der Auftragnehmer dieser Studie bei der Freimessung, bei der die Nuklidvektoren durch die Auftraggeber vorgegeben waren
- Literaturdaten
- Angaben der zuständigen Landesbehörden
- Angaben der Betreiber.

Die Darstellung im Bericht erfolgt in Absprache mit dem Auftraggeber in anonymisierter Form, um so betriebliche Interessen in geeigneter Weise zu schützen.

Die Excel-Datei mit den gesammelten Nuklidvektoren kerntechnischer Anlagen ist als Datei auf CD-ROM als Anlage zu diesem Bericht angefügt.

Es wurden Nuklidvektoren für folgende Anlagentypen und Materialien erfasst (Anzahl in Klammern):

Anlagentypen:

- Kernkraftwerke (9)
- Forschungsreaktoren (9)
- radiochemische Labors (2)
- Heiße Zellen (1)
- Abwasserbehandlungsanlagen (2)
- Wiederaufbereitungsanlagen (2)
- Brennelementproduktion (1)

Materialien:

- Beton (48)
- Barytbeton (6)
- Boden (3)
- Stahl (19)
- Aluminium (8)
- Kupfer (1)
- Blei (1)
- Cadmium (1)



- Eisenoxid (1)
- Grafit (8)
- Kunststoff (5)
- Ionenaustauscherharz (1)
- Filtermaterial (2)
- Staub (2)
- Schlamm (5)
- Verdampferkonzentrat (6)
- Oberflächenmaterial (Kratzproben, Ätzproben, Lack) (25)
- Wischproben (16)
- Mischabfälle (1).

Die zur Verfügung stehenden Daten sind häufig lückenhaft. So fehlen fallweise einzelne der folgenden Angaben:

- genaue Materialbezeichnung
- betroffenes Anlagenteil
- vollständiger oder vereinfachter Nuklidvektor
- Einzelanalyse oder berechneter Nuklidvektor
- charakteristischer Nuklidvektor oder störfallbedingte Kontamination
- Nachweisgrenzen
- Messunsicherheiten.

Aus diesem Grund war eine systematische Auswertung der gesammelten Nuklidvektoren nicht möglich. Insbesondere lassen sich keine Anhaltspunkte finden, ob es für bestimmte Situationen (z. B. Anlagen oder Materialien) typische Nuklidvektoren gibt.

Eine Auswertung der Nuklidvektoren hinsichtlich ihrer Repräsentativität und Konservativität war auch auf Grund der zu geringen Informationen über die Verfahrensweise bei der Ermittlung in keinem Fall möglich. Die dafür erforderlichen detaillierten Angaben zur radiologischen Situation in den Anlagen, den Probenahmestellen, den Probenahmeverfahren, den Analysenverfahren und Analyseergebnissen und den Modalitäten der Berechnung der Nuklidvektoren standen in keinem Fall zur Verfügung.

Im Weiteren wird gezeigt, dass dies auch aus methodischen Gesichtspunkten im Nachhinein nur bedingt möglich ist, da sich die Repräsentativität nur am Prozess (Verfahren zur Ermittlung des Nuklidvektors) und nicht am Ergebnis (Nuklidvektor) beurteilen lässt.

## 4 Begriffsdefinitionen

### 4.1 Begriffe aus dem Bereich der Probenahme

Im folgenden sind die Definitionen einiger wichtiger Begriffe aus dem Bereich der Probenahme zusammengestellt, die für das bessere Verständnis der Definition des Begriffs „Repräsentativität des Nuklidvektors“ und der Maßnahmen zu seiner Umsetzung hilfreich sind. Dabei wurde auf die einschlägigen Normen zurückgegriffen.

#### **Grundgesamtheit**

Gesamtheit der betrachteten Aspekte. [62]

#### **Probe**

Anteil eines [Boden-]Materials, der aus einer größeren Menge dieses Materials ausgewählt wurde. [62]

#### **Probenahme**

Vorgang der Entnahme oder Zusammenstellung einer Probe. [49]

#### **Probenahmestrategie:**

Satz technischer Grundsätze zur Lösung der Hauptfragen der Probenahmedichte und der räumlichen Verteilung der beprobten Flächen, abhängig von den Untersuchungszielen und der betrachteten Fläche. [68]

#### **Probenahmeplan**

Vorbestimmte Vorgehensweise zur Auswahl, Entnahme, Vorbehandlung vor Ort, Transport und Vorbehandlung der Mengen, die aus der Grundgesamtheit als Probe entnommen werden. [62]

Exaktes Protokoll, das, abhängig von der Umsetzung der anzuwendenden Probenahmestrategie, die räumlichen und zeitlichen Abstände der Probenahme festlegt, deren Häufigkeit, die Probennummer, die gesammelten Mengen usw., sowie die für die Durchführung der Probenahme erforderlichen Arbeitskräfte. [68]

#### **Probenahmeverfahren**

Durchführungsanforderungen und –anleitungen bezogen auf einen speziellen Probenahmeplan [62]

#### **homogen**

Grad der gleichförmigen Verteilung einer Eigenschaft oder eines Bestandteils in einer Materialmenge. [62]

#### **heterogen**

Grad der ungleichförmigen Verteilung einer Eigenschaft oder eines Bestandteils in einer Materialmenge. [62]

Das Material kann mit Bezug auf einen Analyten oder eine Eigenschaft homogen sein, jedoch heterogen mit Bezug auf einen weiteren/eine weitere. Der Grad der Heterogenität (Gegensatz zur Homogenität) ist der bestimmende Faktor des Probenahmefehlers. [48]

**Probenahmefehler**

Teil des Gesamtfehlers (des Schätzwertes einer Probe abzüglich des Grundgesamtheitswerts), verursacht durch Extrapolation fraktionsbezogener Ergebnisse auf die Grundgesamtheit und Unterschiede zum Analysefehler oder Messfehler. Ursache ist die nicht vorhandene Homogenität der Grundgesamtheit. [62]

**Mindestprobenumfang**

Mindestmaterialmenge einer Probe, bei der die durch die einzelnen Teilchen des Materials verursachte Variabilität eine vernachlässigbare Auswirkung hat. [62]

**maximale Korngröße**

Korngröße, die der Maschenweite eines Siebes entspricht, auf dem ein Massenanteil des Materials von maximal 5 % (Masseanteil) verbleibt. [62]

**Probenviertelung**

Verringerung der Menge einer körnigen oder staubförmigen Probe durch Aufteilung in Viertel. Zwei der gegenüberliegenden Viertel werden vereinigt, die beiden anderen Viertel werden verworfen. Der Vorgang wird solange wiederholt, bis die gewünschte Menge für die anschließende Verwendung (z. B. als Laborprobe oder Analysenprobe) erreicht ist. [62]

**4.2 Nuklidvektor und Begriffe im Umfeld****Schlüsselnuklide:**

Schlüsselnuklide sind messtechnisch einfach erfassbare Radionuklide, über deren Messung das Aktivitätsinventar schwierig zu messender Radionuklide rechnerisch bestimmt werden kann [3]. In Sonderfällen kann es auch zweckmäßig sein, das Radionuklidgemisch in Teilgruppen zu zerlegen und für diese jeweils Schlüsselnuklide festzulegen [4]. Die Gesamtaktivität ergibt sich dann aus der Summe der Teilaktivitäten. Solche Teilgruppen können z. B. Aktivierungsprodukte, Spaltprodukte, Kernbrennstoff und Transurane sein.

**Hochrechnungsfaktor:**

Der Hochrechnungsfaktor ist ein dimensionsloser Faktor, mit dem aus der Aktivität der Schlüsselnuklide die Gesamtaktivität ermittelt wird [3].

$$A = A_s \times f_s$$

- A - im Material enthaltene Gesamtaktivität
- $A_s$  - Aktivität der Schlüsselnuklide
- $f_s$  - Hochrechnungsfaktor ( $f_s \geq 1$ )

**Nuklidvektor:**

Der Nuklidvektor gibt die relativen Anteile der Aktivität der Einzelnuklide an der Gesamtaktivität wieder.

$$\frac{a_i}{\sum_i a_i} = v_i$$

- $a_i$  - spezifische Aktivität des Nuklids  $i$   
 $v_i$  - Anteil des Nuklids  $i$  am Nuklidvektor

**gewichteter und normierter Nuklidvektor:**

Der gewichtete Nuklidvektor wird bestimmt, indem für jedes Radionuklid die Verhältniszahl aus Anteil am Nuklidvektor und relevantem Freigabewert gemäß StrlSchV Anlage III Tabelle 1 Spalte 4 bis 10a gebildet wird. Die dabei erhaltenen Werte werden normiert. Der gewichtete und normierte Nuklidvektor zeigt die radiologische Relevanz der Einzelnuklide. [9]

$$\frac{\frac{v_i}{R_i}}{\sum_i \frac{v_i}{R_i}} = w_i$$

- $v_i$  - Anteil des Nuklids  $i$  am Nuklidvektor  
 $R_i$  - relevanter Freigabewert des Nuklids  $i$   
(flächen- oder massebezogen, nach StrlSchV Anl. III, Tab. 1)  
 $w_i$  - Anteil des Nuklids  $i$  am gewichteten und normierten Nuklidvektor

**konservativ:**

Vorgehen das zu einer Überschätzung des Risikos führt, z. B. durch Überbewertung nicht gammaspektrometrisch messbarer Radionuklide.

**abdeckender Nuklidvektor:**

Zusammenfassung mehrerer Nuklidvektoren, in der Weise, dass er die ungünstigste Kombination aller zusammengefassten Nuklidvektoren in sich vereinigt. Er führt daher zu einer deutlich konservativeren Bewertung als die einzelnen Nuklidvektoren. Seine Anwendung kann aber andere Vorgänge vereinfachen.

### 4.3 Repräsentativität des Nuklidvektors

Im Unterschied zur Höhe der spezifischen Aktivität, die in einem zu untersuchenden Objekt um Größenordnungen variieren kann, ist davon auszugehen, dass der Nuklidvektor bei gleicher Materialzusammensetzung und ähnlicher Aktivierungs- und Kontaminationsgeschichte eine geringere Variabilität aufweist. So kann z. B. die spezifische Aktivität der Kontamination auf einer Fläche bei gleich bleibendem Nuklidvektor von der Kontaminationsquelle her mit zunehmender Entfernung stark abnehmen. Analog nimmt die spezifische Aktivität in einem aktivierten Material mit zunehmender Entfernung von der Neutronenquelle ab, ohne dass sich die Nuklidzusammensetzung ändern muss.

Die Repräsentativität der Nuklidvektoren ist also mit geringerem Aufwand erreichbar als die Repräsentativität für die Einhaltung der Freigabewerte, da bei letzterer neben den Verhältnissen der Nuklide zueinander (Nuklidvektor) auch noch die absolute Höhe der Aktivität mit eingeht.

Zur Bestimmung von repräsentativen Nuklidvektoren empfiehlt sich ein systematisches, schrittweises und reproduzierbares Vorgehen. Das entspricht auch der Definition, die Gy für die Repräsentativität von Proben gegeben hat: „A sample is representative when it is taken by a selection method that is both accurate and reproducible“ [25], d. h. eine Probe ist dann repräsentativ, wenn sie mittels eines Probenahmeverfahrens genommen wurde, das sowohl richtig als auch präzise ist.

**Die Repräsentativität lässt sich nicht an Merkmalen der Probe festmachen, sondern muss durch die Richtigkeit und Reproduzierbarkeit des Verfahrens gesichert werden.**

Deshalb kommt es bei der Planung und Durchführung des Verfahrens auf jeden einzelnen Schritt an. Fehler die bei einem Schritt gemacht werden, beeinträchtigen das Endergebnis, wobei die Fehler bei den früheren Schritten (Planung und Probenahme) schwerwiegender sind als die bei späteren Schritten (Analytik und Berechnung), da sie nur mit größerem Aufwand, nämlich durch erneute Probenahme, korrigiert werden können.

Da sich die Repräsentativität nicht am Ergebnis, d. h. den Nuklidvektoren, sondern nur am Prozess, der zu diesem Ergebnis geführt hat, überprüfen lässt, ist eine lückenlose und detaillierte Dokumentation aller Arbeitsschritte, Überlegungen und Schlussfolgerungen erforderlich. Aus dem gleichen Grund ist es vorteilhaft, wenn die Beurteilung durch Behörden und gegebenenfalls auch Gutachter schon bei der Planung und Durchführung stattfindet. Nur so lassen sich Unterschiede in der Einschätzung einzelner Schritte durch Antragsteller, Behörde und Gutachter feststellen, diskutieren und Schlussfolgerungen für die weitere Arbeit ziehen. Eine Beurteilung im Nachhinein ist nur sehr bedingt möglich.

Breiter et al. definieren eine repräsentative Probe so: Eine repräsentative Probe stimmt mit der Grundgesamtheit im Bezug auf die zu untersuchenden Merkmale innerhalb eines festgelegten Vertrauensbereichs zu einem bestimmten Konfidenzniveau überein [26].

In der E DIN ISO 11074 „Bodenbeschaffenheit – Wörterbuch“ [62] wird eine repräsentative Probe wie folgt definiert:

„Probe, die nach einem Probenahmeplan entnommen ist, der die im Untersuchungsinteresse stehenden Eigenschaften der Grundgesamtheit in entsprechender Weise berücksichtigt.“

In der Anmerkung zu dieser Definition wird noch festgestellt, dass der Grad der Repräsentativität aus Kostengründen oder aus zweckdienlichen Gründen eingeschränkt werden kann.

In beiden Definitionen wird also bewusst nur auf die zu untersuchenden Merkmale orientiert.

**Die Repräsentativität muss nur im Bezug auf die zu untersuchenden Eigenschaften gewährleistet sein, im Falle des Nuklidvektors also auf die Verhältnisse der Nuklide zueinander.**

Im Hinblick auf die Frage der Repräsentativität der Nuklidvektoren vereinfacht das die Situation deutlich, wenn die Proben nicht mehr für alle radiologischen Eigenschaften, sondern nur noch für den Nuklidvektor repräsentativ sein müssen. Hinsichtlich der Repräsentativität für alle radiologischen Eigenschaften würden sonst ähnliche Probleme auftreten wie bei der repräsentativen Beprobung von Abfällen, d. h. eine mathematisch-statistisch begründete Repräsentativität wäre nur mit unverhältnismäßig hohem Aufwand erreichbar [8].

Andererseits wird auch in beiden Definitionen darauf hingewiesen, dass es sinnvoll ist die Repräsentativität auf ein bestimmtes Konfidenzniveau zu beziehen, das heißt den Grad der Repräsentativität einzuschränken. Darauf stellt im Bereich konventioneller Abfälle die LAGA-Richtlinie [8] noch viel stärker ab, indem sie empfiehlt statt von „repräsentativen Proben“ besser von „abfallcharakterisierenden Proben“ auszugehen.

**Repräsentativität kann mit vernünftigem und dem Zweck angemessenem Aufwand nicht absolut, sondern nur zu einem festzulegenden Konfidenzniveau erreicht werden.**

Das für statistische Betrachtungen zugrunde zu legende Vertrauensniveau soll nach Stellungnahme der Strahlenschutzkommission zum Rückbaukonzept des Kernkraftwerks Stade 95 % sein [10].

Das gleiche Vertrauensniveau wird auch für die Hochrechnungsfaktoren in zwei einschlägigen Normen für die Freigabe von Bauschutt und Gebäuden [5] und Boden [6] angegeben.

Es wurden noch zwei weitere Definitionen der Repräsentativität gefunden. Im Freigabeleitfaden des Arbeitskreises Entsorgung des Fachverbandes Strahlenschutz [7] heißt es:

„Ein Nuklidvektor ist repräsentativ, wenn eine mit ihm kalibrierte Messeinrichtung die Aktivität im Hinblick auf die Freigabe nicht unterschätzt.“

Diese Definition beschreibt aber nicht die Repräsentativität des Nuklidvektors, sondern die Konservativität, wie sie auch im Abschnitt 4.2 definiert ist. Ein abdeckender Nuklidvektor erfüllt diese Bedingung auch.

In einer betrieblichen Anleitung wurde folgende Definition gefunden:

„Repräsentativ ist die Probenentnahme, wenn von allen unterschiedlichen Oberflächenformen oder Materialarten Proben entnommen werden.“

Das ist für eine repräsentative Probenahme sicherlich ein Ansatzpunkt, reicht aber bei weitem nicht aus. Es kommt vielmehr darauf an, die Stellen zu beproben, an denen auf Grund der Betriebsgeschichte unterschiedliche Kontaminationen möglich sind. Außerdem ist die Probenahme so durchzuführen, dass die Proben auch den Nuklidvektor des Materials widerspiegeln. Näheres zur Probenahme ist in den folgenden Abschnitten zu finden.

## **5 Herangehensweise zur Ermittlung repräsentativer Nuklidvektoren**

Aus der oben gegebenen Definition des repräsentativen Nuklidvektors ist abzuleiten, dass er nur durch ein systematisches, schrittweises und reproduzierbares Verfahren zu ermitteln ist.

Dabei sollen bereits vorhandene Daten der Anlage genutzt werden, um darauf aufbauend ein Programm zur Messung, Probenahme und Laboruntersuchung zu erstellen und durchzuführen. Der dabei betriebene Aufwand ist wesentlich von der Komplexität und radiologischen Situation abhängig. Im Folgenden wird der prinzipielle Ablauf beschrieben. Dabei werden die Empfehlungen aus der „Rahmenrichtlinie zur Freigabe von radioaktiven Stoffen nach § 29 Strahlenschutzverordnung“ des TÜV Nord e. V. [9] und der Stellungnahme der Strahlenschutzkommission zu Stilllegung und Rückbau des Kernkraftwerks Stade [10] genutzt.

Die Ermittlung der Nuklidvektoren wird bei allen Projekten im Wesentlichen nach folgender Schrittfolge ablaufen:

1. Historische Erkundung und Abgrenzung von Bereichen
2. Auswahl der zu untersuchenden Nuklide
3. Erstellung eines Probenahmemessprogramms
4. Durchführung erkundender Messungen vor Ort
5. Probenahme
6. Probenvorbereitung
7. Analytik
8. Berechnung der Nuklidvektoren
9. Aktualisierung der Nuklidvektoren

Die konkrete Gestaltung des Untersuchungsprogramms ist dann von der Zielstellung und der radiologischen Situation der Anlage abhängig. Darauf wird später noch eingegangen.

Für die einzelnen Schritte lassen sich aber unabhängig von der konkreten Situation verschiedene Möglichkeiten und Regeln für ein sachgerechtes Vorgehen beschreiben. Darauf wird im Kapitel 6 detailliert eingegangen.

Einen wesentlichen Einfluss auf die Unsicherheit der Probenahme und damit auf die Repräsentativität des Nuklidvektors haben [58]:

- die Probenahmestrategie,
- der Probenehmer und
- die Probenmenge.

Dabei stellt Spirgath in seiner Dissertation „Entwicklung von Kriterien zur Beurteilung der Unsicherheiten bei der Probenahme von Feststoffen“ [58] auf Grund der Auswertung entsprechender Untersuchungen klar heraus, dass bei der Erstellung der Probenahmestrategie die Kompetenz des Bearbeiters der entscheidende Faktor für die Richtigkeit ist. Ähnliches gilt bei der Durchführung der Probenahme für den Probenehmer.

Die Kompetenz des Bearbeiters lässt sich nicht durch Normen und Regelungen ersetzen. Diese können und sollen aber als Hilfsmittel durch den Bearbeiter genutzt werden. In diesem Sinne verstehen sich auch die hier erstellten Empfehlungen. Sie sollen keine Reglementierung sein, sondern

- Möglichkeiten zur Auswahl zeigen
- als Merkpostenliste dienen
- Hinweise in besonderen Fällen geben
- Begründungspflichten reduzieren
- Fehler vermeiden helfen.

Die Erarbeitung der Probenahmestrategie erfordert spezifisches Vorgehen in Abhängigkeit von der Zielstellung für die die Nuklidvektoren ermittelt werden und den Gegebenheiten des Objekts.

Bei der Zielstellung spielen die Rückbautechnologie, der Zeitfaktor und die Kosten bzw. Erlöse eine große Rolle. Dies lässt sich an einigen Beispielen veranschaulichen.

Beim Rückbau des Kernkraftwerkes Stade soll rückbaubegleitend unmittelbar die Entscheidung gefällt werden, ob das jeweils gemessene und mit Hilfe des Nuklidvektors bewertete Material freigegeben werden kann oder als radioaktiver Abfall zu behandeln ist. Dabei geht es um eine möglichst hohe Ausschöpfung der Freigabemöglichkeiten, um die radioaktiven Abfälle zu minimieren. Dazu sind Nuklidvektoren hilfreich, die möglichst realistisch die im Material enthaltene nuklidspezifische Aktivität abschätzen. Das gelingt am Besten durch eine größere Anzahl angepasster Nuklidvektoren, die nicht konservativer als notwendig sind.

Bei den Energiewerken Nord wurden hingegen ausreichend Möglichkeiten der Lagerung zum Abklingen und zur späteren Dekontamination geschaffen [66]. Der Zeitfaktor ist also nicht so bedeutsam. Andererseits wurde hier der Schwerpunkt auf eine möglichst einfache und für die Mitarbeiter nachvollziehbare Handhabung der Nuklidvektoren gelegt. Die wenigen abdeckenden Nuklidvektoren führen aber trotz ihrer konservativen



Abschätzung des Radionuklidinventars im überwiegenden Teil der Fälle nur zu einer Ausschöpfung der Freigabewerte in der Höhe von 10 – 20 % [67].

Bei der Kostenfrage spielt zum Beispiel eine Rolle, ob die Einlagerungskapazitäten in einem Endlager bereits bezahlt sind und die Maßnahmen zur Verbesserung der Freigabemöglichkeiten aber zusätzliche Kosten verursachen. Auch die möglichen Erlöse für freigegebene Reststoffe, die dem Wirtschaftskreislauf wieder zugeführt werden können, sind zu berücksichtigen.

Ein systemweiser Rückbau ermöglicht es häufig mit geringerer Zahl von Nuklidvektoren arbeiten zu können, weil die Nuklidvektoren im Allgemeinen in geschlossenen Systemen (z. B. Primärkreislauf) konstant bleiben und Querkontaminationen bei dieser Art des Rückbaus weitestgehend vermieden werden können.

Beim systemübergreifenden Rückbau ist dagegen mit Querkontaminationen zu rechnen, dadurch können die Nuklidvektoren der einzelnen Systeme in einer vorher nicht zu bestimmenden Weise miteinander vermischt werden.

Das konkrete Vorgehen ist wie oben genannt auch abhängig von den Gegebenheiten des Objekts. Dabei stehen im Vordergrund:

- Anlagentyp
- Materialarten
- Masse
- Art der Aktivitätsentstehung (Aktivierung, Kontamination durch bestimmungsmäßigen Betrieb, Kontamination durch Störfälle)
- Aktivitätsniveau
- Homogenität
- Grad der Vorkenntnisse.

Bei einigen Anlagentypen beeinflussen Besonderheiten das Vorgehen. Beispiele dafür sind:

Produktionsanlagen (z. B. für Brennelemente, Glühstrümpfe, Radionuklidquellen und Radiopharmaka):

- hier handelt es sich meist um ein enges und bekanntes Nuklidspektrum,
- daher wird der Aufwand für die Ermittlung von Nuklidvektoren relativ gering sein

Wiederaufbereitungsanlagen für Kernbrennstäbe:

- hier ist ein sehr breites und verschiedenartiges Nuklidspektrum zu erwarten, das während des Betriebs der Anlage möglicherweise auch zeitlichen Schwankungen unterlegen hat
- die Nuklidvektoren werden daher stark variieren und möglicherweise nur einen engen räumlichen Geltungsbereich haben

#### Forschungsreaktoren:

- es ist mit selteneren Konstruktionsmaterialien zu rechnen (z. B. Graphit, Beryllium, Cadmium, Blei, Kupfer), die entsprechend auch andere Aktivierungsprodukte aufweisen
- es wurden möglicherweise andere Materialien zu Forschungszwecken aktiviert bzw. Experimente mit radioaktiven Stoffen durchgeführt
- es muss daher mit anderen Radionukliden und kleinräumigen Variationen des Nuklidvektors gerechnet werden

#### Teilchenbeschleuniger und Neutronengeneratoren:

- die Bestrahlung der Materialien mit geladenen Teilchen bzw. Neutronen definierter Energie erzeugt andere Aktivierungsprodukte als in Kernreaktoren
- es werden zum Teil andere Konstruktionsmaterialien als bei Reaktoren eingesetzt, die entsprechend auch andere Aktivierungsprodukte aufweisen
- die Anlagen weisen einen engeren Bestrahlungsbereich auf, es muss aber mit Streufeldern gerechnet werden
- es sind daher andere Radionuklide und räumliche Variationen des Nuklidvektors zu erwarten

#### radiochemische Labors und Heiße Zellen

- bei der präparativen Arbeiten (z. B. Synthese markierter Verbindungen): meist enges und bekanntes Nuklidspektrum analog zu Produktionsanlagen
- bei der Analytik: breites, zeitlich und räumlich stark variierendes Nuklidspektrum, aber meist geringe Aktivität
- Anwendung von Radionukliden, Strahlenforschung: breites, zeitlich und räumlich stark variierendes Nuklidspektrum und hohe Aktivitäten sind möglich

#### Abfall- und Abwasserbehandlungsanlagen:

- verschiedene, möglicherweise wechselnde Technologien der Abfall- und Abwasserbehandlung und zeitlich variierendes Nuklidinventar der Abfälle und Abwässer
- es ist von einem breiten und räumlich stark variierenden Nuklidspektrum auszugehen

#### Transportwege und Lagerräume:

- Transport- und Lagerprozesse sind häufig hinsichtlich des zeitlichen und räumlichen Ablaufs und des dabei gehandhabten Nuklidinventars nicht nachvollziehbar
- mögliche Störfälle sind nicht immer vollständig dokumentiert
- kontaminierte Flächen müssen zunächst gesucht werden.

Auf jeden Fall ist zu Beginn der Planung zu überprüfen, ob die Arbeit mit Nuklidvektoren für die Freigabe sinnvoll ist. Sie ist vor allem dann fraglich, wenn es sich um relativ kleine freizugebende Massen handelt oder um hinsichtlich der Nuklidzusammensetzung extrem inhomogene Materialien. In letzterem Fall ist es auch möglich zu untersuchen, ob die schwer bestimmbaren Alpha- und Betastrahler, eventuell gruppenweise, in relativ fester Korrelation zu bestimmten Gammastrahlern stehen. Diese können dann als Teilnuklidvektoren angesehen werden, die sich auf jeweils ein Schlüsselnuklid beziehen. Dann könnte bei schwankenden Relationen der Gammastrahler untereinander das Material chargenweise komplett nuklidspezifisch mittels Gammaskopimetrie gemessen

und die schwerer bestimmbaren Alpha- und Betastrahler über die Teilnuklidvektoren zur Bewertung hinsichtlich der Freigabe einbezogen werden.

Die Bildung und Anwendung einer begrenzten oder unbegrenzten Anzahl von Nuklidvektoren für freizugebende Objekte hat folgende Vor- und Nachteile [28]:

begrenzte Zahl von Nuklidvektoren:

- die Nuklidvektoren sind häufig zu konservativ, das führt zu einer starken Überschätzung der Dosis und damit möglicherweise zu einer nicht gerechtfertigten Verweigerung der Freigabe
- die geringe Anzahl ist leichter handhabbar
- die Nuklidvektoren sind für das Personal leichter nachvollziehbar
- die Plausibilitätskontrolle wird erleichtert
- die Entscheidungen zur Zuordnung der Materialien sind leichter

unbegrenzte Zahl von Nuklidvektoren:

- die Nuklidvektoren sind jeweils nur für begrenzte Stoffmengen gültig
- die Nuklidvektoren sind nicht so konservativ, dadurch bessere Ausschöpfung der Freigabemöglichkeiten
- die Nuklidvektoren sind passender zu den jeweiligen Objekten
- die Handhabung der größeren Anzahl ist schwieriger, meist nur über EDV möglich

Es ist daher im konkreten Fall zu entscheiden, welches Vorgehen vorteilhafter ist.

Schon an dieser Stelle sei auf die hohe Aussagekraft von gewichteten Nuklidvektoren hingewiesen. Als Maß für die Wichtung werden die jeweiligen Freigabewerte für die vorgesehene Freigabeoption (StrlSchV Anlage III Tabelle 1 Spalte 4 bis 10a) für jedes Nuklid genutzt. So lässt sich die radiologische Relevanz der einzelnen Radionuklide besser beurteilen. Hohe Aktivitätsanteile von Nukliden, die auch hohe Freigabewerte haben (z. B. H-3, C-14, Fe-55 und Ni-63), verlieren so an Bedeutung, während andererseits Nuklide mit niedrigen Freigabewerten wie die Actinide hinsichtlich ihrer Relevanz für die Freigabe deutlicher erkennbar werden. Auch das 10 %-Abschneidekriterium nach StrlSchV Anlage IV kann erst auf den gewichteten und normierten Nuklidvektor angewandt werden.

## **6 Arbeitsschritte bei der Ermittlung von Nuklidevektoren**

### **6.1 Historische Erkundung und Abgrenzung von Bereichen**

Ausgangspunkt der Planung muss die historische Erkundung, das heißt die Erfassung der vorhandenen Kenntnisse zur Anlage sein. Dies kann mit Hilfe eines Raum- bzw. Systembuches geschehen, in dem die relevanten Daten zusammengetragen werden.

Wichtig ist dabei vor allem die Erfassung der aktivierten Bereiche und der Ausbreitungswege für Radionuklide aus dem Aufbau der Anlage und der Betriebshistorie. Da-

bei sind sowohl der bestimmungsgemäße Betriebsablauf als auch Einzelereignisse wie z. B. Abweichungen vom bestimmungsgemäßen Betrieb und der Ein- und Ausbau von Komponenten zu berücksichtigen.

Als Ausbreitungswege für Radionuklide kommen dabei in Frage:

- Wasserkreisläufe
- Abwasser
- Dampf
- Aerosole
- Staub
- Leckagen.

Im nächsten Schritt sollen Bereiche voneinander abgegrenzt werden, für die ein homogener Nuklidvektor zu erwarten ist. Die Grenzziehung zwischen den Bereichen soll zunächst auf Grund physikalischer, verfahrenstechnischer, chemischer und werkstoffkundlicher Kriterien erfolgen [31].

Die Strahlenschutzkommission hat die vorgesehene systemtechnische Bewertung als Ausgangspunkt für die Ermittlung der Nuklidvektoren im Fall des Kernkraftwerkes Stade ausdrücklich begrüßt [10].

Als solche Kriterien zur Abgrenzung können verwendet werden:

- Gebäude- und Raumgrenzen
- Grenzen technischer Systeme (z. B. Behälter, Rohrleitungen, Einhausungen)
- Wechsel in der Materialzusammensetzung
- Wechsel in der Oberflächenbeschaffenheit
- Reichweite der Neutronen oder geladenen Teilchen
- Zuordnung zu den Ausbreitungswegen
- Wechsel der chemischen Parameter von Betriebsmedien (z. B. Zusammensetzung, pH, Redoxpotential)
- Wechsel der physikalischen Parameter von Betriebsmedien (z. B. Strömungsgeschwindigkeit, Temperatur, Druck, Aggregatzustand)
- Filter
- Ionenaustauscher.

Dabei ist hinsichtlich des Umfangs und der Detailliertheit der Gliederung der Anlage das Verhältnis von Aufwand und Nutzen zu beachten. Ein schrittweises Vorgehen mit zunehmendem Detaillierungsgrad der Untersuchungen kann hilfreich sein.

Bei der Abgrenzung der Bereiche sollen auch die Erfahrungen und Daten genutzt werden, die beim Betrieb der Anlage gewonnen und dokumentiert wurden. Empfehlungen zu dieser Dokumentation stilllegungsrelevanter Daten enthält die Empfehlung des Arbeitskreises Entsorgung des Fachverbandes für Strahlenschutz [11].

Relevante Daten sind z. B.:

- Materialzusammensetzung (Zertifikate, Analysenergebnisse, Materialproben u. ä.)
- Angaben zum bestimmungsgemäÙem Betrieb einschließlich InstandhaltungsmaÙnahmen
  - Daten zu den Betriebsmedien (Kühlwasser, Abluft, Ionenaustauscher, Filter, Schlämme)
  - Betriebszeiten, Leistungsverlauf
  - Ein- und Ausbau von Komponenten
  - Umgang mit offenen radioaktiven Stoffen
  - Einrichtung und Aufhebung von Strahlenschutzbereichen
  - Transportwege für radioaktive Stoffe
- Angaben zu nicht bestimmungsgemäÙem Betrieb
  - fehlerhafte Betriebsweisen
  - Leckagen von aktivitätsführenden Systemen
  - Freisetzung von Aktivität über Wasser oder Luft
  - Analysenergebnisse der freigesetzten Radionuklide
  - räumliche Verteilung der freigesetzten Aktivität
  - mögliche Abdeckung von dabei aufgetretenen Kontaminationen
- Ergebnisse von Freigaben nach § 29 während des Betriebes
- Deklaration von radioaktiven Abfällen aus dem Betrieb
- Messergebnisse der Kontaminationskontrolle.

Bei aktivierten Bauteilen ist es vorteilhaft, ausgehend von der Materialzusammensetzung, der Geometrie, dem Teilchenfluss und den Betriebsdaten Modellberechnungen der Aktivierungsprodukte durchzuführen und diese dann mit Hilfe weniger Proben zu verifizieren und gegebenenfalls das Modell der Aktivierungsrechnung zu justieren. Dafür sind folgende Angaben hilfreich:

- Art der aktivierenden Teilchen (Neutronen oder geladenen Teilchen)
- mögliche Sekundärstrahlung
- Stärke der Quelle
- Aktivierungszeitraum
- Ausbreitungsrichtung, gegebenenfalls Streubereich
- Reichweite
- abschirmende Materialien
- mögliche Kernreaktionen
- Halbwertszeit der Aktivierungsprodukte
- Zeitpunkt des Ein- und Ausbaus von Komponenten.

Bei der Zusammenstellung der Daten aus Betriebshistorie ist es empfehlenswert auf das Insiderwissen der Beschäftigten zurückzugreifen. Dazu sollten auch ehemalige Mitarbeiter befragt werden, da diese über länger zurückliegende Ereignisse berichten können, deren Dokumentation möglicherweise am schlechtesten ist [53]. Bei der Befragung von Mitarbeitern ist eine offene und vertrauensvolle Atmosphäre vorteilhaft, um möglichst viele Informationen zu erhalten. Der Erfahrungsaustausch in kleinen Gruppen bietet die Möglichkeit, dass die Teilnehmer sich gegenseitig zu Erinnerungen anregen.

Wichtig ist, dass keiner Sanktionen für mögliches früheres Fehlverhalten befürchten muss.

Am Ende dieses Schrittes sollten für die einzelnen abgegrenzten Bereiche Kontaminationshypothesen aufgestellt werden. Diese können Aussagen über die Ausbreitungswege und die zu erwartende Nuklidzusammensetzung enthalten.

## 6.2 Auswahl der relevanten Nuklide

Bei der Ermittlung des Nuklidvektors sind alle für das betreffende Material und Aktivierungs- bzw. Kontaminationsszenarium relevanten Radionuklide zu berücksichtigen. Die möglicherweise in Frage kommenden Radionuklide können dabei auf folgenden Wegen ermittelt werden:

- Genehmigungen nach Atomgesetz bzw. Strahlenschutzverordnung
- technische Daten der Anlage
  - Art der Anlage
  - verfahrenstechnische Parameter
  - eingesetzte Radionuklide
  - Aktivierungsprodukte der Konstruktionsmaterialien
  - Spaltprodukte von spaltbarem Material
  - Tochternuklide der obigen Nuklide
- Ergebnisse der Emissionsüberwachung
  - Abwasser
  - Abluft
- Betriebsgeschichte
  - bestimmungsgemäßer Betrieb
  - Abweichungen vom bestimmungsgemäßen Betrieb (Aktivitätsfreisetzung, Aktivitätsverschleppung)

Daraus lassen sich dann die relevanten Radionuklide auswählen unter Berücksichtigung der Halbwertszeit (Abklingen bzw. Neubildung von Tochternukliden) und der physikalisch-chemischen Eigenschaften (z. B. Aktivierung, Flüchtigkeit, chemische Bindung, Adsorption) der Nuklide. Einerseits sollen bei der Auswahl der Nuklide keine relevanten Nuklide übersehen werden, andererseits ist es aber auch erforderlich die Zahl der zu untersuchenden Nuklide zu begrenzen. Für die Begrenzung der Nuklidzahl gibt es zwei Gründe:

- Begrenzung des Aufwandes für die Analytik, insbesondere die radiochemische Analytik
- bei konservativer Berechnung des Nuklidvektors werden bei spezifischen Aktivitäten unter der Nachweisgrenze die Nachweisgrenzen der betreffenden Nuklide wie Messwerte behandelt und addieren sich, das kann vor allem bei Proben mit insgesamt niedrigen spezifischen Aktivitäten zu einer deutlichen Verschiebung des Nuklidvektors führen (Überschätzung von Nukliden unterhalb der Nachweisgrenze).

Hilfreich hierfür ist eine möglichst umfassende Dokumentation stilllegungsrelevanter Daten in der Betriebsdokumentation, wie sie vom Arbeitskreis Entsorgung des Fachverbandes Strahlenschutz empfohlen wird [11]. Beispiele dafür sind:

- Analysenergebnisse von Betriebsmedien
  - Kühlmittel
  - Abluft
  - Ionenaustauscher
  - Filter
- Analysenergebnisse von ausgetauschten Teilen
- Analysenergebnisse von Freigabevorgängen nach § 29 während des Betriebes
- Materialzusammensetzung der Bauteile
- im nicht bestimmungsgemäßen Betrieb freigesetzte Radionuklide

So konnte z. B. im Falle des Reaktors TRIGA HD II im Deutschen Krebsforschungszentrum Heidelberg an Hand der Betriebsdokumentation nachgewiesen werden, dass über die gesamte Laufzeit keine Leckagen der Brennelemente aufgetreten waren. Aus diesem Grund wurden Kontaminationen mit Spaltprodukten, Transuranen und Kernbrennstoff ausgeschlossen und diese Nuklide brauchten nicht analysiert werden [36].

Bei schlecht bestimmbareren Radionukliden bzw. bei unsicheren Ergebnissen der Analytik (z. B. durch Verlust flüchtiger Radionuklide) können auch berechnete Nuklidanteile verwendet werden, wenn diese konservativer sind.

In der Tabelle 3 sind auf Grund eigener Erfahrungen und Literaturangaben [65], die für kerntechnische Anlagen relevanten Nuklide und ihre Zuordnung zu Nuklidgruppen und ihre besondere Relevanz für bestimmte Materialien aufgeführt. Als Nuklidgruppen werden üblicherweise betrachtet:

- Aktivierungsprodukte, diese sind durch Aktivierung von Konstruktionsmaterialien entstanden
- Spaltprodukte, diese sind durch Spaltung des Kernbrennstoffs entstanden
- Kernbrennstoff
- Transurane, diese sind durch Aktivierung des Kernbrennstoffs entstanden.

Die Nuklide der Gruppen „Spaltprodukte“, „Kernbrennstoff“ und „Transurane“ entstehen hauptsächlich in den Brennelementen. Als Kontamination sind sie vor allem dort zu finden, wo sie über das Kühlmittel oder die Abluft hintransportiert wurden. Sie reichern sich vor allem in Filtern, Schlämmen und Oberflächenschichten von Leitungen und Behältern insbesondere des Primärkühlmittelkreislaufs und des Abluftsystems an.

Einige Nuklide sind nur oder besonders bei bestimmten Anlagentypen zu erwarten, das betrifft z. B. H-3 bei Schwerwasser-Reaktoren und Neutronengeneratoren.

Tabelle 3: Übersicht über relevante Radionuklide

<b>Nuklid</b>	<b>Nuklidgruppe</b>	<b>Relevanz für bestimmte Materialien</b>
H-3	Aktivierungsprodukt	Wasser, organische Verbindungen, Schlamm, Beton
C-14	Aktivierungsprodukt	organische Verbindungen, Beton, Graphit
Mn-54	Aktivierungsprodukt	Stahl, Eisen
Fe-55	Aktivierungsprodukt	Stahl, Eisen
Co-60	Aktivierungsprodukt	Stahl, Eisen
Ni-63	Aktivierungsprodukt	Stahl, Eisen
Sr-90+	Spaltprodukt	
Ag-108m+	Aktivierungsprodukt	Cadmium
Ag-110m+	Aktivierungsprodukt	Cadmium
Cd-109+	Aktivierungsprodukt	Cadmium
Cd-113m	Aktivierungsprodukt	Cadmium
Sb-125+	Spaltprodukt	
Cs-134	Spaltprodukt	
Cs-137+	Spaltprodukt	
Ba-133	Aktivierungsprodukt	Barytbeton
Eu-152	Spaltprodukt Aktivierungsprodukt	z.B. bei Beton
Eu-154	Spaltprodukt	
Eu-155	Spaltprodukt	
U-233	Kernbrennstoff	
U-234	Kernbrennstoff	
U-235+	Kernbrennstoff	
U-238+	Kernbrennstoff	
Pu-238	Transuran	
Pu-239	Transuran	
Pu-240	Transuran	
Pu-241	Transuran	
Am-241	Transuran	
Cm-242	Transuran	
Cm-243	Transuran	
Cm-244	Transuran	

Von untergeordneter Bedeutung sind folgende Nuklide: Cl-36, Fe-59, Co-57, Ni-59, Zn-65, Zr-95, Nb-94, Nb-95, Tc-99, Ru-106+, Sn-126, Sb-124, I-129, Ce-144+, Am-243+.

Es ist aber zu beachten, dass es Sonderfälle gibt, bei denen zusätzliche Radionuklide (Angabe in Klammern) einbezogen werden müssen. Dazu gehören:

- radiochemische Laboratorien (alle Nuklide, mit denen umgegangen wurde)
- Anlagen zur Herstellung von Kernbrennstoff (z. B. Th-232 und andere Th-Nuklide, andere U-Isotope, Transurane)
- Wiederaufbereitungsanlagen (größere Bandbreite von Spaltprodukten)



- Forschungsreaktoren (Aktivierungsprodukte aus den eingesetzten Konstruktionsmaterialien, z. B. Beryllium, Borcarbid, Graphit)
- Teilchenbeschleuniger (Aktivierungsprodukte aus den eingesetzten Konstruktionsmaterialien z. B. Kupfer, die Aktivierung erfolgt hier vorrangig durch geladene Teilchen )

Ergänzend zu diesen Nukliden sind vor allem bei Baumaterialien und Boden auch die natürlichen Radionuklide zu bestimmen. Das betrifft die Nuklide der Zerfallsreihen von U-238, U-235 und Th-232 und das K-40. Dies ist einerseits erforderlich um spätere Gesamt-Gammamessungen, die nicht nuklidspezifisch sind, nicht falsch zu interpretieren, da Baumaterialien wie z. B. Fliesen und andere Keramikteile zum Teil erhebliche spezifische Aktivitäten der natürlichen Radionuklide enthalten. Zum anderen ist es auch wichtig um eine Unterscheidung zwischen natürlichem Gehalt und Kontamination vornehmen zu können. Für Boden ist auch die Konzentration der aus dem weltweiten fall-out (Kernwaffentests, Tschernobyl) stammenden Radionuklide an geeigneten Proben, die nicht aus der kerntechnischen Anlage stammen, festzustellen. So können dann anlagenbedingte Kontaminationen besser abgegrenzt werden.

## **6.3 Erstellung eines Probenahmemessprogramms**

### **6.3.1 Allgemeines**

Im Probenahmemessprogramm sind alle geplanten Maßnahmen zur Messung vor Ort, zur Probenahme und Analytik festzulegen. Dabei sind gegebenenfalls Varianten vorzusehen, je nachdem wie die Ergebnisse des vorangegangenen Schritts ausfallen.

Vor der Planung der Probenahme ist zu prüfen, ob bereits vorhandene Proben genutzt werden können, die vor nicht zu langer Zeit aus anderem Anlass genommen wurden. Anlass dafür können z. B. Revisionen, Reparaturen, Strahlenschutzkontrollen, Deklarationen von radioaktiven Abfällen und rückgebauten Materialien sein.

Wichtig ist vor allem ein Probenahmeplan, damit der Probenehmer möglichst keine subjektiven ad hoc Entscheidungen treffen muss. Der Probenahmeplan sollte folgende Angaben enthalten:

- Arbeitsanweisung
- Probenahmeorte
- Probenahmezeitpunkt
- Probenehmer
- Probenahmeverfahren
- Probenahmegeräte
- Probenmenge
- Probenvorbehandlung vor Ort
- Probengefäße
- Probenahmeprotokoll
- Maßnahmen der Qualitätssicherung.

Hinsichtlich der Unsicherheitskomponenten bei der Probenahme sei auf die Dissertation von Spirgath „Entwicklung von Kriterien zur Beurteilung der Unsicherheit bei der Probe-

nahme von Feststoffen“ [58] verwiesen. Dort findet sich eine zusammenfassende Darstellung des jetzigen Kenntnisstandes. Auf einzelne relevante Punkte wird in den entsprechenden Abschnitten direkt eingegangen.

Der Arbeitsschritt „Erkundende Messungen vor Ort“ ist vor allem dann durchzuführen, wenn die räumliche Aktivitätsverteilung auf Grund der historischen Erkundung nicht ausreichend geklärt werden konnte. Sonst kann er der Kontrolle der Aktivitätsverteilung und besonders der Identifizierung von Kontaminationsmaxima dienen, um Proben mit ausreichender Aktivität für die Analytik zu gewinnen.

### 6.3.2 Probenarten und Probenahmeverfahren

Die Bestimmung der Radionuklide kann an verschiedenartigen Proben erfolgen. Dabei sollen vorrangig Materialproben berücksichtigt werden, da sich so der Nuklidvektor dem Material eindeutig zuordnen lässt und damit belastbare Aussagen erhalten werden.

Als Materialproben kommen in Frage:

- Bauteile (wenn diese hinreichend klein sind)
- feste und flüssige Stoffproben durch Direktentnahme
- Bohrkern
- Bohrspäne, Bohrmehl
- Fräsproben
- Schleifproben (z. B. durch Absaugung des Schleifstaubes)
- Stocker- oder Kratzproben von Oberflächenschichten
- elektrolytische Proben (günstig, wenn das Bauteil nicht zerstört werden darf)

Bei der Festlegung des Probenahmeverfahrens ist auch die mögliche Eindringtiefe der Radionuklide in das Material zu berücksichtigen und gegebenenfalls eine tiefengestaffelte Probenahme vorzusehen. Vor allem bei porösen Materialien dringen die einzelnen Radionuklide auf Grund ihrer physikalischen und chemischen Eigenschaften unterschiedlich tief ein, so dass es zu einer Tiefenabhängigkeit des Nuklidvektors kommen kann. Das tritt vor allem bei ungeschützten Betonflächen auf, in die radioaktive Lösungen eingedrungen sind. Auch bei Aktivierungen kann auf Grund der unterschiedlichen Eindringtiefe der Neutronen oder geladenen Teilchen eine Tiefenabhängigkeit der Aktivierungsprodukte auftreten. Ein Beispiel dafür ist das biologische Schild von Reaktoren.

Eine tiefengestaffelte Beprobung ist auf folgende Weise möglich:

- Kernbohrung und Beprobung der Kernabschnitte
- Bohrung und tiefengestaffelte Beprobung des Bohrmehls bzw. der Bohrspäne
- schichtweiser Abtrag.

Am günstigsten ist die Beprobung in Richtung des Eindringens bzw. der Aktivierung. Die Beprobungsabschnitte sind je nach der vermuteten Eindring- bzw. Aktivierungstiefe zu wählen. Bei der Beprobung sind Verschleppungen durch Kühlflüssigkeit bei Bohrungen oder durch Staub mit Hilfe geeigneter Maßnahmen zu vermeiden. Bei Kern-

bohrungen können die Auswirkungen von Verschleppungen durch den nachträglichen Abtrag der Mantelfläche der Bohrkerns minimiert werden.

Proben von abgelagerten Stoffen, wie Sedimenten und Stäuben, können nur als repräsentativ für diese selbst angesehen werden. Sie liefern aber Anhaltspunkte für die im Einzugsbereich dieser Materialien vorhandenen Radionuklide und können damit zur Festlegung des zu untersuchenden Nuklidspektrums dienen.

Wischproben sind mit Vorsicht zu berücksichtigen, da der Anteil der abnehmbaren Aktivität beim Wischen von Nuklid zu Nuklid auf Grund unterschiedlicher physikalischer und chemischer Eigenschaften der Nuklide, des Materials und der Oberflächenbeschaffenheit unterschiedlich sein kann [45].

Bei der Festlegung der Probenahmemodalitäten sind die Anforderungen an die Proben von Seiten der einzusetzenden Mess- und Analysenverfahren und auf Grund der Materialeigenschaften zu berücksichtigen, wie z. B.:

- Mindestprobenmenge
  - die für die Untersuchung aller Parameter benötigt wird
  - auf Grund der Korngröße des Materials
  - auf Grund der Inhomogenität des Materials
- keine Erwärmung des Materials wenn flüchtige Radionuklide untersucht werden sollen
- kein Kontakt mit Wasser und Lösungsmitteln wenn H-3 bestimmt werden soll
- möglichst keine Vermischung von kontaminierten Oberflächenschichten mit aktiviertem Grundmaterial
- besser Einzelproben als Mischproben, um Aussagen über die Variabilität des Nuklidvektors zu bekommen
- ausreichende Aktivität der Probe.

Bei der Festlegung der Probenahmemodalitäten und des Analysenkonzeptes ist das Labor einzubeziehen, das die Untersuchung der Proben durchführen soll. Dabei sind insbesondere die zu bestimmenden Parameter, die anzuwendenden Entnahmeverfahren, die Mengen, die Beschaffenheit, die Konservierung, die Verpackung, die Kennzeichnung der Proben abzusprechen. Dadurch kann vermieden werden, dass Proben nur eingeschränkt für die Analysen verwendbar oder die Ergebnisse nicht zuverlässig sind und es deshalb zu aufwändigeren Nachbeprobungen kommt. Dies sind die Erfahrungen nicht nur unseres Labors, sondern auch anderer Labors [47].

### **6.3.3 Probenzahl und Probenahmestellen**

Die jeweilige Probenzahl ist so zu planen, dass ausreichend Informationen über die Streuung der Nuklidvektoren erhalten werden können. Gegebenenfalls sind nach Auswertung der Untersuchung der ersten Proben weitere Probenahmen durchzuführen, um die Streuung der Nuklidvektoren statistisch abzusichern.

Dabei unterscheidet sich das Herangehen bei folgenden Szenarien:

- Aktivierung
- gleichmäßige Kontamination
  - in geschlossenen Systemen z. B. Kühlkreislauf
  - bei stetigen Veränderungen in zeitlicher und räumlicher Hinsicht z. B. Aerosole
  - bei nachvollziehbaren Kontaminationsmechanismen
  
- ungleichmäßige Kontamination
  - durch singuläre Ereignisse z. B. Havarien, Leckagen
  - bei stark wechselnder Zusammensetzung von Kontaminanten z. B. in radiochemischen Labors, Versuchsanlagen
  - bei zeitlich und räumlich wechselnden physikalischen oder chemischen Bedingungen z. B. Abwasserbehandlungsanlagen, Abfallkonditionierung
  - sekundäre Umlagerungen von Materialien z. B. Umbau, Bodenabtrag, Bodenaufschüttung
  - Materialien, die Dekontaminationsmaßnahmen unterworfen wurden, die zu einer Veränderung des primären Nuklidvektors geführt haben können z. B. chemische Dekontamination

Im Fall der **Aktivierung** können zur Ermittlung der Nuklidvektoren neben der direkten Bestimmung auch Modellrechnungen verwendet werden, die aus den physikalischen und chemischen Grunddaten die Nuklide und die Aktivitätsverhältnisse berechnen. Dazu werden möglichst genaue Angaben benötigt für:

- qualitative und quantitative Zusammensetzung des Materials einschließlich der Spurenelemente z. B. durch
  - Zertifikate für die eingesetzten Materialien
  - chemische Analyse von nicht aktivierten Materialproben
  - chemische Analyse von aktivierten Materialproben
- Kerndaten der Materialien
  - mögliche Kernreaktionen
  - Wirkungsquerschnitte
  - Halbwertszeiten
- Daten zum Aktivierungsprozess
  - Art der Aktivierung (Neutronen, geladene Teilchen, Photonen)
  - Energiespektrum der Teilchen
  - Teilchenfluss (räumlich und zeitlich)
  - zeitliche Verteilung der Aktivierung (Zeitpunkt, Zeitdauer)
  - Abschirmung
  - Moderation z. B. durch Wasser oder Grafit
- Daten zur Geometrie
  - Lage und Geometrie der Aktivierungsquelle
  - Lage und Geometrie des aktivierten Materials
  - Lage und Geometrie von abschirmenden Materialien
  - Lage und Geometrie von Moderatoren

Die Modellrechnungen mit Hilfe etablierter Rechenprogramme (z. B. ACFA und CO-RIGEN) müssen aber auf jeden Fall an Hand der gemessenen nuklidspezifischen Aktivitäten von Proben des aktivierten Materials verifiziert werden. Da einige Daten der Modelle (z. B. der Neutronenfluss am Ort des entnommenen Materials) nur ungenau bestimmbar sind, ist eine anschließende Justierung der Modelle erforderlich. Dabei soll schrittweise eine Anpassung des Modells an die gemessenen spezifischen Aktivitäten erreicht werden. Für diese Aufgabenstellung reichen wenige Proben für jedes Material und Objekt aus. Wichtig ist aber die genaue räumliche Lage der Proben zu ermitteln und die Kontaminationsfreiheit der Proben zu gewährleisten, so dass ausschließlich die durch Aktivierung erzeugten Radionuklide gemessen werden können.

Für den Fall der **gleichmäßigen Kontamination** wird in erster Näherung davon ausgegangen, dass es sich um einen einheitlichen Nuklidvektor in jedem der vorher abgegrenzten Bereiche handelt. Dies soll nun an Hand der Probenahme und Analyse der Proben verifiziert werden. In der DIN ISO 10381-5 [56], die sich mit der Bodenprobenahme auf urbanen und industriellen Standorten beschäftigt, wird empfohlen eine Mindestzahl von Proben zu entnehmen, um die räumliche Variabilität im beprobten Bereich zu erfassen. Als Anmerkung ist dort festgehalten, dass dafür üblicherweise sechs Proben benötigt werden. Weiterhin heißt es dort, dass mit zunehmender Probenzahl selbstverständlich die Zuverlässigkeit der Abschätzung der Kontaminationsverteilung steigt.

Eine andere Möglichkeit ist die statistische Bewertung der Verteilung. Als statistische Modelle kommen sowohl die Normalverteilung als auch die Log-Normalverteilung der Daten in Frage.

Statistische Tests sind erst bei mehr als 16 Proben je betrachtetes Objekt sinnvoll [30], so dass Probenzahlen von 16 bis 20 für die festgelegten Bereiche aus der Abwägung von Aufwand und statistischer Sicherheit optimal erscheinen [31].

Das für statistische Betrachtungen zugrunde zu legende Vertrauensniveau soll nach Stellungnahme der Strahlenschutzkommission zum Rückbaukonzept des Kernkraftwerks Stade 95 % sein [10]. Das betrifft sowohl die Anzahl der Proben, als auch die Anzahl der Messpunkte.

Im Freigabeleitfaden des VdTÜV [57] wird unter der Überschrift „Untersuchung der Nuklidzusammensetzung der Aktivität der freizugebenden Stoffe“ empfohlen, dass von der Untersuchung von zunächst 30 Proben auszugehen ist. Die erforderliche Mindestzahl „n“ von Proben für einen Fehler von ca. 25 % auf einem Vertrauensniveau von 90 % lässt sich dann mit der Formel

$$n \geq 45 s^2 / x^2$$

berechnen, wobei hierbei von einer normalverteilten Stichprobe ausgegangen wird und „s“ die Standardabweichung und „x“ den Mittelwert der Beprobungsergebnisse bezeichnen. Wenn die Beprobungsanzahl geringer als 30 ist, so sollten die Vertrauensgrenzen gesondert unter Berücksichtigung einer geeigneten Verteilungsfunktion (z. B. students-t) bestimmt werden.

Diese Forderung für die Mindestprobenzahl stammt aus dem Technical Report Series No. 334 der IAEA [61]. Dort bezieht sie sich aber nicht auf die Ermittlung des Nuklidvektors, sondern direkt auf die Freigabemessungen, d. h. es geht nicht um die Nuklidverhältnisse, sondern um die Gesamtaktivität des Materials. In diesem Sinne wird sie auch in der ISO 11932 „Activity measurements of solid materials considered for recycling, re-use, or disposal as non-radioactive waste“ [63] verwendet. Das heißt für die Probenzahl bei der Ermittlung des Nuklidvektors ist diese Forderung zu hoch angesetzt.

Bei der Festlegung der Probenzahl ist aber auch zu bedenken, dass eine spätere Probenahme bei Zweifeln an der Repräsentativität von Nuklidvektoren möglicherweise durch zu geringe Aktivität erschwert wird.

Es gibt aber auch Situationen, in denen vor allem auf Grund der Materialzusammensetzung und der radiologischen Situation eine deutlich geringere Probenzahl denkbar ist:

- homogenes Material mit homogener Kontamination
  - Lösungen
  - homogenisierte Schlämme
- aktiviertes homogenes Material
  - z. B. Metalle, Graphit
- geringe Materialmenge
- wenige zugängliche Probenahmestellen
- ausreichende Vorbefunde.

Es ist generell sinnvoll zunächst eine größere Anzahl potentieller Probenahmeorte zu definieren und daraus in einem zweiten Schritt eine Auswahl zu treffen. So hat man später die Möglichkeit auf alternative Probenahmeorte zurückzugreifen, falls die Probenahme an einem vorgesehenen Ort nicht möglich ist oder zusätzliche Probenahmen erforderlich sind [31].

Bei der Auswahl der Probenahmeorte können folgende Kriterien mit herangezogen werden:

- Materialströme
- Abwasserwege
- Abluftwege
- Kontamination durch:
  - Betriebsmedien
  - Abwasser
  - Abluft
  - Umgang mit offenen radioaktiven Stoffen
- Entstehungsorte der Radionuklide und deren Ausbreitung im bestimmungsgemäßen Betrieb
- Entstehungsorte der Radionuklide und deren Ausbreitung im nicht bestimmungsgemäßen Betrieb
- Betriebsgeschichte

- Akkumulation von radioaktiven Stoffen durch:
  - Materialeigenschaften
  - Oberflächenformen
  - Oberflächenfehler (z. B. Risse, Löcher)
  - Phasenübergänge
  - chemische Prozesse
- Zugänglichkeit für die Probenahme.

Anreicherungen radioaktiver Stoffe sind vor allem zu beobachten bei:

- Systemen mit Sammelfunktion
- Filterstrecken
- Absetzbecken
- Tiefpunkte von Rohrleitungen und Behältern
- Entleerungsleitungen.

Bei solchen Akkumulationsstellen muss allerdings auch damit gerechnet werden, dass sich im Einzugsbereich Kontaminationen unterschiedlicher Nuklidzusammensetzung befinden. Es ist also zu prüfen, inwieweit der an diesen Akkumulationsstellen ermittelte Nuklidvektor repräsentativ für den ganzen Einzugsbereich ist.

Bei der Auswahl der Probenahmestellen hilft auch eine möglichst umfassende Dokumentation stilllegungsrelevanter Daten in der Betriebsdokumentation [11], neben den oben genannten Angaben sind auch relevant:

- räumliche Verteilung und Herkunft der Ortsdosisleistung
- Höhe, Zusammensetzung und Beschaffenheit von Kontaminationen (festhaftend, locker staubförmig, feucht abwischbar)
- Bereiche in denen nachweislich keine Kontamination stattgefunden hat
- Daten der Umgebungsüberwachung während des Betriebes der Anlage, auch hinsichtlich der Abgrenzung zu Kontaminationen, die von außen eingetragen wurden (z. B. fall out von Tschernobyl)

Es ist bei der Planung der Probenahme zu prüfen, in welchen Fällen eine tiefengestaffelte Probenahme sinnvoll oder gar notwendig ist. Das betrifft vor allem folgende Situationen:

- Objekte aus mehreren Schichten unterschiedlicher Materialien z. B. Fußböden, Wände mit Beschichtungen
- Kontamination von porösen Materialien (z. B. Beton, Boden) durch Lösungen (unterschiedliche Eindringtiefe einzelner Radionuklide und dadurch bedingte Variation des Nuklidvektors beachten)
- nachträgliche Abdeckung von älteren Kontaminationen durch Beschichtungen
- Eindringen von Kontaminationen an Unstetigkeiten der Oberfläche z. B. Risse, Löcher, Fugen.

Proben sind vorzugsweise an Orten zu entnehmen, die eine erhöhte Aktivität erwarten lassen, um auch die Bestimmung von Nukliden mit niedriger spezifischer Aktivität zu ermöglichen, da die Nachweisgrenzen der Analyseverfahren nur mit großem Aufwand und auch nur in bestimmten Grenzen abzusenken sind. Andererseits sollte die Aktivität in ihrer Höhe auch begrenzt werden, da sonst der Aufwand für den Strahlenschutz bei der Handhabung und beim Transport der Proben steigt. Für den Fall zu geringer Aktivität, der für die Freigabe vorgesehenen Materialien, kann auch auf stärker kontaminierte Komponenten, die als radioaktiver Abfall einzustufen sind, zurückgegriffen werden, wenn davon auszugehen ist, dass diese die gleiche Nuklidzusammensetzung aufweisen.

Für den Fall der **ungleichmäßigen Kontamination** ist die Ausgangssituation insofern komplizierter, dass nicht von einer Homogenität des Nuklidvektors in einem bestimmten Bereich ausgegangen werden kann. Es ist also mit mehreren Nuklidvektoren zu rechnen, deren räumliche Verteilung innerhalb des Bereiches unbekannt ist.

Als Ausgangspunkt können unter Anderem folgende Daten aus der Betriebsgeschichte herangezogen werden:

- Betriebsdaten von Betriebsbereichen mit wechselnden Arbeiten
  - Abwasserbehandlungsanlagen
  - Abfallkonditionierung
  - radiochemische Labors
  - Versuchseinrichtungen
- wechselnde Wege und Zusammensetzung von
  - radioaktiven Materialien
  - Abwässern
  - Abluft
  - festen Abfällen
- Umgang mit offenen radioaktiven Stoffen
- Entstehungsorte der Radionuklide und deren Ausbreitung im nicht bestimmungsgemäßen Betrieb
- mögliche nuklidselektive Akkumulation durch:
  - Materialeigenschaften
  - Oberflächenformen
  - Oberflächenfehler (z. B. Risse, Löcher)
  - Phasenübergänge
  - chemische Prozesse
- räumliche Verteilung und Herkunft der Ortsdosisleistung
- temporäre Kontrollbereiche
- Durchführung von Experimenten mit radioaktiven Stoffen
- Daten der Umgebungsüberwachung während des Betriebes der Anlage, auch hinsichtlich der Abgrenzung zu Kontaminationen, die von außen eingetragen wurden (z. B. fall out von Tschernobyl)

Hier bietet es sich an, erkundende Messungen vor Ort mit anschließender Probenahme durchzuführen. Mit Hilfe der Messungen vor Ort soll die räumliche Verteilung der Aktivität ermittelt werden. Dazu können auch bereits vorhandene Messergebnisse aus der Betriebsphase genutzt werden.



Als Messverfahren eignen sich vor allem Oberflächenkontaminationsmessungen wegen der hohen Ortsauflösung und der Unterscheidungsmöglichkeit zwischen Alphastrahlern einerseits und Beta-/Gammastrahlern andererseits und die In-situ-Gammaspektrometrie, da sie schon Informationen zur Variabilität des Nuklidvektors der Gammastrahler liefert. Weniger geeignet sind Messungen der Ortsdosisleistung, da sie nur eine ungenaue Lokalisierung der Aktivität erlauben. Für die durchzuführenden Messungen ist ein entsprechendes Messprogramm zu erarbeiten.

Die Probenahme sollte dann vorzugsweise an Stellen mit erhöhter Aktivität und an „hot spots“ durchgeführt werden. Bei der Festlegung der Probenahmestellen sind auch die im Ergebnis der Messungen ermittelten Informationen zu Teilbereichen mit unterschiedlichen Nuklidzusammensetzungen zu nutzen, d. h. unterschiedliche Verhältnisse von Alpha- zu Beta-/Gammastrahlern aus der Messung der Oberflächenkontamination und der Nuklidzusammensetzung der Gammastrahler aus der In-situ-Gammaspektrometrie.

Das Vorgehen zur Festlegung der Probenzahl und der Probenahmestellen ist dann Analog zum Szenarium „gleichmäßige Kontamination“.

### 6.3.4 Probenmenge

Bei der Probenahme ist sicherzustellen, dass die Probenmenge für die durchzuführenden Analysen ausreichend ist. Dazu ist vor der Probenahme, die benötigte Probenmenge für die einzelnen Analysen mit dem Labor abzustimmen.

Andererseits ist die Probenmenge zumindest so groß zu wählen, dass sie das beprobte Material in seiner Variabilität wiedergibt. Als Anhaltspunkt können die Angaben im Entwurf der LAGA PN 98 [8] dienen, die in der Tabelle 4 wiedergegeben sind. Bei der Probenahme aus Haufwerken ist die „Stückigkeit“ der relevante Parameter und bei der Probenahme aus stehenden Strukturen die Korngröße innerhalb des Materials.

Tabelle 4: Mindestvolumen der Laborprobe in Abhängigkeit von der Korngröße/Stückigkeit [8]

maximale Korngröße/Stückigkeit [mm]	Mindestvolumen der Laborprobe [l]
< 2	1
2 – 20	2
20 – 50	4
50 – 120	10
> 120	Einzelprobe

Dabei ist die Definition der „maximalen Korngröße“, wie sie auch im Abschnitt 4.1 aufgeführt ist, zu beachten: Korngröße, die der Maschenweite eines Siebes entspricht, auf dem ein Massenanteil des Materials von maximal 5 % (Masseanteil) verbleibt [62].

Die Entnahme von Einzelproben bei großen Stücken ist bei der Bestimmung von Nuklidvektoren wenig sinnvoll. Es ist aber zu prüfen, ob bei großen Stücken ein abweichender Nuklidvektor plausibel auszuschließen ist.

In der Literatur (Zusammenstellung bei Spigath [58]) sind auch andere Empfehlungen zur Probenmenge in Abhängigkeit von der Korngröße zu finden, die sich aber wegen der unrealistisch großen Probenmengen für die Ermittlung von Nuklidvektoren nicht eignen und auch bei konventionellen Schadstoffen üblicherweise nicht angewandt werden.

Es ist aber zu beachten, dass diese Empfehlungen für die Probenmenge keinen Bezug auf Heterogenität des Materials hinsichtlich des Nuklidvektors haben. Dies muss durch den Bearbeiter mit eingebracht werden.

Es gibt auch Ausnahmen, bei denen mit deutlich geringeren Probenmengen als dem in der Tabelle 4 angegebenen einem Liter gearbeitet werden kann und muss:

- sehr feinkörniges Material z. B. Schlämme
- homogen dichtes Material z. B. Metalle, Kunststoff
- Stäube
- dünne Schichten (z. B. Anstriche, Korrosionsprodukte)
- Bohrmehl

Zur Probenahme von Böden wird auch auf die einschlägigen Normen ISO 18589-2 [54] und DIN ISO 10381-5 [56] verwiesen.

### **6.3.5 Dokumentation**

Im Probenahmemessprogramm ist auch festzulegen, in welcher Weise die durchgeführten Arbeiten zu dokumentieren sind. Die Dokumentation soll eine eindeutige Zuordnung der Untersuchungsergebnisse zu den Materialien und den Probenahmeorten ermöglichen. Dabei sind die Darstellung in Lageplänen und die fotografische Dokumentation der Probenahme hilfreich. Die Dokumentation ist so durchzuführen, dass der Ablauf und die Umstände der Messungen vor Ort, der Probenahmen, der Probenvorbereitung im Labor, der Analytik, der Interpretation der Ergebnisse, der Einbeziehung anderer Daten und Informationen, der Überlegungen und Entscheidungen und der Berechnung der Nuklidvektoren nachvollziehbar ist.

Die Dokumentation sollte möglichst standardisiert erfolgen, damit alle Merkmale auch von unterschiedlichen Bearbeitern in gleicher Weise beschrieben werden. Entsprechende Formulare können gleichzeitig den Mitarbeitern als Merkliste dienen.

Für die Nachvollziehbarkeit der Probenahme und ihrer Unsicherheit sind folgende Angaben wichtig:

- Name des Probenehmers
- Probenahmezeitpunkt
- Probenahmeort (genaue, reproduzierbare Beschreibung, möglichst mit Skizze und/oder Foto)
- Beprobungstiefe
- Entnahmeverfahren (auch Angabe über Spülung bei Bohrungen)
- Probenahmegeräte (Material)
- Probenart (Einzel- oder Mischprobe)
- Vorbehandlung der Probe vor Ort
- Umgebungsbedingungen
- Auffälligkeiten.

### **6.3.6 Probenahmezeitraum**

Der Zeitpunkt der Probenahme ist so zu wählen, dass eine hinreichend hohe Aktivität der Einzelnuclide vorhanden ist, um eine ausreichend genaue Messung zu erlauben. Der Zerfall der kürzerlebigen Radionuclide kann dann rechnerisch auf den Zeitpunkt des Rückbaus und der Entsorgung korrigiert werden. Es ist daher günstig die Probenahme und Analytik bereits vor einer Zeit des sicheren Einschlusses durchzuführen.

Es ist bei der Planung zu beachten, dass Dekontaminationsvorgänge zu Veränderungen des Nuklidvektors führen können. Daher sind Bestimmungen des Nuklidvektors vor und nach der Dekontamination sinnvoll. Dekontaminationsmaßnahmen können auch zu lokal unterschiedlichen Veränderungen des Nuklidvektors führen, deshalb ist nach der Dekontamination zu überprüfen, ob für den untersuchten Bereich weiterhin ein einheitlicher Nuklidvektor gilt.

Es kann sinnvoll sein, bestimmte Teile rückbaubegleitend nach der Demontage zu beproben, um so an sonst unzugängliche Stellen zu gelangen.

### **6.4 Durchführung von erkundenden Messungen vor Ort**

Nach dem vorher festgelegten Probenahmemessprogramm sind die erforderlichen Messungen vor Ort durchzuführen. Dabei ist darauf zu achten, dass unzulässige Beeinflussungen der Messergebnisse z. B. der Kontaminationsmessungen durch Direktstrahlung bei erhöhten Ortsdosisleistungen vermieden bzw. dokumentiert werden, um die richtige Interpretation zu ermöglichen. Zur Vermeidung eignen sich entsprechende Abschirmungen für die Messgeräte.

Die Auswertung der Messungen führt zu einem genaueren Bild über die Verteilung der Aktivität im Objekt und so zu einer gezielteren Festlegung der Probenahmestellen. Dazu sollten die Messergebnisse günstigerweise grafisch z. B. in Plänen und Karten dargestellt werden.

Wenn mit Hilfe der In-situ-Gammaspektrometrie Aussagen über die Variabilität des Nuklidvektors im Raum gewonnen wurden, sind die Probenahmestellen so festzulegen, dass alle erhaltenen Nuklidvektoren der Gammastrahler mit einer ausreichend großen Zahl von Proben belegt werden.

Zur Durchführung der Messungen sind die einschlägigen Normen der Messverfahren zu beachten [1], [2], [3], [4], [5]}, [6], [32]. Hilfreich ist auch die Empfehlung zu Messstrategien für die In-situ-Gammaspektrometrie [33].

## 6.5 Probenahme

Die Bedeutung der Probenahme für die Qualität des Gesamtprozesses und damit für die Repräsentativität der Nuklidvektoren kann nicht genug betont werden. Fehler, die hier gemacht werden, lassen sich durch keine noch so präzise Analytik und mathematisch-statistisch begründete Datenauswertung wieder korrigieren.

Die Probenahme ist von zuverlässigem, ausreichend qualifiziertem und für die Probenahme besonders geschultem Personal durchzuführen. Die Probenehmer müssen über praktische Erfahrungen verfügen und mit der Problemstellung vertraut sein. Es ist günstig, wenn die Probenehmer auch Ortskenntnis und Erfahrungen aus dem Betrieb der Anlage mitbringen.

Von der Bund-/Länderarbeitsgemeinschaft Bodenschutz ist dies so formuliert worden: „Für die Probenahme vor Ort sind Personen zu beschäftigen, für die auf Grund entsprechender Aus- bzw. Fortbildung und ausreichender Berufserfahrung Kompetenz bei der Probenahme dokumentiert werden kann.“ [59]

Die Probenahme ist nach dem vorher festgelegten Probenahmemessprogramm unter Berücksichtigung der Ergebnisse der erkundenden Messungen vor Ort durchzuführen.

Die Festlegungen zur Art der Probenahme und zur Beschaffenheit der Proben sind dabei grundsätzlich einzuhalten. Wenn dies im Einzelfall nicht möglich ist, sind Abweichungen mit dem für das Probenahmemessprogramm Verantwortlichen abzusprechen und zu dokumentieren.

Hilfreich ist es, wenn zumindest betriebsintern standardisierte Arbeitsverfahren erstellt werden, die eine fehlerfreie und reproduzierbare Probenahme gewährleisten.

Auf die Vermeidung folgender Fehler bei der Probenahme soll hingewiesen werden:

- Verschleppung von Aktivität
  - durch mangelhafte Reinigung von Probenahmegeräten
  - durch Spülung bei Nassbohrungen
  - durch Nachfall von Material bei vertikalen Bohrungen und Rammkernsondierungen
  - durch Staub an der Probenahmestelle
  - durch mangelhafte Reinigung der temporären Oberfläche bei schichtweisem Abtrag

- Vermischung von kontaminiertem und aktiviertem Material z. B. Oberflächenschichten und Grundmaterial des Bauteils
- Verluste von Radionukliden z. B. Gase (wie H-3, Edelgase, CO<sub>2</sub>), Flüssigkeiten, Nuklide von Elementen und in Verbindungen mit niedrigem Siedepunkt (wie Iod, Kohlenstoff, Cäsium)
  - durch zu starke Zerkleinerung (besser größere Stücke als Pulver entnehmen)
  - durch zu starke Erwärmung beim Bohren, Tenschneiden, Schleifen
- Trennung von leicht abnehmbaren und festerhaftenden Radionukliden bei Wischproben
- Nichtbeachtung der Entmischung von Haufwerk hinsichtlich Korngröße, Dichte, Material
- zu geringe Aktivität der entnommenen Probe

Die Proben sind soweit erforderlich zu konservieren, z. B. durch Ansäuern und Zugabe inaktiver Träger bei Flüssigkeiten, um Veränderungen der relevanten Parameter in der Probe auszuschließen. Das Probenmaterial ist so zu Verpacken, dass keine Verluste an Material oder gar an einzelnen Bestandteilen z. B. flüchtigen Komponenten auftreten und auch keine Beeinflussung der Proben durch das Behältermaterial stattfindet wie z. B. Adsorption von Radionukliden an der Behälteroberfläche. Wichtig ist auch die eindeutige, verwechslungsfreie und dauerhafte Kennzeichnung der Proben.

## **6.6 Probenvorbereitung**

### **6.6.1 Allgemeines**

Vor der Analyse müssen Proben in geeigneter Weise vorbereitet werden. Dabei ist es wichtig, dass die Probe, die am Ende analysiert wird, den gleichen Nuklidvektor besitzt, wie die am Objekt entnommene Probe. Wenn das auf Grund der Materialeigenschaften oder der Anforderungen des Analysenverfahrens nicht möglich ist, dann muss sichergestellt werden, dass die Zusammenhänge zwischen analysierter Probe und entnommener Probe eindeutig hergestellt werden können. Das betrifft insbesondere die Separierung unterschiedlicher Materialien in einer Probe z. B. Flüssigkeit und Sediment oder Beton und Bewehrungsstahl. Mögliche Vorgehensweisen sollen im Folgenden dargestellt werden. Dabei sind die Verfahren zunächst jeweils an Vorlaufproben (z. B. inaktive Proben, Doppelproben) auf ihre Eignung zu testen.

### **6.6.2 Flüssigkeiten**

Bei klaren Flüssigkeiten ohne Bodensatz und Schwebstoffen ist die Entnahme von Teilproben unproblematisch.

Bei trüben Flüssigkeiten oder Flüssigproben mit Bodensatz kann versucht werden, die Probe zu homogenisieren, in dem die unlöslichen Bestandteile durch geeignete Maßnahmen z. B. Säurezugabe in Lösung gebracht werden. Wenn die Homogenisierung nicht möglich ist, dann sind die Feststoffe von der Flüssigkeit zu trennen und die beiden Teilproben getrennt zu analysieren. Um die Beziehung zur Gesamtprobe bei der Auswertung herstellen zu können, sind die jeweiligen Massenanteile aufzuzeichnen.

### 6.6.3 Schlämme

Schlämme werden meist getrocknet, um sie dann wie Feststoffe zu behandeln. Der Anteil des Trockenrückstandes ist zu bestimmen und aufzuzeichnen. Dabei ist aber zu beachten, dass Nuklide, die bei der Trocknung verloren gehen können, an den Originalproben zu bestimmen sind, das betrifft z. B. H-3 und I-Isotope. Dazu ist die Probe durch mechanisches Vermischen ausreichend zu homogenisieren, eine geeignete Teilprobe zu entnehmen und auf diese Nuklide zu analysieren.

### 6.6.4 Feststoffe

Feststoffe, die einen nicht vernachlässigbaren Feuchtigkeitsgehalt aufweisen können, wie Boden, Beton und ähnliches sind analog der Schlämme vorzubereiten. Trockene Feststoffe können direkt homogenisiert und geteilt werden. Die Homogenisierung und Teilung ist aber aufwändiger. Sie wird meist in mehreren Schritten durchgeführt. Die Probe wird in jedem Schritt zerkleinert, mechanisch homogenisiert und verjüngt. Dabei können folgende Techniken angewendet werden:

- Zerkleinerung
  - von Hand
  - durch Zerschlagen
  - durch Zerdrücken
  - durch Zerschneiden
  - durch Bohren
  - mittels Backenbrecher
  - mittels Mühle (z. B. Kugelmühle, Scheibenschwingmühle, Schneidmühle)
- Homogenisierung
  - von Hand
  - durch Rühren
  - durch Schütteln
  - mittels Taumelmischer
- Teilung
  - Entnahme von Hand
  - händisches Vierteln (mit dem Viertelkreuz)
  - Riffelteiler
  - Rotationsteiler

Diese Schritte werden so lange durchgeführt, bis die Probe die gewünschte Endfeinheit und die erforderliche Menge hat. Dabei ist zu beachten, dass die Masse der Teilproben in jedem Schritt mit der jeweiligen Korngröße korrespondiert. D. h. je größer das Material ist, umso größer ist auch die Teilprobe, die als repräsentativ angesehen werden kann.

Es empfiehlt sich, die Reihenfolge der bearbeiteten Proben so zu wählen, dass mit der Probe mit der niedrigsten spezifischen Aktivität begonnen wird und dann die Proben mit zunehmender spezifischer Aktivität zu bearbeiten, um eine Verschleppung von Aktivität zu vermeiden. Auf die Sauberkeit des Arbeitsplatzes und die Reinigung der Geräte und Hilfsmittel zwischen den einzelnen Proben zur Vermeidung von Querkontaminationen sei ausdrücklich hingewiesen.

Bei den Arbeitsschritten ist darauf zu achten, dass es zu keiner unzulässigen Erwärmung der Probe kommt, die zum Verlust interessierende Radionuklide führen könnte. Wenn in einer Probe Radionuklide bestimmt werden sollen, die an Gase gebunden sind z. B. H-3 soll die Struktur der Probe möglichst ungestört bleiben. Dazu kann die Probe z. B. durch wenig beanspruchende Verfahren geteilt werden, wie durch Zerschneiden.

### 6.6.5 Oberflächenschichten

Oberflächenschichten von Objekten lassen sich häufig im Labor besser, kontrollierter und reproduzierbarer für die anschließende Untersuchung abtragen als vor Ort.

Dazu kommen mechanische und chemische Verfahren in Frage:

- Abkratzen
- Abschleifen
- Abfräsen
- Ablösen durch Lösungsmittel
- Abätzen

Der Erfolg des Abtrags lässt sich quantitativ bestimmen, in dem die Probe vor und nach dem Abtrag hinsichtlich ihrer Aktivität gemessen wird. Dazu eignen sich besonders die Oberflächenkontaminationsmessung und die Gammaskpektrometrie. Dabei ist aber eine eventuelle Aktivität des Grundmaterials zu beachten.

## 6.7 Analytik

Die Bestimmung der einzelnen Radionuklide in den Proben erfolgt nach der Probenvorbereitung vor allem durch den Einsatz der folgenden Analyseverfahren:

- Gammaskpektrometrie (mit und ohne chemischer Abtrennung)
- Alphaspektrometrie nach radiochemischer Abtrennung
- Flüssigszintillationsmessung (LSC) nach radiochemischer Abtrennung
- Low-level-Alpha-Beta-Messung nach radiochemischer Abtrennung
- Massenspektrometrie mit induktiv gekoppeltem Plasma (ICP-MS, mit und ohne chemischer Abtrennung)

Eine Zusammenstellung entsprechender Analyseverfahren erfolgte in einem vom BMBF geförderten Projekt „Messmethoden zur Charakterisierung radioaktiver Abfälle und zur Freimessung von Reststoffen aus der Stilllegung kerntechnischer Anlagen (MESRAB)“ durch die RWTH Aachen [40] und in kurzer Form auch in der Loseblattsammlung des Arbeitskreises Umweltüberwachung des Fachverbandes Strahlenschutz [65].

Es ist sinnvoll, alle Proben zunächst mit der weniger aufwändigen Gammaskpektrometrie zu untersuchen, um dann auf Grund der Ergebnisse gezielt Proben für die aufwändigere Bestimmung von Alpha- und Betastrahlern auszuwählen. So können belastbare Daten bei vertretbarem Aufwand erhalten werden. Dieses Vorgehen wird

auch von der Strahlenschutzkommission im Fall des Kernkraftwerkes Stade empfohlen [10]. Wie hoch der Anteil der radiochemisch analysierten Proben sein soll, hängt im Wesentlichen von der Variabilität der Nuklidvektoren, insbesondere der Korrelation zwischen den radiochemisch bestimmbaren Radionukliden und den leichter zu bestimmenden Gammastrahlern ab. Zur besseren Einschätzung können durch Berechnungen (Aktivierung und Abbrand) gewonnene Daten hilfreich sein. Häufig werden ca. 10 % der Proben auch radiochemisch analysiert.

Es ist auch zu prüfen, ob die Verhältnisse der nur radiochemisch bestimmbaren Nuklide zu gammastrahlenden Schlüsselnucliden auch über Bereichsgrenzen und für mehrere Materialien Gültigkeit haben. Wenn dies der Fall ist, lässt sich die Zahl der radiochemischen Analysen verringern. Ein mögliches Schlüsselnuclid für die Alphastrahler der Transurangruppe ist Am-241, das sich gammaspektrometrisch bestimmen lässt. Häufig ist auch Sr-90+ mit dem gammaspektrometrisch gut bestimmbaren Cs-137+ korreliert.

Dieses Vorgehen wurde beim Rückbau des Kernkraftwerkes Stade gewählt. Mit Stand März 2006 waren 1500 Proben zur gammaspektrometrischen Untersuchung vorgesehen, von denen 40 bis 50 Proben bereichsübergreifend dann auf Alpha- und Betastrahler radiochemisch untersucht werden sollten [29].

Dagegen ist die summarische Bestimmung von Alpha- und Betastrahlern (Gesamtalpha und Gesamtbeta) mittels Low-level-Alpha-Beta-Countern nur wenig aussagekräftig, da deren Ergebnisse methodisch bedingt sehr große Unsicherheiten aufweisen. So kann es z. B. bei hohen Zählraten im Beta-Kanal zu einem Übersprechen in den Alpha-Kanal kommen, der dann eine höhere Alpha-Aktivität vortäuscht. Bei dieser Methode kann bei Proben mit natürlichen Radionukliden (K-40, Zerfallsreihen von U-238, U-235 und Th-232) wie Boden und Baumaterial nicht zwischen den natürlichen und den künstlichen Nukliden unterschieden werden.

Die Auswahl der Analyseverfahren für die einzelnen Radionuklide soll nach folgenden Kriterien (in der Reihenfolge ihrer Wichtigkeit) erfolgen:

- Selektivität für das zu bestimmende Radionuklid
- Erreichen der erforderlichen Nachweisgrenze
- möglichst geringe Messunsicherheit (Gesamtmessunsicherheit einschließlich aller Verfahrensschritte im Labor)
- Robustheit des Verfahrens
- Anforderungen an die Probenmenge (minimale und maximale Probenmenge)
- Arbeitsaufwand/Kosten



Die weitreichende Bedeutung der Nuklidvektoren im Freigabeprozess und der beträchtliche Aufwand bei der Planung und Durchführung einer ordnungsgemäßen Probenahme rechtfertigt auch einen entsprechenden Aufwand bei der Analytik zur Ermittlung belastbarer Werte für die spezifische Aktivität, d. h. bei der Erreichung ausreichend niedriger Nachweisgrenzen und geringer Messunsicherheiten [42].

Einige Radionuklide lassen sich auch mittels Radiochemie nicht separieren, da sie Isotope des gleichen Elements sind, und auch auf Grund ähnlicher Energie der von ihnen erzeugten Strahlung im Spektrum nicht sauber trennen. Das betrifft z. B. die Nuklidpaare Pu-239 – Pu-240 und Cm-243 – Cm-244. Auf Grund ihrer meist recht geringen Anteile am Nuklidvektor und der gleichen bzw. sehr ähnlichen Freigabewerte ist das aber in der überwiegenden Zahl der Fälle kein Problem. Falls doch eine Unterscheidung der Anteile erforderlich ist, sollten die Ergebnisse von Aktivierungs- und Abbrandrechnungen herangezogen werden.

Bei der Radionuklidanalytik ist zu beachten, dass neben der Kontamination mit Kernbrennstoff Uran und Thorium auch als natürlicher Bestandteil des Materials enthalten sein können. Das betrifft vor allem mineralische Materialien wie Beton, Mauerwerk und Boden. Aber auch andere Konstruktionsmaterialien können Uran oder Thorium enthalten, vor allem im Aluminium ist häufig ein nicht vernachlässigbarer Gehalt an Uran festzustellen. Natürliches Uran und Thorium liegen dann im radioaktiven Gleichgewicht mit ihren Töchtern (Zerfallsreihen) vor. Die Unterscheidung zwischen natürlichem Gehalt und der Kontamination mit Kernbrennstoff lässt sich sowohl über die Isotopenverhältnisse (Anreicherung der spaltbaren Isotope bei Kernmaterial) als auch über die Bestimmung der Tochternuklide der Zerfallsreihen (natürliche Herkunft) durchführen.

Im Freigabeleitfaden des VdTÜV wird im Abschnitt „Untersuchung der Nuklidzusammensetzung der Aktivität der freizugebenden Stoffe“ empfohlen die Erkennungsgrenzen so zu wählen, dass sie für die relevanten Nuklide in der Summe nicht mehr als 10 % der Freigabewerte ausschöpfen [57]. Diese Empfehlung ist aber nur für die eigentlichen Freigabemessungen sinnvoll, da dort die Unterschreitung der Freigabewerte nachzuweisen ist. Bei der Ermittlung des Nuklidvektors ist es dagegen wichtig welchen Anteil das jeweilige Nuklid am Nuklidgemisch hat. Das heißt hier geht es um die Relation der Nuklide zueinander. Ein Wert von 10 % der Freigabewerte kann also bei niedriger spezifischer Gesamtaktivität zu hoch sein, da dann der Anteil des Nuklids über 10 % des Nuklidgemisches liegen kann. Andererseits ist bei hohen spezifischen Gesamtaktivitäten in vielen Fällen eine Erkennungsgrenze in Höhe von 10 % des Freigabewertes nicht sinnvoll und analytisch häufig nicht erreichbar.

Das soll an einem vereinfachten Beispiel verdeutlicht werden, bei dem im Nuklidgemisch nur Cs-137+ und Sr-90+ zu erwarten sind.

Bei der Freigabeoption „uneingeschränkte Freigabe von festen Stoffen und Flüssigkeiten“ nach Spalte 5 der Anlage III Tabelle 1 der Strahlenschutzverordnung gelten folgende Freigabewerte:

Cs-137+	0,5 Bq/g
Sr-90+	2 Bq/g

Die nach dem Freigabeleitfaden des VdTÜV zu fordernde Erkennungsgrenze für Sr-90+ wäre demnach 0,2 Bq/g.

#### Fall 1:

Die spezifische Aktivität von Cs-137+ in der Probe beträgt 0,1 Bq/g.

Im gewichteten und normierten Nuklidvektor hätten die Nuklide die folgenden Anteile wenn Sr-90 unter der Erkennungsgrenze liegt:

Cs-137+	$0,1 \text{ Bq/g} / 0,5 \text{ Bq/g} = 0,2$	normiert	> 66,67 %
Sr-90+	$< 0,2 \text{ Bq/g} / 2 \text{ Bq/g} = < 0,1$	normiert	< 33,33 %

Der Anteil des Sr-90+ kann also nicht auf Grund des 10 %-Abschneidekriteriums vernachlässigt, sondern müsste bei konservativer Betrachtung im Nuklidvektor mit berücksichtigt werden.

#### Fall 2:

Die spezifische Aktivität von Cs-137+ in der Probe beträgt 100 Bq/g.

Im gewichteten und normierten Nuklidvektor hätten die Nuklide die folgenden Anteile wenn Sr-90 unter der Erkennungsgrenze liegt:

Cs-137+	$100 \text{ Bq/g} / 0,5 \text{ Bq/g} = 200$	normiert	> 99,95 %
Sr-90+	$< 0,2 \text{ Bq/g} / 2 \text{ Bq/g} = < 0,1$	normiert	< 0,05 %

In diesem Fall hätte eine weit höhere Erkennungsgrenze ausgereicht, um das 10 %-Abschneidekriterium zu erfüllen.

Außerdem ist besser auf die Nachweisgrenze als auf die Erkennungsgrenze zu orientieren, da bei konservativer Ermittlung des Nuklidvektors bei Nukliden, die unter der Nachweisgrenze liegen, diese dann in den Nuklidvektor einbezogen wird. Darauf wird im Abschnitt 6.8 noch eingegangen.

Es ist daher günstiger, die Nachweisgrenzen in Abhängigkeit von der spezifischen Gesamtaktivität in der jeweiligen Probe festzulegen. Sie sind dann so niedrig anzusetzen, dass die Anteile der relevanten Radionuklide in Summe das 10 %-Abschneidekriterium nach Strahlenschutzverordnung Anlage IV unterschreiten.

Eine exakte Berechnung ist allerdings nicht möglich, da einerseits die Summe der spezifischen Aktivitäten aller Nuklide noch nicht bekannt ist und andererseits die Summe der Nachweisgrenzen keine nuklidspezifische Aussage erlaubt.

Näherungsweise lassen sich die zu erreichenden Nachweisgrenzen aber berechnen, wenn man vereinfachend anstatt der Summe der Nachweisgrenzen die Nachweisgrenze des interessierenden Nuklids setzt und statt der Summe der spezifischen Aktivitäten aller Nuklide die spezifische Aktivität des jeweiligen Schlüsselnuclids:

$$g_i = \frac{a_S \cdot R_i}{10 \cdot R_S}$$

- $g_i$  - Nachweisgrenze des Nuklids  $i$
- $a_S$  - spezifische Aktivität des Schlüsselnuclids  $S$
- $R_i$  - massenspezifischer Freigabewert des Nuklids  $i$
- $R_S$  - massenspezifischer Freigabewert des Schlüsselnuclids  $S$

Analoges gilt für die flächenspezifischen Freigabewerte. Dabei sind bei den Freigabewerten die jeweiligen Freigabeoptionen nach den Spalten 4 bis 10a der Anlage III Tabelle 1 der Strahlenschutzverordnung zu berücksichtigen.

In den Tabellen 5 bis 7 sind geordnet nach den Schlüsselnucliden Co-60, Cs-137 und Am-241 für die wichtigsten Nuklide die Faktoren  $f_{F,S,i}$  in Abhängigkeit von den Freigabeoptionen aufgelistet. Dabei ist der Faktor  $f_{F,S,i}$  wie folgt definiert:

$$f_{F,S,i} = \frac{R_{F,i}}{10 \cdot R_{F,S}}$$

- $f_{F,S,i}$  - Faktor für das Nuklid  $i$  im Bezug auf das Schlüsselnuclid  $S$  bei der Freigabeoption  $F$
- $R_{F,i}$  - massenspezifischer Freigabewert des Nuklids  $i$  bei der Freigabeoption  $F$
- $R_{F,S}$  - massenspezifischer Freigabewert des Schlüsselnuclids  $S$  bei der Freigabeoption  $F$

Analoges gilt wieder für die flächenspezifischen Freigabewerte.

Für die Anwendung im konkreten Fall muss die spezifische Aktivität des Schlüsselnuclids  $a_S$  nur mit dem Faktor  $f_{F,S,i}$  multipliziert werden um die Nachweisgrenze des Nuklids  $i$  bei der Freigabeoption  $F$  zu berechnen.

Umgekehrt kann bei einer methodisch bedingten Nachweisgrenze eines Nuklids  $i$  die spezifische Mindestaktivität des Schlüsselnuclids berechnet werden, um in der Probe zu ermitteln, ob das Nuklid  $i$  für den Nuklidvektor relevant ist. Dazu muss die Nachweisgrenze des Nuklids  $i$  durch den Faktor  $f_{F,S,i}$  dividiert werden.

Tabelle 5: Faktoren  $f_{F,Co-60,i}$  für das Schlüsselnuklid Co-60

Radio-nuklid	Oberflächen-kontamination	uneingeschränkte Freigabe von				Freigabe von			Minimum
		festen Stoffen, Flüssigkeiten mit Ausn. von Sp.6	Bauschutt, Bodenaushub von mehr als 1000 t/a	Bodenflächen	Gebäuden zur Wieder-, Weiterverwendung	festen Stoffen, Flüssigkeiten zur Beseitigung mit Ausn. von Sp.6	Gebäuden zum Abriss	Metallschrott zur Rezyklierung	
Spalte	4	5	6	7	8	9	10	10a	
					$f_{F,Co-60,i}$				
H-3	10,000	1000,000	69,663	10,000	277,778	25,000	131,034	166,667	10,000
C-14	10,000	80,000	11,236	0,133	277,778	50,000	200,000	13,333	0,133
Cl-36	10,000	8,000	1,236		8,889	0,200	1,103	1,667	0,200
Mn-54	0,100	0,400	0,292	0,300	0,278	0,250	0,414	0,333	0,100
Fe-55	10,000	200,000	224,719	20,000	277,778	250,000	827,586	1666,667	10,000
Fe-59	0,100	1,000	0,213	0,200	0,278	0,175	1,138	1,667	0,100
Co-57	1,000	20,000	3,034	2,667	3,333	2,500	4,483	3,333	1,000
Co-60	---	---	---	---	---	---	---	---	---
Ni-59	10,000	800,000	898,876	26,667	277,778	125,000	3068,966	1666,667	10,000
Ni-63	10,000	300,000	337,079	10,000	277,778	75,000	1275,862	1666,667	10,000
Zn-65	0,100	0,500	0,427	0,033	0,639	0,250	0,655	0,083	0,033
Sr-90+	0,100	2,000	1,685	0,007	9,444	0,050	1,172	1,500	0,007
Zr-95	0,100	0,500	0,102	0,333	0,278	0,125	0,517	0,100	0,100
Nb-94	0,100	0,200	0,157	0,167	0,147	0,150	0,148	0,067	0,067
Nb-95	0,100	2,000	0,326	0,333	0,278	0,250	2,172	1,667	0,100
Tc-99	10,000	10,000	1,573		19,444	0,250	2,414	6,667	0,250
Ru-106+	1,000	1,000	1,236	1,000	1,556	1,000	1,552	0,167	0,167
Ag-108m+	0,100	0,200	0,157	0,023	0,142	0,150	0,145	0,133	0,023
Ag-110m+	0,100	0,100	0,091	0,023	0,133	0,075	0,134	0,083	0,023
Cd-109+	10,000	20,000	22,472	0,100	11,111	100,000	141,379	3,333	0,100
Sb-124	0,100	0,500	0,562	0,133	0,278	0,125	0,517	0,083	0,083
Sb-125+	1,000	0,800	0,607	0,267	0,583	0,500	0,621	0,500	0,267
I-129	0,100	0,400	0,135		2,083	0,010	0,259	0,067	0,010
Cs-134	0,100	0,200	0,157	0,167	0,175	0,150	0,176	0,033	0,033
Cs-137+	0,100	0,500	0,449	0,200	0,417	0,250	0,414	0,100	0,100
Ba-133	0,100	1,000				0,750		0,333	0,100
Ce-144+	10,000	9,000	5,843	1,333	7,222	2,500	8,276	1,667	1,333
Eu-152	0,100	0,200	0,225	0,233	0,214	0,200	0,214	0,083	0,083
Eu-154	0,100	0,200	0,202	0,200	0,192	0,175	0,197	0,083	0,083
Eu-155	1,000	30,000	9,101	6,667	4,167	2,500	8,966	5,000	1,000
U-233	0,100	0,400	0,360		0,333	0,050	0,334	0,500	0,050
U-234	0,100	0,500	0,404		0,389	0,225	0,379	0,333	0,100
U-235+	0,100	0,500	0,382		0,361	0,075	0,345	0,133	0,075
U-238+	0,100	0,600	0,483		0,444	0,250	0,448	0,333	0,100
U-238sec	0,100	0,009				0,003		0,007	0,003
Pu-238	0,010	0,040	0,092	0,200	0,028	0,025	0,086	0,050	0,010
Pu-239	0,010	0,040	0,087	0,133	0,028	0,025	0,079	0,033	0,010
Pu-240	0,010	0,040	0,087	0,133	0,028	0,025	0,079	0,033	0,010
Pu-241	1,000	2,000	2,247	13,333	3,056	2,500	3,172	1,667	1,000
Am-241	0,010	0,050	0,056	0,200	0,028	0,025	0,097	0,050	0,010
Am-243+	0,010	0,050	0,102	0,167	0,028	0,025	0,097	0,050	0,010
Cm-242	0,100	0,800	0,753	1,333	0,361	1,250	1,379	0,833	0,100
Cm-243	0,010	0,070	0,135	0,233	0,028	0,025	0,131	0,067	0,010
Cm-244	0,010	0,080	0,090	0,267	0,028	0,250	0,155	0,083	0,010

Tabelle 6: Faktoren  $f_{F,Cs-137,i}$  für das Schlüsselnuklid Cs-137

Radio-nuklid	Oberflächen-kontamination	uneingeschränkte Freigabe von				Freigabe von			Minimum
		festen Stoffen, Flüssigkeiten mit Ausn. von Sp.6	Bauschutt, Bodenaushub von mehr als 1000 t/a	Bodenflächen	Gebäuden zur Wieder-, Weiterverwendung	festen Stoffen, Flüssigkeiten zur Beseitigung mit Ausn. von Sp.6	Gebäuden zum Abriss	Metallschrott zur Rezyklierung	
Spalte	4	5	6	7	8	9	10	10a	
					$f_{F,Cs-137,i}$				
H-3	10,000	200,000	15,500	5,000	66,667	10,000	31,667	166,667	5,000
C-14	10,000	16,000	2,500	0,067	66,667	20,000	48,333	13,333	0,067
Cl-36	10,000	1,600	0,275		2,133	0,080	0,267	1,667	0,080
Mn-54	0,100	0,080	0,065	0,150	0,067	0,100	0,100	0,333	0,065
Fe-55	10,000	40,000	50,000	10,000	66,667	100,000	200,000	1666,667	10,000
Fe-59	0,100	0,200	0,048	0,100	0,067	0,070	0,275	1,667	0,048
Co-57	1,000	4,000	0,675	1,333	0,800	1,000	1,083	3,333	0,675
Co-60	0,100	0,020	0,022	0,050	0,024	0,040	0,024	0,100	0,020
Ni-59	10,000	160,000	200,000	13,333	66,667	50,000	741,667	1666,667	10,000
Ni-63	10,000	60,000	75,000	5,000	66,667	30,000	308,333	1666,667	5,000
Zn-65	0,100	0,100	0,095	0,017	0,153	0,100	0,158	0,083	0,017
Sr-90+	0,100	0,400	0,375	0,003	2,267	0,020	0,283	1,500	0,003
Zr-95	0,100	0,100	0,023	0,167	0,067	0,050	0,125	0,100	0,023
Nb-94	0,100	0,040	0,035	0,083	0,035	0,060	0,036	0,067	0,035
Nb-95	0,100	0,400	0,073	0,167	0,067	0,100	0,525	1,667	0,067
Tc-99	10,000	2,000	0,350		4,667	0,100	0,583	6,667	0,100
Ru-106+	1,000	0,200	0,275	0,500	0,373	0,400	0,375	0,167	0,167
Ag-108m+	0,100	0,040	0,035	0,012	0,034	0,060	0,035	0,133	0,012
Ag-110m+	0,100	0,020	0,020	0,012	0,032	0,030	0,033	0,083	0,012
Cd-109+	10,000	4,000	5,000	0,050	2,667	40,000	34,167	3,333	0,050
Sb-124	0,100	0,100	0,125	0,067	0,067	0,050	0,125	0,083	0,050
Sb-125+	1,000	0,160	0,135	0,133	0,140	0,200	0,150	0,500	0,133
I-129	0,100	0,080	0,030		0,500	0,004	0,063	0,067	0,004
Cs-134	0,100	0,040	0,035	0,083	0,042	0,060	0,043	0,033	0,033
Cs-137+	---	---	---	---	---	---	---	---	---
Ba-133	0,100	0,200				0,300		0,333	0,100
Ce-144+	10,000	1,800	1,300	0,667	1,733	1,000	2,000	1,667	0,667
Eu-152	0,100	0,040	0,050	0,117	0,051	0,080	0,052	0,083	0,040
Eu-154	0,100	0,040	0,045	0,100	0,046	0,070	0,048	0,083	0,040
Eu-155	1,000	6,000	2,025	3,333	1,000	1,000	2,167	5,000	1,000
U-233	0,100	0,080	0,080		0,080	0,020	0,081	0,500	0,020
U-234	0,100	0,100	0,090		0,093	0,090	0,092	0,333	0,090
U-235+	0,100	0,100	0,085		0,087	0,030	0,083	0,133	0,030
U-238+	0,100	0,120	0,108		0,107	0,100	0,108	0,333	0,100
Pu-238	0,010	0,008	0,021	0,100	0,007	0,010	0,021	0,050	0,007
Pu-239	0,010	0,008	0,019	0,067	0,007	0,010	0,019	0,033	0,007
Pu-240	0,010	0,008	0,019	0,067	0,007	0,010	0,019	0,033	0,007
Pu-241	1,000	0,400	0,500	6,667	0,733	1,000	0,767	1,667	0,400
Am-241	0,010	0,010	0,013	0,100	0,007	0,010	0,023	0,050	0,007
Am-243+	0,010	0,010	0,023	0,083	0,007	0,010	0,023	0,050	0,007
Cm-242	0,100	0,160	0,168	0,667	0,087	0,500	0,333	0,833	0,087
Cm-243	0,010	0,014	0,030	0,117	0,007	0,010	0,032	0,067	0,007
Cm-244	0,010	0,016	0,020	0,133	0,007	0,100	0,038	0,083	0,007

Tabelle 7: Faktoren  $f_{F,Am-241,i}$  für das Schlüsselnuklid Am-241

Radio-nuklid	Oberflächen-kontamination	uneingeschränkte Freigabe von				Freigabe von			Minimum
		festen Stoffen, Flüssigkeiten mit Ausn. von Sp.6	Bauschutt, Bodenaushub von mehr als 1000 t/a	Bodenflächen	Gebäuden zur Wieder-, Weiterverwendung	festen Stoffen, Flüssigkeiten zur Beseitigung mit Ausn. von Sp.6	Gebäuden zum Abriss	Metallschrott zur Rezyklierung	
Spalte	4	5	6	7	8	9	10	10a	
					$f_{F,Am-241,i}$				
H-3	100,000	2000,000	124,000	5,000	1000,000	100,000	135,714	333,333	5,000
C-14	100,000	160,000	20,000	0,067	1000,000	200,000	207,143	26,667	0,067
Cl-36	100,000	16,000	2,200		32,000	0,800	1,143	3,333	0,800
Mn-54	1,000	0,800	0,520	0,150	1,000	1,000	0,429	0,667	0,150
Fe-55	100,000	400,000	400,000	10,000	1000,000	1000,000	857,143	3333,333	10,000
Fe-59	1,000	2,000	0,380	0,100	1,000	0,700	1,179	3,333	0,100
Co-57	10,000	40,000	5,400	1,333	12,000	10,000	4,643	6,667	1,333
Co-60	1,000	0,200	0,178	0,050	0,360	0,400	0,104	0,200	0,050
Ni-59	100,000	1600,000	1600,000	13,333	1000,000	500,000	3178,571	3333,333	13,333
Ni-63	100,000	600,000	600,000	5,000	1000,000	300,000	1321,429	3333,333	5,000
Zn-65	1,000	1,000	0,760	0,017	2,300	1,000	0,679	0,167	0,017
Sr-90+	1,000	4,000	3,000	0,003	34,000	0,200	1,214	3,000	0,003
Zr-95	1,000	1,000	0,182	0,167	1,000	0,500	0,536	0,200	0,167
Nb-94	1,000	0,400	0,280	0,083	0,530	0,600	0,154	0,133	0,083
Nb-95	1,000	4,000	0,580	0,167	1,000	1,000	2,250	3,333	0,167
Tc-99	100,000	20,000	2,800		70,000	1,000	2,500	13,333	1,000
Ru-106+	10,000	2,000	2,200	0,500	5,600	4,000	1,607	0,333	0,333
Ag-108m+	1,000	0,400	0,280	0,012	0,510	0,600	0,150	0,267	0,012
Ag-110m+	1,000	0,200	0,162	0,012	0,480	0,300	0,139	0,167	0,012
Cd-109+	100,000	40,000	40,000	0,050	40,000	400,000	146,429	6,667	0,050
Sb-124	1,000	1,000	1,000	0,067	1,000	0,500	0,536	0,167	0,067
Sb-125+	10,000	1,600	1,080	0,133	2,100	2,000	0,643	1,000	0,133
I-129	1,000	0,800	0,240		7,500	0,040	0,268	0,133	0,040
Cs-134	1,000	0,400	0,280	0,083	0,630	0,600	0,182	0,067	0,067
Cs-137+	1,000	1,000	0,800	0,100	1,500	1,000	0,429	0,200	0,100
Ba-133	1,000	2,000				3,000		0,667	0,667
Ce-144+	100,000	18,000	10,400	0,667	26,000	10,000	8,571	3,333	0,667
Eu-152	1,000	0,400	0,400	0,117	0,770	0,800	0,221	0,167	0,117
Eu-154	1,000	0,400	0,360	0,100	0,690	0,700	0,204	0,167	0,100
Eu-155	10,000	60,000	16,200	3,333	15,000	10,000	9,286	10,000	3,333
U-233	1,000	0,800	0,640		1,200	0,200	0,346	1,000	0,200
U-234	1,000	1,000	0,720		1,400	0,900	0,393	0,667	0,393
U-235+	1,000	1,000	0,680		1,300	0,300	0,357	0,267	0,267
U-238+	1,000	1,200	0,860		1,600	1,000	0,464	0,667	0,464
Pu-238	0,100	0,080	0,164	0,100	0,100	0,100	0,089	0,100	0,080
Pu-239	0,100	0,080	0,154	0,067	0,100	0,100	0,082	0,067	0,067
Pu-240	0,100	0,080	0,154	0,067	0,100	0,100	0,082	0,067	0,067
Pu-241	10,000	4,000	4,000	6,667	11,000	10,000	3,286	3,333	3,286
Am-241	---	---	---	---	---	---	---	---	---
Am-243+	0,100	0,100	0,182	0,083	0,100	0,100	0,100	0,100	0,083
Cm-242	1,000	1,600	1,340	0,667	1,300	5,000	1,429	1,667	0,667
Cm-243	0,100	0,140	0,240	0,117	0,100	0,100	0,136	0,133	0,100
Cm-244	0,100	0,160	0,160	0,133	0,100	1,000	0,161	0,167	0,100

Bei der analytischen Bestimmung der spezifischen Aktivitäten sind immer die zugehörigen Gesamtstandardmessunsicherheiten zu ermitteln. Dabei handelt es sich um die kombinierten Standardmessunsicherheiten, die alle relevanten Unsicherheitskomponenten berücksichtigen. Die alleinige Berücksichtigung der zählstatistischen Messunsicherheit ist nicht ausreichend.

Als Unsicherheitskomponenten kommen in Frage:

- Probenaufbereitung
- Entnahme von Teilproben
- Probenaufschluss
- radiochemisch Trennung
- Präparation der Messproben
- Kalibration des Messverfahrens
- Messung

Da diese Komponenten nicht alle mit vertretbarem Aufwand mathematisch-statistisch quantifiziert werden können (Typ A) sind auch qualifizierte Abschätzungen zulässig (Typ B).

Grundlagen dafür sind der Guide to the Expression of Uncertainty in Measurement (GUM) [12], die DIN V ENV 13005 [13] und die DIN 1319-4 [14].

Anleitungen für die Praxis bieten auch entsprechende Dokumente verschiedener Organisationen:

- EURACHEM [15]
- Deutscher Akkreditierungsrat (DAR) [16], [17]
- Deutsches Akkreditierungssystem Prüfwesen GmbH (DAP) [18]
- Deutsche Akkreditierungsstelle Chemie GmbH (DACH) [19]
- Nordtest [20].

Bei den Normen zu radiologischen Messungen und Analysen ist die vollständige Ermittlung der Messunsicherheit bisher nur bei DIN 25482-10 [21], DIN 25482-12 [22], DIN 25482-13 [23] und ISO 11929-7 [24] berücksichtigt.

Wichtig ist dabei die Einbeziehung aller Unsicherheitskomponenten zumindest der Arbeiten im Labor, da sich die Unsicherheiten bei der Probenahme nur schwer abschätzen lassen. Für diese ist die Streuung der Resultate für mehrere Proben eines Objektes ein zuverlässigeres Maß. Unsicherheitskomponenten, die sich mathematisch-statistisch nur mit großem Aufwand ermitteln lassen, sollen realistisch geschätzt werden.

Bei der Ermittlung der Messunsicherheit ist es vorteilhaft, auf bereits vorhandene Daten der Qualitätssicherung aus dem Labor zurückzugreifen, wie z. B.:

- Ergebnisse von Teilnahmen an Ringversuchen und Laborvergleichen
- Daten aus der Validierung bzw. Verifizierung der Analyseverfahren
- Analyseergebnisse von Standardreferenzmaterialien
- Daten der regelmäßigen Qualitätskontrolle (z. B. Regelkarten)
- Mehrfachbestimmungen
- Parallelbestimmungen mit anderen Analyseverfahren

Die Durchführung der Analysen in einem nach der DIN EN ISO/IEC 17025 [27] für Radionuklidbestimmungen akkreditierten Labor bietet den Vorteil, dass dort die durchgängige Qualitätssicherung und die Bestimmung der Gesamtmessunsicherheiten auf Grund der Akkreditierung etabliert sind.

Bei aktivierten Materialien ist es für Modellrechnungen der Aktivierung erforderlich, die Elementzusammensetzung des Materials zu ermitteln. Dazu können Zertifikate der eingesetzten Materialien herangezogen werden, soweit sie vorhanden sind. In den meisten Fällen ist es aber erforderlich zumindest ergänzend eigene Analysen durchzuführen, um die Übereinstimmung der Materialien mit den Zertifikaten zu überprüfen und um fehlende Angaben zu relevanten Elementen zu ergänzen. Für diese Analysen sollten vorrangig inaktive Rückstellproben der Konstruktionsmaterialien verwendet werden. Nur wenn dies nicht möglich ist, soll auf möglichst gering aktivierte Materialproben zurückgegriffen werden. Dabei ist aber dann der bereits aktivierte Anteil der Elemente zu korrigieren, wenn es bei der Aktivierung zu einer Elementumwandlung gekommen sein kann.

Zu den interessierenden Elementen gehören nicht nur die Hauptelemente sondern auch ausgewählte Spurenelemente, die auf Grund der möglichen Kernreaktionen und ihrer Wirkungsquerschnitte zu freigaberelevanten Aktivitäten führen können. Außerdem sind die spaltbaren Elemente U und Th zu bestimmen, da eine Kernspaltung auch bei dem in Konstruktionsmaterialien enthaltenen U und Th stattfinden kann.

## **6.8 Berechnung der Nuklidvektoren**

### **6.8.1 Allgemeines**

Zur Berechnung der Nuklidvektoren werden die verfügbaren Informationen zur Nuklidzusammensetzung der zu bewertenden Materialien herangezogen:

- Daten aus der Betriebsdokumentation
- Ergebnisse der Laboranalytik der entnommenen Proben
  - Gammaskpektrometrie
  - radiochemische Analytik
- Ergebnisse der In-situ-Gammaskpektrometrie bei den Vor-Ort-Messungen
- Modellrechnungen der Aktivierung
- Berechnung der Verhältnisse des Urans und der Transurane (Abbrandrechnungen)



Diese Daten sind vor ihrer Nutzung zu validieren, d. h. es sind unter Anderem folgende Punkte zu prüfen:

- Vollständigkeit
- Plausibilität
- Zuverlässigkeit
- Berücksichtigung der Gesamtmessunsicherheit
- Wiedergabe des aktuellen Zustandes des Materials (gegebenenfalls ist eine Korrektur des Abklingens kurzlebiger Nuklide erforderlich)
- Widerspruchsfreiheit

Aus den geprüften Daten können dann die Nuklidvektoren berechnet werden. Dafür wird die Summe der spezifischen Aktivitäten aller Nuklide einer Probe gebildet und dann der Anteil der einzelnen Nuklide daran ermittelt.

Bei analytisch schlecht bestimmbar Radionukliden bzw. unsicheren Ergebnissen können auch berechnete Nuklidanteile verwendet werden, insbesondere wenn diese konservativer sind.

Radionuklide unter der Nachweisgrenze brauchen bei der Berechnung der Nuklidvektoren nicht berücksichtigt werden, wenn die Nachweisgrenzen entsprechend den oben genannten Vorgaben niedrig genug sind, d. h. wenn das Radionuklid sicher das 10 %-Abschneidekriterium nach Anlage IV der Strahlenschutzverordnung unterschreitet. Diesem Konzept hat die Strahlenschutzkommission beim Rückbau des Kernkraftwerks Stade zugestimmt [10].

Für eine konservativere Betrachtung können die Nachweisgrenzen wie Messwerte bei der Berechnung der Nuklidvektoren einbezogen werden. Das sollte aber auf die Radionuklide beschränkt bleiben, die bei der Konzeption für die Ermittlung von Nuklidvektoren als relevant für einen Bereich und ein Material angesehen wurden.

Das für statistische Betrachtungen zugrunde zu legende Vertrauensniveau soll nach Stellungnahme der Strahlenschutzkommission zum Rückbaukonzept des Kernkraftwerks Stade 95 % sein [10]. Das betrifft sowohl die Anzahl der Proben, als auch die Anzahl der Messpunkte. Das gleiche Vertrauensniveau wird auch in den Normen für die Freigabe von Bauschutt und Gebäuden [5] und Boden [6] zu Grunde gelegt.

Es gibt drei mögliche Herangehensweisen zur Ermittlung von Nuklidvektoren zum Zweck der Freigabe:

- die Berechnung eines abdeckenden Nuklidvektors
- die Berechnung des Nuklidvektors auf statistischer Grundlage
- die Berechnung des Nuklidvektors durch Mittelwertbildung.

Diese drei Möglichkeiten unterscheiden sich hinsichtlich Repräsentativität und Konservativität deutlich:

- Der abdeckende Nuklidvektor ist konservativ, aber im engeren Sinne nicht repräsentativ, da er die nicht gammaspektrometrisch bestimmbaren Radionuklide deutlich überbewertet.
- Der durch Mittelwertbildung ermittelte Nuklidvektor ist zwar repräsentativ, da er die mittlere Nuklidzusammensetzung widerspiegelt. Er ist aber nicht konservativ, da es bei über dem Mittelwert liegenden Nuklidanteilen einzelner Proben auch zu einer Überschreitung der Freigabewerte in der Summe aller Nuklide kommen kann.
- Die Berechnung auf statistischer Grundlage führt zu Nuklidvektoren, die zwischen den beiden vorgenannten Varianten liegen. D. h. sie führen einerseits zu keiner so starken Überbewertung der nicht gammaspektrometrisch bestimmbaren Nuklide und vermeiden andererseits auf einem vorgegebenen Vertrauensniveau die Überschreitung der Freigabewerte. Insofern sind die Nuklidvektoren repräsentativ und konservativ.

Die genaue Vorgehensweise zur Ermittlung der Nuklidvektoren nach diesen drei Möglichkeiten und die jeweiligen Vor- und Nachteile sind in den Abschnitten 6.8.2 bis 6.8.4 dargestellt.

Das in Teil A Ziffer 1. e) der Anlage IV der Strahlenschutzverordnung genannte 10 %-Abschneidekriterium kann zu einer Vereinfachung der Nuklidvektoren genutzt werden. Das 10 %-Abschneidekriterium darf aber im Sinne der Anlage IV der Strahlenschutzverordnung nicht auf die einfachen Nuklidvektoren, sondern nur auf die gewichteten und normierten Nuklidvektoren angewandt werden. Denn es soll ja der freigaberelevante Beitrag der einzelnen Nuklide betrachtet werden und dann Nuklide, die nicht wesentlich dazu beitragen, außer Betracht gelassen.

Zur Anwendung des 10 %-Abschneidekriteriums werden die Radionuklide entsprechend ihrem Anteil am gewichteten und normierten Nuklidvektor, beginnend mit dem Nuklid mit dem größten Anteil, addiert, bis 90 % erreicht sind. Nur diese sind dann noch für den Nuklidvektor relevant. Die Nuklide deren Anteil in der Summe unter 10 % bleibt, können dann weggelassen werden. Danach ist der nicht gewichtete Nuklidvektor nur mit den relevanten Nukliden (Anteil > 90 %) neu zu normieren. Dieser neue Nuklidvektor nach Anwendung des 10 %-Abschneidekriteriums wird auch als „verkürzter“ oder „reduzierter“ Nuklidvektor bezeichnet.

Das Vorgehen soll an Hand eines Beispiels in Tabelle 8 erläutert werden.

Tabelle 8: Ermittlung des verkürzten Nuklidvektors

A	B	C	D	E	F	G	H
Nuklid	Freigabewerte nach Anl. III, Tab. 1 Spalte 5	Nuklidvektor					
		Original	gewichtet	gewichtet und normiert	Anwendung Abschneidekriterium		verkürzt
	[Bq/g]	[%]		[%]	Spalte E	Spalte C	
					[%]	[%]	[%]
Fe-55	200,00	10,0	0,05	0,014			
Co-60	0,10	20,0	200,00	57,213	57,213	20,0	29,4
Ni-63	300,00	6,0	0,02	0,006			
Sr-90+	2,00	15,0	7,50	2,145			
Cs-137+	0,50	40,0	80,00	22,885	22,885	40,0	58,8
Eu-152	0,20	8,0	40,00	11,443	11,443	8,0	11,8
Pu-238	0,04	0,2	5,00	1,430			
Pu-239/240	0,04	0,2	5,00	1,430			
Am-241	0,05	0,6	12,00	3,433			
Summe		100,0	349,57	100,000	91,541	68,000	100,000

In die Spalten A bis C wurden die Nuklide, ihre Freigabewerte nach der gewählten Freigabeoption und die Nuklidanteile („Originalnuklidvektor“) eingetragen. Für den gewichteten Nuklidvektor in Spalte D werden die Nuklidanteile durch die Freigabewerte geteilt, d. h. die Freigabewerte werden als Wichtunggröße verwendet. Dieser gewichtete Nuklidvektor wird nun auf 100 % normiert (Spalte E). In Spalte F werden die Anteile am gewichteten und normierten Nuklidvektor beginnend mit dem größten Anteil addiert, bis 90 % überschritten sind. Das ist im Beispiel nach der Addition von Co-60, Cs-137+ und Eu-152 der Fall. Die zu den ausgewählten Nukliden gehörigen Anteile am Originalnuklidvektor werden in Spalte G eingetragen und addiert. Diese Anteile werden wieder auf 100 % normiert und ergeben den verkürzten Nuklidvektor in Spalte H.

Wenn die Freigabe sowohl nach flächen- wie nach massenspezifischen Freigabewerten erfolgen soll, ist zu beachten, dass nur die Nuklide unberücksichtigt bleiben dürfen, die sowohl bei der flächen- wie bei der massenspezifischen Summenformel zusammengerechnet nicht mehr als 10 % betragen.

Das soll an Hand des obigen Beispiels in Tabelle 9 erläutert werden.

Tabelle 9: Ermittlung des verkürzten Nuklidvektors flächen- und massebezogen

A	B	C	D	E	F	G	H	I	K
Nuklid	Freigabewerte nach Anl. III, Tab. 1		Nuklidvektor						
	Spalte 4	Spalte 5	Original	gewichtet und normiert nach Anl. III, Tab. 1		Anwendung		Abschneidekriterium	verkürzt
				Spalte 4	Spalte 5	Spalte D	Spalte E		
	[Bq/cm <sup>2</sup> ]	[Bq/g]	[%]	[%]	[%]	[%]	[%]	[%]	[%]
Fe-55	100,0	200,00	10,0	0,107	0,014				
Co-60	1,0	0,10	20,0	21,468	57,213	21,468	57,213	20,0	23,9
Ni-63	100,0	300,00	6,0	0,064	0,006				
Sr-90+	1,0	2,00	15,0	16,101	2,145	16,101		15,0	17,9
Cs-137+	1,0	0,50	40,0	42,937	22,885	42,937	22,885	40,0	47,8
Eu-152	1,0	0,20	8,0	8,587	11,443	8,587	11,443	8,0	9,6
Pu-238	0,1	0,04	0,2	2,147	1,430				
Pu-239/240	0,1	0,04	0,2	2,147	1,430				
Am-241	0,1	0,05	0,6	6,441	3,433	6,441		0,6	0,7
Summe			100,0	100,000	100,000	95,535	91,541	83,6	100,0

Bei den Spalten A bis F ist das Vorgehen analog zu dem bei Tabelle 8 erläuterten Verfahren, wobei die Spalten mit den gewichteten Nuklidvektoren zur Verbesserung der Übersichtlichkeit ausgeblendet wurden. Die Wichtung erfolgte dabei sowohl mit den flächenbezogenen wie mit den massebezogenen Freigabewerten. In den Spalten G und H wurde das Abschneidekriterium jeweils auf den flächenbezogenen und den massebezogenen gewichteten und normierten Nuklidvektor angewandt. Es ist zu sehen, dass im Beispiel bei flächenbezogener Betrachtung mehr Nuklide erforderlich sind, um in der Summe die 90 % zu überschreiten. Es dürfen nur die Nuklide beim verkürzten Nuklidvektor unberücksichtigt bleiben, die bei beiden Betrachtungen in der Summe unter 10 % liegen. Deshalb sind beim verkürzten Nuklidvektor gegenüber der rein massebezogenen Betrachtung zusätzlich die Nuklide Sr-90+ und Am-241 aufzunehmen (Spalte K).

Es kann auch günstig sein, bei der Addition der Nuklidanteile in der Reihenfolge der steigenden Nuklidanteile ein Nuklid auszusparen und ein oder mehrere Nuklide mit geringeren Anteilen zu berücksichtigen, wenn sich dadurch der Analysenaufwand verringert. Das kann z. B. dadurch geschehen, dass Nuklide weggelassen werden, die nur radiochemisch bestimmbar sind zugunsten von Nuklide, die gammaspektrometrisch messbar sind.

Bei extrem heterogenen Kontaminationen ist zu prüfen, ob die Nutzung von Nuklidvektoren überhaupt sinnvoll und praktikabel ist. Eine Möglichkeit ist es, die Teilbereiche so weit zu verkleinern, bis sie in sich homogen sind. Dann gelten die Nuklidvektoren aber nur für sehr begrenzte Stoffmengen und es ist ein relativ großer Aufwand erforderlich, um die große Zahl von Nuklidvektoren zuverlässig zu bestimmen. Eine andere Möglichkeit ist es, einen abdeckenden Nuklidvektor zu bilden. Der wird dann allerdings sehr konservativ sein, so dass seine Anwendung für die Freigabe unpraktikabel sein kann. Die Bildung eines abdeckenden Nuklidvektors scheitert auch, wenn für die Teilbereiche, die zusammengefasst werden sollen, kein gemeinsames Schlüsselnuclid existiert. Solche extrem heterogenen Kontaminationen treten vor allem auf, wenn zu verschiedenen Zeiten mit sehr unterschiedlichen Nuklidgemischen umgegangen wurde, wie das beispielsweise bei radiochemischen Labors, Abfallbehandlungsanlagen oder Produktionseinrichtungen mit wechselndem Produktspektrum vorkommt [44].

In speziellen Fällen kann es bei solch heterogenen Kontaminationen auch gelingen, die unterschiedlichen Kontaminationsmaxima durch geeignete Dekontaminationsmaßnahmen zu entfernen und es ergibt sich für die verbleibende Kontamination ein einheitlicher Nuklidvektor. Dies war z. B. bei der Anlage für Molybdänrückgewinnung (AMOR) im Verein für Kernverfahrenstechnik Rossendorf e. V. der Fall [39].

Flüchtige Radionuklide, wie z. B. H-3 stehen nicht immer in einem festen Verhältnis zu den restlichen Nukliden des Nuklidspektrums. Das kann durch verschiedene Ursachen bedingt sein:

- andere Quellen z. B. bei Neutronengeneratoren
- Eintrag über Gase oder Dämpfe
- leichtere Flüchtigkeit schon bei niedrigen Temperaturen.

In solchen Fällen ist die Festlegung des Nuklidvektors ohne die flüchtigen Radionuklide und eine separate Bestimmung und Bewertung der flüchtigen Radionuklide sinnvoll. Das spielt vor allem bei Anlagen eine Rolle, in denen die flüchtigen Radionuklide einen freigaberelevanten Anteil haben. Beispiele dafür sind H-3 in Schwerwasserreaktoren und Neutronengeneratoren [64].

Generell ist bei Nuklidvektoren das Bezugsdatum anzugeben, um jederzeit die Gültigkeit kontrollieren zu können und eine spätere Anpassung auf Grund des Abklings einzelner Radionuklide zu erleichtern. Hilfreich ist die Angabe von Gültigkeitszeiträumen oder eine Festlegung zu den Abständen in denen eine Aktualisierung zu erfolgen hat.

### **6.8.2 Berechnung abdeckender Nuklidvektoren**

Die abdeckenden Nuklidvektoren werden ermittelt, indem die ungünstigste Relation der Nuklide zueinander berechnet wird. Unter ungünstig ist dabei zu verstehen, dass einerseits entsprechend der Summenformel nach StrlSchV Anlage IV Ziffer 1 Buchstabe e das größtmögliche Verhältnis der spezifischen Aktivitäten zu den Freigabewerten der gewählten Freigabeoption (flächen- und massebezogen) erreicht wird und andererseits die Hochrechnungsfaktoren maximiert werden. Dadurch ist dieser abdeckende Nuklidvektor konservativer als jeder einzelne Nuklidvektor, der für abgegrenzte Bereiche oder Materialien innerhalb des Gültigkeitsbereiches des abdeckenden Nuklidvektors gebildet werden könnte. Durch abdeckende Nuklidvektoren wird also eine größere Konservativität erreicht, d. h. eine stärkere Überschätzung des Risikos.

Bei der Bildung abdeckender Nuklidvektoren werden zuerst aus allen Analyseergebnissen die höchsten Aktivitätsanteile der Nuklide ausgewählt, die keine Schlüsselnuklide sind. Der verbleibende Anteil wird den Schlüsselnukliden zugeordnet. Dadurch kommt es zur erheblichen Überschätzung der nicht messbaren Nuklide und zur Unterschätzung der Schlüsselnuklide. Auf diese Weise wird die radiologische Relevanz einzelner Nuklide, insbesondere der Alphastrahler, überbetont, da sie ja bereits bei der Festlegung der Freigabewerte berücksichtigt wurde [50].

Dieser Effekt lässt sich aber abmildern, indem bestimmte Nuklide mit gleichen oder sehr ähnlichen Freigabewerten in Gruppen zusammengefasst werden. Dafür bieten sich z. B. die Alphastrahler und das Nuklidpaar Fe-55/Ni-63 an. Anschließend werden die Aktivitätsanteile der zu den Gruppen gehörenden Nuklide in jeder Probe addiert und die maximalen Anteile der Gruppen gehen in den abdeckenden Nuklidvektor ein. Für jede dieser Gruppen wird das Nuklid mit dem niedrigsten Freigabewert bei der gewählten Freigabeoption als Referenznuclid festgelegt. Der Freigabewert des Referenznuclids wird dann bei der Berechnung gewichteter Nuklidvektoren berücksichtigt, die für die Anwendung des 10 %-Abschneidekriteriums benötigt werden. Abschließend ist durch den Vergleich des Nuklidvektors mit allen zugehörigen Proben zu überprüfen, ob der so gebildete Nuklidvektor tatsächlich abdeckend ist. Wenn dies nicht der Fall ist, muss der Nuklidvektor entsprechend angepasst werden, bis er diese Bedingung erfüllt.

Eine weitere Möglichkeit um zu realitätsnäheren abdeckenden Nuklidvektoren zu kommen besteht darin, Nuklidgruppen zu bilden, die jeweils einem Schlüsselnuklid zugeordnet werden. Dieses Vorgehen ist vor allem dann sinnvoll, wenn die Nuklide in einer Gruppe in relativ konstantem Verhältnis zueinander stehen, aber die Aktivitätsanteile der Schlüsselnuklide zueinander stärker schwanken. Die Zuordnung zu den Schlüsselnukliden sollte von der Bildung der Radionuklide und ihrem physikalisch-chemischen Verhalten her begründet sein. In jeder dieser Gruppen kann ein abdeckender Teilnuklidvektor nach der oben genannten Weise gebildet werden. Der Gesamtnuklidvektor wird dann aus dem Verhältnis der Schlüsselnuklide zueinander und den vom jeweiligen Schlüsselnuklid abhängigen Teilnuklidvektor gebildet. Die Anteile der Nuklide jeder Gruppe werden durch Multiplikation des Anteils des jeweiligen Schlüsselnuklids an der Summe der Schlüsselnuklide und dem Anteil des Nuklids im Teilnuklidvektor berechnet und dann normiert.

Ein Beispiel dafür ist das Vorgehen in der Wiederaufbereitungsanlage Karlsruhe [60]. In dieser Anlage wird mit drei Nuklidgruppen gearbeitet:

- Aktivierungsprodukte (Schlüsselnuklid Co-60)
- Spaltprodukte (Schlüsselnuklid Cs-137+)
- Transurane (Schlüsselnuklid Am-241).

Die Anwendung abdeckender Nuklidvektoren kann dann günstig sein, wenn es trotz der höheren Konservativität zu einem hohen Anteil freizugebender Materialien kommt. Dann werden ihre Vorteile wie der geringere Aufwand bei der Ermittlung und Handhabung nicht durch einen größeren Anteil nicht freigegebbarer Stoffe aufgehoben.

Abdeckende Nuklidvektoren sind im strengen Sinne nicht als repräsentativ anzusehen, da sie das betrachtete Merkmal (Verhältnis der Nuklide zueinander) der Grundgesamtheit nicht richtig wiedergeben. Sie führen durch ihre Konservativität aber bei ihrer Anwendung zu einer sicheren Unterschreitung der Freigabewerte, so dass sie für die Freigabe zielführend sind.

Um die Zahl der Nuklidvektoren für ein Objekt zu verringern, können abdeckende Nuklidvektoren auch für größere und in sich inhomogene Gruppen von Bereichen oder Materialien gebildet werden.

Zusammenfassend kann über abdeckende Nuklidvektoren festgestellt werden:

- Sie lassen sich leicht berechnen, da keine statistische Bearbeitung der Daten erforderlich ist.
- Die verwendeten Daten müssen keiner bestimmten statistischen Verteilung genügen.
- Die Einbeziehung der Messunsicherheiten ist nur schwer möglich.
- Es können auch Nuklidvektoren berechnet werden, die für größere Bereiche gelten.
- Sie sind meist deutlich konservativer als auf statistischer Grundlage berechnete Nuklidvektoren.
- Sie führen zu einer deutlichen Überschätzung der Aktivität des Materials, daher kann es leichter zu Überschreitungen der Freigabewerte führen. In der Aktivitätsbilanz kann es zu größeren „Scheinaktivitäten“ nicht gammaspektrometrisch bestimmbarer Nuklide, insbesondere von Alphastrahlern kommen.

### **6.8.3 Berechnung von Nuklidvektoren auf statistischer Grundlage**

Die Berechnung auf statistischer Grundlage ist zwar aufwendiger als die Bildung abdeckender Nuklidvektoren. Dieser Aufwand lässt sich aber mit Hilfe geeigneter Rechenprogramme beherrschen

Bei der Berechnung der Nuklidvektoren spielen statistische Aspekte in zwei Bereichen eine Rolle, zum einen bei der Berücksichtigung der Messunsicherheiten der Mess- und Analyseergebnisse und zum anderen bei der Variabilität der Proben die aus einem untersuchten Bereich stammen.

Für die bei der systemtechnischen Betrachtung gebildeten Bereiche werden einheitliche Nuklidvektoren erwartet, da sie ja unter diesem Gesichtspunkt abgegrenzt wurden. Es wird nun geprüft, ob diese Erwartung durch die Statistik der für die Bereiche ermittelten Nuklidvektoren bestätigt wird, d. h. ob eine Normal- oder Log-Normalverteilung vorliegt und die Proben eines Systems eine Grundgesamtheit bilden. Dazu können entsprechende statistische Kenngrößen, wie z. B. das arithmetische Mittel, die Standardabweichung, die Momentenkoeffizienten der Schiefe und Wölbung dienen [38]. Wie schon im Abschnitt 6.3.3 angegeben, sind statistische Tests erst bei mehr als 16 Proben je betrachtetes Objekt sinnvoll [30].

Wenn die Ergebnisse eines Bereiches zu inhomogen sind, ist zu prüfen, welche Maßnahmen zu treffen sind:

- Bestätigung der Plausibilität auf Grund von Systemzusammenhängen oder der Betriebshistorie
- Entnahme und Untersuchung weiterer Proben
- Untergliederung des Bereichs in Teilbereiche, die dann in sich homogen sind [30].

Andererseits soll auch geprüft werden, ob sich mehrere ursprünglich gebildete Bereiche auf Grund ähnlicher Nuklidvektoren zusammenfassen lassen.

Im Ergebnis dieser Auswertung ist zu prüfen, ob weitere Probenahmen erforderlich sind. Gründe dafür können sein:

- zu geringe Probenzahl in neu gebildeten Teilbereichen
- zu große Streuung der Nuklidvektoren in Bereichen, in denen sich keine Teilbereiche ausgliedern lassen
- Verifizierung von Ausreißern

Um die Bedeutung der Radionuklide hinsichtlich der Freigabe einschätzen zu können, ist es erforderlich gewichtete und normierte Nuklidvektoren zu berechnen.

Welchen Einfluss die Wichtung mit den Freigabewerten der einzelnen Freigabeoptionen hat wurde von Krins et al [37] an Hand von Modellnuklidvektoren anschaulich demonstriert.

Die Freigabe erfolgt häufig unter gleichzeitiger Beachtung von flächen- und massenspezifischen Freigabewerten. Daher ist es sinnvoll, auch bei der Bildung der Nuklidvektoren diese beiden Aspekte zu berücksichtigen, um einen Nuklidvektor zu erhalten, der sowohl flächen- wie massenspezifisch konservativ ist. Da sich die flächen- und massenspezifischen Freigabewerte der einzelnen Nuklide in den einzelnen Freigabeoptionen zum Teil deutlich unterscheiden, ist es erforderlich den Nuklidvektor schon im Hinblick auf die gewählte Freigabeoption zu ermitteln.

Solche Nuklidvektoren sind also dann auch nur für die zugrunde liegende Freigabeoption berechnet und sollen entsprechend gekennzeichnet sein.

Außerdem sollten die Hochrechnungsfaktoren nach DIN 25457 berücksichtigt und ihre Maximalwerte angestrebt werden, um einen entsprechend konservativen Nuklidvektor zu erhalten. Letzteres soll verhindern, dass beim Freigabeverfahren die nicht messbare Aktivität unterschätzt wird.

Um alle drei Ziele:

- Konservativität hinsichtlich der massenspezifischen Freigabewerte
- Konservativität hinsichtlich der flächenspezifischen Freigabewerte
- Konservativität hinsichtlich der Hochrechnungsfaktoren

gleichzeitig möglichst gut zu erreichen, ist ein Optimierungsverfahren hilfreich, das sich schrittweise dem gewünschten Ergebnis nähert. Dazu können entweder kommerzielle Rechenprogramme oder entsprechende Excel-Arbeitsblätter verwendet werden.

Für den Rückbau des Kernkraftwerkes Stade wird dieses Optimierungsverfahren zur Bildung von Nuklidvektoren angewandt [10, 50, 51, 52], das sich auch schon beim Rückbau des Kernkraftwerkes Würgassen bewährt hat. Für diese Berechnungen wird dabei das von Brenk Systemplanung entwickelte Programm ReFOM (Reststoff-Freigabe-Optimierungs-Modul) eingesetzt [31].

Zunächst werden die Nuklidvektoren für alle Proben berechnet. Diese werden wie oben beschrieben überprüft, ob sie zu einer Grundgesamtheit gehören. Bei positivem



Ergebnis dieser Prüfung werden für jedes gefundene Radionuklid für die betrachteten Proben eines Bereiches Mittelwert und Standardabweichung der Aktivitätsanteile gebildet.

Die Strahlenschutzkommission hat in ihrer Stellungnahme zum Rückbaukonzept des Kernkraftwerkes Stade das dort vorgeschlagene „ein-sigma-Konzept“ bei der Ermittlung der Nuklidvektoren für sachgerecht gehalten [10]. Wobei unter „sigma“ die empirische Standardabweichung bzw. die kombinierte Standardmessunsicherheit unter Berücksichtigung aller Unsicherheitskomponenten verstanden werden soll. Dabei liegen 68,3 % aller möglichen Werte in dem Bereich

$$(\bar{x} - \sigma) \leq x \leq (\bar{x} + \sigma)$$

$\bar{x}$  - Mittelwert

$\sigma$  - Standardabweichung

$x$  - Wert.

Damit ist für alle Nuklide das gleiche Niveau an Konservativität gegeben, die unterschiedliche radiologische Relevanz wird dann über die Freigabewerte bei der Normierung der Nuklidvektoren berücksichtigt.

Deshalb reicht es aus, den Anteil jedes Nuklids innerhalb einer Variationsbreite der Standardabweichung um den Mittelwert so zu variieren, bis folgende Teilziele erfüllt sind [38]:

- Maximierung der Summenformel gemäß Strahlenschutzverordnung hinsichtlich der spezifischen Aktivität (massebezogen, d. h. nach den Spalten 5, 6, 7, 9 oder 10a der Tabelle 1 in der Anlage III der StrlSchV je nach gewählter Freigabeoption)

$$\sum_i \frac{a_i}{R_i} = \text{Maximum}$$

$a_i$  - spezifische Aktivität des Nuklids  $i$

$R_i$  -relevanter massebezogener Freigabewert des Nuklids  $i$   
(nach StrlSchV Anl. III, Tab. 1, Spalte 5, 6, 7, 9 oder 10a)

- Maximierung der Anteile schwer messbarer Nuklide (d. h. der Alpha- und Betastrahler ohne gut messbare Gammalinien) am Nuklidvektor

$$\sum_i v_{\alpha+\beta,i} = \text{Maximum}$$

$v_{\alpha+\beta,i}$  - Anteil des alpha- und betastrahlenden Nuklids i  
(ohne gut messbare Gammalinien) am Nuklidvektor

- Maximierung der Summenformel gemäß Strahlenschutzverordnung hinsichtlich der flächenbezogenen Aktivität (d. h. nach den Spalten 4, 8 oder 10 der Tabelle 1 in der Anlage III der StrlSchV je nach gewählter Freigabeoption)

$$\sum_i \frac{a_i}{O_i} = \text{Maximum}$$

$a_i$  - spezifische Aktivität des Nuklids i  
 $O_i$  - relevanter flächenbezogener Freigabewert des Nuklids i  
(nach StrlSchV Anl. III, Tab. 1, Spalte 4, 8 oder 10)

Für diese Maximierung kann das Excel-Add-In SOLVER genutzt werden. Zielgrößen sind dabei die Ausschöpfung der Freigabewerte bzw. die Summe der Hochrechnungsfaktoren.

Diese drei Teilziele lassen sich nicht alle gleichzeitig bestmöglich erfüllen, da die Anforderungen zum Teil gegensätzlich sind, deshalb ist eine Optimierung erforderlich. Dabei wird versucht mit einem Nuklidvektor in der Summe der drei Teilziele einen hohen Anteil an den oben genannten Maxima zu erreichen. Als Zielwert der Optimierung dient also der Grad der Ausschöpfung der Summe der drei oben berechneten Einzelzielgrößen. Dadurch lässt sich auch der Grad der Konservativität insgesamt und für die einzelnen Teilziele angeben.

Wenn bei freizugebenden Materialien keine feste Oberfläche vorhanden ist, kann natürlich die flächenbezogene Betrachtung entfallen und die Optimierung bezieht sich dann nur auf die massenspezifische Betrachtung und die Hochrechnungsfaktoren.

In einem letzten Schritt kann das 10 %-Abschneidekriterium, wie im Abschnitt 6.8.1 beschrieben, auf den gewichteten und normierten Nuklidvektor angewendet werden. Es ist aber bei den optimierten Nuklidvektoren zu beachten, dass es für die flächen- und massenspezifische Betrachtung in gleicher Weise zutreffen muss. Das heißt nur die Nuklide dürfen unberücksichtigt bleiben, die sowohl bei der flächen- wie bei der massenspezifischen Summenformel zusammengerechnet nicht mehr als 10 % betragen.

Abschließend sollte die Plausibilität des gebildeten Nuklidvektors geprüft werden, das heißt, ob er aus den Kenntnissen über den bewerteten Bereich und seiner Betriebsgeschichte erklärbar ist.

Bei dem beschriebenen Vorgehen zur Ermittlung des Nuklidvektors können auch bestimmte Verhältnisse einzelner Nuklide zueinander festgeschrieben werden zum Beispiel auf Grund:

- physikalischer Gesetzmäßigkeiten (z. B. Mutter- und Tochternuklid)
- dem Ergebnis von Aktivierungs- und Abbrandrechnungen
- beobachteter Abhängigkeit in einer Anlage (z. B. Pu-241/Am-241).

Die Optimierung bewirkt, dass bei dem gebildeten Nuklidvektor nicht das Maximum an Konservativität für alle Teilziele erreicht werden kann. Der Grad der Konservativität ist aber bekannt. Wenn dieser für die Freigabe nicht als ausreichend angesehen wird, können Schwellwerte für die Freimessung festgelegt werden. Bei Überschreitung dieser Schwellwerte bei der Freimessung, ist dann die tatsächliche Nuklidzusammensetzung des Messgutes zu überprüfen. Dadurch kann auch bei radiologisch ungünstigen Bedingungen eine Überschreitung der Freigabewerte verhindert werden [57].

Bei aktivierten Materialien kann auch die Modellierung der Aktivierung für die Ermittlung der Nuklidvektoren sehr hilfreich sein. Die Ergebnisse der Modellierung können und sollen mit den Analysenergebnissen abgeglichen werden. Dieser Vergleich wurde z. B. beim TRIGA-Reaktor der Medizinischen Hochschule Hannover durchgeführt [41]. Mit Hilfe der Analysenergebnisse lässt sich das Modell auch justieren, d. h. es können Parameter des Modells so verändert werden, dass es zu einer größeren Übereinstimmung von modellierten und gemessenen Daten kommt. Durch die Kombination beider Verfahren können auch Fehler bei der Probenahme und Analytik besser erkannt werden, wie z. B. der Verlust flüchtiger Radionuklide.

Die Vor- und Nachteile der Ermittlung auf statistischer Grundlage sind:

- Durch die Nutzung der Mittelwerte und Streubereiche sind die Nuklidvektoren stärker an den wirklichen Aktivitätsanteilen orientiert.
- Später beobachtete höhere Nuklidanteile als im festgelegten Nuklidvektor sind auf Grund des statistischen Ansatzes leichter erklärbar.
- Der statistische Ansatz spiegelt die Realität der Aktivitätsverteilung besser wider.
- Große Streubereiche einzelner Radionuklide sind leichter festzustellen. Korrekturen sind durch höhere Probenzahlen oder durch Untergliederung in Teilbereiche möglich.
- Die quantitative Bewertung der Ergebnisse ist über den Grad der Optimierung hinsichtlich der Teilziele möglich.
- Die so ermittelten Nuklidvektoren führen zu einer Überschätzung der Aktivität des Materials, daher kann es leichter zu Überschreitungen der Freigabewerte führen. In der Aktivitätsbilanz kann es zu „Scheinaktivitäten“ nicht gammaspektrometrisch bestimmbarer Nuklide, insbesondere von Alphastrahlern kommen. Beide Effekte sind aber nicht so stark ausgeprägt wie bei abdeckenden Nuklidvektoren.

#### 6.8.4 Berechnung von Nuklidvektoren durch Mittelwertbildung

Nuklidvektoren können auch durch einfache Mittelung der Analysenergebnisse der Proben eines Bereiches gebildet werden. Hier empfiehlt es sich, wie schon bei der Berechnung von Nuklidvektoren auf statistischer Grundlage, bei ausreichender Probenzahl zu prüfen, ob die Ergebnisse in dem Bereich homogen sind, d. h. einer Normal- oder Log-Normalverteilung genügen. Wenn dies nicht der Fall sein sollte, können, wie bereits im vorigen Abschnitt aufgeführt, weitere Proben genommen oder der Bereich in kleinere in sich homogene Teilbereiche gegliedert werden. Auch die Zusammenfassung von Bereichen ist möglich, wenn sich herausstellt, dass die Ergebnisse in diesen dann homogen sind.

Die Berechnung von Nuklidvektoren durch Mittelung führt zwar zu repräsentativen aber nicht zu konservativen Nuklidvektoren. Das heißt selbst bei den Proben mit bekannter Nuklidzusammensetzung liegt ein Teil ungünstiger als der Nuklidvektor und könnte dadurch in Abhängigkeit von der Höhe der Gesamtaktivität trotz positiver Freigabeentscheidung zu einer nicht bemerkten Überschreitung der Freigabewerte führen.

Diese Variante der Berechnung der Nuklidvektoren gibt die mittlere Zusammensetzung der freizugebenden Materialien gut wieder, dadurch kommt es in Aktivitätsbilanzen zu keiner Überschätzung einzelner Radionuklide. Bei den anderen beiden Varianten der Berechnung von Nuklidvektoren, kommt es bei der Berechnung der Aktivitätsbilanzen je nach Konservativität des Nuklidvektors zu mehr oder weniger stark ausgeprägten „Scheinaktivitäten“, der nicht gammaspektrometrisch gemessenen sondern nur berechneten Radionuklide. „Scheinaktivität“ bedeutet dabei, dass die Aktivität nur durch die Überschätzung des Anteils schwer bestimmbarer Radionuklide berechnet wurde, aber im Material nicht vorhanden ist. Diese „Scheinaktivitäten“ können dann ein Problem darstellen, wenn die Gesamtaktivität einzelner Radionuklide (z. B. Alphastrahler) für eine beabsichtigte Art des Umgangs oder der Lagerung begrenzt ist.

Die Konservativität lässt sich aber auf verschiedenen Wegen herstellen. Zum Einen indem in Abhängigkeit von der gewählten Freigabeoption Korrekturfaktoren berechnet werden, welche die Schwankungsbreite relevanter Radionuklide berücksichtigen. Eine andere Möglichkeit besteht darin, dass die Freigabewerte der Schlüsselnuklide nur zu einem gewissen Anteil ausgeschöpft werden dürfen, der sich ebenfalls aus der Schwankungsbreite relevanter Radionuklide abschätzen lässt. Diese Korrekturen sind dann von der jeweiligen Freigabeoption abhängig, da die radiologische Relevanz einiger Nuklide stark von der Freigabeoption abhängig ist.

Aus diesem Grund ist die Anwendung des 10 %-Abschneidekriteriums bei der Berechnung des Nuklidvektors durch Mittelwertbildung erst dann möglich, wenn man sich für eine Freigabeoption entschieden hat. Der verkürzte Nuklidvektor ist auch hier nur für die zugrunde liegende Freigabeoption gültig.

Für die Berechnung von Nuklidvektoren durch Mittelwertbildung kann festgestellt werden:

- Sie lassen sich leicht berechnen.
- Die Mittelwerte spiegeln die mittlere Zusammensetzung des Materials gut wider.
- Die Einbeziehung der Messunsicherheiten ist nur schwer möglich.
- Es können auch Nuklidvektoren berechnet werden, die für größere Bereiche gelten.
- Die Nuklidvektoren sind hinsichtlich der Freigabe nicht konservativ. Die Konservativität muss zusätzlich durch Korrekturfaktoren oder eine Grenze der Ausschöpfung der Freigabewerte in Abhängigkeit von der Freigabeoption hergestellt werden.
- In der Aktivitätsbilanz werden keine „Scheinaktivitäten“ von nicht gamma-spektrometrisch bestimmbar Nukliden erzeugt.

## 6.9 Aktualisierung von Nuklidvektoren

Durch den Zerfall kürzerlebiger Radionuklide verändert sich der Nuklidvektor im Laufe der Zeit. Der Nuklidvektor soll daher, wenn erforderlich, regelmäßig an den Zerfall angepasst werden. Die Erfordernis und die Häufigkeit der Korrektur hängen von den Halbwertszeiten der Nuklide und ihrem Anteil am Nuklidvektor ab. Es ist dabei zu beachten, dass es zu keiner Unterschätzung des Aktivitätsinventars von freizugehenden Stoffen kommt. Häufig erfolgt in der bisherigen Praxis die Zerfallskorrektur alle 2 Jahre wenn ein hoher Anteil an Co-60 (Halbwertszeit 5,3 a) vorliegt. Für die eindeutige Identifikation des Nuklidvektors ist es notwendig das Bezugsdatum bzw. den Gültigkeitszeitraum anzugeben. Dann ist klar ersichtlich, ob er für die aktuelle Anwendung korrigiert werden muss.

Nach Dekontaminationsmaßnahmen, die auf Grund unterschiedlicher chemischer und physikalischer Eigenschaften der Radionuklide zu Veränderungen des Nuklidvektors führen können, ist es unbedingt erforderlich die Gültigkeit des vorher bestimmten Nuklidvektors zu überprüfen und diese gegebenenfalls anzupassen.

Die Nuklidvektoren sollen mit den bei der Freimessung anfallenden nuklidspezifischen Daten abgeglichen werden, um gegebenenfalls eine Anpassung oder Korrektur der Nuklidvektoren vornehmen zu können. Es sollte nach Möglichkeit vorab festgelegt werden, welche Abweichungen von den festgelegten Nuklidvektoren toleriert werden und wann eine Anpassung vorgenommen wird.

Es ist zu empfehlen, die Anpassung der Nuklidvektoren unter den gleichen Maßstäben vorzunehmen, wie die Erstellung. Bei abdeckenden Nuklidvektoren, muss also bei neuen Befunden geprüft werden, ob der Nuklidvektor auch für diese abdeckend ist. Wenn dies nicht der Fall ist, ist entweder der bisherige Nuklidvektor entsprechend zu korrigieren, ein neuer Nuklidvektor für das Material mit abweichenden Nuklidverhältnissen zu erstellen oder eine Einzelfallbewertung vorzunehmen.

Bei Nuklidvektoren, die auf statistischer Grundlage erstellt wurden, ist zu prüfen, ob die neuen Befunde im Streubereich der Ausgangsdaten des Nuklidvektors liegen, das

heißt, ob die neuen Daten der gleichen Verteilung (Art der Verteilung und Kennwerte) entsprechen. Wenn dies nicht der Fall ist, muss durch eine neue Berechnung des Nuklidvektors geprüft werden, ob sich der Nuklidvektor ändert und mit welcher Relevanz für die Freigabe. Erst dann kann entschieden werden, ob der Nuklidvektor aktualisiert werden muss. Dabei spielen folgende Fragestellungen eine Rolle:

- Welche Veränderungen des Nuklidvektors können bei dem von der SSK akzeptierten Vertrauensniveau von 95 % toleriert werden?
- Ist der bisherige Nuklidvektor konservativer als der neu berechnete?
- Bis zu welchem Grad werden die Freigabewerte bei dem in Frage stehenden Nuklidvektor ausgeschöpft?

Es wird bei dieser Betrachtung klar, dass eine pauschale Regelung den Nuklidvektor zu korrigieren wenn sich der gewichtete und normierte Anteil eines Nuklids um den Faktor 2 ändert, nicht sinnvoll ist. Sie kann sowohl eine Über-, wie eine Unterschätzung der Veränderung sein, je nach Anteil des Nuklids und der Ausschöpfung der Freigabewerte.

Die Aktualisierung des Nuklidvektors sollte generell am unverkürzten Nuklidvektor, das heißt ohne vorherige Anwendung des 10 %-Abschneidekriteriums, vorgenommen werden, da die Ergebnisse auch zu einer Veränderung der Anteile im Bereich des 10 %-Abschneidekriteriums führen können. Nach der Aktualisierung kann dann das 10 %-Abschneidekriterium wieder angewandt werden.

Die aktualisierten Nuklidvektoren sollen entsprechend gekennzeichnet werden. Es ist dafür Sorge zu tragen, dass nach einer Änderung nur noch mit den aktualisierten Nuklidvektoren gearbeitet wird. Ein Verzeichnis der Nuklidvektoren mit den Revisionsständen, den Bezugsdaten und Gültigkeitszeiträumen kann dabei hilfreich sein.

## **7 Zusammenstellung der Empfehlungen**

### **7.1 Allgemeines**

In den vorherigen Kapiteln wurden aus der bisherigen Praxis und systematischen Überlegungen die Vorgehensweise zur Ermittlung repräsentativer Nuklidvektoren und Anforderungen an die einzelnen Arbeitsschritte abgeleitet, begründet und erläutert. In diesem Kapitel sollen die wesentlichen Empfehlungen noch einmal zusammenfassend dargestellt werden.

Die Repräsentativität eines Nuklidvektors lässt sich nicht an Merkmalen desselben festmachen, sondern sie muss durch die Richtigkeit und Reproduzierbarkeit des Verfahrens zu seiner Ermittlung gesichert werden. Daraus ist abzuleiten, dass ein repräsentativer Nuklidvektor nur durch ein systematisches, schrittweises und reproduzierbares Verfahren zu ermitteln ist.

Dieses Verfahren sollte im Wesentlichen nach folgender Schrittfolge ablaufen:

1. Historische Erkundung und Abgrenzung von Bereichen
2. Auswahl der zu untersuchenden Nuklide
3. Erstellung eines Probenahmemessprogramms
4. Durchführung erkundender Messungen vor Ort
5. Probenahme
6. Probenvorbereitung
7. Analytik
8. Berechnung der Nuklidvektoren
9. Aktualisierung der Nuklidvektoren

Die konkrete Gestaltung des Untersuchungsprogramms ist aber stark von der Zielstellung und der radiologischen Situation der Anlage abhängig. Deshalb ist bei der Erstellung der Probenahmestrategie die Kompetenz des Bearbeiters der entscheidende Faktor für die Richtigkeit. Ähnliches gilt bei der Durchführung der Probenahme für den Probenehmer. Die Kompetenz des Bearbeiters lässt sich nicht durch Normen und Regelungen ersetzen. Diese können und sollen aber als Hilfsmittel durch den Bearbeiter genutzt werden. In diesem Sinne verstehen sich auch die hier erstellten Empfehlungen. Sie sollen keine Reglementierung sein, sondern

- Möglichkeiten zur Auswahl zeigen
- als Merkpostenliste dienen
- Hinweise in besonderen Fällen geben
- Begründungspflichten reduzieren
- Fehler vermeiden helfen.

Die Erarbeitung der Probenahmestrategie erfordert spezifisches Vorgehen in Abhängigkeit von der Zielstellung, für die die Nuklidvektoren ermittelt werden, der Rückbaustrategie, dem geplanten zeitlichen Ablauf und den Gegebenheiten des Objekts. Bei den Gegebenheiten des Objekts stehen im Vordergrund:

- Anlagentyp,
- Materialarten,
- Masse,
- Art der Aktivitätsentstehung (Aktivierung, Kontamination durch bestimmungsmäßigen Betrieb, Kontamination durch Störfälle),
- Aktivitätsniveau,
- Homogenität,
- Grad der Vorkenntnisse.

Auf jeden Fall ist zu Beginn der Planung zu überprüfen, ob die Arbeit mit Nuklidvektoren für die Freigabe sinnvoll ist. Sie ist vor allem dann fraglich, wenn es sich um relativ kleine freizugebende Massen handelt oder um hinsichtlich der Nuklidzusammensetzung extrem inhomogene Materialien. In letzterem Fall ist es auch möglich zu untersuchen, ob die schwer bestimmbaren Alpha- und Betastrahler, eventuell gruppenweise, in relativ fester Korrelation zu bestimmten Gammastrahlern stehen.

## **7.2 Historische Erkundung und Abgrenzung von Bereichen**

Ausgangspunkt der Planung muss die historische Erkundung, das heißt die Erfassung der vorhandenen Kenntnisse zur Anlage sein. Wichtig ist dabei vor allem die Erfassung der aktivierten Bereiche und der Ausbreitungswege für Radionuklide aus dem Aufbau der Anlage und der Betriebshistorie. Dabei sind sowohl der bestimmungsgemäße Betriebsablauf als auch Einzelereignisse wie z. B. Störfälle und der Ein- und Ausbau von Komponenten zu berücksichtigen.

Im nächsten Schritt sollen Bereiche voneinander abgegrenzt werden, für die ein homogener Nuklidvektor zu erwarten ist. Die Grenzziehung zwischen den Bereichen soll zunächst auf Grund physikalischer, verfahrenstechnischer, chemischer und werkstoffkundlicher Kriterien im Rahmen einer systemtechnischen Bewertung erfolgen.

Dabei ist hinsichtlich des Umfangs und der Detailliertheit der Gliederung der Anlage, das Verhältnis von Aufwand und Nutzen zu beachten. Ein schrittweises Vorgehen mit zunehmendem Detaillierungsgrad der Untersuchungen kann hilfreich sein.

Bei der Abgrenzung der Bereiche sollen auch die Erfahrungen und Daten genutzt werden, die beim Betrieb der Anlage gewonnen und dokumentiert wurden. Es ist empfehlenswert auch auf das nicht in Aufzeichnungen festgehaltene Insiderwissen der jetzigen und ehemaligen Beschäftigten zurückzugreifen, zum Beispiel in Form von Befragungen.

Am Ende dieses Schrittes sollten für die einzelnen abgegrenzten Bereiche Kontaminationshypothesen aufgestellt werden. Diese können Aussagen über die Ausbreitungswege und die zu erwartende Nuklidzusammensetzung enthalten.

## **7.3 Erstellung eines Probenahmemessprogramms**

Im Probenahmemessprogramm sind alle geplanten Maßnahmen zur Messung vor Ort, zur Probenahme und Analytik festzulegen. Dabei sind gegebenenfalls Varianten vorzusehen, je nachdem wie die Ergebnisse des vorangegangenen Schritts ausfallen.

Der erste Schritt dabei ist die Ermittlung der relevanten Radionuklide für die vorher abgegrenzten Bereiche, diese können unter anderem aus den technischen Daten der Anlage, den Ergebnissen der Emissionsüberwachung und der Betriebsgeschichte abgeleitet werden. Ergänzend zu diesen Nukliden sind vor allem bei Baumaterialien und Boden auch die natürlichen Radionuklide zu berücksichtigen.

Erkundende Messungen vor Ort sind vor allem dann einzuplanen, wenn die räumliche Aktivitätsverteilung auf Grund der historischen Erkundung nicht ausreichend geklärt werden konnte. Sie können aber auch zur Verifizierung der bisherigen Erkenntnisse und Auswahl geeigneter Probenahmeorte dienen.

Für die Probenahme ist ein Probenahmeplan zu erstellen, der in klarer und eindeutiger Form alle erforderlichen Angaben zu den Probenahmeorten, den Probenarten und den Probenahmeverfahren enthält.



Die Bestimmung der Radionuklide kann an verschiedenartigen Proben erfolgen, dabei sollen vorrangig Materialproben berücksichtigt werden. Bei der Festlegung des Probenahmeverfahrens ist auch die mögliche Eindringtiefe der Radionuklide in das Material zu berücksichtigen und gegebenenfalls eine tiefengestaffelte Probenahme vorzusehen.

Proben von abgelagerten Stoffen, wie Sedimenten und Stäuben, sind meist nicht repräsentativ für den Einzugsbereich dieser Ablagerungen, sie liefern aber Anhaltspunkte für die im Einzugsbereich dieser Materialien vorhandenen Radionuklide.

Wischproben sind nur eingeschränkt verwendbar, da nur die abnehmbare Aktivität berücksichtigt wird, die sich hinsichtlich der Nuklidzusammensetzung von der festhaftenden Aktivität unterscheiden kann.

Bei der Festlegung der Probenahmemodalitäten und des Analysenkonzeptes ist das Labor einzubeziehen, das die Untersuchung der Proben durchführen soll. Dabei sind insbesondere die zu bestimmenden Parameter, die anzuwendenden Entnahmeverfahren, die Mengen, die Beschaffenheit, die Konservierung, die Verpackung, die Kennzeichnung der Proben abzusprechen.

Dabei unterscheidet sich das Herangehen bei den Szenarien Aktivierung, gleichmäßige und ungleichmäßige Kontamination.

Im Fall der **Aktivierung** können zur Ermittlung der Nuklidvektoren neben der direkten Bestimmung auch Modellrechnungen verwendet werden, die aus den physikalischen und chemischen Grunddaten die Nuklide und die Aktivitätsverhältnisse berechnen. Dabei soll schrittweise eine Anpassung des Modells an die gemessenen spezifischen Aktivitäten erreicht werden. Für diese Aufgabenstellung reichen wenige Proben für jedes Material und Objekt aus.

Für den Fall der **gleichmäßigen Kontamination** wird in erster Näherung davon ausgegangen, dass es sich um einen einheitlichen Nuklidvektor in jedem der vorher abgegrenzten Bereiche handelt.

In Analogie zu Orientierungswerten bei der konventionellen Analytik werden 6 Proben je Bereich als günstig angesehen. Mit zunehmender Probenzahl steigt selbstverständlich die Zuverlässigkeit der Abschätzung. Statistische Tests sind erst bei mehr als 16 Proben je betrachtetes Objekt sinnvoll, so dass Probenzahlen von 16 bis 20 für die festgelegten Bereiche bei Abwägung von Aufwand und statistischer Sicherheit optimal erscheinen. Bei der Festlegung der Probenzahl ist aber auch zu bedenken, dass eine spätere Probenahme bei Zweifeln an der Repräsentativität von Nuklidvektoren möglicherweise durch zu geringe Aktivität erschwert wird.

Es gibt aber auch Situationen, in denen vor allem auf Grund der Materialzusammensetzung und der radiologischen Situation eine deutlich geringere Probenzahl denkbar ist. Das betrifft z. B.:

- homogenes Material mit homogener Kontamination,
- aktiviertes homogenes Material,
- geringe Materialmenge,

- wenige zugängliche Probenahmestellen,
- ausreichende Vorbefunde.

Es ist generell sinnvoll, zunächst eine größere Anzahl potentieller Probenahmeorte zu definieren und daraus in einem zweiten Schritt eine Auswahl zu treffen. So hat man später die Möglichkeit auf alternative Probenahmeorte zurückzugreifen, falls die Probenahme an einem vorgesehenen Ort nicht möglich ist oder zusätzliche Probenahmen erforderlich sind.

Bei der Auswahl der Probenahmeorte können folgende Kriterien mit herangezogen werden:

- Materialströme,
- Abwasserwege,
- Abluftwege,
- Kontamination durch:
  - Betriebsmedien
  - Abwasser
  - Abluft
  - Umgang mit offenen radioaktiven Stoffen,
- Entstehungsorte der Radionuklide und deren Ausbreitung im bestimmungsgemäßen Betrieb,
- Entstehungsorte der Radionuklide und deren Ausbreitung im nicht bestimmungsgemäßen Betrieb,
- Betriebsgeschichte,
- Akkumulation von radioaktiven Stoffen durch:
  - Materialeigenschaften
  - Oberflächenformen
  - Oberflächenfehler (z. B. Risse, Löcher)
  - Phasenübergänge
  - chemische Prozesse,
- Zugänglichkeit für die Probenahme.

Proben sind vorzugsweise an Orten zu entnehmen, die eine erhöhte Aktivität erwarten lassen, um auch die Bestimmung von Nukliden mit niedriger spezifischer Aktivität zu ermöglichen. Für den Fall zu geringer Aktivität der für die Freigabe vorgesehenen Materialien, kann auch auf stärker kontaminierte Komponenten, die als radioaktiver Abfall einzustufen sind, zurückgegriffen werden, wenn davon auszugehen ist, dass diese die gleiche Nuklidzusammensetzung aufweisen.

Für den Fall der **ungleichmäßigen Kontamination** ist die Ausgangssituation insofern komplizierter, dass nicht von einer Homogenität des Nuklidvektors in einem bestimmten Bereich ausgegangen werden kann. Es ist also mit mehreren Nuklidvektoren zu rechnen, deren räumliche Verteilung innerhalb des Bereiches unbekannt ist.

Hier bietet es sich an, erkundende Messungen vor Ort mit anschließender Probenahme durchzuführen. Mit Hilfe dieser Messungen soll die räumliche Verteilung der Aktivität ermittelt und die Probenahmestellen festgelegt werden. Als Messverfahren eignen

sich vor allem Oberflächenkontaminationsmessungen und die In-situ-Gammaspektrometrie.

Das Vorgehen zur Festlegung der Probenzahl und der Probenahmestellen ist dann Analog zum Szenarium „gleichmäßige Kontamination“.

Bei der Probenahme ist sicherzustellen, dass die Probenmenge für die durchzuführenden Analysen ausreichend ist und sie das beprobte Material in seiner Variabilität wiedergibt.

Die Dokumentation der Probenahme soll eine eindeutige Zuordnung der Untersuchungsergebnisse zu den Materialien und den Probenahmeorten ermöglichen. Dabei sind die Darstellung in Lageplänen und die fotografische Dokumentation der Probenahme hilfreich. Die Dokumentation ist so durchzuführen, dass der Ablauf und die Umstände der Messungen vor Ort, der Probenahmen, der Probenvorbereitung im Labor, der Analytik, der Interpretation der Ergebnisse, der Einbeziehung anderer Daten und Informationen, der Überlegungen und Entscheidungen und der Berechnung der Nuklidvektoren nachvollziehbar ist. Die Dokumentation sollte möglichst standardisiert erfolgen, damit alle Merkmale auch von unterschiedlichen Bearbeitern in gleicher Weise beschrieben werden. Entsprechende Formulare können gleichzeitig den Mitarbeitern als Merkliste dienen.

Der Zeitpunkt der Probenahme ist so zu wählen, dass eine hinreichend hohe Aktivität der Einzelnuklide vorhanden ist, um eine ausreichend genaue Messung zu erlauben. Es ist daher günstig, die Probenahme und Analytik bereits vor einer Zeit des sicheren Einschlusses durchzuführen.

Dekontaminationsvorgänge können zu Veränderungen des Nuklidvektors führen, daher sind Bestimmungen des Nuklidvektors vor und nach der Dekontamination sinnvoll.

Um so an sonst unzugängliche Stellen zu gelangen, kann es erforderlich sein auch rückbaubegleitend Probenahmen durchzuführen.

#### **7.4 Durchführung von erkundenden Messungen vor Ort und Probenahme**

Die erkundenden Messungen vor Ort und die Probenahmen sind nach dem vorher ausgearbeiteten Messprogramm durchzuführen. Abweichungen davon sollen nur in begründeten Fällen in Absprache mit dem Verantwortlichen für die Nuklidvektorermittlung vorgenommen werden. Diese Abweichungen sind zu dokumentieren.

Zur Erleichterung der Festlegung der Probenahmestellen sollten die Ergebnisse der Messungen vor Ort günstigerweise grafisch z. B. in Plänen und Karten dargestellt werden.

Wenn mit Hilfe der In-situ-Gammaspektrometrie Aussagen über die Variabilität des Nuklidvektors im Raum gewonnen wurden, sind die Probenahmestellen so festzulegen, dass alle ermittelten Nuklidvektoren der Gammastrahler mit einer ausreichend großen Zahl von Proben belegt werden.

Die Bedeutung der Probenahme für die Qualität des Gesamtprozesses und damit für die Repräsentativität der Nuklidvektoren kann nicht genug betont werden. Fehler, die hier gemacht werden, lassen sich durch keine noch so präzise Analytik und mathematisch-statistisch begründete Datenauswertung wieder korrigieren.

Die Probenahme ist von zuverlässigem, ausreichend qualifiziertem und für die Probenahme besonders geschultem Personal durchzuführen. Die Probenehmer müssen über praktische Erfahrungen verfügen und mit der Problemstellung vertraut sein. Es ist günstig, wenn die Probenehmer auch Ortskenntnis und Erfahrungen aus dem Betrieb der Anlage mitbringen.

Hilfreich ist es, wenn zumindest betriebsintern standardisierte Arbeitsverfahren erstellt werden, die eine fehlerfreie und reproduzierbare Probenahme gewährleisten.

Die Proben sind soweit erforderlich zu konservieren, z. B. durch Ansäuern und Zugabe inaktiver Träger bei Flüssigkeiten, um Veränderungen der relevanten Parameter in der Probe auszuschließen. Das Probenmaterial ist so zu verpacken, dass keine Verluste an Material oder gar an einzelnen Bestandteilen z. B. flüchtigen Komponenten auftreten und auch keine Beeinflussung der Proben durch das Behältermaterial stattfindet wie z. B. Adsorption von Radionukliden an der Behälteroberfläche. Wichtig ist auch die eindeutige, verwechslungsfreie und dauerhafte Kennzeichnung der Proben.

## **7.5 Probenvorbereitung und Analytik**

Bei der Probenvorbereitung ist darauf zu achten, dass der Nuklidvektor nicht verändert wird z. B. durch den Verlust flüchtiger Radionuklide oder durch Querkontamination von Proben. Bei der Separierung verschiedener Anteile einer Probe z. B. Flüssigkeit und Sediment oder Beton und Bewehrungsstahl ist sicherzustellen, dass die Zusammenhänge zwischen analysierter Probe und entnommener Probe eindeutig hergestellt werden können.

Feststoffe müssen, gegebenenfalls nach einer Trocknung, homogenisiert und geteilt werden. Die Probe wird dabei schrittweise zerkleinert, mechanisch homogenisiert und verjüngt. Je gröber das Material ist, umso größer ist auch die Teilprobe, die als repräsentativ angesehen werden kann.

Es empfiehlt sich, die Reihenfolge der bearbeiteten Proben so zu wählen, dass mit der Probe mit der niedrigsten spezifischen Aktivität begonnen wird und dann die Proben mit zunehmender spezifischer Aktivität zu bearbeiten, um eine Verschleppung von Aktivität zu vermeiden. Auf die Sauberkeit des Arbeitsplatzes und die Reinigung der Geräte und Hilfsmittel zwischen den einzelnen Proben zur Vermeidung von Querkontaminationen sei ausdrücklich hingewiesen.

Bei den Arbeitsschritten ist darauf zu achten, dass es zu keiner unzulässigen Erwärmung der Probe kommt, die zum Verlust interessierender Radionuklide führen könnte. Wenn in einer Probe Radionuklide bestimmt werden sollen, die an Gase gebunden sind z. B. H-3 soll die Struktur der Probe möglichst ungestört bleiben. Dazu kann die Probe z. B. durch wenig beanspruchende Verfahren geteilt werden, wie durch Zerschneiden.

Oberflächenschichten von Objekten lassen sich häufig im Labor besser, kontrollierter und reproduzierbarer für die anschließende Untersuchung abtragen als vor Ort.

Der Erfolg des Abtrags lässt sich quantitativ bestimmen, in dem die Probe vor und nach dem Abtrag hinsichtlich ihrer Aktivität gemessen wird. Dazu eignen sich besonders die Oberflächenkontaminationsmessung und die Gammaskopimetrie. Dabei ist aber eine eventuelle Aktivität des Grundmaterials zu beachten.

Es ist sinnvoll, alle Proben zunächst mit der weniger aufwändigen Gammaskopimetrie zu untersuchen, um dann auf Grund der Ergebnisse gezielt Proben für die aufwändigere Bestimmung von Alpha- und Betastrahlern auszuwählen. So können belastbare Daten bei vertretbarem Aufwand erhalten werden. Wie hoch der Anteil der radiochemisch analysierten Proben sein soll, hängt im Wesentlichen von der Variabilität der Nuklidvektoren, insbesondere der Korrelation zwischen den radiochemisch bestimmbar Radionukliden und den leichter zu bestimmenden Gammastrahlern ab. Häufig werden ca. 10 % der Proben auch radiochemisch analysiert.

Es ist auch zu prüfen, ob die Verhältnisse der nur radiochemisch bestimmbar Nuklide zu gammastrahlenden Schlüsselnukliden auch über Bereichsgrenzen und für mehrere Materialien Gültigkeit haben. Wenn dies der Fall ist, lässt sich die Zahl der radiochemischen Analysen verringern.

Die summarische Bestimmung von Alpha- und Betastrahlern (Gesamtalpha und Gesamtbeta) mittels Low-level-Alpha-Beta-Countern ist nur wenig aussagekräftig, da deren Ergebnisse methodisch bedingt sehr große Unsicherheiten aufweisen.

Die weitreichende Bedeutung der Nuklidvektoren im Freigabeprozess und der beträchtliche Aufwand bei der Planung und Durchführung einer ordnungsgemäßen Probenahme rechtfertigt auch einen entsprechenden Aufwand bei der Analytik zur Ermittlung belastbarer Werte für die spezifische Aktivität, d. h. bei der Erreichung ausreichend niedriger Nachweisgrenzen und geringer Messunsicherheiten.

Die erforderlichen Nachweisgrenzen der Analysenverfahren sollten in Abhängigkeit von der spezifischen Gesamtaktivität in der jeweiligen Probe festgelegt werden. Sie sind dann so niedrig anzusetzen, dass die Anteile der relevanten Radionuklide in Summe das 10 %-Abschneidekriterium nach Strahlenschutzverordnung Anlage IV unterschreiten. Dazu sind die Nuklidanteile mit den jeweiligen Freigabewerten zu wichten.

Bei der analytischen Bestimmung der spezifischen Aktivitäten sind immer die zugehörigen Gesamtstandardmessunsicherheiten zu ermitteln. Dabei handelt es sich um die kombinierten Standardmessunsicherheiten, die alle relevanten Unsicherheitskomponenten berücksichtigen. Die alleinige Berücksichtigung der zählstatistischen Messunsicherheit ist nicht ausreichend. Dazu sind die einschlägigen Vorschriften und Anleitungen zu berücksichtigen.

Die Durchführung der Analysen in einem für Radionuklidbestimmungen akkreditierten Labor bietet den Vorteil, dass dort die durchgängige Qualitätssicherung und die Bestimmung der Gesamtmessunsicherheiten auf Grund der Akkreditierung etabliert sind.

Bei aktivierten Materialien ist es für Modellrechnungen der Aktivierung erforderlich, die Elementzusammensetzung des Materials zu ermitteln. Dazu können, soweit vorhanden, Zertifikate der eingesetzten Materialien herangezogen werden. Meist ist es aber erforderlich, zumindest ergänzend eigene Analysen durchzuführen, um die Übereinstimmung der Materialien mit den Zertifikaten zu überprüfen und um fehlende Angaben zu relevanten Elementen zu ergänzen.

## **7.6 Berechnung und Aktualisierung der Nuklidvektoren**

### **7.6.1 Allgemeines**

Zur Berechnung der Nuklidvektoren werden die verfügbaren Informationen zur Nuklidzusammensetzung der zu bewertenden Materialien herangezogen und vor ihrer Nutzung validiert.

Aus den geprüften Daten können dann die Nuklidvektoren berechnet werden. Dafür wird die Summe der spezifischen Aktivitäten aller Nuklide einer Probe gebildet und dann der Anteil der einzelnen Nuklide daran ermittelt.

Bei analytisch schlecht bestimmbar Radionukliden bzw. unsicheren Ergebnissen können auch berechnete Nuklidanteile verwendet werden, insbesondere wenn diese konservativer sind.

Radionuklide unter der Nachweisgrenze brauchen bei der Berechnung der Nuklidvektoren nicht berücksichtigt werden, wenn die Nachweisgrenzen entsprechend den oben genannten Vorgaben niedrig genug sind, d. h. wenn das Radionuklid sicher das 10 %-Abschneidekriterium nach Anlage IV der Strahlenschutzverordnung unterschreitet. Für eine konservativere Betrachtung können die Nachweisgrenzen wie Messwerte bei der Berechnung der Nuklidvektoren einbezogen werden. Das sollte aber auf die Radionuklide beschränkt bleiben, die bei der Konzeption für die Ermittlung von Nuklidvektoren als relevant für einen Bereich und ein Material angesehen wurden.

Das in Teil A Ziffer 1. e) der Anlage IV der Strahlenschutzverordnung genannte 10 %-Abschneidekriterium kann zu einer Vereinfachung der Nuklidvektoren genutzt werden. Das 10 %-Abschneidekriterium darf aber im Sinne der Anlage IV der Strahlenschutzverordnung nicht auf die einfachen Nuklidvektoren, sondern nur auf die gewichteten und normierten Nuklidvektoren angewandt werden. Der neue Nuklidvektor nach Anwendung des 10 %-Abschneidekriteriums wird auch als „verkürzter“ oder „reduzierter“ Nuklidvektor bezeichnet.

Wenn die Freigabe sowohl nach flächen- wie nach massenspezifischen Freigabewerten erfolgen soll, ist zu beachten, dass nur die Nuklide unberücksichtigt bleiben dürfen, die sowohl bei der flächen- wie bei der massenspezifischen Summenformel zusammengerechnet nicht mehr als 10 % betragen.

Flüchtige Radionuklide, wie z. B. H-3 stehen nicht immer in einem festen Verhältnis zu den restlichen Nukliden des Nuklidspektrums. In solchen Fällen ist die Festlegung des Nuklidvektors ohne die flüchtigen Radionuklide und eine separate Bestimmung und Bewertung der flüchtigen Radionuklide sinnvoll.

Nuklidvektoren sind nur für die zugrunde liegende Freigabeoption berechnet und sollen entsprechend gekennzeichnet sein. Ebenso ist bei Nuklidvektoren das Bezugsdatum anzugeben, um jederzeit die Gültigkeit kontrollieren zu können und eine spätere Anpassung auf Grund des Abklingens einzelner Radionuklide zu erleichtern.

Es gibt drei mögliche Herangehensweisen zur Berechnung von Nuklidvektoren zum Zweck der Freigabe:

- die Berechnung eines abdeckenden Nuklidvektors (konservativ aber nicht repräsentativ),
- die Berechnung des Nuklidvektors auf statistischer Grundlage (konservativ und repräsentativ),
- die Berechnung durch Mittelwertbildung (repräsentativ aber nicht konservativ).

### **7.6.2 Berechnung abdeckender Nuklidvektoren**

Abdeckende Nuklidvektoren sind im strengen Sinne nicht als repräsentativ anzusehen, da sie das betrachtete Merkmal (Verhältnis der Nuklide zueinander) der Grundgesamtheit nicht richtig wiedergeben. Sie führen durch ihre Konservativität aber bei ihrer Anwendung zu einer sicheren Unterschreitung der Freigabewerte, so dass sie für die Freigabe zielführend sind.

Die abdeckenden Nuklidvektoren werden ermittelt, indem die ungünstigste Relation der Nuklide zueinander berechnet wird. Unter ungünstig ist dabei zu verstehen, dass einerseits entsprechend der Summenformel nach StrlSchV Anlage IV Ziffer 1 Buchstabe e das größtmögliche Verhältnis der spezifischen Aktivitäten zu den Freigabewerten der gewählten Freigabeoption (flächen- und massebezogen) erreicht wird und andererseits die Hochrechnungsfaktoren maximiert werden. Dadurch ist dieser abdeckende Nuklidvektor konservativer als jeder einzelne Nuklidvektor, der für abgegrenzte Bereiche oder Materialien innerhalb des Gültigkeitsbereiches des abdeckenden Nuklidvektors gebildet werden könnte. Durch abdeckende Nuklidvektoren wird also eine größere Konservativität erreicht, d. h. eine stärkere Überschätzung des Risikos.

Bei der Bildung abdeckender Nuklidvektoren werden zuerst aus allen Analyseergebnissen die höchsten Aktivitätsanteile der Nuklide ausgewählt, die keine Schlüsselnuklide sind. Der verbleibende Anteil wird den Schlüsselnukliden zugeordnet.

Die Überschätzung der radiologischen Relevanz der schlecht messbaren Nuklide lässt sich aber abmildern, indem Nuklide mit gleichen oder sehr ähnlichen Freigabewerten in Gruppen zusammengefasst werden. Dafür bieten sich z. B. die Alphastrahler und das Nuklidpaar Fe-55/Ni-63 an. Anschließend werden die Aktivitätsanteile der zu den Gruppen gehörenden Nuklide in jeder Probe addiert und die maximalen Anteile der Gruppen gehen in den abdeckenden Nuklidvektor ein.

Eine weitere Möglichkeit um zu realitätsnäheren abdeckenden Nuklidvektoren zu kommen besteht darin, Nuklidgruppen zu bilden, die jeweils einem Schlüsselnuklid zugeordnet werden. Dieses Vorgehen ist vor allem dann sinnvoll, wenn die Nuklide in einer Gruppe in relativ konstantem Verhältnis zueinander stehen, aber die Aktivitäts-

anteile der Schlüsselnuclide zueinander stärker schwanken. Die Zuordnung zu den Schlüsselnucliden sollte von der Bildung der Radionuclide und ihrem physikalisch-chemischen Verhalten her begründet sein. In jeder dieser Gruppen kann ein abdeckender Teilnuclidvektor nach der oben genannten Weise gebildet werden. Der Gesamtnuclidvektor wird dann aus dem Verhältnis der Schlüsselnuclide zueinander und den vom jeweiligen Schlüsselnuclid abhängigen Teilnuclidvektor gebildet. Die Anteile der Nuclide jeder Gruppe werden durch Multiplikation des Anteils des jeweiligen Schlüsselnuclids an der Summe der Schlüsselnuclide und dem Anteil des Nuclids im Teilnuclidvektor berechnet und dann normiert. Ein Beispiel dafür sind die drei Nuclidgruppen Aktivierungsprodukte (Schlüsselnuclid Co-60), Spaltprodukte (Schlüsselnuclid Cs-137+) und Transurane (Schlüsselnuclid Am-241).

### 7.6.3 Berechnung von Nuclidvektoren auf statistischer Grundlage

Die Berechnung von Nuclidvektoren auf statistischer Grundlage ist zwar aufwändiger als die Bildung abdeckender Nuclidvektoren, dieser Aufwand lässt sich aber mit Hilfe geeigneter Rechenprogramme beherrschen.

Bei der Berechnung der Nuclidvektoren spielen statistische Aspekte in zwei Bereichen eine Rolle, zum einen bei der Berücksichtigung der Messunsicherheiten der Mess- und Analyseergebnisse und zum anderen bei der Variabilität der Proben, die aus einem untersuchten Bereich stammen.

Repräsentativität kann mit vernünftigem und dem Zweck angemessenem Aufwand nicht absolut, sondern nur zu einem festzulegenden Konfidenzniveau erreicht werden. Das für statistische Betrachtungen zugrunde zu legende Vertrauensniveau soll nach Stellungnahme der Strahlenschutzkommission und nach den einschlägigen Normen 95 % sein.

Um die drei Ziele:

- Konservativität hinsichtlich der massenspezifischen Freigabewerte
- Konservativität hinsichtlich der flächenspezifischen Freigabewerte
- Konservativität hinsichtlich der Hochrechnungsfaktoren

gleichzeitig möglichst gut zu erreichen, ist ein Optimierungsverfahren hilfreich, das sich schrittweise dem gewünschten Ergebnis nähert. Dazu können entweder kommerzielle Rechenprogramme oder entsprechende Excel-Arbeitsblätter verwendet werden.

Zunächst werden die Nuclidvektoren für alle Proben berechnet. Diese werden überprüft, ob sie zu einer Grundgesamtheit gehören. Bei positivem Ergebnis dieser Prüfung werden für jedes gefundene Radionuclid für die betrachteten Proben eines Bereiches Mittelwert und Standardabweichung der Aktivitätsanteile gebildet.

Der Anteil jedes Nuclids wird innerhalb eines festgelegten Bereiches um den Mittelwert so variiert, bis nachfolgende Teilziele erfüllt sind. Nach Meinung der Strahlenschutzkommission reicht ein Bereich von einer Standardabweichung um den Mittelwert aus.



Die Teilziele sind:

- Maximierung der Summenformel gemäß Strahlenschutzverordnung hinsichtlich der spezifischen Aktivität (massebezogen, d. h. nach den Spalten 5, 6, 7, 9 oder 10a der Tabelle 1 in der Anlage III der StrlSchV je nach gewählter Freigabeoption)

$$\sum_i \frac{a_i}{R_i} = \text{Maximum}$$

$a_i$  - spezifische Aktivität des Nuklids  $i$   
 $R_i$  - relevanter massebezogener Freigabewert des Nuklids  $i$   
(nach StrlSchV Anl. III, Tab. 1, Spalte 5, 6, 7, 9 oder 10a)

- Maximierung der Anteile schwer messbarer Nuklide (d. h. der Alpha- und Betastrahler ohne gut messbare Gammalinien) am Nuklidvektor

$$\sum_i v_{\alpha+\beta,i} = \text{Maximum}$$

$v_{\alpha+\beta,i}$  - Anteil des alpha- und betastrahlenden Nuklids  $i$   
(ohne gut messbare Gammalinien) am Nuklidvektor

- Maximierung der Summenformel gemäß Strahlenschutzverordnung hinsichtlich der flächenbezogenen Aktivität (d. h. nach den Spalten 4, 8 oder 10 der Tabelle 1 in der Anlage III der StrlSchV je nach gewählter Freigabeoption)

$$\sum_i \frac{a_i}{O_i} = \text{Maximum}$$

$a_i$  - spezifische Aktivität des Nuklids  $i$   
 $O_i$  - relevanter flächenbezogener Freigabewert des Nuklids  $i$   
(nach StrlSchV Anl. III, Tab. 1, Spalte 4, 8 oder 10)

Diese drei Teilziele lassen sich nicht alle gleichzeitig bestmöglich erfüllen, da die Anforderungen zum Teil gegensätzlich sind, deshalb ist eine Optimierung erforderlich. Dabei wird versucht, mit einem Nuklidvektor in der Summe der drei Teilziele einen hohen Anteil an den oben genannten Maxima zu erreichen. Als Zielwert der Optimierung dient also der Grad der Ausschöpfung der Summe der drei oben berechneten Einzelzielgrößen. Dadurch lässt sich auch der Grad der Konservativität insgesamt und für die einzelnen Teilziele angeben.

Wenn bei freizugebenden Materialien keine feste Oberfläche vorhanden ist, kann natürlich die flächenbezogene Betrachtung entfallen und die Optimierung bezieht sich dann nur auf die massenspezifische Betrachtung und die Hochrechnungsfaktoren.

In einem letzten Schritt kann das 10 %-Abschneidekriterium wie oben beschrieben auf den gewichteten und normierten Nuklidvektor angewendet werden. Es ist aber bei den

optimierten Nuklidvektoren zu beachten, dass es für die flächen- und massenspezifische Betrachtung in gleicher Weise zutreffen muss. Das heißt nur die Nuklide dürfen unberücksichtigt bleiben, die sowohl bei der flächen- wie bei der massenspezifischen Summenformel zusammengerechnet nicht mehr als 10 % betragen.

Abschließend sollte die Plausibilität des gebildeten Nuklidvektors geprüft werden, das heißt, ob er aus den Kenntnissen über den bewerteten Bereich und seiner Betriebsgeschichte erklärbar ist.

Die Optimierung bewirkt, dass bei dem gebildeten Nuklidvektor nicht das Maximum an Konservativität für alle Teilziele erreicht werden kann. Der Grad der Konservativität ist aber bekannt. Wenn dieser für die Freigabe nicht als ausreichend angesehen wird, können Schwellwerte für die Freimessung festgelegt werden. Bei Überschreitung dieser Schwellwerte bei der Freimessung, ist dann die tatsächliche Nuklidzusammensetzung des Messgutes zu überprüfen. Dadurch kann auch bei radiologisch ungünstigen Bedingungen eine Überschreitung der Freigabewerte verhindert werden.

#### **7.6.4 Berechnung von Nuklidvektoren durch Mittelwertbildung**

Die Berechnung von Nuklidvektoren durch einfache Mittelung der Analysenergebnisse der Proben eines Bereiches führt zwar zu repräsentativen aber nicht zu konservativen Nuklidvektoren. Das heißt selbst bei den Proben mit bekannter Nuklidzusammensetzung liegt dann ein Teil ungünstiger als der Nuklidvektor und könnte dadurch in Abhängigkeit von der Höhe der Gesamtaktivität trotz positiver Freigabeentscheidung zu einer nicht bemerkten Überschreitung der Freigabewerte führen.

Die Konservativität lässt sich aber auf verschiedenen Wegen herstellen. Zum Einen indem in Abhängigkeit von der gewählten Freigabeoption Korrekturfaktoren berechnet werden, welche die Schwankungsbreite relevanter Radionuklide berücksichtigen. Eine andere Möglichkeit besteht darin, dass die Freigabewerte der Schlüsselnuklide nur zu einem gewissen Anteil ausgeschöpft werden dürfen, der sich ebenfalls aus der Schwankungsbreite relevanter Radionuklide abschätzen lässt.

#### **7.6.5 Aktualisierung von Nuklidvektoren**

Durch den Zerfall kürzerlebiger Radionuklide verändert sich der Nuklidvektor im Laufe der Zeit. Der Nuklidvektor soll daher, wenn erforderlich, regelmäßig an den Zerfall angepasst werden. Das Erfordernis und die Häufigkeit der Korrektur hängen von den Halbwertszeiten der Nuklide und ihrem Anteil am Nuklidvektor ab. Es ist dabei zu beachten, dass es zu keiner Unterschätzung des Aktivitätsinventars von freizugebenden Stoffen kommt.

Nach Dekontaminationsmaßnahmen, die auf Grund unterschiedlicher chemischer und physikalischer Eigenschaften der Radionuklide zu Veränderungen des Nuklidvektors führen können, ist es unbedingt erforderlich die Gültigkeit des vorher bestimmten Nuklidvektors zu überprüfen und diese gegebenenfalls anzupassen.

Die Nuklidvektoren sollen mit den bei der Freimessung anfallenden nuklidspezifischen Daten abgeglichen werden, um gegebenenfalls eine Anpassung oder Korrektur der Nuklidvektoren vornehmen zu können. Es sollte nach Möglichkeit vorab festgelegt werden, welche Abweichungen von den festgelegten Nuklidvektoren toleriert werden und wann eine Anpassung vorgenommen wird.

Es ist zu empfehlen, die Anpassung der Nuklidvektoren unter den gleichen Maßstäben vorzunehmen, wie die Berechnung der Nuklidvektoren.

Die Aktualisierung des Nuklidvektors sollte generell am unverkürzten Nuklidvektor, das heißt ohne vorherige Anwendung des 10 %-Abschneidekriteriums, vorgenommen werden, da die Ergebnisse auch zu einer Veränderung der Anteile im Bereich des 10 %-Abschneidekriteriums führen können. Nach der Aktualisierung kann dann das 10 %-Abschneidekriterium wieder angewandt werden.

Die aktualisierten Nuklidvektoren sollen entsprechend gekennzeichnet werden. Es ist dafür Sorge zu tragen, dass nach einer Änderung nur noch mit den aktualisierten Nuklidvektoren gearbeitet wird. Ein Verzeichnis der Nuklidvektoren mit den Revisionsständen, den Bezugsdaten und Gültigkeitszeiträumen kann dabei hilfreich sein.

## **8 Zusammenfassung**

Die Festlegung eines Nuklidvektors stellt einen wichtigen Aspekt des Verfahrens zur Freigabe größerer Stoffmengen nach § 29 der Strahlenschutzverordnung dar. Die Anwendung des Nuklidvektors für die Freigabe ist aber nur dann zulässig, wenn er repräsentativ bzw. ausreichend konservativ für die freizugebende Stoffmenge ist.

Für die Sicherung der Repräsentativität der Nuklidvektoren gibt es bisher keine Festlegungen, Normen oder Anleitungen. Die Gewährleistung der Repräsentativität hängt vom fachlichen Können der Bearbeiter ab und ihre Bestätigung liegt im Ermessen der Behörden bzw. der von ihnen beauftragten Gutachter. Ziel dieses Projektes war es, Empfehlungen für die repräsentative Ermittlung von Nuklidvektoren zu erarbeiten.

In einem ersten Schritt wurde die bisherige Praxis der Ermittlung von Nuklidvektoren bei der Freigabe nach § 29 der Strahlenschutzverordnung erkundet. Die von den zuständigen Landesbehörden und einigen Betreibern erfragten Angaben zu Freigabeverfahren größerer Stoffmengen nach § 29 der Strahlenschutzverordnung geben die bisherige Praxis summarisch und teilweise unvollständig wieder. Es wurden alle in der Strahlenschutzverordnung vorgesehenen Freigabeoptionen, einschließlich der Einzelfallentscheidung, genutzt. Länderspezifische Regelungen zur Ermittlung von Nuklidvektoren gab es mit Ausnahme eines Bundeslandes nicht.

Die Details zu den Vorgehensweisen sind aus den übermittelten Angaben und der Literatur nur teilweise zu entnehmen. Es zeigt sich, dass die Nuklidvektoren je nach Anlagentyp und Rückbausituation recht unterschiedlich ermittelt wurden. Dazu wurden neben der Probenahme und Analyse von Proben auch Aktivierungs- und Abbrandrechnungen genutzt. Die Nuklidvektoren wurden in den meisten Fällen als abdeckende Nuklidvektoren und nur in einigen Fällen auf statistischer Grundlage oder durch

Mittelwertbildung berechnet. Vom 10 %-Abschneidekriterium wurde nur in wenigen Fällen Gebrauch gemacht.

Bisher ermittelte Nuklidvektoren wurden in einer Excel-Datei erfasst. Eine Einschätzung der Repräsentativität ist auf Grund unvollständiger Angaben und aus prinzipiellen Gründen, auf die bei der Begriffsdefinition eingegangen wird, nicht möglich.

Zum Begriff der Repräsentativität wurden aus der Literatur folgende grundsätzliche Aussagen abgeleitet, die einen wesentlichen Einfluss auf die Ermittlung repräsentativer Nuklidvektoren haben:

- Die Repräsentativität muss nur im Bezug auf die zu untersuchenden Eigenschaften gewährleistet sein, im Falle des Nuklidvektors also auf die Verhältnisse der Nuklide zueinander.
- Die Repräsentativität lässt sich nicht an Merkmalen der Probe festmachen, sondern muss durch die Richtigkeit und Reproduzierbarkeit des Verfahrens gesichert werden.
- Repräsentativität kann mit vernünftigem und dem Zweck angemessenem Aufwand nicht absolut, sondern nur zu einem festzulegenden Konfidenzniveau erreicht werden.

Von der Strahlenschutzkommission wurde ein Vertrauensniveau von 95 % akzeptiert [19], in den Normen DIN 25457-6 [5] und E DIN 25457-7 [6] wurden ebenfalls 95 % angegeben.

Im Bericht sind die möglichen Vorgehensweisen bei der Ermittlung repräsentativer Nuklidvektoren beschrieben. Es wird unterschieden zwischen den Szenarien Aktivierung, homogene und inhomogene Kontamination.

Die Ermittlung der Nuklidvektoren wird bei allen Projekten im Wesentlichen nach folgender Schrittfolge ablaufen:

1. Historische Erkundung und Abgrenzung von Bereichen
2. Auswahl der zu untersuchenden Nuklide
3. Erstellung eines Probenahmemessprogramms
4. Durchführung erkundender Messungen vor Ort
5. Probenahme
6. Probenvorbereitung
7. Analytik
8. Berechnung der Nuklidvektoren
9. Aktualisierung der Nuklidvektoren

Die konkrete Gestaltung des Untersuchungsprogramms ist dann von der Zielstellung und der radiologischen Situation des zu untersuchenden Objekts abhängig. Für die einzelnen Schritte lassen sich aber unabhängig von der konkreten Situation verschiedene Möglichkeiten und Regeln für ein sachgerechtes Vorgehen beschreiben.

Einen wesentlichen Einfluss auf die Unsicherheit der Probenahme und damit auf die Repräsentativität des Nuklidvektors haben die Probenahmestrategie, der Probenehmer und die Probenmenge. Bei der Erstellung der Probenahmestrategie ist die Kompetenz

des Bearbeiters der entscheidende Faktor für die Richtigkeit. Ähnliches gilt bei der Durchführung der Probenahme für den Probenehmer. Die Kompetenz des Bearbeiters lässt sich nicht durch Normen und Regelungen ersetzen. Sie können und sollen aber als Hilfsmittel durch den Bearbeiter genutzt werden. In diesem Sinne verstehen sich auch die hier erstellten Empfehlungen.

Zu Beginn der Planung steht die historische Erkundung, d. h. die Erfassung der Kenntnisse zu der untersuchten Anlage, insbesondere der aktivierten und kontaminierten Bereiche, Angaben zur Nuklidzusammensetzung und zu den Ausbreitungswegen von Kontaminationen. Dazu sollte neben der Anlagen- und Betriebsdokumentation auch das Insiderwissen der Beschäftigten genutzt werden.

Im Ergebnis der historischen Erkundung können dann auf Grund physikalischer, verfahrenstechnischer, chemischer und werkstoffkundlicher Kriterien Bereiche voneinander abgegrenzt werden, für die ein homogener Nuklidvektor zu erwarten ist. Dabei ist ein schrittweises Vorgehen mit zunehmendem Detailliertheitsgrad der Untersuchungen vorteilhaft, um den Aufwand in Grenzen zu halten.

Die Auswahl der für die einzelnen Bereiche zu untersuchenden Nuklide erfolgt auf Grundlage der historischen Erkundung unter Beachtung der physikalischen und chemischen Eigenschaften der Radionuklide. Dabei können auch Modellrechnungen zu Aktivierung und Abbrand genutzt werden.

Im Probenahmemessprogramm werden alle erforderlichen Maßnahmen zur Messung vor Ort, zur Probenahme und Analytik festgelegt. Das betrifft besonders die Vor-Ort-Messverfahren, die Messpunkte, die Probenarten, die Probenzahl, die Probenahmeorte, die Probenahmeverfahren, die Probenmenge, die Probenaufbereitung, die Analyseverfahren und Art und Umfang der Dokumentation.

Messungen vor Ort sind vor allem dort vorzusehen, wo die Aktivitätsverteilung auf Grund der historischen Erkundung nicht ausreichend gesichert ist. Die Messverfahren sollen neben der Erfassung von kontaminierten Objekten auch der Identifizierung von Aktivitätsmaxima dienen. Nuklidspezifische Messungen, wie die In-situ-Gammaspektrometrie, liefern darüber hinaus auch Informationen zu Nuklidverhältnissen.

Bei der Probenahme sollen vorrangig Materialproben in Form von Einzelproben entnommen werden. Die Tiefenverteilung der Aktivität ist erforderlichenfalls durch eine tiefengestaffelte Probenahme zu erfassen. Bei der Wahl der Probenahmeverfahren sind in Abhängigkeit vom Material und den zu analysierenden Nukliden mögliche störende Effekte zu berücksichtigen, wie z. B. der Verlust flüchtiger Radionuklide, Querkontaminationen und die Vermischung von Oberflächenschichten und Grundmaterial. Für eine fehlerfreie und reproduzierbare Probenahme ist es hilfreich, wenn zumindest betriebsintern standardisierte Arbeitsverfahren erstellt werden. Dabei sind auch die Probenvorbehandlung vor Ort, die Verpackung und die eindeutige, verwechslungsfreie und dauerhafte Kennzeichnung der Proben zu berücksichtigen.

Die erforderliche Probenmenge ist in Abhängigkeit vom Bedarf für die durchzuführenden Analysen, der Korngröße und der Inhomogenität des Materials festzulegen. Die Probe sollte auch eine bestimmte Mindestaktivität besitzen, damit Radionuklide mit ge-

ringer spezifischer Aktivität aber hoher radiologischer Relevanz, wie die Alphastrahler, ausreichend sicher bestimmt werden können.

Die Anzahl der in den abgegrenzten Bereichen zu entnehmenden Proben ist so zu wählen, dass die statistische Verteilung für die Nuklide des Nuklidvektors ausreichend sicher bestimmt werden kann. Ein Vertrauensniveau von 95 % wurde von der Strahlenschutzkommission als ausreichend angesehen. Für die statistische Betrachtung erscheinen aus der Abwägung von Aufwand und statistischer Sicherheit 16 bis 20 Proben als optimal. In begründeten Fällen können auch weniger Proben angemessen sein.

Die Probenahmeorte sind auf Grund gründlicher Anlagenkenntnis und der Nutzung von Vorbefunden, z. B. aus dem Betrieb der Anlage oder erkundenden Messungen vor Ort auszuwählen. Dabei ist die Beprobung von Aktivitätsmaxima günstig, um auch Nuklide mit geringer spezifischer Aktivität bestimmen zu können. Zunächst sollte eine größere Zahl möglicher Probenahmeorte definiert werden, aus der dann eine Auswahl getroffen wird. So bleiben alternative Probenahmeorte, auf die zurückgegriffen werden kann, wenn an einem vorgesehenen Ort keine Probenahme möglich ist oder zusätzliche Proben benötigt werden.

Der Probenahmezeitpunkt soll so gewählt werden, dass die Aktivität der Proben ausreichend ist, z. B. vor einer Phase des sicheren Einschlusses. Unzugängliche Stellen können während der Demontage von Komponenten beprobt werden. Bei der Wahl des Probenahmezeitpunkts ist zu beachten, dass Dekontaminationen den Nuklidvektor verändern können.

Die Bedeutung der Probenahme für die Qualität des Gesamtprozesses und damit für die Repräsentativität der Nuklidvektoren kann nicht genug betont werden. Fehler, die hier gemacht werden, lassen sich durch keine noch so präzise Analytik und mathematisch-statistisch begründete Datenauswertung wieder korrigieren.

Die Probenahme ist deshalb von zuverlässigem, ausreichend qualifiziertem und für die Probenahme besonders geschultem Personal durchzuführen. Die Probenehmer müssen über praktische Erfahrungen verfügen und mit der Problemstellung vertraut sein. Es ist günstig, wenn die Probenehmer auch Ortskenntnis und Erfahrungen aus dem Betrieb der Anlage mitbringen.

Die Probenvorbehandlung im Labor dient dazu, die entnommenen Proben für die Analysen vorzubereiten. Dabei ist darauf zu achten, dass durch die Verfahren die Nuklidzusammensetzung nicht verändert wird.

Bei der Untersuchung der Proben sollte zunächst alle Proben mit der weniger aufwändigen Gammaskopimetrie analysiert werden, um dann auf Grund dieser Ergebnisse gezielt Proben für die radiochemische Bestimmung von Alpha- und Betastrahlern auszuwählen.

Bei der Analytik kommen vor allem folgende Verfahren zum Einsatz:

- Gammastrahlenspektrometrie (mit und ohne chemischer Abtrennung),
- Alphastrahlenspektrometrie nach radiochemischer Abtrennung,
- Flüssigszintillationsmessung (LSC) nach radiochemischer Abtrennung,
- Low-level-Alpha-Beta-Messung nach radiochemischer Abtrennung,
- Massenspektrometrie mit induktiv gekoppeltem Plasma (ICP-MS, mit und ohne chemischer Abtrennung).

Die Analysenverfahren und die mit ihnen zu erreichenden Nachweisgrenzen und Messunsicherheiten sollen so gewählt werden, dass die Anteile aller relevanten Radionuklide mit hinreichender Genauigkeit bestimmt werden. Die Messunsicherheiten sind nach den einschlägigen Regeln unter Berücksichtigung aller Unsicherheitskomponenten zu berechnen. Auf die durchgängige Qualitätssicherung z. B. nach den Regeln der DIN EN ISO/IEC 17025 ist zu achten.

Bei aktivierten Materialien ist der Einsatz von Modellrechnungen der Aktivierung zur Ermittlung der Nuklidanteile sinnvoll. Diese sollten aber mit Probenahmen und Analysen abgesichert und gegebenenfalls justiert werden.

Zur Berechnung der Nuklidvektoren sollen alle verfügbaren Informationen zur Nuklidzusammensetzung herangezogen und validiert, das heißt vor allem auf ihre Vollständigkeit, Zuverlässigkeit und Plausibilität überprüft werden.

Für die Berechnung des repräsentativen Nuklidvektors gibt es drei mögliche Herangehensweisen:

- die Berechnung eines abdeckenden Nuklidvektors (konservativ aber nicht repräsentativ),
- die Berechnung des Nuklidvektors auf statistischer Grundlage (konservativ und repräsentativ),
- die Berechnung durch Mittelwertbildung (repräsentativ aber nicht konservativ).

Die berechneten Nuklidvektoren lassen sich noch durch Anwendung des 10 %-Abschneidekriteriums verkürzen. Dabei ist zu beachten, dass es nur auf die gewichteten und normierten Nuklidvektoren je nach der gewählten Freigabeoption anwendbar ist.

Die abdeckenden Nuklidvektoren werden ermittelt, indem die ungünstigste Relation der Nuklide zueinander berechnet wird. Unter ungünstig ist dabei zu verstehen, dass einerseits entsprechend der Summenformel das größtmögliche Verhältnis der spezifischen Aktivitäten zu den Freigabewerten der gewählten Freigabeoption (flächen- und massebezogen) erreicht wird und andererseits die Hochrechnungsfaktoren maximiert werden. Dadurch ist dieser abdeckende Nuklidvektor konservativer als jeder einzelne Nuklidvektor, der für abgegrenzte Bereiche oder Materialien innerhalb des Gültigkeitsbereiches des abdeckenden Nuklidvektors gebildet werden könnte. Durch abdeckende Nuklidvektoren wird also eine größere Konservativität erreicht, d. h. eine stärkere Überschätzung des Risikos. Der Grad der Konservativität kann dadurch verringert werden, indem Nuklide mit gleichen oder ähnlichen Freigabewerten (z. B. die Transurane) zu Gruppen zusammengefasst werden.

Eine andere Möglichkeit abdeckende Nuklidvektoren besser an die realen Gegebenheiten anzupassen, besteht darin Teilnuklidvektoren zu bilden. Dazu werden die Nuklide entsprechend ihrer Genese und ihren physikalisch-chemischen Eigenschaften in Gruppen eingeteilt, denen jeweils ein Schlüsselnuclid zugeordnet ist. Es wird dabei das Verhältnis der Nuklide des Teilnuklidvektors zu dem jeweiligen Schlüsselnuclid berechnet. Der Gesamtnuklidvektor ergibt sich dann aus den gemessenen Aktivitätsanteilen der Schlüsselnuclide und den daraus berechneten Anteilen der anderen Nuklide.

Abdeckende Nuklidvektoren sind im strengen Sinne nicht als repräsentativ anzusehen, da sie das betrachtete Merkmal (Verhältnis der Nuklide zueinander) der Grundgesamtheit nicht richtig wiedergeben. Sie führen durch ihre Konservativität aber bei ihrer Anwendung zu einer sicheren Unterschreitung der Freigabewerte, so dass sie für die Freigabe zielführend sind.

Bei der Berechnung von Nuklidvektoren auf statistischer Grundlage wird zunächst geprüft, ob die Proben eines Bereiches auf Grund ihrer Analysenergebnisse im statistischen Sinne zu einer Grundgesamtheit gehören. Bei positivem Ergebnis werden die Mittelwerte und Standardabweichungen für alle Radionuklide der Proben eines Bereiches berechnet. Für alle Proben werden die gewichteten und normierten Nuklidvektoren gebildet. Dabei dienen die Freigabewerte der gewählten Freigabeoption als Wichtigkeitsgröße, da sie die radiologische Relevanz der Radionuklide widerspiegeln. Falls sowohl die flächenspezifische als auch die massenspezifische Betrachtung bei der Freigabe eine Rolle spielen, sind beide Aspekte zu berücksichtigen. Außerdem werden die Hochrechnungsfaktoren berechnet, d. h. das Verhältnis der Nuklide zum Schlüsselnuclid.

In einem Optimierungsverfahren werden die Nuklidanteile der einzelnen Nuklide in einem Bereich von einer Standardabweichung um den Mittelwert so variiert, bis die folgenden Teilziele erfüllt sind:

- Maximierung der Summenformel hinsichtlich der massenspezifischen Aktivität,
- Maximierung der Summenformel hinsichtlich der flächenbezogenen Aktivität,
- Maximierung der Anteile schwer messbarer Nuklide am Nuklidvektor (Hochrechnungsfaktoren).

Diese drei Teilziele lassen sich nicht alle gleichzeitig bestmöglich erfüllen, da die Anforderungen zum Teil gegensätzlich sind, deshalb ist ein zweiter Optimierungsschritt erforderlich. Dabei wird versucht mit einem Nuklidvektor in der Summe der drei Teilziele einen hohen Anteil an den oben genannten Maxima zu erreichen.

Wenn die freizugebenden Materialien keine feste Oberfläche besitzen kann auf die flächenbezogene Betrachtung bei der Optimierung verzichtet werden.

Die Berechnung von Nuklidvektoren durch einfache Mittelung der Analysenergebnisse der Proben eines Bereiches führt zwar zu repräsentativen aber nicht zu konservativen Nuklidvektoren. Das heißt selbst bei den Proben mit bekannter Nuklidzusammensetzung liegt dann ein Teil ungünstiger als der Nuklidvektor und könnte dadurch in Ab-



hängigkeit von der Höhe der Gesamtaktivität trotz positiver Freigabeentscheidung zu einer nicht bemerkten Überschreitung der Freigabewerte führen.

Die Konservativität lässt sich aber durch Korrekturfaktoren herstellen, die in Abhängigkeit von der gewählten Freigabeoption, die Schwankungsbreite relevanter Radionuklide berücksichtigen. Eine andere Möglichkeit besteht darin, dass die Freigabewerte der Schlüsselnuklide nur zu einem gewissen Anteil ausgeschöpft werden dürfen, der sich ebenfalls aus der Schwankungsbreite relevanter Radionuklide abschätzen lässt.

Für die Nuklidvektoren ist das Bezugsdatum anzugeben, damit deren Gültigkeit kontrolliert werden kann und eine Anpassung auf Grund des Abklingens einzelner Nuklide zu erleichtern.

Für diese Anpassung an das Abklingen sind je nach Halbwertszeit und Anteil am Nuklidvektor entsprechende Fristen festzulegen. Eine Korrektur des Nuklidvektors sollte auch erfolgen, wenn sich auf Grund neuer Befunde z. B. bei der Freimessung deutliche Abweichungen zeigen. Bei der Bewertung der Abweichungen soll nach den gleichen Kriterien vorgegangen werden, wie bei der Erstellung des Nuklidvektors.

Die Dokumentation soll so gestaltet sein, dass das Vorgehen und die Überlegungen und Entscheidungen über den gesamten Prozess der Ermittlung der Nuklidvektoren transparent und nachvollziehbar sind. Eine betriebsinterne Standardisierung der Dokumentation kann dabei hilfreich sein.

Die Ergebnisse des Projektes sollen zur Vereinfachung des Vorgehens beitragen. Die Zusammenstellung von möglichen Herangehensweisen zur Ermittlung repräsentativer Nuklidvektoren soll den Betreibern von Anlagen die Aufstellung und Durchführung entsprechender Probenahmemessprogramme und die Berechnung der Nuklidvektoren erleichtern. Dazu dienen vor allem die Beschreibungen der einzelnen Arbeitsschritte, in denen auch auf mögliche Fehlerquellen hingewiesen wird.

Die Planung und Ausführung können und müssen aber auf die Zielstellung der Freigabe und die radiologische Situation der jeweiligen Anlage angepasst werden.

Durch die Anwendung der in dem Bericht dargestellten Vorgehensweisen, lässt sich der Aufwand für die Herleitung und Begründung konkreter Maßnahmen verringern und die Abstimmung mit Gutachtern und Behörden erleichtern. In einzelnen Fällen können Abweichungen von den hier vorgeschlagenen Wegen sinnvoll sein, diese sind dann entsprechend zu begründen.

## 9 Literatur

- [1] DIN 25457-1: Aktivitätsmessverfahren für die Freigabe von radioaktiven Reststoffen und kerntechnischen Anlagenteilen – Grundlagen der Beta- und Gamma-Aktivitätsmessverfahren. August 1993
- [2] DIN 25457-2: Aktivitätsmessverfahren für die Freigabe von radioaktiven Reststoffen und kerntechnischen Anlagenteilen – Teil 2: Grundlagen zur Bestimmung der Alpha-Aktivität. Dezember 1995
- [3] DIN 25457-4: Aktivitätsmessverfahren für die Freigabe von radioaktiven Reststoffen und kerntechnischen Anlagenteilen – Teil 4: Metallschrott mit Beta-/Gamma-Aktivität. August 1993
- [4] DIN 25457-5: Aktivitätsmessverfahren für die Freigabe von radioaktiven Reststoffen und kerntechnischen Anlagenteilen – Teil 5: Mit Alpha-Aktivität kontaminierter Metallschrott. Juli 1996
- [5] DIN 25457-6: Aktivitätsmessverfahren für die Freigabe von radioaktiven Reststoffen und kerntechnischen Anlagenteilen – Teil 6: Bauschutt und Gebäude. Oktober 2000
- [6] DIN 25457-7: Aktivitätsmessverfahren für die Freigabe von radioaktiven Reststoffen und kerntechnischen Anlagenteilen – Teil 7: Bodenflächen. Januar 2008
- [7] Leitfaden für die praktische Umsetzung des § 29 StrlSchV (Freigabeleitfaden). Fachverband für Strahlenschutz e. V., Arbeitskreis Entsorgung. Ausgabe 1, Stand 4.4.2003
- [8] Entwurf LAGA PN98: Richtlinie für das Vorgehen bei physikalischen, chemischen und biologischen Untersuchungen im Zusammenhang mit der Verwertung/Beseitigung von Abfällen – Grundregeln für die Entnahme von Proben aus festen und stichfesten Abfällen sowie abgelagerten Materialien. Länderarbeitsgemeinschaft Abfall. Dezember 2001  
In: Handbuch der Bodenuntersuchung. Hrsg. DIN Deutsches Institut für Normung e. V. Berlin, Wien, Zürich: Beuth Verlag, 12. Ergänzungslieferung 2004
- [9] Feinhals J et al.: Rahmenrichtlinie zur Freigabe von radioaktiven Stoffen nach § 29 Strahlenschutzverordnung. Abschlussbericht zum Förderprojekt StSch 4378, TÜV Nord e. V., Hamburg 2004
- [10] Strahlenschutzkommission: Kernkraftwerk Stade – Stilllegung und Rückbau. Stellungnahme der Strahlenschutzkommission. Verabschiedet in der 200. Sitzung der Strahlenschutzkommission am 30. Juni 2005
- [11] Borchers F et al.: Berücksichtigung stilllegungsrelevanter Fakten in der Betriebsdokumentation. Empfehlung des AKE. Arbeitskreis Entsorgung des Fachverbandes Strahlenschutz. Entwurf vom 24.01.2007

- [12] Guide to the Expression of Uncertainty in Measurement. (GUM), BIPM, 1993 / 1995, ISBN 92 67 10188 9
- [13] DIN V ENV 13005: Leitfaden zur Angabe der Unsicherheit beim Messen. 1999-06
- [14] DIN 1319-4: Grundlagen der Messtechnik - Teil 4: Auswertung von Messungen; Messunsicherheit. 1999-02
- [15] EURACHEM/CITAC Leitfaden: Ermittlung der Messunsicherheit bei analytischen Messungen. Deutsche Übersetzung von EURACHEM/D. 2004
- [16] DAR-4-EM-07: EA-Leitfaden zur Angabe der Unsicherheit beim quantitativen Prüfen. Deutscher Akkreditierungsrat. 2006
- [17] DAR-4-INF-08: Anforderungen an Prüflaboratorien und Akkreditierungsstellen bezüglich der Messunsicherheitsabschätzung nach ISO/IEC 17025 (5.4.6 / 5.10.3). Deutscher Akkreditierungsrat. 2005
- [18] DAP-TM 18: Ermittlung und Angabe der Messunsicherheit nach Forderungen der ISO IEC 17025. Deutsches Akkreditierungssystem Prüfwesen GmbH. 2002
- [19] Richtlinie zur Ermittlung der Messunsicherheit im Prüfwesen. Deutsche Akkreditierungsstelle Chemie GmbH. 2003
- [20] Nordtest Report TR 537: Handbook for Calculation of Measurement Uncertainty in Environmental Laboratories. Nordtest. 2004
- [21] DIN 25482-10: Nachweisgrenze und Erkennungsgrenze bei Kernstrahlungsmessungen – Teil 10: Allgemeine Anwendungen. Mai 2000
- [22] DIN 25482-12: Nachweisgrenze und Erkennungsgrenze bei Kernstrahlungsmessungen - Teil 12: Entfaltung von Spektren. Februar 2003
- [23] DIN 25482-13: Nachweisgrenze und Erkennungsgrenze bei Kernstrahlungsmessungen - Teil 13: Zählende Messungen an bewegten Objekten. Februar 2003
- [24] ISO 11929-7: Bestimmung von Nachweisgrenze und Erkennungsgrenze bei Kernstrahlungsmessungen - Teil 7: Grundlagen und allgemeine Anwendungen (engl.). 2005-02
- [25] Gy P: Sampling for Analytical Purposes. Wiley 1998
- [26] Breiter R, Endress-Beckhäuser E: Virtuelle Probenahme, eine Methode zur Untersuchung des Probenahmefehlers bei der Altlastensanierung. In: Rasmann W (Hrsg.): Probenahme und Qualitätssicherung in Umwelt und Produktion. 7. Tagung des Arbeitskreises „Probenahme“ am 2. und 3. November 2001 in Freiberg/Sachsen, Tagungsbeiträge, S. 2-1 – 2-10.

- [27] DIN EN ISO/IEC 17025: Allgemeine Anforderungen an die Kompetenz von Prüf- und Kalibrierlaboratorien. Mai 2005
- [28] Thierfeldt S: Automatic Transformation of Sampling Data from the Radiological Characterisation of a Nuclear Installation into Nuclide Vectors. 4<sup>th</sup> International Symposium "Release of Radioactive Material from Regulatory Control – Harmonisation of Clearance Levels and Release Procedures". Hamburg 20. – 22.03.2006
- [29] Thierfeldt S: Erläuterungen bei der Exkursion zum Kernkraftwerk Stade. 4<sup>th</sup> International Symposium "Release of Radioactive Material from Regulatory Control – Harmonisation of Clearance Levels and Release Procedures". Hamburg 20. – 22.03.2006
- [30] Bacmeister G U: Erfahrungen mit der Einführung des Freigabeverfahrens für den Rückbau KKS. 8. Internationales Symposium „Konditionierung radioaktiver Betriebs- und Stilllegungsabfälle“, Dresden 21. – 23.03.2007. Proceedings S. 129 – 133
- [31] Schartmann F, Thierfeldt S, Schiffer K: Freimess- und Realisierungskonzept für die Freigabe von Material beim Rückbau des Kernkraftwerks Stade. 7. Internationales Symposium „Konditionierung radioaktiver Betriebs- und Stilllegungsabfälle“, Berlin 20. – 22.04.2005. Proceedings S. 402 – 408
- [32] DIN 25462: In-situ-Gammaspektrometrie zur nuklidspezifischen Umweltkontaminationsmessung. Oktober 2000
- [33] Naber C, Reichert A, Kosbadt O, Massing B, Döscher K, Sauer D, Schiele C, Stollenwerk A: Messstrategien für die In-situ-Gammaspektrometrie bei Freimessungen von Gebäuden und Bodenflächen nach § 29 StrlSchV. Ausgabe 2 (Stand: 31.1.2007). Umweltministerium Baden-Württemberg
- [34] Bensch D, Kummer A, Stahn B: Rückbau und Entsorgung eines Laborgebäudes für Radiochemie nach über 30-jähriger Nutzung. 8. Internationales Symposium „Konditionierung radioaktiver Betriebs- und Stilllegungsabfälle“, Dresden 21. – 23.03.2007. Proceedings S. 491 – 497
- [35] Baschnagel M, Hoppe D, Haag J: Freigaberegulung im Kraftwerk Biblis – Entwicklung der Freigaberegulung im KW Biblis. 3. Symposium „Freigabe von radioaktiven Stoffen aus dem Geltungsbereich des Atomgesetzes (§ 29 StrlSchV). Hamburg 10. – 11. März 2003, Tagungsband S. 99 – 105
- [36] Büsing B: persönliche Mitteilung (Fa. Safetec)
- [37] Krins A, Kückes M, Nunnemann A, Schmollack J-U: Nuklidvektoren mit erhöhtem Alpha-Anteil beim Rückbau von kerntechnischen Anlagen. 8. Internationales Symposium „Konditionierung radioaktiver Betriebs- und Stilllegungsabfälle“, Dresden 21. – 23.03.2007. Proceedings S. 510 – 517

- [38] Kelch A; Karschnick O: Inbetriebsetzung eines automatisierten Freigabeverfahrens und begleitende Kontrollen im atomrechtlichen Aufsichtsverfahren des Kernkraftwerks Stade. 8. Internationales Symposium „Konditionierung radioaktiver Betriebs- und Stilllegungsabfälle“, Dresden 21. – 23.03.2007. Proceedings S. 278 – 285
- [39] Giera H-D: persönliche Mitteilung (Verein für Kernverfahrenstechnik und Analytik Rossendorf e. V.)
- [40] Mauerhofer E, Odoj R: Messmethoden zur Charakterisierung radioaktiver Abfälle und zur Freimessung von Reststoffen aus der Stilllegung kerntechnischer Anlagen (MESRAB) – Ermittlung und Bewertung des Stands von Wissenschaft und Technik. 7. Internationales Symposium „Konditionierung radioaktiver Betriebs- und Stilllegungsabfälle“, Berlin 20. – 22.04.2005. Proceedings S. 658 – 668
- [41] Hampel G, Harke H, Klaus U, Kelm W, Issing J, Lörcher G: Probennahme an Reaktorkomponenten in Vorbereitung der Stilllegung des TRIGA-Reaktors der Medizinischen Hochschule Hannover. 5. Internationales Symposium „Konditionierung radioaktiver Betriebs- und Stilllegungsabfälle“, Berlin 28. – 30.03.2001. Proceedings S. 261 – 273
- [42] Simić S, Hackel W, Rojahn T, Müller H-P: Vorgehensweise und Grenzwertfindung im atomrechtlichen Freigabeverfahren bei der Stilllegung von Kernkraftwerken. 5. Internationales Symposium „Konditionierung radioaktiver Betriebs- und Stilllegungsabfälle“, Berlin 28. – 30.03.2001. Proceedings S. 326 – 362
- [43] Rittmeyer C, Hoepfener-Kramar U: Auf der Suche nach dem Bequerel - Möglichkeiten und Grenzen der radiochemischen Analytik zur Klassifizierung radioaktiver Reststoffe. 5. Internationales Symposium „Konditionierung radioaktiver Betriebs- und Stilllegungsabfälle“, Berlin 28. – 30.03.2001. Proceedings S. 697 – 702
- [44] Boeßert W, Eichhorn K, Wagner G: Radiologische Aspekte beim Rückbau der Isotopenproduktionsanlage des VKTA. Jahrestagung Kerntechnik 2002, Stuttgart 14. – 16.05.2002. Tagungsbericht S. 429 – 432
- [45] Hoepfener-Kramar U, Lederer G, Blümle B, Vobl B, Rittmeyer C: Einsatz und Analyse von Wischtesten beim Rückbau kerntechnischer Anlagen am Beispiel des Forschungszentrums Karlsruhe. 3. Workshop „Radiochemische Analytik bei betrieb und Rückbau kerntechnischer Anlagen, der Deklaration von Abfällen und im Strahlenschutz“, Dresden 26. – 27.04.2004. Kurzreferate
- [46] Hummel L, Sitte B: Konzepte und Methoden zur Freigabe von Gebäudestrukturen kerntechnischer Anlagen. 3. Symposium „Freigabe von radioaktiven Stoffen aus dem Geltungsbereich des Atomgesetzes (§ 29 StrlSchV). Hamburg 10. – 11. März 2003, Tagungsband S. 110 – 148

- [47] Bleier A, Pollmann E: Mitsprache des radiochemischen Labors bei Probenahme- und Analysenkonzepten für Stilllegungsprojekte. 2. Workshop „Radiochemische Analytik bei betrieb und Rückbau kerntechnischer Anlagen, der Deklaration von Abfällen und im Strahlenschutz“, Dresden 5. – 6.11.2001. Kurzreferate
- [48] E DIN ISO 11074-2: Bodenbeschaffenheit – Wörterbuch – Teil 2: Begriffe und Definitionen zur Probenahme. Oktober 1998
- [49] ISO 3534-1: Statistics – Vocabulary and symbols - Part 1: Probability and general statistical terms. October 2006
- [50] Thierfeldt S, Schartmann F, Schiffer K: A Procedure for the Derivation of Nuclide Vectors for Clearance of Material. Jahrestagung Kerntechnik 2004. Proceedings. S. 339 – 342
- [51] Thierfeldt S, Schartmann F, Schiffer K, Bacmeister G, Adler J, Schappert W, Beckmann R: Concepts for Sampling and Clearance and their Transformation into an Automated Procedure for the NPP Stade. Jahrestagung Kerntechnik 2005. Proceedings. S. 397 – 400
- [52] Schartmann F, Wörlen S, Thierfeldt S, Adler J, Schappert W, Beckmann R, Kolander G: Einführung einer automatisierten radiologischen Charakterisierung mit dem Reststoff-Freigabe-Optimierungs-Modul (ReFOM) beim Rückbau des Kernkraftwerks Stade. Jahrestagung Kerntechnik 2006, Proceedings
- [53] Jünger B, Jünger J H: „Sicherer Einschluss“ und „Direkter Rückbau“ – Erfahrungen aus der Stilllegung der Forschungsreaktoren TRIGA HD I und TRIGA HD II des Deutschen Krebsforschungszentrums (DKFZ) Heidelberg. Jahrestagung Kerntechnik 2007, Proceedings
- [54] ISO 18589-2: Measurement of radioactivity in the environment – Soil – Part 2: Guidance for the selection of the sampling strategy, sampling and pre-treatment of samples. 2007-12
- [55] DIN ISO 11464: Bodenbeschaffenheit; Probenvorbehandlung für physikalisch-chemische Untersuchung. Dezember 1996
- [56] DIN ISO 10381-5: Bodenbeschaffenheit – Probenahme – Teil 5: Anleitung für die Vorgehensweise bei der Untersuchung von Bodenkontaminationen auf urbanen und industriellen Standorten. Februar 2007
- [57] VdTÜV: Leitfaden zur Freigabe nach § 29 StrlSchV. Berichte der Facharbeitskreise der TÜV-Leitstelle Kerntechnik beim VdTÜV. Bericht 63. 21.12.2005
- [58] Spirgath T: Entwicklung von Kriterien zur Beurteilung der Unsicherheit bei der Probenahme von Feststoffen. Dissertation FU Berlin. 2006. <http://www.diss.fu-berlin.de/2007/5>

- [59] LABO (Bund-/Länderarbeitsgemeinschaft Bodenschutz): Fachmodul Boden und Altlasten (Bereichsspezifische Anforderungen an die Kompetenz von Untersuchungsstellen im Bereich Boden und Altlasten.) Entwurf, 12.09.2000
- [60] Hanschke C, Stollenwerk A H, Bopp P: Schlüsselnuklidkonzept für die Deklaration radioaktiver Reststoffe bei der WAK und dessen Anwendung für den Schritt 2 des Rückbaus der WAK. Jahrestagung Kerntechnik 1996. Proceedings, S 333 – 336
- [61] Monitoring Programmes for Unrestricted Release related to Decommissioning of Nuclear Facilities. Technical Reports Series No. 334. IAEA, Wien 1992
- [62] E DIN ISO 11074: Bodenbeschaffenheit – Wörterbuch. Juni 2006
- [63] ISO 11932: Activity measurements of solid materials considered for recycling, re-use, or disposal as non-radioactive waste. December 1996
- [64] Reichert A, Dilger H: Freigabe eines Nebengebäudes des Mehrzweckforschungsreaktors (MZFR) im Forschungszentrum Karlsruhe. Jahrestagung Kerntechnik 2007, Proceedings
- [65] Loseblattsammlung FS-78-15-AKU „Empfehlungen zur Überwachung der Umweltradioaktivität“ Blatt 5.3: Übersicht über Methoden zur Radionuklidanalytik beim Rückbau von Anlagen mit Radionukliden. Entwurf vom 20.09.2007
- [66] Birkholz W, Behrendt H, Hartmann B, Kaffka E: Entsorgung der radioaktiven Stoffe und Abfälle beim Rückbau des Kernkraftwerkes Lubmin/Greifswald. 8. Internationales Symposium „Konditionierung radioaktiver Betriebs- und Stilllegungsabfälle“, Dresden 21. – 23.03.2007. Proceedings S. 318 - 332
- [67] Birkholz W: Probleme der Anwendung der vorgesehenen neuen Freigaberegelungen bei einem Stilllegungsprojekt mit großem Massenaufkommen. 5. Symposium zur Entlassung von radioaktiven Stoffen aus dem Geltungsbereich des Atomgesetzes „Freigabe – Herausgabe – Herausbringen“, Wiesbaden 29./30.11.2007
- [68] E DIN ISO 18589-1: Ermittlung der Radioaktivität in der Umwelt – Erdboden – Teil 1: Allgemeiner Leitfaden und Begriffe. Februar 2007
- [69] EUROLAB: Leitfaden zur Ermittlung von Messunsicherheiten bei quantitativen Prüfergebnissen. Technischer Bericht 2/2006. November 2006
- [70] EUROLAB: Measurement uncertainty revisited: Alternative approaches to uncertainty evaluation. Technical Report 1/2007. March 2007
- [71] Gelfort E: Statusbericht zur Stilllegung kerntechnischer Anlagen. in: Blum W: Deutsche Physikalische Gesellschaft – Arbeitskreis Energie. Energie für die Zukunft. Klimafaktor Mensch. 14 Vorträge der Hamburger Tagung (2001). Deutsche Physikalische Gesellschaft 2001. S. 149 - 164

# | Verantwortung für Mensch und Umwelt |

**Kontakt:**

Bundesamt für Strahlenschutz

Postfach 10 01 49

38201 Salzgitter

Telefon: + 49 30 18333 - 0

Telefax: + 49 30 18333 - 1885

Internet: [www.bfs.de](http://www.bfs.de)

E-Mail: [ePost@bfs.de](mailto:ePost@bfs.de)

Gedruckt auf Recyclingpapier aus 100 % Altpapier.



**Bundesamt für Strahlenschutz**