

ZERSTÖRUNSFREIE STOFFLICHE BESCHREIBUNG UND PLAUSIBILITÄTSPRÜFUNG RADIOAKTIVER ABFÄLLE

Laurent Coquard, Julian Hummel, Günter Nordhardt, Max Georgi

Framatome GmbH

Paul Gossen Straße 100, 91052, Erlangen, Germany

Laurent.coquard@framatome.com

Andreas Havenith, Kai Krycki, Bo Fu, Christopher Helmes, Marcel Heidner, Frederic Simons

Aachen Institute for Nuclear Training GmbH (AiNT)

Cockerillstraße 100, 52222, Stolberg, Germany

havenith@nuclear-training.de

Theo Köble, Olaf Schumann

Fraunhofer-Institut für Naturwissenschaftlich-Technische Trendanalysen INT

Appelsgarten 2, 53879 Euskirchen, Germany

theo.koeble@int.fraunhofer.de

KURZFASSUNG

Im Rahmen des Endlagerungsverfahrens Konrad wird eine stoffliche Beschreibung der radioaktiven Abfälle gefordert. Diese Anforderung ist insbesondere für Altabfälle herausfordernd. Es existiert aktuell auf dem Markt keine zerstörungsfreie Methode, um die dokumentierte stoffliche Beschreibung der (Alt-)Abfälle zu verifizieren. Hier präsentieren wir eine innovative zerstörungsfreie Technologie namens QUANTOM® (QUantitative ANALyse von TOxischen und nicht toxischen Materialien) basierend auf der prompten und verzögerten Gamma-Neutronen-Aktivierungs-Analyse (P&DGNAA), die in der Lage ist, die Menge an gefährlichen und ungefährlichen Stoffen in Abfallgebinden wie 200-l-Fässern zu identifizieren, zu verifizieren und zu quantifizieren. Diese Technologie ist auch für größere Volumina anwendbar. Der erste Prototyp von QUANTOM® ist seit 2020 in Betrieb und wurde im Jahr 2021 validiert: Die Validierungsergebnisse werden in diesem Artikel präsentiert.

EINLEITUNG: HERAUSFORDERUNGEN

Die Qualifizierung radioaktiver Abfallkontingente ist bis zur Inbetriebnahme des Endlagers Konrad im Jahr 2027 im Fokus der Abführungs-/Ablieferungspflichtigen. Für beide Entsorgungswege, die direkte Anlieferung an das Endlager Konrad oder die Übergabe an die BGZ, ist es jedoch erforderlich, dass die Abfallgebinde die Endlagerungsbedingungen Konrad [1] erfüllen und die Produktkontrolle durch die BGE (Bundesgesellschaft für Endlagerung) abgeschlossen ist. Bis dato sind nur ein Bruchteil der bestehenden und konditionierten Abfallkontingente endlagergerecht verpackt und haben die Produktkontrolle erfolgreich abgeschlossen. Insbesondere die radiologische und stoffliche Beschreibung von Altabfällen ist teilweise unzureichend um diese Abfälle für die Endlagerung zu qualifizieren.

INNOVATIVE LÖSUNG: QUANTOM®

Aufgrund ihres Gefahrenpotentials müssen radioaktive Abfälle im Rahmen des Endlagerungsverfahrens Konrad sachgerecht konditioniert und entsorgt werden. Die vom Abfall ausgehende Gefährdung begründet sich aus der möglichen biologischen Schädigung durch die ionisierende Strahlung, sowie aus den im Abfall enthaltenen wassergefährdenden nicht radioaktiven Stoffen. Hieraus ergibt sich die Anforderung, dass radioaktiver Abfall vom Verursacher radiologisch **und stofflich** charakterisiert werden muss. Gerade bei Altabfall werden häufig unzureichende und unstimmgie Abfallbeschreibungen festgestellt, welche einer endlagergerechten Qualifizierung und Einlagerung im Wege stehen. Bislang erfolgt eine Überprüfung zur vollständigen endlagergerechten Charakterisierung radioaktiver Altabfälle

meist durch eine aufwendige Öffnung der Fässer. Das Öffnen von Fässern für eine visuelle Kontrolle oder eine Probenentnahme führt zu einer Deklaration der zu untersuchenden Altabfälle als Neuabfall, an welchen, im Gegensatz zu Altabfällen, deutlich restriktivere Anforderungen geknüpft sind. Des Weiteren machen zerstörende Prüfverfahren eine Umverpackung der Abfälle notwendig, welche in Folge eine Volumenvergrößerung der Altabfälle bedeuten kann.

Bei der Messanlage QUANTOM® kommt als innovatives Analyseverfahren ein zerstörungsfreies Messverfahren zur Anwendung: die prompte und verzögerte Gamma-Neutronen-Aktivierungs-Analyse (P&DGNA). Die P&DGNA beruht auf dem gamma-spektrometrischen Nachweis der quasi-simultan zur neutroneninduzierten Kernreaktion emittierten Gamma-Strahlung [2]. Die zwei Kernprozesse sind in Abbildung 1 schematisch dargestellt (Prompt-Gamma-Neutronen-Aktivierungs-Analyse (PGNAA) in orange und verzögerte Gamma-Neutronen-Aktivierungs-Analyse (DGNA) in blau).

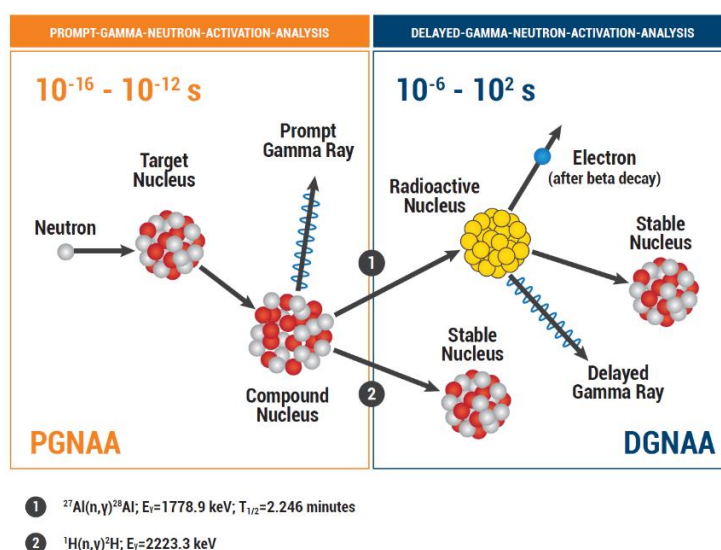


Abbildung 1: Prinzip der P&DGNA. Die Zeitfenster (orange und blau) geben die durchschnittliche Dauer für die jeweiligen Kernprozesse an. Nach Aktivierung durch ein Neutron erfolgt die Emission prompter Gamma-Strahlung, der resultierende Atomkern ist entweder ein Radionuklid, welches verzögerte Gamma-Strahlung emittiert (1), oder ein stabiler Kern (2).

Die Messanlage QUANTOM® verwendet als Neutronenquelle einen D-D-Neutronengenerator, welcher isotrop Neutronen mit einer Energie von 2,5 MeV und einer maximalen Quellstärke von 4×10^9 Neutronen pro Sekunde emittiert. Die erzeugten Neutronen bestrahlen ein 200-l-Abfallfass, welches sich im Inneren einer Moderationskammer aus hochreinem Graphit befindet. Das Graphit moderiert und reflektiert die Neutronen. Der Inhalt des Fasses wird aktiviert und die induzierte Gamma-Strahlung wird mittels zweier elektrisch gekühlter N-Typ-HPGe-Detektoren mit einer relativen Photopeak Effizienz von jeweils 60% gemessen. Die zwei HPGe-Detektoren befinden sich in der Moderationskammer umgeben von Bleikollimatoren, um das Untergrundsignal deutlich zu reduzieren.

Im Rahmen des Analyseverfahrens werden kollimierte sektorale Messungen durchgeführt. Dabei wird das zu messende Fass in Partitionen zerlegt, wie es beispielhaft in Abbildung 2 dargestellt ist.

Für jeden Sektor wird ein separates Gamma-Spektrum aufgenommen. Hierzu wird das Fass so rotiert und vertikal verschoben, dass sich je Messung nur primär die jeweiligen zwei Zielsektoren im kollimierten Sichtbereich der HPGe-Detektoren befinden. Das zu messende Abfallfass wird virtuell in vier Höhensegmente und jedes dieser Segmente in 12 Winkelsektoren diskretisiert. Jeder Sektor wird bei der Auswertung weiter in 7 Radialpartitionen unterteilt. Durch diese modellierte Unterteilung: 4 Axialsegmente x 12 Sektoren x 7 Radialunterteilungen wird bei QUANTOM ein Auswerteverfahren angewendet, bei welchem das Innenvolumen des Abfallfasses in 336 Partitionen unterteilt wird. Eine gemeinsame Auswertung aller Spektren durch ein neuartiges Verfahren ermöglicht es die

Elementzusammensetzung individuell für jede einzelne Partition zu quantifizieren und reduziert somit die Unsicherheit, welche aus der inhomogenen Zusammensetzung der Abfallmatrix resultiert.

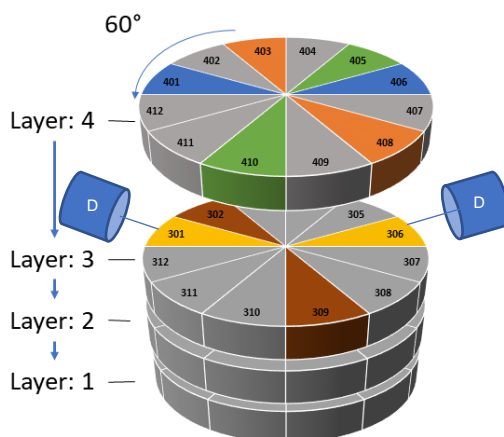


Abbildung 2: Schematische Darstellung der sektoralen Messung. Das Fass wird in horizontale Segmente unterteilt, welche in 12 weitere Winkelsegmente partitioniert werden. Diese werden für die Auswertung radial weiter unterteilt. Zwei HPGe Detektoren (D) ermöglichen die zeitgleiche Messung zweier Segmente. Durch geeignete Drehungen (60°) werden alle Partitionen einmal gemessen. Sektoren mit gleicher Farbe werden zeitlich betrachtet parallel gemessen.

Die Verwendung von zwei Detektoren reduziert die Messzeit und steigert die Sensitivität der Messanlage. Die Moderationskammer ist von einer Neutronen- und Gamma-Abschirmung umhüllt. Diese Abschirmungen bestehen aus boriierten Polyethylen-Platten und Blei-Stahl-Verbundplatten. Eine Gesamtübersicht des Aufbaus der QUANTOM® Messanlage ist in Abbildung 3 dargelegt.

Die erforderliche Genehmigung gemäß § 12 Abs. 1 Nr. 1 Strahlenschutzgesetz (StrlSchG) für den Betrieb der Messanlage liegt vor. Zusätzlich wurde eine Genehmigung gemäß §12 Abs. 1 Nr. 3 StrlSchG zum Umgang mit offenen radioaktiven Stoffen bis zum 3×10^9 -fachen der Freigrenze und bis zum 10^6 -fachen der Freigrenze (umschlossen) erlangt. Die Inbetriebnahme der Messanlage QUANTOM® im Jahr 2020 wurde durch einen hinzugezogenen Sachverständigen begleitet und die Anlage hierbei mängelfrei abgenommen. Zerstörungsfreie Messungen von radioaktiven Abfallfässern mittels QUANTOM® am derzeitigen Aufstellort sind möglich und wurden bereits durchgeführt.

VALIDIERUNGSERGEBNISSE

Zur Erprobung und Validierung der Messtechnik wurden zehn mit verschiedenen Referenzmaterialien (z. B. Zirkonsand, Melamin, Stuckgips, Asilikos etc.) gefüllte Referenzfässer gemessen und ausgewertet. Die Referenzmaterialien wurden als Funktion ihrer Neutronenaffinität und Gammaabsorptionseigenschaften ausgewählt. Die Vielfältigkeit der ausgewählten Fasstypen (diverse Rollsicken- und Rollreifenfässer sowie ein Spannringsfass) und die verschiedenen Fassdeckeltypen (Doppelhutdeckel, D-Deckel, H-Deckel, Pilzdeckel, Winkelringdeckel etc.) validieren die Einsetzbarkeit der Messanlage für die Vielfältigkeit der in der Vergangenheit real eingesetzten Abfallfässer. Für die Handhabung aller 200-l-Fasstypen mit verschiedenen Fassdeckeln wurde ein universeller Adapter entwickelt. Dieser Winkelringadapter wurde erfolgreich getestet und eingesetzt, so dass alle Fasstypen mit verschiedenen Deckeln, auch ohne Deckeltausch, sicher gehandhabt werden können.

Proben der in der Validierungskampagne eingesetzten Referenzmaterialien wurden am Forschungsreaktor in Budapest anhand der P&DGNAA gemessen und mit standardisierten Prozessen analysiert. Diese Ergebnisse sind mit den Ergebnissen aus der QUANTOM® Messanlage für 5 Referenzmaterialien verglichen worden und in der Abbildung 4 dargelegt.



Abbildung 3: Gesamtübersicht der Messanlage QUANTOM®.

Für jedes Element wurden ein oder mehrere Peaks im Spektrum ausgewertet, um auf Basis der algorithmischen Massenrekonstruktion die orts aufgelösten Massen zu berechnen. Die Ergebnisse der Massenrekonstruktion werden für jede Gammalinie einzeln dargestellt (siehe Abbildung 4). Die Auswertung der Fassmessungen beinhaltet einen datenbasierten Ansatz zur Kalibrierung der Spaltkammer zur Bestimmung der Quellstärke des Neutronengenerators. Messunsicherheiten wurden mittels Monte-Carlo-Sampling bezüglich aller Eingangsgrößen des Rekonstruktionsverfahrens berechnet. Zu den betrachteten Unsicherheitsquellen gehören unter anderem Kalibrierungsunsicherheiten, Modellunsicherheiten in den Simulationen und Unsicherheiten bezüglich der Positionierung des Fasses innerhalb der Messkammer. Außerdem müssen einige Gammalinien vom aktiven Untergrundsignal der Messung (z. B. H, Al) korrigiert werden. Daraus resultiert eine deutlich erhöhte Messunsicherheit für die entsprechende Elementmasse. Alle Messergebnisse zeigen innerhalb der angegebenen Messunsicherheiten eine gute Übereinstimmung mit den bekannten Referenzmassen aus Budapest. Zukünftig können die Messunsicherheiten durch weitere Studien und zusätzliche Messkampagnen reduziert werden.

Die integrale Messung eines Fasses dauert ca. 2 h bis 4 h. Die erreichte Sensitivität (Nachweisgrenze) ist elementabhängig. Für Metalle wie Al, Cr, Fe, Cu, Ni, Mn, Mo etc. kann für eine Messzeit von 4 h eine Nachweisgrenze von ca. 100 ppm erreicht werden. Für andere toxische Elemente wie B oder Hg kann für eine Messzeit von 4 h eine noch niedrigere Nachweisgrenze von ca. 10 ppm erreicht werden. Diese niedrigen Nachweisgrenzen können allgemein weiterhin reduziert werden, wenn beispielsweise die Messzeit erhöht wird.

Nach der Validierungsphase wird die Messanlage QUANTOM® in einen 25-Fuß-Container integriert, welcher zum Konditionierer oder Abführungs-/Ablieferungspflichtigen gebracht wird (siehe Abbildung 5). Der Betrieb der Anlage ist in diesem Fall gemäß § 17 StrlSchG nur anzeigebedürftig, da die Ortsdosisleistung im Abstand von 0,1 Meter von der Oberfläche des Containers kleiner als 10 $\mu\text{Sv/h}$ ist. Dies reduziert deutlich den Aufwand zur Inbetriebnahme der Messanlage an einem beliebigen Standort unter Einhaltung des zulässigen atomrechtlichen Gestattungsrahmens.

Die gesamte Anlage ist vollständig automatisiert: zu messende Fässer werden auf der Fassförderung abgestellt und automatisch bis zur Entnahmeposition transportiert. Es können bis zu zehn Fässer auf die Fassförderung geladen werden. Vor der Messung eines jeden Abfallfasses wird ein Aufkleber mit einem QR-Code zur eindeutigen Identifizierung und zur Festlegung der 0°-Position am Fass angebracht. Zuvor sind die Fassnummer, der Fasstyp und ggf. weitere Fassdaten manuell in das System (am PC für die Steuerung der Messanlage) einzugeben. Der hieraus generierte QR-Code wird

ausgedruckt und auf das Fass geklebt. An der Übergabeposition zum Kran wird das Fass vor dem Einsetzen in die Messanlage auf einem Drehteller zentriert und gewogen. Das Design der Messanlage sowie das Auswerteverfahren sind patentiert [3].

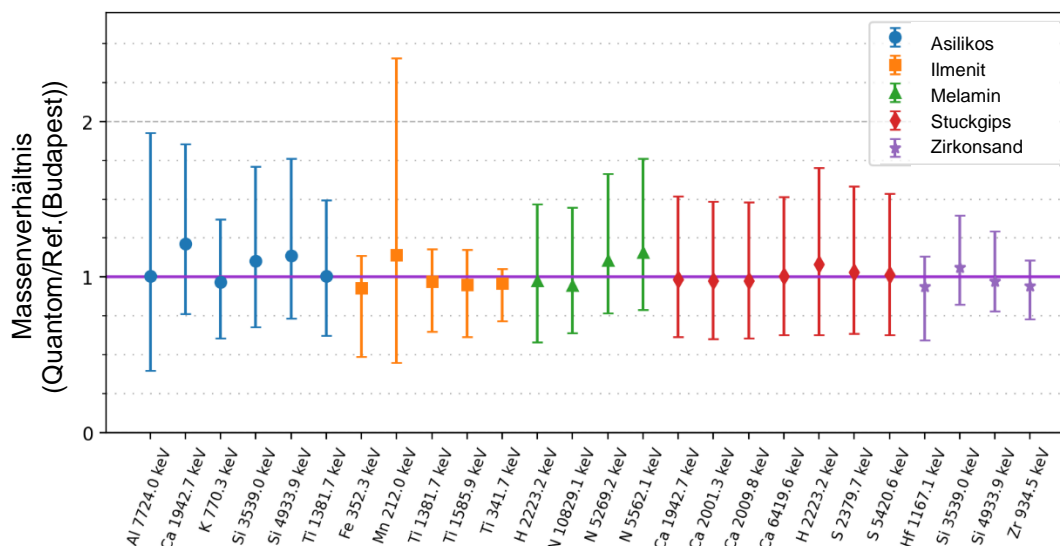


Abbildung 4: Rekonstruierte Elementmassen für fünf homogene Referenzmaterialien. Die Ergebnisse sind relativ zu den bekannten Massen (Analyse am Budapester Forschungsreaktor) dargestellt. Die Fehlerbalken stellen 95 % Konfidenzintervalle dar. Messunsicherheiten wurden mittels Monte-Carlo-Sampling bezüglich aller Eingangsgrößen des Rekonstruktionsverfahrens berechnet.

ZUSAMMENFASSUNG

Die qualitative sowie quantitative Bestimmung (und per Ausschlussprinzip das Nichtvorhandensein) von Elementanteilen in den Abfallfässern zur stofflichen Charakterisierung konditionierter Abfälle ist mit der P&DGNAA möglich. Durch die automatisierte Fassmessanlage QUANTOM® wird es erstmals ermöglicht, die stoffliche Beschreibung mit bestehenden Stoffvektoren zerstörungsfrei zu verifizieren, oder eine neue stoffliche Beschreibung basierend auf der Anpassung der Massenanteile von Stoffvektoren herzuleiten. Die QUANTOM® Messanlage wurde vollständig aufgebaut, erfolgreich in Betrieb genommen und validiert. QUANTOM® wird mobil und direkt dort, wo die Altabfälle gelagert oder konditioniert werden, eingesetzt. Die wesentlichen Vorteile dieses Messverfahrens sind hier zusammengefasst:

- ✓ Zerstörungsfreie Multi-Elementanalyse mit hoher Sensitivität (ppm-Bereich) ohne Vorbehandlung und Vorbereitung der Abfälle
- ✓ Schnelles Messverfahren (2-4 h je Abfallfass)
- ✓ Repräsentative und vollständige Analyse der gesamten Abfallmatrix
- ✓ Keine Umverpackung oder Erhöhung des Abfallvolumens
- ✓ Minimierung der Radioaktivtransporte sowie Minimierung der Strahlungsexposition des Betriebspersonals
- ✓ Synergetische Verbesserung der radiologischen Charakterisierung der Abfallfässer möglich

Dieser einmalige Service der zerstörungsfreien stofflichen Charakterisierung radioaktiver Abfälle mittels QUANTOM® erweitert das bereits umfangreiche Portfolio der Framatome GmbH im Bereich Abfallmanagement und Abfallbehandlung, welches bereits Leistungen wie z.B. den Transport, die radiochemische Analyse und die Dokumentation von Abfallprodukten beinhaltet.

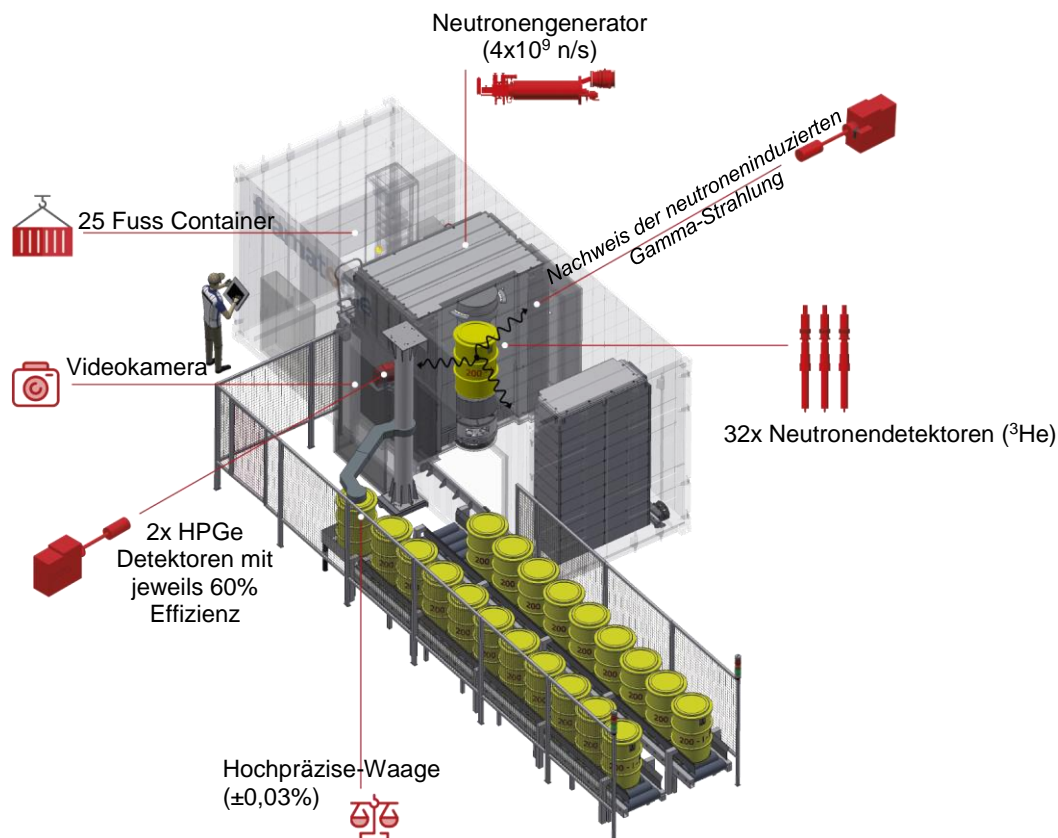


Abbildung 5: Übersicht der mobilen und automatisierten Messanlage QUANTOM®. Die Neutronen-induzierte Gamma-Strahlung ist symbolisch als schwarze Welle aus dem Fass im Zentrum der Messanlage dargestellt

DANKSAGUNG

Das Verbundprojekt QUANTOM wird vom Bundesministerium für Bildung und Forschung unter den Förderkennzeichen 15S9406A / B / C gefördert. Die Verantwortung für den Inhalt dieser Publikation liegt bei den Projektpartnern.

LITERATURHINWEISE

- [1] Dr. Peter Brennecke, Anforderungen an endzulagernde radioaktive Abfälle (Endlagerungsbedingungen Stand: Dezember 2014) – Endlager Konrad -, 18. Dezember 2014.
- [2] Database of prompt gamma rays from slow neutron capture for elemental analysis, International Atomic Energy Agency, Vienna, ISBN 92-0-101306-X (2007).
- [3] Europäische Patentschrift [EP 3 410 104 B1](#), Anmeldenummer 17401060.3, „Verfahren und Vorrichtung zur Multielementanalyse basierend auf Neutronenaktivierung sowie Verwendung“, 05.12.2018.