

# Durchstrahlungsprüfung an radioaktiven Abfallgebinden

Marek BLASZCZYNSKI\*, Thomas BÜCHERL\*, Christoph LIERSE V. G.\*  
\* TU München, ZTWB Radiochemie, Walther-Meißner-Str. 3, 85748 Garching,  
E-Mail: [marek.blaszczynski@tum.de](mailto:marek.blaszczynski@tum.de)

**Kurzfassung.** Die Radiochemie München (RCM) betreibt seit vielen Jahren ein integriertes Tomographie-System (ITS) mit einer  $^{60}\text{Co}$ -Quelle zur Durchstrahlungsprüfung radioaktiver Abfallgebinde und anderer Objekte mit einer Masse bis zu 15 Mg. Am Beispiel von Radiographie- und Tomographie-Messungen unterschiedlicher Messobjekte werden kürzlich durchgeführte Modifikationen am Messsystem aufgezeigt sowie mögliche, auch zukünftige Einsatzbereiche demonstriert. Die Einbindung des ITS in die an der RCM routinemäßig durchgeführte Produktkontrolle radioaktiver Abfallgebinde wird aufgezeigt.

## Einführung

Die Radiochemie München (RCM) ist eine Zentrale Technisch-Wissenschaftliche Betriebs-einheit der TU München am Standort Garching. Sie befasst sich schon seit vielen Jahren mit der zerstörenden und zerstörungsfreien Charakterisierung von radioaktiven Materialien und Objekten sowie Behältern, in denen solche enthalten sind. Hierfür unterhält die RCM u. a. ein integriertes Tomographie-System (ITS) zur Durchstrahlungsprüfung dieser radioaktiven Abfallgebinden sowie anderen Objekten mit einer Masse von bis zu 15 Mg. Die Anlage befindet sich seit 1991 in Betrieb und stellt einen wesentlichen Pfeiler der von RCM verfolgten, erfolgreichen Verfahren bei der Produktkontrolle radioaktiver Abfallgebinde dar. Bedingt durch den jahrzehntelangen Einsatz zeigten wesentliche Komponenten des eingesetzten Detektor-Systems starke Verschleißerscheinungen, die einen effektiven Einsatz des Gesamtsystems nur mehr bedingt ermöglichte.

Eine in jüngster Vergangenheit durchgeführte Generalüberholung verschiedener Komponenten (Mechanik, Detektor-System etc.) konnte die frühere Leistungsfähigkeit nicht nur wiederherstellen sondern sogar eine deutliche Steigerung der Bildqualität sowie der Messeffizienz bei Durchstrahlungsmessungen erzielen. Durch den zusätzlichen Einsatz neuer Rekonstruktionsprogramme wurde die Flexibilität im Bereich der Tomographie erweitert.

Am Beispiel verschiedener Radiogramme und Tomogramme unterschiedlicher Messobjekte werden diese Modifikationen beschrieben und mögliche Einsatzbereiche der Anlage demonstriert. Die Einbindung des ITS in die an der RCM routinemäßig in gutachterlichem Auftrag durchgeführte Produktkontrolle radioaktiver Abfallgebinde wird aufgezeigt.

## 1. Integriertes Tomographie System

Zerstörungsfreie Charakterisierungen radioaktiver Abfälle aus kerntechnischen Anlagen, Forschungsinstituten und nuklearmedizinischen Einrichtungen erfordern geeignete Methoden wie bildgebende radiometrische Verfahren. Je nach benötigter Information kommen unterschiedliche Messverfahren zum Einsatz [1,2,3]. Für die Bestimmung des in den Behältern enthaltenen radioaktiven Inventars (Aktivität) ist die Messung von Größen wie der Dichte, der Dichteverteilung, der Füllhöhe etc. erforderlich, um die Masse der Nuklide und die Abschirmeffekte der radioaktiven Strahlung korrekt berücksichtigen zu können.

### 1.1 Messsystem

Für Radiogramme und Tomogramme an großvolumigen Objekten wie radioaktiven Abfallfässern mit 200 L Volumen (Masse typischerweise 50 bis 1000 kg) oder Gussbehältern (Masse bis zu 11 Mg) musste ein geeignetes Messsystem konzipiert werden. Die maximale Höhe eines Untersuchungsobjektes beträgt 2 m bei einem Durchmesser von bis zu 1,4 m. Das System besteht aus zwei Hubachsen, an denen sich die Strahlenquelle und das Detektor-System einander gegenüber stehen. Der Positioniertisch, auf dem sich das zu messende Objekt befindet, ist drehbar und senkrecht zum Strahlengang in horizontaler Ebene fahrbar.

Das gesamte Positioniersystem wurde in jüngster Zeit aufgrund starker Abnutzungserscheinungen von Grund auf überholt und mechanische Verschleißteile erneuert.

### 1.2 Strahlenquelle

Für die zu untersuchenden Objekte hoher Dichte und großer Durchstrahlungswege kam nur ein System basierend auf einer intensiven, hochenergetischen Quelle in Frage. Aufgrund der geringeren technischen Anforderungen im Vergleich zu einem Linearbeschleuniger wird eine kugelförmige  $^{60}\text{Co}$ -Quelle mit ca. 7 mm Durchmesser (aktuell ca. 3,7 TBq; bis zu 22 TBq möglich) in einem GammaMat TK1000 Transportbehälter mit horizontalem Schlitzkollimator eingesetzt.

### 1.3 Detektor-System

Die emittierte Strahlung wird mittels 30 Szintillatoren mit angekoppelten Photomultipliern, die in  $1^\circ$ -Schritten auf einem Kreissegment mit einem Öffnungswinkel von  $30^\circ$  angeordnet sind, nachgewiesen. Dieses Detektor-System wird eingesetzt, da es einen sehr effizienten Nachweis der transmittierten, hochenergetischen und intensiven Strahlung für einen sehr hohen dynamischen Bereich (max. Zählrate 100 MHz) ermöglicht, was bei der Untersuchung von Abfallgebinden mit hoher Dichte ( $4,5 \text{ g/cm}^3$  und höher) und großen Objektdurchmessern nötig ist. Die verwendeten Plastikszintillatoren haben im Vergleich zu Halbleiterdetektoren eine schlechtere Energieauflösung, eignen sich aber sehr gut für Systeme zur reinen Intensitätsbestimmung.

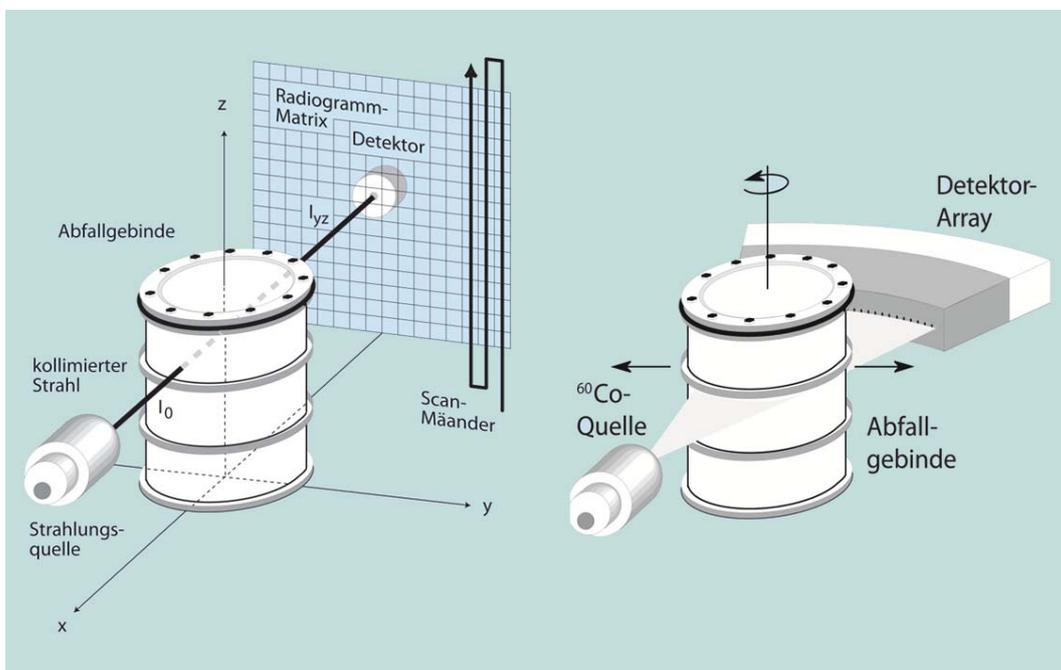
Der Photomultiplier ist zusammen mit dem Szintillatorstab aus Polymeren das erste Glied in der Detektionskette und sitzt direkt hinter einem Wolfram-Kollimator mit einem 2 mm breitem Eintrittsspalt und einer zwischen 1 mm und 10 mm einstellbaren Schlitzhöhe. Wie bei jedem Polymer verändert sich auch beim Szintillatorstab die innere molekulare Struktur durch die ionisierende Strahlung mit der Zeit [4]. Dabei verringert sich mit erhöhter Bestrahlungszeit die Ausbeute der emittierten Photonen, nicht aber ihr Spektrum, was zu einem geringeren Kontrast im gemessenen Bild führt.

Durch Austausch aller Szintillatoren und Photomultiplier konnte eine höhere Zählrate bei gleicher Quellintensität erzielt werden. Der Abgleich der 30 Detektoreinheiten erfolgt durch Einstellung der Hochspannung und eines unteren Grenzwerts für

die Zählereignisse. Ereignisse niedrigerer Photonenenergien, z. B. Streustrahlung, werden verworfen.

#### 1.4 Messmodus digitale Radiographie

Die Anlage kann im Radiographie- und Tomographie-Modus betrieben werden (Abbildung 1). Im digitalen Radiographie-Modus (DR) gibt es wiederum zwei unterschiedliche Messverfahren: Zum Einen die Punkt-für-Punkt Abstrahlung des Objektes unter Einsatz eines einzigen Detektors, zum Anderen die Methode unter Verwendung aller 30 Detektoren in Fächerstrahlgeometrie, wobei hier nur ein Winkel von 30° Öffnungsbreite auf ein Mal abgedeckt wird. Durch Messungen bei zwei bzw. drei verschiedenen Winkelpositionen kann auch eine Raumabdeckung von 60° bzw. 90° erzielt werden. Bei dieser Messmethode besteht jedoch, bedingt durch die Fächerstrahlgeometrie, eine leichte Verzerrung des Bildes in horizontaler Richtung. Damit eignet sich diese Methode hauptsächlich für rotationssymmetrische Objekte wie Zylinder bzw. zur Gewinnung qualitativer Aussagen wie der Füllhöhe eines Fasses.



**Abbildung :** Links: Messprinzip eines Eindetektor-Schattenbildes; rechts: Messung von Schattenbildern in Fächerstrahlgeometrie (ohne Rotation) bzw. Aufnahme von Tomogrammen (mit Rotation)

#### 1.5 Messmodus Tomographie

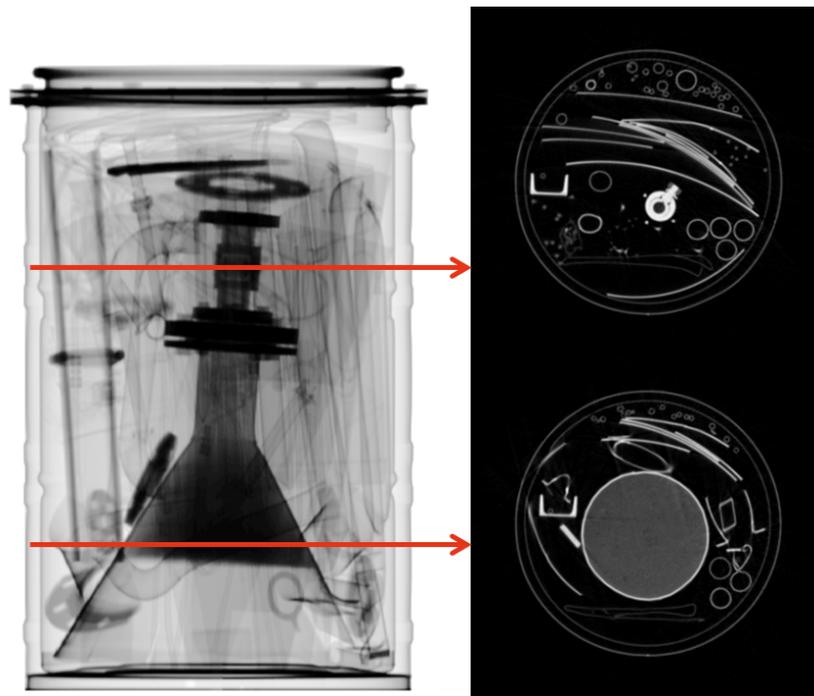
Der Tomograph ist als ein Rotations-Translations-System gebaut. Messtechnisch ist er eine Kombination aus einem Tomographie-System der ersten und der dritten Generation, da Tomogramme mit 30 Detektoren statt nur mit einem aufgenommen werden, wobei das Objekt für jede Projektion den Strahlengang durchfährt. Dies ist mit einem Parallelscan vergleichbar, jedoch werden 30 Winkelpositionen auf einmal aufgenommen um die Messdauer zu verkürzen. Die gelieferten Sinogramme werden entsprechend wie beim Parallelscan ausgewertet. Für die bestmögliche Bildqualität können bis zu 1440 Winkelpositionen bzw. Sinogramme aufgenommen werden. Dies entspricht einer Winkelschrittweite von bis zu 0,125° und einer Auflösung unter 2 mm, was bei Objektdurchmessern mit bis zu 1,4 m Durchmesser für die durchgeführten Untersuchungen gute Werte sind.

## 2. Messungen und Auswertung

Die Messzeiten für die verschiedenen Messmodi sowie die jeweils gewinnbaren Informationen sind in Tabelle 1 zusammengefasst.

**Tabelle 1:** Übersicht der Messmethoden mit dem ITS

| Methoden             | Auflösung                                          | Messzeit (für typ. 200-L- Fass)   | Nutzwert an Information                                                                                                |
|----------------------|----------------------------------------------------|-----------------------------------|------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|
| DR (Einzel-Detektor) | typ. 1,84 mm; feinere Auflösungen frei einstellbar | 8 h bei 0,2 s Messzeit / Punkt    | Detaillierte Radiogramme frei wählbarer Objektabschnitte und Auflösung, ohne geometrische Verzerrungen                 |
| DR (Fächerstrahl)    | typ. 1,84 mm                                       | 45 min bei 0,4 s Messzeit / Punkt | Schnelle Informationsgewinnung über Struktur, Inhalt und Füllhöhe eines Fasses                                         |
| Tomographie          | typ. 2 mm                                          | 8 bis 30 min pro Schnittbild      | Detaillierte Information einer Höhenposition; gute Durchdringung von Abschirmungen aufgrund höherer Messzeit pro Punkt |



**Abbildung :** Radiogramm eines Abfallfasses mit diversen Metallschrott (Rohre, Trichter mit Beton gefüllt) in Fächerstrahlgeometrie aufgenommen, Korrekturen angewendet. Tomogramme desselben Fasses in 200 mm und 600 mm Höhe geben Aufschluss über den Inhalt und dessen Verteilung.

### 2.1 Informationsgewinnung durch Radiographie und Tomographie

Für die Produktkontrolle und die Aktivitätsbestimmung ist es erforderlich, neben der Masse und der Dichte auch den Inhalt und die Dichteverteilung in einem Objekt, wie z. B. eines 200-L-Fasses, möglichst genau zu kennen. Bei homogen gefüllten Fässern oder vergossenen Betonfässern ist ein Radiogramm oftmals ausreichend, um die erforderlichen Informationen zu erhalten. Bei Inhomogenitäten im Objekt werden zusätzlich Tomogramme erstellt, wie in Abbildung 2 gezeigt. Mit der zusätzlichen Information des Schnittbildes und

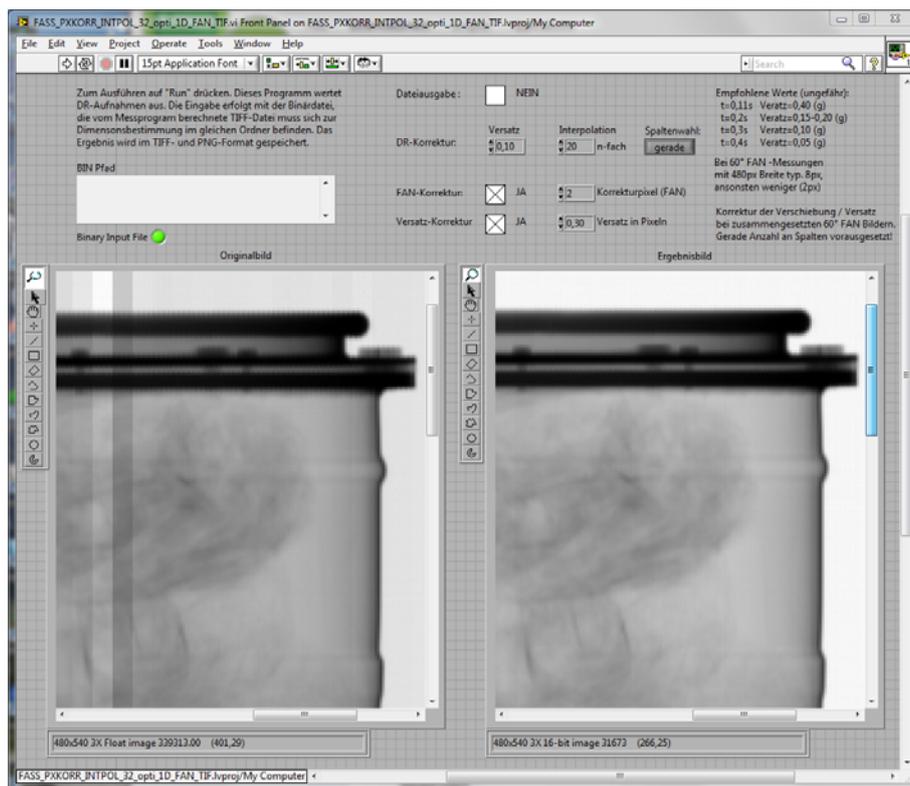
der Kenntnis der enthaltenen Radionuklide in der entsprechenden Höhe im Fass (siehe Kapitel 3) lässt sich die zu erwartende Abschirmwirkung besser bestimmen.

Mit Hilfe geeigneter Prüfkörper (z. B. Eisen-, Kupfer-, Aluminium- und Kunststoff-Zylinder) kann eine Zuordnung der Grauwerte eines Bildes zu den entsprechenden Dichtewerten manuell erfolgen. In der Praxis wird dies nicht in allen Fällen durchgeführt. Denkbar ist auch eine automatische Dichtewertzuordnung, um die Auswertung zu erleichtern. Diese befindet sich derzeit noch in der Entwicklung.

## 2.2 Verarbeitung der Messdaten

Bei Radiographien in Fächerstrahlgeometrie ist ein Abgleich der Detektoren untereinander von zentraler Bedeutung, um eine gute Bildqualität zu erzielen. Gleiches gilt auch für die Tomographie. Der Abgleich erfolgt durch die Einstellung der Hochspannung und des Schwellwerts für Zählereignisse niedriger Photonenenergie am Detektor-System selbst. Ein idealer Abgleich, bei dem alle Detektoren dieselbe Zählrate bei gleicher Bestrahlung zeigen, wird in der Praxis jedoch nicht erreicht.

Durch eine nachträgliche Bildbearbeitung kann eine Verbesserung erzielt werden. Hierfür wird aus dem Vergleich der gemessenen Zählraten jedes der 30 Detektoren in Bereichen ohne strahlschwächendes Objekt ein Normierungsvektor gebildet und das Bild mit diesem korrigiert. Dafür wurde ein LabView-Programm entwickelt, dessen Benutzeroberfläche der Beta-Version ist in Abbildung 3 zu sehen.



**Abbildung :** Beta-Version des Korrekturprogramms für die DR. Das Radiogramm im linken Fenster enthält vertikale Streifen aufgrund der unterschiedlichen Empfindlichkeit der verschiedenen Detektoren. Im rechten Fenster ist das korrigierte Bild ohne Streifen zu sehen.

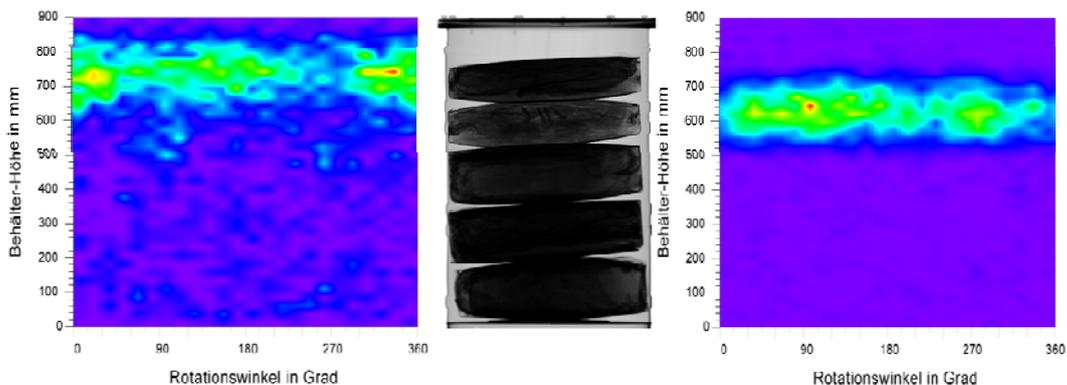
Bei Tomographien tritt das gleiche Problem mit der unterschiedlichen Effizienz der Detektoren auf, was sich in den Sinogrammen und im rekonstruierten Bild bemerkbar macht. Auch zur Korrektur der Tomogramme wurde ein Programm mit LabView realisiert,

das die Normierung der Daten vornimmt. Die weitere Bilderverarbeitung wird vom vorhandenen Rekonstruktionsprogramm durchgeführt. Die so erhaltenen, rekonstruierten und bearbeiteten Bilder zeigen Verbesserungen in der Strukturauflösung.

Bei Objekten mit großen Dichten ( $> 3 \text{ g/cm}^3$ ) und großen Dichteunterschieden im und um das Messobjekt herum kommt es zu ausgeprägten Artefakten in den Schnittbildern. Diese können mit geeigneten Messparametern (Messung von mehr Winkelpositionen) und angepassten Rekonstruktionsalgorithmen reduziert werden. Erste Versuche wurden unternommen, eine Software mit alternativen Rekonstruktionsalgorithmen wie der Iterationsmethode der kleinsten Quadrate oder algebraische Rekonstruktionstechniken zusätzlich zu der bereits verwendeten gefilterten Rückprojektion einzusetzen. Auch der Einsatz geeigneter Filter und die Aufbereitung der Datensätze werden geprüft [5,6,7]. Da die alte Mess- und Auswertesoftware den Anforderungen nicht mehr gerecht wird, ist geplant in einer neu zu programmierenden Messsoftware diese Aspekte zu berücksichtigen.

### 3. Einbeziehung des ITS in die Produktkontrolle

Eine weitere wichtige Untersuchungsmethode bei der Produktkontrolle radioaktiver Abfallgebinde ist das segmentierte Gamma-Scanning (SGS) [1]. Sie wird an einer eigenen Anlage durchgeführt und dient der Identifikation und Aktivitätsbestimmung der radioaktiven Nuklide. Sie kann beispielsweise zum Bestimmen der durch Abfallfässer in Zwischen- und Endlager eingebrachte Aktivität verwendet werden. Beim SGS werden an der gesamten Mantelwand eines 200-L-Fasses Gamma-Spektren aufgenommen. Die Zählratenverteilung einer bestimmten Energie im Spektrum (Gamma-Peak) und somit eines bestimmten Nuklids wird als Karte der Manteloberfläche in Falschfarben-Darstellung ausgewertet, wie in Abbildung 4 präsentiert.



**Abbildung 4:** Links sieht man die Zählratenverteilung von Ra-226, rechts die von Pu-238, in der Mitte das zugehörige Radiogramm des Messobjekts. Stellt man die Zählratenverteilung für ein Nuklid und das Radiogramm nebeneinander dar, geben diese Aufschluss über Dichte und Verteilung des Materials, in welchen die radioaktiven Nuklide enthalten sind.

Im Gesamtspektrum sieht man alle im Behälter vorkommenden starken Gamma-Strahler. Beta- oder Alpha-Strahler sowie Spuren schwacher Gamma-Strahler sind nicht oder nicht direkt zu erkennen, da sie vom umgebenden Material und der Fasswand abgeschirmt und am Detektor nicht gemessen werden können. Jedoch kann man bei vorhandenem Bremsstrahlungsspektrum qualitativ auf enthaltene Beta-Strahler schließen [9]. Durch Zerfallsketten kann das Vorhandensein von Tochternukliden auf die Anwesenheit von Mutternukliden rückgeführt werden. Somit lassen sich weitere, im Gamma-Spektrum nicht direkt auftauchende, radioaktive Nuklide identifizieren.

Die Aktivität spiegelt die Menge an enthaltenen, radioaktiven Stoffen wieder. Für ihre Bestimmung sind aber weitere Informationen nötig. Neben der Masse und der Messgeometrie des Objekts werden Informationen aus Radiogrammen und Tomogrammen genutzt. So lassen sich die Füllhöhe und Dichteverteilung in einem Fass bestimmen. Die enthaltenen Mengen eines radioaktiven Nuklids werden oft unter der Annahme einer homogenen Dichteverteilung berechnet, was zu einer Ungenauigkeit bei den Aktivitäten führt. Diese fällt bei hinreichend großen Objekten nicht stark ins Gewicht. In Einzelfällen, bei großer Inhomogenität der Dichteverteilung und bei starken Abschirmungen muss der zu untersuchende Inhalt in mehrere Bereiche ähnlicher Dichte aufgeteilt werden, für die dann jeweils eine homogene Dichteverteilung angenommen werden kann. Dabei sind die Tomogramme besonders wichtig, da sonst die Berechnungen der Mengen an radioaktiven Stoffen im Vergleich zur einfachen Annahme der homogenen Verteilung teilweise um Größenordnungen daneben liegen könnten. Dies wird momentan aufwändig per Hand ausgewertet.

Um bessere Ergebnisse bei der Aktivitätsbestimmung zu erhalten, soll eine stärkere, rechnergestützte Verknüpfung der Messdaten aus Radiogrammen und Tomogrammen (Dichteverteilung) mit den Ergebnissen des SGS (Zählratenverteilung der Nuklide) umgesetzt werden. Denkbar ist auch die Messung von Emissions-Computer-Tomogrammen, um eine tatsächliche Verteilung der Nuklide zu erhalten. Damit wären Mengenangaben lokal genauer bestimmbar. Auch Abschirmwirkungen durch ein das Radionuklid umgebendes Material könnten so besser berücksichtigt werden.

#### **4. Zusammenfassung und Ausblick**

Zur Produktkontrolle radioaktiver Materialien und mit radioaktiven Materialien gefüllten Behältern führt die Radiochemie München seit vielen Jahren erfolgreich Messungen durch. An Messmethoden kommen hier hauptsächlich die eng aufeinander abgestimmten Verfahren digitale Radiographie, Tomographie sowie segmentiertes Gamma-Scanning zum Einsatz. Radiographie und Tomographie werden außerdem für Qualitäts- und Materialprüfungen großvolumiger Objekte eingesetzt, beispielsweise für die Untersuchung historischer Kulturgüter oder technischer Bauteile aus der Produktion.

Des Weiteren sollen die aus den verschiedenen Messverfahren erhaltenen Informationen besser miteinander verknüpft werden, wodurch zusätzliche Erkenntnisse gewonnen werden könnten. Dazu ist es nötig, dass die Anlage flexibel konfigurierbar ist und auf die Einzelschritte im Ablauf einer Messprozedur eingegriffen werden kann. Auch diesbezügliche Änderungen sind geplant.

Die Entwicklung rechnergestützter Methoden zur präzisen Bestimmung der Aktivitäten von Radionukliden wären eine weitere lohnenswerte Maßnahme zur Verbesserung der Messergebnisse. Derartige angepasste Algorithmen und auch Monte-Carlo-Simulationen der Messungen hätten den Vorteil, dass mit einer gewissen Ungenauigkeit behaftete Annahmen wie die homogene Dichteverteilung des Objekthinhalts wegfallen könnten.

#### **Referenzen**

- [1] P. Filß, Specific activity of large-volume sources determined by a collimated external gamma detector, *Kerntechnik* 54 (1989), 198-201.
- [2] R. Link et. al., Industrielle Computer-Tomographie, *Atomwirtschaft*, Oktober 1992.
- [3] P. Filß, Relation between the activity of a high-density waste drum and its gamma count rate measured with an unshielded Ge-detector. *Applied Radiation and Isotopes* 46 (8) (1995), 805–812.

- [4] Z. Li, W. Chong, H. Yuekun, et al. Properties of plastic scintillators after irradiation. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A 2005; 552(3):449-455.
- [5] T. J. Yorkey and J. G. Webster, A comparison of impedance tomographic reconstruction algorithms', 1987, Clin. Phys. Physiol. Meas. 8 55.
- [6] Industrial Progress Gamma Tomography, IAEA, May 2008, IAEA-TECDOC-1589
- [7] M. Dierick, B. Masschaele, LV. Hoorebeke, A fast and user-friendly tomographic reconstruction package developed in LabView. Measurement Science Technology. 2004; 15(7): 1366-1370.
- [8] D. Hoppe, Streustrahlungskorrektur bei Gammatomographie auf der Grundlage einer Faltungsoption. Technisches Messen 2008, 75(6): 414-419.
- [9] B. Rohrmoser, Kontec Symposium 2011.