

**KERNFORSCHUNGSZENTRUM  
KARLSRUHE**

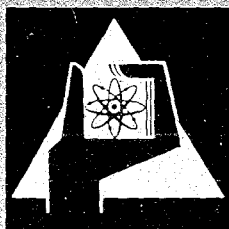
Juli 1969

KFK 907

Institut für Angewandte Reaktorphysik

Beschreibung eines Kontrollexperimentes  
in der Wiederaufarbeitungsanlage EUROCHEMIC

R. Kraemer, A. v. Baeckmann, A. Hagen, D. Nentwich  
unter Mitarbeit von W. Coerdts, H. E. Otto



GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M. B. H.  
KARLSRUHE



Juli 1969

KFK 907

Institut für Angewandte Reaktorphysik

Beschreibung eines Kontrollexperimentes  
in der Wiederaufarbeitungsanlage EUROCHEMIC

von

R. Kraemer<sup>1)</sup>

A.v. Baeckmann<sup>2)</sup>, A. Hagen<sup>1)</sup>, D. Nentwich<sup>1)</sup>

mit Unterstützung von

W. Coerdts<sup>2)</sup>, H.E. Otto<sup>1)</sup>

Gesellschaft für Kernforschung m.b.H., Karlsruhe

---

1) Institut für Angewandte Reaktorphysik

2) Institut für Radiochemie

1. Einführung und Zielsetzung

- 1.1 Einführung
- 1.2 Zielsetzung des Experimentes
- 1.3 Brennstoffdaten des Auftraggebers

2. Beschreibung der Anlage

3. Festlegung der strategischen Punkte

- 3.1 Die Materialbilanzzone
- 3.2 Kontrollmaßnahmen
- 3.3 Beschreibung der Meßverfahren zur Spaltstoffflußkontrolle

4. Durchführung des Experimentes

- 4.1 Vorbereitung
- 4.2 Anlagenwäsche und Inventur vor der Kampagne
- 4.3 Spaltstoffflußkontrolle während der Kampagne
- 4.4 Anlagenwäsche und Inventur nach der Kampagne
- 4.5 Probentransport

5. Ergebnisse des Experimentes

- 5.1 Allgemeines
- 5.2 Pu-Bilanz
- 5.3 Isotopenbilanz
- 5.4 Fehlerbetrachtung
- 5.5 Interpretation der Ergebnisse

6. Kosteneffektivität der Überwachungsmaßnahmen

7. Schlußfolgerung

Anhang 1: Spülvorgänge in den 5 Spülzonen

Anhang 2: Meßdaten der Transfers an den 5 strategischen Punkten

Anhang 3: Bestimmung der Standardabweichung bei der Mengenbestimmung

Anhang 4: Beschreibung der Kalibrierung für den Meßtank 251-81, der im ersten Kontrollexperiment als Pu-Produkt-Meßtank diente

Anhang 5: 1. Formblatt zur Erfassung der Meß- und Analysen-Daten während des Experimentes

2. Formblatt zur Übertragung der Meß- und Analysen-Daten auf Lochkartenformat für die programmierte Auswertung

Anhang 6: Plant-Observer Manual of Fissile Material Control Procedures During the Campaign

Anhang 7: Plant Observer Manual of Fissile Material Control Procedures During Plant Flush-Out and Physical Inventory

Anhang 8: Observer Manual of Fissile Material Control Procedures in the Analytical Laboratory

## 1.1 Einführung

Das Hauptziel eines modernen Überwachungssystems wie es in [1] und [2] beschrieben wurde, ist die Entdeckung einer unerlaubten Abzweigung spaltbaren Materials vom friedlichen in den militärischen Sektor der Kernenergie.

Durch die Überwachungsmaßnahmen an einer möglichst kleinen Anzahl von strategischen Punkten soll dem Inspektor die Möglichkeit gegeben werden, unabhängig vom Betreiber einer nuklearen Anlage quantitative Aussagen über eine mögliche Abzweigung machen zu können, die er durch Anwendung geeigneter Instrumentierung und Meßverfahren gewinnt.

Daneben soll ein solches Überwachungssystem keine zu starke Belastung der Brennstoffzykluskosten bewirken, da sich gerade der Zyklus mit schnellen Brütern, für den ein solches Überwachungssystem wegen der großen Spaltstoffmengen besonders zum Tragen kommt, im Gegensatz zu konventionellen Kernkraftwerken durch seine niedrigen Brennstoffzykluskosten auszeichnet.

Im Rahmen des Projektes "Spaltstoffflußkontrolle", das im Kernforschungszentrum Karlsruhe bearbeitet wird, haben daher Systemanalyse und Entwicklung von Instrumenten besondere Bedeutung. Weiterhin sind eine Reihe von Kontrollexperimenten in verschiedenen Anlagen der Brennstoffzyklusindustrie vorgesehen, in denen die theoretischen Ergebnisse der Systemanalyse [1, 2] praktisch angewendet werden und sich die Funktionsfähigkeit neuentwickelter Instrumente und Meßverfahren unter Industriebedingungen bewähren sollen.

Nachdem in der ALKEM-Fabrikationsanlage zwischen Mai und September 1968 ein solches Kontrollexperiment [3] durchgeführt wurde, folgte im Zeitraum zwischen 11.10. und 5.11.1968 ein weiteres Experiment in der Wiederaufarbeitungsanlage EUROCHEMIC (Mol-Donk, Belgien), dessen Vorbereitung und Ausführung in diesem Bericht beschrieben wird.

## 1.2 Zielsetzung des Experimentes

1. In der Wiederaufarbeitungsanlage EUROCHEMIC sollte für eine abgeschlossene Kampagne mit vorhandener Instrumentierung und mit Analyseergebnissen eines unabhängigen Laboratoriums eine von Betreiberdaten unabhängige Pu-Bilanz erstellt und mit der Bilanz des Betreibers verglichen werden.

2. Die Kontrollmaßnahmen zur Durchführung dieses Experimentes sollten nur an einer kleinen Anzahl von strategischen Punkten ausgeführt werden.
3. Erreichung von definierten Anfangs- und Endbedingungen, durch extremes Auswaschen der Anlage.
4. Fehleranalyse der vorhandenen Instrumentierung und chemischen Analyseverfahren.
5. Sammeln von praktischen Erfahrungen, um ein künftiges Überwachungssystem in Wiederaufarbeitungsanlagen zu entwerfen.
6. Auswertung der Ergebnisse durch ein Computer-Programm.
7. Die Bedeutung von strategischen Punkten über Aufwand und gewonnener Information zu bestimmen, um Prioritäten für die Entwicklung künftiger Meß- und Analyseverfahren festzulegen.

Das Experiment wurde auf der Basis gegenseitigen Vertrauens zwischen Anlagenbetreiber und Kontrollpersonal durchgeführt, so daß Containmentmaßnahmen entfielen und somit das Experiment als ein Accountability-Experiment charakterisiert werden konnte.

Vor Beginn des Experimentes wurde zwischen der GfK und den Vertretern der EUROCHEMIC ein Vertrag abgeschlossen, der Umfang und Finanzierung des Experimentes festlegte. Insbesondere wurden darin die zusätzlichen Betreibermaßnahmen für dieses Experiment, wie größere Zahl von Proben und Analysen, Probentransport und Reinigung der Anlage, festgelegt, die als Orientierungsbasis zur Finanzierung des Experimentes dienten.

Das Experiment wurde von der GfK in Zusammenarbeit mit dem Kernforschungszentrum Mol (C.E.N.), das 6 Beobachter zur Verfügung stellte, durchgeführt, so daß eine 100 %ige Überwachung in 3 Schichten sowohl in der Anlage selbst als auch im analytischen Laboratorium ermöglicht werden konnte. Diese Zusammenarbeit erwies sich als sehr fruchtbar und soll in den folgenden Experimenten fortgesetzt werden.

### 1.3 Brennstoffdaten des Auftraggebers

Nach Angaben des Auftraggebers enthielten die 1747 Brennelemente (Strukturmaterial: Al), die während des Experimentes aufgearbeitet wurden, 759 kg U in Form von  $UO_2$  mit 4 verschiedenen Anfangsanreicherungen (0,7; 1,5; 4; 4,5 %) und 1179 gr. Pu. Der mittlere Abbrand lag bei  $10000 \frac{Mwd}{t}$  und die Abkühlzeiten zwischen 400 und 1200 d.

## 2. Beschreibung der Anlage

Die Wiederaufarbeitungsanlage EUROCHEMIC (European Company for the Chemical Processing of Irradiated Fuels) bei Mol in Belgien ist dafür ausgelegt, Forschung und industrielle Tätigkeiten auf dem Gebiete der Wiederaufarbeitung von bestrahlten Kernbrennstoffen zu betreiben.

Die Anlage arbeitet nach dem wässrigen Verfahren (Purex-Process) und hat eine Kapazität von 200-350 kg U/d für Anreicherungen bis 5 % U-235.

In Abb. 1c ist eine Übersicht der verschiedenen Anlagenteile gegeben, deren Funktionen im folgenden beschrieben werden.

### i) Lagerbecken für bestrahlte Brennelemente

Der Transportbehälter für die bestrahlten Brennelemente wird vom Lastwagen mit Hilfe eines Deckenkranes entladen und in einem speziellen Raum auf Kontamination geprüft, um darauf im Lagerbecken unter Wasser entladen zu werden. Dabei werden die Brennelemente soweit möglich identifiziert und unter Wasser in ihre Lagerposition zur späteren Verwendung gebracht.

### ii) Auflöser

Im Gegensatz zu anderen Wiederaufarbeitungsanlagen (z.B. NFS, WAK) werden die Brennelemente direkt in den Auflöser geladen, ohne daß die Brennstäbe vorher zerhackt werden. Eine mechanische Vorbehandlung der Brennelemente (Absägen von Kopf- und Fußstücken) wird nur bei manchen Brennelementtypen vorgenommen.



Im Auflöser werden im Normalfall nacheinander folgende Prozessschritte durchgeführt:

- a) Auflösung des Strukturmaterials
- b) Transfer der Claddinglösung (ID) in den Accountabilitybereich und Spülen des Auflösers
- c) Auflösung des Brennstoffs mit Salpetersäure, die teilweise aus dem Prozeß zurückgewonnen wurde (RAR).
- c) Transfer der Brennstofflösung (AFU) in den Accountabilitybereich und Spülen des Auflösers

Während des Kontrollexperimentes wurde erstmalig eine gemeinsame Auflösung von Brennstoff und Strukturmaterial mit frischer Salpetersäure vorgenommen, so daß sich die Überwachung des in die Bilanzzone eingeführten Spaltmaterials auf einen Strom (im Normalfall sind es drei) beschränkte.

### iii) Accountability und Feed-Einstellung

In diesem Bereich sind die Meßtanks zur Erfassung der Eingangsströme, mehrere Puffertanks und der Feedadjustmenttank installiert (Abb. 1b).

### iv) 1. U-Zyklus

In diesem sog. Trennzyklus werden folgende Prozessschritte durchgeführt:

- a) Abtrennung der Spaltprodukte (HAW)
- b) Trennung von Uran und Plutonium

Während des Experimentes wurde unter a) gleichzeitig das Strukturmaterial getrennt.

### v) 2. U-Zyklus

Weitere Dekontamination des Urans mit Hilfe von Lösungsmittlextraktion.

### vi) U-Endreinigung

Uran-Endreinigung mit Hilfe von Silikagel-Kolonnen.

vii) U-Produktlager

Das U-Produkt, das als Uranylнитrat vorliegt, wird in großen Vorrats-tanks gelagert, in große Transportbehälter (SAFRAP) abgefüllt und mengenmässig mittels einer Waage erfaßt.

viii) Pu-Endreinigung

Der Pu-Strom aus dem Trennzyklus durchläuft zur weiteren Dekontamination zwei Mixersettler Batterien, wird dann als Pu-Oxalat ausgefällt und zu  $\text{PuO}_2$  kalziniert. Am Ende des trockenen Teiles befinden sich die Handschuhboxen zur Wägung und Probenahme des Pu-Endproduktes.

ix) Pu-Produkt-Lager

Die abgefüllten  $\text{PuO}_2$ -Behälter (1,5 kg  $\text{PuO}_2$ /Behälter) werden in einem doppelt gesicherten Pu-Produktlager in kritisch sicherem Abstand gelagert.

x) Organische Lösungsmittelwäsche

Die organische Phase, die als Abfallstrom aus den verschiedenen Extraktionskolonnen anfällt, wird mittels einer Carbonatwäsche dekontaminiert, um dann wieder in dem Prozeß eingesetzt zu werden. Die abgehende Waschlösung (1 SRW), die noch Spuren von Spaltstoffen enthält, wird zur Spaltstoffbilanzierung mengenmässig erfaßt und chemisch analysiert.

xi) Wastebehandlung

Die Abfallströme der wässrigen Phase werden teilweise aufkonzentriert und die eingesetzte Säure wieder gewonnen. Nach geeigneter Behandlung gelangen die Waste-Ströme in große Abfallagertanks.

3. Festlegung der strategischen Punkte

Nach Definition werden an einem strategischen Punkt von dem Überwachungsorgan mit Hilfe definierter Kontrollmaßnahmen nur die Informationen gesammelt, die für eine unabhängige Spaltstoffbilanz notwendig sind. Diese strategischen Punkte sollten nach Möglichkeit in einer nuklearen Anlage so angeordnet sein, daß die Überwachungstätigkeiten der Inspektoren an diesen Punkten den normalen betrieblichen Ablauf nicht stören und diejenigen Anlageteile und Tätigkeiten des Betriebes, die aus Wettbewerbsgründen von Bedeutung sind, nicht offengelegt werden.

### 3.1 Die Materialbilanzzone (MBA)

Grundlage jeder Spaltstoffbilanzierung ist die Errichtung einer Materialbilanzzone, deren Grenzen im allgemeinen mit dem Containment identisch sind. Alle Ströme, die in die MBA hineinfließen oder hinausströmen, müssen an strategischen Punkten mengenmäßig erfaßt und chemisch analysiert werden.

Da für das erste Kontrollexperiment nur eine Pu-Bilanz durchgeführt wurde und außerdem die gesamte Pu-Endreinigungsstufe wegen Reparaturarbeiten außer Betrieb war, wurde die in Abb. 1c eingezeichnete MBA gewählt, die im wesentlichen nur den 1. U-Zyklus überdeckte. Die Nummerierung von MBA00-MBA04 wurde aus programmtechnischen Gründen vorgenommen.

In Tabelle 2-1 sind die 5 Spaltstoffflüsse und deren Überwachungseinrichtungen aufgeführt, die die Grenzen der gewählten Materialbilanzzone überquerten (siehe auch Abb. 1a).

Eine Waschlösung (2SRW) konnte die Grenzen unkontrolliert überqueren, da keine Meßtanks zur Volumenmessung und Probenahme vorgesehen waren. Der Pu-Gehalt dieser Lösung, die als Waschlösung des org. Lösungsmittels aus dem 2. U-Zyklus anfiel, war aber vernachlässigbar gering, wie eine indirekte Kontrolle, die in Abb. 1a angedeutet ist, ergab.

### 3.2 Kontrollmaßnahmen

Die Kontrollmaßnahmen an den strategischen Punkten wurden wie folgt definiert:

- i) Überwachung der Instrumentierung zur mengenmäßigen oder volumetrischen Erfassung von Eingangs-, Produkt- und Abfallströmen einschließlich der physikalischen Inventuren.
- ii) Überwachung der Probenahme aller unter i) genannten Ströme einschließlich Proben transport zum analytischen Laboratorium.
- iii) Überwachung der Betreiberanalysen der unter ii) genannten Proben.
- iv) Überwachung der Proben transporte der Parallelproben zur Analyse in einem unabhängigen Laboratorium.
- v) Analyse von Parallelproben in einem unabhängigen Laboratorium.

Um diese Kontrollmaßnahmen, die in Tab. 2-2 detailliert aufgeführt sind, auszuführen, muß das Kontrollpersonal an vier strategischen Punkten anwesend sein:

(siehe Abb. 4)

1. Panelgalerie, in der die gesamte Prozeßkontrolle mit Ausnahme der Pu-Endreinigung durchgeführt wird.
2. Transmittergalerie, in der die Druckmeßsonden sämtlicher Prozeßeinheiten zusammenlaufen. In dieser Galerie sind die U-Rohrmanometer installiert, die für die genaueren Füllstand- und Dichtemessungen verwendet werden.
3. Probenahmegalerie, in der die Probenahme sämtlicher Prozeßkontrolltanks in sog. Blisters ermöglicht wird.
4. Analytisches Laboratorium, in das alle Prozeßproben per Rohrpost hingeschickt werden, um nach verschiedenen Verfahren analysiert zu werden.

In diesen 4 Bereichen brauchte man für eine vollständige Spaltstoffbilanz nur einen kleinen Bruchteil der Informationen, die für den Betreiber zur Prozeßkontrolle erzeugt wurden. Deshalb waren die speziellen Kontrollpunkte (Abb. 4) auffällig beschildert, damit

1. das Überwachungspersonal sich leichter in der Anlage zurechtfinden konnte und
2. demonstriert wurde, daß nur diese Informationen zur Überwachung des Spaltstoffflusses gebraucht wurden.

### 3.3 Beschreibung der Meßverfahren zur Spaltstoffflußkontrolle

In der betrachteten Materialbilanzzone trat der zu überwachende Spaltstoff nur als Lösung in flüssiger Form auf, so daß zur Messung des Spaltstoffflusses

- i) die Messung der Lösungsmenge bzw. des Lösungsvolumens und
- ii) die chemische Analyse der Spaltstoffkonzentration

notwendig waren.

### 3.3.1 Messung der Lösungsmenge bzw. Lösungsvolumen

Zur Messung des Füllstandes und der Lösungsdichte wird die bewährte Tauchrohrmethode angewendet, die in Abb. 2 schematisch dargestellt ist. Ein Spülgasstrom, der über eine Rotameteranzeige geregelt wird, verhindert das Eindringen der aktiven Lösung in die Druckmesszellen. Die Druckdifferenz ( $\Delta p_D$ ) der beiden Tauchrohre (e,c), die mit einem bekannten Höhenunterschied in die Lösung eintauchen, ist ein direktes Maß der Lösungsdichte ( $\rho$ )

$$(3-1) \quad \rho = c_1 \cdot \Delta p_D$$

Der Füllstand berechnet sich aus der Druckdifferenz ( $\Delta p_L$ ) der Tauchrohre (c, d) und der Lösungsdichte ( $\rho$ ) aus Gl. (3-1)

$$(3-2) \quad h = c_2 \cdot \frac{\Delta p_L}{\rho}$$

Dem Füllstand (h) ist über die Tankkalibrierkurve ein bestimmtes Lösungsvolumen (V) zugeordnet, so daß die Lösungsmenge (M) wird:

$$(3-3) \quad M = V \cdot \rho \quad \text{[kg Lösung]}$$

Da das installierte Fördersystem (Dampfstrahlpumpe oder Siphon mit Luftdruck) für die Entleerung des Tanks immer eine gewisse Restmenge (heel) im Tank zurückläßt, die sich mit den nächsten Batch vermischt, muß die geförderte Lösungsmenge über die Differenz der Lösungsmenge vor und nach dem Transfer berechnet werden.

### 3.3.2 Chemische Analysen zur Bestimmung der Spaltstoffkonzentration

In Tabelle 2-1 sind die verschiedenen analytischen Verfahren angegeben, die zur Bestimmung des Spaltstoffgehaltes in den verschiedenen Spaltstoffflüssen angewandt wurden. Dabei wurde in den GfK-Labors (IRCh) auch die Röntgenfluoreszenzspektrometrie zur Bestimmung der Uran- und Pu-konzentration in den Eingangs- und Produktströmen angewendet, um diese Methode mit der üblichen Isotopenverdünnungsanalyse zu vergleichen. Die Ergebnisse sind in Kap. 5 angegeben.

#### 4. Durchführung des Experimentes

##### 4.1 Vorbereitungen

###### 4.1.1 Einweisung des Personals

Nach Vereinbarung der Materialbilanzzone (MBA) und Festlegung der Tanks, in denen eine Mengenummessung und Probeentnahme möglich war, wurden für die Beobachter insgesamt 3 Handbücher verfaßt: (Als Anhang beigelegt)

1. Observer's procedure at strategic points in the plant during campaign.
2. Observer's procedure in the plant during wash-out.
3. Observer's procedure in the analytical laboratory.

Die Handbücher waren so gegliedert, daß der Beobachter über Zweck, Ziel, spezielle Vorkehrungen und über seine Kontrollmaßnahmen an jedem strategischen Punkt entsprechend Tabelle 2-2 informiert wurde.

Die Einweisung der Beobachter erfolgte bei EUROCHEMIC an Ort und Stelle. EUROCHEMIC machte alle Beteiligten in Form allgemein gehaltener Vorträge und Besichtigungen mit der Gesamtanlage bekannt. GfK unterwies die Beobachter gemäß den Handbüchern und machte sie mit den richtigen Eintragungen der Formblätter vertraut.

###### 4.1.2 Kalibrierung des Tanks 251-81

Unter Kalibrierung eines Behälters versteht man die Ermittlung des Zusammenhangs zwischen dem Flüssigkeitsvolumen im Behälter und der entsprechenden Anzeige am Meßgerät. Es liegt nahe, aus Kostengründen nur die Tanks genau zu kalibrieren, in denen genaue Messungen für die Spaltstoffbilanzierung gefordert werden, so z.B. input-Tanks, U- und Pu-output-Tanks. In den Tanks, in denen kein oder nur wenig U und Pu zu erwarten ist, kann man auf eine genaue Kalibrierung verzichten. Tank 251-81, der bei dem SFK-Experiment als Produkt-Tank für das Pu verwendet wurde, hatte noch keine Kalibrierung der Güte 1A, da er lediglich für Prozessmessungen verwendet wurde.

Eine solche 1A-Kalibrierung für Tank 251-81, die in Anhang 4 näher beschrieben ist, wurde im Beisein der SFK-Beobachter nachgeholt.

## 4.2 Anlagenwäsche und Inventur vor der Kampagne

### 4.2.1 Anlagenwäsche

Um definierte Anfangsbedingungen zu erhalten, mußten die Kessel und Kolonnen der Materialbilanzonen einer eingehenden Spülung unterzogen werden. Nach den Angaben des Auftraggebers sollte die zu erwartende und zu überwachende Pu-Menge in der Größenordnung von 1200 g sein. Daher wurde festgesetzt, daß die Gesamtmenge an Pu in sämtlichen Spüllösungen unter 1 % dieser Pu-Menge bleiben soll, damit nach Entleeren praktisch Nullbedingungen herrschen.

Die MBAoo wurde in 5 Spülzonen eingeteilt, deren Tanks und Kolonnen mit heißer hochmolarer Salpetersäure über interne Dampfumwälzung in mehreren Spülvorgängen ausgewaschen wurden. Die Lösungen wurden, mit Ausnahme vom head-end, in den Behältern gesammelt und analysiert, die als strategische Punkte gewählt worden waren. In diesen Behältern wurden auch die Proben für die Gegenanalyse von GfK/IRCh gezogen. Die EUROCHEMIC nahm auch in anderen Behältern zwischendurch Proben um festzustellen, wo sich die höchsten Pu-Konzentrationen befanden, damit eventuell erforderliche Wiederholungen der Spülungen nicht unnötig weiter vorne angesetzt wurden.

In Tabelle (4-1) sind die Pu-Mengen aufgeführt, die an den Endpunkten der 5 Spülzonen in den eingesetzten Spüllösungen nach den einzelnen Spülvorgängen gemessen wurden. Die ausführlichen Messungen sind in Anhang 1 angegeben.

Es konnte nach diesen Ergebnissen keine exponentiell fallende Tendenz des Pu-Gehaltes in den Spüllösungen festgestellt werden. Der 3. Spülvorgang erbrachte in SP3 fast die gleiche Menge Pu wie die beiden ersten zusammen. Die Pu-Menge des 4. Spülvorganges lag mit 0,6 g wesentlich unter den vereinbarten 1 % der überwachten Pu-Menge, so daß von weiteren Spülvorgängen abgesehen wurde.

### 4.2.2 Inventur

Nach dieser eingehenden Anlagenwäsche wurden die eingesetzten Spüllösungen aus der MBAoo befördert, so daß nur noch Plutonium in den Restmengen der gespülten Tanks sein konnte. Außerdem mußte das organische Lösungsmittel, das ebenfalls einer extremen Carbonatwäsche ausgesetzt wurde, auf seinen Pu-Gehalt untersucht werden.

In Tabelle 4-2 sind die Ergebnisse der physikalischen Inventur detailliert aufgeführt. Danach ergab sich ein Anfangsinventar von 3,95 g Pu, das fast ausschließlich im organischen Lösungsmittel gefunden wurde.

#### 4.3 Spaltstoffflußkontrolle während der Kampagne

Während der Kampagne wurden die in Tabelle 2-1 definierten Spaltstoffflüsse mit Hilfe der Kontrollmaßnahmen in Tabelle 2-2 in 3 Schichten pro Tag überwacht. Dabei wurden je Schicht 2 Beobachter eingesetzt.

Der Beobachter in der Fabrik führte die Kontrollmaßnahmen i) und ii) aus, während der 2. Beobachter im analytischen Laboratorium die Kontrollmaßnahmen iii) und teilweise iv) übernahm. Die Meßwerte wurden zunächst in übersichtliche Formulare (Transfer-Report und Analytical Report) eingetragen, um dann zur Auswertung durch ein Computer-Programm in Lochkartenformat übertragen zu werden. Beispiele dieser Formulare sind in Anhang 5 angegeben.

Unabhängig von der genauen Aufzeichnung der einzelnen Transfermessungen wurden täglich die Recorderaufzeichnungen der Volumenbewegungen in den Meßtanks (Tab.2-1) einschließlich deren Speisetanks und Folgetanks notiert und in ein Zeit-Volumen Diagramm (Abb. 5) eingetragen. Dieses Diagramm erwies sich als eines der wichtigsten Hilfsmittel bei der Überwachung der einzelnen Spaltstoffflüsse, da es in übersichtlicher Weise die wichtigsten Informationen, wie Prüfung der repräsentativen Probenahme, Prüfung der Flußrichtung und zeitabhängiger Inventarauf- und -abbau vermittelte.

Dieses Diagramm kann als erster Versuch angesehen werden, einen strategischen Punkt zu simulieren, in dem alle wichtigen Informationen für die Überwachung der Spaltstoffflüsse zusammenlaufen. Technisch ließe sich solch ein strategischer Punkt durch parallele verfälschungssichere Installation der betreffenden Instrumente in einem separaten Inspektorpanel ausbauen. Mit zunehmender Entwicklung von On-line-Instrumentierung zur Bestimmung der Spaltstoffkonzentration in den einzelnen zu überwachenden Spaltstoffflüssen, ließen sich die z.Zt. noch nicht synchron erfaßbaren Analyseergebnisse ohne Zeitverzug auch in einem solchen strategischen Punkt auswerten.



#### 4.4 Anlagenwäsche und Inventur nach der Kampagne

Die Anlagenwäsche nach der Kampagne erfolgte nach dem gleichen System wie in 4.2.1 beschrieben. Die anfallenden Spüllösungen wurden jeweils dem letzten Transfer in SP2-SP5 zugefügt und somit bilanziert.

Da die physikalische Inventur der Restmengen in den Prozeßtanks vernachlässigbar kleine Pu-Mengen ergaben (vergl. Tab. 4-2) wurde nur noch das org. Lösungsmittel auf seinen Pu-Gehalt inventarisiert.

Beim Vergleich der beiden Inventuren vor und nach der Kampagne ergab sich eine Differenz von etwa 2 g Pu, die vom org. Lösungsmittel an die einzelnen Spaltstoffflüsse abgegeben wurden.

#### 4.5 Probentransport

Im Rahmen des 1. Experimentes wurden

- |    |   |               |
|----|---|---------------|
| a) | 14 aktive Eingangsproben  | (100-150 c/1) |
| b) | 18 hochaktive Wasteproben   | (3000 c/1)    |
| c) | 52 schwach aktive Proben<br>von Waste-, Rinse- und<br>Produktlösungen | (<30 c/1)     |

von EUROCHEMIC (Mol/Belgium) ins Kernforschungszentrum zur Gegenanalyse im IRCh transportiert (Entfernung 510 km).

Jede Probe enthielt ca. 3 ml Lösung, die in den Original-Probefläschen der EUROCHEMIC enthalten war.

Der gesamte Probentransport wurde in 2 Fuhren von der Fa. Transnuklear durchgeführt.

Aus Tabelle 4-4 läßt sich der relativ große Aufwand für solche Probentransporte ersehen, der hauptsächlich durch die unverhältnismäßig hohen Behältergewichte gegenüber dem transportierten, radioaktiven Material entstand.

Die Transportkosten setzen sich aus den in Tab. 4-5 angegebenen Posten zusammen.

## 5. Ergebnisse des Experimentes

### 5.1 Allgemeines (Abb. 6)

Das Prinzip der SpFK sieht eine Bilanzierung aller Zu- und Abflüsse von Spaltstoff durch die strategischen Punkte vor, um daraus das Buchinventar in der Materialbilanzzone zu berechnen. Ein Vergleich von Buch- und Ist-Inventar, das durch eine physikalische Inventur am Ende der Kampagne gemessen wird, ergibt im allgemeinen keine Übereinstimmung. Dieser Fehlbetrag in der Bilanz (das sog. MUF = Material unaccounted for) kann seine Ursache haben durch:

1. Fehlerfortpflanzung zufälliger und systematischer Fehler
2. nicht inventarisierbaren Spaltstoff in der Anlage
3. unkontrollierte Spaltstoffzufuhr bzw. -abzweigung

#### Zu 1)

Die zufälligen Fehler bei der Mengenmessung und Analyse pflanzen sich nach dem Fehlerfortpflanzungsgesetz von Gauss fort, so daß die Schlußbilanz einer Kampagne nur mit einem gewissen Unsicherheitsbereich nach beiden Richtungen angegeben werden kann. Es ist üblich, einen Konfidenzbereich anzugeben, der mit Erfahrungswerten für die Einzelmessungen (Volumen, Analysen) berechnet wird. Die systematischen Fehler können nur durch Vergleich der Analysenergebnisse aus 2 unabhängigen Labors abgeschätzt werden.

#### Zu 2)

Spaltstoff, der infolge Ausfällung an den Wänden von Kolonnen oder Prozeß-tanks haftet und damit nicht am Prozeßstrom teilnimmt, kann nicht inventarisiert werden. Daher wurde bei diesem Experiment durch eine intensive Auswaschung versucht, diese Spaltstoffmengen zu lösen und aus der Anlage herauszuspülen.

#### Zu 3)

Die unkontrollierte Abzweigung von Spaltstoff gilt es, durch die vorgesehenen Kontrollmaßnahmen zu entdecken. Dies wird umso besser erreicht, je kleiner die Einflüsse von 1 und 2 werden.

## 5.2 Plutonium-Bilanz

Mit Hilfe der an den strategischen Punkten unabhängig erfaßten Meßwerte zur Berechnung der Lösungsmengen (Anhang 2) und den entsprechenden Analysenergebnissen aus den Laboratorien des Betreibers (EUROCHEMIC) und der GfK (Institut für Radiochemie) wurde je eine Pu-Bilanz durchgeführt und gegenübergestellt (Tab. 5-1).

Nach Definition des Experimentes konnte die für die Entstehung des MUF in 5.1 erwähnte Ursache 3 völlig und Ursache 2 weitgehend ausgeklammert werden, so daß dieser Fehlbetrag nur über die Fehlerpropagation der systematischen und zufälligen Fehler zu erklären ist.

In Tab. 5-2 sind die Eingangs- und Produkttransfers aufgeschlüsselt angegeben, um die Fehlerpropagation besser analysieren zu können.

Die Abweichung der Betreiberdaten gegenüber den GfK-Daten in der Bilanz liegt mit 2,5 % bei der Eingangsbilanz und 5,1 % bei der Produktbilanz signifikant über dem 95 %-Konfidenzintervall von  $\pm 0,5$  % in der Eingangsbilanz und von  $\pm 1,2$  % in der Produktbilanz, so daß hier ein systematischer Fehler vorliegen muß.

Beim Vergleich der Eingangsanalysen durch die beiden unabhängigen Laboratorien (Tab. 5-2) fallen 5 von 7 Analysen signifikant aus dem 95 % Konfidenzintervall ( $\pm 1,4$  %), der vom Betreiber für diese Analysen angegeben wird  $\pm 4$  %. Bessere Übereinstimmung wurde bei den Uranbestimmungen (Tab. 5-6) erzielt.

Es bestehen jedoch prinzipielle Bedenken, diesen Erfahrungswert für die im Experiment angefallenen Inputproben zu verwenden, da bei diesen Analysen Schwierigkeiten aufgetreten sind, die eine von den Routinevorbereitungen modifizierte Probevorbereitung erforderlich machten.

Die mittlere Standardabweichung der Eingangsanalyse des Betreibers von  $\pm 0,8$  % bestätigt allerdings die in  $\pm 4$  % gemachten Angaben von  $\pm 0,7$  %.

In der gleichen Größenordnung liegt auch die mittlere Standardabweichung der GfK-Analysen von  $\pm 0,6$  %.

Bei diesen Angaben handelt es sich um die zufällige Fehlerkomponente dieses Analysenverfahrens.

Die systematische Komponente läßt sich durch Vergleich der Ergebnisse aus den beiden unabhängigen Laboratorien abschätzen, wobei noch keine Gewißheit darüber besteht, welches Laboratorium (oder beide) systematische Fehler macht. Es

besteht auch die Möglichkeit, daß beide Laboratorien frei von systematischen Fehlern sind, und der Unterschied durch einen Alterungseffekt der Proben (Ausplattierung von Pu oder Bildung von Polymeren) entstand. Diese Auffassung wird durch die systematisch nach unten abweichenden GfK-Analysen bestärkt, die bei nur 1 von 9 Analysen durchbrochen wird. Die Untersuchung dieses Alterungseffektes wird ein Teilergebnis des nächsten Kontrollexperimentes sein.

Bezüglich der Produktproben liegen beim Betreiber nur je ein durch massenspektrometrische Isotopenverdünnungsanalyse gewonnener Wert für Vergleichszwecke vor, da diese Transfers vom Betreiber nicht für Bilanzierungszwecke verwendet wurden.

Die stark vom Betreiberwert abweichende 1BSP100 GfK-Analyse wurde über Röntgenfluoreszenzspektrometrie gewonnen. Es werden aber in Kürze für diesen Produktbatch auch massenspektrometrische Isotopenverdünnungsanalysen vorliegen, um hier nicht nur auf eine Analyse angewiesen zu sein, die statistisch wenig Aussagekraft besitzt.

### 5.3 Isotopenbilanz

In Tabelle 5-3 ist die Isotopenzusammensetzung angegeben, die für Eingangs- und Produkt-Batche von den beiden unabhängigen Labors analysiert wurde. EUROCHEMIC gibt für die Standardabweichung der Isotopenanalysen folgende Werte an [4]:

Anteil des Isotops [Gew. %]	relative Standard- abweichung [%]	$\Delta_{c/c}$ -Bereich [%] Tabelle 5-3
100-50	0,1	- 0,4 bis +0,5
50-1	0,5	- 3,0 bis +5,6
1-0,5	1,0	-30,0 bis +22,2
0,5-0,1	2,0	-79,0 bis -8,0
<0,1	=5,0	-

Die Abweichungen der GfK-Isotopenanalysen von den entsprechenden Betreiberanalysen sind in Tabelle 5-3 und zum Vergleich der  $\frac{\Delta}{c}$  Bereich in der letzten Spalte der obigen Tabelle mit angegeben.

Es fällt auf, daß 80 % der Pu-241- und 100 % der Pu-242-Analysen des IRCh signifikant unter dem Betreiberwert liegen, so daß eine systematische Fehlerkomponente bei einem oder beiden Laboratorien vorliegen muß, die durch Alterungseffekt nicht zu erklären ist. Die Betreiberanalysen für Pu-242 im Produkt liegen beide außerhalb der Extremwerte des Eingangs, was bei Ausschluß von

Cross-Contamination nicht möglich sein kann.

In Tabelle 5-4 ist die Isotopenbilanz mit Betreiber- und GfK-Analysen angegeben. Theoretisch müßte die Ausbeute (Produkt/Eingang) jedes Isotops bei dem geringen Anfangsinventar identisch mit der Pu(tot)-Ausbeute (Tab. 5-1) sein, was für die Isotope Pu-239, 240 und 241 auch sehr gut erfüllt ist. Größere Abweichungen sind nur bei den Isotopen Pu-238 und Pu-242 zu beobachten. Allerdings kompensieren sich die Fehler teilweise wieder bei dieser Betrachtungsweise, so daß man gerade bei den erwähnten unwahrscheinlichen Pu-242 Isotopenvektoren im Produkt, die vom Betreiber gemessen wurden, für die Pu-242-Ausbeute doch wieder nahe an den Sollwert (Tab. 5-1) kommt.

#### 5.4 Fehlerbetrachtung

Gegenstand dieses Kapitels ist die Fehlerpropagation der zufälligen Fehler in den Einzelmessungen zur Bestimmung des Konfidenzbereiches in der Abschlußbilanz. In 5.5 wird dann auf einen Test auf systematische Fehler hingewiesen, wenn wie in diesem Experiment zwei unabhängige Bilanzen vorliegen.

##### 5.4.1 Fehlerpropagation der zufälligen Fehler

Die Spaltstoffmenge in einem Batch (i) berechnet sich aus der gemessenen Lösungsmenge ( $m_i$ ) und der im Laboratorium analysierten Spaltstoffkonzentration ( $c_i$ )

$$(5-1) \quad Pu_i = m_i \cdot c_i \quad \underline{\text{g Pu}}$$

Kennt man die Varianz für beide unabhängigen Messungen ( $\sigma_m^2$ ,  $\sigma_c^2$ ) wird die Gesamtvarianz pro batch:

$$(5-2) \quad \sigma_i^2 = c_i^2 \sigma_{m_i}^2 + m_i^2 \sigma_{c_i}^2 + \sigma_{m_i}^2 \sigma_{c_i}^2 \quad \underline{\text{g Pu}}^2$$

wobei der letzte Term vernachlässigt werden kann.

Die Gesamtvarianz nach k-Batches durch einen strategischen Punkt wird

$$(5-3) \quad \sigma_k^2 = \sum_1^k \sigma_i^2 = \sum_1^k ( c_i^2 \sigma_{m_i}^2 + m_i^2 \sigma_{c_i}^2 ) \quad \underline{\text{g Pu}}^2$$

Mit der Vereinfachung<sup>1)</sup>, daß alle Batche des gleichen Spaltstoffflusses ungefähr gleiche Lösungsmengen und Spaltstoffkonzentrationen aufzeigen, läßt sich für die relative Varianz nach k-Batchen die einfache Beziehung angeben:

$$(5-4) \quad \delta_k^2 = \frac{1}{k} (\delta_m^2 + \delta_c^2) \quad \left[ \frac{\%}{T} \right]^2$$

Sind mehrere unabhängige Messungen für die Menge und Konzentration vorgesehen, verringert sich die Gesamtvarianz zu:

$$(5-5) \quad \delta_k^2 = \frac{1}{k} \left( \frac{\delta_m^2}{n_m} + \frac{\delta_c^2}{n_c} \right) \quad \left[ \frac{\%}{T} \right]^2$$

worin

$\delta_m$  = relative Standardabweichung der  $\left[ \frac{\%}{T} \right]$   
Einzelmenge

$n_m$  = Anzahl der unabh. Mengemessungen  
pro Batch

$\delta_c$  = relative Standardabweichung der  $\left[ \frac{\%}{T} \right]$   
Einzelanalyse

$n_c$  = Anzahl der unabhängigen Analysen  
pro Batch.

Liegen insgesamt l Spaltstoffflüsse<sup>2)</sup> vor, dann wird die Varianz für die Gesamtbilanz (i.e. für den Fehlbetrag in der Bilanz = MUF)

$$(5-6) \quad \sigma_{ges}^2 = \sum_{j=1}^l \left( \sum_{i=1}^k \sigma_i^2 \right)_j \quad \left[ \frac{g}{Pu} \right]^2$$

Aufgrund von Erfahrungswerten und Untersuchungen wurden für Mengen-(bzw. Volumen-) und Konzentrations-Messung die in Tab. 5-1 angegebenen Fehler angenommen. Danach ergibt sich die Fehlerpropagation in der Gesamtbilanz, die in Tabelle 5-2 detailliert aufgeführt ist.

<sup>1)</sup> Diese Vereinfachung ist im Rahmen der erzielbaren Genauigkeit zulässig.

<sup>2)</sup> Die Inventuren werden auch als Spaltstofffluß betrachtet, da sie nach der gleichen Methode gemessen werden.

### 5.5 Interpretation der Ergebnisse

Als Grundlage quantitativer Aussagen über eine mögliche Abzweigung dient die Spaltstoffbilanz (Tab. 5-1) und die Fehlerabschätzung (Tab. 5-2). Die allgemein angewandte Konfidenzmethode vergleicht den Sollwert (=0) mit dem Fehlerbetrag in der Bilanz (MUF), der wegen der akkumulierten zufälligen Fehler nur innerhalb eines bestimmten Konfidenzintervalls (z.B.  $c = 95\%$ ) angegeben werden kann. Liegt der Sollwert innerhalb des vorgegebenen Konfidenzbereiches, nimmt der Inspektor mit der Glaubwürdigkeit (likelihood)  $c$  an, daß kein Spaltstoff abgezweigt wurde. Dieser Sachverhalt ist für beide unabhängigen Bilanzen erfüllt, denn für  $c = 95\% = \pm 2 \sigma_{\text{ges}}$  liegt der Konfidenzintervall zwischen:

$$(5-7) \quad \begin{array}{l} \text{MUF}_{\text{Betreiber}} = -11,2 \\ -12,6 = -2\sigma_{\text{ges}} = \text{MUF}_{\text{GfK}} = +11,5 \end{array} \quad \leq +2\sigma_{\text{ges}} = +12,6 \quad \underline{[gPu]}$$

Dieser Test läßt noch keine eindeutige Aussage zu, da systematische Fehler im Eingang und Produkt, die in der gleichen Richtung liegen, sich bei der Berechnung des MUF teilweise wieder kompensieren. Deshalb wurden in einem Zusatztest für beide unabhängigen Bilanzen die Hilfsgröße:

$$H = \text{Eingangsmenge} + \text{Ausgangsmenge}$$

miteinander verglichen, die in Tabelle 5-1, j angegeben sind. Vom statistischen Standpunkt gilt für diese Hilfsgröße der gleiche Konfidenzintervall wie für den MUF (Tabelle 5-1, h)

Der Zusatztest muß daher folgende Forderung erfüllen:

$$(5-8) \quad \Delta H = H_{\text{Betr.}} - H_{\text{GfK}} \leq 4 \sigma_{\text{ges.}} = 25 \text{ g Pu}$$

Dieser Test verlief mit  $\Delta H = 64.5 \text{ g Pu}$  negativ, so daß systematische Fehler in einer von beiden (oder in beiden) Bilanzen vorliegen, deren Deutung in 5.2 versucht wurde. Die beiden Tests demonstrieren, wie problematisch die Aussagen eines Inspektors sind, wenn systematische Fehler in den Messungen nicht ausgeschlossen werden können. Von daher ist es sinnvoll, die Betreiberdaten für eine Gegenprobe nach Gl. (5-7) und (5-8) anzuwenden, vorausgesetzt, daß beide Bilanzen unabhängig sind und dem Betreiber die Inspektorbilanz vorher nicht bekannt ist.

Da die größten system. Fehler bei den chem. Analysen zu erwarten sind, reicht es aus, unabhängige Proben zu ziehen, die in unterschiedlichen Laboratorien und auch mit verschiedenen Analysenverfahren analysiert werden können.

Für die Messung der Batch-Volumina wird der Inspektor auch in zukünftigen Anlagen auf das Meßsystem des Betreibers angewiesen sein, das sich aber durch wiederholte Eichungen und durch unabhängige Ablesung verfälschungssicherer Instrumente hinreichend genau überprüfen läßt. Hierbei wird der zusätzliche Einbau von Kraftmeßdosen zur direkten Bestimmung der Lösungsmenge eine wertvolle redundante Maßnahme zur Tauchrohrmethode sein.

#### 6. Kosteneffektivität der Überwachungsmaßnahmen

Um ein effektives Überwachungssystem zu entwickeln, gilt es, Schwerpunkte festzulegen, bei denen die Weiterentwicklung von Instrumenten oder Meßverfahren vorrangig eingesetzt werden müssen. Ein wesentliches Ziel der geplanten Kontrollexperimente ist es, diese Schwerpunkte zu finden, indem man Bewertungsgrößen für die einzelnen überwachten Spaltstoffflüsse definiert, die sowohl den Kostenaufwand als auch die Güte der erzeugten Information zu einer sinnvollen Relation zusammenfassen, so daß die einzelnen Spaltstoffflüsse miteinander verglichen werden können.

In [6] wurde der Versuch gemacht, diese Bewertungsfunktion folgendermaßen zu definieren:

$$(6-1) \quad B = \sigma_k^\alpha \cdot a^\beta$$

$\sigma_k$  = Standardabweichung nach Gl. (5-3)

$a$  = spez. Kontrollaufwand für die Überwachung eines Spaltstoffflusses [DM/g]

$\alpha, \beta$  = Wichtungsexponenten (in [6] wurde vorgeschlagen:  $\alpha = 1$  und  $\beta = 0,5$ )

Der spez. Kontrollaufwand wurde definiert als das Verhältnis der für die Kontrolle aufgewendeten Mittel für Analysen und Mann-Stunden des Kontrollpersonals zur überwachten Spaltstoffmenge.



Zur Bestimmung der Personalkosten wurde die aktive Arbeitszeit zur Überwachung der einzelnen Spaltstoffflüsse nach Tab. 2-2 abgeschätzt und in Tab. (6-1) einzeln aufgewiesen. Nach diesen Zahlenwerten lag die durchschnittliche Auslastung des Überwachungspersonals bei 20 %. Die Mannstunde wurde mit 16 DM/h in Rechnung gestellt.

In Tabelle 6-2 wurden die Bewertungsfunktionen (B) für die überwachten Spaltstoffflüsse nach Gl. 6-1 berechnet und miteinander verglichen, um daraus ihre relative Bedeutung zu ermitteln.

Nach dem vorgeschlagenen Bewertungsschema haben die Waste-Ströme (SP3-SP5) mit zusammen 57 % die größte Bedeutung im Sinne einer Rationalisierung des Kontrollsystems.

Die relativ kleinen Wastemengen mit ca. 1-2 % des Hauptstromes erfordern wegen der großen Batchzahlen einen unverhältnismäßig großen Analysen- und Personalaufwand, der für ein zukünftiges Überwachungssystem mit Hilfe größerer Batchgrößen und geeigneter Stichprobenverfahren für die erforderlichen Analysen gesenkt werden sollte. Es wird hier u.a. auch an eine Composit-Sample-Technik gedacht, bei der die Proben der einzelnen Batche entsprechend der Batchvolumina zusammengemischt werden, um nur eine Analyse zu erhalten, die repräsentativ für die gesamten Wastebatche ist.

Obwohl dieses Experiment weder von der Kampagnegröße noch von den Spaltstoffflüssen her repräsentativ für eine typische Aufarbeitungskampagne war, zeigen die Bewertungsfunktionen die erwarteten Tendenzen an. Verschiebungen werden sich im Pu-Produktstrom und bei der Bewertung der Inventuren ergeben, wenn nicht nur ein kleiner Teil sondern die gesamte Wiederaufarbeitungsanlage kontrolliert wird.

In Tab. 6-3 sind die Kosten angegeben, die für das Experiment aufgewendet werden mußten. Den größten Anteil der Gesamtsumme machen die Kosten für die Anlagenwäsche aus, da hierdurch die Fabrik 1-2 Tage zusätzlich aufgehalten wurde. Verglichen mit dem Wert des überwachten Plutoniums von ca.  $780 \text{ g Pu}_{\text{fiss}}$   $\cdot 43 \text{ \$/g}_{\text{fiss}} \cdot 4 \text{ DM/\$} = 134.000 \text{ DM}$  betragen die aufgewendeten Kosten des Kontrollexperimentes 79 % dieses Betrages. Wegen der relativ kleinen Pu-Menge verglichen mit dem großen Aufwand für die Anlagenwäsche ist dieser Anteil noch nicht vergleichbar mit zukünftigem spez. Kontrollaufwand in einer Wiederaufarbeitungsanlage.

## 7. Schlußfolgerung

In Anlehnung an die in 1.1 ausgeführte Zielsetzung können aus den Ergebnissen und Erfahrungen des Experimentes folgende Schlußfolgerungen gezogen werden:

- i) Es konnte eine unabhängige Pu-Bilanz erstellt werden, indem nur Informationen gebraucht wurden, die an wenigen vorher definierten strategischen Punkten erzeugt wurden.
- ii) Ein Vergleich der Betreiberbilanz und der unabhängig erstellten Inspektorbilanz ließ systematische Fehler erkennen, deren Ursache in weiteren Experimenten tiefergehend untersucht wird.
- iii) Durch die extremen Anlagenwäschen vor und nach der Kampagne konnten praktisch Null-Bedingungen in der Materialbilanzzone erzeugt werden.
- iv) Die Meßgenauigkeiten der Mengen- bzw. Volumen-Messung nach der Tauchrohrmethode sind in Verbindung mit einer guten Kalibrierung ausreichend. Allerdings bestehen z.Zt. noch viele Möglichkeiten, die Meßwerte zu verfälschen, so daß hier im Rahmen des SpFK-Projektes Verbesserungsvorschläge unumgänglich sind.
- v) Systematische Fehler bei den chem. Analysen ließen sich trotz sorgfältigen Eichungen nicht vermeiden. Mögliche Ursachen, wie z.B. Alterung der Proben sind Gegenstand weiterer Untersuchungen.
- vi) Die Kosten der chemischen Analysen sind z.Zt. bestimmend für den Kontrollaufwand. Ihre Rationalisierung und Automatisierung sowie die Entwicklung billigerer Analysenverfahren sind im Rahmen des Projektes SpFK notwendig.
- vii) Lange Proben transportzeiten und der relativ große Zeitaufwand der Isotopenverdünnungsanalysen verursachen z.Zt. zu großem Zeitverzug bei der Erstellung einer unabhängigen Bilanz und kompensieren den Vorteil schneller Datenverarbeitung durch Computerprogramme.

- viii) Der Transport heißer Eingangsproben kann wegen seines großen Zeit- und Geld-Aufwandes nur im derzeitigen Experimentierstadium gerechtfertigt werden.
- ix) Die Überwachung der Spaltstoffflüsse über 24h/d bedeutet eine zu starke Belastung des Kontrollpersonals und sollte auf die normale Arbeitszeit reduziert werden, was teilweise durch Installation automatischer Schreiber in einem strategischen Punkt ermöglicht werden kann.

Die Autoren möchten sich an dieser Stelle bei Prof. Häfele, Dr. Gupta und Herrn Gmelin für ihre Unterstützung und Diskussionsbeiträge bedanken. Besonderer Dank gilt Dir. Rometsch und vielen anderen Mitarbeitern der EUROCHEMIC, die das Experiment tatkräftig unterstützten.

Tab. 2-1: Spaltstoffflüsse und deren Überwachungseinrichtungen, die während des 1. Kontrollexperimentes überwacht wurden (siehe Abb. 1a)

SP	Materialtyp	Messtank Nr. s. Abb. 1b	Instrumentierung <sup>1)</sup>		Probenzahl je Batch			Analyseverfahren zur Pu-Konzentrationsbest. B = Betreiber, G = GfK
			Volumen	Dichte	Eurochemic		GfK	
					Prozess	Account		
1	AFU = Active Feed, Unadjusted	221-4 (221-6)	U, R	U, R	2	3	2	Isotopenverdünnungsanalyse (B, G)
2	1 BSP = Battery Scrub Product 1st extraction cycle	251-81	U, R	U, R	2	3	2	Isotopenverdünnungsanalyse (B, G) Röntgenfluoreszenz (G)
3	HAW = High Active Waste	251-1a/b/c	R	R	1	-	1	α-Zählung (B)
4	1 SRW = Solvent Recovery Waste 1st cycle	252-11	R	R	1	-	1 (teilweise)	α-Zählung (B)
5	2 DF = Extraction Contactor (2nd U-cycle) feed	232-12	R	R	1	-	-	α-Zählung (B)

1) U = U-Rohrmanometer in der Transmittergalerie      R = Recorder in der Panelgalerie

Tab. 2-2: Kontrollmaßnahmen an den strategischen Punkten

Kontroll- Maßnahme	Strategischer Punkt	Beschreibung der Kontrollmaßnahme	Zweck der Maßnahme
i	Panelgalerie 6. Stockwerk Gebäude 1	<ol style="list-style-type: none"> <li>1. Tägliche Ablesung der Recorderaufzeichnungen über die Volumenbewegung der Meßtanks (Tab.2-1) einschließlich deren Speise- und Folgetanks und Eintragung in ein Zeit-Volumen-Diagramm (Abb.5).</li> <li>2. Prüfung der Dichterecorder vor u. während der Probenahme. Lufteinblasung zur Homogenisierung bewirkt Dichteschwankungen.</li> <li>3. Unabhängige Ablesung u. Eintragung in SFK Form 01 der Recorderanzeige für Füllstand und Lösungsdichte vor u. nach jedem Transfer in den Meßtanks (Tab. 2-1).</li> </ol>	<ol style="list-style-type: none"> <li>1.1 Übersichtliche Darstellung des Experimentablaufes (Abb. 5)</li> <li>1.2 Prüfung der repräsentativen Probenahme</li> <li>1.3 Prüfung der Flußrichtung (in od. aus der MBA möglich)</li> <li>1.4 Hilfsmittel zur Bestimmung des zeitabhängigen Buchinventars der MBA</li> <li>2.1 Prüfung der erforderlichen Homogenisierungsmaßnahmen</li> <li>3.1 Meßwerte zur Berechnung des Lösungsvolumens pro Transfer</li> <li>3.2 Redundante Meßwerte für SP1 und SP2</li> </ol>
	Transmitter- galerie 5. Stockwert Gebäude 1	<ol style="list-style-type: none"> <li>4. Überwachung der Spülluftströme in den Tauchrohren mit Hilfe der Rotameteranzeige vor jeder Manometerablesung.</li> <li>5. Vor jeder Manometerablesung Lecktest durchführen und Druckausgleich in beiden U-Rohrschenkeln herstellen</li> <li>6. Unabhängige Ablesung und Eintragung in SFK-Form 01 der U-Rohrmanometeranzeige vor und nach jedem Transfer in den Meßtanks SP1 u. SP2 und der Manometertemperatur</li> </ol>	<ol style="list-style-type: none"> <li>4.1 Um repräsentative Druckanzeigen an den U-Rohrmanometern zu bekommen, müssen die Spülluftströme durch alle Tauchrohre gleich sein.</li> <li>5.1 Lecktest des Druckmeßsystems u. Nullpunktkorrektur</li> <li>6.1 Meßwerte zur Berechnung der Lösungsmenge pro Transfer</li> </ol>

Fortsetzung Tab. 2-2

Kontroll- Maßnahme	Strategischer Punkt	Beschreibung der Kontrollmaßnahme	Zweck der Maßnahme
ii	Probenahme- galerie	7. Positionsprüfung des Probefläschchens am entsprechenden Nadelblock. Eintragung der Probenflaschen- u. Kartuschen-Nummer in SFK-Form 01. (Abb. 3) 8. Überwachung der Zirkulationszeit (=10 Min.) im Probenahmesystem. 9. Überwachung der richtigen Probenzahl entsprechend Tab. 2-1 10. Telefonische Rückfrage über ordnungsgemäße Ankunft der Proben im analytischen Labor durch das Rohrpostsystem.	7.1 Probenahme am richtigen Tank vollzogen. 7.2 Probenidentifikation 8.1 Repräsentative Probenahme 10.1 Überwachung der Probentransporte im Rohrpostsystem.
iii	Analytisches Laboratorium	11. Überwachung der Probeneingänge mit Hilfe von Maßnahme ii/10. 12. Überwachung der Probenverteilung an die verschiedenen Labors bzw. in die Lagerbox für GfK-Proben. 13. Überwachung der Analysendurchführung der Accountability-Proben von SP1 und SP2. Insbesondere Dichtemessung u. Spikekontrolle. 14. Eintragung aller Analyseergebnisse von SP1-SP5 in SFK-Form 40. 15. Vorbereitung von Maßnahme iv)	11.1 Probenidentifikation 12.1 Probenidentifikation 14.1 Auswertung der Ergebnisse 15.1 Überwachung des Probentransportes

Tab. 4-1: Pu-Gehalt  $\overline{[mg Pu]}$  in den eingesetzten Spüllösungen, die an den Endpunkten der 5 Spülzonen gemessen wurden

Spülvorgang Nr.	231-1	SP2	SP3	SP4	SP5	$\Sigma$
1	6280	11	3408	40	60	9799
2	6720	-	806	-	2	7528
3	936	-	16050	-	-	16986
4	-	-	620	-	-	620

Tab. 4-2: Physikalische Inventur für Pu in der gewählten Materialbilanzzone vor dem Experiment

Tank No.	Volumen [l]	c <sub>Pu</sub> [mg/l]	Pu [mg]	Bemerkungen
221-4	1,9	0,26	0,494	
221-6	1,1	0,03	0,033	
223-6A	19,7	0,1	1,970	
223-6B	7,7	0,11	0,847	
231-1	25,2	0,53	13,356	
231-4	2,0	0,01	0,020	
231-58A	13,5	0,01	0,135	
231-5	2,0	0,01	0,020	
231-58	13,5	0,01	0,135	
251-8b	2,5	0,01	0,025	
251-81	19,0	0,01	0,190	
231-11	5	2,1	10,500	
231-2	2,0	0,05	0,100	
231-29	25,0	2,1	52,500	
251-1A	4,3	2,1	9,030	
251-1B	3,4	1,0	3,400	
251-1C	7,0	1,26	8,820	
231-3	2,0	0,05	0,100	
231-4	2,0	0,05	0,100	
231-6	2,0	0,05	0,100	
252-1	9,8	0,05	0,490	
252-11	2,0	0,05	0,100	
232-41	62,1	0,079	4,906	
232-4	5,0	0,079	0,395	
241-2A	7,6	0,079	0,600	
241-2B	1,2	0,07	0,084	
241-3A	35,0	0,07	2,450	
241-3B	35,0	0,07	2,450	
241-4A	3,7	0,07	0,259	
232-12	0,4	0,01	0,004	
234-1A	600	0,67	402.	} Organisches Lösungs- mittel
234-1B	475	0,877	416.	
234-4	2650	1,14	3020.	

Gesamt 3952. mg Pu

Tab. 4-3: Physikalische Inventur des Pu im organischen Lösungsmittel nach dem Experiment

Tank No.	Volumen [l]	c <sub>Pu</sub> [mg/l]	Pu [mg]
234-1A	600	0,454	272
234-1B	820	0,702	575
234-4	2100	0,468	982

Gesamt 1829. mg Pu



Tab. 4-4: Transport der GfK-Proben von Mol nach Karlsruhe

Transport-Daten	Proben Kap.4	Behältertyp	Beh.Gewicht	Transportkosten
5.11.68	a) u. b)	TN4	4 to	5.920,-- DM
20.12.68	c)	BF12	150 kg	1.741,-- DM

Tab. 4-5: Kostenanteile beim Transport radioaktiver Proben von Eurochemic nach Karlsruhe (GfK)

1. Behältermiete und Transport	72 %
2. Strahlenschutzbegleitung	7 %
3. Genehmigungen, Sicherheitsberichte	8 %
4. Verwaltungs- und Gemein-Kosten	7 %
5. Versicherungen	1 %
6. Unternehmerrisiko und Gewinn	5 %

Tab. 5-1: Pu-Bilanz des 1. Kontrollexperimentes in der Wiederaufarbeitungsanlage EUROCHEMIC (Mo1)

	GfK (gr.Pu)	Betreiber (gr.Pu)
a) Physikalische Inventur vor dem Experiment	4,0 <sup>1)</sup>	4,0
b) Eingang	831,6	852,5
c) Summe (a+b)	835,6	856,5
d) Produkt	804,1	847,7
e) gemessene Verluste	18,0 <sup>1)</sup>	18,0
f) physikalische Inventur nach dem Experiment	2,0 <sup>1)</sup>	2,0
g) Summe (d+e+f)	824,1	867,7
h) Fehlbetrag (MUF) (c-g)	+ 11,5	- 11,2
i) Ausbeute (d/b)	96,5 %	99,5 %
j) Summe (c+g)	1659,7	1724,2
<sup>1)</sup> keine GfK-Gegenanalyse durchgeführt		

Tabelle 5-2:				Betreiberdaten			GfK		5)		Pu-Total (gr Pu/Batch)	
	Batch-Identif.	Tank Dichte (g/l)	Volumen (l)	Menge (kg)	Lab. Dichte (g/l)	Pu-Konz. 1) (mgPu/l)	Stand. 2) Abweich. (%)	Pu-Konz. 1) (mgPu/l)	Stand. 2) Abweich. (%)	Abweich. d.GfK und Betreiberanalysen (%)	Pu-Total (gr Pu/Batch)	
											Betreiber	GfK
Eingang	AFU 100	1,333	1973,	2630,	1,327	70,1	0,8	69,5	0,5	-0,9	138,9	137,7
	AFU 200	1,356	1683,	2282,	1,358	79,5	0,2	81,0	1,2	+1,9	133,6	136,1
	AFU 300	1,331	1836,	2444,	1,317	67,0	0,7	66,1	0,4	-1,3	124,3	122,6
	AFU 400	1,369	1580,	2163,	1,374	65,2	1,9	60,0	0,4	-8,0	102,6	94,5
	AFU 500	1,356	1683,	2282,	1,357	74,7	1,0	71,5	0,1	-4,3	125,6	120,2
	AFU 600	1,367	1843,	2519,	1,362	87,8	1,0	84,7	-3)	-3,5	162,4	156,7
	AFU 700	1,156	2308,	2668,	1,155	28,2	0,0	27,6	0,7	-2,1	65,1	63,8
	Total:				16988,							852,5
	Mittelwerte:	1,324			1,321		0,8		0,6		100 %	97,5%
Produkt	1BSP 100	1,044	1567,	1636,	1,040	397,7	-3)	372,0 <sup>4)</sup>	-3)	-6,5	625,6	585,2
	1BSP 200	1,050	2096,	2201,	1,0525	106,2	-3)	104,7	0,3	-1,4	222,1	218,9
	Total:										847,7	804,1
											100 %	94,9 %

1) Isotopenverdünnungsanalyse

2) Relative Standardabweichung der Analysenergebnisse von 2 unabhängigen Proben:

$$Sc = \sqrt{2 \frac{(C_1 - C_2)^2}{(C_1 + C_2)^2}}$$

3) Nur ein Analysenwert verfügbar

4) Röntgenfluoreszenzanalyse

5)  $\frac{\bar{C}_{GfK} - C_{Betr.}}{C_{Betr.}}$

Tabelle 5-3: Isotopenzusammensetzung für Eingang und Produkt

Batch Nr.	Pu-238 <sup>*)</sup>	Pu-239	Pu-240	Pu-241	Pu-242	Labor
AFU 100	0,048	92,19	7,16	0,51	0,08	Eurochemic IRCh (GfK) $\Delta c/c$
	0,0274	91,851	7,565	0,517	0,039	
	-43,0	-0,4	+ 5,6	+ 1,4	- 50,0	
AFU 200	0,049	91,67	7,71	0,54	0,06	Eurochemic IRCh (GfK) $\Delta c/c$
	0,0279	91,470	7,796	0,660	0,046	
	-43,0	-0,2	+1,2	+22,2	- 16,6	
AFU 300	0,051	92,44	6,77	0,62	0,12	Eurochemic IRCh( GfK) $\Delta c/c$
	0,022	92,749	6,767	0,437	0,025	
	-57,0	+0,3	-0,3	-29,0	-75,0	
AFU 400	0,039	91,72	7,35	0,75	0,15	Eurochemic IRCh (GfK) $\Delta c/c$
	0,0262	92,138	7,264	0,532	0,051	
	-33,0	+0,4	-1,2	-30,0	-66,7	
AFU 500	0,058	91,83	7,47	0,55	0,09	Eurochemic IRCh (GfK) $\Delta c/c$
	0,027	91,931	7,459	0,542	0,041	
	-53,0	+0,1	-1,3	-1,8	-55,5	
AFU 600	0,099	91,55	7,69	0,60	0,06	Eurochemic IRCh (GfK) $\Delta c/c$
	0,030	91,642	7,719	0,568	0,042	
	-70,0	+0,1	+0,4	-5,0	-33,3	
AFU 700	0,055	90,51	8,49	0,76	0,19	Eurochemic IRCh (GfK) $\Delta c/c$
	0,0312	90,993	8,239	0,659	0,067	
	-43,0	+0,5	-3,0	-13,2	-63,3	
LBSP100	0,03	91,95	7,42	0,55	0,05	Eurochemic IRCh (GfK) $\Delta c/c$
	0,0279	91,893	7,494	0,541	0,046	
	-7,0	-0,1	+1,0	-1,8	-8,0	
LBSP 200	0,03	91,30	7,68	0,75	0,24	Eurochemic IRCh (GfK) $\Delta c/c$
	0,0295	91,708	7,646	0,567	0,050	
	-2	+0,4	-0,4	-24,0	-79,1	

\*) Die PU-238 Werte wurden durch  $\alpha$ -Spektroskopie ermittelt.

$$\frac{\Delta c}{c} = \frac{C_{\text{IRCh}} - C_{\text{EUROCHEMIC}}}{C_{\text{EUROCHEMIC}}} \cdot 100 \text{ [\%]}$$

Tabelle 5-4: Pu-Isotopenbilanz für Eingang und Produkt [gr Pu-Isotop/Batch]

	Batch Ident.	Pu-238		Pu-239		Pu-240		Pu-241		Pu-242	
		Betr.	GfK	Betr.	GfK	Betr.	GfK	Betr.	GfK	Betr.	GfK
EINGANG	AFU 100	0,07	0,04	128,05	126,48	9,94	10,42	0,71	0,71	0,11	0,05
	AFU 200	0,07	0,04	122,47	124,49	10,30	10,61	0,72	0,90	0,08	0,06
	AFU 300	0,06	0,03	114,90	113,71	8,42	8,28	0,77	0,54	0,15	0,03
	AFU 400	0,04	0,02	94,10	87,07	7,54	6,86	0,77	0,50	0,15	0,05
	AFU 500	0,07	0,03	115,34	110,50	9,38	8,97	0,69	0,65	0,11	0,05
	AFU 600	0,16	0,05	148,68	143,59	12,49	12,10	0,97	0,89	0,10	0,07
	AFU 700	0,04	0,02	58,92	58,06	5,53	5,26	0,49	0,42	0,12	0,04
	Total	0,51	0,23	782,46	763,90	63,60	62,50	5,12	4,61	0,82	0,35
PRODUKT	LBSP100	0,19	0,16	575,24	537,76	46,42	43,85	3,44	3,17	0,31	0,27
	2BSP100	0,07	0,06	202,78	200,75	17,06	16,74	1,67	1,24	0,53	0,11
	Total	0,26	0,22	778,02	738,51	63,48	60,59	5,11	4,41	0,84	0,38
Ausbeute/ <u>%</u>		51,0	95,6	99,4	96,7	99,8	96,9	99,8	95,7	102,4	108,6

Tab. 5-5: Relative Standardabweichung  $\sqrt{\%}$  der Einzelmessungen zur Überwachung der Spaltstoffflüsse (SP1-SP5) (vgl.Tab. 2-1)

SP	Menge	Volumen	Pu-Konzentration <sup>1)</sup>	Analysenverfahren
1	0,4 <sup>2)</sup>	-	0,7	Isotopenverdünnung
2	0,6	-	0,7	"
3	-	5	50	$\alpha$ -Zählung
4	-	5	50	"
5	-	5	100	"
Inventur	-	5	50	"

1) aus  $\sqrt{4}$

2) in Anhang 3 wurde eine detaillierte Fehleranalyse der Mengenummessung in Eingangstank 221-4 durchgeführt  
Siehe auch  $\sqrt{5}$

Tab. 5-6: Fehlerpropagation der Pu-Bilanz

Spaltstofffluß	$\sum_i c_i$ $\sqrt{g Pu}$	k	nc	$\delta_k$ $\sqrt{\%}$	$\sigma_k$ $\sqrt{gPu}$	$\sigma_k^2$
Inventur	+ 4,0	3	1	29,0	1,2	1,35
SP1	+ 852,5	7	2	0,24	2,1	4,35
SP2	- 847,7	2	1	0,65	5,5	30,5
SP3	- 10,4	12	1	14,5	1,5	2,27
SP4	- 6,3	9	1	15,9	1,0	1,0
SP5	- 1,3	12	1	29,0	0,4	0,14
Inventur	- 2,0	3	1	29,0	0,6	0,34

MUF = - 11,2

$\sum \sigma_k^2 = 39,95$

$\sigma_{ges} = \pm 6,3 g Pu$

Tab.5-6:

Vergleich der Uranbestimmungen am Eingang durch 2 unabhängige Laboratorien

Batch Identif.	Betreiber		GfK		$\Delta_{c/c}^{4)}$
	U-Konz. 1)	Stand. Abw. 3)	U-Konz. 2)	Stand.-Abw. 3)	%
	g/l	%	g/l	%	
AFU 100	62,24	0,01	60,88	0,46	-2,2
AFU 200	68,96	0,10	68,26	1,13	-1,0
AFU 300	64,73	0,76	64,11	0,26	-1,0
AFU 400	68,47	0,15	70,02	0,06	+2,5
AFU 500	63,49	0,07	64,00	0,46	+0,8
AFU 600	72,08	0,19	71,97	0,08	-0,2
AFU 700	24,96	0,62	24,98	0,76	+0,1
Mittelwerte		0,27		0,46	

1) Isotopenverdünnungsanalyse

2) Röntgenfluoreszenzspektrometrie

3) Rel. Stand. Abweichung der Analysenergebnisse von 2 unabhängigen Proben =

$$\sqrt{2 \frac{(C_1 - C_2)^2}{(C_1 + C_2)^2}}$$

$$4) \frac{\Delta_c}{c} = \frac{C_{GfK} - C_{Betr.}}{C_{Betr.}}$$

Tab. 6-1: Effektive Arbeitszeit der Beobachter im chem. Betrieb

Spaltstofffluß	Anlagenwäsche				Inventur		Kampagne			Anlagenwäsche			Inventur		
	TM		P	LB	LM	P	TM		P	TM	P	LB	LM	P	
SP1	3	-	9	8			7	-	55	1	3	4			
SP2	1	-	3	6	3	3	2	-	14	-	-	6	3	3	
SP3	-	9	23	48			-	12	30	-	-	12			
SP4	-	1	3	8			-	9	18	-	-	8			
SP5	-	5	12	29			-	12	18	-	-	21			
Σ der beobachteten Vorgänge	4	15	50	99	3	3	9	33	135	1	3	51	3	3	
Beobachtungszeit-Bedarf $\left[ \frac{\text{min}}{\text{Vorgang}} \right]$	60	40	15	10	40	15	60	40	15	60	15	10	40	15	
Gesamtzeit $\left[ \text{h} \right]$	4	10	12,5	16,5	2	0,75	9	22	33,75	1	0,75	8,5	2	0,75	Σ = 123,5 h

Durchschnittl.  
 aktive Arbeitszeit  
 $= \frac{123,5}{608} \text{ h}$   
 Gesamtarbeitszeit  
 $= 20 \%$

- TM = Zahl der Transfermessungen
- P = Zahl der Proben
- LB = Zahl der Level-Beobachtungen
- LM = Zahl der Level-Messungen



Tab. 6-2: Relative Bedeutung der Spaltstoffflüsse

Spaltstofffluß	SP1	SP2	SP3	SP4	SP5	Inventuren
a) Zahl der Batche	7	2	12	9	12	6
b) Spaltstoffmenge $\int \frac{DM}{g Pu} \int$	852,5	847,7	10,4	6,3	1,3	6
c) Zahl der überwachten Probenahmen	55	14	30	18	18	6
d) Überwachungs-Mann-Stunden (effektiv)	19,5	5,2	14,6	9,9	11,8	5
e) Personalkosten <sup>1)</sup> $\int \frac{DM}{Mann} \int$	311	83	233	158	188	80
f) Analysenkosten <sup>2)</sup> $\int \frac{DM}{g Pu} \int$	4900	1200	300	225	300	150
g) Kontrollaufwand $\int \frac{DM}{g Pu} \int$ (e+f)	5211	1283	533	383	48,8	230
h) Spez. Kontrollaufwand $\int \frac{DM}{g Pu} \int$ (g/b)	6,1	1,5	51	60,7	375	38,3
i) ok <sup>3)</sup> Gl. (5-3) $\int \frac{DM}{g Pu} \int$	2,1	5,5	1,5	1,0	0,4	1,3
k) B Gl. (6-1)	5,2	6,7	10,7	7,8	7,8	8,0
l) Rel. Bedeutung $\int \frac{DM}{g Pu} \int$	11,2	14,5	23,2	16,9	16,9	17,3

1) 16 DM/Mann-Stunde

2) Analysenkosten: 600 DM/ Eingangsanalyse (Isotopenverdünnung)  
500 DM/ Ausgangsanalyse (Isotopenverdünnung)  
25 DM/ Wasteanalyse ( $\alpha$ -Zählung)

3) Siehe Tab. 5-2 und 5-1

Tab. 6-3: Aufwendungen für das 1. Kontrollexperiment in der EUROCHEMIC

Posten	DM
Vertraglich festgelegte Aufwendungen an Eurochemic für spezielle Leistungen wie:  Anlagenwäsche, Probenahme der GfK-Proben Lagerkapazität für GfK-Proben Materialkosten Dienstleistungen	72.000,--
Probentransport	7.661,--
Analysenkosten	ca. 10.000,--
Personalkosten	ca. 16.000,--
Summe	105.661,--

Literaturangaben

- [1] Gmelin, W., Gupta, D., Häfele, W.  
On Modern Safeguard in the Field of Peaceful Application of  
Nuclear Energy.  
KFK 800 (1968)
- [2] v.Baeckmann, A., Gmelin, W., Gupta, D., Häfele, W.  
Fissile Material Flow Control at Strategic Points in a  
Reprocessing Plant.  
KFK 801 (1968)
- [3] Gmelin, W., Nentwich, D., Otto, H.E.  
Safeguard Exercise at the Fabrication Plant Alkem.  
KFK 901 (1969)
- [4] Frenzel, W., Heinz W., Moeken H.  
Spaltstoffbilanzen und Sicherheitskontrolle.  
Neue Technik B1/1969 S. 28-32
- [5] Franssen, F., Frenzel, W.  
Input Tank Calibrations at the Eurochemic Plant.  
ETR 236 (1969)
- [6] Gupta, D., Gmelin, W., Kraemer, R., Richter, K., Schneider, V.  
Safeguards Measures and Efforts in Conceptual Fabrication Plants  
for Uranium and Plutonium Containing Fuel Elements.  
KFK 910 (1969)

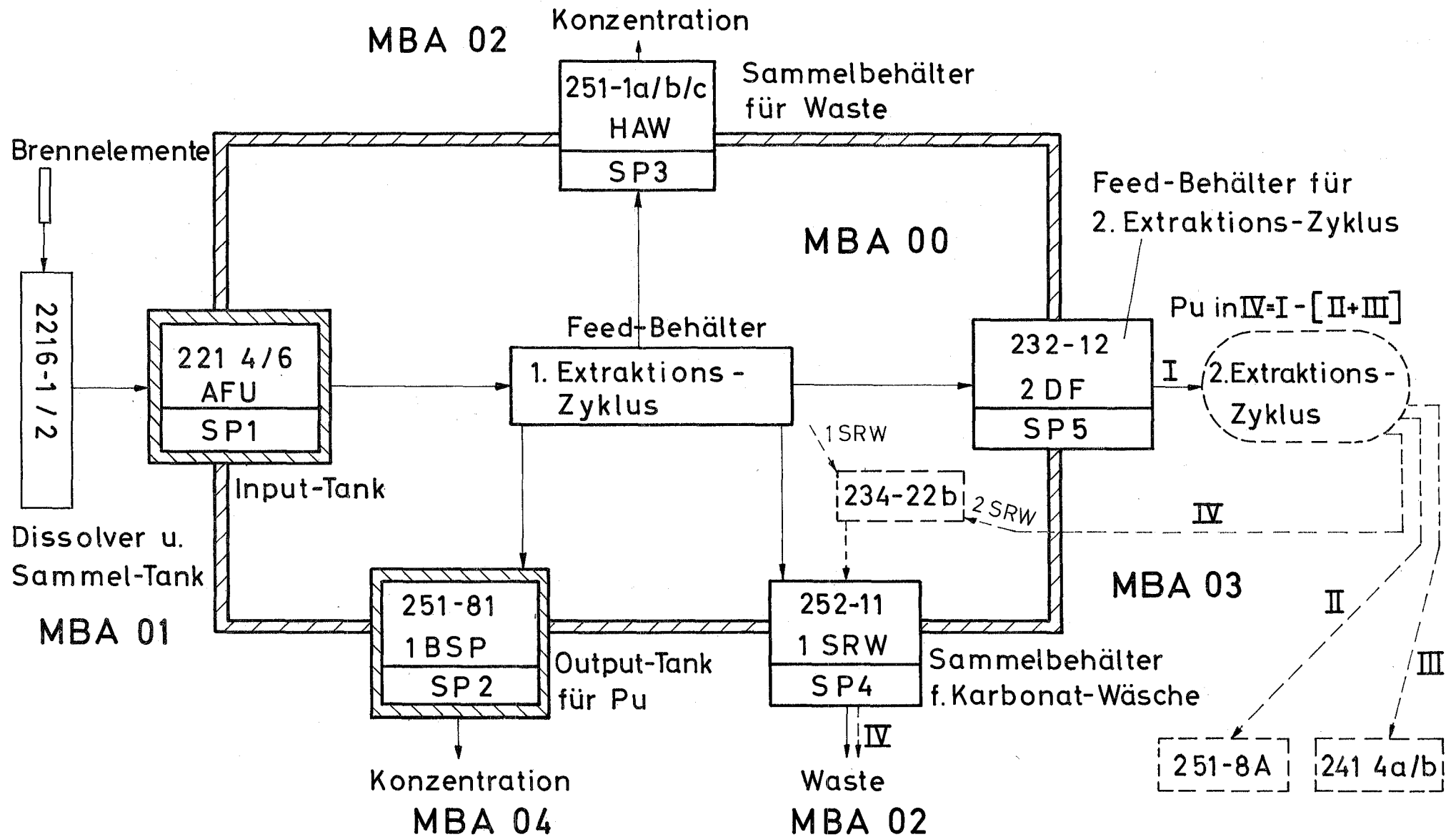
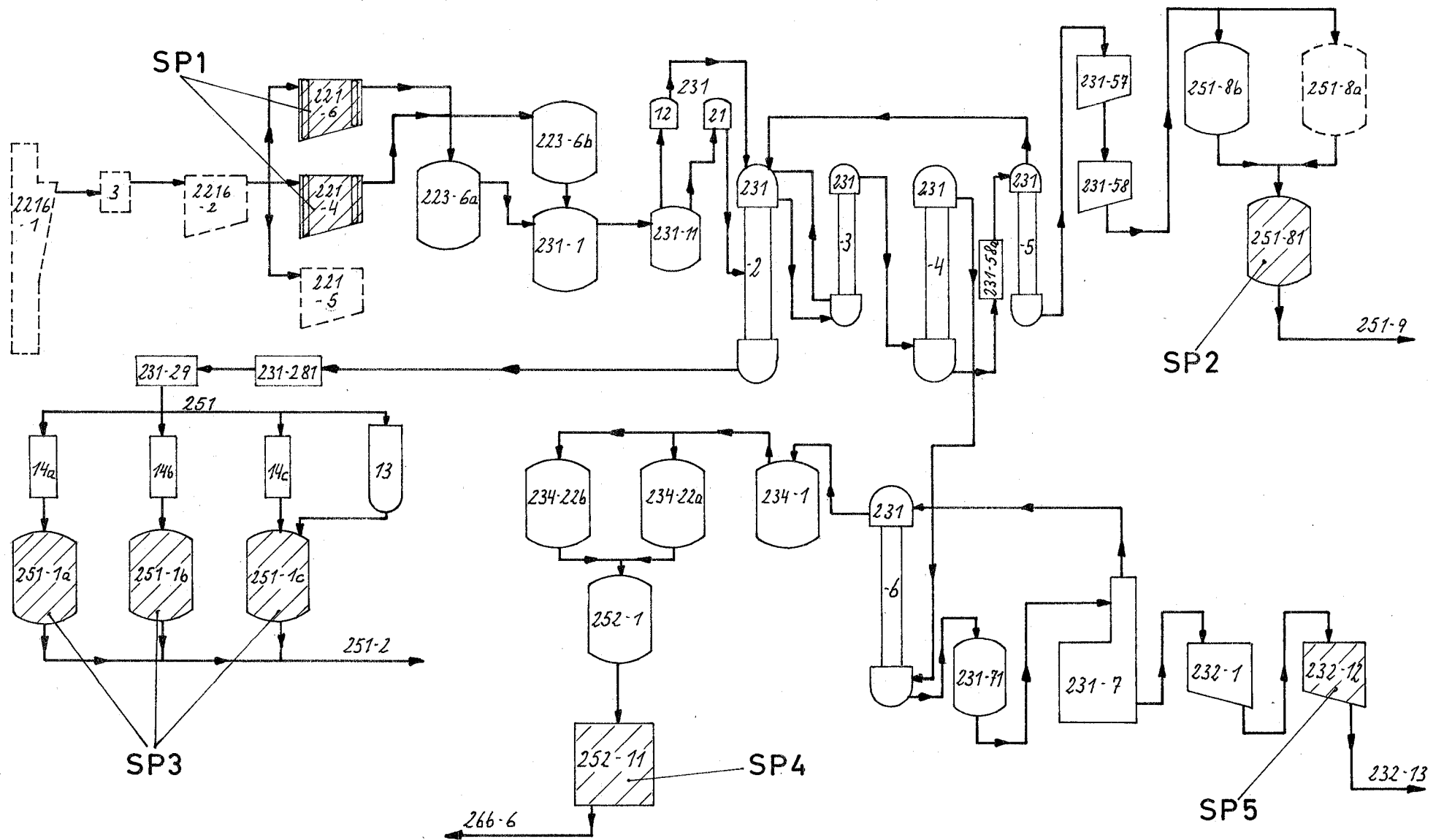


Abb.1A Fließschema für SFK-Experiment

Abb.1B Material-Bilanzzone für SFK-Experiment (MBA 00)



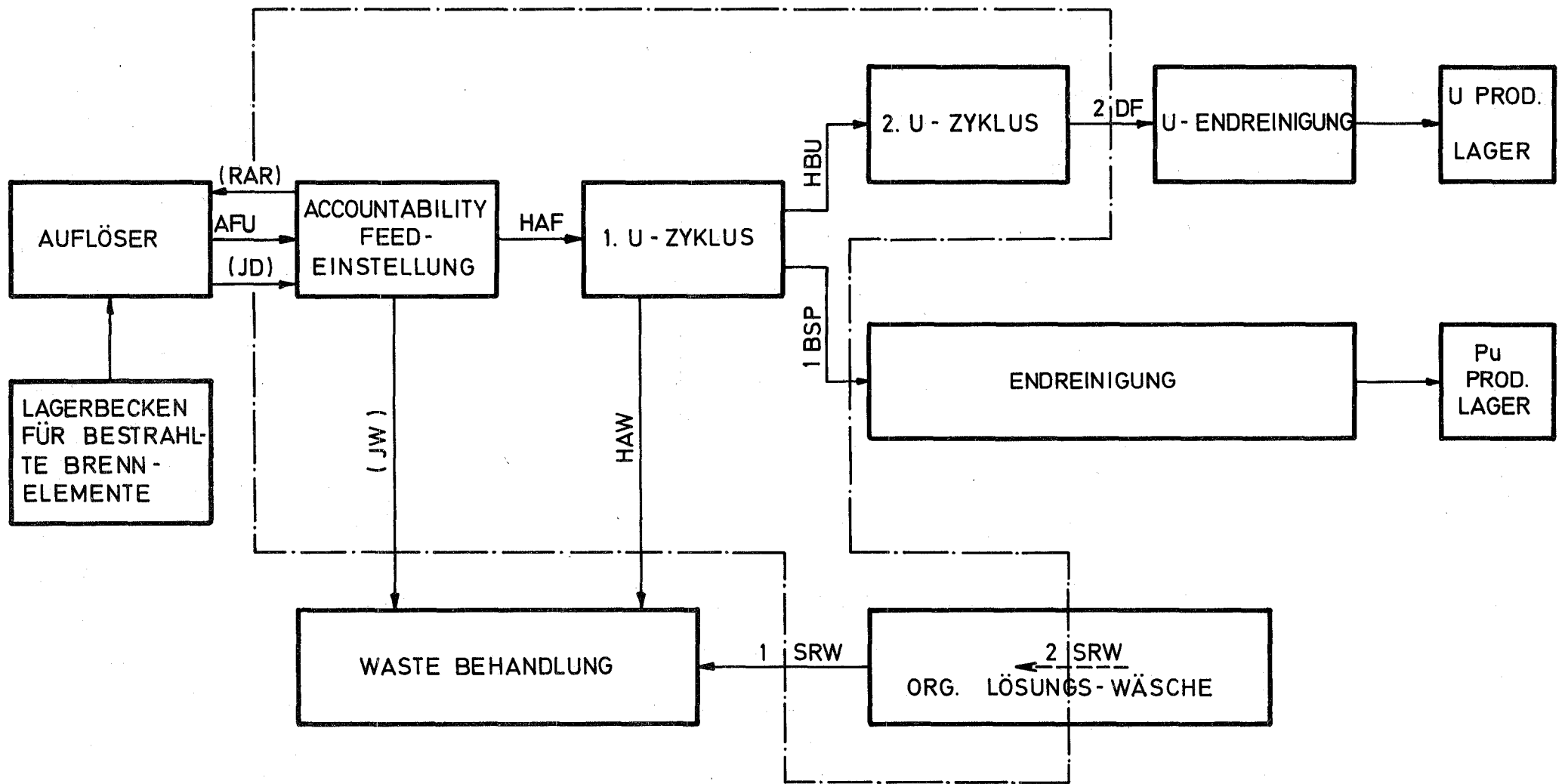
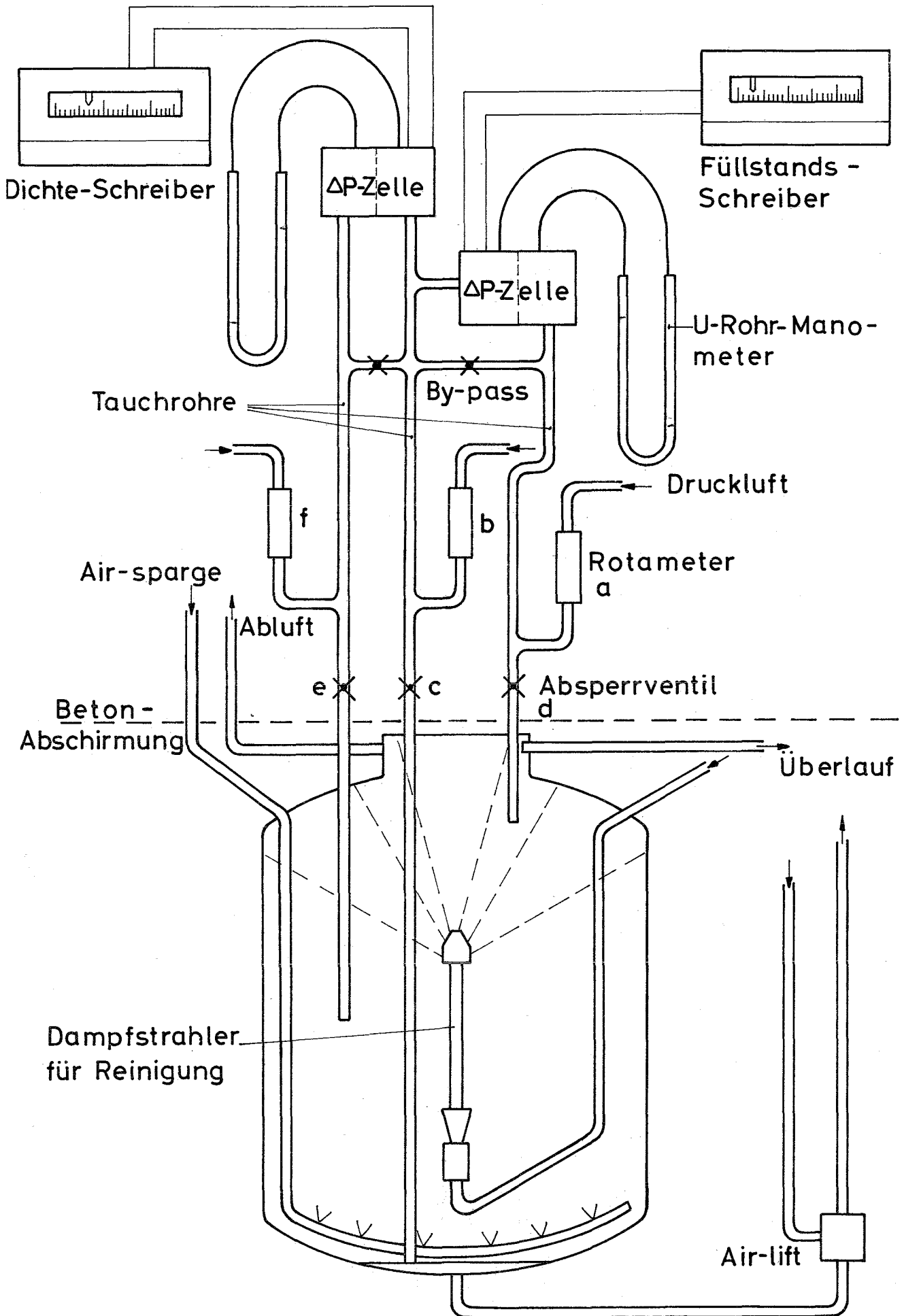


Abb. 1c Materialbilanzzone des 1. SFK Experimentes in der Eurochemic Mol / Belgien

Abb.2 Meßanordnung für Füllstand u. Dichte (schematisch)



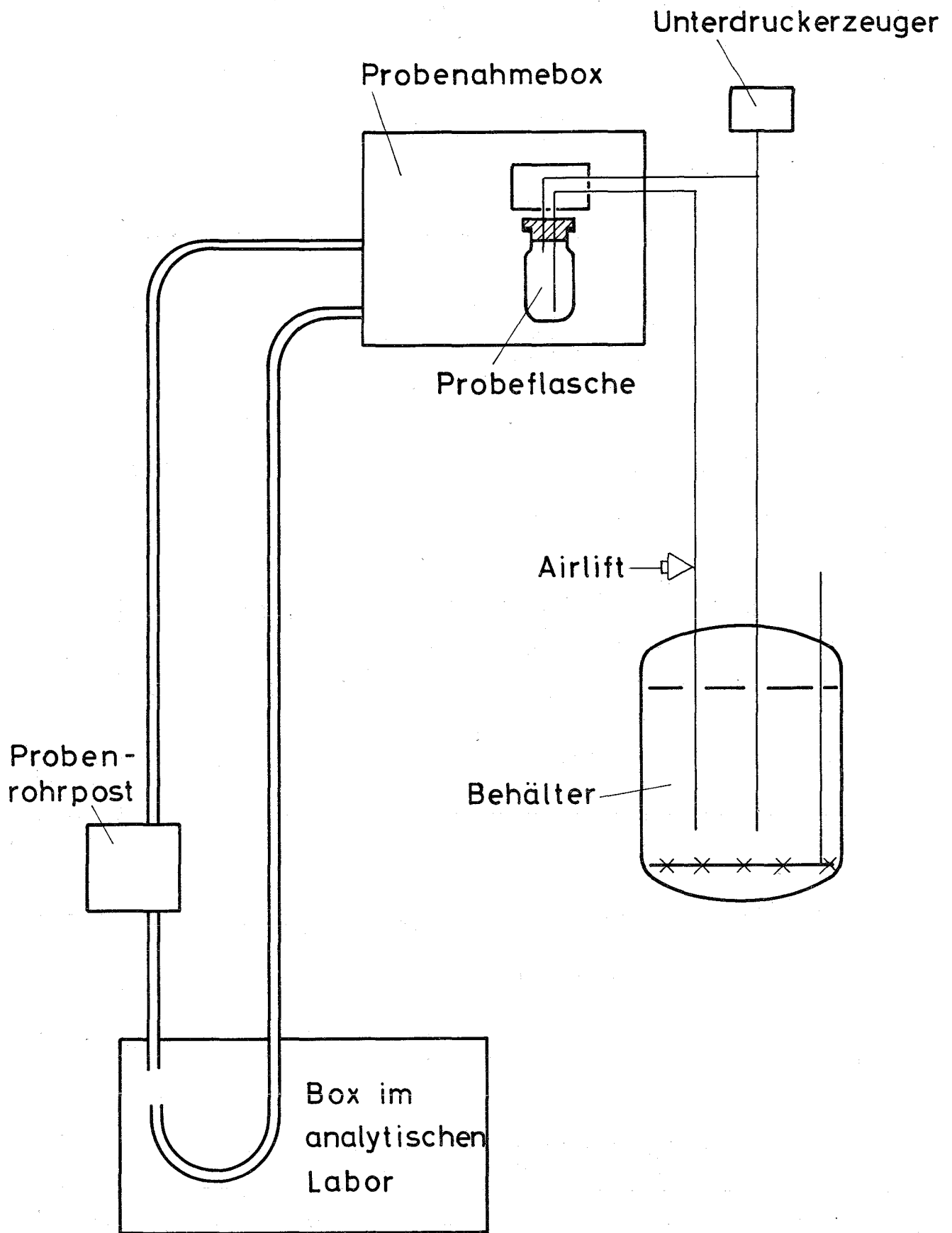
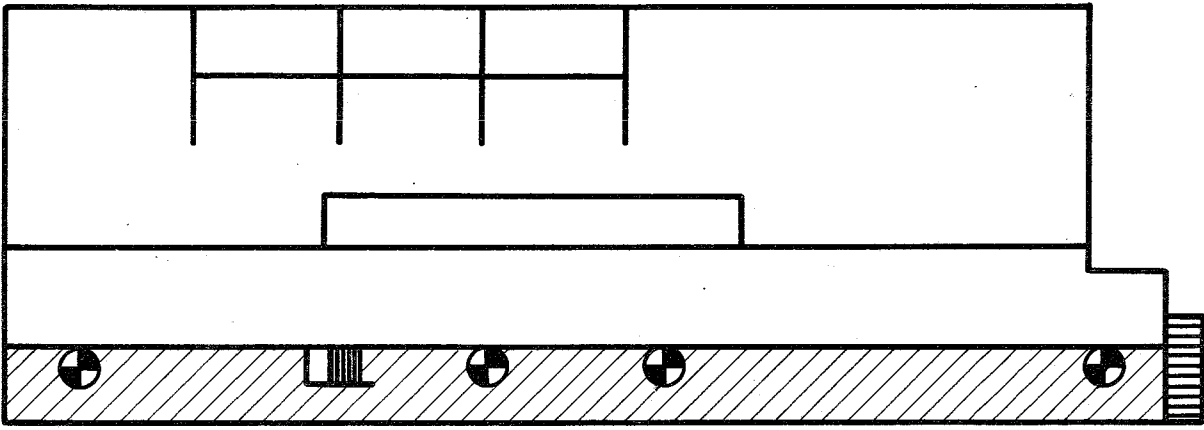


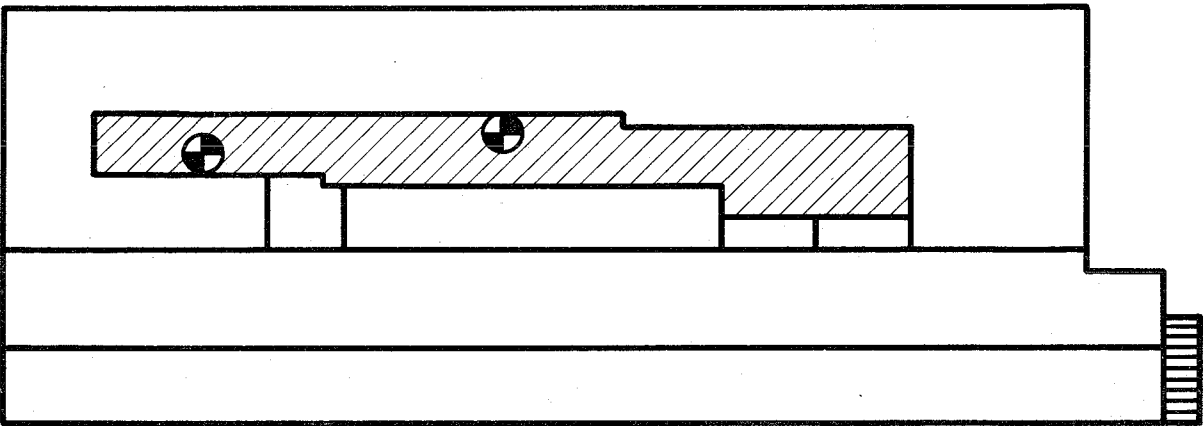
Abb. 3 Probenahmekreislauf (schematisch)



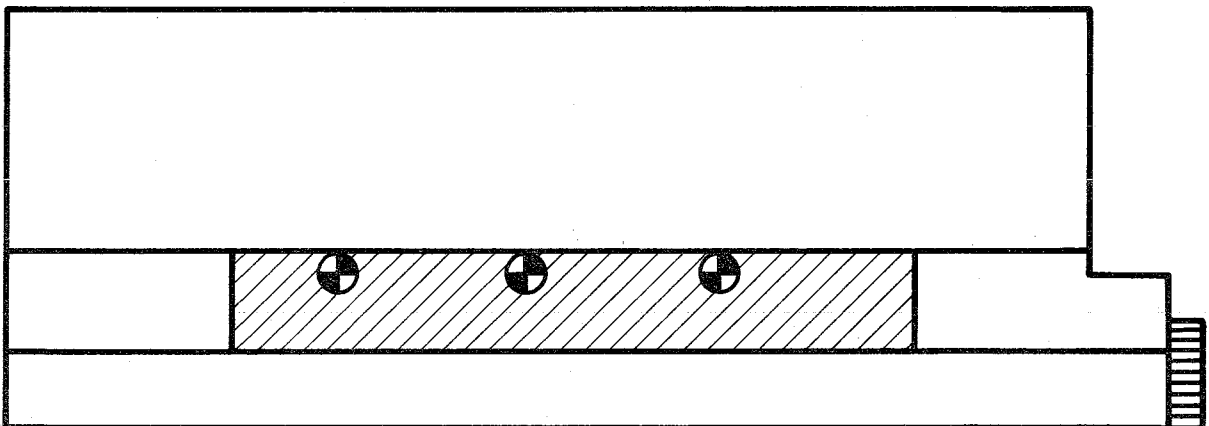
1. strategischer Punkt: Panelgalerie (6. Flur)



2. strategischer Punkt: Transmittergalerie (5. Obergeschoß)



3. strategischer Punkt: Probenahmegalerie (3. Obergeschoß)



////// strategischer Bereich

⊕ Kontrollpunkte

Abb.4 Lage der strategischen Punkte im chem. Betrieb (Gebäude 1)

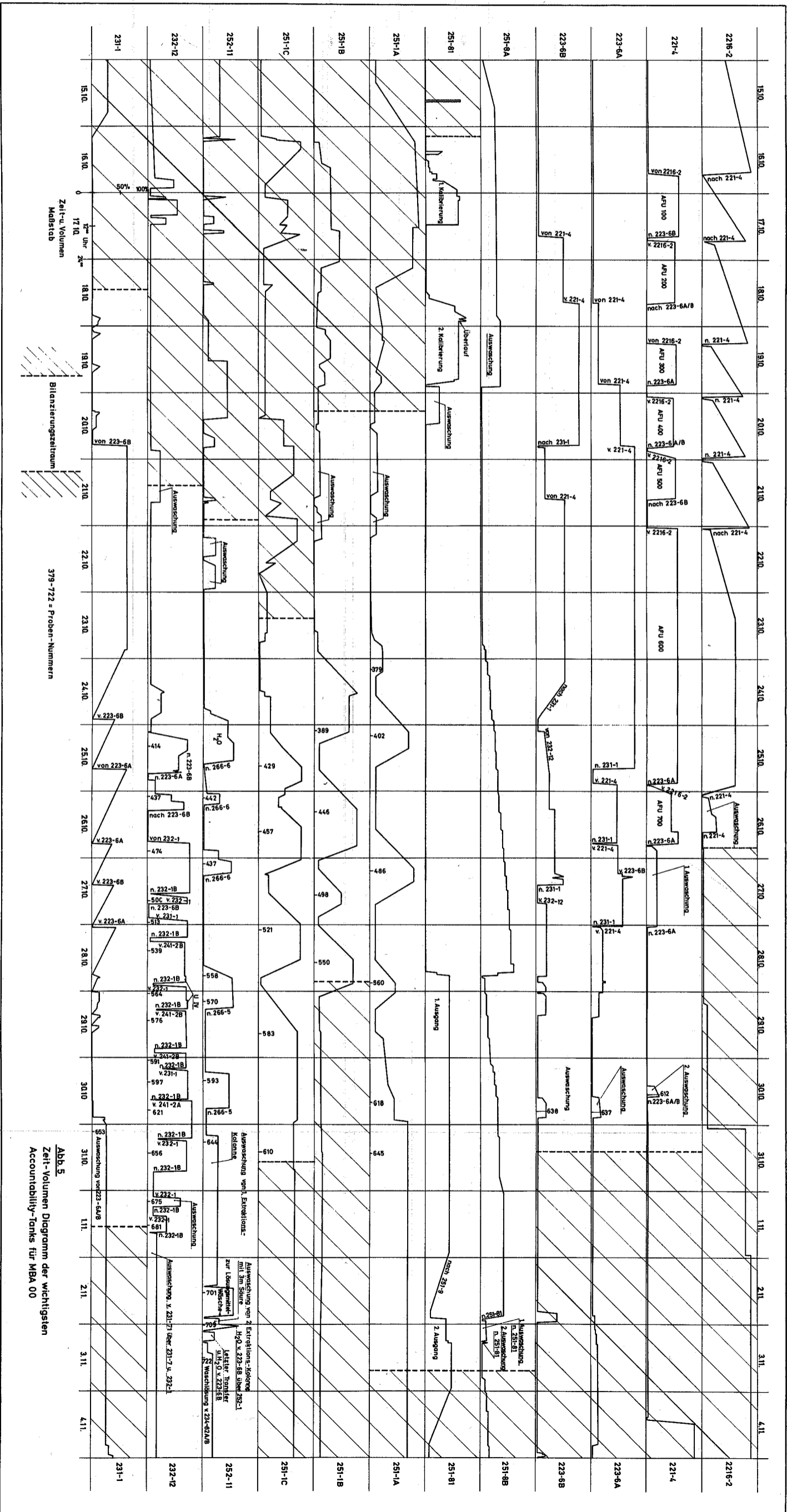
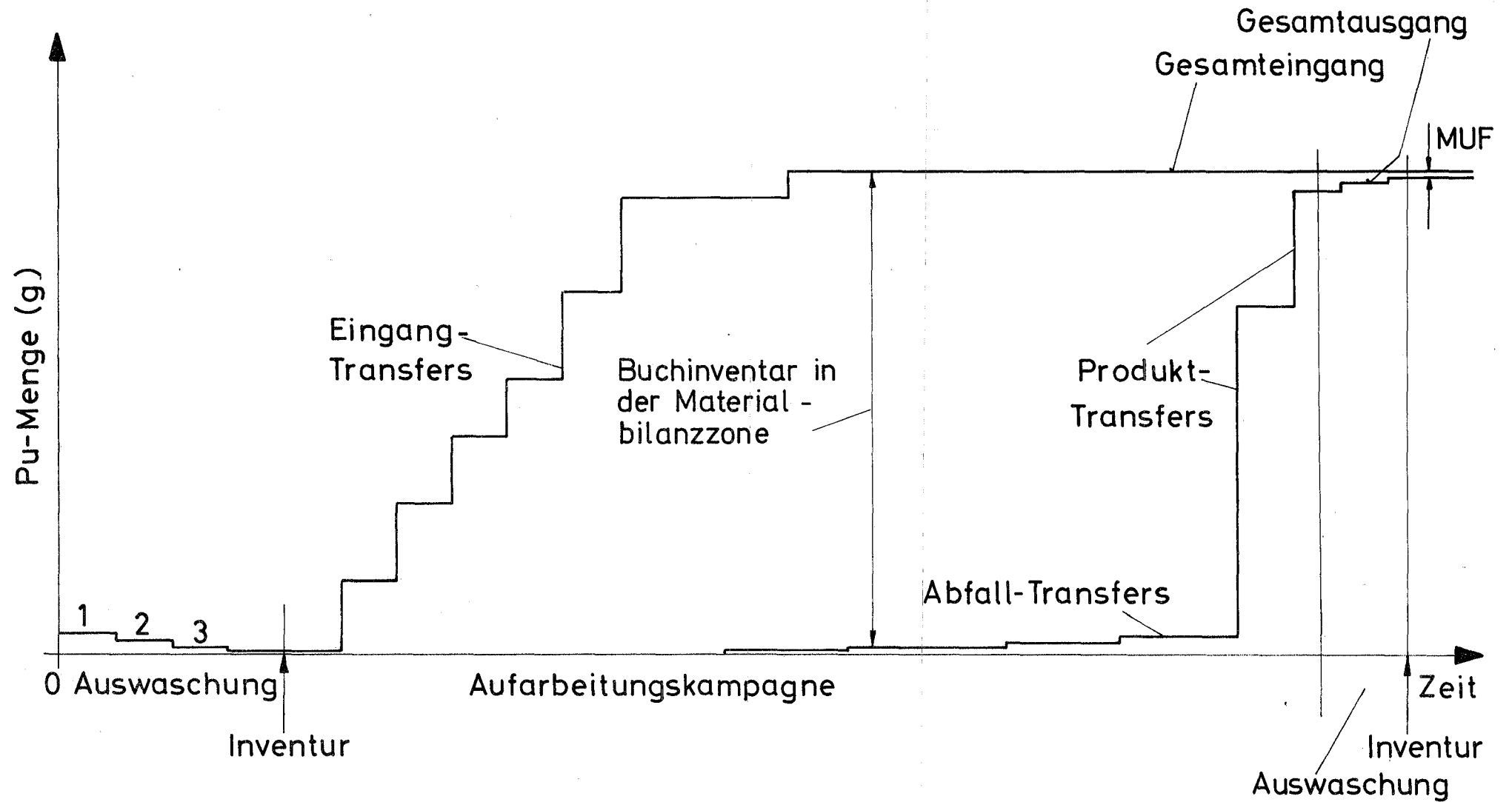


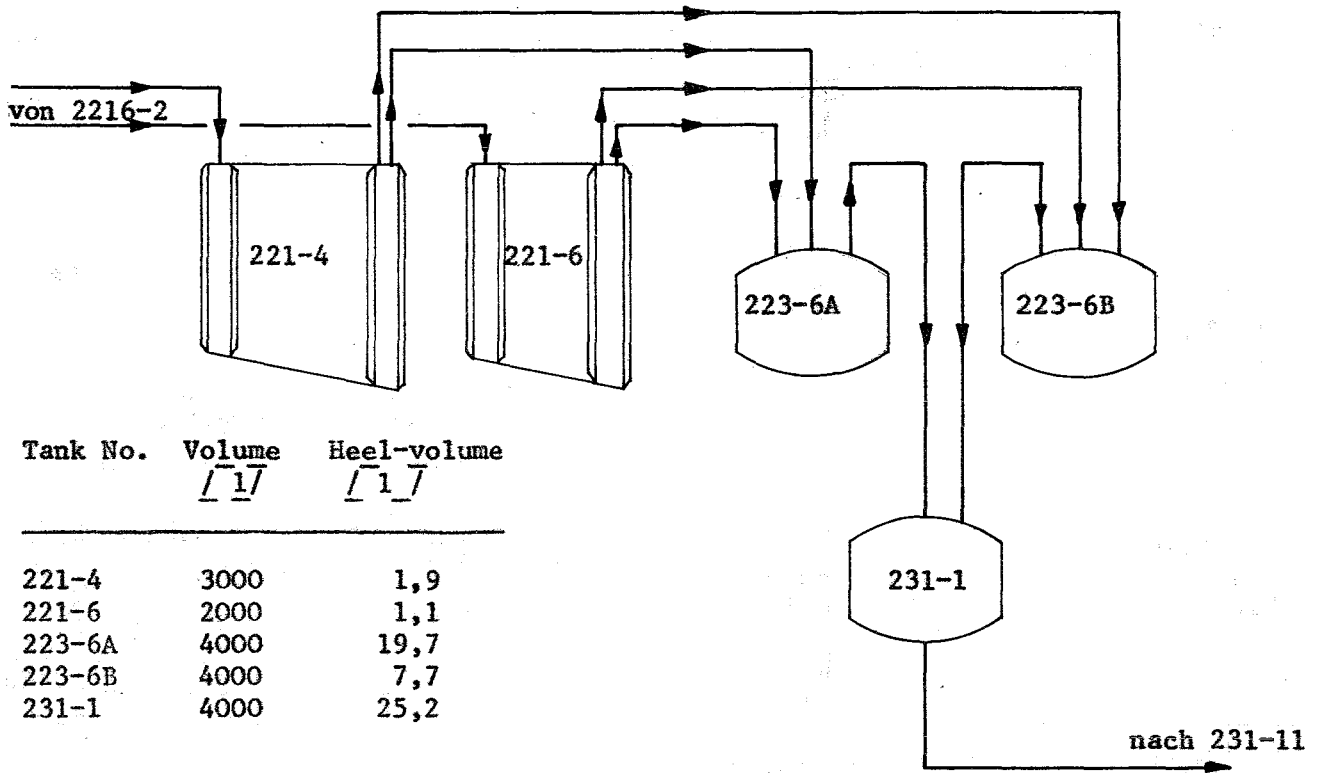
Abb. 5  
Zeit-Volumen Diagramm der wichtigsten  
Accountability-Tanks für MBA 00

Abb.6 GfK - Kontrollexperiment - Pu-Bilanz



Anhang 1

Spülvorgänge in den 5 Spülzonen



Tank No.	Volume [l]	Heel-volume [l]
221-4	3000	1,9
221-6	2000	1,1
223-6A	4000	19,7
223-6B	4000	7,7
231-1	4000	25,2

1. Rinse 12.10.68 14.45

RSTA No.	Tank No.	NMTR No.	Sample No.	Volume [l]	Pu [mg/l]
17333	221-4	2295	116	828	0,26
17334	221-6	2296	117	828	0,03
17341	223-6A		126	1500	1,94
17342	223-6B		128	1250	0,7
17345	231-1		131	2880	2,18
GfK 17346	231-1		132	2880	-
GfK 17346	231-1		133	2880	-

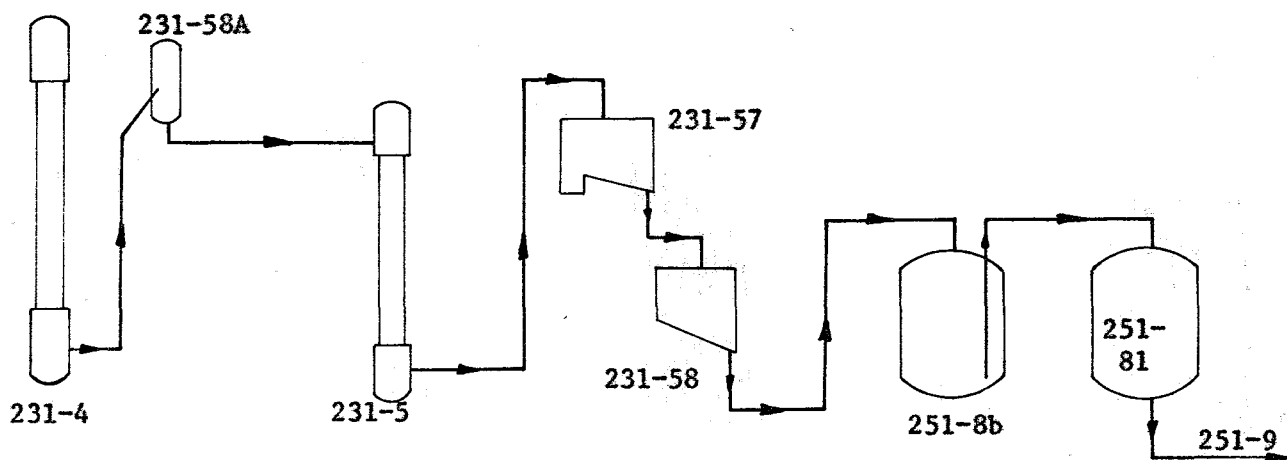
2. Rinse 13.10.68 13.30 (wiederholt ab 223-6 A/B)

17350	223-6A	2299	137	740	0,86
17351	223-6B	2300	139	830	0,02
17354	231-1		907	1794	3,74
GfK 17355	231-1		906	1794	-
GfK 17355	231-1		905	1794	-

3. Rinse 14.10.68 1.00

23064	223-6A	2302	143	740	0,1
23065	223-6B	2303	145	830	0,11
24852	231-1		147	1767	0,53
GfK 24852	231-1		148	1767	-
GfK 24852	231-1		150	1767	-

Spülvorgang in den  
Extraktions-Kolonnen / SP 2/

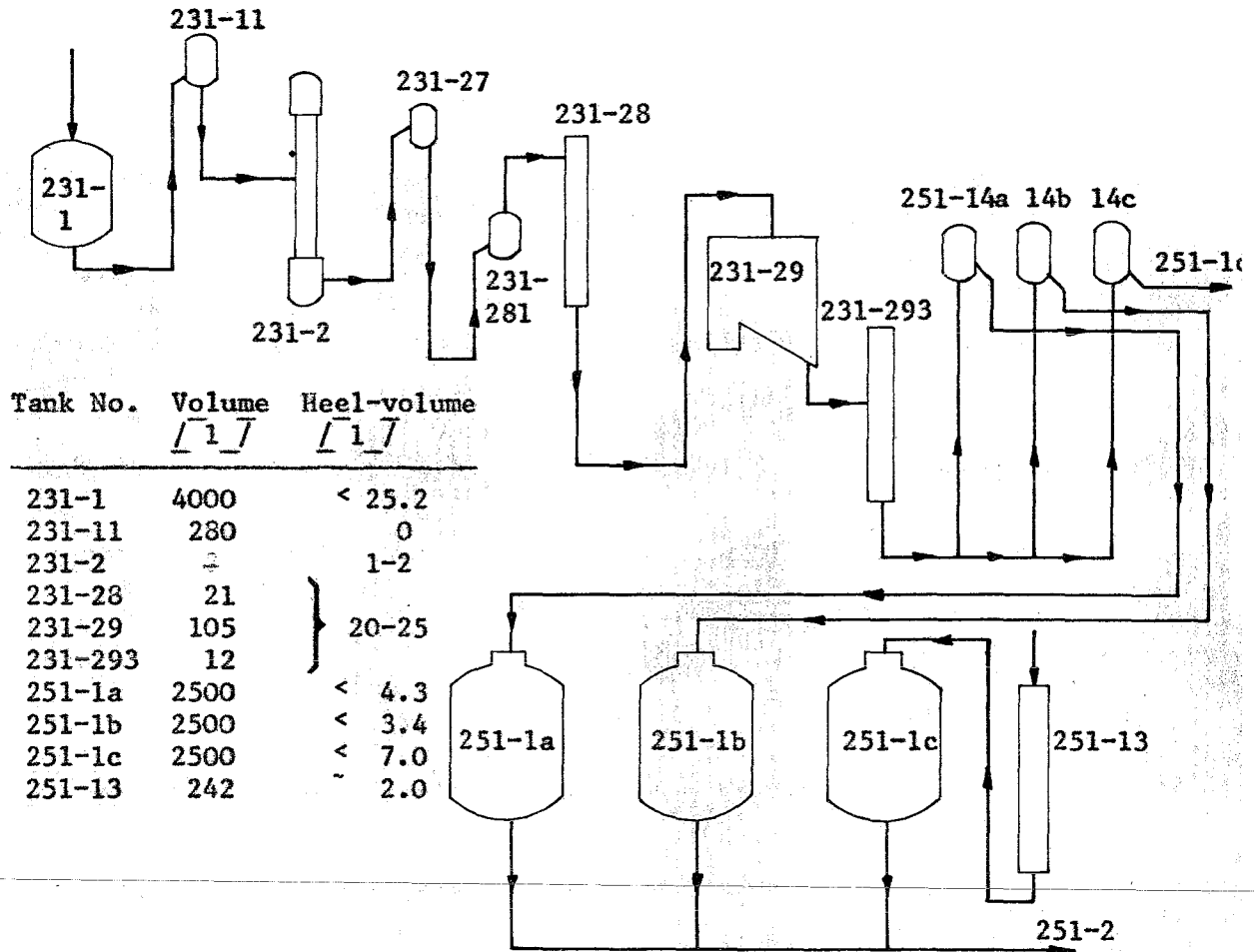


Tank No.	Volume [ l ]	Heel-volume [ l ]
231-4	-	1-2
231-58A	100	13,5
231-5	-	1-2
231-57	170	17,0
231-58	100	13,5
251-8b	2400	< 2,5
251-81	3000	<19,0

1. Rinse

RSTA No.	Tank	NMTR	Sample No.	Volume [ l ]	Pu [ mg/l ]
20509	251-81		268	1155	0,01
GfK 20507	251-81		269	1155	-
GfK 20507	251-81		270	1155	-

Spülvorgang in den  
HAW-Sammeltanks für Waste / SP 3 /



1. Rinse 19.10.68

RSTA No.	Tank	NMTR	Sample No.	Volume [l]	Pu [mg/l]
24922	251-1A		246	200	2.92
GfK 24920	251-1A		242	200	-
GfK 24920	251-1A		243	200	-
24917	251-1B		247	860	1.67
GfK 24918	251-1B		244	860	-
GfK 24918	251-1B		245	860	-

23.10.68 0.10

24970	251-1c		354	1100	1.26
GfK 24971	251-1c		355	1100	-
GfK 24971	251-1c		356	1100	-

SP 3 Fortsetzung2. Rinse

RSTA No.	Tank	NMTR	Sample No.	Volume [ <u>l</u> ]	Pu [ <u>mg/l</u> ]
24912	251-1A		260	550	9.8
24910	251-1B		258	400	6.7

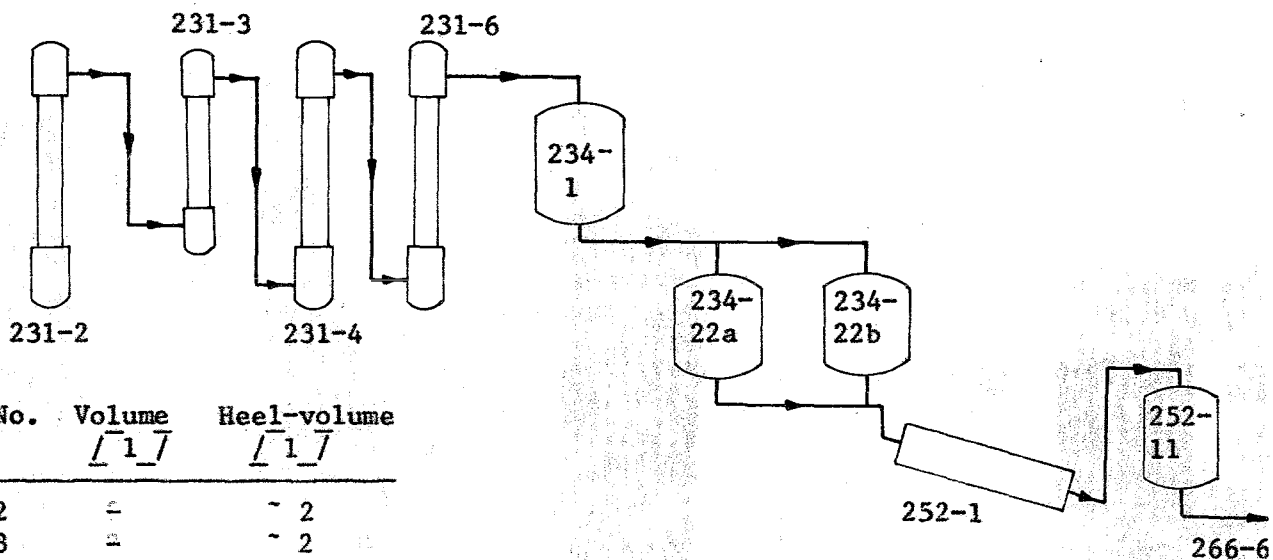
3. Rinse 20.10.68 16.30

24940	251-1A		288	400	22.7
24945	251-1B		289	250	27.8
GfK 24941	251-1A		290	400	-
GfK 24941	251-1A		291	400	-
GfK 24943	251-1B		292	250	-
GfK 24943	251-1B		293	250	-

4. Rinse 21.10.68 22.20

24966	251-1A		340	200	2.1
GfK 24964	251-1A		336	200	-
GfK 24964	251-1A		339	200	-
24963	251-1B		335	200	1.0
GfK 24965	251-1B		337	200	-
GfK 24965	251-1B		338	200	-



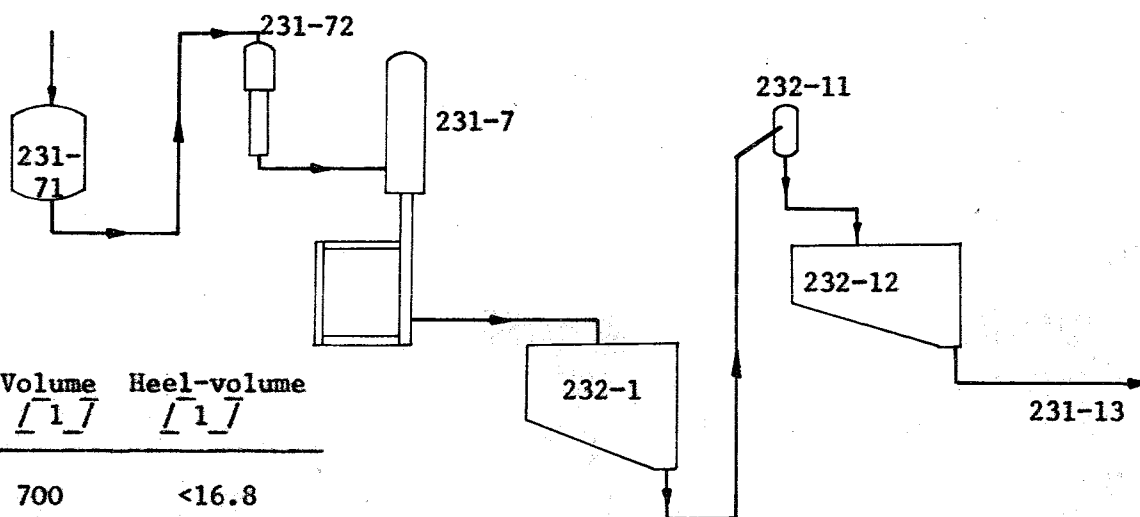


Tank No.	Volume [ l ]	Heel-volume [ l ]
231-2	~	~ 2
231-3	~	~ 2
231-4	~	~ 2
231-6	~	~ 2
234-1	4000	
234-22a	1000	
234-22b	1000	
252-1	~	< 9.8
252-11	2600	< 2

1. Rinse 22.10.68

RSTA No.	Tank	NMTR	Sample No.	Volume [ l ]	Pu [ mg/l ]
24993	252-11		347	800	$5.0 \cdot 10^{-2}$
GfK 24992	252-11		345	800	-
GfK 24992	252-11		346	800	-

Spülvorgang im  
1. Uran-Zyklus [Sp 5]



Tank No.	Volume [l]	Heel-volume [l]
231-71	700	<16.8
231-7	-	< 5.0
232-1	500	<13.0
232-12	500	< 0.4

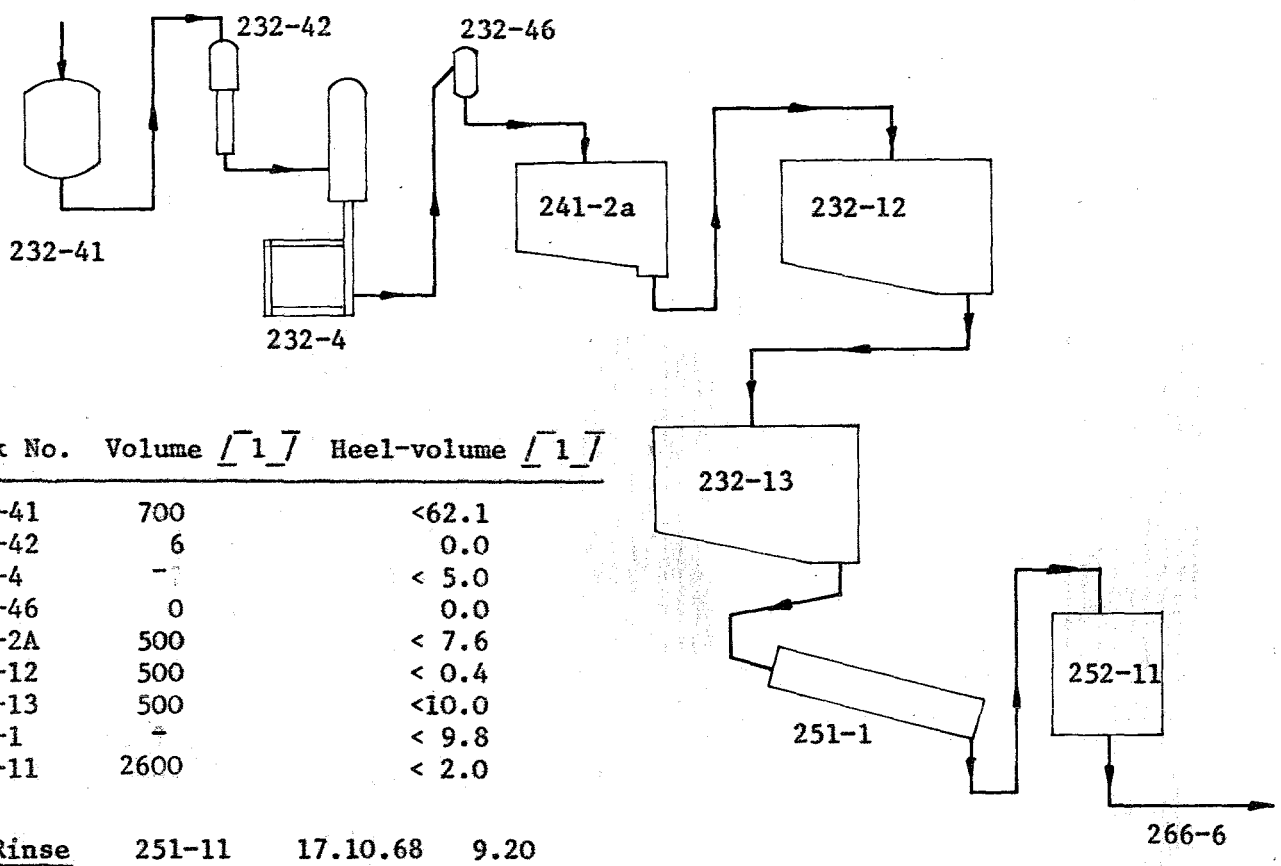
1. Rinse 17.10.68 3.30

RSTA No.	Tank	NMTR	Sample No.	Volume [l]	Pu [mg/l]
24886	232-12		196	386	$2.2 \cdot 10^{-3}$
GfK 24885	232-12		197	386	-
GfK 24885	232-12		198	386	-

2. Rinse 20.10.68 21.15 (Flush-out Tank 232-12)

24950	232-12		300	120	0.01
GfK 24951	232-12		301	120	
GfK 24952	232-12		302	120	

SP 5 Fortsetzung



Tank No.	Volume [l]	Heel-volume [l]
232-41	700	<62.1
232-42	6	0.0
232-4	-	< 5.0
232-46	0	0.0
241-2A	500	< 7.6
232-12	500	< 0.4
232-13	500	<10.0
252-1	-	< 9.8
252-11	2600	< 2.0

1. Rinse 251-11 17.10.68 9.20

RSTA No.	Tank	NMTR	Sample No.	Volume [l]	Pu [mg/l]
GfK 24869	252-11	-	202	320	-
GfK 24869	252-11	-	203	320	-

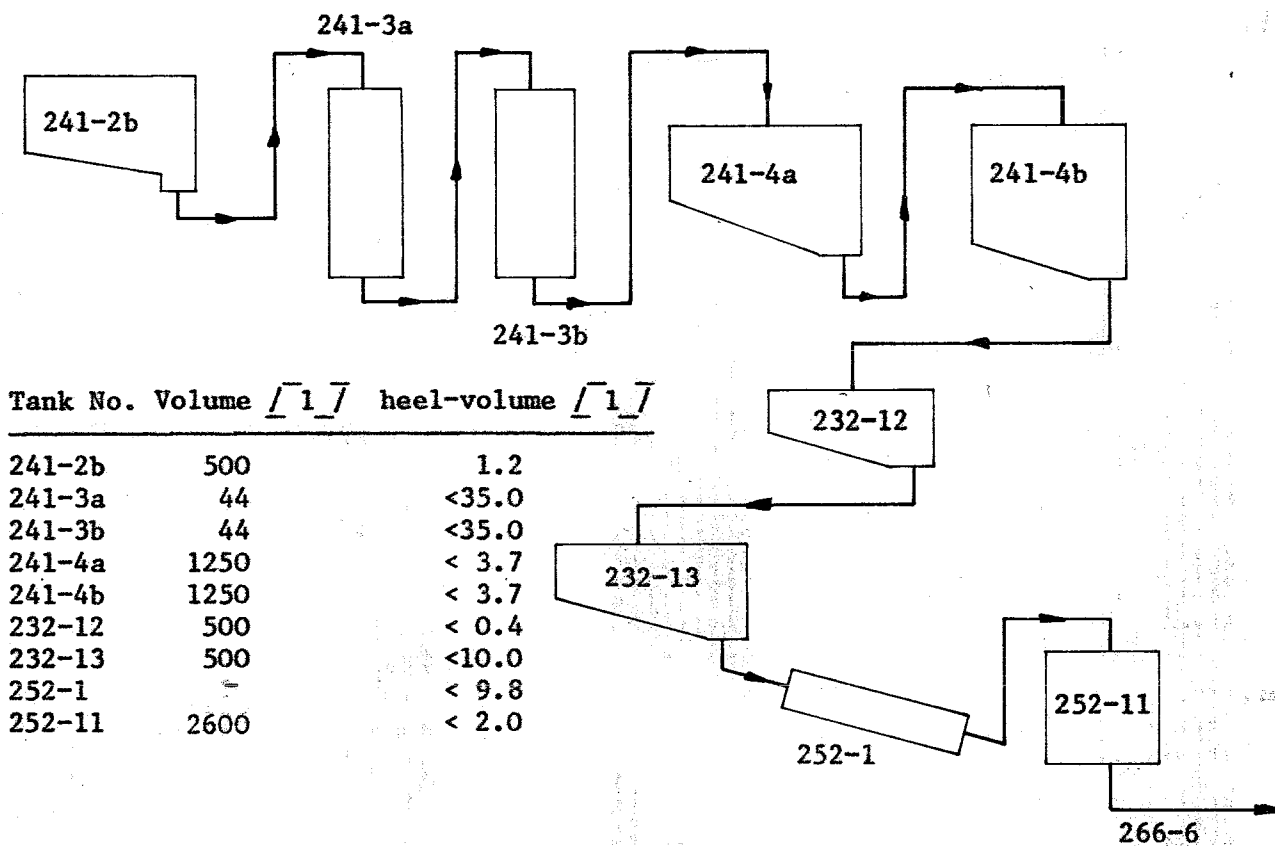
Es wurde vergessen, ein EUROCHEMIC-process sample zu ziehen. GfK stellte darauf den 1/2 Inhalt einer ihrer Proben zur Verfügung.

Obige Spüllösung kam von 231-71 über 231-7 → 232-1 nach 232-12, war also Spüllösung aus dem 1. Rinse am 17.10.68, RSTA No. 24886 und 24885.

1. Rinse 232-41 → 252-11 19.10.68 16.30

24926	252-11	256	1700	0.079
-------	--------	-----	------	-------

## SP 5 Fortsetzung



Tank No.	Volume [l]	heel-volume [l]
241-2b	500	1.2
241-3a	44	<35.0
241-3b	44	<35.0
241-4a	1250	< 3.7
241-4b	1250	< 3.7
232-12	500	< 0.4
232-13	500	<10.0
252-1	-	< 9.8
252-11	2600	< 2.0

1. Rinse 241-2b → 251-11 22.10.69 4.30

RSTA No.	Tank	NMTR	Sample No.	Volume [l]	Pu [mg/l]
24969	252-11		342	750	0,07
GfK 24967	252-11		342	750	-
GfK 24967	252-11		344	750	-

Die Konzentration dieser Spüllösung darf nicht für die Bestimmung der Heel-Konzentrationen in 252-1 und 11 herangezogen werden, da anschließend die Spüllösung aus SP 4 durchgeschickt wurde.

Anhang 2

Messdaten der Transfers an den  
5 strategischen Punkten

---

Batch identification							
SP	Line No.	Tank No.	NMTR	Batch No.	Transfer Report No.	Type of material	Date
1	1	221-4	2307	AFU 100	1	AFU	16.10.68
	2	221-4	2308	AFU 200	2	AFU	17.10.68
	3	221-4	2309	AFU 300	3	AFU	18.10.68
	4	221-4	2311	AFU 400	4	AFU	20.10.68
	5	221-4	2129	AFU 500	5	AFU	21.10.68
	6	221-4	3669	AFU 600	6	AFU	23.10.68
	7	221-4	2333	AFU 700	11	AFU	26.10.68
	8	221-4	-	-	15	Rinse	
2	9	251-81	2406	1BSP 100	32	1BSP	2.11.68
	10	251-81	2423	1BSP 200	44	1BSP	4.11.68
3	11	251-1A	-	-	7	HAW	24.10.68
	12	251-1A	3672	-	9	HAW	25.10.68
	13	251-1A	2388	HAW 600	14	HAW	27.10.68
	14	251-1A	3679	HAW 1000	24	HAW	29.10.68
	15	251-1A	2427	HAW 1200	36	HAW	5.11.68
	16	251-1B	3671	HAW 100	8	HAW	25.10.68
	17	251-1B	-	HAW 400	12	HAW	27.10.68
	18	251-1B	2390	HAW 700	18	HAW	27.10.68
	19	251-1B	-	HAW 900	22	HAW	29.10.68
	20	251-1C	2384	HAW 300	10	HAW	26.10.68
	21	251-1C	2387	HAW 500	13	HAW	27.10.68
	22	251-1C	2391	HAW 800	19	HAW	28.10.68
	23	251-1C	2408	HAW 1100	34	HAW	5.11.68
	4	24	252-11	3674	-	16	1SRW
25		252-11	3675	-	17	1SRW	27.10.68
26		252-11	3678	-	23	1SRW	29.10.68
27		252-11	3680	-	30	1SRW	30.10.68
28		252-11	3683	-	37	Rinse	2.11.68
29		252-11	3684	-	47	Carb.sol.	2.11.68
30		252-11	3685	-	48	water	3.11.68
31		252-11	3686	-	49	carb.wash.	3.11.68
32		252-11	-	-	50	Rinse	3.11.68
5		33	232-12	-	2UDF 100	20	2DF
	34	232-12	2392	2UDF 300	21	2DF	28.10.68
	35	232-12	2396	2UDF 500	25	2DF	28.10.68
	36	232-12	2397	2UDF 500	26	2DF	28.10.68
	37	232-12	2400	2UDF 600	28	2DF	29.10.68
	38	232-12	2403	2UDF 700	29	2DF	30.10.68
	39	232-12	2404	2UDF 800	31	2DF	30.10.68
	40	232-12	2405	2UDF 900	35	2DF	31.10.68
	41	232-12	2413	-	38	2DF	31.10.68
	42	232-12	-	-	41	2DF	1.11.68
	43	232-12	2419	2UDF 1100	42	2DF	1.11.68
	44	232-12	-	-	43	Rinse	1.11.68

	Panel identification					
	before transfer			after transfer		
	Level [ % ]	Density [ % ]	Sol. temp. [ °C ]	Level [ % ]	Density [ % ]	Sol. temp. [ °C ]
1	0.2	29.0	-	58.0	38.0	26.0
	0.2	40.0	-	54.2	37.3	27.0
	0.2	37.3	-	49.5	41.0	26.0
	0.2	41.0	-	51.5	39.7	28.0
	0.2	39.7	-	56.0	37.0	22.0
	0.3	37.0	-	57.0	15.8	25.0
2	44.0	40.0	-	10.0	40.0	-
	47.7	41.8	-	10.1	41.8	-
3	23.5	11.5	24.0	11.5	11.5	24.0
	70.5	51.5	-	11.8	51.5	-
	80.0	58.0	27.0	10.0	58.0	25.0
	46.0	38.5	24.0	10.5	38.5	24.0
	68.6	16.0	24.5	1.5	16.0	25.0
	63.0	51.0	24.0	9.3	51.0	23.0
	77.0	56.0	24.0	8.5	56.0	27.0
	49.0	58.5	-	7.8	58.5	24.5
	70.0	37.5	24.0	9.0	37.5	-
	77.8	48.5	23.0	36.0	48.5	23.0
	77.0	48.2	37.0	11.5	48.2	35.0
	74.5	38.8	24.0	4.0	38.8	22.0
64.5	20.5	-	12.0	20.5	25.0	
4	30.0	48.5	-	1.5	48.5	-
	51.5	48.0	-	1.5	48.0	-
	52.5	48.5	-	4.5	48.5	-
	47.0	49.0	-	5.5	49.0	-
	27.0	48.0	-	5.0	48.0	-
	56.0	48.5	-	3.0	48.5	-
	65.0	47.5	-	1.5	47.5	-
	21.5	45.5	-	1.0	45.5	-
	18.8	48.8	-	-	-	-
5	79.5	88.5	22.0	5.5	88.5	22.0
	73.7	71.0	22.0	5.5	71.0	22.0
	69.0	46.5	22.0	11.5	46.5	22.0
	72.5	79.0	22.0	17.0	79.0	22.0
	71.0	48.5	-	13.5	48.5	-
	68.2	62.0	22.0	27.0	62.0	22.0
	74.0	69.0	22.0	6.0	69.0	21.0
	81.8	55.5	22.0	20.0	55.5	22.0
	72.5	57.0	-	11.0	57.0	-
	60.5	28.5	-	10.0	28.5	-
	35.0	15.0	-	5.5	15.0	-
	18.0	5.7	-	-	-	-

LINE No.	Density [mm H <sub>2</sub> O]				Manometer reading before transfer	Level [mm TBE]				Manometer reading after transfer
	before transfer		after transfer			before transfer		after transfer		
	above	below	above	below		above	below	above	below	
1	8.0	5.5	160.0	156.0	24.0	7.5	-3.5	557.0	547.5	22.0
2	2.0	-1.0	162.5	159.0	22.2	4.0	-4.0	494.5	486.0	22.0
3	2.0	-1.0	159.5	156.0	22.0	4.0	-4.0	523.0	513.5	22.2
4	1.5	-1.5	164.0	160.5	22.3	4.0	-4.0	473.2	465.5	22.0
5	2.0	-1.0	162.5	159.0	22.0	4.0	-4.0	494.5	486.3	21.9
6	2.0	-1.0	164.0	160.0	22.0	4.0	-4.0	538.0	530.2	22.0
7	2.0	-2.0	139.0	135.0	23.0	5.0	-5.0	554.5	542.0	23.5
8	-	-	131.0	126.0	-	-	-	186.0	175.0	23.2
9	183.0	184.5	153.0	155.0	22.8	263.0	159.0	102.5	0.0	22.5
10	183.5	186.0	153.5	154.0	22.3	280.0	177.0	103.5	0.5	22.5
11	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
12	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
13	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
14	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
15	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
16	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
17	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
18	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
19	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
20	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
21	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
22	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
23	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
24	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
25	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
26	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
27	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
28	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
29	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
30	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
31	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
32	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
33	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
34	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
35	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
36	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
37	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
38	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
39	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
40	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
41	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
42	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
43	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
44	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-

U-tube-indication



## Sample identification No.

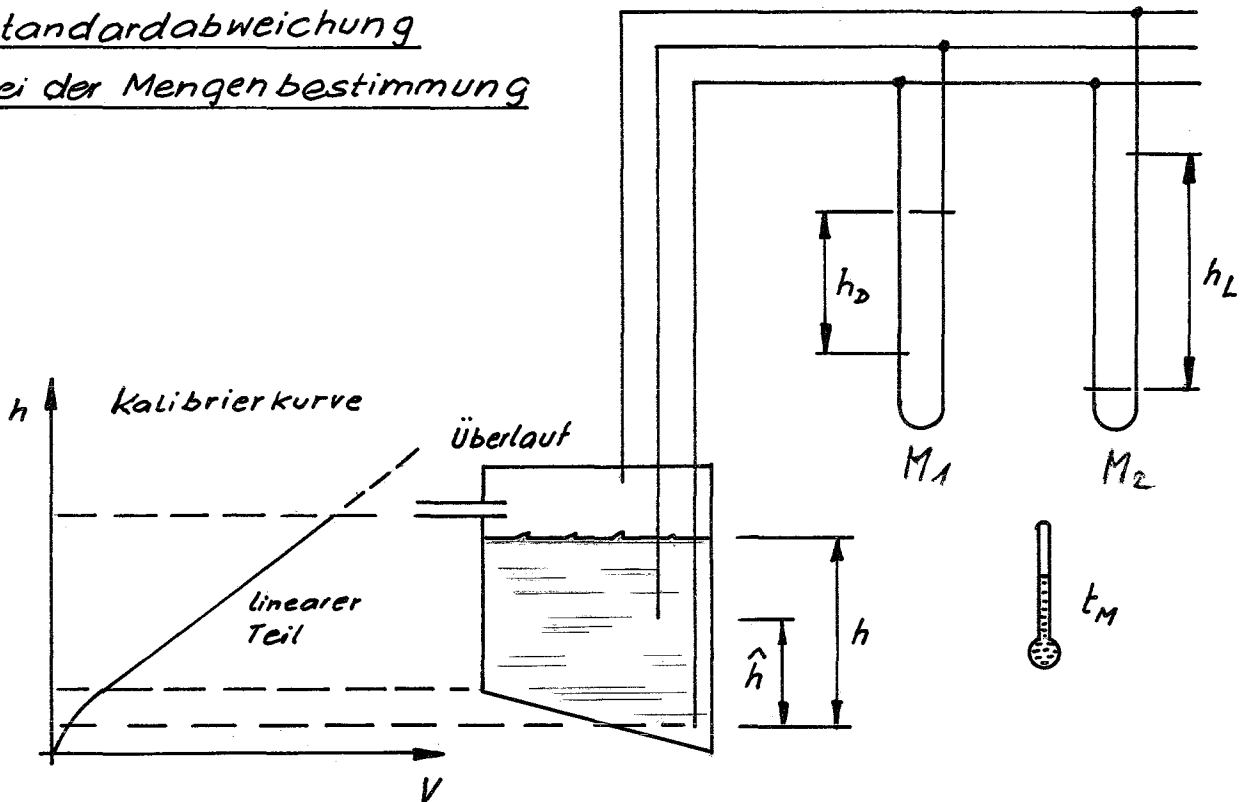
LINE No.	EUROCHEMIC						GfK		
	Process	Process	Process	Account.	Account	Account	GfK	GfK	GfK
1	187	188	189	184	185	186	190	191	-
2	209	210	-	211	212	213	214	215	-
3	234	235	236	249	237	238	239	240	-
4	275	276	-	277	278	279	280	281	-
5	307	308	-	309	310	311	312	313	-
6	357	358	359	360	361	-	362	363	-
7	459	460	463	464	465	466	461	462	-
8	475	-	-	-	-	-	476	477	-
9	625	626	-	627	628	629	630	631	632
10	717	718	714	719	-	-	715	716	-
11	379	-	-	-	-	-	377	380	-
12	402	-	-	-	-	-	403	406	-
13	486	-	-	-	-	-	478	-	-
14	560	-	-	-	-	-	561	-	-
15	645	-	-	-	-	-	641	-	-
16	389	-	-	-	-	-	390	-	-
17	446	-	-	-	-	-	447	448	-
18	498	-	-	-	-	-	499	-	-
19	550	-	-	-	-	-	551	-	-
20	429	-	-	-	-	-	430	431	-
21	457	-	-	-	-	-	458	-	-
22	521	-	-	-	-	-	522	-	-
23	665	-	-	-	-	-	664	-	-
24	442	-	-	-	-	-	-	-	-
25	487	-	-	-	-	-	-	-	-
26	558	570	-	-	-	-	559	-	-
27	593	-	-	-	-	-	607	608	-
28	644	-	-	-	-	-	642	-	-
29	701	-	-	-	-	-	699	700	-
30	709	-	-	-	-	-	-	-	-
31	711	-	-	-	-	-	-	-	-
32	722	-	-	-	-	-	720	721	-
33	474	-	-	-	-	-	-	-	-
34	513	-	-	-	-	-	-	-	-
35	539	-	-	-	-	-	-	-	-
36	564	-	-	-	-	-	-	-	-
37	576	-	-	-	-	-	-	-	-
38	591	-	-	-	-	-	-	-	-
39	597	-	-	-	-	-	-	-	-
40	621	-	-	-	-	-	-	-	-
41	656	-	-	-	-	-	-	-	-
42	675	-	-	-	-	-	673	674	-
43	681	-	-	-	-	-	679	680	-
44	685	-	-	-	-	-	689	690	-

Anhang 3

Bestimmung der Standardabweichung  
bei der Mengenbestimmung

---

Standardabweichung  
bei der Mengenbestimmung



1. Dichte :  $\rho = \rho_{M1} \cdot \frac{h_D}{\hat{h}}$  [g/cm<sup>3</sup>]

2. Füllstand :  $h = h_L \cdot \frac{\rho_{M2}}{\rho}$  [mm]

3. Manometerdichte :  $\rho_M = \rho_{M0} + \text{const}(t_0 - t_M)$  [g/cm<sup>3</sup>]

4. Volumen  $V = a_0 + a_1 \cdot h = a_0 + a_1 \cdot \frac{\rho_{M2}}{\rho_{M1}} \cdot \frac{h_L \hat{h}}{h_D}$  [l]

5. Masse  $M = V \cdot \rho = a_0 \rho_{M1} \frac{h_D}{\hat{h}} + a_1 h_L \rho_{M2}$  [kg]

Beispiel für Fehlertortpflanzung im Inputtank 221-4 :

x	S <sub>x</sub>	$\frac{\partial M}{\partial x}$	$(\frac{\partial M}{\partial x})^2 S_x^2$	$\frac{\partial V}{\partial x}$	$(\frac{\partial V}{\partial x})^2 S_x^2$
$a_0 = -301,4$	4,0	1,333	28,40	1,0	16,0
$\rho_{M1} = 0,9978$	$2,7 \times 10^{-4}$	402,7	-	2880	0,27
$\rho_{M2} = 2,9524$	$2,3 \times 10^{-3}$	1027,0	5,56	770	3,13
$h_D = 316,0$	1,0	1,272	1,62	7,2	52,0
$h_L = 1104,5$	1,0	2,745	7,35	2,06	4,25
$\hat{h} = 236,5$	1,0	1,699	2,89	9,6	92,0

$a_1 = 0,9298$

$S_M^2 = 45,82$

$S_V^2 = 167,65$

$V = 1972,82 \text{ l}$

$\frac{S_M}{M} = 0,26 \%$

$\frac{S_V}{V} = 0,66 \%$

$M = 2630,15 \text{ kg}$

Anhang 4

Beschreibung der Kalibrierung für den Meßtank 251-81, der  
im ersten Kontrollexperiment als Pu-Produkt-Meßtank diente.

---

#### A 4. Kalibriervorgang

Demineralisiertes Wasser wurde zunächst in kleinen Teilmengen bis eine Anzeige am Meßgerät erfolgte, später in größeren Teilmengen eingefüllt und die entsprechende Anzeige am Meßgerät registriert.

Da die Böden der Behälter meist kugelförmig ausgebildet sind und da die Tauchrohre nicht die tiefste Stelle der Behälter erreichen, füllt man anfänglich kleine Teilmengen an Wasser ein, erstens, um den Beginn der Füllstandsanzeige möglichst genau zu ermitteln, zum anderen, um möglichst viele Punkte des unteren, nichtlinearen Teils der Kalibrierkurve zu erhalten. Später, im linearen, zylindrischen Teil des Behälters genügen weniger Meßpunkte. Dieser Vorgang wird dreimal wiederholt, um die Reproduzierbarkeit der Kalibrierkurve sicher zu stellen.

##### A 4.1 Nullpunktkorrektur an der Füllstandsanzeige

Zur Anzeige des Füllstands wurden zwei ca. 2 m lange U-Rohr-Manometer verwendet, das eine gefüllt mit Tetrabromäthan (TBE), das andere mit  $H_2O$ . Die Anordnung der U-Rohr-Manometer ist schematisch in Abb. 2 aufgezeigt. Bei der Nullpunktkorrektur des U-Rohr-Manometers wird der Flüssigkeitsstand in beiden Schenkeln bei Gleichgewicht registriert. Die Differenz der beiden Werte, die infolge ungleicher Temperaturverteilung und damit unterschiedlicher Dichte in beiden Flüssigkeitssäulen auftreten kann, wird bei den folgenden Messungen als Nullpunktkorrektur mit berücksichtigt.

##### A 4.2 Lecktest an der Füllstandsanzeige

Um festzustellen, daß keine die Messung verfälschenden Druckverluste im System der Füllstandsanzeige auftreten, wurde ein Lecktest durchgeführt.

(Bildliche Erläuterung siehe Abb. 2)

1. Rotameter a und b müssen geschlossen sein.
2. Ventile c und d müssen geschlossen sein.
3. By-pass e muß geschlossen sein.
4. Rotameter a (bzw. b) wird geöffnet, b (bzw. a) bleibt geschlossen.  
Manometerflüssigkeit kommt dabei aus dem Gleichgewicht.

5. U-Rohr-Anzeigen werden notiert.
6. Verändern sich nach gewisser Zeit die U-Rohranzeigen, dann ist im System ein Leck vorhanden.
7. Ist ein Leck angezeigt, dann werden alle Leitungen und Verbindungen mit NEKAL (oder ähnlichem) abgepinselt, um das Leck zu lokalisieren.

#### A 4.3 Eichung der kleinen Waage

Zur Wägung der kleinen Teilmengen wurde eine Waage der Firma BIZERBA mit einem Endausschlag von 30 kg (ohne Zuschaltung) und einer Standardabweichung von + 5p benutzt. Die Waagen wurde justiert und anschliessend durch Auflegen von Eichgewichten und Registrierung der angezeigten Ablesungen geeicht. Im gesamten Lastbereich wurden die Meßpunkte in Spannen von 500p aufgenommen. Lediglich im Bereich des Leergewichts und des Bruttogewichts des Meßbehälters wurden Spannen von jeweils 100p genommen.

#### A 4.4 Füllen des Behälters bis zum Ansprechen der Füllstandsanzeige

Es war vorgesehen, nacheinander jeweils 500 ml H<sub>2</sub>O von der Ventilgalerie aus über die interne Steamjet-Leitung in den Behälter einzufüllen. Das anhand der Konstruktionszeichnung errechnete Volumen bis Unterkante Tauchrohr war einschließlich Ableitungsrohr 17,94 l. Das Einfüllen des Wassers mit Hilfe des Meßbechers erwies sich jedoch als unzweckmäßig, weshalb man dazu überging, jeweils ungefähr 500p-Mengen aus dem Meßbehälter auf der kleinen Waage in den Behälter zu tun (Differenzwägung). Dies wurde solange durchgeführt, bis eine Bewegung der Menisken der Manometerflüssigkeit festzustellen war.

#### A 4.5 Füllen des Behälters bis zum zylindrischen Teil

Nachdem noch über den Beginn der Füllstandsanzeige hinaus weitere zweimal 500p eingefüllt wurden, wurde sodann das Wasser in Teilmengen von ca. 25 kg eingefüllt. Dabei wurden jeweils die Anzeigen von U-Rohr-Manometern und Rekordern, sowie die Temperaturen an den Manometern und im Behälter aufgezeichnet. Zwischen jedem Einfüllvorgang und jeweils vor dem Ablesen der Meßgeräte wurde kurz über die zu Homogenisierungszwecken installierte "air-sparge"-Leitung LUft eingeblasen, damit die Leitung entleert wurde.

#### A 4.6 Eichung der großen Waage

Zur Wägung der großen Teilmengen stand eine 300kp-Waage (100kp Endausschlag plus 2x100 kp Zuschaltung) zur Verfügung. Die Waage hat eine Standardabweichung von  $\pm 50p$  (= halbe Skaleneinteilung). Geeicht wurde durch Auflegen von insgesamt 4 10kp- und 6 50kp-Gewichten, und zwar in Schritte von jeweils 10 kp.

#### A 4.7 Füllen des Behälters bis zum Überlauf

Im zylindrischen Teil des Behälters wurden Inkremente von je 200 kp durch Differenzwägung bestimmt und eingefüllt. Anhand der Konstruktionszeichnungen konnte errechnet werden, daß bei ungefähr 15 Teilmengen der obere, nichtzylindrische Teil des Behälters erreicht würde. Hier genügten dann wenige 50kp-Teilmengen bis der Überlauf des Behälters erreicht war, was dadurch gekennzeichnet war, daß die Füllstandsanzeige nicht höher stieg. Durch anschließendes Einperlen von Luft (sparging") gingen etwa 150kp über den Überlauf verloren. Der verbliebene Rest ergab das obere Grenzmaß für eine Füllung mit Pu-Nitratlösung.

#### A 4.8 Auswertung der Meßpunkte

Von den 3 vorgesehenen Kalibriervorgängen konnten aus zeitlichen Gründen nur 2 ausgeführt werden. EUROCHEMIC wird noch im Laufe des Jahres 1968 die 3. Messung durchführen und GfK die Werte zur Verfügung stellen. Nachfolgender Tabelle können die gemessenen Werte entnommen werden, die in 3 Bereiche eingeteilt wurden:

Bereich I = nichtlinearer Tankbodenbereich

Bereich II = linearer zylindrischer Tankbereich

Bereich III = nichtlinearer Tankdeckelbereich

Die korrigierten Höhen ( $h_i$ ) erhält man über

$$h_i = \frac{\rho_M}{\rho_T} (h_{L1} + h_{L2})_i \quad \left[ \text{mm H}_2\text{O} \right]$$

und die entsprechenden Volumina:

$$V_i = \frac{1}{\rho_T} \sum_1^i \Delta G_j \quad \left[ \text{l} \right]$$

worin die Wasserdichte im Tank ( $\rho_T$ ) über die Wassertemperatur im Tank und die Manometerdichte ( $\rho_M$ ) über die Manometertemperatur berechnet wurde.  $G_j$  sind die Inkremente der Kalibrierung während  $h_{L1}$  bzw.  $h_{L2}$  die Manometerablesungen sind.

1. Messreihe		2. Messreihe	
$h_i / \sqrt{\text{mm}}$	$V_i / \sqrt{1}$	$h_i / \sqrt{\text{mm}}$	$V_i / \sqrt{1}$
0	17,764	0	19,600
5,9	19,347	10,6	21,405
17,8	21,462	50,4	36,373
52,0	38,642	81,5	57,451
81,6	57,707	103,7	76,908
103,8	77,288	121,4	96,935
121,6	98,101	136,3	117,372
136,5	118,899	171,9	167,172
148,3	140,064	204,6	217,089
161,7	161,158	238,7	272,479
175,1	181,418	264,0	320,652
189,9	202,563	382,7	519,321
203,2	222,396	495,4	718,593
213,7	243,420	612,6	919,455
225,5	263,097	726,9	1119,293
240,3	283,890	842,7	1319,081
249,2	304,175	958,3	1522,286
262,6	323,968	1074,1	1723,732
369,4	510,089	1189,8	1925,983
483,6	710,731	1305,6	2126,474
600,9	913,333	1310,0	2133,429
714,6	1112,094	1413,8	2318,896
831,7	1312,763	1544,3	2544,010
946,0	1510,951	1663,0	2747,365
1060,4	1715,899	1720,9	2848,566
1177,6	1916,578	1734,3	2872,585
1294,7	2119,718	1750,6	2897,809
1408,9	2320,699	1766,9	2923,486
1532,0	2529,515	1784,7	2952,279
1646,2	2732,153	1801,0	2977,554
		1817,3	3000,417
		1838,1	3026,998
		1916,8	3086,794 = Überlauf

#### A 4.9 Regressionsanalyse

Die entsprechenden Kalibrierpunkte im Bereich II werden zu einem Schwerpunkt zusammengefaßt

$$V_S = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n V_i = \begin{array}{l} 1.) \quad 1617,04 \\ 2.) \quad 1664,46 \quad ; \end{array}$$

$$h_S = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n h_i = \begin{array}{l} 1.) \quad 1005,50 \\ 2.) \quad 1039,94 \end{array}$$



Die Regressionsgleichung kann für den linearen Teil wie folgt angegeben werden:

$$V_{(h_L)} = V_S + a (h_L - h_S) \quad \left[ \frac{\text{Liter}}{\text{mm}} \right]$$

worin die Steigung  $a$  optimal, d.h. bei minimalen Fehlerquadraten an die einzelnen Kalibrierpunkte angepaßt ist.

Die Steigung  $a$  errechnet sich aus:

$$a = \frac{\sum (h_i - h_S)(V_i - V_S)}{\sum (h_i - h_S)^2} = \begin{array}{ll} 1.) & 1,7391 \\ 2.) & 1,7414 \end{array} \quad \left[ \frac{\text{Liter}}{\text{mm}} \right]$$

Die beiden Kalibrierkurven ließen sich in ihren Steigungen gut reproduzieren, so daß keine weitere Rekalibrierung der Steigung erforderlich war. Anders verhielt es sich mit dem Konstanten Glied  $a_0$ .

Durch Umformung der Volumengleichung ist

$$V_{(h_L)} = a_0 + a h_L$$

worin  $a_0 = V_S - ah_S$  ist.

$a_0$  ergab sich zu

$$\begin{array}{ll} 1.) & - 131,57 \\ 2.) & - 146,50 \end{array} \quad \left[ \text{Liter} \right]$$

Diese erhebliche Differenz von 14,93 Litern macht eine dritte Kalibrierung unbedingt erforderlich, um eine genaue Aussage über die Lage der Geraden machen zu können. Dazu **benötigt** man aber nur noch einen Kalibrierpunkt im linearen Bereich.

Die Varianz dieser Regressionsgeraden wurde errechnet mit der Formel:

$$S_{VKal}^2 = \frac{1}{n - 2} \sum_{i=1}^n (V_{(h_L=h_i)} - v_i)^2$$

Dies ergab:

$$\begin{array}{ll} 1.) & S_V = 2,021 \text{ l} \\ 2.) & S_V = 1,662 \text{ l} \end{array}$$

1. Meßfehler (zufällig)
2. Ausgleichfehler (systematisch)

Die Annahme eines linearen Tankbereiches setzt einen idealen zylindrischen Tank voraus. In Wirklichkeit sind aber Tankeinbauten und Wandbeulen vorhanden, die durch die Regressionsgerade ausgeglichen werden. Immerhin weicht die wahre Kalibrierkurve von der berechneten stets um einen kleinen Betrag ab, der bei einem bestimmten Füllstand immer das gleiche Vorzeichen hat und somit als systematischer Fehler eingeht. Nimmt man jedoch die Füllstandshöhe ( $h_L$ ) als Zufallsgröße an, die in einem bestimmten Bereich beliebig von Transfer zu Transfer schwanken kann, kann dieser Fehler bei der Fehlerpropagation als Varianz aufgefaßt werden. Anders verhält es sich mit dem konstanten Glied  $a_0$ , das für jede Füllstandshöhe immer einen systematischen Fehler liefert, der nur über eine größere Anzahl von Re-Kalibrierungen gesenkt werden kann, da er sich nur von Kalibrierung zu Kalibrierung wie eine Zufallsgröße verhält. Da jedoch Transfermengen immer über Differenzmessungen bestimmt werden, kompensiert sich dieser systematische Fehler und tritt praktisch nur bei einer Inventur auf, wo der Absolutinhalt des Tanks bestimmt werden muß. Die Tankkalibrierung mit demineralisiertem Wasser hat den Nachteil, daß die tatsächlich zu messende Flüssigkeit im Tank eine andere Dichte hat, so daß der Tank durch elastische Verformung eine andere Geometrie aufweisen wird wie zur Zeit der Kalibrierung. Dieser Effekt wurde von EUROCHEMIC für einen Ringtank untersucht, wobei jedoch keine Volumenabweichung außerhalb des Kalibrierfehlers entdeckt wurde.

#### A 4.10 Tauchrohrabstand

Anlässlich der Tankkalibrierung wurde gleichzeitig der Abstand der beiden Tauchrohre zur Dichtemessung (Abb. 2 ) kalibriert. Für die Dichte-Bestimmung der Tanklösung gilt folgende Gleichung:

$$\rho_T = \rho_M \frac{h_{D1} + h_{D2}}{\hat{h}}$$

$\hat{h}$	=	Tauchrohrabstand
$h_{D1}, h_{D2}$	=	Manometerablesung
$\rho_M$	=	Dichte der Manometerflüssigkeit
$\rho_T$	=	Dichte der Tanklösung

Während der Tankkalibrierung sind alle Größen außer  $\hat{h}$  meßbar, sodaß bei jedem Kalibrierpunkt oberhalb eines bestimmten Füllstandes gleichzeitig ein Wert für  $\hat{h}$  berechnet werden konnte. Die statistische Auswertung ergab

$$\hat{h} = 351,0 + 0,5 \sqrt{\text{mm}}$$

$\hat{h}$  entspricht dem wahrscheinlichsten Wert für den wahren Tauchrohrabstand  $\hat{h}_W$ . Die Differenz ( $\hat{h} - \hat{h}_W$ ) geht in die Auswertung als systematischer Fehler ein.

## Anhang 5

1. Formblatt zur Erfassung der Meß- und Analysen-Daten während des Experimentes
  2. Formblatt zur Übertragung der Meß- und Analysen-Daten auf Lochkartenformat für die programmierte Auswertung
-



SFK-Form 70 B

Analytical Report NrI) Reception and identification

I.1. Observer:

I.2: Sample bottle Nr:

I.3. Cartridge Nr:

I.4: Reception time: day: .68, hour:

I.5: Type of material: AFU(input), 1 BSP (Pu-output), HAW (Waste), 1 SRW (carbonate wash), 2 DF (U-output), Rinse before experim., Rinse after experim.

Rinse Nr:

Sample point:

I.6: Sample required for: Eurochemic storage, Eurochemic process, Eurochemic accountability, GFK mass-spectrometry, GFK storage.

II) Analytical procedures:

II.1: Date:

II.2. Observer:

II.3: Density:

mg/ml

Reference see AR Nr:

II.4: Aliquotation

ml to

ml diluted

ml send to mass-spectrometry

 $\mu$ l solution spiked with $\mu$ l spike

Spike concentration:

Spike isotopic composition: a, b, c

Aliquot for GFK: Sample bottle Nr:

III) Analytical results (GFK):

III.1: Date:

III.2. Operator:

III.3: Isotopic composition

a) unspiked

b) spiked

U-233

U-234

U-235

U-236

U-238

a) ----- % by weight

b) ----- % by weight

Pu-238

Pu-239

Pu-240

Pu-241

Pu-242

a) ----- % by weight

b) ----- % by weight

III.4: Uranium Concentration:

Method: Isotope dilution Potentiometry Colorimetry

Result:

mg/ml  $\mu$ g/ml

III.5: Plutonium Concentration:

Method: Isotope dilution,  $\alpha$ -count., coulometry, potentiometry

Result:

mg/ml  
 $\mu$ g/ml

III.6: Others:

H-Ion concentration:

n



Form No.	Page No.	SFK - Form	Corresp. Form No.	Transfer. Page No.	measure line	Date of Month	Analysis Day	Average Values						Type of Material (1)	I II III IV V VI RSTA	Number of Analysis for:	Page No.		
								I Density [g/ml]	II C <sub>U tot</sub> [g/l]	III C <sub>Pu</sub> [mg/l]	IV U5 U6 U8 U9	V weight- [%]	VI weight- [%]						
40	0	01																	
40	1	01																	
40	2	01																	
40	3	01																	
40	4	01																	
40	5	01																	
40	6	01																	
40	7	01																	
40	8	01																	
40	9	01																	

Comments:

- 1.) 0 - Rinse
- 1 - AFU
- 2 - RAR
- 3 - JDS
- 4 - LLN

- 5 - MLW
- 6 - HLW
- 7 - 2BP
- 8 - SUP
- 9 - PFP

Page No:

40

Average Values

I  
 Density [g/ml]  
 II  
 C<sub>U tot</sub> [g/l]  
 III  
 C<sub>Pu</sub> [mg/l]  
 IV  
 U5 U6 U8 U9  
 V  
 weight- [%]  
 VI  
 weight- [%]

Pu 38  
 Pu 39  
 Pu 40  
 Pu 41  
 Pu 42

Type of Material (1)

Number of Analysis for:

RSTA

Anhang 6

PLANT-OBSERVER MANUAL OF FISSILE MATERIAL  
CONTROL PROCEDURES DURING THE CAMPAIGN

---

SFK-Experiment in the Reprocessing  
Plant EUROCHEMIC, Mol, Belgium

October 1968



## S P 1

Observer's procedure tank 221-4 and 221-6

1. Purpose: To observe transfers of solution from the dissolver 2216-1/2 to the input accountability tanks 221-4 and 221-6
2. Objective: To monitor the addition of unaccounted-for dissolver solution to the chemical processing system.
3. Special:  
Precautions: EUROCHEMIC must notify the observer in time whenever dissolver solution is to be transferred.  
Input accountability measurements must be completed before transferring dissolver solution to the chemical processing system.
4. Procedures:
  - 4.1 Instrument readings before transfer:  
Area: Control panel Unit 221
    - 4.1.1 Check the representativeness of the last sample in the tank for the heel solution on the level recorder. If this is not the case, request another sample.
    - 4.1.2 Note down readings on level recorder (LR) [ % ]  
density recorder (DR) [ kg/l ]  
temperature recorder (TR) [ °C ]  
in SFK-Form 01

Area: Transmitter gallery

- 4.1.3 Check indications on the 3 rotameters:  
equal resp. "10".  
If not o.k., ask for adjustment.
- 4.1.4 Note down the two U-tube leg  
readings with sign of:  
- U-tube filled with TBE (connected  
on the level)  
- U-tube filled with H<sub>2</sub>O (connected  
on the density)  
in SFK-Form 01  
Note down temperature, measured with  
the thermometer near the U-tubes.  
in SFK-Form 01.

4.2 Check instrument readings during transferArea: Control panel Unit 221

- 4.2.1 Check normal increase on the LR
- 4.2.2 Check, that all dissolver solution  
is transfered to 221-4 resp. 221-6

4.3 Checks after transferArea: Control panel Unit 221

- 4.3.1 Check homogeneisation  
Check homogeneisation period (30 mm +  
during sampling)  
Check movement on DR

4.4 Sampling after transferArea: Sampling corridor

## 4.4.1

Check and note down identification-number of sample bottles and cartridges and dispatch time in SFK-Form 50. Check correspondence sampling point-tank (panel-needle block). Check effectiveness and time of circulation through sample bottle (10 min each).

Number of samples:

2 x process

3 x accountability

2 x GfK

Contact the observer in the analytical laboratory (ALD) to check arrival of samples and sample sheets (RSTA).

Note down checking in SFK-Form 50. Empty vessels only if densities are o.k., otherwise repeat. 4.3.1 and 4.4.1.

#### 4.5 Instrument readings after transfer

##### Area: Control panel

## 4.5.1

Check stop of airsparge (push-button and DR).

Wait stabilisation of solution-surface on level recorder ( $\geq 5$  min)

## 4.5.2

Note down readings on level recorder

(LR) [ % ]

density recorder (DR) [ kg/l ]

temperature recorder (TR) [ °C ]

Area: Transmitter gallery

- 4.5.3 Check and note down Zero-point indication of disconnected U-tube (sum of leg-readings with sign) in SFK-Form 01
- 4.5.4 Check indications on the 3 rotameters: equal resp. "10".  
If not o.k., ask for adjustment.
- 4.5.5 Check for positive leak indication on U-tube.
- 4.5.6 Note down the two U-tube leg readings with sign of:  
- U-tube filled with TBE (connected on the level)  
- U-tube filled with H<sub>2</sub>O (connected on the density)  
in SFK-Form 01  
Note down temperature, measured with the thermometer near the U-tubes in SFK-Form 01.

## S P 2

Observer's procedure tank 251 - 81

1. Purpose: To observe transfers from 251-81 to storage.
  2. Objective: To monitor the addition of unaccounted-for product-solution to storage
  3. Special Precautions: EUROCHEMIC must notify the observer in time whenever solution is to be transferred.  
Output accountability measurements must be completed before transferring solution to storage.
- 
4. Procedures:
    - 4.1 Checks before transfer  
Area: Control panel Unit 251
      - 4.1.1 Check homogeneisation  
Check homogeneisation period (30 mm + during sampling)  
Check movement on DR
    - 4.2 Sampling before transfer  
Area: Sampling corridor
      - 4.2.1 Check and note down identification-number of sample bottles and cartridges and dispatch time in SFK-Form 50. Check correspondence sampling point-tank (panel needle block). Check effectiveness and

time of circulation through sample bottle (10 min each).

Number of samples:

2 x process

3 x accountability

2 x GfK

Contact the observer in the analytical laboratory (ALD) to check arrival of samples and sample sheets (RSTA).

Note down checking in SFK-Form 50. Empty vessels only if densities are o.k., otherwise repeat. 4.1.1 and 4.2.1.

#### 4.3 Instrument readings before transfer

##### Area: Control panel Unit 251

- 4.3.1 Check stop of airsparge (push-button and DR).  
Wait stabilisation of solution-surface on level recorder ( $\geq 5$  min)
- 4.3.2 Note down readings on level recorder (LR)  $\left[ \frac{\quad}{\%} \right]$   
density recorder (DR)  $\left[ \frac{\quad}{\text{kg/l}} \right]$   
temperature recorder (TR)  $\left[ \frac{\quad}{^{\circ}\text{C}} \right]$   
in SFK-Form 01

##### Area: Transmitter gallery

- 4.3.3 Check and note down Zero-point indication of disconnected U-tube (sum of leg-readings with sign) in SFK-Form 01

- 4.3.4 Check indications on the 3 rotameters:  
equal resp. "10".  
If not o.k., ask for adjustment.
- 4.3.5 Check for positive leak indication  
on U-tube.
- 4.3.6 Note down the two U-tube leg  
readings with sign of:  
- U-tube filled with TBE (connected)  
on the level)  
- U-tube filled with H<sub>2</sub>O (connected)  
on the density  
in SFK-Form 01  
Note down temperature, measured with  
the thermometer near the U-tubes.  
in SFK-Form 01.

4.4 Check instrument readings during transfer

Area: Control panel Unit 251

- 4.4.1 Check normal decrease on the LR
- 4.4.2 Check that all solution transferred  
reaches the storage.

4.5 Instrument readings after transfer <sup>x)</sup>

Area: Control panel Unit 251

- 4.5.1 Note down readings on level recorder  
(LR) [ % ]  
density recorder (DR) [ kg/l ]  
temperature recorder (TR) [ °C ]  
in SFK-Form 01

---

<sup>x)</sup> Wait for information, that no further transfer will  
happen before refilling.

Area: Transmitter gallery

- 4.5.2 Check indications on the 3 rotameters:  
equal resp. "10".  
If not o.k., ask for adjustment.
- 4.5.3 Note down the two U-tube leg  
readings with sign of:  
- U-tube filled with TBE (connected  
on the level)  
- U-tube filled with H<sub>2</sub>O (connected  
on the density)  
in SFK-Form 01  
Note down temperature, measured with  
the thermometer near the U-tubes.  
in SFK-Form 01.
-



## S P 3

Observer's procedure tank 251-1a/b/c

1. Purpose: To observe transfers from 251-1a/b/c to storage
  2. Objective: To monitor the addition of unaccounted-for solution to storage
  3. Special Precautions: EUROCHEMIC must notify the observer in time whenever solution is to be transferred.  
Input accountability measurements must be completed before transferring solution to the chemical processing system.
- 
4. Procedures:
    - 4.1 Checks before transfer  
Area: Control panel Unit 251
      - 4.1.1 Check homogeneisation  
Check homogeneisation period (30 mm + during sampling)  
Check movement on DR
    - 4.2 Sampling before transfer  
Area: Sampling corridor
      - 4.2.1 Check and note down identification-number of sample bottles and cartridges and dispatch time in SFK-Form 50. Check correspondence sampling point-tank (panel-needle

block). Check effectiveness and time of circulation through sample bottle (10 min each).

Number of samples:

- 1 x process
- 1 x accountability
- 1 x GfK except contradictory orders from GfK personnel

Contact the observer in the analytical laboratory (ALD) to check arrival of samples and sample sheets (RSTA).

Note down checking in SFK-Form 50. Empty vessels only if densities are o.k., otherwise repeat. 4.1.1 and 4.2.1.

#### 4.3 Instrument readings before transfer

Area: Control panel Unit 251

- 4.3.1 Check stop of airsparge (push-button and DR).  
Wait stabilisation of solution-surface on level recorder ( $\geq 5$  min)
- 4.3.2 Note down readings on level recorder (IR)  $\left[ \frac{\quad}{\%} \right]$   
density recorder (DR)  $\left[ \frac{\quad}{\text{kg/l}} \right]$   
temperature recorder (TR)  $\left[ \frac{\quad}{^{\circ}\text{C}} \right]$   
in SFK-Form 01

#### 4.4 Check instrument readings during transfer

Area: Control panel Unit 251

- 4.4.1 Check normal decrease on the IR
- 4.4.2 Check that all solution transferred reaches the storage.

4.5 Instrument readings after transfer x)Area: Control panel Unit 251

- 4.5.1 Note down readings on level recorder  
(LR) [ % ]  
density recorder (DR) [ kg/l ]  
temperature recorder (TR) [ °C ]  
in SFK-Form 01

Area: Transmitter gallery

- 4.5.2 Check indications on the 3 rotameters:  
equal resp. "10".  
If not o.k., ask for adjustment.
- 4.5.3 Note down the two U-tube leg  
readings with sign of:  
- U-tube filled with TBE (connected  
on the level)  
- U-tube filled with H<sub>2</sub>O (connected  
on the density)  
in SFK-Form 01  
Note down temperature, measured with  
the thermometer near the U-tubes  
in SFK-Form 01.

---

x) Wait for information, that no further transfer will  
happen before refilling.

## S P 4

Observer's procedure tank 252 - 11

1. Purpose: To observe transfers from 252-11 to storage
  2. Objective: To monitor the addition of unaccounted-for solution to storage
  3. Special Precautions: EUROCHEMIC must notify the observer in time whenever solution is to be transferred.  
Input accountability measurements must be completed before transferring solution to the chemical processing system.
- 
4. Procedures:
    - 4.1 Checks before transfer  
Area: Control panel Unit 252
      - 4.1.1 Check homogeneisation  
Check homogeneisation period (30 mm + during sampling)  
Check movement on DR
    - 4.2 Sampling before transfer  
Area: Sampling corridor
      - 4.2.1 Check and note down identification-number of sample bottles and cartridges and dispatch time in SFK-Form 50. Check correspondence sampling point-tank (panel-needle

block). Check effectiveness and time of circulation through sample bottle (10 min each).

Number of samples:

1 x process

1 x accountability

1 x GfK except contradictory orders from GfK personnel

Contact the observer in the analytical laboratory (ALD) to check arrival of samples and sample sheets (RSTA).

Note down checking in SFK-Form 50. Empty vessels only if densities are o.k., otherwise repeat. 4.1.1 and 4.2.1.

#### 4.3 Instrument readings before transfer

Area: Control panel Unit 252

- 4.3.1 Check stop of airsparge (push-button and DR).  
Wait stabilisation of solution-surface on level recorder ( $\geq 5$  min)
- 4.3.2 Note down readings on level recorder (LR)  $\left[ \frac{\quad}{\%} \right]$   
density recorder (DR)  $\left[ \frac{\quad}{\text{kg/l}} \right]$   
temperature recorder (TR)  $\left[ \frac{\quad}{^{\circ}\text{C}} \right]$   
in SFK-Form 01

#### 4.4 Check instrument readings during transfer

Area: Control panel Unit 252

- 4.4.1 Check normal decrease on the LR

4.4.2 Check that all solution transferred reaches the storage.

4.5 Instrument readings after transfer x)

Area: Control panel Unit 252

4.5.1 Note down readings on level recorder (LR) [ % ]  
density recorder (DR) [ kg/l ]  
temperature recorder (TR) [ °C ]  
in SFK-Form 01

Area: Transmitter gallery

4.5.2 Check indications on the 3 rotameters: equal resp. "10".  
If not o.k., ask for adjustment.

4.5.3 Note down the two U-tube leg readings with sign of:  
- U-tube filled with TBE (connected on the level)  
- U-tube filled with H<sub>2</sub>O (connected on the density)  
in SFK-Form 01  
Note down temperature, measured with the thermometer near the U-tubes in SFK-Form 01.

---

x) Wait for information, that no further transfer will happen before refilling.

## S P 5

Observer's procedure tank 232-12

1. Purpose: To observe transfers from 232-12 to storage
  2. Objective: To monitor the addition of unaccounted-for solution to storage
  3. Special Precautions: EUROCHEMIC must notify the observer in time whenever solution is to be transferred.  
Input accountability measurements must be completed before transferring solution to the chemical processing system.
- 
4. Procedures:
    - 4.1 Checks before transfer  
Area: Control panel Unit 232
      - 4.1.1 Check homogeneisation  
Check homogeneisation period (30 mm + during sampling)  
Check movement on DR
    - 4.2 Sampling before transfer  
Area: Sampling corridor
      - 4.2.1 Check and note down identification-number of sample bottles and cartridges and dispatch time in SFK-Form 50. Check correspondence sampling point-tank (panel-needle

block). Check effectiveness and time of circulation through sample bottle (10 min each).

Number of samples:

- 1 x process
- 1 x accountability
- 1 x GfK except contradictory orders from GfK personnel

Contact the observer in the analytical laboratory (ALD) to check arrival of samples and sample sheets (RSTA).

Note down checking in SFK-Form 50. Empty vessels only if densities are o.k., otherwise repeat. 4.1.1 and 4.2.1.

#### 4.3 Instrument readings before transfer

Area: Control panel Unit 232

4.3.1 Check stop of airsparge (push-button and DR).  
Wait stabilisation of solution-surface on level recorder ( $\approx$  5 min)

4.3.2 Note down readings on level recorder (LR)  $\left[ \frac{\quad}{\%} \right]$   
density recorder (DR)  $\left[ \frac{\quad}{\text{kg/l}} \right]$   
temperature recorder (TR)  $\left[ \frac{\quad}{^{\circ}\text{C}} \right]$   
in SFK-Form 01

#### 4.4 Check instrument readings during transfer

Area: Control panel Unit 232

4.4.1 Check normal decrease on the LR



4.4.2 Check that all solution transferred reaches the storage.

4.5 Instrument readings after transfer x)

Area: Control panel Unit 232

4.5.1 Note down readings on level recorder  
(LR) [ % ]  
density recorder (DR) [ kg/l ]  
temperature recorder (TR) [ °C ]  
in SFK-Form 01

Area: Transmitter gallery

4.5.2 Check indications on the 3 rotameters:  
equal resp. "10".  
If not o.k., ask for adjustment.

4.5.3 Note down the two U-tube leg  
readings with sign of:  
- U-tube filled with TBE (connected  
on the level)  
- U-tube filled with H<sub>2</sub>O (connected  
on the density)  
in SFK-Form 01  
Note down temperature, measured with  
the thermometer near the U-tubes  
in SFK-Form 01.

---

x) Wait for information, that no further transfer will  
happen before refilling.

Anhang 7

Plant Observer Manual of Fissile Material Control  
Procedures During Plant Flush-Out and Physical  
Inventory.

---

SFK-Experiment in the Reprocessing Plant EUROCHEMIC,  
Mol, Belgium.

October 1968

Observer's procedure for plant flush-out and physical  
inventory

1. Purpose: To determine start- and endconditions for the proposed accountability experiment in the MBA concerned (see flow-diagramm).
  
2. Objective: To establish a complete fissile material balance.
  
3. Special precautions: Excluded from flushout and experiment are the following vessels:  
221-1/2/5/7  
223-1/4a/4b/5/11/12/13/14  
226-1/2  
234-1/4/31  
235-1/4/31  
251-8a  
252-12  
  
These vessels may contain fissile material which is accounted-for by physical inventory in case of unforeseen transfers and overflows.
  
4. Procedures:
  - 4.1 H e a d e n d
  - 4.1.1 Check that vessels 2216-2; 221-4/6; 223-6A/b are rinsed with warm concentrated acid and emptied. Total rinse is to be collected in vessel 231-1.

- 4.1.2 Check sampling in vessel 231-1 according to SP1/4.3.1/4.4.1.
- Number of samples:  
1 x accountability  
2 x GfK
- Check emptying of vessel 231-1 after sampling.
- 4.1.3 Heel determination in vessels mentioned in 4.1.1 including 231-1.
- Note down readings on U-tubes (if installed) and panel instruments for level and density in SFK-form 90.
- 4.2 Extraction columns  
1 st. cycle
- 4.2.1 Check that all columns and vessels 231-7/11, 232-1/12 are rinsed with concentrated acid (warm if possible). Total rinse is to be collected in vessel 252-11.
- 4.2.2 Check sampling in vessel 252-11 according to SP1/4.3.1/4.4.1.
- Number of samples:  
1 x accountability  
2 x GfK
- Check emptying of vessel 252-11 after sampling.
- 4.2.3 Heel determination in columns and vessels mentioned in 4.2.1 including 252-11.
- Note down readings on U-tubes (if installed) and panel instruments for level and density in SFK-form 90.

4.3 Feed - tanks for Pu -  
final - purification

4.3.1 Check that vessels 231-7, 232-1/2 are rinsed with concentrated acid (warm if possible). Total rinse is to be collected in vessel 252-11.

4.3.2 Check sampling in vessel 252-11 according to SP1/4.3.1/4.4.1.

Number of samples:

1 x accountability

2 x GfK

Check emptying of vessel 252-11 after sampling.

4.3.3 Heel determination in vessels mentioned in 4.3.1 including 252-11.

Note down readings on U-tubes (if installed) and panel instruments for level and density in SFK-form 90.

4.4 Catch tanks for 1 B S P

4.4.1 Check that vessels 231-58A/58B, 251-8B are rinsed with concentrated acid (warm if possible). Total rinse is to be collected in vessel 251-81.

4.4.2 Check sampling in vessel 251-81 according to SP1/4.3.1/4.4.1

Number of samples:

1 x accountability

2 x GfK

Check emptying of vessel 251-81 after sampling.

4.4.3

Heel determination in vessels mentioned in 4.4.1 including 251-81.

Note down readings on U-tubes (if installed) and panel instruments for level and density in SFK-form 90.

4.5

C a t c h   t a n k s   f o r   w a s t e  
s t r e a m s

4.5.1

Check that vessels 234-22a/b; 251-1a/b/c; 252-1/11 are rinsed with concentrated acid (warm if possible)\*

4.5.2

Check sampling in these vessels according to SP1/4.3.1/4.4.1

Number of samples:

1 x accountability

2 x GfK

Check emptying of vessels after sampling.

4.5.3

Heel determination in vessels mentioned in 4.5.1.

Note down readings on U-tubes (if installed) and panel instruments for level and density in SFK-form 90.

4.6

L i m i t   o f   t o t a l   i n v e n t o r y  
a t   s t a r t   -   u p

If the sum of fissile material in the MBA concerned exceeds 12 g repeat rinse where

(4.1 to 4.5) highest amount of fissile material is observed.

4.7

Physical inventory

Check performance of physical inventory in vessels mentioned in 3.0.

Check sampling in these vessels according to SP1/4.3.1/4.4.1

Number of samples:

1 x accountability

2 x GfK

Note down readings on U-tubes (if installed) and panel instruments for level and density in SFK-form 90.

---

Anhang 8

OBSERVER MANUAL OF FISSILE MATERIAL  
CONTROL PROCEDURES IN THE ANALYTICAL  
LABORATORY

---

SFK-Experiment in the Reprocessing  
Plant EUROCHEMIC, Mol, Belgium

October 1968



OBSERVERS PROCEDURE1. Purpose:

- 1.1. To observe transfers of samples from the Plant to the Laboratory.
- 1.2. To identify the samples.
- 1.3. To observe and control transfers of samples to the different laboratories.
- 1.4. To note analytical results.
- 1.5. To look, that no sample could be exchanged.

2. Objects:

Rinse before experiment,

AFU (input)

1 BSP (Pu output)

Rinse after experiment

HAW (Waste)

1 SRW (carbonate wash)

2 DF (U-output)

3. Special precautions:

Eurochemic must notify the observers in time, whenever a sample arrived or is to be transferred.

4. Procedures

For each sample you need 1 Analytical Report, SPK-Form 70 A and B.

In type A you fill all lines, in type B you fill only:

I) Reception and identification, and

II) Analytical procedures.

Area: Analytical Laboratories (Shift lab., Special lab., Mass-spectrometry lab., and Counting rooms).

4.1. Reception and identification:

- 4.1.1. Identify the samples and control the bottle Nr and the cartridge Nr. and note down.
- 4.1.2. Underline type of material, and note down Rinse Nr and Sample Point.
- 4.1.3. Look for requirement (underline!)

4.2. Rinsing before the run

Per rinse 8 samples, per sample point 2 samples (sampling point 231-1/232-12/251-81/252-11) for GfK.

- 4.2.1. The rinse samples for GfK go to storage box, note down the samples for Eurochemic and write the results on Analytical Report.

4.3. Sample distribution - Input

For each input-charge 7 samples, for each sample 1 Analytical Report.

- 4.3.1. Sample Nr 1 to storage box.  
Sample Nr 2 : Eurochemic process  
Sample Nr 3 and Nr 4: Eurochemic accountability  
Sample Nr 5: to storage box  
Sample Nr 6 and Nr 7: directly for GfK storage in the storage box Nr 11.
- 4.3.1.1 From Nr 3 and Nr 4 always a spiked sample from the Mass-spectrometry laboratory will be stored for GfK mass-spectrometry in small bottles in the Mass-Spectrometry Lab. Take the Nr of Eurochemic and add by yourself a continuous Nr. Storage in a sealed container.

- 4.3.2. Two samples of every spike solution from the Mass-Spectrometry Lab. (If spike solution changes, always 2 samples of the new spike solution are filled up in bottles (s. SFK-Form 70 A and B-II, 4, Spike composition a, b, c). They will be stored for GfK in the mass-spectrometry Lab. till the end of the run.
- 4.4. Sample distribution - Output
- 4.4.1. Per output batch 2 samples to the storage box Nr 11 for GfK.
- 4.4.2. Note down the result of the output analysis from Eurochemic-3 samples.
- 
- 4.5. Rinsing after the run
- 4.5.1. From the 1st and if more also from the last rinsing procedure, 2 per sampling point 231-1/232-12/251-81/252-11 for GfK to storage box.
- 4.5.2. Note also down the sample for Eurochemic and write the results on Analytical Report.
- 4.6. Waste
- 4.6.1. Samples of HAW, 1 SRW, 2 DF will be sent to the Laboratory, 2 samples for GfK to storage box.
- 4.6.2. Note down the results of Eurochemic in Analytical Report.

- 4 -

4.7. Analytical procedures

(s. SfK - Form 70 A and B)

4.7.1. Note down all results.

4.7.1.1. See page II, 4 on SfK-Form 70. Underline for the first "spike isotopic composition" a, if spike solution has changed underline b, etc.

4.8. Analytical results

4.8.1. Note down the analytical results of Eurochemic, only in SfK-Form 70 A.

---

SFK-Form 70 A

Analytical Report Nr1) Reception and identification

1.1. Observer:

1.2: Sample bottle Nr:

1.3. Cartridge Nr:

1.4: Reception time: day: hour:

1.5: Type of material: AFU(input), 1 BSP (Pu-output), HAW (Waste), 1 SRW (carbonate wash), 2 DF (U-output), Rinse before experim., Rinse after experiment.

Rinse Nr:

Sample point:

1.6: sample required for: Eurochemic-storage, Eurochemic process, Eurochemic accountability, GFK mass-spectrometry, GFK storage.

II) Analytical procedures:

II.1: Date:

II.2. Observer:

II.3: Density:

mg/ml

Reference see AR Nr:

II.4: Aliquotation

ml to

ml diluted

ml send to mass-spectrometry

 $\mu$ l solution spiked with $\mu$ l spike

Spike concentration:

Spike isotopic composition: a,b,c

Aliquot for GFK: Sample bottle Nr:

III) Analytical results (Eurochemic):

III.1: Date:

III.2. Observer:

III.3: Isotopic composition a) unspiked

b) spiked

U-233 U-234 U-235 U-236 U-238

a) ----- % by weight

b) ----- % by weight

Pu-238 Pu-239 Pu-240 Pu-241 Pu-242

a) ----- % by weight

b) ----- % by weight

III.4: Uranium Concentration:

Method: Isotope dilution Potentiometry Colorimetry

Result: ng/ml  $\mu$ g/ml

III.5: Plutonium Concentration:

Method: Isotope dilution,  $\alpha$ -count., coulometry, potentiometry mg/mlResult:  $\mu$ g/ml

III.6: Others: H-Ion concentration: n

SFK-Form 70 B

Analytical Report Nr

1) Reception and identification

1.1. Observer:

1.2: Sample bottle Nr:

1.3. Cartridge Nr:

1.4: Reception time: day: hour:

1.5: Type of material: AFU(input), 1 BSP (Pu-output), HAW (Waste), 1 SRW (carbonate wash), 2 DF (U-output), Rinse before experim., Rinse after experiment.

Rinse Nr: Sample point:

1.6: sample required for: Eurochemic-storage, Eurochemic process, Eurochemic accountability, GFK mass-spectrometry, GFK storage.

II) Analytical procedures:

II.1: Date:

II.2. Observer:

II.3: Density: mg/ml

Reference see AR Nr:

II.4: Aliquotation ml to

ml diluted

ml send to mass-spectrometry

µl solution spiked with

µl spike

Spike concentration:

Spike isotopic composition: a,b,c

Aliquot for GFK: Sample bottle Nr:

III) Analytical results (GfK)

III.1: Date:

III.2. Observer:

III.3: Isotopic composition a) unspiked b) spiked

U-233 U-234 U-235 U-236 U-238

a) ----- % by weight

b) ----- % by weight

Pu-238 Pu-239 Pu-240 Pu-241 Pu-242

a) ----- % by weight

b) ----- % by weight

III.4: Uranium Concentration:

Method: Isotope dilution Potentiometry Colorimetry

Result: mg/ml µg/ml

III.5: Plutonium Concentration:

Method: Isotope dilution, α-count., coulometry, potentiometry mg/ml

Result: µg/ml

III.6: Others: H-Ion concentration: