

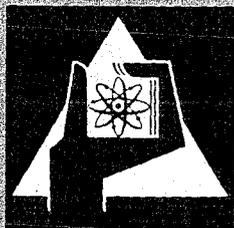
**KERNFORSCHUNGSZENTRUM  
KARLSRUHE**

September 1972

KFK 1618

Projekt Spaltstoffflußkontrolle

**JAHRESBERICHT 1971**



GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M. B. H.

KARLSRUHE

Als Manuskript vervielfältigt

Für diesen Bericht behalten wir uns alle Rechte vor

GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M. B. H.  
KARLSRUHE

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

KFK 1618

Projekt Spaltstoffflußkontrolle

Jahresbericht 1971

Gesellschaft für Kernforschung m.b.H., Karlsruhe



Dieser Bericht wurde zusammengestellt

von

G. Bork

und enthält Beiträge von

R. Avenhaus<sup>1</sup>, A.v. Baeckmann<sup>4</sup>, K. Baumung<sup>3</sup>, K. Böhnel<sup>3</sup>,  
G. Bork<sup>1</sup>, B. Brandalise<sup>5</sup>, W. Coerdts<sup>4</sup>, A. Cottone<sup>5</sup>,  
A. Cricchio<sup>5</sup>, E. Drosselmeyer<sup>1</sup>, R. Eberle<sup>6</sup>, E. Gantner<sup>4</sup>,  
F. Gérin<sup>5</sup>, L. Grünbaum<sup>1</sup>, D. Gupta<sup>1</sup>, A.H. Hawa<sup>4</sup>,  
K. Kammerichs<sup>5</sup>, J. Klunker<sup>3</sup>, L. Koch<sup>5</sup>, W. König<sup>4</sup>,  
R. Kraemer<sup>1</sup>, H. Krinninger<sup>7</sup>, M. Kuchle<sup>3</sup>, E. Mainka<sup>4</sup>,  
R.de Meester<sup>5</sup>, H.G. Müller<sup>4</sup>, D. Nentwich<sup>1</sup>, J. Neuber<sup>4</sup>,  
M. Romkowski<sup>5</sup>, H. Ruf<sup>4</sup>, E. Ruppert<sup>7</sup>, W. Scheuerpflug<sup>1</sup>,  
C. Weitkamp<sup>2</sup> und M. Wilhelmi<sup>4</sup>.

Die von den Firmen AEG, ALKEM und INTERATOM durchgeführten Arbeiten am Projekt Spaltstoffflußkontrolle sind ebenfalls enthalten.

<sup>1</sup> Gesellschaft für Kernforschung, Institut für Angewandte Systemtechnik und Reaktorphysik

<sup>2</sup> Gesellschaft für Kernforschung, Institut für Angewandte Kernphysik

<sup>3</sup> Gesellschaft für Kernforschung, Institut für Neutronenphysik und Reaktortechnik

<sup>4</sup> Gesellschaft für Kernforschung, Institut für Radiochemie

<sup>5</sup> Europäisches Institut für Transurane

<sup>6</sup> Technische Universität Hannover

<sup>7</sup> Fa. INTERATOM, Bensberg



Der vorliegende Bericht beschreibt die Arbeiten am Projekt Spaltstoffflußkontrolle, die von den an diesem Projekt beteiligten Instituten der Gesellschaft für Kernforschung, Karlsruhe, und dem Europäischen Institut für Transurane sowie einigen Industriefirmen im Jahr 1971 durchgeführt wurden.



<u>Inhaltsübersicht</u>	Seite
Einführung	1
<u>Kapitel 1: Systemanalyse</u>	
1.0 Allgemeine Vorbemerkungen	9
1.1 Allgemeine Untersuchungen zum Überwachungs- aufwand	11
1.1.1 Brennstoffzyklusbetrachtungen	11
1.1.2 Quantifizierung der in INFCIRC/153 der IAEA angegebenen Kriterien	11
1.1.3 Anwendung der Entscheidungstheorie auf Probleme der Spaltstoffflußkontrolle	14
1.2 Allgemeine Untersuchungen von Methoden und Maßnahmen	18
1.2.1 Analyse historischer MUF-Daten; Arbeiten zum Problem der Signifikanz des MUF	18
1.2.2 Untersuchungen zum Verhalten systematischer Fehler	22
1.2.3 Anwendung entscheidungstheoretischer Unter- suchungen auf Containment-Probleme	23
1.2.4 Anwendung von Simulationsmodellen auf Probleme der Spaltstoffflußkontrolle	24
1.3 Korrelationen im Brennstoffzyklus	29
Literaturverzeichnis zu Kapitel 1	31
<u>Kapitel 2: Zerstörungsfreie Methoden</u>	
2.0 Einführung	33
2.1 Neutroneneinfang-Gammastrahlung	35
2.2 Bremszeitspektrometer	40
2.3 Bestimmung des Spaltstoffgehalts in Brennelementen aus hochangereichertem Uran nach der Methode der verzögerten Neutronen	49
2.4 Bestimmung von Spaltstoff in Brennelementen mit Hilfe einer Antimon-Beryllium-Neutronenquelle	50
2.5 Ein einfaches Gerät zur Bestimmung des Spalt- stoffs in Brennelementen nach der Fermialter- Methode	53
2.6 Passive Bestimmung von $^{235}\text{U}$ und Thorium in AVR- und THTR-Brennelementkugeln	56

2.7	Bestimmung der Isotopenzusammensetzung von Uran bei unbekannter Dichte des Absorbermaterials	59
2.8	Gammastrahlenspektrometrische Bestimmung der Isotopenzusammensetzung von Plutonium	62
2.9	Neutronenkoinzidenzmessungen zur Plutoniumbestimmung	64
2.10	Hülsenmonitor	68
2.11	Kalorimetrie	73
2.12	Personenschleuse	76
2.13	Betrugsmengen-Rechnungen für zylindrische Brennstoffanordnungen	76
	Literaturverzeichnis zu Kapitel 2	80

### Kapitel 3: Direkte Verfahren

3.0	Einführung	85
3.1	Serviceleistungen der Analytischen Gruppe des Instituts für Radiochemie	86
3.2	Entwicklung direkter Verfahren	87
3.2.1	Automatisierung der massenspektrometrischen Isotopenverdünnungsanalyse	87
3.2.2	Automatisierung der Uran- und Plutoniumkonzentrationsbestimmung durch Röntgenfluoreszenzanalyse	97
3.2.3	Versuche zur emissionspektroskopischen Isotopenbestimmung in Kernbrennstoffen	136
3.2.4	Isotopenkorrelation der schweren Isotope und ausgewählter Spaltprodukte	142
3.2.5	Sonstige analytische Verfahren	148

### Kapitel 4: Containmentmaßnahmen

4.1	Arbeiten am Accountabilitytank	155
4.2	Brennelementversiegelung und Identifikation	168
	Literaturverzeichnis zu Kapitel 4	178

## Kapitel 5: Experimentelle Prüfung von Überwachungsmaßnahmen

	Einführung	179
5.1	Experimente an Reaktoren	180
5.2	Integrales Überwachungsexperiment (Mol-III) in der Wiederaufarbeitungsanlage EUROCHEMIC, Mol, Belgien	189
5.2.1	Identifikation bestrahlter Brennelemente	189
5.2.2	Simulationsstudien	193
5.2.3	Experimentelle Demonstration einer neuen Inventurtechnik mit Hilfe von Isotopensignalen	197
5.2.4	Isotopenkorrelationen	197
5.3	Interlaboratoriumstests	
5.3.1	Interlabtest zum Experiment Mol-III	204
5.3.2	Interlabtest IDA-72, Vorbereitungen	210
	Literaturverzeichnis zu Kapitel 5	212

## Kapitel 6: Studien für Überwachungsmaßnahmen in Kernanlagen

	Einleitung	213
6.1	Überwachungsmaßnahmen in Reaktoranlagen	213
6.1.1	Überwachungsmaßnahmen in Kernkraftwerken mit Leichtwasserreaktoren	213
6.1.2	Überwachungsmaßnahmen für Kernkraftwerke mit Schnellen Brutreaktoren vom Typ SNR	221
6.2	Überwachungsmaßnahmen in Fabrikationsanlagen für die Verarbeitung von hochangereichertem Uran (NUKEM, Hanau)	227
6.3	Überwachungsmaßnahmen in GUZ-Anlagen	229
	Literaturverzeichnis zu Kapitel 6	231

## Kapitel 7: Internationale Zusammenarbeit

7.1	Zusammenarbeit mit EURATOM	233
7.2	Zusammenarbeit mit der IAEA	236
7.3	Internationale Tagungen	236



Jahresbericht 1971  
des Projektes Spaltstoffflußkontrolle

Einführung

D. Gupta, IASR

Die Ereignisse im Jahre 1971 im Zusammenhang mit dem Vertrag über Nichtverbreitung von Kernwaffen (NV-Vertrag) leiteten eine Wende in den weiteren F+E.-Arbeiten des Projektes Spaltstoffflußkontrolle ein. Diese Wende zeigte sich durch eine Verlagerung der Betonung von der Demonstration auf eine praxisorientierte Erprobung der entwickelten Methoden und Maßnahmen. Etwa ein Jahr nach dem Inkrafttreten des Vertrages verabschiedete im März 1971 der Gouverneursrat der Internationalen Atomenergie-Organisation (IAEO) das Modellabkommen über Sicherheitskontrolle zwischen der IAEO und einem Staat im Zusammenhang mit dem NV-Vertrag /1/, /2/. Kurz danach begannen die Diskussionen zwischen der IAEO und den einzelnen Staaten über die Verwirklichung der in /1/ festgelegten Grundzüge des Überwachungssystems. Im November 1971 begann die erste Verhandlungsrunde zwischen Euratom und der IAEO über eine geeignete gemeinsame Überwachung des spaltbaren Materials in nichtatomaren Mitgliedsstaaten der Gemeinschaft. Es ist hier zu erwähnen, daß die im Rahmen des Projektes entwickelten Gedanken in ihren Grundzügen zum großen Teil von dem neuen Überwachungssystem der IAEO übernommen worden sind. So wurde in /1/ als Ziel des neuen Überwachungssystems die rechtzeitige Entdeckung der Abzweigung signifikanter Mengen nuklearen Materials aus friedlichen nuklearen Tätigkeiten zur Herstellung von Kernwaffen oder sonstigen Kernsprengkörpern festgesetzt. Zur Erreichung dieses Zieles sollen die Mengenzbilanz als grundlegende Überwachungsmaßnahme und die dichte Umhüllung (Containment) sowie Beobachtung (Surveillance) als wichtigste Ergänzungsmaßnahmen dienen. Bei der Durchführung dieser Maßnahmen soll die IAEO den technologischen Entwicklungen auf diesem Gebiet voll Rechnung tragen und bestrebt sein, das System kostenoptimal zu gestalten und soweit wie möglich das Prinzip der effektiven Spaltstoffflußkontrolle an einigen

---

zum Druck eingereicht 25.8.1972

strategischen Punkten mittels Instrumenten und anderen Techniken operativ anzuwenden. Auch das Verfahren für die Wahrnehmung der verschiedenen Überwachungstätigkeiten durch die IAE0 ähnelt demjenigen, das in einigen Referenzfällen /3/ vom Projekt aufgezeichnet worden war. Danach sind vier Schritte vorgesehen a) Bereitstellung von Anlagedaten, b) Erstellung eines Protokollsystems für die Anlagen, c) Berichterstattungssystem durch das nationale (oder regionale) System und d) Inspektionen.

Die internationale Anerkennung und Aufnahme durch die IAE0 der bis ins einzelne gehenden Detail-Maßnahmen des vom Projekt ausgearbeiteten Systems liegt teilweise daran, daß von Anfang an (1967) eine enge Zusammenarbeit zwischen der IAE0 und dem Projekt aufgebaut wurde. Ein großer Teil liegt jedoch daran, daß die im Projekt entwickelten Gedanken, Methoden und Instrumente in Referenzfällen mit industrienahen Daten sowie unter betriebsnahen Bedingungen demonstriert werden konnten. Eine anschließende Analyse zeigt deutlich, daß gerade die Demonstration der Durchführbarkeit die Aufnahme des Karlsruher Systems bei der IAE0 maßgeblich beeinflußt hat. Z.B. konnte gezeigt werden, daß mit Hilfe von Instrumenten eine Erfassung des Spaltstoffes in fertigen völlig zugeschweißten Brennstäben am Ende einer Fabrikationslinie d.h. an einem strategischen Punkt möglich ist. Weiterhin zeigten die Referenzstudien /3/, daß nur wenige Anlagedaten - die zum größten Teil sowieso veröffentlicht werden - für die Festlegung von strategischen Punkten, Mengenbilanzonen und Routine-Inspektionstätigkeiten erforderlich sind, und daß ein überwachungsgerechtes Protokollsystem in den meisten Fällen in Anlehnung an betriebseigene Material-Buchführungssysteme aufgebaut werden kann. Schließlich ergaben die bis 1971 durchgeführten 5 Integralen Experimente in bestehenden Kernanlagen u.a., daß die Routine-Inspektionstätigkeiten für die drei Maßnahmen mit realistischem Aufwand und ohne nennenswerte Behinderung des normalen Betriebes vorgenommen werden können.

Da nach dem Inkrafttreten des neuen IAE0-Überwachungssystems die weitere Demonstration nicht mehr erforderlich war, mußten Ziel und Tätigkeiten des Projektes einen Schritt weiter neu bestimmt werden. Dies leitete die zweite Phase des Projektes, nämlich die Anwendungsphase, ein.

Nach Ratifikation des NV-Vertrages übernimmt jeder Nichtkernwaffenstaat die Verpflichtung, geeignete Maßnahmen zur Verhinderung einer Abzweigung

(Artikel 3 des NV-Vertrages) nuklearer Materialien zu treffen. Internationale Kontrollen (IAEO, Euratom) können sich notwendigerweise nur auf die Entdeckung der Abzweigung von spaltbarem Material, wenn sie einmal erfolgt ist, beziehen. Hauptsächliches Hilfsmittel zur Entdeckung einer Abzweigung nuklearen Materials ist, wie schon erwähnt, die Einführung eines Bilanzierungssystems. Dagegen erfordern präventive Maßnahmen im allgemeinen und Maßnahmen zur physischen Sicherheit (physical protection) nuklearen Materials im besonderen gesetzgeberische und hoheitliche Vollmachten, die internationale Institutionen so nicht haben. Außerdem wird es im Zusammenhang mit dem Verifikationsabkommen Euratom/IAEO erforderlich sein, alle nuklearen Materialien durch hinreichend genaue Messungen zu erfassen. Jedoch kann Euratom die Verwendung von bestimmten, diesen Anforderungen entsprechenden Meßsystemen nicht anordnen, "da sie nach allgemeinen verwaltungsrechtlichen Grundsätzen nur das Ziel, nicht aber die Mittel vorschreiben kann" (Zitat aus einem Gutachten des BMBW).

Obwohl die Grundzüge des neuen IAEO Überwachungssystems festgelegt worden waren, bedarf deren Übertragung in bestehende bzw. neu zu bauende Kernanlagen einer sorgfältigen Anpassung an die betrieblichen Gegebenheiten. Eine wesentliche Bedingung für die Aufnahme des Systems war die Nicht-Behinderung des normalen betrieblichen Ablaufes einer Kernanlage.

Unter Berücksichtigung dieser Gegebenheiten werden in der zweiten Phase des Projektes, die voraussichtlich bis zum Ende des vierten Atomprogramms dauern wird, u.a. folgende Bereiche aufgenommen:

- a) Entwicklung bzw. Automatisierung von speziellen Instrumenten für spezifische Kernanlagen. Dazu gehören u.a. Automatisierung und Vereinfachung von Meßverfahren für Massenspektrometrie, Röntgenfluoreszenz, Emissionspektroskopie; Entwicklung von Methoden zur Messung spaltbarer Materialien in fertigen unbestrahlten Brennelementen und in Abfallströmen in Fabrikations- und Aufarbeitungsanlagen.
- b) Spezielle Arbeiten zur Eingangsbestimmung nuklearen Materials in Wiederaufarbeitungsanlagen (Eingangsmessstank, Korrelationen usw.)
- c) Durchführen von Interlaboratoriumstests, um die unter Industriebedingungen erreichbaren Meßgenauigkeiten von einigen bestimmten, für die Überwachung relevanten Meßmethoden festzustellen

- d) Durchführen von integralen Experimenten in Kernanlagen, dabei auch in Leistungsreaktoren, zur Erzeugung von prozeßnahen Daten für eine betriebsorientierte Überwachung
  
- e) Systemanalytische Untersuchungen u.a. über
  - i) Ausarbeitung von Materialerfassungs- und Berichterstattungssystemen und gegebenenfalls Erarbeitung von geeigneten Meßsystemen für verschiedene Anlagentypen
  
  - ii) Analyse der notwendigen Containment-, Surveillance- und Spaltstoffschutzmaßnahmen für Spaltmaterialien während der Verarbeitung und des Transportes
  
  - iii) Systemanalytische Optimalisierung von Normen, Regeln und Inspektionsaufwand
  
  - iv) Gesamtoptimierung des Überwachungssystems durch ein iteratives Verfahren unter Einschluß inhärenter Eigenschaften des Brennstoffzyklus.

Diese Tätigkeiten erfordern eine weitere Intensivierung der Zusammenarbeit mit den Betreibern der Kernanlagen, Regierungsstellen und internationalen Organisationen.

Die bisher ausgeführten Arbeiten des Projektes fanden eine weite Resonanz in der internationalen Fachwelt. Bei dem letzten Integralen Experiment in der Wiederaufarbeitungsanlage Eurochemic (Mol-III) (s. Kapitel 5.2) äußerten 5 nationale und 2 internationale Organisationen den Wunsch, bei der Planung, Durchführung und Auswertung aktiv mitzuwirken. Nach erfolgreicher Beendigung dieses Experimentes wurde das Projekt von mehreren Regierungsstellen sowie von der IAEA und Euratom gebeten, einen weiteren Interlaboratoriumstest unter Einbeziehung namhafter Laboratorien federführend durchzuführen. 23 Laboratorien aus 12 Ländern haben sich bereiterklärt, an diesem Test teilzunehmen. Die vom Projekt entwickelten Instrumente, wie Kalorimeter, Bleipilespektrometer, Röntgenfluoreszenz, fanden großes Interesse in Ländern wie Frankreich,

Großbritannien, Japan, Indien und USA. Es gibt Anzeichen dafür, daß in einigen dieser Länder die Absicht besteht, ähnliche Instrumente für den gleichen Zweck einzusetzen. In mehreren nationalen und internationalen Tagungen (IAEO-Arbeitsausschüsse, INMM, ANS, Kansas City-Tagungen in USA, Spezialisten-Tagungen in Ispra/Italien, 4. ICP UAE Genf - s. Kapitel 7) wurden Mitglieder des Projektes eingeladen, über Fortschritte und Tätigkeiten des Projektes vorzutragen bzw. bei den Beratungen mitzuwirken. Mehrere Staaten zeigten ein positives Interesse, bei Gestaltung und Aufbau ihrer nationalen Überwachungssysteme sowie bei der Planung der dazugehörigen F.+E.-Arbeiten die Gedanken des Projektes soweit wie möglich mitzubetrachten. Zu diesem Zweck wurde ein Mitglied des Projektes von der Japanischen Regierung, Universitäten und Industriestellen nach Tokio eingeladen. In diesem Gebiet verfolgt Japan eine Politik der aggressiven Forschung. Die Beteiligung der genannten drei Stellen ist sehr intensiv. Die Ähnlichkeit zwischen dem japanischen und dem Karlsruher F.+E.-Programm ist erkennbar. Eine ähnliche Einladung erfolgte aus Indien, wo ein Vorschlag aus dem Projekt über eine mögliche Struktur des nationalen Systems sowie über die F.+E.-Arbeiten weitgehende Zustimmung der Regierung fand.

Schließlich ist auf die besonders intensive und fruchtbare Zusammenarbeit mit den Betreibern von Kernindustrieanlagen im Berichtszeitraum hinzuweisen. Die Bereitstellung von Unterlagen und Daten sowie die ständige Beratung mit den Kernanlagenbetreibern hat in mehreren empfindlichen Bereichen wesentlich zur Entscheidungsfindung und zur Gestaltung weiterer Arbeiten beigetragen. So hat z.B. eine sorgfältig ausgearbeitete Zusammenstellung betriebsnaher Daten und Kosten für eine Fabrikationsanlage für hochangereichertes Uran zu der Folgerung geführt, daß die Erfordernisse der Spaltstoffflußkontrolle und des physischen Schutzes des nuklearen Materials nur in einer modifizierten Anlage oder in einem Neubau realisiert werden können. Die vereinfachten Kontrollkonzepte für Leichtwasserreaktoren kamen hauptsächlich aufgrund der Anregungen der Reaktorbetreiber zustande. Im Falle natriumgekühlter Reaktoren ergab eine ähnliche Untersuchung von seiten der Reaktorhersteller, daß ein Überwachungskonzept nicht allein auf statischen bzw. dynamischen Kontrollmaßnahmen aufgebaut werden kann, sondern in einer geeigneten Kombination beider bestehen muß. Besonders wichtig waren in diesem Zusammenhang die Ergebnisse der Parameterstudien der Firmen Uranit und Dornier bezüglich eines möglichen Überwachungskonzepts für Anreicherungsanlagen, die mit

22

Gasultrazentrifugen betrieben werden. Danach kann auch dieses Überwachungssystem auf den drei klassischen Maßnahmen aufgebaut werden und bedarf keiner zusätzlichen Maßnahmen. Dieser Sachverhalt wurde inzwischen auch in internationalen Fachgremien anerkannt.

Die erfolgreiche Durchführung integraler Experimente und Interlabtests war zum größten Teil nur durch das großzügige Entgegenkommen der Anlagebetreiber, in dem sie sowohl ihre Anlagen zu diesem Zweck zur Verfügung gestellt haben, als auch in vielen Fällen personelle Hilfestellung leisteten, möglich.

Der formale Aufbau des Jahresberichtes 1971 weicht von dem des Vorjahres ab. Die Gliederung wurde eng an diejenige des Forschungs- und Entwicklungsprogrammes angelehnt und erleichtert dadurch das Auffinden der entsprechenden Korrelationen.

Literaturverzeichnis zur Einführung

- /1/ INFCIRC/153  
The Structure and Content of Agreements between the Agency  
and States required in Connection with the Treaty of the  
Non-Proliferation of Nuclear Weapons.  
May 1971
- /2/ D. Gupta: Die technischen Grundzüge der IAEO Sicherheitskontrolle  
Atomwirtschaft Nr. 8/ , Jahrgang XVI, Aug./Sept. 1971, S. 426-429
- /3/ E. Drosselmeyer, D. Gupta, A. Hagen, P. Kurz:  
Development of Safeguards Procedures and Simulation of  
Fissile Material Flow for an ALKEM Type Plant Fabricating Plutonium  
Fuel Elements for Fast Breeder Reactors.  
KFK 1100, Aug. 71
- R. Schröder, H. Winter, D. Gupta, W. Häfele  
Development of Safeguards Procedures for Heavy Water Moderated,  
Cooled and Reflected Pressurized Water Type Reactors.  
KFK 804 (April 1970)
- A. Hagen, D. Nentwich, R. Kraemer, D. Gupta, W. Häfele  
Development of Safeguards Procedures for a Reprocessing Plant  
Similar to the WAK Type.  
KFK 1102 (April 1970)



## Kapitel 1: Systemanalyse

- 1.0           Allgemeine Vorbemerkungen  
              D. Gupta IASR
- 1.1           Allgemeine Untersuchungen zum Überwachungsaufwand
  - 1.1.1        Trennstoffzyklusbetrachtungen  
              R. Avenhaus, IASR
  - 1.1.2        Quantifizierung der in INFCIRC/153 der IAEA  
              angegebenen Kriterien  
              R. Avenhaus, IASR
  - 1.1.3        Anwendung der Entscheidungstheorie auf Probleme  
              der Spaltstoffflußkontrolle  
              R. Avenhaus, IASR
- 1.2           Allgemeine Untersuchungen von Methoden und Maß-  
              nahmen
  - 1.2.1        Analyse historischer MUF-Daten; Arbeiten zum  
              Problem der Signifikanz des MU  
              R. Avenhaus, IASR
  - 1.2.2        Untersuchungen zum Verhalten systematischer Fehler  
              R. Avenhaus, IASR
  - 1.2.3        Anwendung entscheidungstheoretischer Untersuchungen  
              auf Containment-Probleme  
              R. Avenhaus, L. Grünbaum, IASR
  - 1.2.4        Anwendung von Simulationsmodellen auf Probleme der  
              Spaltstoffflußkontrolle  
              E. Drosselmeyer, IASR
- 1.3           Korrelationen im Brennstoffzyklus  
              R. Kraemer, IASR

Literaturverzeichnis zu Kapitel 1



## 1. Systemanalyse

### 1.0 Allgemeine Vorbemerkungen

Nach wie vor bilden die systemanalytischen Tätigkeiten des Projektes, die im IASR wahrgenommen werden, einen der Schwerpunkte der Projektarbeiten. 1971 wurden die Optimierungsmethoden für die Überwachung in einem Zyklus weiter ausgebaut und neue Methoden für die Quantifizierung verschiedener Überwachungsparameter entwickelt. Die Analyse und Auswertung von historischen Daten über nicht erfaßbare Spaltstoffmengen (in englisch MUF: Material Unaccounted For) lieferten wertvolle Informationen über die Anwendbarkeit und Grenzen der statistischen Aussageverfahren. Auch die schon entwickelten entscheidungstheoretischen Modelle und deren Demonstration in Referenzfällen für die Anwendung in verschiedenen Gebieten der Überwachung erweckte langsam das Interesse der internationalen Organisationen, so daß z.B. auf Anregung der IAEA die ersten Gespräche über eine mögliche Zusammenarbeit zwischen dem Projekt und der IAEA zustande kamen.

In einem Invited Paper zur Genfer Konferenz über die Rolle der Systemanalyse in der Sicherheitskontrolle wurde erstmalig ein Versuch unternommen, die einzelnen Elemente, die für die Systemanalyse von Bedeutung sind, logisch in ein Gesamtbild einzuordnen und ein integriertes Tätigkeitsfeld aufzuzeichnen. (Abb. 1.0/1). Auf eine detaillierte Beschreibung auf S. 5 bis 8 der Ref. /1/ sei hingewiesen.

In einem anderen Invited Paper /2/ zum internationalen Symposium über zerstörungsfreie Meßmethoden und Identifikationstechniken wurden die Bedingungen, die eine zerstörungsfreie Methode aus der Sicht der Systemanalyse erfüllen sollte, analysiert. Ein vereinfachtes Überwachungsschema im nuklearen Brennstoffzyklus wurde in /3/ diskutiert.

Im folgenden sind die einzelnen Bereiche ausführlicher behandelt.

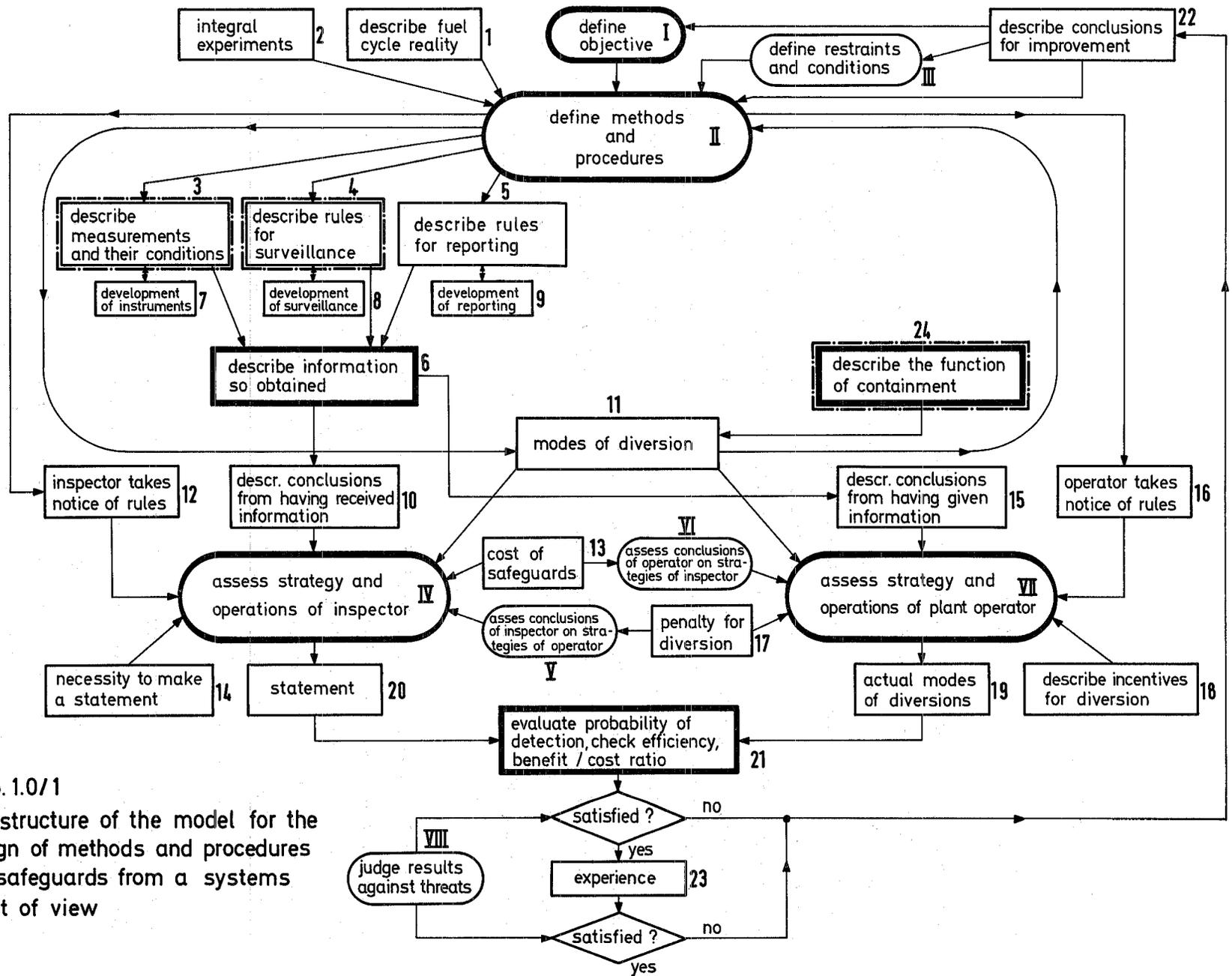


Abb. 1.0/1  
 The structure of the model for the design of methods and procedures for safeguards from a systems point of view

## 1.1 Allgemeine Untersuchungen zum Überwachungsaufwand

### 1.1.1 Brennstoffzyklusbetrachtungen /4/

In Fortführung der im Jahr 1970 durchgeführten Brennstoff-Rechnungen wurde ein idealisierter Brennstoffzyklus betrachtet, der gegenüber dem früher betrachteten Zyklus um eine Pu-Fabrikationsanlage mit angeschlossenem Pu-Brennelementlager erweitert worden war (Abb. 1.1.1/1). Dabei lag der Schwerpunkt dieser Arbeit darin, zu untersuchen, welche Maßnahmen eine Reduktion des Überwachungsaufwandes ohne gleichzeitige Minderung der Wirksamkeit der Überwachung ermöglichen: Verwendung von Shipper-Receiver-Korrelationen sowie Verwendung von Isotopen-Korrelationen; Verwendung historischer Daten über Meßgenauigkeiten und MUF-Werte; Durchsichtigkeit des Informationssystems. Es wurde gezeigt, daß der Einsatz dieser Maßnahmen den Überwachungsaufwand um 35 % senken kann, wobei der Verwendung der Shipper-Receiver-Korrelationen - was heute schon Routine ist - der größte Anteil zukommt.

### 1.1.2 Quantifizierung der im INF/CIRC/153 der IAEA angegebenen Kriterien /3/

Es ist eine der wichtigsten Aufgaben der systemanalytischen Untersuchungen im Rahmen der Spaltstoffüberwachung, überwachungsrelevante Zusammenhänge und Begriffe, die nicht ohne weiteres quantitativ angebbar sind, zu quantifizieren. Ein Beispiel dafür sind die im Modellabkommen INFCIRC/153 der IAEA angegebenen Kriterien zur Verringerung des maximalen Inspektionsaufwandes der IAEA. Hier besteht die Aufgabe, verbal vorgegebene Kriterien wie Internationalität des Brennstoffzyklus, Zugänglichkeit des Materials und ähnliche mehr, in Zahlen, d.h. prozentuelle Reduktionen des maximalen Inspektionsaufwandes umzusetzen (der maximale Inspektionsaufwand ist für die verschiedenen Anlagen des Brennstoffzyklus ebenfalls im IAEA-Dokument INFCIRC/153 festgelegt).

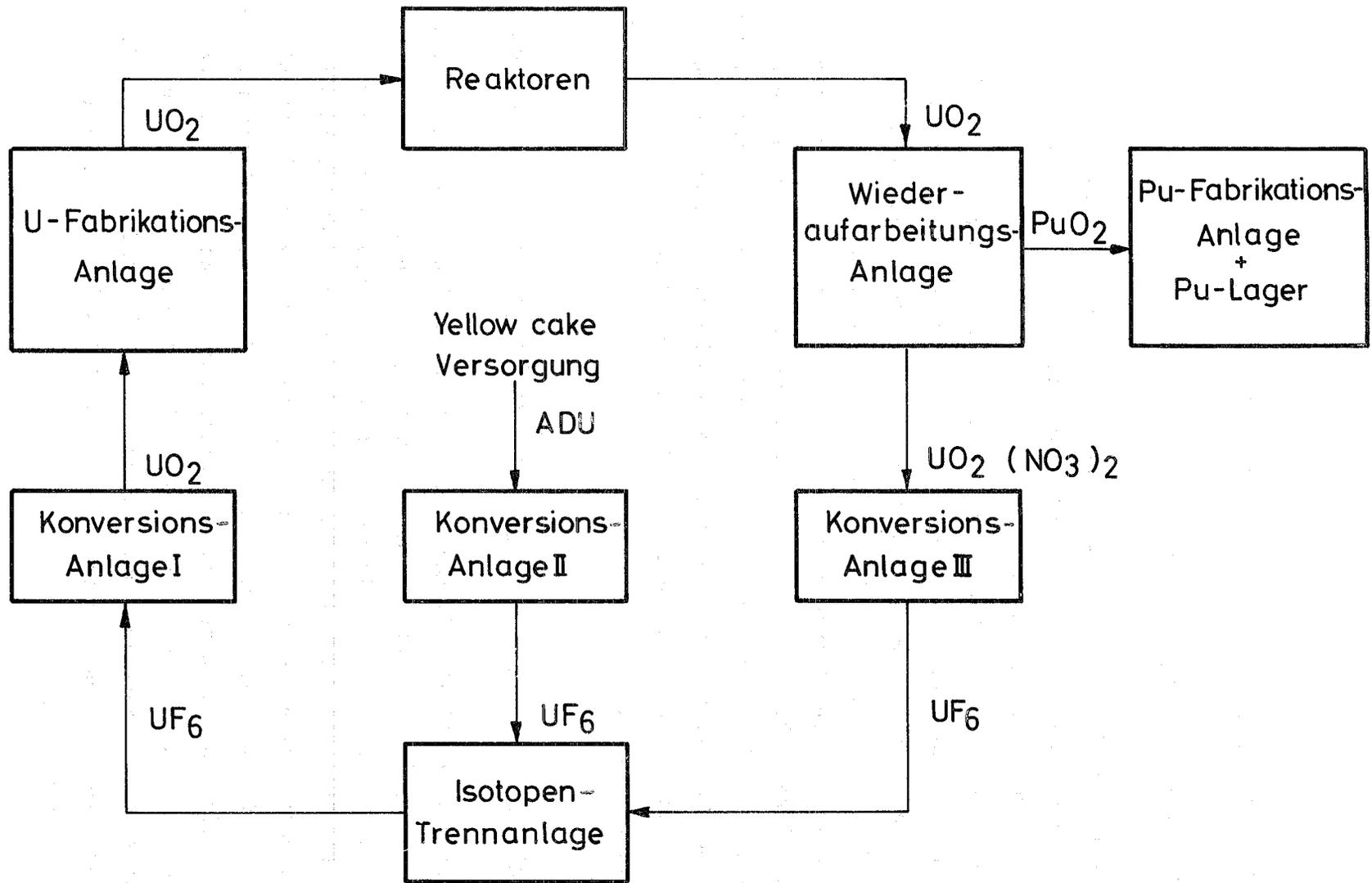


Abb.1.1.1./1 Referenz - Brennstoffkreislauf mit Kerntechnischen Anlagen

Abb. 1.1.2/1: Characteristics of fissile material influencing its non-divertibility ( $\mu$ )  
(In the case of two numbers for the same cycle, 1 is for U and 2 for Pu.)  
Excepting system 1,2

Point System	Conv.	Reactor	Fabr.	Repr.	Enrich.	I ( $0 \leq I \leq 10$ )	K ( $0 \leq K \leq 10$ )	10-V ( $0 \leq 10-V \leq 10$ )	I	0.5 K	0.8(10-V)	$\Sigma$	$\mu$
0						10	10	10	10	5	8	23	1
1	X <sup>+</sup>					0	2	10	0	1	8	9	0.39
2	X					10	2	10	10	1	8	19	0.82
3		X <sub>1</sub> (HWR)				5	2	10	5	1	8	14	0.61
4		X <sup>+</sup>				0	2	0	0	1	0	1	0.043
5		X (LWR)				10	2	0	10	1	0	11	0.48
6	X <sup>+</sup>				X	0	4	0	2	0	2	2	0.086
7	X <sub>1</sub>					5	2	10	5	1	8	14	0.61
8	X <sup>+</sup>	X (HWR)	X			0	2	0	0	1	0	1	0.043
9		X (LWR)	X			10	6	10	10	3	8	21	0.91
10	X					5	2	0	5	1	0	6	0.26
11	X	X (LWR)	X		X	10	4	5	10	2	4	16	0.69
12						5	2	0	5	1	0	6	0.26
13	X <sup>+</sup>	X (LWR)	X		X	0	4	0	0	2	0	2	0.086
14						5	2	0	5	1	0	6	0.26
15	X	X (LWR)	X		X	10	8	10	10	4	8	12	0.52
16						2	8	0	2	4	0	6	0.26
17						0	10	0	0	5	0	5	0.22
18	X	X (LWR)	X	X	X	0	10	0	0	5	0	5	0.22

X<sup>+</sup> Supplied or recovered amounts of U not known.

X Supplied or recovered amounts of U known independently.

I = International interdependence

K = Correlation in the cycle

V = Accessibility of material

$\mu$  = Non-divertibility

Die für diese Aufgabe entwickelte Methode basiert auf einem mit Wichtungsfaktoren versehenen Punktverteilungssystem, das häufig für ähnliche Entscheidungsprozesse angewendet wird. Dabei ist die Punktezahl, die eine Einzelperson einem bestimmten Fall zuordnet, natürlich bis zu einem gewissen Grade subjektiv; es ist daher die Idee, mehrere Einzelpersonen unabhängig voneinander den verschiedenen Fällen Punkte zuordnen zu lassen, um so den Grad der Subjektivität zu verringern. In Abb. 1.1.2/1 ist ein Beispiel für ein solches Punkteverteilungs-System für verschiedene Brennstoffzyklen gegeben. Ein weiteres System wurde zur Erfassung der Effektivität eines nationalen Überwachungssystems erstellt, da die beiden großen Kategorien Brennstoffzyklus und nationales Überwachungssystem zusammen den Grad der Reduktion des maximalen Inspektionsaufwandes der IAEA bestimmen.

### 1.1.3 Anwendung der Entscheidungstheorie auf Probleme der Spaltstoffflußkontrolle /9/, /10/

Die schon seit drei Jahren in Zusammenarbeit mit der Universität Karlsruhe betriebenen Studien zur Anwendung der mathematischen Spiel- und Entscheidungstheorie wurden intensiviert; es wurden früher entworfene Modelle erweitert /9/, weitere Probleme angegriffen (wie z.B. das Problem der relativen Bedeutung strategischer Bereiche für die Überwachung des spaltbaren Materials), und es wurde ein zusammenfassender Bericht über die Möglichkeiten und die Grenzen der Anwendbarkeit der Theorie auf Probleme der Spaltstoffüberwachung gegeben /10/.

Eine Klasse von Modellen behandelt die folgende Fragestellung: Es wird eine Folge von Inventurperioden von variabler zeitlicher Länge betrachtet und es wird angenommen, daß mit Hilfe einer Inventur eine Materialbilanz zu einem Zeitpunkt, der dem Anlagenbetreiber vorher nicht bekannt ist, geschlossen werden kann. Es wird weiter angenommen, daß es genügt, eine illegale Aktion  $\tau$  Zeiteinheiten nach dem Beginn der illegalen Aktion zu entdecken. Findet die Inventur weniger als  $\tau$  Zeiteinheiten nach dem Beginn der illegalen Aktion statt, so hat der Betreiber verloren, anderenfalls hat er gewonnen. Die Menge der möglichen Strategien des Betreibers ist gegeben durch die Menge der Möglichkeiten, den Zeitpunkt des Beginnes der illegalen Aktion zu wählen; die Menge der möglichen Strategien des Inspektors ist gegeben durch die Menge

Case		Probability of detection
$0 < J \leq g$ (i.e. $\zeta=0, \eta=J$ )	$k < m$	$\frac{J \cdot k \cdot \Pi}{g \cdot m}$
$J = \zeta \cdot g$ (i.e. $\zeta \geq 1, \eta=0$ )	$\zeta \cdot k \not\equiv m$	$1 - h_{\zeta} \cdot \frac{m - \gamma \zeta \cdot \Pi}{m \cdot \Pi}$
	$\zeta \cdot k$ arbitrary $\Pi_1 = \dots = \Pi_m =: \Pi$	$1 - (1 - \Pi)^{\alpha \zeta} \left(1 - \frac{\gamma \zeta \cdot \Pi}{m}\right)$
$J = \zeta \cdot g + \eta$	$m = 1$	$1 - (1 - \Pi)^{\zeta} \left(1 - \frac{\eta \cdot \Pi}{g}\right)$
	$(\zeta + 1) \cdot k < m$	$\frac{J \cdot k \cdot \Pi}{g \cdot m}$
	$(\zeta + 1)k \leq m$ $\Pi_1 = \dots = \Pi_m =: \Pi$	$\frac{J \cdot k \cdot \Pi}{g \cdot m}$

Abb. 1.1.3/1: Probabilities of detection in the generalized model for safe-guards by means of inventory taking where

$T$ : interval of time considered

$\tau$ : critical time

$g$ :  $= \frac{T-1}{\tau}$  (positive integer)

$J$ : number of inventories in  $T$

$\zeta, \eta$ :  $J = \zeta \cdot g + \eta$  ( $\zeta, \eta$  positive integers,  $\eta < g$ )

$k$ : number of inspectors

$m$ : number of areas in the plant

$\alpha \zeta, \gamma \zeta$ :  $\zeta \cdot k = \alpha \zeta \cdot m + \gamma \zeta$  ( $\alpha \zeta, \gamma \zeta$  positive integers,  $\gamma \zeta < m$ )

$\Pi_{\mu}$ : probability of detection for area  $\mu$  ( $\mu=1, \dots, m$ )

$$\Pi = \left( \frac{1}{m} \sum_{\mu=1}^m \frac{1}{\Pi_{\mu}} \right)^{-1}$$

$$h_{\zeta} = \left( \frac{1}{m} \sum_{\mu=1}^m \frac{1}{\Pi_{\mu} (1 - \Pi_{\mu})^{\alpha \zeta}} \right)^{-1}$$

Parameter	Input	Output
Number of batches per year	168	1200
Number of batches to be falsified by the operator	9	7
Cost per analysis $\overline{[DM]}$	1000 <sup>1)</sup>	400 <sup>2)</sup>
Amount assumed to be diverted per batch $\overline{[kg Pu]}$	1.1	1.5

1) Isotopic dilution analysis

2) Mass spectrometrical and chemical analysis

Abb. 1.1.3/2a: Numerical example for the problem of the relative importance of strategic points. 1800 kg Pu input per year; 10 kg Pu assumed to be diverted per year

$K \overline{[DM]}$	$k_1$	$k_2$	$p_1$	$p_2$	$p^+$
$10^4$	10	25	0.43	0.14	0.246
$5 \cdot 10^4$	50	125	0.94	0.53	0.361
$10 \cdot 10^4$	100	250	0.9995	0.80	0.444

Abb. 1.1.3/2b: Probabilities of detection for different budget values K for the numerical example given in table 3a

der Möglichkeiten, die Zeitpunkte des Beginnes der Inventuren zu wählen. Im am weitesten entwickelten Modell /9/ wird ein endliches Zeitintervall  $T$  betrachtet; der Etat des Inspektors erlaubt höchstens  $J$  Inventuren in diesem Zeitintervall. Die Inventuren und der Beginn der illegalen Aktion können nur zu diskreten Zeitpunkten stattfinden. Eine Inventur führt nur mit einer Wahrscheinlichkeit  $\Pi < 1$  zur Entdeckung einer illegalen Aktion, falls die Inventur während der Zeit  $\tau$  der illegalen Aktion stattfindet. Die Minimax-Strategien für den Inspektor und für den Betreiber sowie die Entdeckungswahrscheinlichkeit werden als Funktionen von  $\Pi$  und  $J$  angegeben.

Dieses Modell wurde erweitert auf den Fall, daß eine Anlage aus  $m$  Teilanlagen besteht, in denen unabhängig Inventuren durchgeführt werden können. Die Entdeckungswahrscheinlichkeiten für die Fälle, für die Lösungen angegeben werden konnten, sind in Abb. 1.1.3/1 aufgeführt.

In einem zusammenfassenden Bericht /10/ wurde die grundsätzliche Problematik der Anwendbarkeit der mathematischen Spiel- und Entscheidungstheorie auf Probleme der Spaltstoffüberwachung diskutiert. Dabei wurde im ersten Teil zuerst die Frage analysiert, ob Zweipersonen-Nichtnullsummen-Spiele oder Zweipersonen-Nullsummen-Spiele die Situation besser beschreiben; es wurden Argumente dafür gegeben, daß zur Behandlung des Problems der Optimierung des Inspektionsaufwandes die zweite Klasse von Spielen besser geeignet sei.

Anhand des Problems der relativen Bedeutung strategischer Bereiche für die Verteilung des Überwachungsaufwandes wurde die Anwendbarkeit der Theorie demonstriert. Es wurde gezeigt, welche Parameter das Problem charakterisieren, und daß in Grenzfällen die Optimierung des Überwachungsaufwandes zu sehr anschaulichen Relationen führt. Ein Zahlenbeispiel für den Fall einer Wiederaufarbeitungsanlage ist in Abb. 1.1.3/2 gegeben.

Im letzten Teil des zusammenfassenden Berichtes wurde ein Überblick über alle bis dahin entwickelten spieltheoretischen Modelle im Rahmen der Spaltstoffüberwachung gegeben.

Seit der Fertigstellung des Berichtes /10/ wurde das Modell für das Problem der relativen Bedeutung strategischer Bereiche dahingehend erweitert, daß die nichtverschwindenden Fehler der Messungen des Betreibers und des Inspektors berücksichtigt wurden.

## 1.2 Allgemeine Untersuchung von Methoden und Maßnahmen

### 1.2.1 Analyse historischer MUF-Daten; Arbeiten zum Problem der Signifikanz des MUF /5/, /6/

Da die Materialbilanz als eine der wichtigsten Überwachungsmaßnahmen angesehen werden kann, und da weiterhin die Materialbilanz in der Erstellung des MUF ("Material Unaccounted For": Fehlbetrag in der Materialbilanz nach einer abschließenden Inventur) gipfelt, kommt der Analyse der möglichen Komponenten des MUF sowie der Analyse der Aussagemöglichkeiten des Inspektors eine zentrale Bedeutung zu.

Im Falle, daß keine Entwendung spaltbaren Materials vorliegt, kann ein nicht verschwindender Fehlbetrag in der Bilanz verursacht werden durch

- (i) zuverlässige und systematische Fehler bei den zur Erstellung der Materialbilanz notwendigen Messungen
- (ii) ungemessene und nicht meßbare Verluste sowie nicht erfaßtes Inventar.

Während die experimentelle Erfassung aller MUF-Komponenten Gegenstand früherer integraler Experimente war, wurde im Jahr 1971 der Versuch gemacht, theoretisch mit Hilfe einer Sammlung historischer MUF-Werte Aussagen über die Größenordnung und die Verteilung der Verluste sowie des nicht erfaßten Inventars zu erhalten.

Gegenstand der detaillierten theoretischen Analyse /5/ der 200 aus amerikanischen, englischen und deutschen Quellen verfügbaren MUF-Werte waren die Fragen

- (i) ob die MUF-Werte schon allein durch (im wesentlichen systematische) Meßfehler erklärt werden können und

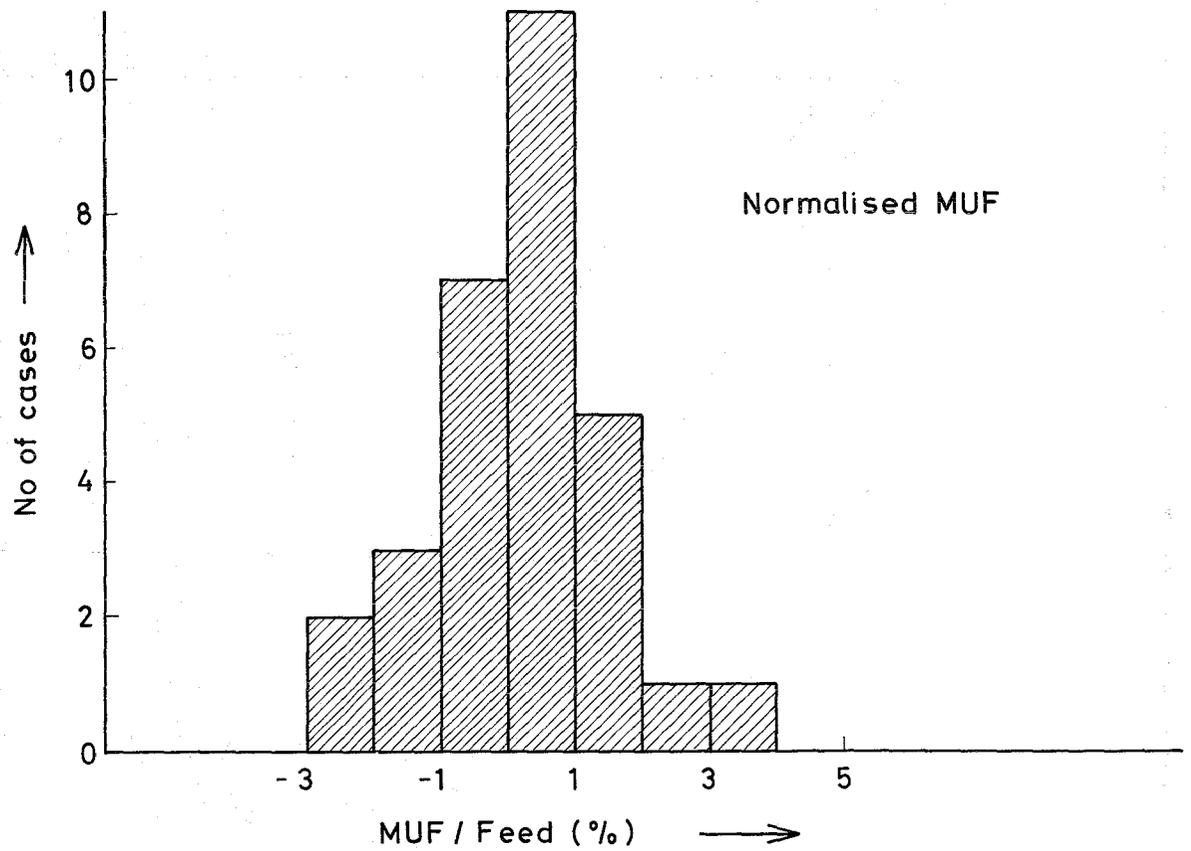
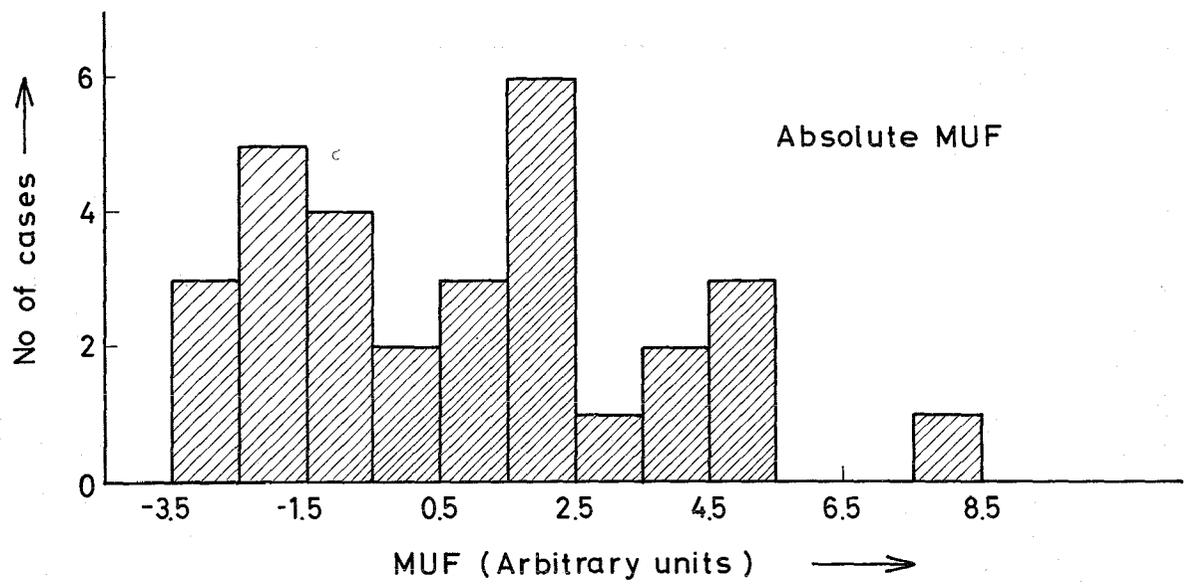


Abb.12.1/1 Histograms of Absolute and Normalised values of MUF in a reprocessing plant (4)

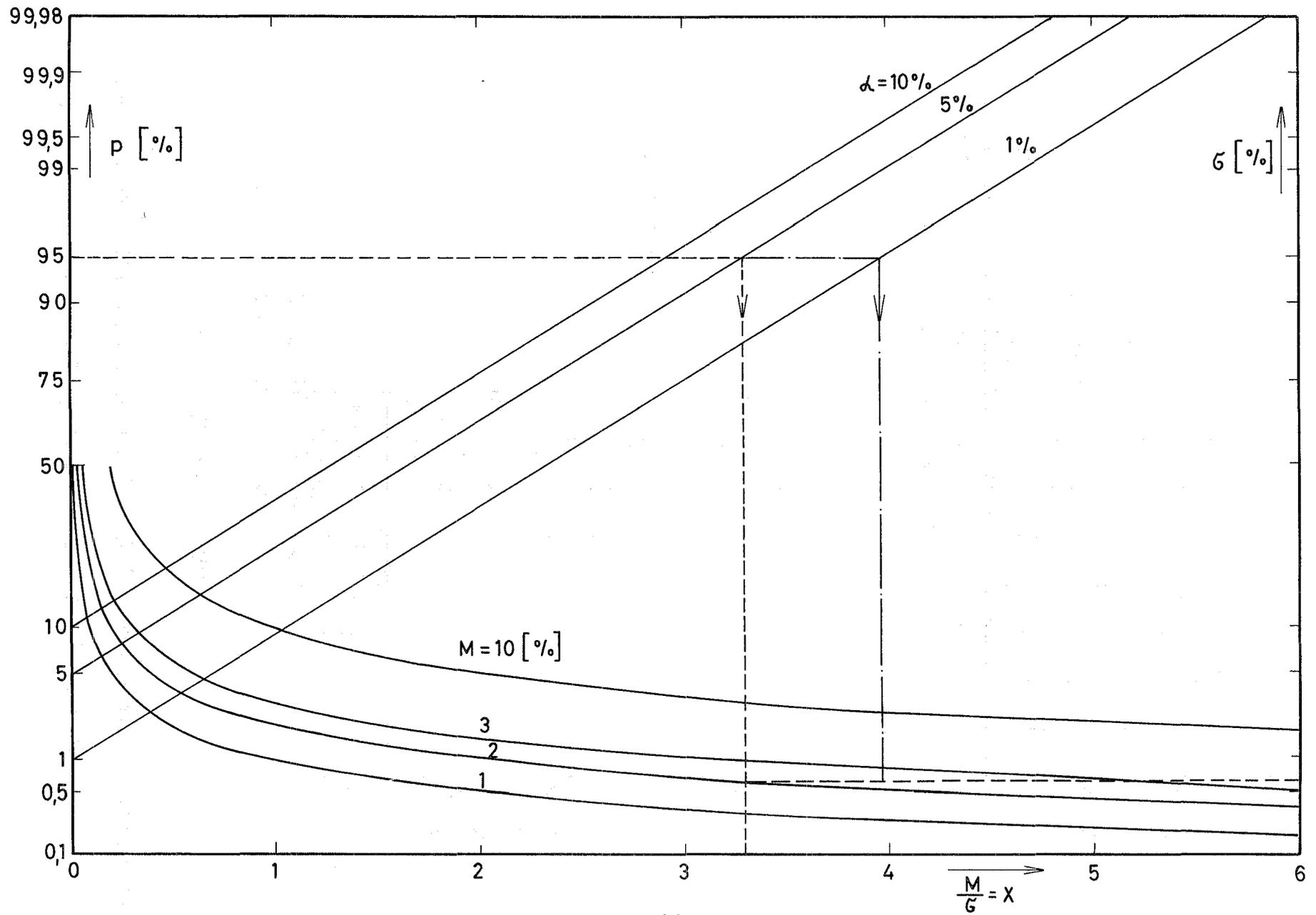


Abb.1.2.1/2 Nomograph für die Gleichung  $p = \varphi\left(\frac{M}{G} - U_{1-\delta}\right)$

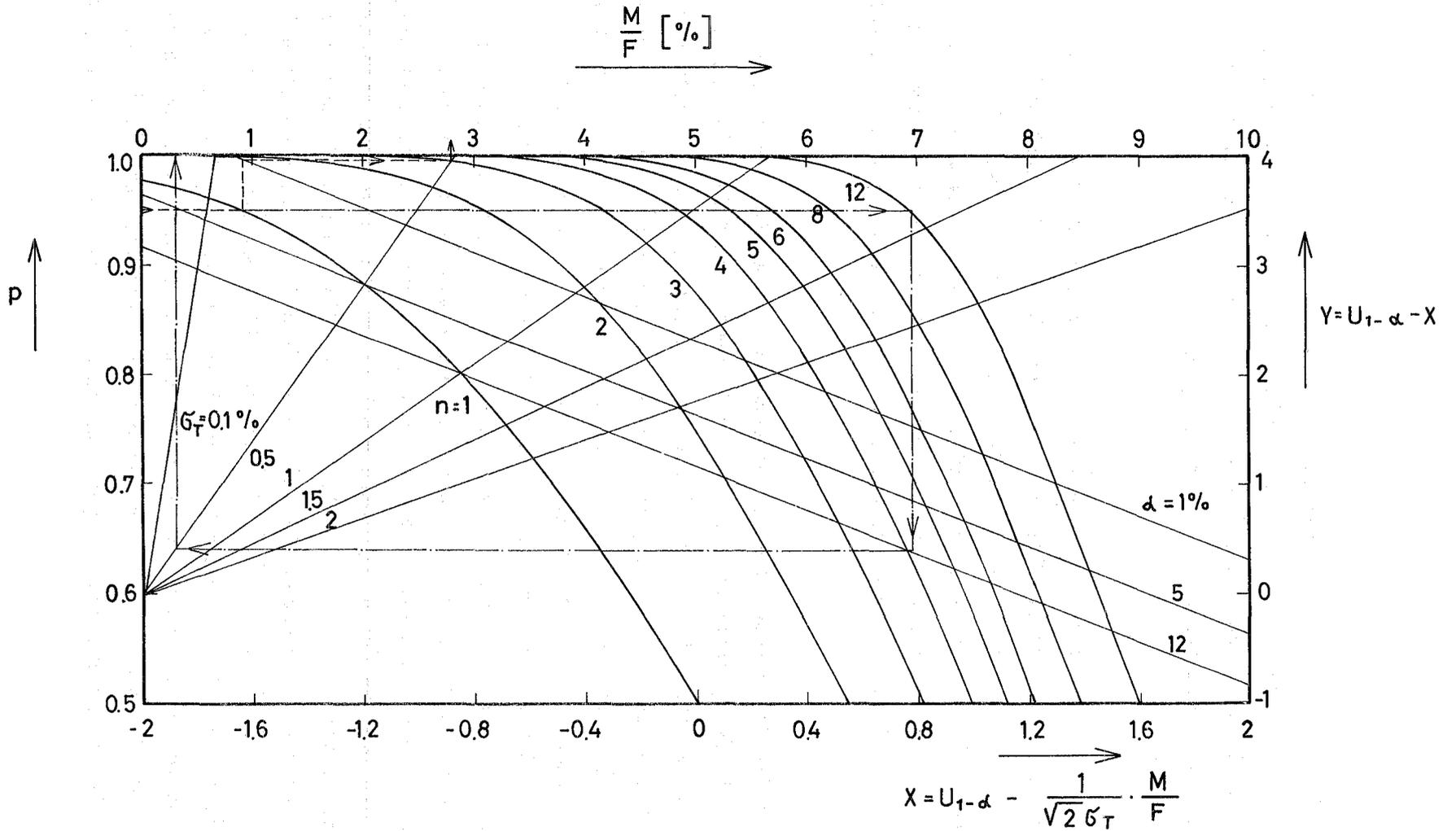


Abb.1.21/3 Nomograph für die Gleichung (exakte Inventur)  $p = 1 - \left[ \Phi \left( U_{1-\alpha} - \frac{1}{\sqrt{2}\sigma_T} \cdot \frac{M}{F} \right) \right]^n$

- (ii) wenn schon ein nicht durch Meßfehler erklärbarer Rest bleibt (wie es tatsächlich der Fall ist), ob statistische Aussagen über diesen Rest bezüglich der absoluten MUF Werte oder besser bezüglich der auf die Gesamteingangsmenge einer Anlage normierten MUF-Werte zu machen sind.

Die Analyse zeigte, daß ein großer Teil der verfügbaren MUF-Daten durch systematische Meßfehler zu erklären ist, daß jedoch eine Vielzahl anderer Faktoren zufälligen und systematischen Ursprungs zu den MUF-Daten beitragen können. Dabei können anlagespezifische Daten einer Normalverteilung gehorchen. Abb. 1.2.1/1 ist ein Beispiel dafür, daß der auf die Gesamteingangsmenge normierte MUF-Wert eher einer Normalverteilung gehorcht als der absolute MUF-Wert.

Ausgehend von den Ergebnissen dieser Untersuchung wurde eine Arbeit /6/ durchgeführt, in der gezeigt wurde, wie der Inspektor am Ende einer Inventurperiode mit Hilfe seiner Vorinformation über Fehlerbeiträge und mittlere Verluste sowie verborgenes Inventar eine Aussage darüber machen kann, ob der realisierte MUF-Wert signifikant ist oder nicht, d.h. ob der Wert auf eine illegale Entwendung spaltbaren Materials hindeutet oder nicht. Da die Qualität der Aussage des Inspektors von statistischen Parametern wie Irrtumswahrscheinlichkeit 1. Art  $\alpha$ , Irrtumswahrscheinlichkeit 2. Art  $\beta$  (gleich eins minus der Entdeckungswahrscheinlichkeit) sowie der angenommenen potentiellen Entwendung  $M$  abhängt, da diese Parameter überdies a priori schwer festzulegen sind, wurde die Methode der Nomographen gewählt, um die Relationen zwischen allen relevanten Parametern darzustellen, mit dem Ziel, sinnvolle Bereiche für diese Parameter zu erkennen. Die Abb. 1.2.1/2 und 1.2.1/3 sind ein Beispiel dafür: während sich Abb. 1.2.1/3 auf den Fall einer Inventurperiode bezieht, wird in Abb. 1.2.1/3 oder Zeitraum/Jahr mit einer variablen Zahl von Inventurperioden betrachtet, wobei  $\alpha$  für das ganze Jahr gilt und weiter angenommen wird, daß die Genauigkeit der Inventur sehr viel besser ist als die Genauigkeit der Durchflußmessungen während der betrachteten Inventurperiode.

### 1.2.2 Untersuchungen zum Verhalten systematischer Fehler /7/

Als eine der wichtigsten MUF-Komponenten verdienen die systematischen

Meßfehler besondere Beachtung, auch von der theoretischen Seite her. Es wurde verfügbare Literatur - besonders zum Problem der Fortpflanzung systematischer Fehler - zusammengetragen, und es wurden die in der Literatur gefundenen Ansätze zur Berücksichtigung von systematischen Fehlern, deren Ursprung unbekannt ist, bei der Erstellung von Konfidenzintervallen weiterentwickelt. Diese Untersuchungen werden auch in Zukunft ihren Platz bei den systemanalytischen Arbeiten einnehmen.

### 1.2.3 Anwendung von entscheidungstheoretischen Untersuchungen auf Containment-Probleme

Containment-Maßnahmen gehören neben der Material-Bilanzierung und den Surveillance-Maßnahmen zu den grundsätzlichen Elementen eines Spaltstoff-Überwachungssystems. Daher erhebt sich die Frage, ob sich die Wirksamkeit von Containment-Maßnahmen nicht in ähnlicher Weise quantifizieren läßt wie z.B. bei der Materialbilanzierung.

Im Rahmen dieser allgemeinen Fragestellung wurde ein spezielles Problem behandelt: Es wird ein Plutonium-Lager betrachtet, in dem sich  $n_2$  Birdcages mit Plutonium befinden, die auf  $n_1$  Schränke verteilt sind. Die Schränke und Birdcages sind versiegelt; die Fälschung eines Siegels wird bei einer Überprüfung des Siegels mit Wahrscheinlichkeit  $\Pi_1$  entdeckt. Es wird nun angenommen, daß das Lager  $J$ -mal im Jahr inspiziert wird; während einer Inspektion werden alle  $n_1$  Schrankensiegel und  $k$  der  $n_2$  Birdcage-Siegel überprüft.

Zwei Fragen stellen sich in diesem Zusammenhang;

- Wie sollen sich die Zahl der Inspektionen pro Jahr  $J$  und die Zahl der zu inspizierenden Birdcages  $k$  pro Besuch zueinander verhalten, wenn der gesamte Kontrollaufwand  $K$  pro Jahr vorgegeben ist?

- Wie groß ist der notwendige Kontrollaufwand pro Jahr?

Zur Beantwortung der zweiten Frage ist es notwendig, eine kritische Zeit  $\tau$  (die Zeit, die der Betreiber braucht, um die Siegel zu fälschen und das Plutonium zu entwenden und zu verwerten) sowie eine geforderte Gesamtentdeckungswahrscheinlichkeit (oder alternativ Auszahlungsparameter) vorzugeben. Dann läßt sich die genannte Problemstellung mit Hilfe von allgemeineren, früher entwickelten entscheidungstheoretischen Modellen behandeln /11/.

Da in die Fragestellung eine große Zahl von Parametern eingehen (Materialkosten, Kontrollzeiten etc.), ist es schwierig, allgemeine Aussagen zu machen. Es liegen erste Parameterstudien vor; ein ausführlicher Bericht ist geplant.

#### 1.2.4 Anwendung von Simulationsmodellen auf Probleme der Spaltstoffflußkontrolle (Fabrikationsanlage)

Im Rahmen des Vertrages mit der IAEA zur Entwicklung von Überwachungsmaßnahmen in einer Fabrikationsanlage wurde ein mathematisches Modell des Spaltstoffflusses in einer solchen Anlage entwickelt.

Die Anlage wurde in 3 für die Spaltstoffflußkontrolle relevante Materialbilanzzonen, nämlich Lagerbereich, Produktionsbereich und analytischen Bereich, aufgeteilt. Überwacht man diese Bereiche getrennt voneinander, so kommt man zu ausreichender Kontrolle, ohne den Prozeßablauf unnötig zu behindern.

An Hand des entwickelten mathematischen Modells ist es möglich, den Materialfluß innerhalb der Anlage bei Routinebetrieb zu simulieren und Parameterstudien durchzuführen, bei denen im Monte-Carlo-Verfahren der Einfluß von Änderungen verschiedener Prozeßgrößen auf den Gesamtverlauf von Kampagnen untersucht werden kann. Abb. 1.2.4/1 zeigt schematisch die Verknüpfung zweier Einheiten, wie etwa Pulvervorbereitung und Tablettenherstellung, in der Anlage. Abb. 1.2.4/2 zeigt typische Variationen, wie sie mit dem Modell berechnet werden.

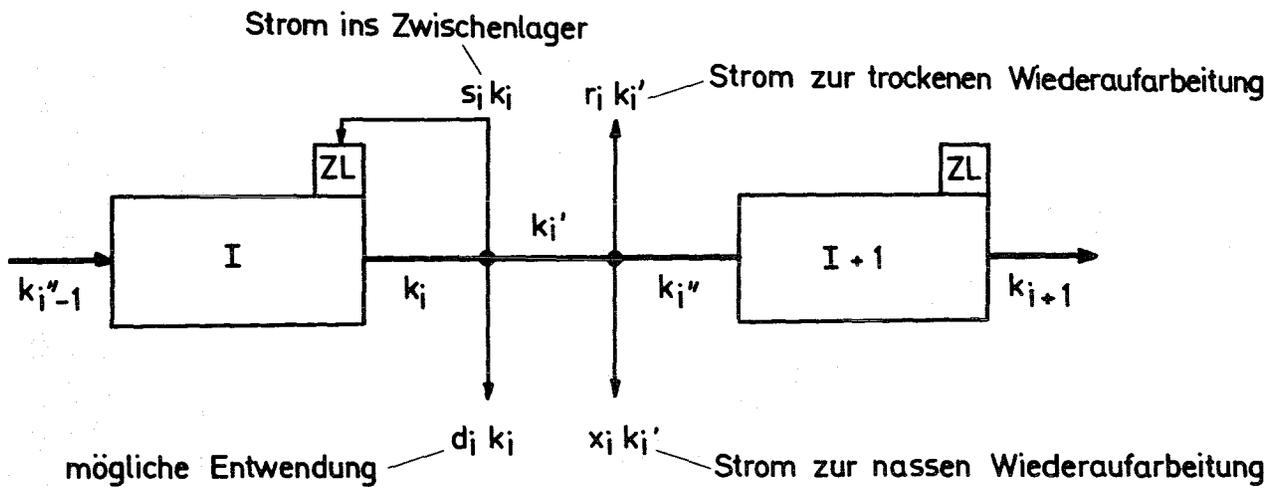


Abb. 1.2.4 /1 Materialströme in der Pu-Fabrikationsanlage

Damit ist es möglich herauszufinden, welche Parameter den größten Einfluß auf den Prozeßablauf haben und für die Entdeckung einer etwaigen Abzweigung von Bedeutung sind.

Im Zusammenhang mit diesen Arbeiten und ebenso wie bei diesen in enger Zusammenarbeit mit der Fa. ALKEM wurde für die Reaktortagung 1971 eine Arbeit über den "Prozeßrechnereinsatz in hochmechanisierten Brennstabfertigungen" verfaßt /12/. Diese Arbeit zeigt, wie bei der Brennstabfertigung in einer automatisierten Linie ein Rechner sinnvoll und wirtschaftlich einsetzbar ist, und daß Simulationsverfahren eine notwendige Voraussetzung dafür sind, eine automatische Datenerfassung und Prozeßsteuerung nach bestimmten Kriterien zu optimieren.

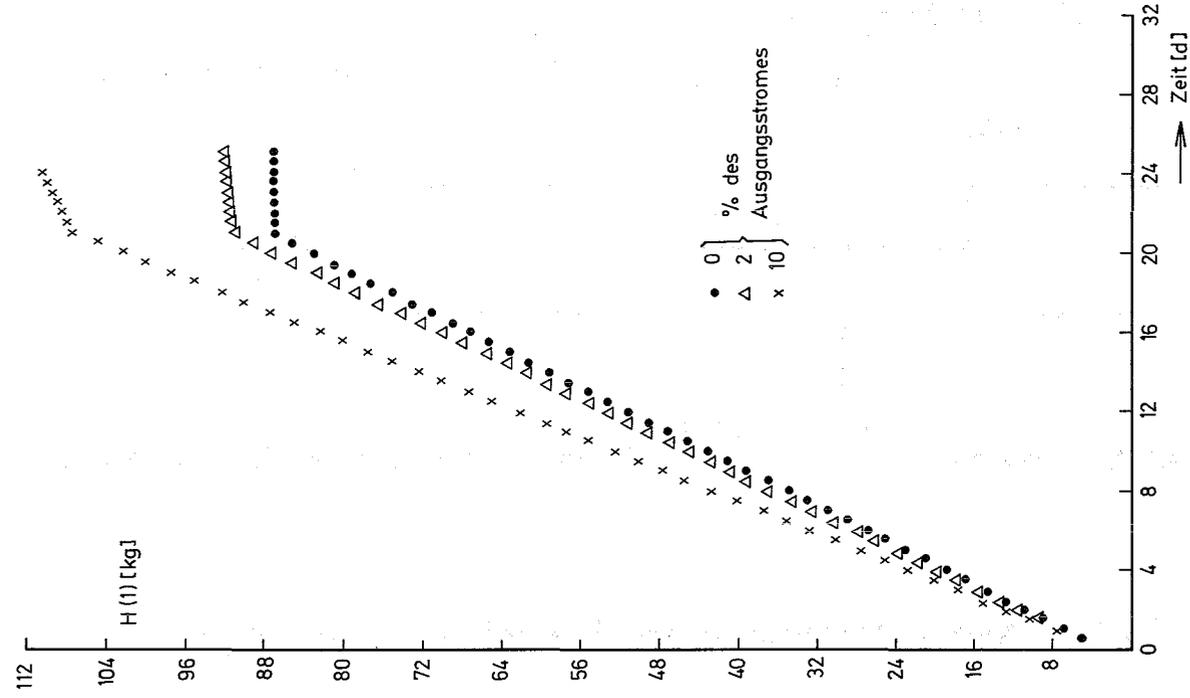


Abb.1.2.4/2b Inventar der ersten Einheit als Funktion der Zeit für verschiedene, am Ausgang von Einheit 1 vorgenommene Entwendungen

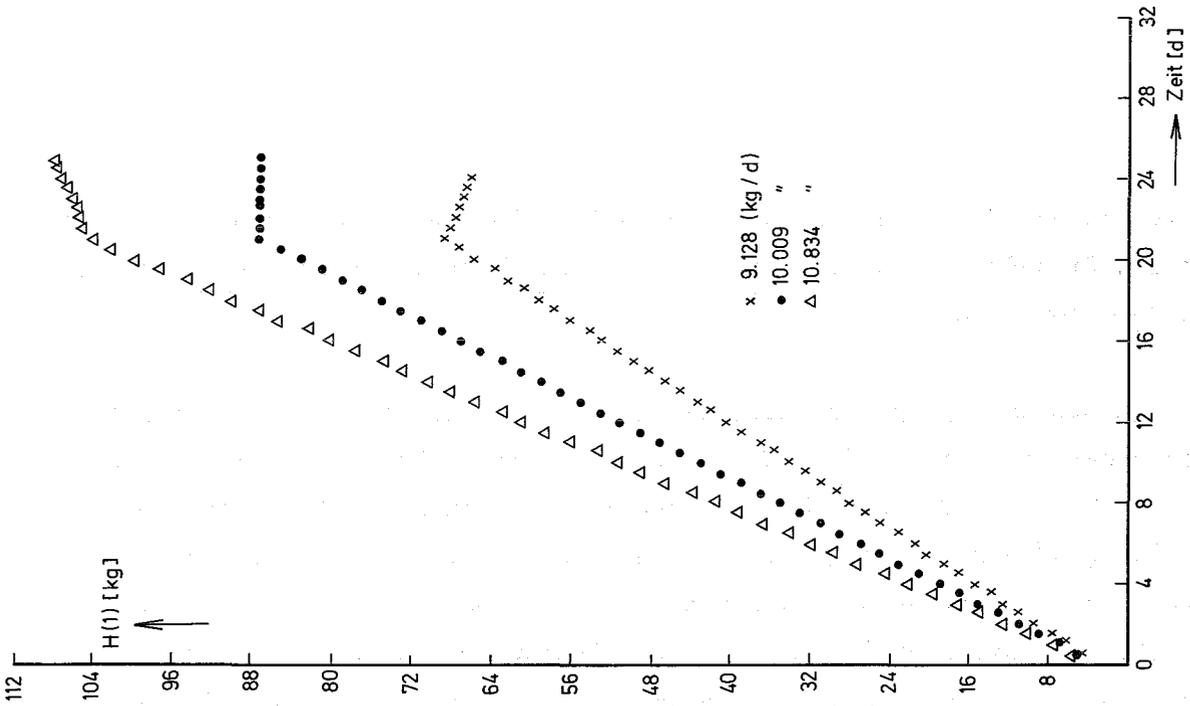


Abb.1.2.4/2a Inventar der ersten Einheit als Funktion der Zeit für verschiedene Eingangsströme

Die Arbeiten am Modell einer Fabrikationsanlage wurden weiter fortgesetzt. Es wurde dabei zunächst an das Simulations-Programm ein Plot-Programm angeschlossen, das es erlaubt, die berechneten Ergebnisse in graphischer Form vom Computer ausgeben zu lassen. Sodann wurden Parametervariationen nicht mehr nur statisch (feste Werte für jeweils eine Kampagne, Variation von Kampagne zu Kampagne im Monte-Carlo-Verfahren), sondern auch dynamisch (Variation verschiedener Parameter als Funktion der Zeit innerhalb jeder Kampagne, zusätzliche Studien über den Verlauf bei mehreren Kampagnen) vorgenommen. Abb. 1.2.4/3 zeigt ein Beispiel einer solchen Variationsreihe. Die einzelnen durchgezogenen Linien geben jeweils Fälle wieder, für die die Menge des pro Tag in die Anlage gehenden Materials zu Beginn der Kampagne eingestellt wird und dann für den Verlauf der Kampagne fest bleibt.

Der schraffierte Bereich umfaßt die Fälle, für die die Menge des pro Tag in die Anlage gehenden Materials jeden Tag neu eingestellt wird. Die Figur gibt die Schwankung des Inventars der ersten Einheit als Funktion der Zeit wieder; dadurch, daß bei der täglich neuen Einstellung die Schwankungen sich herausmitteln können, ist in diesem Fall der Schwankungsbereich wesentlich kleiner als im ersten Fall, wo die in die Anlage gehende Materialmenge nur zu Beginn der Kampagne eingestellt wird.

Außerdem wurde auch der Einfluß einer gleichzeitigen Variation mehrerer Parameter untersucht. Die Eingangs- und Produktlager wurden in das Bilanzierungssystem mit aufgenommen, und auch der Rücklauf des wiederaufgearbeiteten Materials wurde berücksichtigt. Außerdem wurde die Beschreibung der Zwischenlager in den einzelnen Produktionseinheiten (s. Abb. 1.2.4/1) erheblich verbessert.

Zusätzlich zu den schon untersuchten möglichen Abweichungen aus dem Materialfluß wurden mögliche Abzweigungen aus dem Inventar untersucht. Es erwies sich, daß nicht nur der Hold-up der einzelnen Bereiche eine Funktion der variierten Prozeßparameter ist, sondern ebenso die gemessenen Arbeitskapazitäten.

Die Arbeiten sind noch nicht abgeschlossen, mußten aber aus Termingründen vorerst verschoben werden. Ein Bericht ist für 1972 vorgesehen.

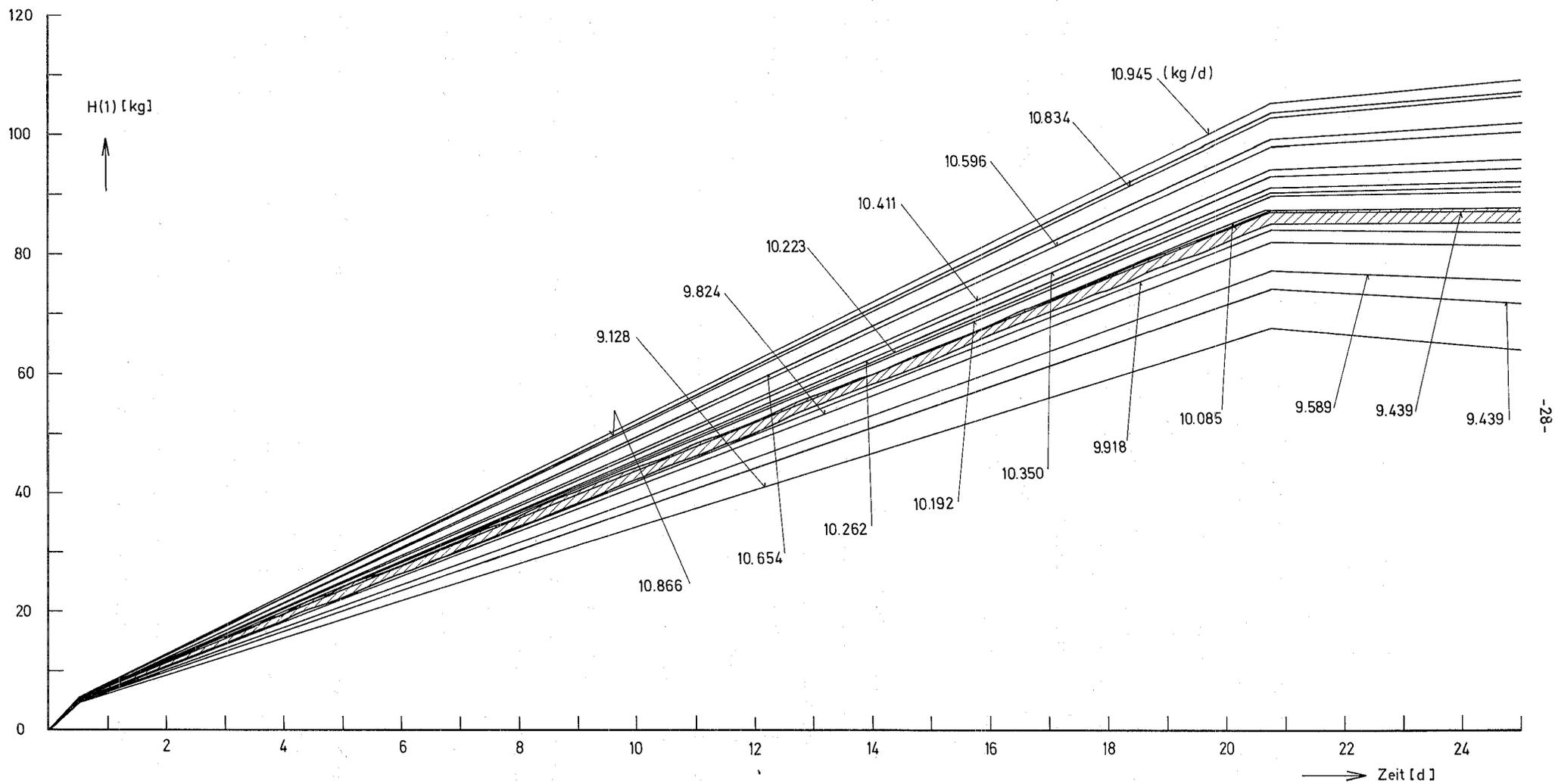


Abb.12.4/3 Inventar der ersten Einheit als Funktion der Zeit für verschiedene Eingangslüsse.  
Erklärung des schraffierten Bereiches im Text.

### 1.3 Korrelationen im Brennstoffzyklus

Unter dem Stichwort Korrelationen definiert man im Rahmen dieser systemanalytischen Studien die inherenten Beziehungen von Informationen und Maßnahmen, die an einem oder geographisch verschiedenen Punkten im Brennstoffzyklus erzeugt bzw. angewendet werden. Diese Korrelationen können oft eine erhebliche Reduktion des Überwachungsaufwandes ohne Einbuße der Aussagekraft des Überwachungssystems bewirken.

In diesem Sinne wurden 3 verschiedene Arten von Korrelationen untersucht:

- A) Isotopenkorrelationen
- B) Absender/Empfänger-Differenz (SRD)
- C) Zusammenwirken zwischen Versiegelungstechnik und Messung

Zu A) Die Isotopenverteilungen von Spaltstoffflüssen, die für die Bilanzierung einzelner Kernanlagen herangezogen werden, können als wichtiges Hilfsmittel zur Entdeckung von Abzweigungen oder Substitution dienen. Gleichzeitig kann die Konsistenz von erzeugten Daten geprüft werden.

Die einzelnen Kernanlagen werden nach der Ursache der Isotopenverschickung zwischen ein- und ausgehenden Spaltstoffflüssen eingeteilt in:

- a) Verfahrensbedingte Vermischung (z.B. Wiederaufarbeitungsanlagen, Fabrikationsanlagen usw.)
- b) Trennarbeit (Anreicherungsanlagen) und
- c) Neutronenbestrahlung (Reaktoren)

Da jede der 3 Ursachen bestimmten physikalischen Gesetzen gehorcht, können Modelle mit empirisch gefundenen Konstanten erstellt werden, die den Zusammenhang von Ein- und Ausgangsströmen einschließlich deren Isotopenverteilung beschreiben. Jede unkontrollierte Bewegung, die dem

Modell nicht einprogrammiert ist, kann damit entdeckt werden.

Besondere Bedeutung haben solche Korrelationen erfahren, die zwischen Vor- und Nach-Bestrahlungsdaten (Reaktor) erstellt werden können (s. Kap. 5).

Zu B) Die Absender/Empfänger-Differenz gibt Aufschlüsse über unkontrollierte Manipulationen an dem Spaltstoff während eines Transportes von einer Anlage in die andere. Dabei lassen sich auch systematische Fehler analysieren, wenn verschiedene Bestimmungsmethoden (z.B. chemische und kalorimetrische Verfahren) zur Anwendung kommen.

Zu C) Unter Umständen kann man die Verifikation eines bestimmten Spaltstoffflusses auf einen Ort beschränken, wenn die Integrität des Spaltstoffes während des Transportes durch geeignete Versiegelungsmaßnahmen gewährleistet ist.

Literaturverzeichnis zu Kapitel 1:

- /1/ W. Häfele: Systems Analysis in Safeguards of Nuclear Material  
4. Int.nat. Konf. über die friedliche Anwendung der Atomenergie  
Genf, 6.-16.9.1972, P/771
- /2/ D. Gupta: Requirements for the Application of Non-Destructive  
Measuring Methods in Safeguards  
International Meeting on Non-Destructive Measurement and  
Identification Techniques in Nuclear Safeguards  
Ispra/Italien, 20.-22.9.71
- /3/ D. Gupta: Überwachungsmaßnahmen in Kernanlagen des Brennstoffzyklus  
NT (Neue Technik), Nr. 6/1971, S. 270-273  
Reaktortagung Bonn 1971
- /4/ R. Avenhaus e.a.  
An optimized material accounting system for safeguards in a nuclear  
fuel cycle  
4th International Conference on the Peaceful uses of Atomic Energy  
Genf, September 1971, P/415
- /5/ H. Singh  
Analysis of some available data on Material Unaccounted For (MUF)  
KFK 1106, April 1971
- /6/ R. Avenhaus, D. Gupta, H. Singh  
Safeguards statements based on relevant components of Material  
Unaccounted For (MUF)  
Working Group Meeting on Quantitative Data and Results of Systems  
Analysis and Integral Tests, Wien 4.-8.10.1971  
KFK 1103

- /7/ R. Avenhaus  
Treatment of systematic errors  
Meeting on Systems Analysis of the Association Euratom; CEN, CNEN,  
GfK, RCN on Safeguards, 13.10.1971 Petten/Netherlands
- /8/ R. Avenhaus, D. Gupta, R. Kraemer  
Application of criteria in a safeguards system  
KFK 1105, April 1971
- /9/ R. Beinhauer  
A game theoretical model for safeguarding a facility with  $m$  different  
areas  
C-Notiz Nr. 51  
Wird veröffentlicht in 'Operations Research Verfahren'
- /10/ R. Avenhaus  
Application of Theory of Games to safeguards problems  
Proceedings of the Symposium on Implementing Nuclear Safeguards  
October 25-27. 1971  
Kansas State University, Manhattan, Kansas, USA
- /11/ L. Grünbaum  
Quantification of the containment for plutonium storages  
C-Notiz Nr. 56  
Wird als KFK veröffentlicht.
- /12/ A. Grünbecken, P. Kurz, E. Drosselmeyer, A. Hagen  
Prozeßrechnereinsatz in hochmechanisierten Brennstab-Fertigungen  
Reaktortagung Bonn 1971, Tagungsbericht

## Kapitel 2.      Zerstörungsfreie Methoden

- 2.0    Einführung  
      C. Weitkamp
- 2.1    Neutroneneinfang-Gammastrahlung  
      C. Weitkamp
- 2.2    Bremszeitspektrometer  
      C. Weitkamp, H. Krinninger, E. Ruppert, J. Klunker
- 2.3    Bestimmung des Spaltstoffgehalts in Brennelementen  
      aus hochangereichertem Uran nach der Methode der  
      verzögerten Neutronen  
      R. Eberle
- 2.4    Bestimmung von Spaltstoff in Brennelementen mit  
      Hilfe einer Antimon-Beryllium-Neutronenquelle  
      K. Baumung, K. Böhnel, M. Kühle
- 2.5    Ein einfaches Gerät zur Bestimmung des Spaltstoffs  
      in Brennelementen nach der Fermialter-Methode  
      K. Böhnel, M. Kühle
- 2.6    Passive Bestimmung von  $^{235}\text{U}$  und Thorium in AVR- und  
      THTR-Brennelementkugeln  
      C. Weitkamp
- 2.7    Bestimmung der Isotopenzusammensetzung von Uran bei  
      unbekannter Dichte des Absorbermaterials  
      C. Weitkamp
- 2.8    Gammaskopmetrische Bestimmung der Isotopenzusammen-  
      setzung von Plutonium  
      C. Weitkamp
- 2.9    Neutronenkoinzidenzmessungen zur Plutoniumbestimmung  
      K. Böhnel, C. Weitkamp
- 2.10    Hülsenmonitor  
      K. Baumung
- 2.11    Kalorimetrie  
      C. Weitkamp
- 2.12    Personenschleuse  
      C. Weitkamp
- 2.13    Betrugsmengen-Rechnungen für zylindrische Brennstoff-  
      anordnungen  
      C. Weitkamp



## Kapitel 2. Zerstörungsfreie Methoden

### 2.0 Einführung

#### C. Weitkamp

Wie im ersten Abschnitt dieses Berichts ausführlicher dargestellt, bestand das Ziel des Projektes Spaltstoffflußkontrolle zunächst darin, zu zeigen, daß ein weltweites Überwachungssystem *im Prinzip* aufgebaut werden und auch die dazu erforderlichen Instrumente und Methoden bereitgestellt werden können. Mit der Erreichung dieses Ziels ist die erste Phase des Projekts abgeschlossen; wesentlichen Anteil daran hatten Entwicklung und Bau von Instrumenten, die zerstörend oder zerstörungsfrei Spaltstoff quantitativ zu bestimmen gestatten und damit die Erstellung und Schließung von Materialbilanzen ermöglichen.

Demgegenüber tritt das Projekt nunmehr in eine zweite Phase, die durch den Beginn der Implementierung von Überwachungssystemen oder -teilsystemen gekennzeichnet ist. Für die Arbeiten zur Entwicklung indirekter Meßverfahren bedeutet dieser Übergang eine stärkere Orientierung auf die Anwendungen. Es ist nur scheinbar paradox, daß die Entwicklung eines Geräts zum serienreifen Prototyp, wie sie in Phase I mitunter erforderlich war, für Phase II generell und zunächst nicht Ziel des Unterprojektes ist; vielmehr sollen sowohl vom Prinzip her bekannte als auch einige neue Methoden *unter Berücksichtigung der betrieblichen Anforderungen an ein Überwachungssystem* so weit entwickelt werden, daß ihre Möglichkeiten und Grenzen auch im gegenseitigen Vergleich deutlich werden und Spezifikationen für eine Serienentwicklung angebar werden.

Zeitlich fällt der Übergang von Phase I nach Phase II etwa in das Jahr 1971. Der Bericht über die 1971 durchgeführten Arbeiten enthält daher Aktivitäten zu beiden Phasen des Projekts. Eine genaue Trennung ist im Einzelfall nicht immer möglich und wird nicht angestrebt. Eine allgemeine

Tendenz, die mit diesem Übergang verbunden ist, liegt in einer gewissen Verschiebung der Gewichte von den aufwendigeren aktiven Methoden hin zu einfacheren Verfahren, deren Leistungsfähigkeit entweder durch Kombination oder durch andere geeignete Maßnahmen gesteigert werden kann.

Die einzelnen Arbeitsgebiete sind in dem folgenden Bericht gegliedert nach

- aktiven Methoden unter Verwendung eines Reaktors oder Neutronengenerators (Abschnitte 2.1 bis 2.3),
- aktiven Methoden unter Verwendung einer radioaktiven Neutronenquelle (Abschnitte 2.4 und 2.5),
- passiven Methoden (Abschnitt 2.6 bis 2.12), und
- allgemeinen Arbeiten (Abschnitt 2.13).

Tabelle 2.0/I

Beteiligung an Arbeiten zu den zerstörungsfreien Methoden der Spaltstoffflußkontrolle im Jahre 1971

Institut	Mitarbeiter	Kapitel
ALKEM	H. Beißwenger, W. Lins D. Schiel, V.W. Schneider	2.9, 2.11 2.12
INTERATOM	H. Krinninger, E. Ruppert	2.2
Institut für Kerntechnik, Techn. Universität Hannover	R. Eberle, W. Krappel, D. Stegemann	2.3, 2.6
Institut für Neutronen- physik und Reaktortechnik Kernforschungszentrum Karlsruhe	K. Baumung, K. Böhnel, J. Klunker, M. Kühle	2.2, 2.4, 2.5, 2.9, 2.10
Institut für Angewandte Kernphysik, Kernforschungszentrum Karlsruhe	P. Matussek, H. Ottmar, C. Weitkamp, H. Woda	2.1, 2.6, 2.7, 2.8, 2.11, 2.13

Aus den verschiedenen Vorhaben waren im Jahre 1971 fünf Institutionen beteiligt, von denen zwei Industrieunternehmen, eins ein Universitätsinstitut und zwei Institute des Kernforschungszentrums sind. Wie aus Tabelle 2.O/I hervorgeht, sind viele Arbeiten in Zusammenarbeit zwischen mehreren Instituten entstanden. Die Daten zu den einzelnen Kapiteln dieses Abschnitts gehen auf die in der Tabelle aufgeführten Mitarbeiter zurück, auch wenn sie als Autor nicht ausdrücklich genannt sind. Die Arbeiten des Instituts für Kerntechnik der Technischen Universität Hannover wurden im Jahre 1971 direkt vom Bundesministerium für Bildung und Wissenschaft finanziert. Deshalb werden die 1971 dort bearbeiteten Vorhaben nur kurz erwähnt.

Auch in diesem Bericht muß aus Raumgründen in den meisten Fällen auf wissenschaftliche Vollständigkeiten verzichtet werden; die einzelnen Kapitel enthalten aber Hinweise auf Originalliteratur, der weiterführende Einzelheiten entnommen werden können, und schließen vielfach direkt an die Darstellung im Jahresbericht 1970 an<sup>1</sup>. Einen gedrängten Überblick geben auch die beiden zur 4. Genfer Atomkonferenz im September 1971 erstellten zusammenfassenden Artikel<sup>2,3</sup>.

## 2.1 Neutroneneinfang-Gammastrahlung

### C. Weitkamp

Die Spektroskopie der nach Neutroneneinfang emittierten Gammastrahlung eignet sich zur isotopenspezifischen Bestimmung von <sup>235</sup>U sowie aller spaltbaren Isotope des Plutoniums; wegen des verhältnismäßig großen Aufwands, der mit der Erzeugung eines geeigneten Neutronenstrahls verknüpft ist, und den relativ langen Meßzeiten erscheint die Methode aber weniger für den Produktionsbetrieb als für den Einsatz in einem zentralen Laboratorium geeignet.

Ein Schwerpunkt der Arbeiten im Jahre 1971 lag auf den theoretischen und experimentellen Untersuchungen zur Erzeugung eines Strahls nichtthermischer Neutronen, mit denen die Transparenz des Verfahrens noch gesteigert werden kann. Diese Neutronen sollen folgende Bedingungen erfüllen:

- hinreichend hohe Energie ( $E_n \approx 1 \text{ keV}$ ),
- hinreichend schmale Energieverteilung ( $\Delta E_n \approx 3 \text{ keV}$ ),
- hinreichende Intensität (Fluß  $\phi_n > 10^5 \text{ n cm}^{-2} \text{ sec}^{-1}$ ),
- eine mittlere Energie, bei der das Verhältnis  
Einfangquerschnitt : Spaltquerschnitt möglichst  
groß ist.

Als mögliche Quellen für die Neutronenerzeugung wurden die  $(\gamma, n)$ -Reaktion mit Elektronenbremsstrahlung aus einem Linearbeschleuniger, die  ${}^7\text{Li}(p, n)$ - und  ${}^{45}\text{Sc}(p, n)$ -Reaktionen mit Protonen aus einem Van-de-Graaff-Generator und verschiedene Filter für Reaktorneutronen betrachtet. Die theoretischen Untersuchungen ergaben, daß die Ausnutzung von Linac-Neutronen große apparative Schwierigkeiten mit sich bringt und enormen elektronischen Aufwand erfordert. Deshalb wurde zunächst auf die praktische Erprobung eines Linearbeschleunigers verzichtet.

Dagegen wurden am Van-de-Graaff-Beschleuniger auch praktische Versuche unternommen. Es zeigte sich jedoch, daß verwertbare Resultate nur erzielt werden können, wenn der Beschleuniger ständig in Grenzbereichen der Intensität und der Energiestabilität betrieben wird, die auf die Dauer zu gewährleisten ebenfalls erheblichen Aufwand bedingt. Beide Methoden krankten letztlich daran, daß aus dem breiten Neutronenspektrum nur ein kleiner Teil nutzbringend verwendet werden kann, daß aber auch alle anderen Neutronen Einfang-, Streu- und besonders Spaltereignisse mit allen nachteiligen Effekten (Untergrund, Verkürzung der Detektorlebensdauer) in der Probe hervorrufen, ohne für das Meßsignal verwertbar zu sein.

Im Gegensatz dazu werden bei der Verwendung von Filtern Neutronen mit unerwünschten Energien von vornherein von der Probe ferngehalten. Die Untersuchungen von Filtern für Reaktorneutronen wurden mit verschiedenen dicken Eisen-Filtern begonnen. Besser als Eisen ( $E_n = 25 \text{ keV}$ ) eignet sich Scandium, dessen Absorptionsminimum bis  $2 \text{ keV}$

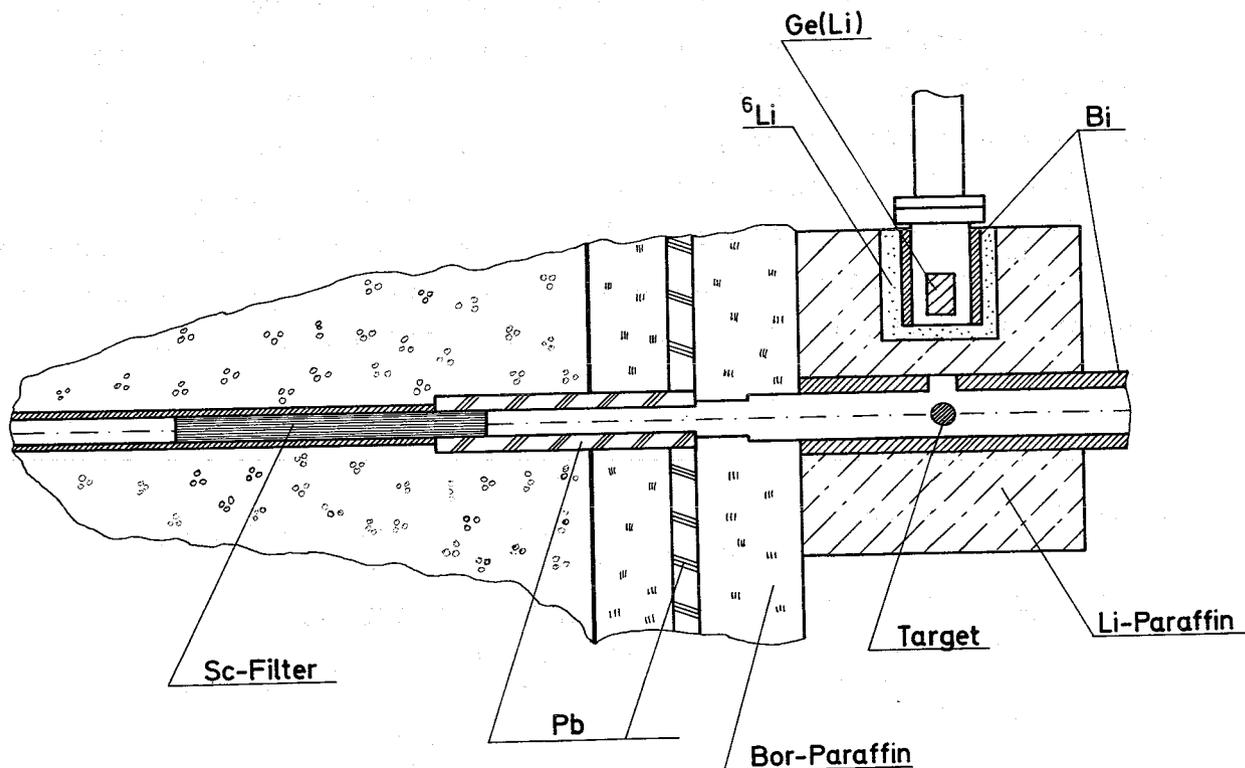
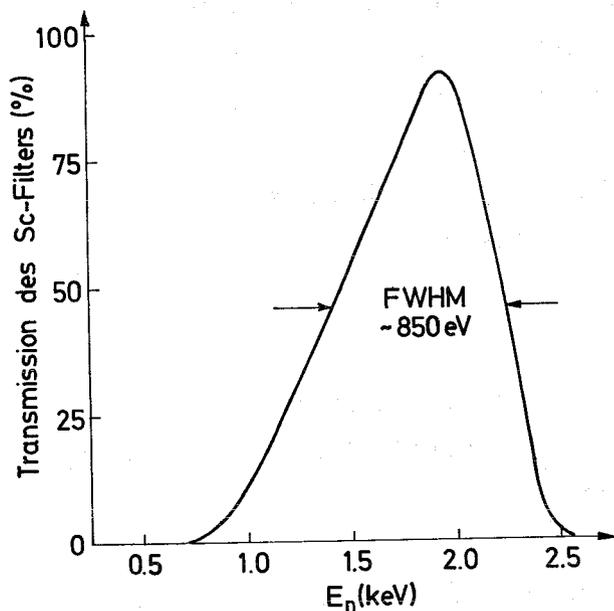


Abb. 2.1/1

Schematische Darstellung des Scandium-Filters im TO-Kanal des Reaktors FR2 und Aufbau der Meßanordnung. Oben links die aus dem Wirkungsquerschnittsverlauf berechnete Transmissionsfunktion.

die Voraussetzungen für die Erfüllung aller oben genannten Bedingungen bietet. Die Bemessung der Filterlänge ergibt sich aus einem Kompromiß zwischen der erzielbaren Intensität an 2 keV-Neutronen und dem Diskriminierungsverhältnis gegen Neutronen anderer Energien. Das Optimum liegt im vorliegenden Fall bei etwa 140 g Sc/cm<sup>2</sup>.

Das in einen Tangentialkanal des Reaktors FR 2 eingebaute Filter ist durch folgende Daten charakterisiert:

- Länge: 473 mm,
- Gewicht: 433 g,
- Querschnitt: Zirkular, 2 cm Durchmesser,
- Dichte: 2,91 g cm<sup>-3</sup> (Kristalldichte 2,99 g cm<sup>-3</sup>),
- Dicke: 137,7 g cm<sup>-2</sup>.

Das Filtermaterial ist destilliertes Scandium (99.9 %), das mit einem Druck von 40 to/3,14 cm<sup>2</sup> zu etwa 20 mm langen Tabletten gepreßt wurde. Eine schematische Darstellung des Filters und der Meßanordnung am Reaktor zeigt Abb. 2.1/1. Der erzielte Neutronenfluß  $\phi_n$  (2 keV)  $\approx 2 \cdot 10^5$  n cm<sup>-2</sup> sec<sup>-1</sup> läßt sich durch Einbau des Filters in einen Reflektor- oder Core-Kanal desselben Reaktors noch um eine Größenordnung steigern. Die aus dem Wirkungsquerschnittsverlauf berechnete Transmissionsfunktion des Filters ist ebenfalls in Abb. 2.1/1 wiedergegeben.

Tabelle 2.1/I

Hochenergetische  $\gamma$ -Linien mit Intensitäten  $\geq 1$  % aus dem Einfang von 2 keV-Neutronen in <sup>239</sup>Pu

Energie keV	absolute Intensität Quanten je 1000 Einfänge
5938.6	2.07
5597.9	1.75
5576.9	1.85
5124.6	1.00
5097.1	1.27
4739.6	1.00

Im Jahre 1971 wurden zunächst Testmessungen an Proben mit bekanntem Spektrum (Mn, Fe) erfolgreich abgeschlossen. Als erster spaltbarer Kern wurde  $^{239}\text{Pu}$  gemessen; diese Arbeiten, die sich in das Jahr 1972 hinein erstreckten, ergaben neben einer Vielzahl schwächerer Übergänge sechs  $\gamma$ -Linien mit Intensitäten über  $10^{-3}$  pro Einfangereignis, die in Tabelle 2.1/I zusammengefaßt sind. Die Unsicherheiten der Energien liegen unter 1 keV; die Werte selbst sind um 1,8 keV höher als die Energien für thermischen Einfang<sup>1</sup>, weil sich die kinetische Energie des eingefangenen Neutrons zur Bindungsenergie addiert.

Tabelle 2.1/II

Energien und Intensitäten primärer Gammaübergänge nach Einfang thermischer Neutronen in  $^{241}\text{Pu}$ .

Energie keV	absolute Intensität Quanten je 1000 Einfänge
6264.4	1.2
6162.0	1.1
5476.9	20.0
5289.9	7.2
5269.6	1.7
5245.2	1.3
5157.0	4.7
4564.3	1.1
4482.7	2.2
4217.0	2.1
3871.7	1.6

Die Einfangmessungen mit thermischen Neutronen erstreckten sich 1971 zunächst auf grundlegende Arbeiten zur Entwicklung und Anwendung der Matrixinversionsmethode für die Gewinnung reiner Spektren. Die Messungen wurden auf  $^{241}\text{Pu}$  als Targetsubstanz ausgedehnt und ergaben die in Tabelle 2.1/II zusammengestellten  $\gamma$ -Übergänge, von denen sich vor allem die Linien bei 5477, 5290 und 5157 keV zur Mengenbestimmung eignen. Die Unsicherheiten der in der Tabelle angegebenen Energiewerte liegen zwischen 0,5 keV für die intensiveren Linien und etwa 1 keV für die schwachen Übergänge. Die statistischen Fehler der Intensitäten bewegen sich zwischen 3 % und 30 %, zu denen ein gemeinsamer systematischer Fehler der Größenordnung 25 % hinzukommt.

Um die Methode der Neutroneneinfang-Gammaspektroskopie mit den bisher vorliegenden Daten auch in einem praktischen Fall zu testen, wurde das  $^{239}\text{Pu} : ^{235}\text{U}$ -Verhältnis kurzer Brennstäbe bestimmt<sup>4</sup>. Die Ergebnisse stimmten innerhalb der Fehlergrenzen mit den Ergebnissen der chemischen Analyse selbst dann noch überein, wenn die absolute Menge Spaltstoff im Stab geringer war als die Menge Hüllmaterial.

Tabelle 2.2/I

Neutronen- und  $\gamma$ -Dosisleistung bei Betrieb der ABSA-Anlage

Meßort	$\gamma$ -Dosisleistung <sup>+</sup>	n-Dosisleistung
Kontrollraum, Beschleuniger-Steuerpult, Rumpfhöhe	0 <sup>++</sup>	0,1 mrem/h
desgl. Kopfhöhe	0 <sup>++</sup>	0,18 mrem/h
Meßraum, Obo-Abschirmung, Mitte Deckfläche	1 mr/h	1,44 mrem/h
desgl., HF-Abschirmung Wabenkamin-Fenster, Lufteinlaß	0 <sup>++</sup>	0,47 mrem/h
desgl., Lager- und Wechselmaschine, Bandumlenkgerüst Hauptantrieb, Rumpfhöhe	0 <sup>++</sup>	0,16 mrem/h
desgl., Mitte Ausgabemagazin 2, Rumpfhöhe	-	0,24 mrem/h
desgl., Arbeitstisch	< 0,1 mr/h	0,29 mrem/h

<sup>+</sup> für folgende Beschleuniger-Betriebsdaten:

Impulsdauer                    80  $\mu\text{s}$ ,  
 Impulsabstand                5 ms,  
 Beschleunigungsspannung   150 kV,  
 Ionenstrom                    1,5 mA.

<sup>++</sup> nicht nachweisbar

## 2.2 Bremszeitspektrometer

C. Weitkamp, H. Krinninger, E. Ruppert, J. Klunker

Das Bremszeitspektrometer dient als Instrument der Spaltstoffflußkontrolle der gleichzeitigen Bestimmung des Ge-

halts an  $^{235}\text{U}$  und spaltbarem Plutonium in Brennstäben. Bei der Firma Interatom ist seit 1969 eine automatisierte Bleispektrometeranordnung (ABSA) in Entwicklung, deren Aufbau, Wirkungsweise und Funktion schon im Jahresbericht 1970 beschrieben worden sind<sup>1</sup>.

Die Anlage wurde, wie in der Planung vorgesehen, im Jahre 1971 fertiggestellt. Neben intensiver Arbeit an allen Baugruppen (Bleipile mit Abschirmung, Neutronengenerator, Brennstab-Wechsel- und Lagervorrichtung, Analogelektronik und Prozeßrechnersystem) konnten 1971 umfangreiche Testläufe sowie alle Abnahmeprüfungen durchgeführt werden.

Die Arbeiten am Bleipile selbst und an der Abschirmung beschränkten sich für den Berichtszeitraum i.w. auf die Verbesserung der Abschirmwirkung und die Reduktion des Neutronen- und Gammauntergrundes in der Umgebung der Anlage. Zur Verifikation der berechneten Abschirmfaktoren wurden für typische Betriebsdaten des Beschleunigers Dosisleistungen gemessen, wie sie in Tab. 2.2/I dargestellt sind. Man erkennt, daß der für Personen bei einer 40-Stunden-Woche zulässige Höchstwert von 2,5 mrem/h an keiner Stelle der Anlage überschritten wird.

Die Arbeiten am Beschleuniger waren charakterisiert durch die Notwendigkeit, die Quellstärke zu erhöhen und das Verhältnis Signal : Untergrund zu verbessern. In Zusammenarbeit zwischen Interatom und der Herstellerfirma des Beschleunigers konnten beide Ziele erreicht werden.

Funktionsfähigkeit und Betriebssicherheit der Brennstab-Wechsel- und -Lager-Vorrichtung wurden in zwei 50-Stunden-Läufen mit insgesamt 2800 Stabwechselforgängen erprobt und sukzessive verbessert. Dabei wurden insbesondere die Anordnung und Konstruktion von Schaltelementen modifiziert und die Wirkungsweise und sichere Funktion der Sicherheitsvor-

kehrungen zum Schutz des hochwertigen Meßguts überprüft.

Die Hauptaktivitäten waren der Implementierung des Programmsystems gewidmet, mit dessen Hilfe das System vollautomatisch arbeitet. Die wesentlichen Aufgaben des Prozeßrechners sind

- Echtzeit-Registrierung der Meßsignale und Monitorzählraten,
- schritthaltende Auswertung und Berechnung der Meßergebnisse,
- Protokollierung der Meßergebnisse,
- Steuerung des Meßprozesses,
- Überwachung des Meßsystems und des Zustandes der gesamten Anlage, und
- Regelung der Quellstärke des Neutronengenerators.

Einzelheiten der Meß-, Kontroll- und Anwendungsprogramme sind in einer Reihe ausführlicher Berichte<sup>5-8</sup> niedergelegt.

Tabelle 2.2/II

Gemessene <sup>235</sup>U-Brennstab-Gewichte (Mittelwert aus 86 Messungen)

Brennstab Nr.	<sup>235</sup> U-Gewichte in Gramm		Differenz g <sup>235</sup> U
	lt. Herstellerangaben	lt. Messung	
5300	50,123	50,133	+ 0,010
8047	50,205	50,233	+ 0,028
5265	50,260	50,161	- 0,099
7945	49,723	50,211	+ 0,477
5396	50,012	50,347	- 0,335
7570	50,247	50,322	+ 0,075
5394	50,095	50,224	+ 0,129
7652	50,109	50,158	+ 0,049
5347	50,109	49,994	- 0,115
5137	50,165	50,253	+ 0,088
5430	50,109	50,080	- 0,029
8593	50,219	50,051	- 0,168
5647	50,224	50,485	+ 0,261
7561	50,178	50,439	+ 0,261
5630	50,164	50,184	+ 0,020
Summe	751,942 =====	753,275 =====	+ 1,333 =====

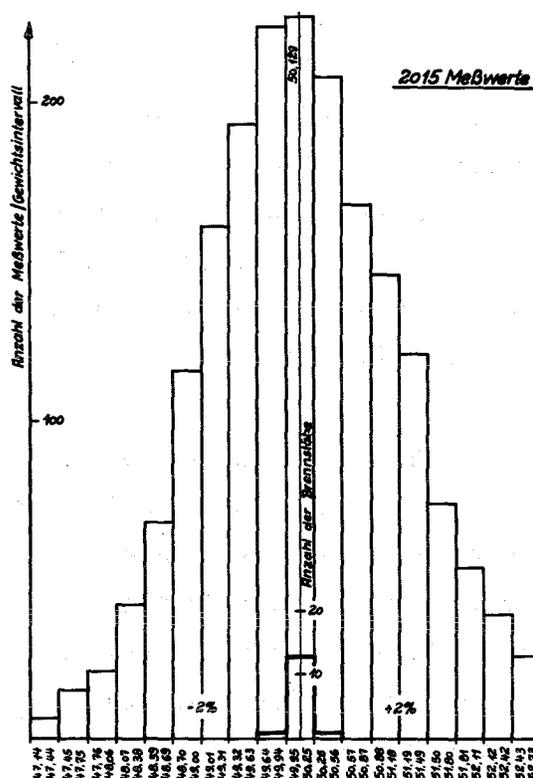


Abb. 2.2/1.  
Verteilungsfunktion von 2015 Einzelmeßwerten.

Nach Abschluß der Funktionsprüfungen wurde im Sommer 71 ein Dauerbetrieb der Anlage unter realistischen Betriebsbedingungen durchgeführt. Im Dauerversuch wurden 15 Brennstoffstäbe vom KWO-Typ zyklisch gemessen. Als Referenzbrennstab, auf dessen U5-Gehalt alle anderen Brennstäbe bezogen wurden, wurde der Brennstab Nr. 5300 ausgewählt. Tabelle 2.2/II gibt einen Vergleich zwischen Herstellerangaben (in der zweiten Spalte) und Meßwerten (in der dritten Spalte) über den  $^{235}\text{U}$ -Gehalt in den 15 KWO-Brennstoffstäben. Der gemessene Gehalt an  $^{235}\text{U}$  wurde dabei aus 86 Einzelmessungen ermittelt. Eine statistische Analyse der Einzelmeßwerte aus einer Meßperiode von 10 Tagen zeigt Abb. 2.2/1. Auf der Abszisse sind Gewichtsintervalle, auf der Ordinate ist die Anzahl der Meßwerte pro Gewichtsintervall aufgetragen. Die angegebene Verteilungsfunktion ist etwas breiter als eine normale Gaußkurve, weil sich mit abnehmender Neutronengenerator-Quellstärke mehrere Gaußkurven überlagern. Aus Abb. 2.2/1 geht die Erfüllung der Meßgenauigkeitsspezifikation hervor.

Innerhalb einer Fehlergrenze von  $\pm 2\%$  um das  $^{235}\text{U}$ -Gewicht des Referenzstabs liegen, wie gefordert, mehr als 66 % aller Einzelmeßwerte. Die Referenzmessung wurde beim Dauerversuch im Abstand von 1 bis 10 Stunden wiederholt. Bei den gewählten Pulsdaten des Neutronengenerators (1 mA, 40 - 80  $\mu\text{s}$ , 400 Hz) beträgt die Targetlebensdauer ca. 150 Stunden.

Mit dem erfolgreichen Abschluß des Dauerversuchs konnten die Betriebssicherheit der Anlage und die Erfüllung der Anlagenspezifikation nachgewiesen werden. Die beim Dauerversuch aufgetretenen Störungen konnten kurzfristig innerhalb der dafür vorgesehenen Pausen behoben werden. Am 1. Dezember 1971, 27 Monate nach Auftragserteilung, wurde die Anlage dem Auftraggeber übergeben.

Die Meßgenauigkeit der Anlage wird durch statistische, systematische und zufällige Fehler sowie die Güte der Eichdiagramme bestimmt. Zu den systematischen Fehlern zählen das Driften der Elektronik, Nichtlinearitäten im Monitorsystem und Instabilitäten des Beschleunigers. Während der Komponentenerprobung, wozu Langzeitstabilitätstests der Nuklearelektronik und Parameterstudien mit dem Neutronengenerator gehörten, wurden diese Fehlerquellen und ihr Zeitverhalten untersucht. Systematische Fehler können vermieden werden, wenn sie erkannt werden können. Eine automatisierte Anlage mit hoher Meßleistung und guter Meßgenauigkeit verlangt deshalb auch eine automatisierte und schnelle Fehlererkennung. Zum Erkennen von Driften der Meßsystemelektronik wurde deshalb ein Testsystem angewandt, das vom Betriebssystem des Rechners zyklisch aufgerufen und per Programm durchgeführt wird. Jeder Meßkanal wird einzeln getestet und das Ergebnis protokolliert. Wird beim Test das Überschreiten einer vorgegebenen Schranke festgestellt, gibt das Programm Anweisung, die Verstärkereinstellung des betreffenden Meßkanals zu verändern. Der Stabilitätstest erreicht eine Empfindlichkeit von weniger als  $3 \cdot 10^{-3}$ . Ein 400-Stunden-Versuch ergab für das Meßsystem eine Stabilität besser als  $1,5 \cdot 10^{-4}$ /Stunde.

Zufällige Fehler sind ihrer Natur nach schwieriger zu eliminieren. Als vorbeugende Maßnahmen sind die Aufteilung der Stromversorgung in allgemeines Netz und abgeschirmtes Elektroniknetz, die Verdrosselung und Siebung durch  $\pi$ -Filter und die Verlegung einer eigenen Meßerde anzusehen.

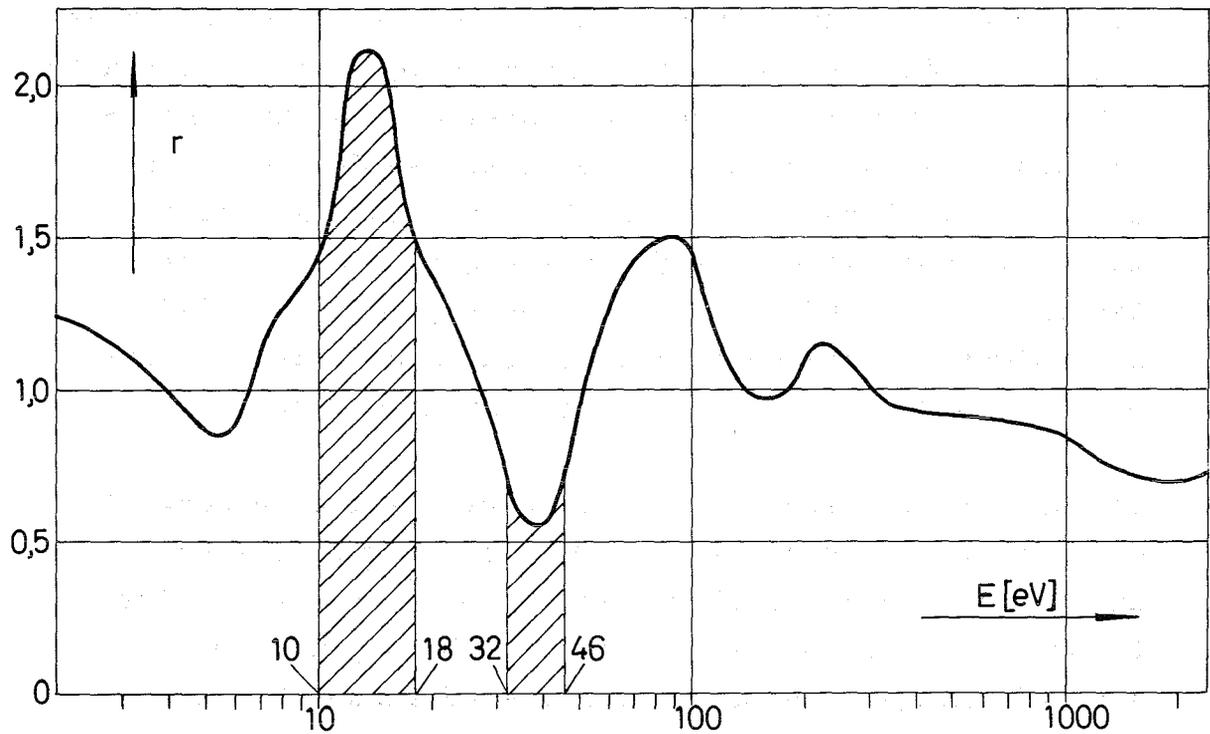


Abb. 2.2/2.

Verhältnis  $r$  der Spaltraten pro Gramm Spaltstoff in Abhängigkeit von der Energie. Eingetragen sind die für die Spaltstoffbestimmung im Resonanzbereich optimalen Energieintervalle.

Bei der Minimierung des statistischen Fehlers sind einerseits die Randbedingungen zu berücksichtigen, die durch die technischen Daten der Anlage vorgegeben sind. Andererseits ist für die getrennte Bestimmung von  $^{235}\text{U}$  und Plutonium das Spaltratenverhältnis

$$r = \frac{\text{Spaltrate pro Gramm Plutonium}}{\text{Spaltrate pro Gramm U-235}}$$

von Bedeutung. Deshalb ist bei der Optimierung der Intervallbreiten zu berücksichtigen, daß die Genauigkeit

der Spaltstoffbestimmung von der Zählstatistik und von der Größe  $r$  abhängt. In Abb. 2.2/2 ist das Spaltratenverhältnis als Funktion der Neutronenenergie aufgetragen; für die schraffiert eingezeichneten optimalen Meßbereiche<sup>9</sup> ergibt sich ein Diskriminierungsfaktor von 3,4.

Bei der Aufstellung von Eichkurven in diesen Energieintervallen ist der Tatsache Rechnung zu tragen, daß die Spaltraten pro Gramm mit wachsender Anreicherung durch Resonanzabschirmung bis zu 25 % reduziert werden, d.h. es besteht kein linearer Zusammenhang zwischen Spaltrate und Spaltstoffmenge. Aus den Messungen verschiedener Serien von Teststäben hat sich außerdem ergeben, daß eine nicht zu vernachlässigende wechselseitige Abschirmung der Uran- und Plutoniumresonanzen besteht.

Deshalb ist ein einfacher Zusammenhang zwischen Meßwert einerseits und Anreicherung, Dichte und Durchmesser andererseits für Mischbrennstoffstäbe nicht herstellbar. Es müssen Rechnungen für alle Anreicherungen, Brennstoffmischungen und Stabdurchmesser durchgeführt werden. Man erhält dann eine Serie von Eichdiagrammen, die im Prinzip durch Messung eines einzigen geeichten Stabes an die Messungen ausgeschlossen werden können.

Zur Berechnung der Resonanzselbstabschirmung in Stäben wurde das Programm RABBLE verwendet<sup>10</sup>. Das Programm berechnet Reaktionsraten in einer zylindrischen Zelle, die in einzelne Zonen unterteilt ist, wobei der interessierende Energiebereich in viele extrem schmale Intervalle zerlegt wird. Für jede Energiefeingruppe und jede Zone werden die Bremsdichte, die Transmissions- und Resonanzentkommwahrscheinlichkeiten und die Ströme durch die Zonenflächen berechnet. Die unabgeschirmten differentiellen Wir-

kungsquerschnitte werden aus Resonanzparametern mit Hilfe einer Multi-Niveaudarstellung ermittelt.

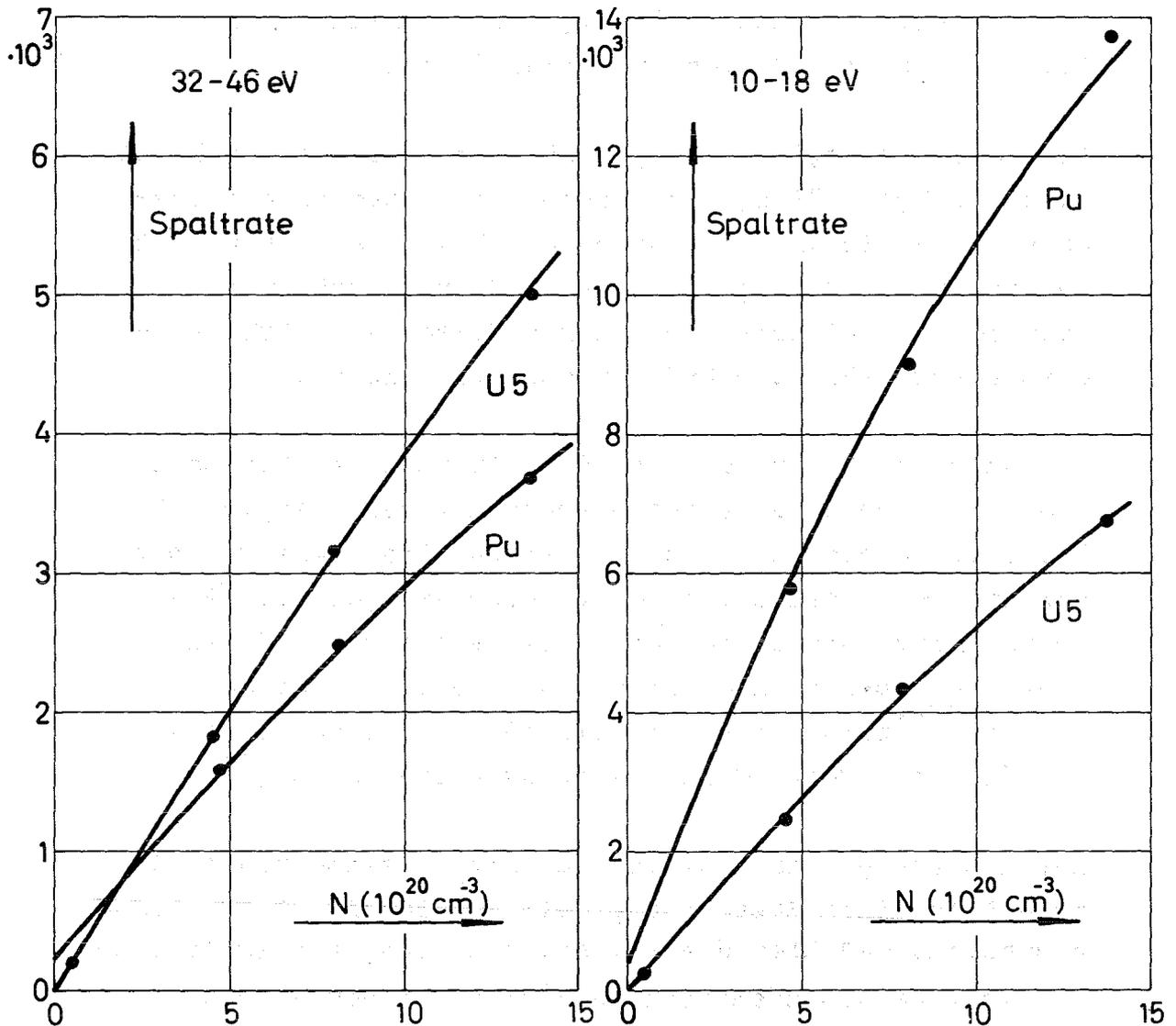


Abb. 2.2/3.

Gemessene Spaltraten von sieben Teststäben mit variabler Anreicherung an Plutonium und  $^{235}\text{U}$  in zwei verschiedenen Energiebereichen. Die ausgezogenen Kurven sind Ergebnisse der Selbstabschirmrechnungen mit RABBLE.

Die berechneten Spaltraten stimmen gut mit den Meßergebnissen überein. Insbesondere wird die Selbstabschirmung bei variabler Anreicherung gut wiedergegeben, wie aus Abb. 2.2/3 ersichtlich ist. Die Abweichung der Meßwerte von den gerechneten Kurven beträgt im Mittel 1.68 % und liegt damit in den

Grenzen der Meßgenauigkeit. Eine Diskrepanz ergibt sich beim Vergleich der über die angegebenen Energiebereiche gemittelten Spaltquerschnitte von Uran 235 und Plutonium. Hier konnte keine Übereinstimmung mit den Messungen erzielt werden, so daß vorläufig eine getrennte Normierung für Uran und für Plutonium notwendig ist.

Andererseits ergibt sich jedoch hieraus die Möglichkeit zu einer Überprüfung von Gruppen-Wirkungsquerschnittsdaten, wie sie in der Reaktorphysik vielfach verwendet werden. Gleichzeitig lassen sich Selbstabschirmungsfaktoren für Einzelstäbe und mit Hilfe des RABBLE-Programms auch für Stabbündel nachkontrollieren.

Messungen an Stabbündeln sind im Bremszeitspektrometer wegen der hohen Selbstabschirmung nur bei Energien möglich, bei denen die Wirkungsquerschnitte keine Resonanzstruktur mehr zeigen, also oberhalb einigen keV. Als obere Energiegrenze des Spektrometers muß man 50 keV annehmen, da hier die Auflösung etwa 100 % beträgt und der Grundmode bis auf etwa 15 % eingestellt ist, wie sich aus Monte-Carlo-Rechnungen ergeben hat<sup>11</sup>.

Durch Messungen an Einzelstäben mit Anreicherungen bis zu 8 % in einem Energieintervall von 10 bis 30 keV wurde bestätigt, daß hier die Selbstabschirmung vernachlässigbar ist. Da das Bremszeitspektrometer zudem eine großvolumige, nahezu isotrope Quelle darstellt, ist es im Prinzip auch zur Spaltstoffbestimmung an Brennelementen sehr geeignet, obgleich der meßtechnische Aufwand, verglichen mit Anordnungen, die radioaktive Neutronenquellen (z.B. Sb-Be, s. Abschnitt 2.4) verwenden, sehr groß ist.

### 2.3 Bestimmung des Spaltstoffgehalts in Brennelementen aus hochangereichertem Uran nach der Methode der verzögerten Neutronen

---

R. Eberle

Am Institut für Kerntechnik der TU Hannover wird eine Apparatur entwickelt, die es gestattet, den Spaltstoffgehalt in hochangereicherten Brennelementen (z.B. vom MTR- oder THTR-Typ) zerstörungsfrei zu bestimmen. Das Vorhaben wurde 1971 direkt vom BMBW gefördert und wird daher hier nur kurz beschrieben.

Das Verfahren arbeitet nach dem Prinzip der verzögerten Neutronentechnik<sup>12</sup>. Ein Neutronengenerator liefert über die D-T-Reaktion 14 MeV-Neutronen, wobei die Produktion dieser Neutronen gepulst werden kann. Diese Neutronen lösen im zu untersuchenden Brennelement Spaltungen aus. Die daraus resultierenden verzögerten Neutronen werden zwischen den Generatorimpulsen in einer hochempfindlichen Detektoranordnung registriert. Ihre während einer vorgegebenen Zeit nachgewiesene Anzahl ist ein Maß für den Spaltstoffgehalt im Brennelement. Die Auswertung geschieht relativ zu einem Referenzelement.

Die zu entwickelnde Apparatur wird so ausgelegt, daß sie ganze Brennelemente-Serien in kurzer Zeit zu messen und die Auswertung der Meßergebnisse schritthaltend durchzuführen gestattet. Für eine solche automatisch arbeitende Anlage ist ein hoher Grad an Verfügbarkeit erforderlich. Daher wird ein digitaler Kleinrechner eingesetzt, der sowohl die Erfassung und Auswertung der nuklearen Meßdaten durchführt als auch den gesamten zeitlichen Ablauf steuert und dabei auch die Regelung des Neutronengenerators übernimmt.

In der ersten Ausbaustufe der Anlage wird der Neutronengenerator noch von Hand gefahren; lediglich das Pulsen der Produktion von 14 MeV-Neutronen wird vom Rechner veranlaßt. Die Meßdatenerfassung und -auswertung läuft jedoch bereits komplett rechnergesteuert in der Weise, daß unmittelbar nach Beendigung der Messungen das Ergebnis - nämlich Brennstoffgehalt in Gramm - auf dem Konsoldrucker ausgegeben wird (einschließlich statistischem Fehler). Dies wurde zunächst an MTR-Elementen demonstriert, deren Spaltstoffgehalt in 10 Minuten mit einer Genauigkeit besser als 3 % bestimmt

werden konnte.

Die weiteren Arbeiten erstrecken sich auf die Umstellung des Verfahrens für seine Anwendung auf THTR-Kugelelemente und auf die komplette Automatisierung durch Einbeziehung der *closed-loop*-Regelung des Neutronengenerators durch den Rechner. Letzteres bedarf eines Ausbaues der Rechenanlage und einer Umrüstung des Generators, um dessen analoge Betriebsgrößen erfassen und die daraus resultierenden Regeleingriffe vornehmen zu können. Für ein zu erstellendes Regelmodell werden zunächst umfangreiche Parameterstudien im Generator-Betrieb notwendig sein.

#### 2.4 Bestimmung von Spaltstoff in Brennelementen mit Hilfe einer Antimon-Beryllium-Neutronenquelle

---

K. Baumung, K. Böhnel, M. Kühle

Die Bestimmung des Spaltstoffflusses am Ausgang einer Brennelement-Fabrikationsanlage kann entweder durch Messung an einzelnen Brennstäben oder an den assemblierten Brennelementen erfolgen. Letzteres hat den Vorteil, daß die Messung an dem Objekt erfolgt, das versiegelt und ausgeliefert wird, und daß die Messung völlig außerhalb des Produktionsablaufs stattfindet.

Während für die Messung an Brennstäben verschiedene Methoden entwickelt wurden und auch kommerzielle Geräte angeboten werden, gibt es noch kein brauchbares Verfahren für ganze Elemente. Dies liegt an der Schwierigkeit der Meßaufgabe: Nur schnelle Neutronen besitzen eine genügende Durchdringungsfähigkeit, um den Spaltstoff im Element unabhängig von seinem Ort zu registrieren; andererseits lösen sie Spaltungen in  $^{238}\text{U}$  aus, während man nur den - in Leichtwasserreaktoren sehr geringen - Anteil an  $^{235}\text{U}$  bestimmen will.

Eine Lösung dieser Schwierigkeit, die außerdem noch zu einem sehr einfachen Gerät führt, liegt in der Bestrahlung des Elements mit Neutronen aus einer Sb-Be-Quelle und dem Nachweis der induzierten Spaltneutronen.

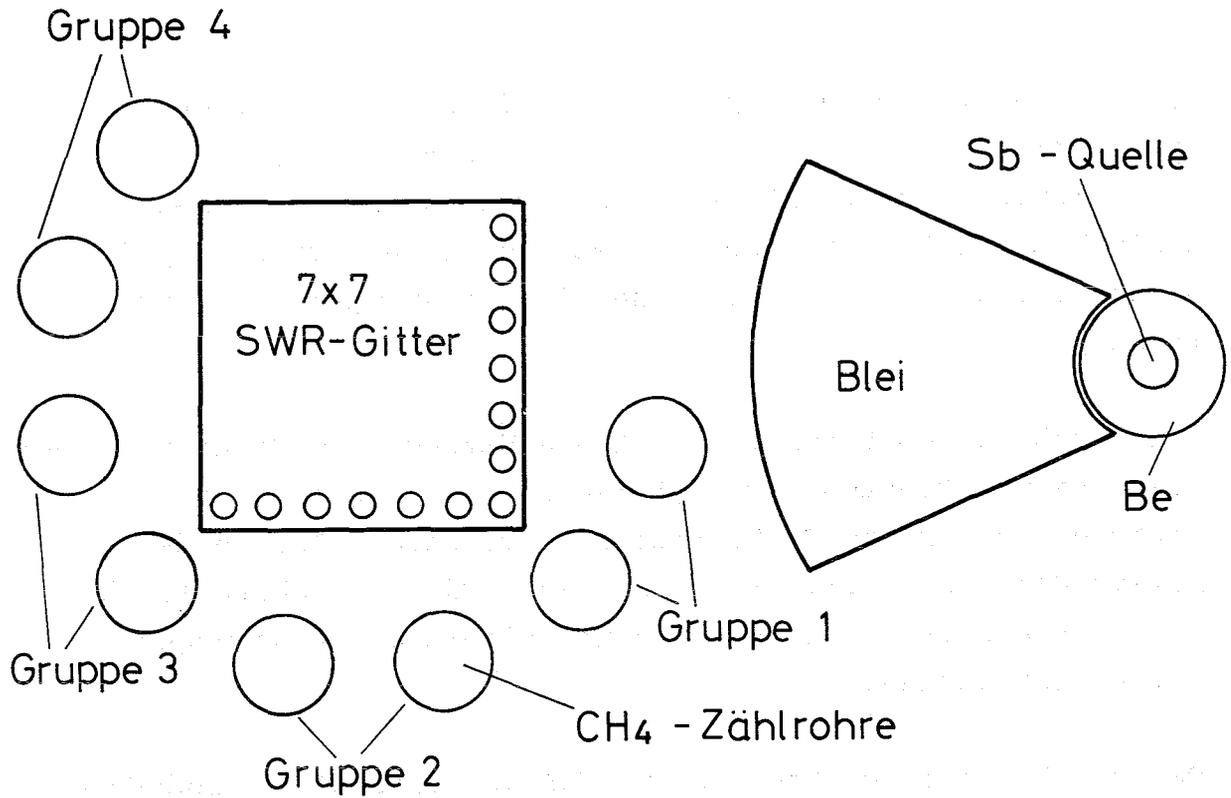


Abb. 2.4/1

Mechanischer Aufbau

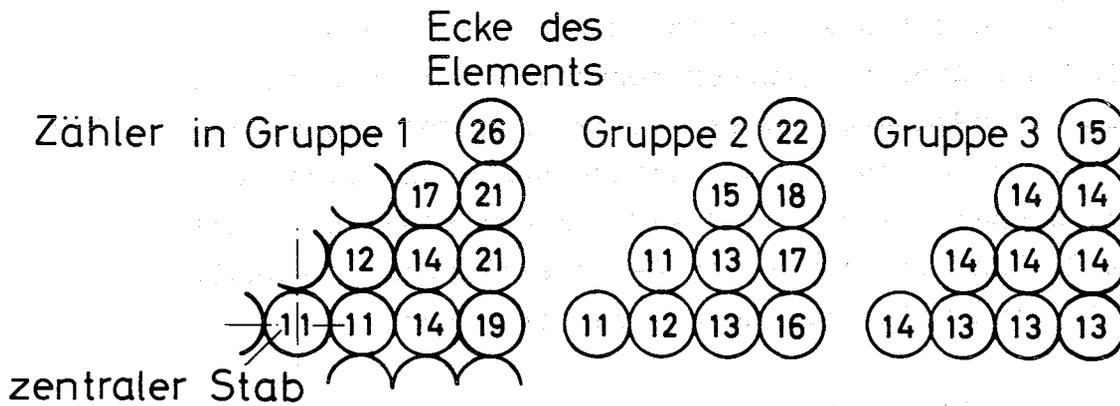


Abb. 2.4/2

Zählratenerhöhung in Prozent für verschiedene Stabpositionen und Detektorgruppen

Die 26 keV-Neutronen dieser Quelle liegen unterhalb der Spaltschwelle des  $^{238}\text{U}$ , haben jedoch noch eine gute Durchdringungsfähigkeit. Verwendet man Rückstoßprotonen-Zählrohre als Neutronendetektoren, so werden nur die Spaltneutronen, nicht jedoch die energieärmeren Quellneutronen registriert.

Eine nach diesem Prinzip arbeitende Versuchsanordnung für Brennelemente von Siedewasserreaktoren wurde im Institut für Neutronenphysik und Reaktortechnik errichtet. Aufbau der Anlage und erste Versuchsergebnisse wurden im Jahresbericht 1970 mitgeteilt<sup>1</sup>. Inzwischen sind weitere Untersuchungen angestellt worden.

Das Hauptproblem besteht darin, daß der Spaltstoff unabhängig von seinem Ort im Element die gleiche Zählrate hervorrufen muß. Nur dann ist eine eindeutige Zuordnung von Zählratenänderungen und Mengenänderungen möglich. Um die Anlage in dieser Hinsicht zu optimalisieren, wurden die Zählrohre, die das um seine Achse rotierende Element umgeben, zu Gruppen zusammengefaßt, wie es in der Schemazeichnung der Abb. 2.4/1 dargestellt ist. Dann wurden ein hochangereicherter Brennstab hintereinander in alle unterschiedlichen Positionen des Elementes eingesetzt und die Zählraten der verschiedenen Zählrohrgruppen bestimmt. Der angereicherte Stab erhöhte die Zählraten um etwa 14 %. Die genauen Werte der Zählratenerhöhung für die verschiedenen Stabpositionen und Zählrohrgruppen zeigt Abb. 2.4/2. Am günstigsten verhält sich Gruppe 3, hier ist innerhalb der statistischen Genauigkeit von 1 % keine Ortsabhängigkeit feststellbar.

In die Zählrate geht das Produkt zweier Wahrscheinlichkeiten ein, nämlich

- 1.) die Wahrscheinlichkeit dafür, daß ein Quellneutron eine Spaltung auslöst, und
- 2.) die Wahrscheinlichkeit dafür, daß ein Spaltneutron nachgewiesen wird.

Die Ortsabhängigkeit beider Effekte wurde getrennt bestimmt, indem einmal mit einer Spaltkammer in Stabposition gezählt wurde (Wahrscheinlichkeit für Spaltung), zum anderen mit einer Californium-Quelle in Stabposition mit den Zählrohrgruppen gemessen wurde (Wahrscheinlichkeit für den Nachweis von Spaltneutronen). Damit lassen sich die Verhältnisse besser durchschauen und die Apparatur optimalisieren. Ferner wurden die Verbesserung durch Reflektoren und die Anwendbarkeit einer Am-Li-Quelle untersucht.

Nachteilig am Verfahren ist die verhältnismäßig hohe Quellstärke von 3 Ci, die nötig ist, um 1 % Genauigkeit in 1 Stunde Meßzeit zu erhalten, sowie die kurze Lebensdauer der Quelle. Störende Drifteffekte, die beobachtet wurden, könnten durch eine elektronische Regelschaltung eliminiert werden. Schwierigkeiten können sich bei Brennelementen mit eingebauten Absorberstäben ergeben.

Ein ausführlicher Bericht über diese Arbeiten wurde bei der internationalen Konferenz über zerstörungsfreie Meßmethoden in der Spaltstoffflußkontrolle im September 1971 in Ispra gegeben<sup>13</sup>.

## 2.5 Ein einfaches Gerät zur Bestimmung von Spaltstoff in Brennstäben nach der Fermialter-Methode

---

K. Böhnel, M. Kühle

Das einfachste Verfahren zur Spaltstoffbestimmung in Brennstäben besteht in der Messung der  $\gamma$ -Eigenstrahlung. Wegen der geringen Durchdringungsfähigkeit dieser Strahlung wird das Meßergebnis aber leicht durch Inhomogenitäten der Spaltstoffverteilung (z. B. dishing) oder Unkenntnis der Hüllwandstärke verfälscht. Daher wurden in Los Alamos, bei Gulf Radiation Technology und bei der Firma National Nuclear Corporation in USA Geräte entwickelt, die auf neutroneninduzierter Spaltung beruhen und eine radioaktive Neutronenquelle verwenden. Im Institut für Neutronenphysik und Reaktortechnik wurde im letzten Jahr ebenfalls solch ein Meßverfahren entwickelt, welches sich von den in den oben erwähnten Geräten ver-

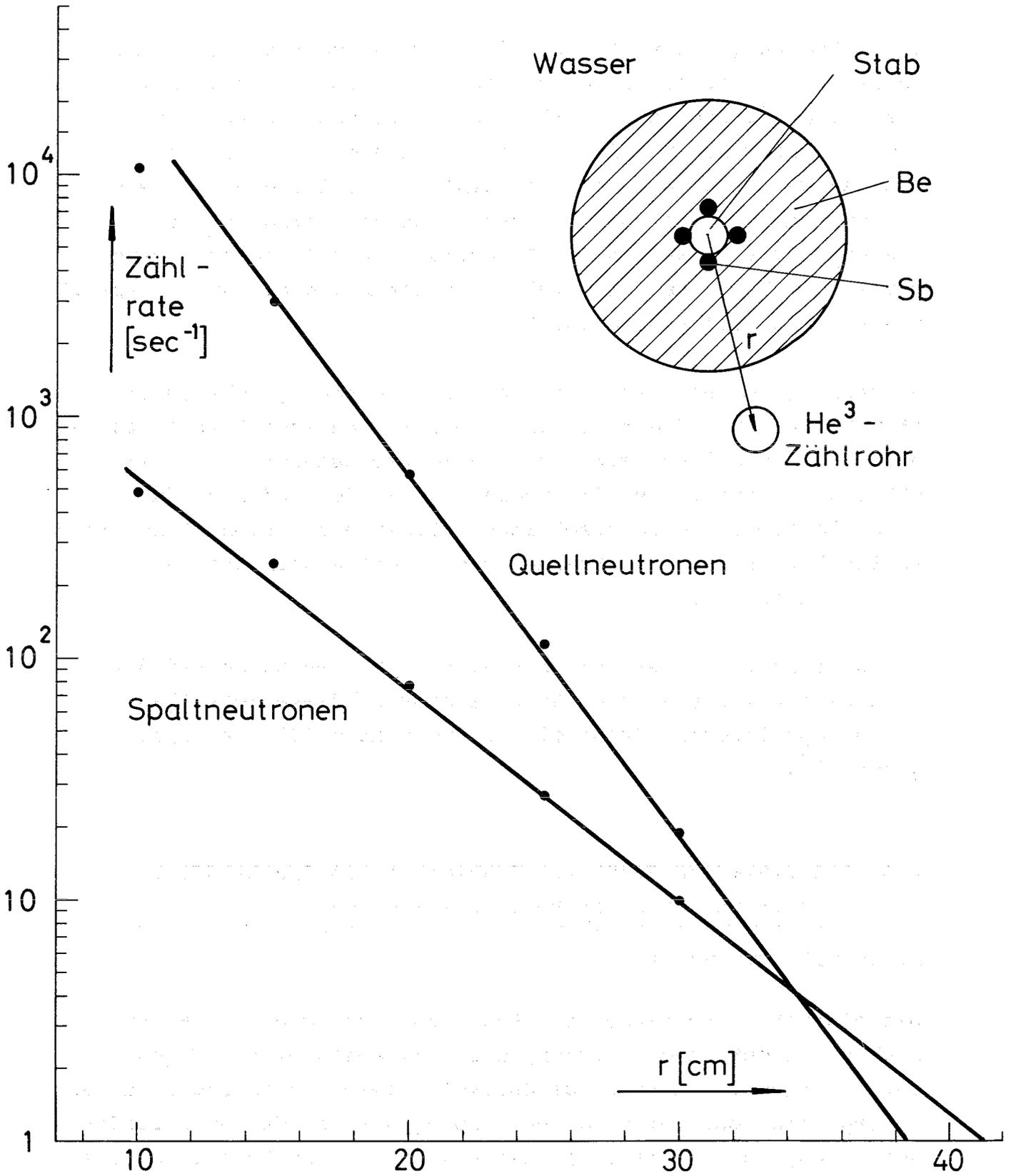


Abb. 2.5/1

Signal- und Untergrund-Zählrate in Abhängigkeit vom Ort des Zählrohrs

wendeten dadurch unterscheidet, daß es besonders einfache und somit betriebssichere Komponenten enthält. Diese sind nämlich: Die Neutronenquelle, ein Behälter mit Wasser und Zählrohre für thermische Neutronen. Aufbau und Wirkungsweise des Gerätes geschehen folgendermaßen:

In die Mitte eines Wasserbehälters von ca. 80 cm Durchmesser wird eine Sb-Be-Quelle eingesetzt, in unmittelbare Nähe wird der zu messende Brennstab gebracht. Die Zählrohre befinden sich in ca. 20 cm Abstand von der Quelle. Diese Quelle erzeugt nun in ihrer Umgebung ein thermisches Neutronenfeld und induziert dadurch Spaltungen im Brennstab, deren Zahl proportional zur Spaltstoffmenge im Stab ist. Die Zahl der je Sekunde erzeugten Spaltneutronen ist allerdings um mehrere Zehnerpotenzen kleiner als die Zahl der Quellneutronen und somit nicht ohne weiteres feststellbar. Diffundieren jedoch die Neutronen nach außen, so werden die energieärmeren Quellneutronen sehr viel schneller abgebremst und absorbiert als die Spaltneutronen. Dieser Vorgang wird durch die Fermi-alter-Theorie beschrieben. In genügend großem Abstand überwiegen die Spaltneutronen. Dies ist in Abb. 2.5/1 zu erkennen, wo Meßergebnisse wiedergegeben sind, die mit einem typischen Leichtwasserreaktor-Brennstab gewonnen wurden.

Die Quelle bestand aus einem Beryllium-Hohlzylinder von 15 cm Außendurchmesser und 15 cm Höhe. Die zentrale Bohrung nahm vier  $^{124}\text{Sb}$ -Stäbchen mit einer Gesamtaktivierung von 20 mCi auf und diente außerdem zur Führung des zu messenden Brennstabs. Die thermischen Neutronen wurden mit einem 1 m langen  $^3\text{He}$ -Zählrohr nachgewiesen.

Große Abstände der Zählrohre von der Quelle haben den Nachteil geringer Zählrate, so daß ein Kompromiß zwischen Zählrate und Signal-zu-Untergrund-Verhältnis zu schließen ist. Bei 25 cm Abstand der Zählrohre vom Stab mißt man mit einer 30 mCi-Antimon-Quelle in einer Minute auf 1 % genau, wenn man 15 Zählrohre verwendet. Man bleibt somit in einem Dosisleistungsbereich, der keine besonderen Handhabungsprobleme hervorruft.

Ein Nachteil der Antimon-Quelle ist die kurze Halbwertszeit von 60 Tagen. Günstiger ist in dieser Hinsicht eine Am-Li-Quelle. Sie sendet Neutronen mit niedrigeren Energien aus als die übrigen langlebigen radioaktiven Neutronenquellen. Trotz eines zwischen Stab und Quelle eingeführten Bleieinsatzes zum Bremsen des schnellen Spektrumsanteils ist jedoch diese Quelle weniger geeignet als die Sb-Be-Quelle.

Wenn es vom Aufbau her praktischer ist, könnte man auch Polyäthylen oder Paraffin als Moderator verwenden, wie Messungen am Polyäthylen zeigten. Da die Zählrate stark von der Temperatur des Moderators abhängt, muß diese in jedem Fall konstant gehalten werden.

## 2.6 Passive Bestimmung von $^{235}\text{U}$ und Thorium in AVR- und THTR-Brennelementkugeln

---

### C. Weitkamp

Ein aktives Verfahren zur schnellen und präzisen Bestimmung von  $^{235}\text{U}$  in hochangereicherten Brennelementen ist in Abschnitt 2.3 dieses Berichts kurz erwähnt worden. Eine alternative Methode, die die gleichzeitige Bestimmung von  $^{235}\text{U}$  und Thorium in kugelförmigen (AVR-, THTR-) Brennelementen gestattet, beruht auf der Ausnutzung der passiven  $\gamma$ -Strahlung des  $^{235}\text{U}$  und der radioaktiven Töchter des  $^{232}\text{Th}$ .

Zu diesem Zweck wurde am Institut für Kerntechnik der Technischen Universität Hannover<sup>†</sup> die natürliche  $\gamma$ -Strahlung einer Brennelementkugel mit 5 g Th und 1 g  $^{235}\text{U}$  mit NaJ(Tl) und Ge(Li)- $\gamma$ -Spektrometern gemessen<sup>14</sup>. Das Spektrum läßt sich in drei Zonen unterteilen, die

- die intensive 185 keV-Linie des  $^{235}\text{U}$ ,
- das linienreiche Gebiet zwischen etwa 200 keV und 2,7 MeV, das aus den Zerfallprodukten des  $^{232}\text{Th}$  herrührt, und
- die Linien bei 911 und 969 keV aus dem Zerfall des  $^{228}\text{Ac}$

umfassen. Die Intensität im ersten Bereich ist ein direktes Maß für die

---

<sup>†</sup>Diese Arbeiten wurden 1971 direkt vom BMBW gefördert.

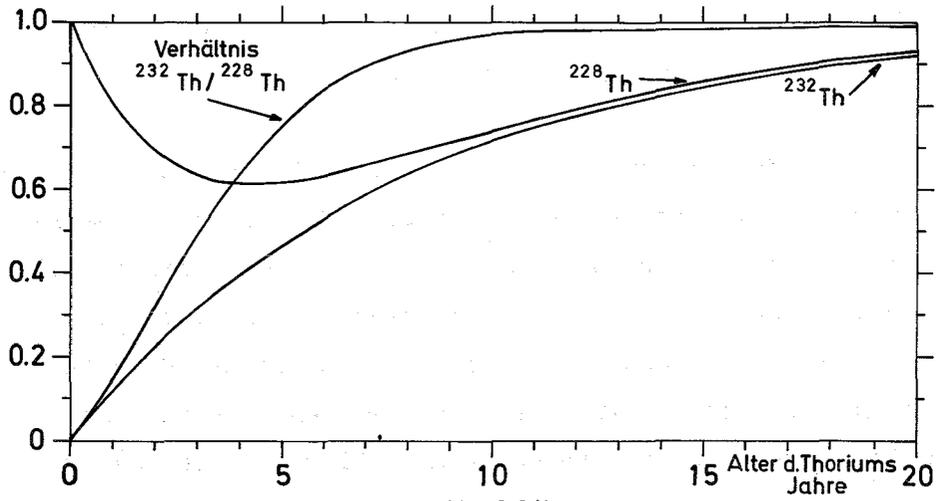


Abb. 2.6/1

Aktivität der kurzlebigen Tochternuklide von  $^{228}\text{Th}$  und  $^{232}\text{Th}$ , bezogen auf die Gleichgewichtsaktivität

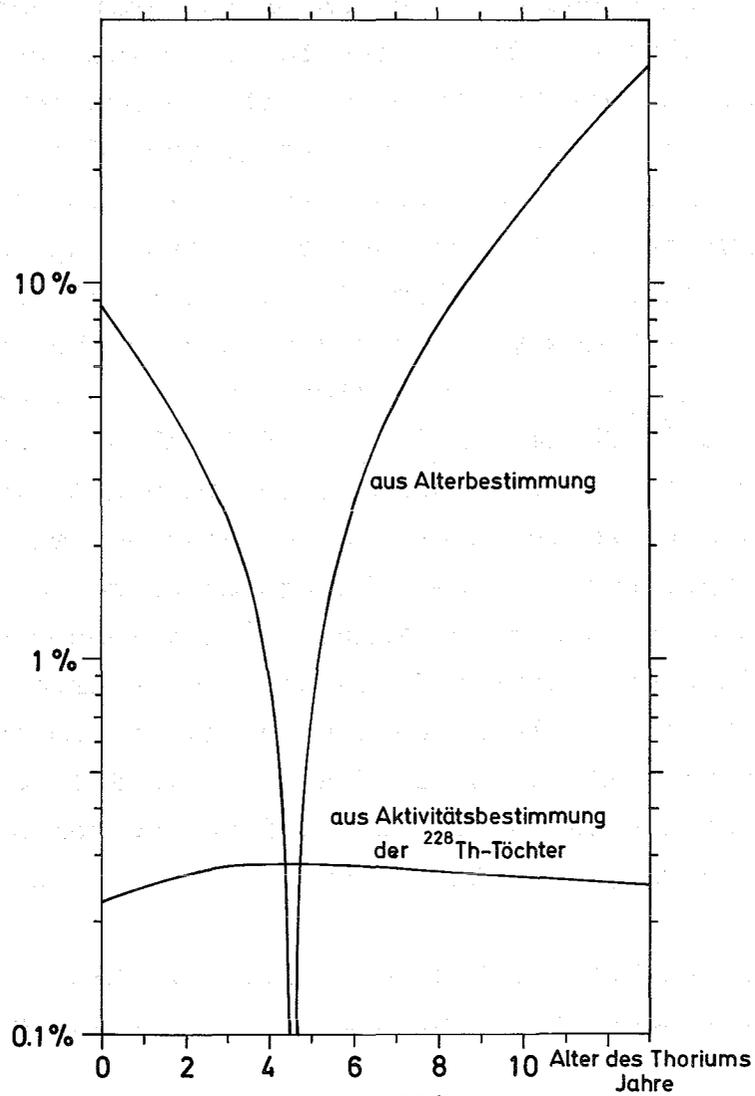


Abb. 2.6/2

Fehlerkomponenten für die  $\gamma$ -spektrometrische Thoriumbestimmung

Menge  $^{235}\text{U}$ , die Intensität im zweiten Bereich für das Thorium aber nur, wenn die Geschichte des Thoriums genau bekannt ist.

Die Trennung der beiden ersten Bereiche gelingt mit ausreichender Genauigkeit schon mit NaJ(Tl)-Spektrometern. Infolge der verhältnismäßig niedrigen Energie der  $\gamma$ -Strahlung des  $^{235}\text{U}$  bereitet die Exzentrizität der Kugeln gewisse Schwierigkeiten. Durch Rotation der Kugel und Mehr-Detektor-Anordnungen konnten die hierdurch bedingten Effekte selbst in extremen Fällen auf 10 % reduziert werden. Die weitere Verminderung hierdurch u.U. entstehender Meßfehler ist eine der zukünftigen Aufgaben.

Auch für unbekanntes Material läßt sich der Umrechnungsfaktor zwischen  $^{238}\text{Th}$  (zweiter Bereich) und der Menge Thorium (d.h. überwiegend  $^{232}\text{Th}$ ) in Brennelement angeben, wenn man das Verhältnis der Intensitäten im zweiten und im dritten Bereich des Spektrums sorgfältig bestimmt. In Abb. 2.6/1 sind der Verlauf der relativen (d.h. auf die Gleichgewichtsaktivität bezogenen) spezifischen Aktivitäten als Funktion des Alters nach der Verhüttung (d.h. Abtrennung der Tochterelemente) für den zweiten und für den dritten Bereich des Spektrums und deren Verhältnis wiedergegeben. Man erkennt, daß sich die relative Aktivität der Töchter des  $^{228}\text{Th}$  im Bereich von  $4\frac{1}{2}$  Jahren nach der Abtrennung sehr wenig, das Verhältnis der beiden Aktivitäten aber stark ändert, so daß hier aus der Messung des Verhältnisses eine gute Aussage über den Umrechnungsfaktor zwischen der Zählrate im Bereich 2 und der Menge  $^{232}\text{Th}$  gewonnen werden kann. Umgekehrt ändert sich etwa 8 Jahre nach der Abtrennung das Verhältnis der beiden Zählraten kaum nach, der Umrechnungsfaktor aber noch um mehr als 36 %, so daß hier die aus der Verhältnis-messung gewonnene Aussage über die Umrechnung der Zählrate im Bereich 2 in Gramm Thorium zunehmend ungenau wird.

Eine quantitative Beschreibung des statistischen Meßfehlers für das beschriebene Verfahren gibt Abb. 2.6/2, in der die Fehler

aus der Flächenbestimmung des Bereichs 2 und der Bestimmung des Verhältnisses  $^{232}\text{Th}/^{228}\text{Th}$  einzeln als Funktion des Alters berechnet worden sind. Der Rechnung liegen folgende Daten zugrunde:

Materialmenge: 5 g  $^{232}\text{Th}$ ,  
Halbwertszeiten:  $1,39 \cdot 10^{10}$  a ( $^{232}\text{Th}$ ),  
5,75 a ( $^{228}\text{Ra}$ ),  
1,913 a ( $^{228}\text{Th}$ ),  
Meßzeit: 30 Minuten,  
Zählraten: 200 000 Impulse/30 Minuten (Bereich 2),  
1 000 Impulse/30 Minuten (Bereich 3),  
Untergrundanteil aus Bereich 3 in Bereich 2,  
relativ zur Zählrate im Bereich 2 : 0.005.

Der Gesamtfehler ergibt sich als Wurzel aus der Quadratsumme der Einzelfehler. Man erkennt, daß die Bestimmung des Verhältnisses praktisch überall den dominierenden Anteil liefert und daß für die Thoriumbestimmung unter ungünstigen Umständen Unsicherheiten bis zu 10 % in Kauf genommen werden müssen, wenn man für die Altersbestimmung des Materials auf eine  $\gamma$ -spektroskopische Messung angewiesen ist.

## 2.7 Bestimmung der Isotopenzusammensetzung von Uran bei unbekannter Dicke des Absorbermaterials

---

### C. Weitkamp

Die Bestimmung der Anreicherung von Uran durch einfaches Zählen der 185 keV-Eigenstrahlung des  $^{235}\text{U}$  ist eine durch ihre Einfachheit bestechende Methode<sup>15</sup>, die aber bisher nur verhältnismäßig ungenaue Ergebnisse erbracht hat. Der Grund dafür liegt darin, daß die absolute Zählrate in einem Diskriminierungsfenster, das den Photopeak der 185 keV- $\gamma$ -Linie einschließt, von mehreren Parametern abhängt. Dazu gehören neben der

- Anreicherung auch die
- chemische Zusammensetzung,
- Art und Dichte des Behältermaterials,
- Dicke des Behältermaterials,
- Unvollkommenheiten des Kollimators, und
- Unvollkommenheiten der Elektronik.

Will man den größten Vorzug der Methode, der in der Einfachheit der verwendbaren Apparatur liegt, nicht opfern, so muß man sich auf die Verwendung eines NaJ(Tl)-Detektors mit Einkanaldiskriminator und Timer-Zähler-Kombination beschränken. Ein solches System kann drei physikalisch relevante Meßgrößen liefern, nämlich die Zählraten

- im  $^{235}\text{U}$ - $\gamma$ -Peak bei 185 keV,
- im Uran-K-Röntgen-Peak um 102 keV, und
- im Compton-Untergrund zwischen etwa 250 und 400 keV aus den wenig intensiven höherenergetischen Linien des  $^{238}\text{U}$ .

Tabelle 2.7/I

Verhältnis der Zählraten der Linien bei 102 keV und 185 keV als Funktion der Dicke eines Eisen-Absorbers zwischen Quelle und Detektor. Die gemessenen Werte wurden mit einem 2"  $\varnothing$  x 1/2" NaJ(Tl)-Detektor bestimmt, die gerechneten Werte berücksichtigen nur Absorption und Streuung im Absorber.

Dicke des Eisenabsorbers mm	Verhältnis		
	(102):(185) mit Absorber / (102):(185) ohne Absorber		berechnet
	gemessen ohne Untergrundsubtraktion	gemessen mit Untergrundsubtraktion	
0	1	1	1
5	0.48	0.41	0.51
10	0.31	0.19	0.27
15	0.25	0.11	0.14
20	0.24	0.07	0.07

Theoretische Abschätzungen haben ergeben, daß man mit diesen drei Zählraten die Genauigkeit der Messung gegenüber dem einfachen Zählen im 185 keV-Fenster steigern kann, wenn man durch Weiterentwicklung der Elektronik Instabilitäten und Temperatureffekte, besonders bei den Amplituden und Diskriminatorschwellen sowie der Timerfrequenz, hinreichend vermindern kann und Betrugsmanöver, etwa durch Beimischung von Absorbermaterial zur Meßprobe oder durch doppelwendige oder aus ungebräuchlichen Materialien bestehende Behälter, ausschließt.

Weil die Anregung der K-Röntgenstrahlung zum überwiegenden Teil durch die 185 keV- $\gamma$ -Strahlung des  $^{235}\text{U}$  erfolgt, ändert sich nämlich das Verhältnis der Zählraten im 102 keV- und im 185 keV-Fenster mit der Anreicherung nur wenig. Andererseits wird durch die Wandung des (Eisen- oder Stahl-) Behälters die 102 keV-Strahlung stärker geschwächt als die 185 keV-Strahlung. Raumwinkeleffekte wirken sich hingegen auf beide Zählraten in derselben Weise aus. Deshalb und weil Dichteschwankungen von Eisen oder Stahl gering sind, läßt sich das gemessene 185 : 102-Verhältnis verwenden, Wandstärken- und Raumwinkeleffekte zu bestimmen.

Tabelle 2.7/I zeigt, daß das Verfahren schon bei Vergleich der Bruttozählraten für die gebräuchlichen Wandstärken bis etwa 10 mm ausreichend empfindlich ist und durch geeignete Berücksichtigung des Untergrundes auf größere Wandstärken ausgedehnt werden kann.

Der Kollimator kann aus Intensitätsgründen nicht beliebig lang gemacht werden. Daher entstehen vor allem für die hochenergetischen  $\gamma$ -Linien des  $^{238}\text{U}$  zwischen etwa 700 und 1000 keV große Halbschatten-Bereiche, die über den Compton-Untergrund zu den Zählraten in den Fenstern bei 102 und 185 keV beitragen. Dieser Effekt läßt sich durch Messung der Zählrate in einem breiten Fenster zwischen etwa 250 und 400 keV berücksichtigen.

Die einzige Unsicherheit, die das Verfahren im Prinzip nicht zu eliminieren gestattet, ist der Fehler aufgrund der chemischen Zusammensetzung. Geht man aber davon aus, daß die Natur der

Tabelle 2.7/II.

Relative Zählraten der 185 keV-Linie für gleiche Anreicherung und gleiche Geometrieverhältnisse für verschiedene chemische Verbindungen

Verbindung	relative Zählraten
Uranmetall	1.000
UO <sub>2</sub>	0.989
U <sub>3</sub> O <sub>8</sub>	0.985
UF <sub>6</sub>	0.962

uranhaltigen Verbindung bekannt ist und nur die genaue Stöchiometrie unsicher, so sind die dadurch hervorgerufenen Fehler klein. Wie aus Tabelle 2.7/II ersichtlich ist, sind z.B. die Zählraten für UO<sub>2</sub> und U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> um 0.4% unterschiedlich. Im Falle oxidischen Materials betragen die Abweichungen von der Stöchiometrie des UO<sub>2</sub> aber nur wenige Prozent, so daß der hierdurch bedingte Fehler der Anreicherungsmessung vernachlässigbar wird.

## 2.8 Gammaskpektrometrische Bestimmung der Isotopenzusammensetzung von Plutonium

---

### C. Weitkamp

Für praktisch alle Anwendungen von Plutonium ist die Kenntnis der Isotopenzusammensetzung von Bedeutung. Auch die zerstörungsfreien Verfahren zur Plutoniumbestimmung sind zur Ermittlung der Gesamtmenge Plutonium von der Kenntnis der Zusammensetzung abhängig.

Tabelle 2.8/I.

Energien  $E_\gamma$  und partiale Quellstärken  $N_\gamma$  (Quanten je Sekunde und Gramm Material) der intensivsten  $\gamma$ -Linien im Energiebereich  $>120$  keV für die wichtigsten Isotope des Plutoniums und für  $^{241}\text{Am}$ , berechnet aus den in Ref. <sup>17</sup> gemessenen Daten. Die Werte der dritten Zeile sind die Anzahl Zerfälle je Gramm und Sekunde; die Schreibweise aEb bedeutet a mal  $10^b$ . Die Tabelle ist Ref. <sup>18</sup> entnommen.

$^{238}\text{Pu}$	$^{239}\text{Pu}$	$^{240}\text{Pu}$	$^{241}\text{Pu}$	$^{241}\text{Am}$
87.75 a	24400 a	6537 a	13.2 a	458 a
6.34 E 11	2.27 E 09	8.44 E 09	4.16 E 12	1.20 E 11
$E_\gamma/\text{keV}$ $N_\gamma/\text{gsec}$	$E_\gamma/\text{keV}$ $N_\gamma/\text{gsec}$	$E_\gamma/\text{keV}$ $N_\gamma/\text{gsec}$	$E_\gamma/\text{keV}$ $N_\gamma/\text{gsec}$	$E_\gamma/\text{keV}$ $N_\gamma/\text{gsec}$
152.58 8.05E06	129.28 1.27E05 144.18 6.13E03 146.06 2.22E03 161.48 2.27E03 171.37 2.22E03 195.68 2.02E03 203.55 1.09E04  332.84 9.76E03 336.14 2.13E03 345.02 1.13E04 367.08 1.86E03 368.57 1.84E03 375.04 3.40E04 380.19 6.81E03 382.77 5.67E03 392.9 d1.23E04 413.71 3.40E04 422.62 2.72E03 451.49 4.09E03 645.80 2.95E02	160.27 5.82E04	148.56 8.61E06 164.59 1.91E06  208.00 <sup>+</sup> 2.23E07 267.53 7.94E05  332.34 1.24E06 335.40 1.15E05  368.63 4.50E04 370.98 1.31E05	122.99 2.64E06 125.26 7.08E06  146.54 9.60E05 150.10 1.56E05 164.60 1.44E05 169.54 3.84E05  208.00 1.92E06  311.94 1.56E05 322.54 3.96E05 332.39 3.96E05 335.43 1.32E06  368.68 5.76E05 376.68 3.60E05  662.42 9.36E05 721.96 5.04E05
766.35 1.77E05	d = Dublett		<sup>+</sup> In frisch gereinigtem Pu nach 2.14 a 1% Beitrag von $^{241}\text{Am}$	

Das genaueste und universellste Verfahren zur Messung von Isotopenzusammensetzungen ist die Massenspektrometrie. Für Isotope mit stark unterschiedlicher Häufigkeit, aber vergleichbarer  $\alpha$ -Aktivität kann die  $\alpha$ -spektrometrische Bestimmung Vorteile bieten. Beide Verfahren erfordern aber umfangreiche Maßnahmen für die Probenvorbereitung. Demgegenüber kann die  $\gamma$ -spektroskopische Messung der Zusammensetzung an umhüllten Proben erfolgen und unmittelbar verfügbare Ergebnisse liefern. Nachteil des  $\gamma$ -spektrometrischen Verfahrens ist, daß nur bestimmte Verhältnisse gemessen werden können und daß die Genauigkeit stark von der Größe des zu bestimmenden Verhältnisses abhängt.

Außerdem liegen in den interessierenden Energiebereichen die Linien sehr dicht, und die Intensitäten sind verhältnismäßig gering, so daß, wie experimentelle Untersuchungen bestätigt haben, nur mäßig gute Signal-zu-Untergrund-Verhältnisse zu erhalten sind (siehe hierzu Tabelle 2.8/I). Eine theoretische Abschätzung<sup>16</sup> hat gezeigt, daß wesentliche Verbesserungen von Genauigkeit und Meßdauer zu erreichen sind, wenn man den Untergrund, der durch Compton-Streuung höherenergetischer Linien im Detektor entsteht, reduziert. In einer umfassenden Optimierungsstudie<sup>18</sup> sind 1971 die für diesen Zweck günstigsten Parameter eines NaJ(Tl)-Detektors bestimmt worden.

## 2.9 Neutronenkoinzidenzmessungen zur Plutoniumbestimmung

K. Böhnel, C. Weitkamp

Zur quantitativen Bestimmung von Plutonium wird oft die Spontanspaltung einiger Plutoniumisotope, besonders  $^{240}\text{Pu}$ , herangezogen. Die Zahl der dabei entstehenden Neutronen ist bei bekannter Isotopenzusammensetzung ein Maß für die

enthaltene Menge Plutonium. Da aber auch andere Prozesse, z.B.  $(\alpha, n)$ -Reaktionen, Neutronen erzeugen, ist die Gesamtneutronenquellstärke nicht zur Messung geeignet. Zur Unterscheidung der Neutronen nach ihrem Ursprung bedient man sich der Tatsache, daß bei einer Spaltung im Mittel mehrere Neutronen gleichzeitig entstehen. Verwendet man einen moderierenden Detektor, so werden die Neutronen zwar nicht gleichzeitig nachgewiesen, aber doch innerhalb eines Zeitintervalls, das durch die Lebensdauer der Neutronen im Moderator bestimmt wird. Deshalb ist die Wahrscheinlichkeit, daß unmittelbar nach einem nachgewiesenen Neutron ein dazu korreliertes gefunden wird, größer als die Wahrscheinlichkeit, lange Zeit später ein solches zu finden.

Das zumeist angewendete elektronische Verfahren beruht darauf, daß anschließend an den Nachweis eines Neutrons für die Dauer der Neutronenlebensdauer ein Tor geöffnet wird, durch das die folgenden Impulse in einem Zähler gezählt werden. Ein gleich langes Tor wird geöffnet, wenn alle korrelierten Neutronen verschwunden sind. Die Differenz der beiden Zählraten ist, da auch durch das erste Tor unkorrelierter Untergrund gezählt wird, ein Maß für die Zahl der Spontanspaltungen. Ein Nachteil dieses Verfahrens ist es, daß die Nachweise, die während der Öffnungszeit des ersten Tores geschehen, selbst kein weiteres Tor öffnen können. Dadurch wird das korrelierte Signal stärker als das unkorrelierte betroffen. Zerlegt man die Tore in kleinere Einheiten, so kann man auf Kosten einer größeren Anzahl von Zählern diesen Nachteil umgehen.

In den bisherigen Versuchen des INR wurde ein solcher Analysator benutzt. Um die relativ komplexe Auswertung zu vermeiden, wurde dort im Jahr 1971 ein Gerät entwickelt, das den Vorteil einer feinen Torunterteilung (100 Stufen)



wickelt wurden, kann der Anwendungsbereich zu höheren Plutoniummengen ausgedehnt werden. Bei gleichen Bedingungen kann in realistischen Fällen der Fehler reduziert oder die Meßzeit verkürzt werden. Zum Beispiel gewinnt man bei 10 g Plutonium, das 10%  $^{240}\text{Pu}$  enthält, in einem realistischen Detektor etwa den Faktor 4 an Meßzeit.

Die praktischen Arbeiten zur Bestimmung von Plutonium nach der Neutronenkoinzidenzmethode wurden bei der Firma ALKEM durchgeführt. Sie erstreckten sich im wesentlichen auf die Inbetriebnahme, Eichung und Erprobung

Tabelle 2.9/I

Gemessene Abfallpakete mit Plutonium gleicher Isotopenzusammensetzung

	Probe I	Probe II	Probe III	Probe IV
	2,00 g Pu = 2,28 g PuO <sub>2</sub>	2,00 g Pu = 2,28 g PuO <sub>2</sub>	3,63 g Pu = 4,14 g PuO <sub>2</sub> = 15,6 g PuO <sub>2</sub> UO <sub>2</sub>	3,63 g Pu = 4,14 g PuO <sub>2</sub> = 15,6 g PuO <sub>2</sub> UO <sub>2</sub>
Verpackung der Proben	PVC-Behälter	Windel und PVC-Umhüllung	DC-Fix und PVC-Umhüllung	Glasflasche und PVC-Umhüllung
Einzelzählrate Imp/50 min	64,133	74,747	178,220	98,935
Koinzidenzzählrate Imp/50 min	912	951	2,882	1,702
Spaltneutronenkoinzidenzrate Imp/min	13,71	13,32	25,22	24,13
Spaltneutronenkoinzidenzrate Imp/min g PuO <sub>2</sub>	6,01	5,84	6,09	5,83
Abweichung vom Mittelwert in %	1,18	1,68	2,53	1,85

einer in das Kilokalorimeter eingebauten Neutronenmeßanordnung (siehe auch Abschnitt 2.11) sowie den Bau und die Erprobung einer neuen Einrichtung zur Messung von Plutonium im Abfall. Diese Anlage besteht aus 18  $\text{BF}_3$ -Neutronenzählrohren, die, in Paraffin eingebettet, das Meßgut ringförmig einschließen. Die Eichmessungen umfaßten Versuchsreihen zur Aufnahme der Zählrohrplateaus, zur korrekten Einstellung der Verstärkerempfindlichkeiten, zur genauen Bestimmung der effektiven Öffnungszeiten der Gates sowie zur Aufnahme der Kennlinien, die Gesamtzählrate, zufällige und echte Koinzidenzen mit der Gate-Öffnungszeit verknüpfen. Die Ergebnisse einer Messung, die die Unabhängigkeit des Verfahrens von der Art der Verpackung demonstriert, sind in Tabelle 2.9/I wiedergegeben. Man erkennt, daß die Abweichungen der auf 1 g Plutonium bezogenen Meßwerte vom Mittelwert 3% nicht überschreiten und damit in derselben Größenordnung liegen wie der statistische Fehler.

## 2.10 Hülsenmonitor

### K. Baumung

In der WAK soll ein Hülsenmonitor aufgestellt werden, dessen Aufgabe es ist, den Restgehalt an Spaltstoff in den ausgewaschenen Brennstabstückchen zu bestimmen. Im Institut für Neutronenphysik und Reaktortechnik wurden dazu ein Meßverfahren ausgewählt, ein Gerät konzipiert und Probemessungen durchgeführt. Da Spaltbarkeit und damit das Auftreten von Neutronen ein eindeutiges Indiz für Spaltstoff darstellt, bietet sich die Methode der verzögerten Neutronen an<sup>19</sup>. Jedoch liefert der Spaltstoff bei einem Abbrand von mehr als 20 000 MWd/to wegen seines Gehalts an  $^{242}\text{Cm}$  und  $^{244}\text{Cm}$  einen zu hohen Untergrund an Spontanspaltneutronen. Soll die Emissionsrate verzögerter Neutronen größer als dieser Untergrund

sein, so benötigt man einen Neutronengenerator mit einer Quellstärke von einigen  $10^{13}$  n/sec, während auf dem Markt befindliche Geräte  $10^{10}$  n/sec liefern.

Eine andere Möglichkeit besteht darin, eben diese Spontanspaltneutronen zu messen. Da der Aufbau des Cm aber stark vom Neutronenfluß abhängt, müßten Abbrand und Geschichte des Spaltstoffs sehr genau bekannt sein, um aus der Neutronenzählrate die Spaltstoffmenge zu bestimmen. Daher ist auch die passive Neutronenmessung ungeeignet.

Eine weitere Möglichkeit bietet die  $\gamma$ -Spektroskopie von Spaltbruchstücken. Man mißt z.B. die Aktivität des Spaltprodukts  $^{144}\text{Ce}$  über die  $\gamma$ -Strahlung des Tochterelementes  $^{144}\text{Pr}$ . Aus der Aktivität kann man über das auf chemischem Wege aus der Dissolverlösung bestimmte Verhältnis Ce/Spaltstoff die Masse des Spaltstoffs berechnen. Das Isotop  $^{144}\text{Ce}$  weist verschiedene Vorteile auf:

- große Spaltausbeute von etwa 5,4%,
- für den Bestrahlungs-Abkühlungsvorgang günstige Halbwertszeit von 284 d,
- mit einer  $\gamma$ -Energie von 2,18 MeV vergleichsweise gute Transmissions- und Diskriminierungseigenschaften.

Daher und wegen des apparativ einfachen Aufbaus wurde dieses Meßverfahren näher untersucht. Es hat zwei Hauptschwierigkeiten:

- 1) sehr hoher  $\gamma$ -Untergrund der Hülsen (überwiegend 0.76 MeV-Strahlung von  $^{95}\text{Zr}$ - $^{95}\text{Nb}$ ),
- 2) für die Behälterabmessungen zu geringe Transparenz der  $\gamma$ -Strahlung.

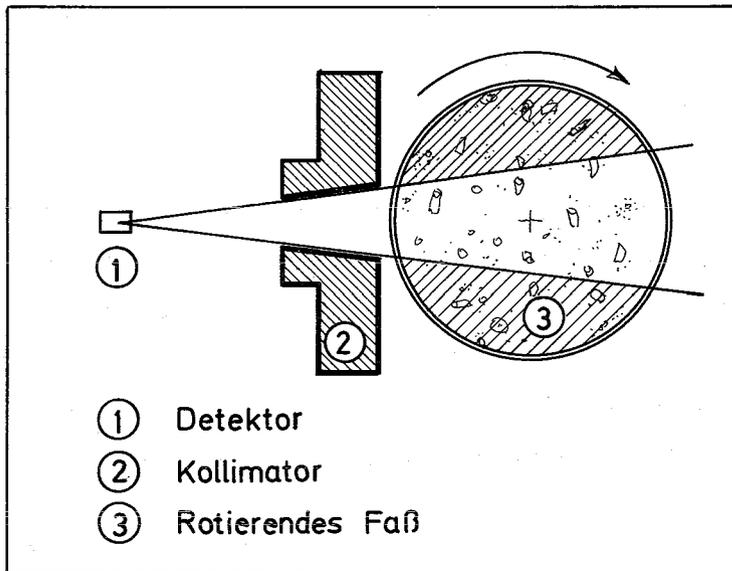


Abb. 2.10/1.

#### Prinzip der Rotations-Kollimation

Vom Prozeß her am günstigsten wäre es, die Messung unmittelbar am Dissolverkorb vorzunehmen, was aber wegen der Kontamination und Untergrundstrahlung durch Brennelemente in der head-end-Zelle nicht möglich ist. Daher müssen die Messungen an zylindrischen Fässern von 47 cm Durchmesser ausgeführt werden, in welche die Hülsen einbetoniert sind.

Durch einen 10 cm dicken Blei-Absorber vor dem Ge-Li-Detektor wird die Gesamtzählrate auf ein für die Elektronik erträgliches Maß reduziert. Gleichzeitig wird das höherenergetische Nutzsignal gegenüber dem Untergrund bevorzugt.

Auf welche Weise die Nachweisempfindlichkeit möglichst unabhängig vom Ort des Spaltstoffs im Faß gemacht werden kann, wird anhand von Abb. 2.10/1 erläutert.

Bei einem ruhenden Faß unterscheidet sich die Nachweiswahrscheinlichkeit für Spaltstoff auf der dem Detektor zugewandten gegenüber der dem Detektor abgewandten Faßoberfläche um einen Faktor 130. Bei einem rotierenden Faß ist die Empfindlichkeit für Material an der Oberfläche um einen Faktor 5 größer als für Material in der Faßmitte. Läßt man das Faß vor einem Spaltkollimator rotieren, so tragen auch die Randschichten nur während des Durchgangs durch das schmale Fenster zur Zählrate bei, die Faßmitte dagegen bleibt während der ganzen Umdrehung für den Detektor sichtbar.

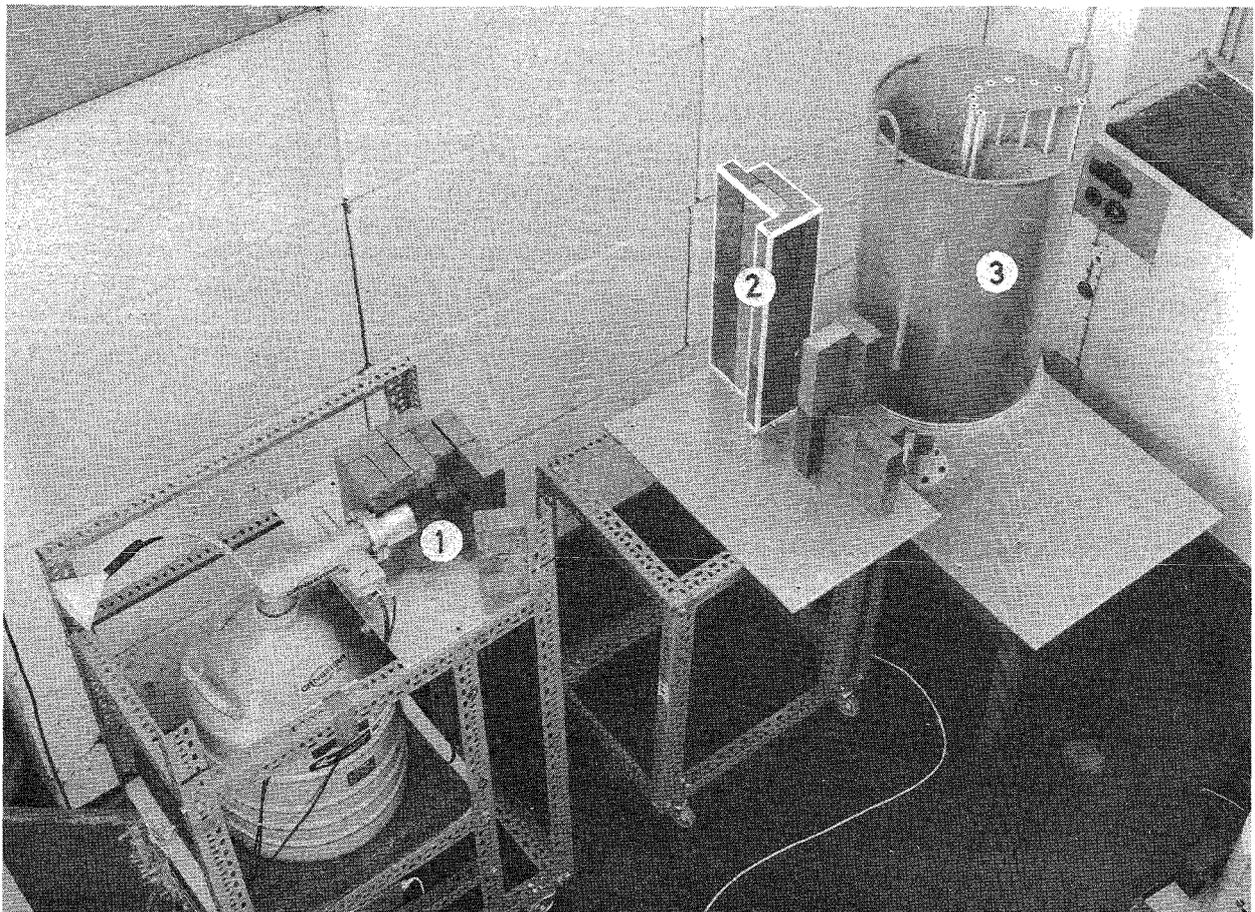


Abb. 2.10/2

Hülsenmonitor: Versuchsaufbau

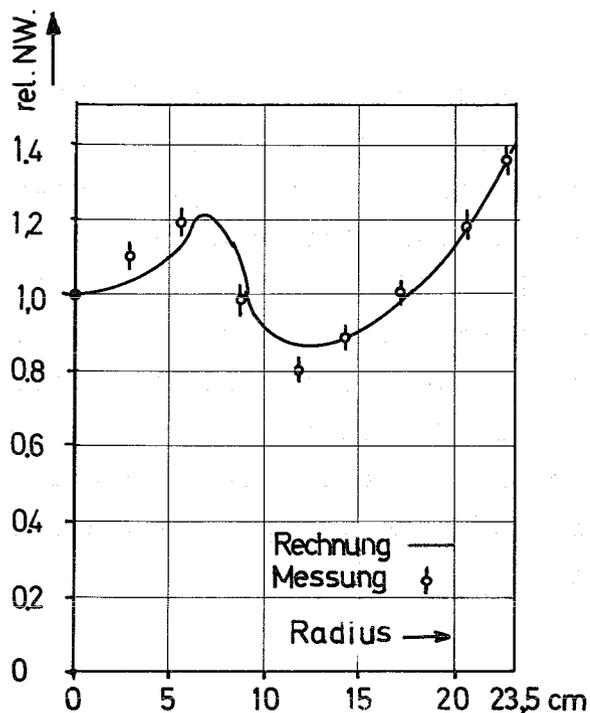


Abb. 2.10/3.

Relative Nachweiswahrscheinlichkeit als Funktion des Orts des Spaltstoffs

Durch dieses Meßverfahren, Rotationskollimation genannt<sup>20</sup>, reduziert sich die Ortsabhängigkeit beträchtlich. Die Zählrate des Detektors in Abhängigkeit vom Ort des Spaltstoffs im Faß wurde für verschiedene Abstände und Kollimatoröffnungen berechnet und die optimale Geometrie bestimmt. Diese liegt bei einem Abstand Faß-Detektor von 3 m und einer Kollimatorbreite von 15 cm an der Faßoberfläche. Zur Überprüfung der Rechnung wurden Messungen durchgeführt. Dazu wurde ein Faß der Originalabmessungen mit einer Mischung aus Sand und Bleischrot gefüllt, so daß das Material die gleichen  $\gamma$ -Absorptionseigenschaften wie die vergossenen Hülsen hatte. In verschiedene radiale Abstände konnte ein  $^{144}\text{Ce}$ -Präparat eingesetzt werden.

Abb. 2.10/2 zeigt die Meßanordnung, wobei für die Photographie der Abstand Faß-Detektor verkürzt und ein Teil der Bleiabschirmung entfernt wurden. Messung und Rechnung stimmen sehr gut überein, wie aus Abb. 2.10/3 ersichtlich ist.

Ein schwieriges Problem stellt die Eichung dar, da die Schwächung der  $\gamma$ -Strahlung stark von Dichte und Zusammensetzung des Materials im Faß abhängt. Normalerweise wird zur Kalibrierung eine Transmissionsmessung mit einem  $\gamma$ -Präparat der gleichen oder einer ähnlichen Energie durchgeführt. Wegen des 10 cm dicken Bleifilters würde man dazu aber eine Quelle von ca.  $10^3$  Ci benötigen. Daher kann die Eichung nur durch die Messung an Faßattrappen mit inaktiven Hülisen erfolgen, welche über eine Dichtemessung auf die aktiven Fässer übernommen wird.

Erste Probemessungen mit aktiven Fässern von FR-2 Brennelementen wurden bei ADB durchgeführt. Sie dienten zur Funktionsprüfung der Apparatur, die Geometrie war nicht genau definiert. Daher war nur eine grobe Mengenbestimmung möglich. Es ergab sich ein Urangehalt von 200 g bis 800 g im Faß.

## 2.11 Kalorimetrie

### C. Weitkamp

Die praktischen Arbeiten zur kalorimetrischen Bestimmung von Plutonium bei der Firma ALKEM lagen im Jahre 1971 schwerpunktmäßig auf der Implementierung des Datenaufnahme- und -auswertesystems mit einem Kleinrechner und auf Konstruktionsarbeiten für ein Großkalorimeter.

Zur rechnergestützten Durchführung kalorimetrischer Plutoniummessungen wurden zunächst die Datenaufnahme- und -auswerteprogramme für den kalorimetrischen Teil der Messung erstellt. Das System gestattet jetzt automatische kalorimetrische Messungen am Kilo-Kalorimeter und am Plättchen-Kalorimeter<sup>1</sup>. Gleichzeitig ist es möglich, mit dem System die Neutronenkoinzidenzmessung für die

$^{240}\text{Pu}$ -Bestimmung durchzuführen, wie sie mit dem Kilo-Kalorimeter gemacht werden können, und die Meßdaten iterativ nach der Plutoniummenge aufzulösen. Da auch für das Großkalorimeter eine derartige Einrichtung vorgesehen ist, kann das Programmsystem bei Bedarf direkt für die Messungen mit dem Großkalorimeter übernommen werden.

Die Konstruktion eines Großkalorimeters für ganze Reaktor-brennelemente basiert auf den mit den kleineren Geräten gesammelten Bau- und Betriebserfahrungen. Im Jahre 1971 wurde ein Teil der Konstruktionsunterlagen fertiggestellt. Die Entscheidung für die Verwendung neuartiger, die Konstruktion stark vereinfachender Thermoelemente wurde erst getroffen, nachdem Ergebnisse ausführlicher Tests über Einstellzeit, Empfindlichkeit und Reproduzierbarkeit vorlagen<sup>21</sup>. Die Entscheidung über den Bau des Geräts wurde jedoch noch zurückgestellt, bis ein vom Bundesministerium für Bildung und Wissenschaft zu berufender Ausschuß sein Votum zu dieser Frage abgibt.

Weil die Frage nach der prinzipiell erreichbaren Genauigkeit kalorimetrischer Plutoniumbestimmungen bisher nicht untersucht worden ist, wurde im IAK eine Studie erstellt<sup>22</sup>, die aufzeigt, in welcher Weise Unsicherheiten in

- der Messung der Wärmeleistung mittels Kalorimeter,
- der Bestimmung der Isotopenzusammensetzung,
- der Kenntnis der nuklearen Konstanten für die spezifische Leistung, und
- der Zeit nach Abtrennung des Americiums

Tabelle 2.11/I.

Hauptfehlerkomponenten bei der kalorimetrischen Bestimmung von Reaktorplutonium mit drei verschiedenen Zusammensetzungen. Es bedeuten W Wärmel Leistungsmessung des Kalorimeters und  $P_i$  bzw.  $S_i$  Prozentgehalt bzw. spezifische Wärmeleistung der einzelnen Plutoniumisotope; der Index i kennzeichnet die letzte Ziffer der Massenzahl des Isotops. Die Voraussetzungen, insbesondere Annahmen über die Fehler der Materialzusammensetzung und der nuklearen Konstanten, sind in Ref. <sup>22</sup> ausführlich dargestellt.

Brennstoff	ALKEM 1968	Yankee V + VI, 1	Yankee V + VI, 16
Zusammensetzung in %			
Pu-238	0,041	0,289	1,228
Pu-239	90,517	85,050	69,309
Pu-240	8,265	10,294	16,337
Pu-241	1,113	4,011	10,853
Pu-242	0,064	0,356	2,274
Hauptfehlerkomponenten in %			
	W 0,25	$P_8$ 0,98	$P_8$ 1,74
	$P_8$ 0,22	W 0,25	W 0,25
	$S_0$ 0,17	$S_1$ 0,17	$S_1$ 0,19
	$S_1, S_9, P_0$ je 0,07	$S_0$ 0,13	$S_0$ 0,09
Gesamtfehler in %	0,40	1,05	1,80

in das Meßergebnis eingehen. Es zeigt sich, daß nur für Plutonium mit einem sehr geringen Anteil  $^{238}\text{Pu}$  die Messung der Wärmeleistung der begrenzende Faktor ist, daß hingegen für Reaktorplutonium meist die ungenügende Kenntnis der  $^{238}\text{Pu}$ -Konzentration die Genauigkeit begrenzt. In Tabelle 2.11/I sind die einzelnen Fehleranteile für drei typische Plutoniumzusammensetzungen, nach ihrer Größe geordnet, angegeben.

## 2.12 Personenschleuse

C. Weitkamp

Die Personenschleuse zur Überwachung von Personen auf mitgeführtes Plutonium war schon zu Beginn des Jahres 1971 fertiggestellt. Die Schleuse, von der zwei Exemplare gebaut worden waren, war während des ganzen Jahres 1971 bis zur Verlegung der Betriebsräume der Firma ALKEM von Leopoldshafen nach Wolfgang in Betrieb und lieferte in dieser Zeit eine Menge wertvoller Betriebserfahrungen. Die eigentlichen Arbeiten an der Schleuse beschränkten sich auf die Verbesserung von Details der Mechanik und der elektronischen Ausrüstung. Eine der beiden Schleusenkammern wurde als Demonstrationsstück auf der anlässlich der IV. Genfer Atomkonferenz in Genf veranstalteten Ausstellung kerntechnischer Geräte gezeigt.

## 2.13 Betrugsmengen-Rechnungen für zylindrische Brennstoffanordnungen

C. Weitkamp

Eine Frage, die bei jeder Art zerstörungsfreier Bestimmung von Kernbrennstoff auftritt, bei der Spaltmaterial (z.B. Plutonium) und thermisch nicht oder praktisch nicht spaltbares Material (z.B. abgereichertes Uran) gemeinsam in einem Brennelement vorhanden sind, ist die, wie eine inhomogene Verteilung der beiden Stoffe das Meßsignal beeinflusst. Der einfachste Fall ist der einer zylindrischen Anordnung, bei der der homogenen Mischung die inhomogenen Fälle (Spaltstoff innen, Brutstoff außen oder

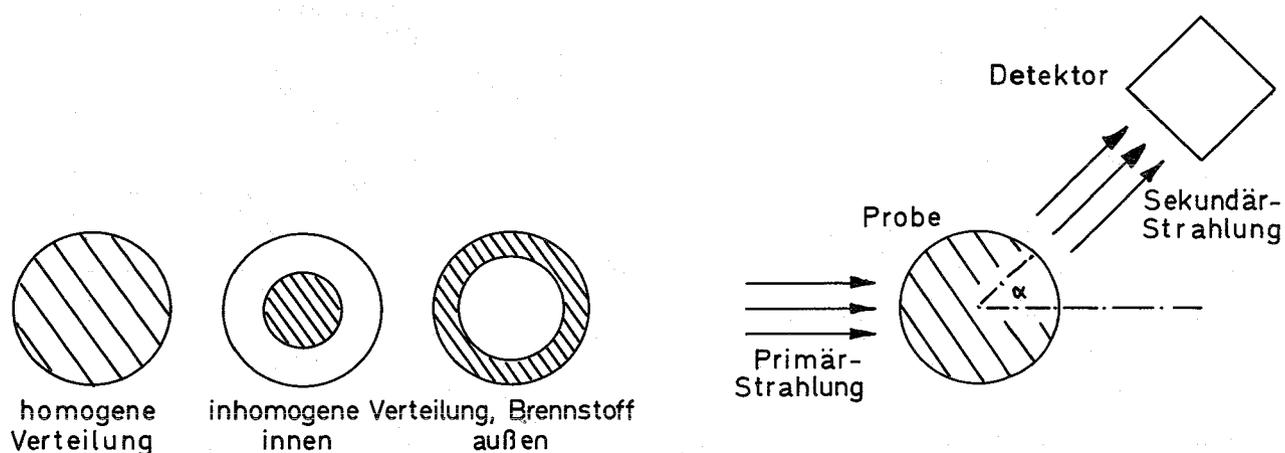


Abb. 2.13/1.

Beispiele für inhomogene Spaltstoffverteilungen (links) und den Rechnungen zugrundegelegte Geometriebedingungen (rechts)

umgekehrt) gegenüberstehen (siehe Abb. 2.13/1). Praktische Bedeutung kann der Fall eines Stabes erlangen, bei dem ein Kern aus Brutstoff von einer dünnen Hülle Spaltstoff umgeben ist.

Deshalb wurde ein Rechenprogramm erstellt, das für Zwei-Stoff-Anordnungen in Zylindergeometrie das Meßsignal berechnet. Statt der Änderung des Meßsignals im inhomogenen Fall gegenüber der homogenen Mischung läßt sich umgekehrt auch die Mehr- bzw. Mindermenge an Spaltstoff angeben, die bei inhomogener Verteilung dasselbe Meßsignal liefert wie die homogene Verteilung ("Betrugsmenge")<sup>23</sup>.

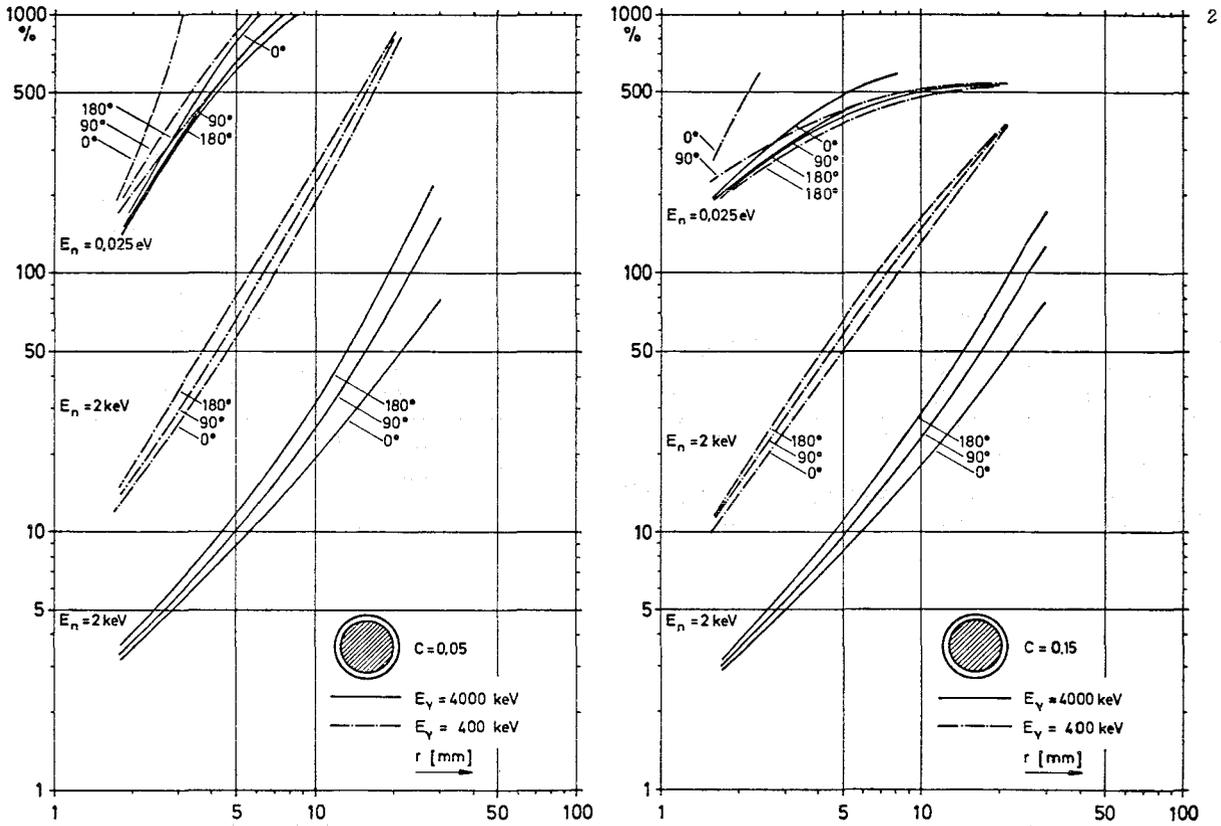


Abb. 2.13/2.

Betrugsmengen in Abhängigkeit vom Probenradius.

Variiert werden können Radius der Anordnung, Mischungsverhältnis und Dichte der beiden Stoffe, Absorptions- und Reaktionsquerschnitt der Primär-(induzierenden) Strahlung, Absorptionsquerschnitt der Sekundär-(induzierten) Strahlung und Winkel  $\alpha$ , unter dem der Detektor für Sekundärstrahlung in bezug auf den Primärstrahl angeordnet ist (siehe Abb. 2.13/1). Streuereignisse und Mehrfacheffekte werden vernachlässigt.

In Abb. 2.13/2 sind für  $^{239}\text{Pu}$  als Spaltstoff und  $^{238}\text{U}$  als Brutstoff und drei Winkelstellungen des Detektors

die Betragsmengen als Funktion des Brennstabradius wiedergegeben. Primärstrahlung sind Neutronen mit thermischer Energie bzw. 2 keV, Sekundärstrahlung Gammas von 0,4 und 4 MeV, die Plutoniumkonzentration im homogenen Stab beträgt 5% (linkes Bild) und 15% (rechtes Bild), und die Ordinate gibt die Menge Plutonium an, die durch Konzentration des Spaltstoffs im Zentrum dem Stab unbemerkt hinzugefügt werden kann, ausgedrückt in Prozenten der Plutoniummenge im homogenen Stab. Das Beispiel zeigt, daß 2 keV-Neutronen thermischen Neutronen stark überlegen sind und induzierte 4 MeV- $\gamma$ -Strahlung sich besser als 400 keV-Strahlung eignet, daß aber die höhere Neutronenenergie wichtiger ist als die höhere Energie der  $\gamma$ -Strahlung. Man erkennt ferner, daß die  $0^0$ -Stellung (Vorwärtsrichtung) bessere Ergebnisse liefert als die beiden anderen Stellungen, weil sich hier die Absorption von Primär- und Sekundärstrahlung zu kompensieren neigt. Bei sehr starker Absorption (wie im Falle thermischer Neutronen) gilt jedoch diese einfache Gesetzmäßigkeit nicht mehr, weil hier die Anordnung das beste Ergebnis liefert, bei der die absolute Schwächung der Sekundärstrahlung so klein wie möglich bleibt.

Literatur

- 1 G. Bork et al., Projekt Spaltstoffflußkontrolle - Jahresbericht 1970, KFK 1429 (1971)
- 2 A. von Baeckmann et al., Instrumented Nuclear Material Assay for Safeguards, A. CONF. 49/P/809 (1971)
- 3 F. Hille et al., Nondestructive Nuclear Material Assay, AED-CONF.-71-100-57 (1971)
- 4 P. Matussek et al., Studies of Gamma Rays from Thermal Neutron Interaction with Fissionable Isotopes, International Meeting on Nondestructive Measurement and Identification Techniques in Nuclear Safeguards, Ispra, 20-22 September 1971
- 5 H. Mausbeck, E. Ruppert, H. Krinninger, Automatisierte Bleispektrometeranordnung zur instrumentierten Spaltstoffflußkontrolle, INTAT-71.16 (1971), INTAT-71.24 (1971), INTAT-71.28 (1971)
- 6 H. Krinninger, E. Ruppert, A Slowing-Down-Time Spectrometer Plant Designed for Controlling the Flow of Fissile Material Automatically (ABSA), International Meeting on Nondestructive Measurement and Identification Techniques in Nuclear Safeguards, Ispra, 20-22 September 1971
- 7 H. Krinninger, E. Ruppert, Betriebserfahrungen mit der automatisierten Bleispektrometeranlage (ABSA) zur instrumentierten Spaltstoffflußkontrolle, Reaktortagung des Deutschen Atomforums / KTG, Hamburg, 1972

- 8 H. Krinninger, E. Ruppert, Entwicklung einer automatisierten Bleispektrometeranordnung zur instrumentierten Spaltstoffflußkontrolle (ABSA), Atomwirtschaft (1972) 199
- 9 J. Klunker, M. Lalovic, Assay of Fuel Pins and Fuel Elements with the Slowing Down Spectrometer, International Meeting on Nondestructive Measurement and Identification Techniques in Nuclear Safeguards, Ispra, 20-22 September 1971
- 10 P.H. Kier, A.A. Robba, RABBLE, A Program for Computation of Resonance Absorption in Multi-region Reactor Cells, ANL-7326 (1967)
- 11 M. Kühle, Slowing Down Spectrometer and Calorimetry Techniques for Safeguards, Trans. Am. Nucl. Soc. 14 (1971) 114
- 12 G.R. Keepin, Nondestructive Detection, Identification, and Analysis of Fissionable Materials, WASH-1076 (1967) 150-171
- 13 K. Baumung, K. Böhnel, M. Kühle, Fuel Element Assay with an Sb-Be Source, International Meeting on Non-destructive Measurement and Identification Techniques in Nuclear Safeguards, Ispra, 20-22 September 1971
- 14 R. Eberle, W. Krappel, D. Stegemann, Determination of  $^{235}\text{U}$  and  $^{232}\text{Th}$  in Spherical Fuel Elements Using Gamma Ray Counting, International Meeting on Non-destructive Measurement and Identification Techniques in Nuclear Safeguards, Ispra, 20-22 September 1971

- 15 T.D. Reilly, R.B. Walton, J.L. Parker, The "Enrichment Meter" - A Simple Method for Measuring Isotopic Enrichment, LA-4605-MS (1970) 19-21
- 16 W. Michaelis, C. Weitkamp, On the Potential of Advanced Gamma-Ray Spectrometers for Nuclear Material Assay, Research Coordination Meeting on Development of Gamma Spectrometry Instrumentation and Techniques for Safeguards, IAEA, Vienna, 30 August - 3 September 1971; KFK 1480 (1971)
- 17 J.E. Cline, Gamma Rays Emitted by the Fissionable Nuclides and Associated Isotopes, IN-1448 Rev. (1971)
- 18 C. Weitkamp, H. Ottmar, Memorandum zur Beschaffung eines Compton-Reduktors für Zwecke der Spaltstoffflußkontrolle; unveröffentlicht
- 19 K. Baumung, Bestimmung von Spaltstoff durch Messung verzögerter Neutronen, Externer Bericht der GfK-INR-4/71-32 (1970)
- 20 L. Parker, R.B. Walton, T.D. Reilly, A gamma-ray scanning system for assay of fifty-five gallon drums, LA-4457-MS (1970) 19
- 21 W. Linder, D. Schiel, Entwicklung von Geräten zur Spaltstoffflußkontrolle, alkem-SFKG-13 (1971)
- 22 C. Weitkamp, H. Beißwenger, V.W. Schneider, Accuracy of Calorimetric Plutonium Determinations, International Meeting on Nondestructive Measurement and Identification Techniques in Nuclear Safeguards, Ispra, 20-22 September 1971, KFK 1299 (1971)

- 23 H. Woda et al., Errors in the Assay of Inhomogeneous, Self-Absorbing Cylindrical Fuel Arrangements, International Meeting on Nondestructive Measurement and Identification Techniques in Nuclear Safeguards, Ispra, 20-22 September 1971



Kapitel 3: Direkte Verfahren

- 3.0 Einführung  
A. v. Baeckmann, IRCh
- 3.1 Serviceleistungen der Analytischen Gruppe des  
Instituts für Radiochemie  
A. v. Baeckmann, E. Gantner, E. Mainka, H. Ruf,  
alle IRCh
- 3.2 Entwicklung direkter Verfahren
- 3.2.1 Automatisierung der massenspektrometrischen  
Isotopenverdünnungsanalyse  
M. Wilhelmi, IRCh, B. Brandalise, F. Gerin,  
K. Kammerichs, L. Koch, M. Romkowski,  
Europäisches Institut für Transurane
- 3.2.2 Automatisierung der Uran- und Plutoniumkonzentra-  
tionsbestimmung durch Röntgenfluoreszenzanalyse  
J. Neuber, E. Gantner, A. v. Baeckmann, alle IRCh
- 3.2.3 Versuche zur emissionsspektroskopischen Isotopen-  
bestimmung in Kernbrennstoffen  
E. Mainka, H.-G. Müller, IRCh
- 3.2.4 Isotopenkorrelation der schweren Isotope und aus-  
gewählter Spaltprodukte  
A. Cottone, A. Cricchio, R. de Meester, L. Koch  
alle Europäisches Institut für Transurane
- 3.2.5 Sonstige analytische Verfahren  
A.H. Hawa, E. Mainka, W. Coerdt, W. König  
alle IRCh



## Kapitel 3.

### Direkte Verfahren

A.v.Baeckmann, Institut für Radiochemie, Kernforschungszentrum Karlsruhe

#### 3.0 Einführung.

Dieser Bericht schließt unmittelbar an den Jahresbericht 1970 des Projektes Spaltstoffflußkontrolle /1/ an, dessen Gliederung und Unternumerierung beibehalten wurde, jedoch wurde die Kapitelnummer von 6 nach 3 geändert.

An der Entwicklung direkter Verfahren zur Spaltstoffflußkontrolle und an der Ausführung von Serviceanalysen für das Projekt Spaltstoffflußkontrolle waren im Berichtszeitraum die Arbeitsgruppe Massenspektrometrie des europäischen Institut für Transurane und die Analytische Gruppe des Instituts für Radiochemie, der Gesellschaft für Kernforschung, beteiligt.

Die Serviceleistungen gingen im Jahre 1971 erheblich zurück und erstreckten sich vor allem auf Überwachungsmaßnahmen bei der Inbetriebnahme der WAK.

Die Schwerpunkte der Entwicklung direkter Verfahren liegen nach wie vor bei der Automatisierung einzelner Verfahren, insbesondere bei der Automatisierung der Massenspektrometrie und der Röntgenfluoreszenzanalyse. Während früher die Automatisierung dieser beiden Verfahren weitgehend unabhängig voneinander betrieben wurde, ergaben sich im Bereich der Probenahme nunmehr gemeinsame Interessen, die zu einer erheblichen Vereinfachung führten. Nach unseren gegenwärtigen Vorstellungen /2/ sollte die automatische Röntgenfluoreszenz unmittelbar - online - an den Wiederaufbereitungsanlagen untergebracht werden und schnell (innerhalb von ca. 30 Minuten) die Konzentrationswerte von Uran und Plutonium in allen Hauptströmen bestimmen. Eine kleine Teilprobe der für die röntgenfluoreszenzspektrometrische Analyse vorbereiteten Proben (nach Zusatz von Thorium als internen Standard) soll gleichzeitig abgeteilt und in einer Aluminiumkapsel eingetrocknet werden. Sie steht dann für eine spätere Prüfung der Meßergebnisse in einem Zentrallaboratorium durch massenspektrometrische Isotopenverdünnungsanalyse und zur Bestimmung der Isotopenzusammensetzung durch Massenspektrometrie zur Verfügung.

Literatur zu 3.

- /1/ Projekt Spaltstoffflußkontrolle Jahresbericht 1970, KFK 1429 (1971)  
S.103 ff
- /2/ Baeckmann A. von, L. Koch, J. Neuber, M. Wilhelmi  
SM-149/42 IAEA Wien 1971

3.1 Serviceleistungen der Analytischen Gruppe des Instituts für Radiochemie

A. v. Baeckmann, E. Gantner, E. Mainka und H. Ruf  
Institut für Radiochemie, Kernforschungszentrum Karlsruhe

Im Berichtszeitraum wurden für das Projekt Spaltstoffflußkontrolle die folgenden Serviceanalysen ausgeführt:

- 25 massenspektrometrische Isotopenbestimmungen von Thorium, Uran oder Plutonium
- 13  $\alpha$ -spektrometrische Pu-238-Bestimmungen
- 10 Plutoniumkonzentrationsbestimmungen in Abfallösungen
- 46 naßchemische Uran- bzw. Plutoniumkonzentrationsbestimmungen
- 10 Uran- bzw. Plutoniumkonzentrationsbestimmungen durch Röntgenfluoreszenzspektrometrie

Die angewandten Analysenmethoden sind im Jahresbericht 1970 (KFK 1429) ausführlich beschrieben worden. Außerdem wurden im Zusammenhang mit Untersuchungen zur Bestimmung der Lösungsmenge im Eingangsmeßtank einer Wiederaufbereitungsanlage zahlreiche Zinkkonzentrationsbestimmungen ausgeführt.

### 3.2 Entwicklungen direkter Verfahren

#### 3.2.1 Automatisierung der massenspektrometrischen Isotopenverdünnungsanalyse

M. Wilhelmi, Institut für Radiochemie

B. Brandalise, F. Gérin, K. Kammerichs, L. Koch, M. Romkowski,  
Europäisches Institut für Transurane

##### 3.2.1.1 Lagerfähigkeit der Proben

Um Proben bestrahlter Kernbrennstoffe unabhängig vom Ort und Zeitpunkt der Probenahme, evtl. in einem Zentrallabor analysieren zu können, sollen Aluminiumkapseln für ihre Aufbewahrung und den Transport dienen /1/.

Bei dieser Methode wird ein bekanntes Aliquot der verdünnten Probe in eine Aluminiumkapsel pipettiert und gewogen. Danach wird diese Probelösung in der Kapsel sorgfältig getrocknet und die Kapsel verschlossen. In dieser Form kann die Probe über einen längeren Zeitraum gelagert werden, ohne später die Analysen beeinflussende Veränderungen zu erleiden. Für die Analysen wird die Aluminiumkapsel mitsamt der Probe gelöst und dadurch sichergestellt, daß kein Probenmaterial verloren geht. Indikator kann nach demselben Verfahren aufbewahrt und zugegeben werden.

Untersuchungen an bekannten Proben sollten Auskunft über die Genauigkeit und Reproduzierbarkeit der Methode geben, sowie genaue Verfahrensbedingungen festlegen.

In einer Testreihe wurden zunächst im Rahmen der Mol-III-Experimente aus einer verdünnten Brennstofflösung (E-I) 4 Proben über die Aluminiumkapselmethode auf ihren Uran- und Plutoniumgehalt untersucht. Parallel dazu wurden auf konventionellem Wege direkte Bestimmungen aus der verdünnten Lösung durchgeführt. Die Ergebnisse sind in Tabelle 1 wiedergegeben. Wie die Fehlerberechnungen zeigen, ist besonders die Genauigkeit bei der Plutoniumbestimmung mit

± 2,16 % unzureichend. Die unbefriedigenden Ergebnisse wurden darauf zurückgeführt, daß anstelle der Originallösung nur eine verdünnte Lösung untersucht werden konnte und außerdem die Kapseln sehr dickwandig waren, sodaß in der Lösung ein Aluminium/Plutonium-Atomverhältnis von  $4 \times 10^7 \text{ Al} : 1 \text{ Pu}$  vorlag. Das Aluminium/Uran-Atomverhältnis mit  $2 \times 10^5 \text{ Al} : 1 \text{ U}$  war etwas günstiger und dadurch auch die Genauigkeit von 0,52 % wesentlich besser.

In einer zweiten Testreihe wurden Aliquote einer aufgelösten Probe des KRB-Gundremmingen Brennstoffes sowohl in 3 Aluminiumkapseln wie auch parallel eine Probe direkt aus der Lösung untersucht. Die Ergebnisse sind in Tabelle 2 wiedergegeben. Das Atomverhältnis Aluminium/Uran betrug hier  $1 \times 10^4 : 1$  und das Aluminium/Plutonium-Verhältnis  $3 \times 10^6 : 1$ . Hieraus erklären sich auch die weit besseren Ergebnisse. Die Abweichung von 1,28 % für Plutonium zwischen den Al-Kapseln und der Lösung ist nicht zufriedenstellend. Sie erklärt sich vielleicht aus der Tatsache, daß die Al-Kapseln erst einen Monat nach Analyse der Lösung hergestellt wurden. Eine zwischenzeitliche Abscheidung von Plutonium ist daher nicht auszuschließen.

### 3.2.1.2 Probenahme

Die ursprüngliche Konzeption des Probenahmesystems wurde vollständig verändert, nachdem Untersuchungen gezeigt haben, daß die Methoden der Probenahme für die massenspektrometrische Isotopenverdünnungsanalyse und für die Röntgenfluoreszenzanalyse, wie sie in /1/ Seite 118-20 und Seite 156 beschrieben sind, kombiniert werden können /2/.

Für diese Untersuchungen wurde davon ausgegangen, daß eine wesentliche Vereinfachung des Systems erreicht wird, wenn die gleichen Proben sowohl für die Röntgenfluoreszenzanalyse wie auch für die massenspektrometrische Isotopenverdünnungsanalyse verwendet werden. Darüber hinaus entfällt die quantitative Verdünnung, d.h.

die ursprünglich vorgesehenen genauen Wägungen von Probe und Verdünnungsmittel, da für die Röntgenfluoreszenzanalysen bereits den unverdünnten Proben ein interner Thorium-232-Standard zugesetzt wird, wodurch auch die Fehlerquellen entscheidend verringert werden. Der innere Standard gestattet bei Verwendung eines Triple-Spikes U-233/Pu-242/Th-230 anstelle des ursprünglich vorgesehenen U-233/Pu-242-Spikes die massenspektrometrische Bestimmung sowohl der Verdünnung als auch der Brennstoffkonzentration der Probenlösung. Um diese Lösungen für die massenspektrometrische Isotopenverdünnungsanalyse verwenden zu können, mußte zunächst ein Th-U-Pu-Trennungsgang ausgearbeitet werden, mit dem Ziel, sowohl störende Verunreinigungen zu entfernen, als auch aus unterschiedlichen Ausgangsmengen der drei Elemente ein Gemisch der Zusammensetzung zu erhalten, das optimale Meßsignale im Massenspektrometer gestattet.

Wie Abb. 1 und 2 zeigen, läßt sich bei der Abtrennung der störenden Komponenten am Anionenaustauscher auch der im allgemeinen in den Proben vorhandene Uranüberschuß (das übliche Verhältnis von U/Th/Pu beträgt 250/30/1) in Form des Nitratkomplexes an Dowex 1 x 8, 200-400 mesh durch 8 M  $\text{HNO}_3$  auswaschen, ohne daß Thorium oder Plutonium verloren geht. Man erhält eine Probenlösung in der die Komponenten Uran/Thorium/Plutonium ungefähr wie 1/30/1 vorliegen. In dieser Zusammensetzung können die Isotope der drei Elemente in einem Arbeitsgang nacheinander massenspektrometrisch gemessen werden. Abb.3 zeigt die Ionenströme der Elemente mit steigender Temperatur der Verdampfer- und Ionisierungsbändchen. Zunächst werden lediglich die einfach geladenen Uranionen beobachtet, bei höherer Temperatur erscheinen auch Plutonium- und  $\text{UO}^+$ -Ionen, und erst bei sehr hohen Temperaturen die Ionen aller drei Elemente, (Abb.3). Bei sorgfältiger Aufheizung wird es dadurch möglich, Störungen der U-238-Bestimmung durch Pu-238 zu vermeiden.

### 3.2.1.3 Automatisierung der Probenaufbereitung

Die chemische Probenaufbereitung wie sie in /1/ S.114 beschrieben wurde, mußte aufgrund der Thoriumzugabe bei der Probenahme geändert werden. Außerdem haben Untersuchungen zu wesentlichen Vereinfachungen geführt. So entfällt die  $\text{NaNO}_2$ -Zugabe, statt dessen wird  $\text{Pu-3+}$  durch bei der Verdampfung konzentrierte Salpetersäure oxidiert /3/.

Für die Reinigung am Anionenaustauscher wurde ein Prototyp /3/ des automatisch arbeitenden Ionenaustauscher-Gerätes fertiggestellt, wie auch bereits im /1/ S.114 beschrieben (s. Abb.4). Die für die automatisch arbeitende Probenaufbereitung noch fehlenden Teile sollen erst nach Erprobung und Inbetriebnahme des automatisch arbeitenden Massenspektrometers hergestellt und erprobt werden.

### 3.2.1.4 Das automatisch arbeitende Hochvakuumschleusensystem

Das in /1/ S.124 beschriebene Hochvakuumschleusensystem wird z.Zt. von einer Industriefirma hergestellt. Das Heizsystem wurde neu konzipiert, um die Vorausheizung auch nicht vollständig gefüllter Kassetten oder beim Ausfall einzelner Bändchen zu ermöglichen. Die Arbeiten an der Gesamtanlage wurden fortlaufend überwacht. Sie wird voraussichtlich im Juni 1972 fertiggestellt und erprobt.

### 3.2.1.5 Das automatisch arbeitende Massenspektrometer

#### A. Hardware

Die von der Fa. VARIAN-MAT, Bremen, gefertigte Hardware zur automatischen Steuerung, Messung und Auswertung der Analyseergebnisse des Massenspektrometers wurde bei der Herstellerfirma belassen, um die Ausarbeitung und Erprobung der hierfür

benötigten Software zu ermöglichen. Die Fa. MAT hat sich im Zusammenhang mit dem Softwareauftrag bereit erklärt, evtl. notwendige Änderungen an der bereits fertiggestellten Hardware kostenlos durchzuführen.

#### B. Software

Bei der Bestellung der Software zur Steuerung, Messung und Auswertung der Analysenergebnisse des automatisch arbeitenden Massenspektrometers, wie sie in /1/ S.128-30 beschrieben ist, ergaben sich Schwierigkeiten. Die Verhandlungen mit der Fa. MAT über Gewährleistungen, Rechte am Programm, Preise etc. konnten abgeschlossen werden. Die Software soll bis Ende März 1973 abnahmebereit sein.

#### Literatur zu 3.2.1

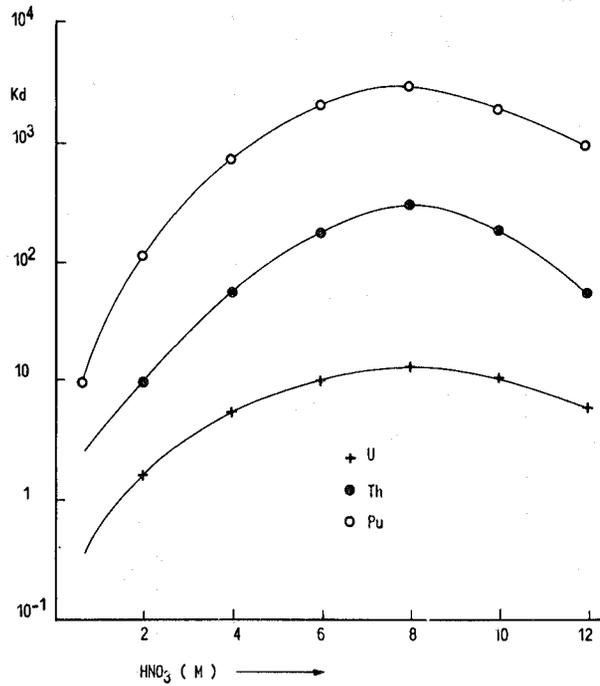
- /1/ Projekt SpFK, Jahresbericht 1970, KFK-1429 (1970) S.103 ff.
- /2/ Baeckmann A. von, L. Koch, J. Neuber, M. Wilhelmi; IAEA SM-149/42 (1971)
- /3/ Koch L., A. Cricchio, F. Gérin; IAEA SM-149/2 (1971)

Probenbezeichnung	Datum der Analyse	Konzentration (ug/g)		U/Pu Verhältnis
		U	Pu	
Kapsel 1	3.11.70	728.0	-	
2	2. 2.71	725.8	3.854	188.3
		729.1	3.795	192.1
3	2. 2.71	727.0	3.730	194.9
		729.7	3.717	196.3
4	3.12.70	735.0	3.844	191.2
		735.4	3.935	186.9
	Mittelwert	730.0 ± 0.52%	3.813 ± 2.16%	191.5
Comp.Sample E-I	13.10.70	724.4	3.791	191.2
(direkte Analyse)		724.9	3.818	189.7
	Mittelwert	724.7 ± 0.04%	3.805 ± 0.36%	190.3

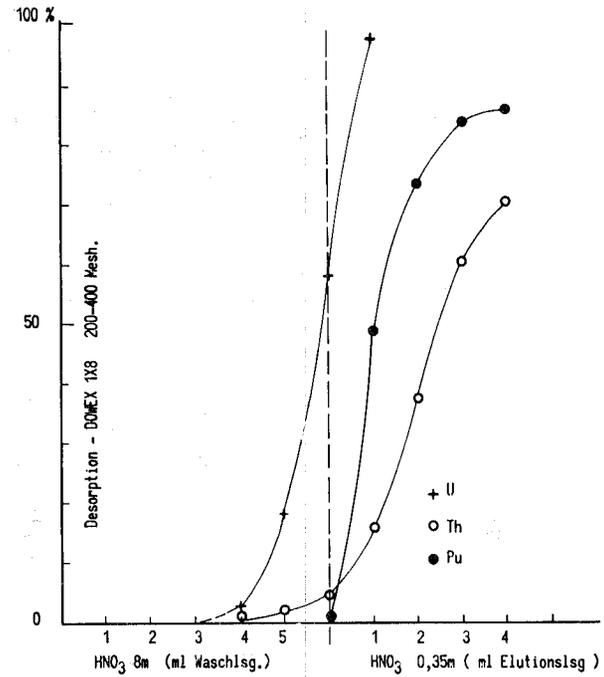
3.2.1 Tabelle 1 Analysenergebnisse aus vergleichenden Untersuchungen mit und ohne Aluminiumkapseln. Probe E-I.

PROBE	Konzentration (ug/g)	
	U	Pu
Alu Kapsel 1	440.6	3.20
	443.0	
Alu Kapsel 2	444.5	3.19
Alu Kapsel 3	443.8	3.19
	444.9	3.21
Mittelwert aller Kapseln	443.6 ± 0.34%	3.20 ± 0.16%
Ausgangslösung	445.0	3.27
	446.2	3.25
Mittelwert der Analyse	445.6 ± 0.19%	3.26 ± 0.43%
Prozentuale Abweichungen zwischen Resultate der Al-Kapseln und direkter Analyse	± 0.32%	± 1.28%

3.2.1 Tabelle 2 - Analysenresultate der verbesserten Alu-Kapseln mit Lösung einer Gundremmingen-Brennstoffprobe.

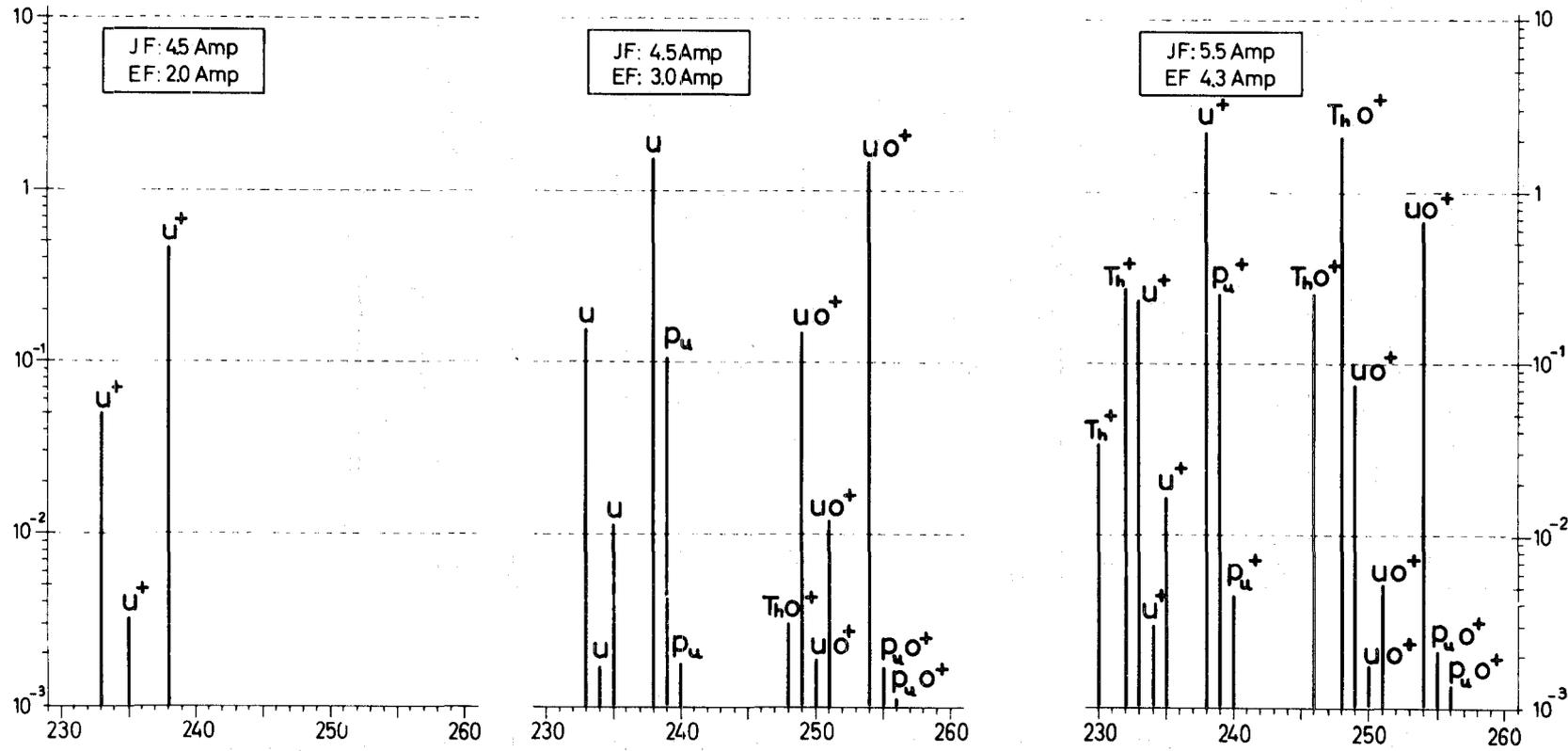


3.2.1 Abb.1: Absorptionsverhalten von U-VI, Th-IV und Pu-IV am Anionenaustauscher (DOWEX 1 x 8, 200-400 mesh) in Abhängigkeit von der Molarität der HNO<sub>3</sub>.

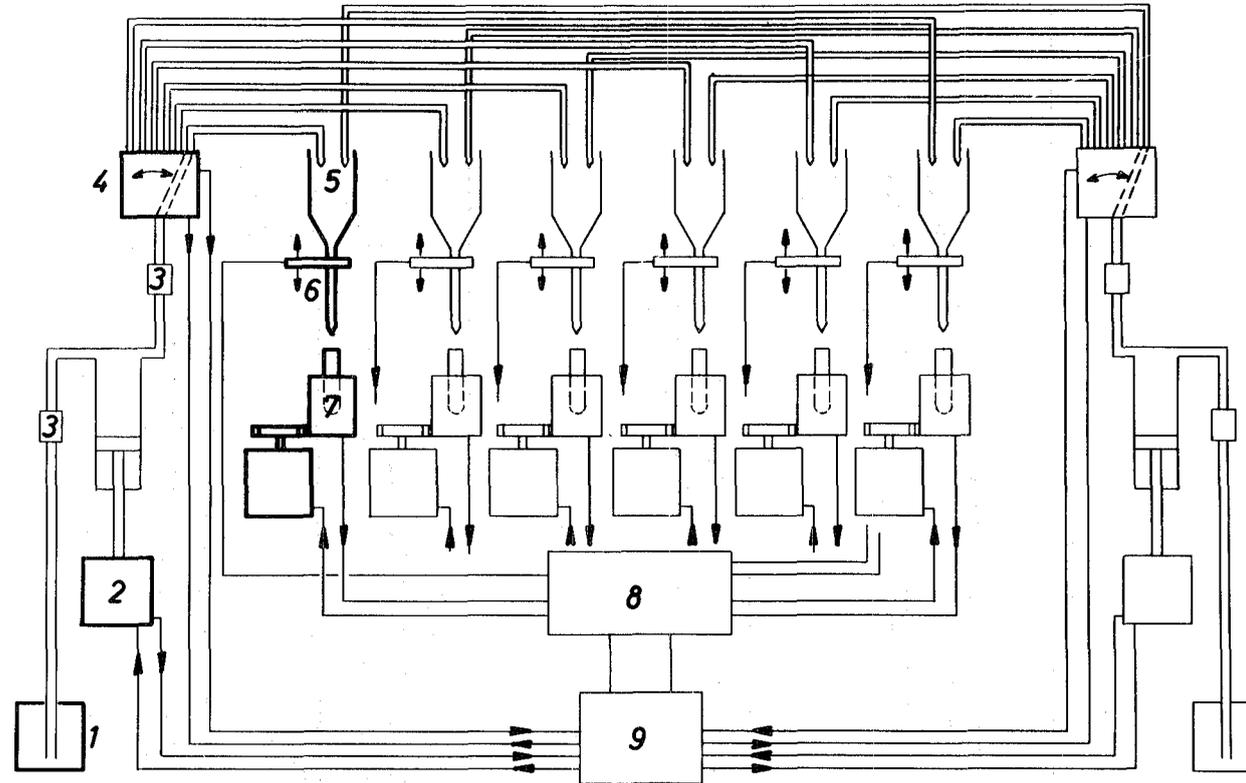


3.2.1 Abb.2: Desorptionsverhalten von U-VI, Th-IV und Pu-IV in Abhängigkeit von den Volumina einer 8 M HNO<sub>3</sub>-Waschlösung und nachfolgender 0,35 M HNO<sub>3</sub>-Elutionslösung.

Pu : U : Th  
1 : 23 : 70



3.2.1 Abb.3: Die Thermionenbildung von Metall- und Oxidionen des U, Pu und Th in Abhängigkeit vom Heizstrom des Ionisierungs- (IF) und des Verdampferbändchens (EF).



3.2.1 Abb.4: Automatisch arbeitendes Ionenaustauschergerät mit 6 parallel geschalteten Kolonnen für die U-Pu Trennung.

- 1: Vorratsgefäß für Waschflüssigkeit 2: Kolbenpumpe 3: Absperrventil 4: Sechswegventil  
5: Trennkolonne 6: Fotoelektrische Lichtschranke 7: Probensammler mit 5 Auffanggefäßen  
8: Programmierereinheit 9: Koordinierungseinheit

### 3.2.2 Automatisierung der Uran- und Plutoniumkonzentrationsbestimmung durch Röntgenfluoreszenzanalyse

J. Neuber, E. Gantner und A. von Baeckmann

Institut für Radiochemie, Kernforschungszentrum Karlsruhe

#### 3.2.2.1 Einführung

Die Kontrolle von Kernbrennstoffen - sei es aus wirtschaftlichen Gründen oder um ihren Mißbrauch zu nichtfriedlichen Zwecken zu verhindern - erfordert die Entwicklung von bedienungsfrei, zuverlässig, verfälschungssicher und ausreichend genau arbeitenden Analysenautomaten zur Bestimmung von Uran- und Plutoniumkonzentrationen in wässrigen Lösungen. Als ein besonders erfolgversprechendes Verfahren bot sich uns hierfür die Röntgenfluoreszenzspektrometrie an. Sie wird durch anwesende Fremdelemente kaum gestört, ist vom chemischen Zustand des zu bestimmenden Elements weitgehend unabhängig und kann automatisiert werden. In mehreren Kontrollexperimenten, ausgeführt in der Eurochemic Mol/Belgien, wurde eine für die Spaltstoffflußkontrolle hinreichend gute Genauigkeit für Uran- und Plutoniumkonzentrationsbestimmungen in hochaktiven Eingangs- und Feinproduktlösungen nachgewiesen /1/. Die Radioaktivität der Spaltprodukte in den Lösungen bestrahlter Kernbrennstoffe stört die Messung nachweislich nicht /2/.

Anfang 1970 begannen wir mit der Automatisierung des ganzen Systems. Bis September 1971 wurde ein erster Prototyp weitgehend fertiggestellt. Er ist in Abb. 1 wiedergegeben. Die Fotografie zeigt die Meßanordnung mit der vollautomatischen Probenvorbereitung (A) und dem Siemens-Sequenzspektrometer SRS-1 (B), welches unter der Box angeordnet ist. Die für den Betrieb der Röntgenröhre notwendige Hochspannung wird in einem auf der Abb. nicht sichtbaren Generator Typ K4 erzeugt. Eine Programmsteuerung (C) regelt den Ablauf der Probenvorbereitung. Steuer- und Zähl-



3.2.2.

Abb.: 1 , Meßanordnung

- A : Automatische Probenvorbereitung
- B : Spektrometer
- C : Programmsteuerung
- D : Steuerpult
- E : Fernschreiber

elektronik für das Spektrometer sowie ein Rechner sind im Steuerpult (D) untergebracht. Die Datenausgabe erfolgt über den Fernschreiber (E) links im Bild.

### 3.2.2.2 Grundsätzliches zur automatischen Probenvorbereitung

Für den zu beschreitenden Weg waren folgende Bedingungen gegeben:

- a) die erreichbare Meßgenauigkeit sollte durch die Art der Probenvorbereitung möglichst wenig beeinträchtigt werden.
- b) die Anlage sollte Eichproben selbständig herstellen und messen können.
- c) die Analysenrate sollte nur durch die reine Meßzeit bestimmt sein.
- d) als Konzentrationsbereich der Uran- und Plutoniumbestimmungen wurden 0,05 - 250 mg/ml vorgegeben.
- e) der Raumbedarf der Anlage sollte durch die Abmessungen einer serienmäßigen Box B 21 begrenzt sein.

Aus der angestrebten, vom Meßverfahren her gegebenen maximalen Genauigkeit ergab sich, daß mit einem "inneren Standard" - besonders geeignet ist Thorium - gearbeitet werden soll. Um einerseits die Impulsraten, besonders bei der Bestimmung von Plutonium, nicht unnötig zu erniedrigen, um möglichst lineare Eichkurven zu erreichen und um andererseits wegen der oft hohen  $\gamma$ -Aktivität der Proben mit möglichst wenig Probelösung auszukommen, muß der Meßbecherquerschnitt optimal gehalten und in "unendlich dicker Schicht" gemessen werden. Da der Konzentrationsbereich für Messungen guter Genauigkeit zwischen 0,05 - 5 mg/ml liegt, ist die Originalprobe gegebenenfalls bis zu 50fach zu verdünnen. Zur exakten Ermittlung der quantitativen Zusammensetzung der Meßprobe aus Originalprobe, Standardlösung und Verdünnungsmittel sollte zwischen allen Vermischungsvorgängen **g e w o g e n** werden. Querkontaminationen lassen sich am besten vermeiden, indem an geeigneten Stellen der Probenvorbereitung

alle mit den Analysenlösungen in Kontakt kommende Gefäße gegen saubere, neue Einwegteile ausgetauscht werden.

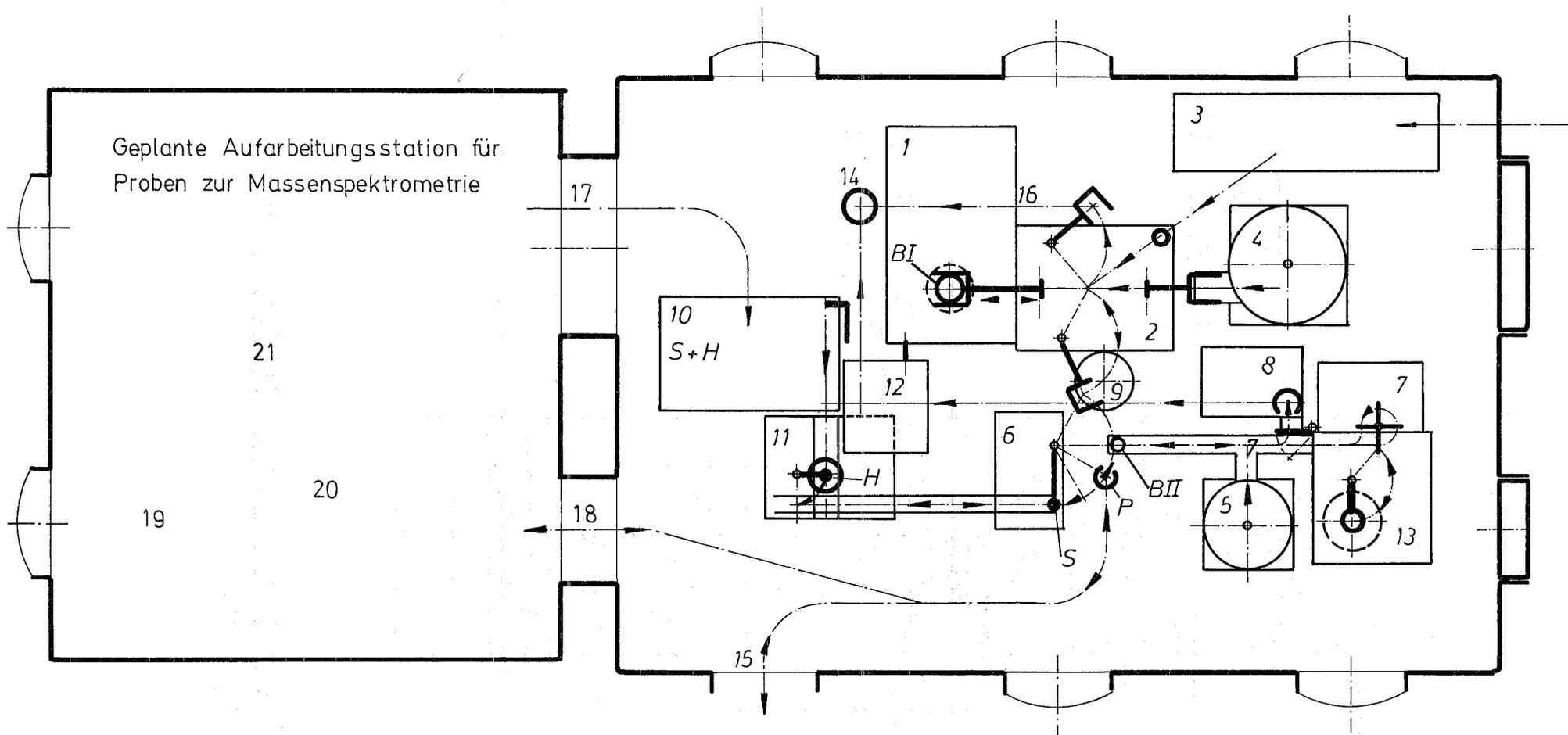
Zusammenfassend kann man sagen, daß die automatische Probenvorbereitung die konsequente Mechanisierung eines Handlungsablaufs darstellt, wie er im Handbetrieb als optimal erprobt wurde. Charakteristisch für die notwendigen ineinandergreifenden Vorgänge sind schnelles Erreichen und Einhalten günstiger Bewegungsgeschwindigkeiten, präzise Haltepunkte in End- und Zwischenlagen, gut dosierbarer Kraftaufwand, kürzeste Nachlaufzeiten der Antriebe und gute Justierbarkeit. Die Boxentechnik bringt die Forderung sorgfältiger Vorausplanung des Raumbedarfs für das Zusammenspiel aller Komponenten mit sich. Deshalb wurden für kurze Bewegungen Kleinpneumatik-Zylinder, für die übrigen Antriebe dichtgekapselte Synchrontriebmotoren gewählt.

### 3.2.2.3 Beschreibung der automatischen Probenvorbereitung

Zur Messung der Probe ist es erforderlich, daß zu einer definierten Menge der Originalprobe eine bekannte Menge Thorium oder Yttrium als innerer Standard zugesetzt und mit der Lösung homogen vermischt wird. Nach jedem Zusatz einer Lösung wird eine Wägung durchgeführt. In Abb. 2 sind der Grundriß, in Abb. 3 und 4 Fließbild und Materialfluß der automatischen Probenvorbereitung dargestellt. Die Abb. 5 - 17 zeigen die wichtigsten Einzelgeräte mit ihrem Bewegungsschema. Abb. 18 zeigt die vier verwendeten Einwegteile.

Die in folgender Beschreibung benutzte Symbolik bezieht sich auf Abb. 2:

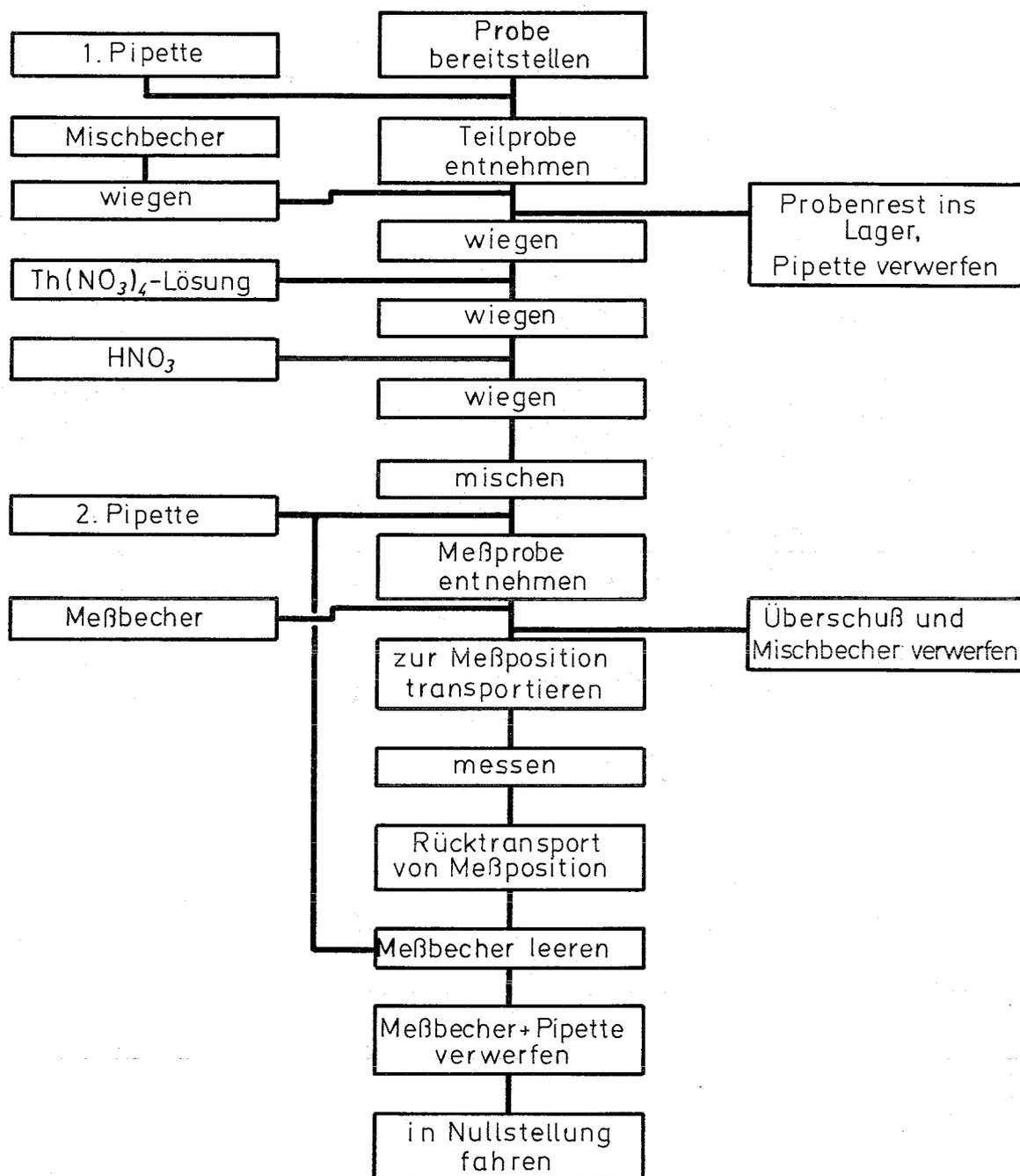
Der bei (15) in die Box eingebrachten Probe wird an der Stelle P mit einer Einmalpipette S aus dem Lager (10) und der Pipettiermaschine (6) eine Teilprobe entnommen. Diese wird in den vorher gewogenen Mischbecher BI aus dem Magazin (4) gegeben. Die Restprobe gelangt über (15) wieder in ein Lager. Mit dem Greifersystem (2) wird der Becher BI auf die elektronische Waage (1)



3.2.2

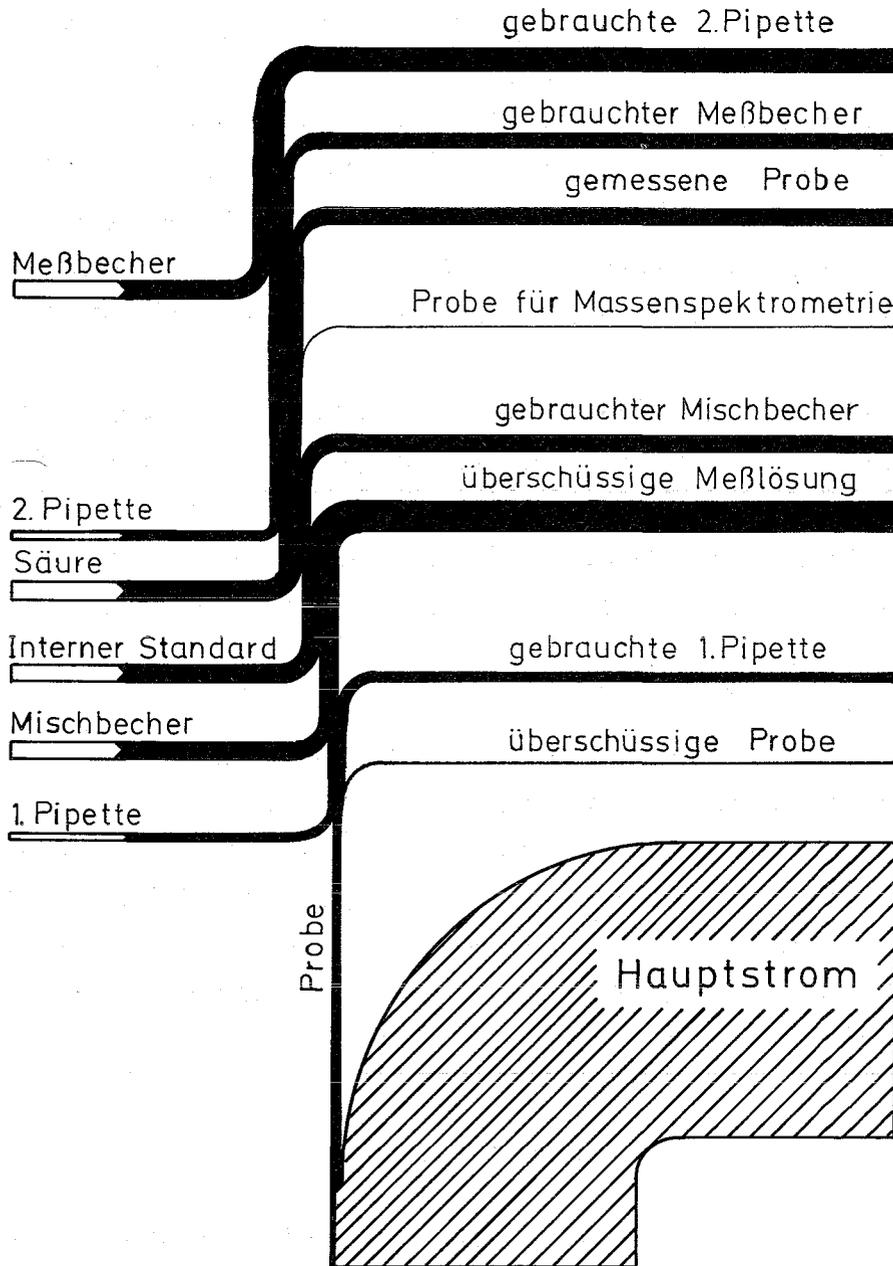
Abb.: 2 , Schematisierter Grundriss

- 1 Waage (Mettler H20E), 2 Greifersystem, 3 Dosierpumpen, 4 Magazin f. Mischbecher BI, 5 Magazin f. Meßbecher BII, 6 Pipettiermaschine, 7 Transportband mit Drehkreuz, 8 Becheraufzug, 9 Ausguß, 10 Magazin f. Pipetten S, 11 Lademaschine, 12 Stellantrieb, 13 Probenwechsler, 14 Fallrohr z. Abfallbehälter, 15 Zuführbahn f. Proben P, 16 Becheraufzug 2, 17 Weg f. neue Pipetten, 18 Weg f. Massenspektrometrie-Proben. 19 Magazin f. Al-Kapseln, 20 Verdampfer + Kapselverschleißer 21 Lager.



3.2.2

Abb.: 3 Fließbild der automatischen Proben-  
Vorbereitung.



3.2.2

Abb.: 4 Materialfluß

gestellt, deren Schaltgewichte mit dem elektrischen Stellantrieb (12) aufgelegt werden. Nach der Wägung wird der Teilprobe mit einer der 10 Dosierpumpen (3) eine bestimmte Menge einer geeichten Thoriumnitratlösung zugesetzt und erneut gewogen. Weitere Reagenzien oder verdünnte Salpetersäure können in gleicher Weise zugewogen werden. In entsprechender Art stellt die Anlage aufgrund vorgegebener Programme Eichproben (Standards) selbständig her. Nach Vermischen der Lösung wird mit einer neuen Pipette eine Meßprobe von ca. 4 ml in einen Meßbecher BII übertragen. Das Transportband (7) überführt diesen in den Probenwechsler (13), in dem die Messung erfolgt. Der Becher- und Pipettenvorrat reicht für ca. 50 Analysen.

Während der Meßzeit läuft ein neuer Vorbereitungsang ab und schon gemessene Proben werden getrennt nach Lösungen und Bechern durch die Geräte (8, 9, 6 und 16) in die Abfallager transportiert. Die Wiegedaten werden über ein Datentransfersystem von einem Teletype auf Lochband gestanzt und als Klartext ausgegeben.

Die Anforderungen an eine zugehörige Programmsteuerung können anhand des Blockschemas in Abb. 19 und der nachfolgenden tabellarischen Zusammenstellung der Einzelschritte ermessen werden. Eine zeitliche Durchrechnung des ca. 270 Schritte umfassenden Programms ergab, daß pro Stunde fünf Analysen einschließlich ihrer Messung abgewickelt werden können.

#### 3.2.2.4 Das automatische Spektrometer

Wie schon kurz erwähnt, besteht die Meßanordnung aus einem tabulatorgesteuerten Sequenzspektrometer Siemens-SRS 1, dessen Probenwechsler abgebaut wurde und das unter der Box mit der automatischen Probenvorbereitung steht. Das Prinzip der Anordnung mit dem Strahlengang im Spektrometer zeigt die Abb. 20.

Ein Röntgenerators (Kristalloflex K 4) liefert die Hochspannung für die Röntgenröhre. Das Spektrometer fährt die im Tabulator eingestellten Winkel automatisch an und integriert über eine vorgegebene Meßzeit. Die Zählraten werden über ein Interface von einem Fernschreiber auf Lochband und als Klartext ausgegeben.

Die Abb. 21 zeigt das Spektrum im Meßbereich bei sehr hohem Urangehalt in der Probe.

### 3.2.2.5 Das Rechenprogramm zur Ermittlung der Analysenwerte

Zur Zeit geben wir die Probenkennzeichnung, die Gewichte und die zu den verschiedenen Winkeln gehörigen Impulszahlen im ASC II - Code auf ein Lochband aus. Später sollen die bisher noch nicht automatisch ermittelten Wiegedaten über einen zweiten Fernschreiber auf einem getrennten Lochband erscheinen. Dies ist zur kompromißlosen Überlappung von Vorbereitungs- und Meßzeiten notwendig. Die Lochbänder werden über eine Datenstation (Siemens Transdata 8525-101) in die Rechenanlage IBM 360 des Kernforschungszentrums Karlsruhe eingelesen. Für die Auswertung wurde ein erstes Programm in Fortran IV geschrieben, dessen Fließbild im Jahresbericht 1970 auf Seite 161 wiedergegeben ist /3/. Das Programm umfaßt die Eingabe der Daten und ihre Zuordnung, die Aufstellung der Eichgeraden aus den Meßwerten der Standards, die Verarbeitung der Meßwerte der Analysenproben und Berechnung der Analysenresultate sowie deren Ausgabe. Sein Kernspeicherbedarf ist etwa 240 K. Die Rechenzeit einschließlich der Compilezeit beträgt ca. 10 Sekunden für maximal 6 Eichproben und bis zu 20 Analysenproben.

Die Eingabe erfolgt so, daß zunächst die Meßwerte des Spektrometers mit einer Kennung für jeden zusammengehörigen Datensatz eingegeben werden. Danach erfolgt die Eingabe der Gewichte und Standardkonzentrationen. Aus den Eingabedaten der Standards werden nach folgender Beziehung  $Q_{\text{korr}}$  - Werte errechnet:

$$Q_{\text{korr } x} = \frac{N_x}{N_s} \cdot C_s$$

$Q_{\text{korr}}$  = Korrigierter Q - Wert

$N_x$  = Nettoimpulsrate des zu bestimmenden Elements

$N_s$  = Nettoimpulsrate des inneren Standards

$C_s$  = Konzentration des inneren Standards

Die Standards werden nach steigenden  $Q_{\text{korr } x}$  - Werten geordnet.

Nach Errechnen des  $Q_{\text{korr}}$  - Wertes jeder einzelnen Analysenprobe berechnet das Programm aus den drei jeweils am nächsten liegenden  $Q_{\text{korr } x}$  - Werten der Standards eine "beste" Eichgerade sowie deren Standardabweichung und setzt dann den  $Q_{\text{korr}}$  - Wert der Analysenprobe in die Gleichung ein.

Abschließend werden die Bezeichnung, alle Standardparameter, die  $Q_{\text{korr } x}$  - Werte der Standards sowie die Eingabeparameter, die  $Q_{\text{korr}}$  - Werte und die berechneten Uran- und Plutoniumkonzentrationen mit deren Standardabweichungen für die Analysenproben ausgegeben.

Tab. 3.2.2.1 Programmablauf

Teilprogramm 1: Waage auf Becherleergewicht

Schritt	Gerät	Position	Laufzeit
1	PW-Schaltwerk	nullst.	1 sec
2	Programm	Leergw.	1
3	PW-Schw.	TEL, TZ1	1
4	"	Hochzählen	25
5	"	TEo, TZo	1
6	"	Stellfreigb.	1
7	Stellantrieb	stellen	3
8	PW-Schw.	Stellfreigb.0	1
9	"	Zählmagnt. 0	1

Teilprogramm 2.1: 1. Pipette bereitstellen

1	Lademaschine	H 0-1-0	4,6
2	Magazin	As	1
3	Klemme	K1 1	2
4	Aufrichter	E 1-2	1,5
5	H-D-Schlitten	$\bar{A}$ 1-2	2,8
6	Spreizdorn	A 1	2
7	H-D-Schlitten	$\bar{A}$ 2-1	2,8
8	"	$\bar{A}$ 1-2	2,5
9	"	$\bar{A}$ 3-4	2,8
10	Spreizdorn	A 0	2
11	H-D-Schlitten	$\bar{A}$ 4-3	2,8
12	Zugschlitten	G 1-2	3
13	Pipettiermaschine	P 2	8

Teilprogramm 2.2: 2. Pipette bereitstellen

1-13 identisch mit Teilprogramm 2.1

Teilprogramm 3: Mischbecher wiegen und Transport nach C1

Schritt	Gerät	Position	Laufzeit
1	Greifersystem	A,G2	2 sec
2	Magazin	AS	2
3	Greifersystem	A,G1	2
4	"	A 1-2	10
5	"	B,G2	2
6	"	B 1-2	10
7	"	B,G1	2
8	"	A,G2	2
9	"	B 2-1	10
10	"	A 2-1	10
11	"	B,G2	2
12	Warten		6
13	H 20 E	entartet.	2
14	Warten		4
15	Auslesesignal		1
16	(Zusatzzeichen)		1
17	H 20 E	arret.	2
18	Greifersystem	B,G1	2
19	"	B 1-2	10
20	"	C,G2	2
21	"	C 1-2	5
22	"	C,G1	2
23	"	B,G2	2
24	"	B 2-1	10
25	"	C 2-1	5
26	"	B,G1	2
27	"	A,G1	2

Teilprogramm 4: Probenahme, Überführen nach Cl

Schritt	Gerät	Position	Laufzeit
1	15	1-2	sec
2	Pipettiermaschine	P 2	8
3	"	R 1-2	1
4	"	H T-M	6
5	"	R 2-3	1
6	"	H M-T	6
7	Dosierpumpe	1-5 ml	12,5 maximal
8	Druckausgleich		8
9	Pipettiermaschine	H T-M	9,5
10	"	R 3-5	3,2
11	"	H H-M	3,5
12	Membranpumpe	MP 2	15
13	Pipettiermaschine	H M-H	3,5

Teilprogramm 5: E auf Probengewicht

1	Programm	Probenvol.	1
2	PW-Schw.	TE 1	1
3	pumpen		
4	PW-Schw.	TE 0	1
5	"	Stellfrei	1
6	Stellantrieb	Stellen	5
7	PW-Schw.	Stellfrei 0	1
8	"	ZM nullst.	1

Teilprogramm 6: Probe wiegen

1	H 20 E	entartet.	2
2	warten		4
3	Auslesesignal		1
4	Zusatzzeichen		1
5	H 20 E	arret.	2
6	Greifersystem	B, G2	2

Teilprogramm 7: Probe auf Waage (Transport C1-B1)

Schritt	Gerät	Position	Laufzeit
1	Greifersystem	C 1-2	5
2	"	B,G2	2
3	"	B 1-2	10
4	"	B,G1	2
5	"	C,G2	2
6	"	C,2-1	5
7	"	C,G1	2
8	"	B 2-1	10
9	"	B,G2	2

Teilprogramm 8: Zusatz des inneren Standards

1	Programm	Standd.gw.	1
2	Greifersystem	B 1-2	10
3	"	S 1-2	5
4	Rücklaufquetsche	Q2	2
5	PW-Schw.	TE 1	1
6	DP		(8)
7	PW-Schw.	TE 0	1
8	"	Stellfrei 1	1
9	Stellantrieb	Stellen	4
10	PW-Schw.	Stellfrei 0	1
11	Rücklquw.	Q 1	2
12	Greifersystem	S 2-1	5
13	"	B 2-1	10
14	"	B,G2	2

Teilprogramm 9: Wiegen mit innerem Standard

Schritt	Gerät	Position	Laufzeit
1	warten		6
2	H 20 E	entartet.	2
3	"	warten	4
4	Auslezesignal		1
5	(Zusatzsignal)		2
6	H 20 E	arret.	2
7	PW-Schw.	ZM 0	1
8	Greifersystem	B,G1	2

Teilprogramm 10: Zusatz Verdünnungsmittel

1	Programm	Vol. Verd.	1
2	Greifersystem	B 1-2	10
3	"	S 1-2	5
4	Rüchl.qu.	Q2	2
5	PW-Schw.	TE 1	1
6	DP		(100)
7	PW-Schw.	TE 0	1
8	"	Stellfrei 1	1
9	Stellantrieb	Stellen	5
10	PW-Schw.	Stellfrei 0	1
11	Rüchl.qu.	Q 1	2
12	Greifersystem	S 2-1	5
13	"	B 2-1	10
14	"	B,G2	2

Teilprogramm 11: Wiegen mit Verdünnung

Schritt	Gerät	Position	Laufzeit
1	warten		6
2	H 20 E	entartet.	2
3	warten		4
4	Auslezesignal		1
5	(Zusatzzeichen)		2
6	H 20 E	arret.	2
7	PW-Schw.	ZW nullst.	1
8	"	Stellfrei 1	1
9	Stellantrieb	nullst.	10
10	Greifersystem	B,G1	2
11	"	B 1-2	10

Teilprogramm 12: Mischen der angesetzten Meßlösung

1	Greifersystem	B,G2	2
2	"	MF 2	2
3	"	M 1	30
4	"	MF 1	2
5	"	B,G1	2

Teilprogramm 13: Überführen der Meßlösung nach C1

1	Greifersystem	C,G2	2
2	"	C 1-2	5
3	"	C,G1	2
4	"	B,G2	2
5	"	B 2-1	10
6	"	B,G1	2
7	"	C 2-1	5

Teilprogramm 14: Bereitstellen eines Meßbechers

Schritt	Gerät	Position	Laufzeit
1	Magazin	As 1	2
2	Band	BA 1	1
3	"	Ba 1	5
4	"	Ba 0	1

Teilprogramm 15: Überführen der Meßlösung in den Meßbecher

1	Membranpumpe	MP 2	
2	Pipettiermaschine	R 1-2	1
3	"	H T-H	9,5
4	"	R 2-5	4,2
5	"	H H-M	3,5
6	Membranpumpe	MP 1	20
7	Pipettiermaschine	H M-H	3,5
8	"	R 5-4	2,2
9	"	H H-T	9,5
10	Membranpumpe	MP 2	15
11	Pipettiermaschine	H T-M	6

Teilprogramm 16: Transport zum Probenwechsler

1	Band	BA 2	1
2	"	Ba 1	8
3	Drehkreuz	Kr 2-3	2,5
4	Band	Ba 0	1

Teilprogramm 17: Einfahren der Meßprobe in Probenwechsler

Schritt	Gerät	Position	Laufzeit
1	Probenwechsler	Ex 1-2	2
2	"	H H-M	19
3	"	Ex 2-1	2
4	"	H M-H	19
5	"	R 1-2	9
6	"	S 2-1	4,5
7	"	SS 1-2	2,5
8	"	H H-T	37
(9)	Startsignal	SRS-1	1

Teilprogramm 18: Leeren und Verwerfen des Mischbechers

1	Greifersystem	C 2-1	5
2	"	K 1-2	3
3	warten		3
4	Greifersystem	K 2-1	3
5	"	C 1-2	5
6	"	D,G2	2
7	"	D 1-2	3
8	"	D,G1	2
9	"	C,G2	2
10	"	C 2-1	5
11	"	C,G1	2
12	"	D 2-1	3
13	"	D,G2	2
14	"	D 1-2	3
15	"	D,G1	2
16	Becheraufzug	H 1-2	5
17	"	h 1-2	5
18	"	h 2-1	5
19	"	H 2-1	5
20	Greifersystem	D 2-1	3

Teilprogramm 19: Rücktransport aus der Meßposition

Schritt	Gerät	Position	Laufzeit
1	Probenwechsler	H T-H	37
2	"	SS 2-1	2,5
3	"	R 2-1	9
4	"	S 1-2	4,5
5	"	H H-M	19
6	"	Ex 2	2
7	"	H M-H	19
8	"	S 2-1	4,5
9	"	Ex 1	2
10-12	Drehkreuz	Kr 2-5	7,5
13	Band	BA 1	1
14	"	Ba 1	8
15	"	Ba 0	1
16	Pipettiermaschine	H M-T	6
17	Membranpumpe	MP 1	20
18	Pipettiermaschine	H T-H	9,5
19	Greifersystem	C 1-2	5
20	Pipettiermaschine	R 4-5	2,2
21	"	H H-W	4
22	Membranpumpe	MP 2	15
23	Pipettiermaschine	H W-H	4
24	"	R 5-2	4,2
25	"	H H-T	9,5
26	"	R 2-1	1
27	"	P 1	8

Teilprogramm 20: Abtransport der 2. Pipette

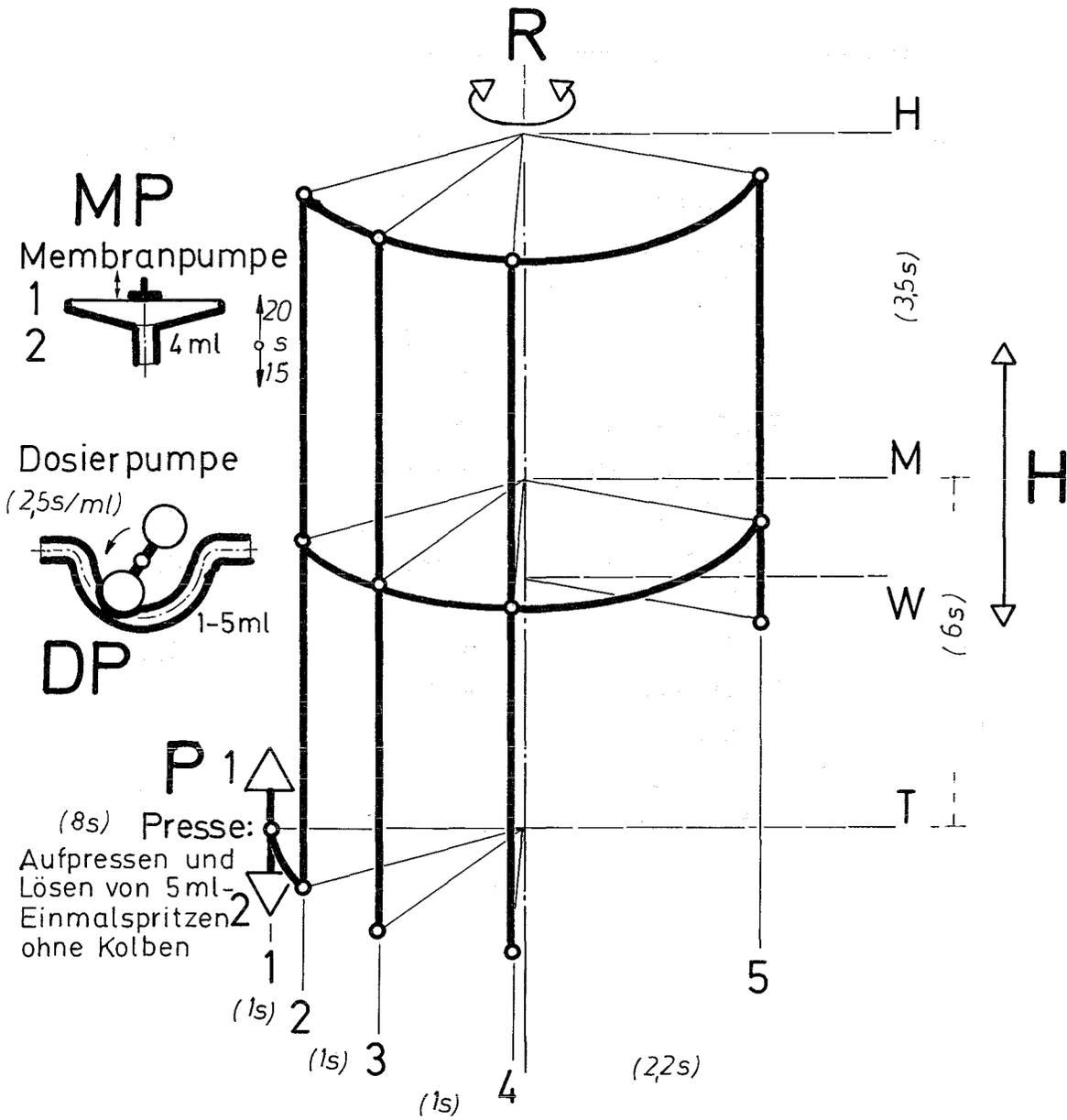
Schritt	Gerät	Position	Laufzeit
1	Zugschlitten	G 2-1	3
2	H-D-Schlitten	A 3-4	2,8
3	Spreizdorn	A 1	2
4	H-D-Schlitten	A 4-3	2,8
5	"	A 2-1	2,5
6	"	A 1-2	2,8
7	Spreizdorn	A 0	2
8	Klemme	KL 2	2
9	H-D-Schlitten	A 2-1	2,8
10	Aufrichter	E 2-1	1,5

Teilprogramm 21: Abtransport des Meßbechers

1	Weiche	W 2	2
2	Band	BA 2	1
3	"	Ba 1	7
4	"	Ba 0	1
5	Weiche	W 1	2
6	Aufzug	1-2	11
7	"	2-1	11

Teilprogramm 22: 1. Pipette verwerfen

Schritt	Gerät	Position	Laufzeit
1	Pipettiermaschine	R 5-2	4,2
2	Membranpumpe	MP 1	
3	Pipettiermaschine	H H-T	9,5
4	"	R 2-1	1
5	"	P 1	8
6	Zugschlitten	G 2-1	3
7	H-D-Schlitten	A 3-4	2,8
8	Spreizdorn	A 1	2
9	H-D-Schlitten	A 4-3	2,8
10	"	A 2-1	2,5
11	"	A 1-2	2,8
12	Spreizdorn	A 0	2
13	Klemme	KL 2	2
14	H-D-Schlitten	A 2-1	2,8
15	Aufrichter	E 2-1	1,5

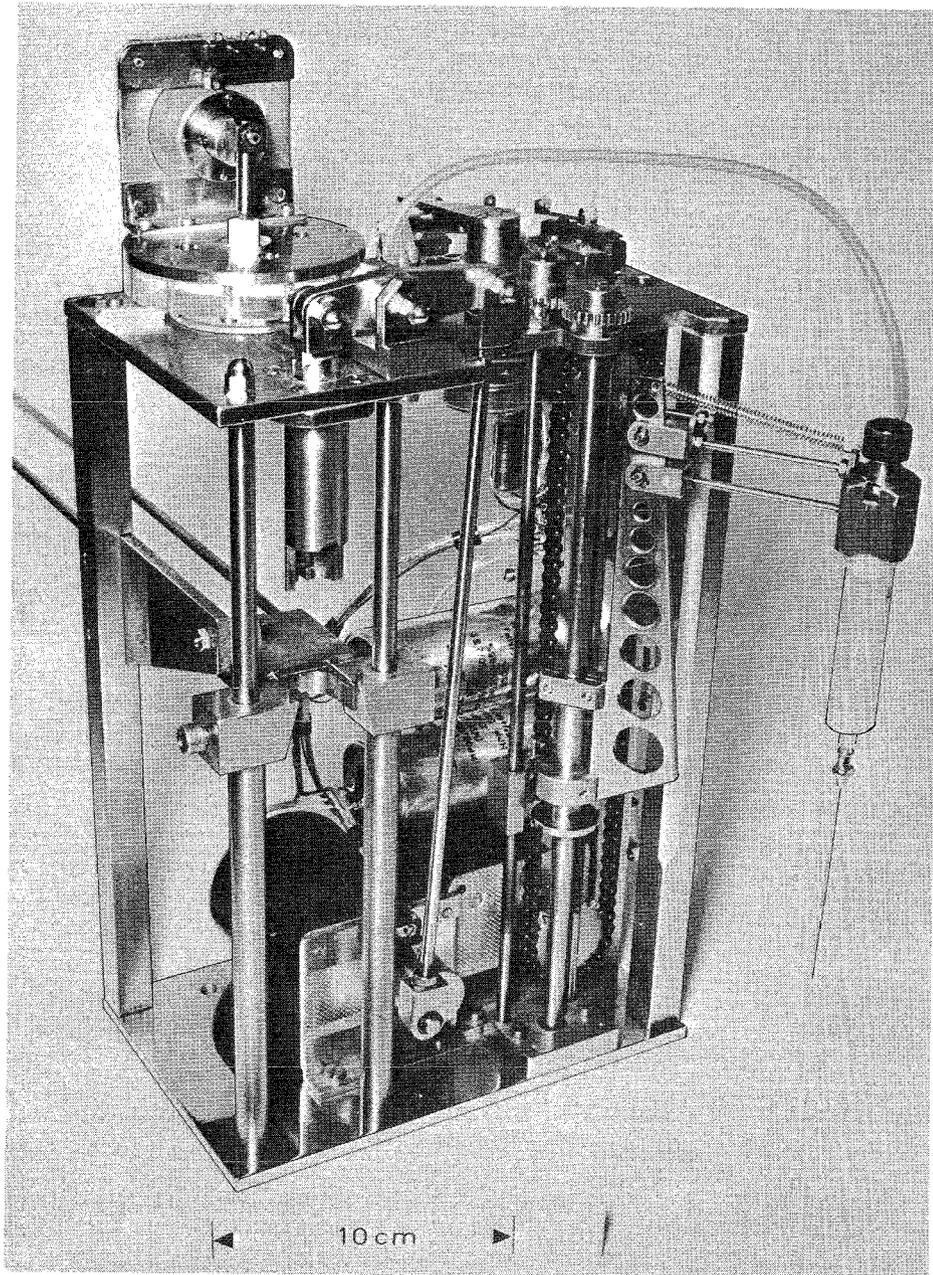


3.2.2

Abb. : 5

Pipettiermaschine

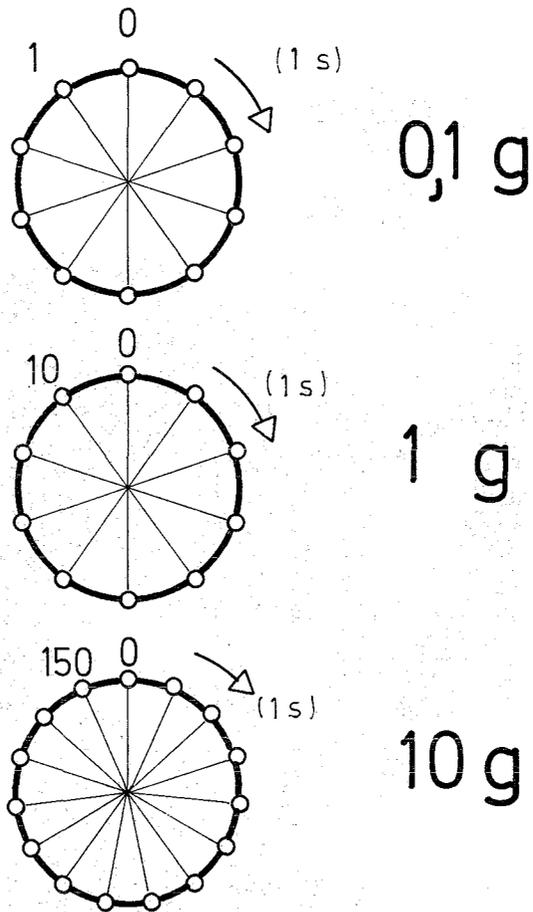
Bewegungsschema



3.2.2.

Abb.: 6

Pipettiermaschine

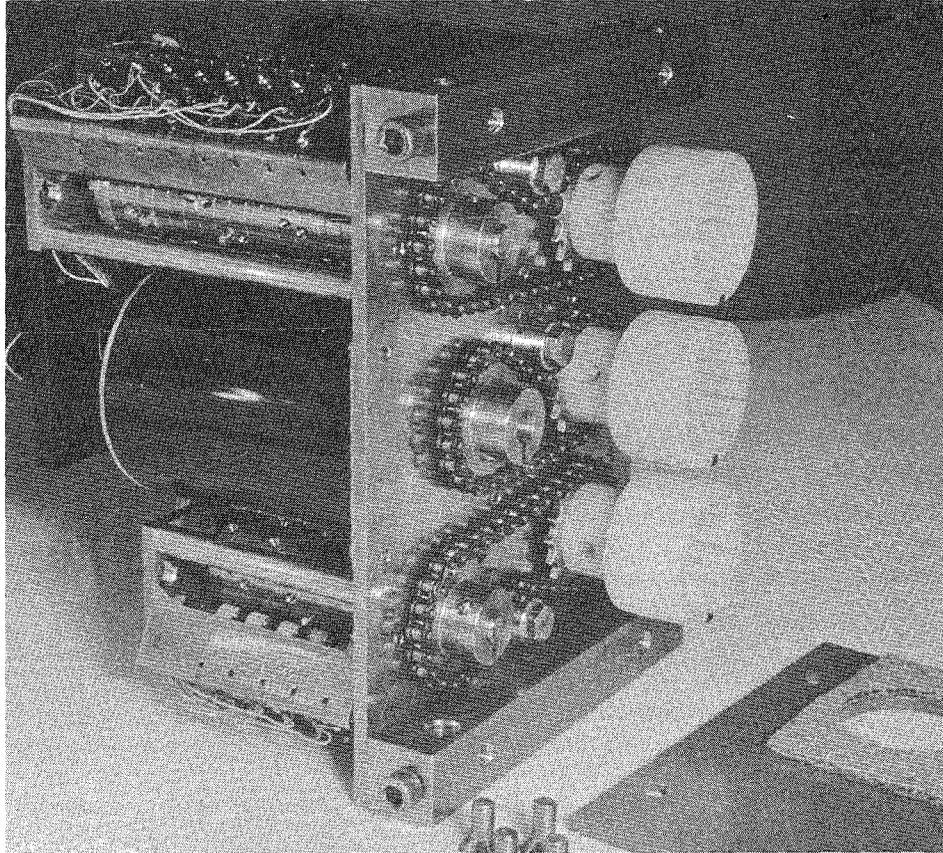


3.2.2.

Abb. : 7

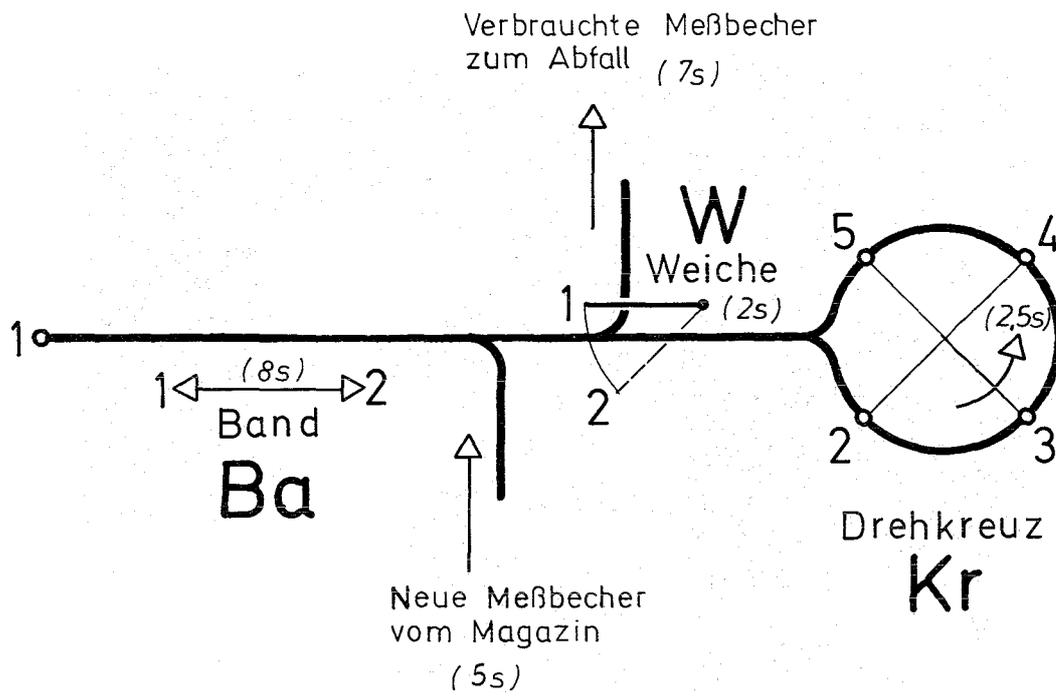
Stellantrieb

Bewegungsschema



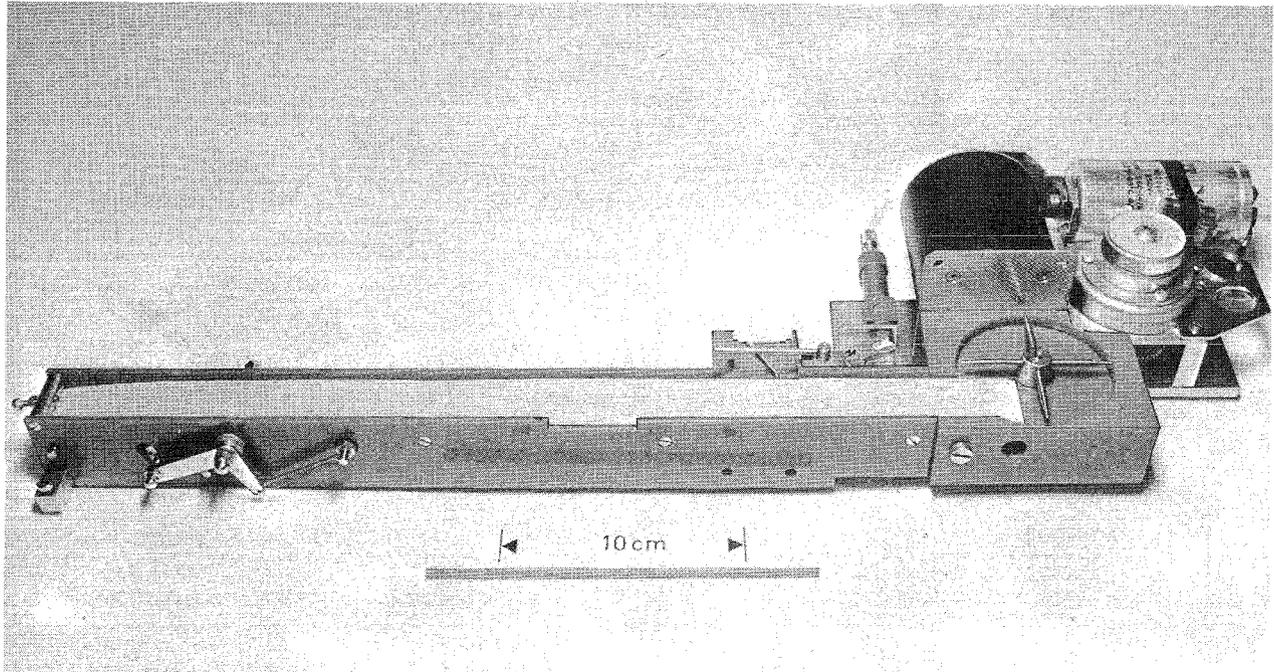
3.2.2.

Abb. : 8 Stellantrieb



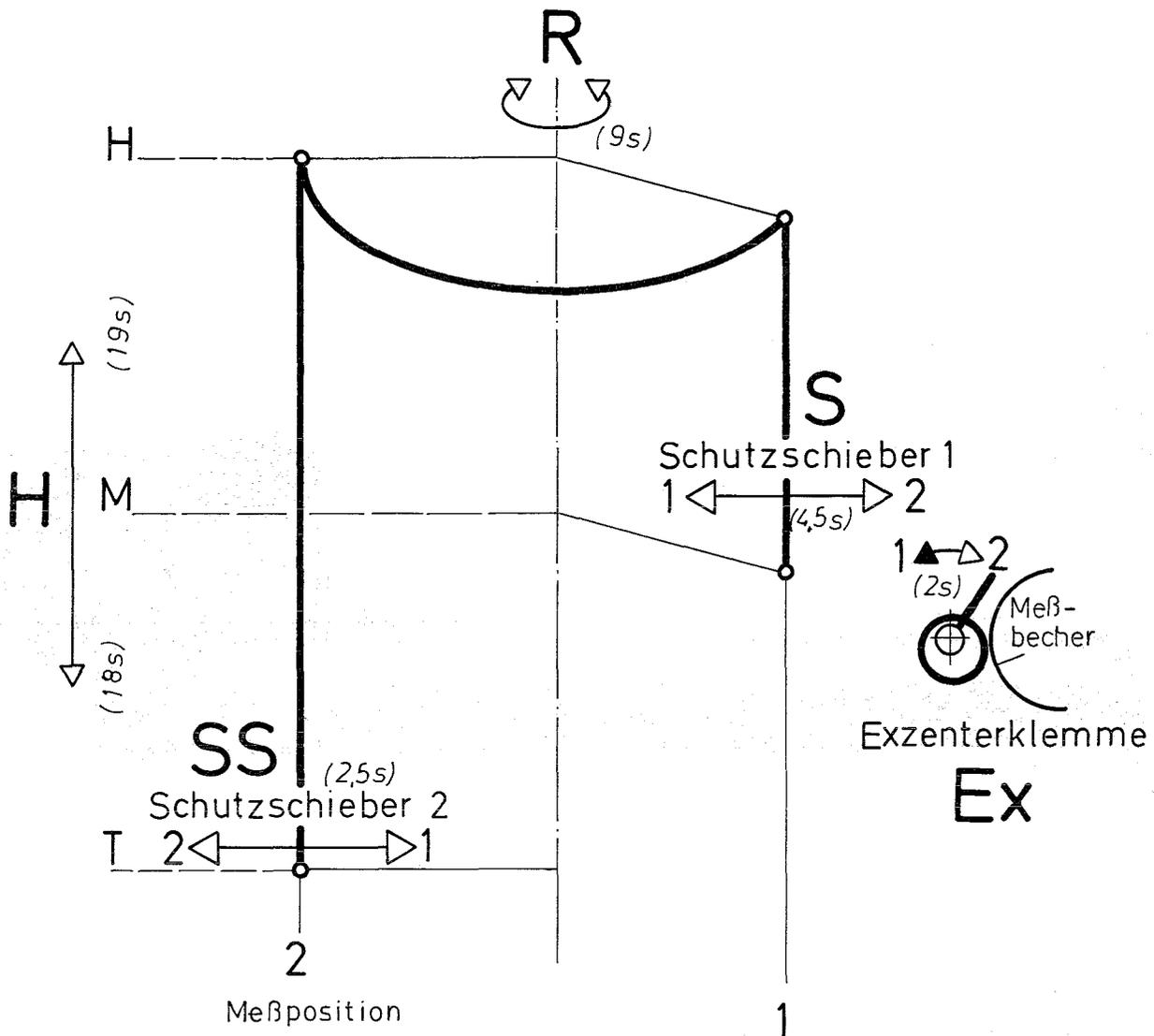
3.2.2

Abb.: 9 Transportband Bewegungsschema



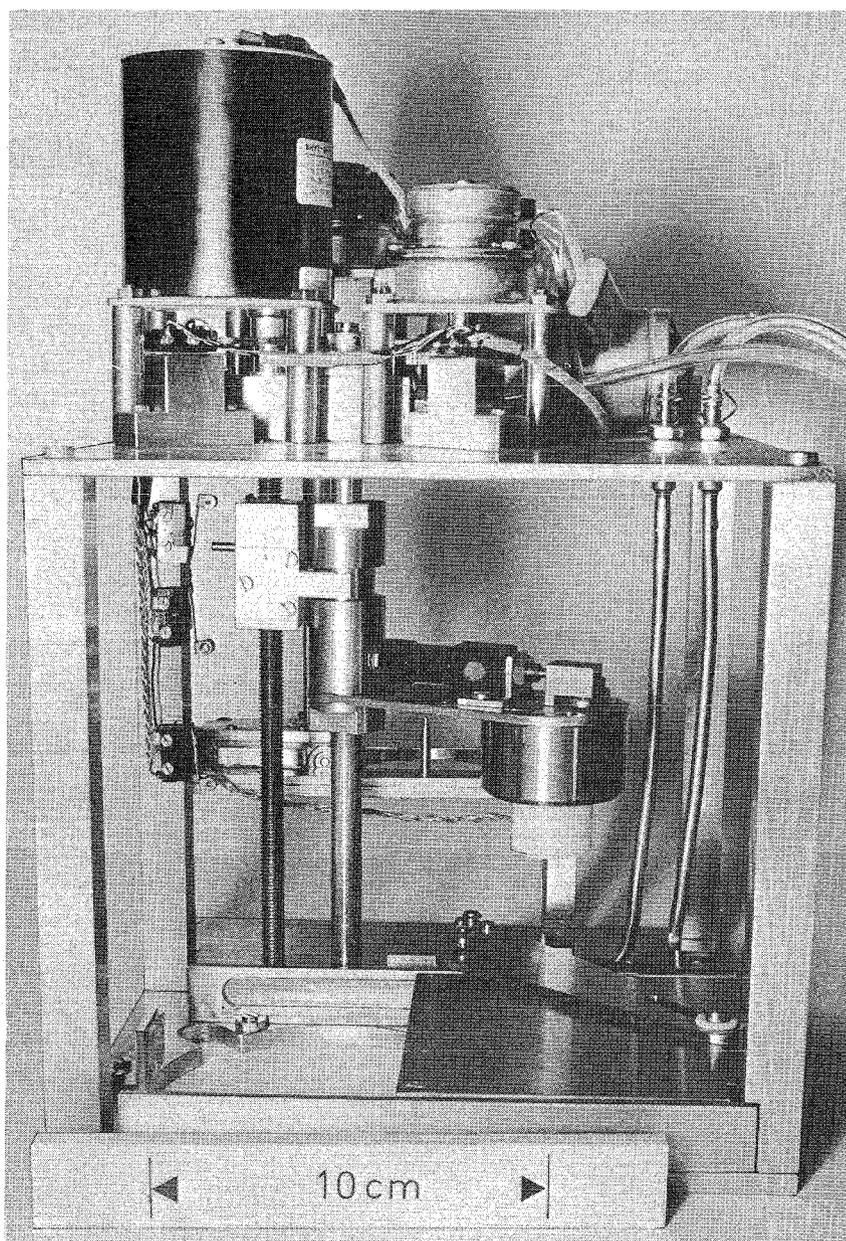
3.2.2.

Abb.: 10, Transportband mit Drehkreuz

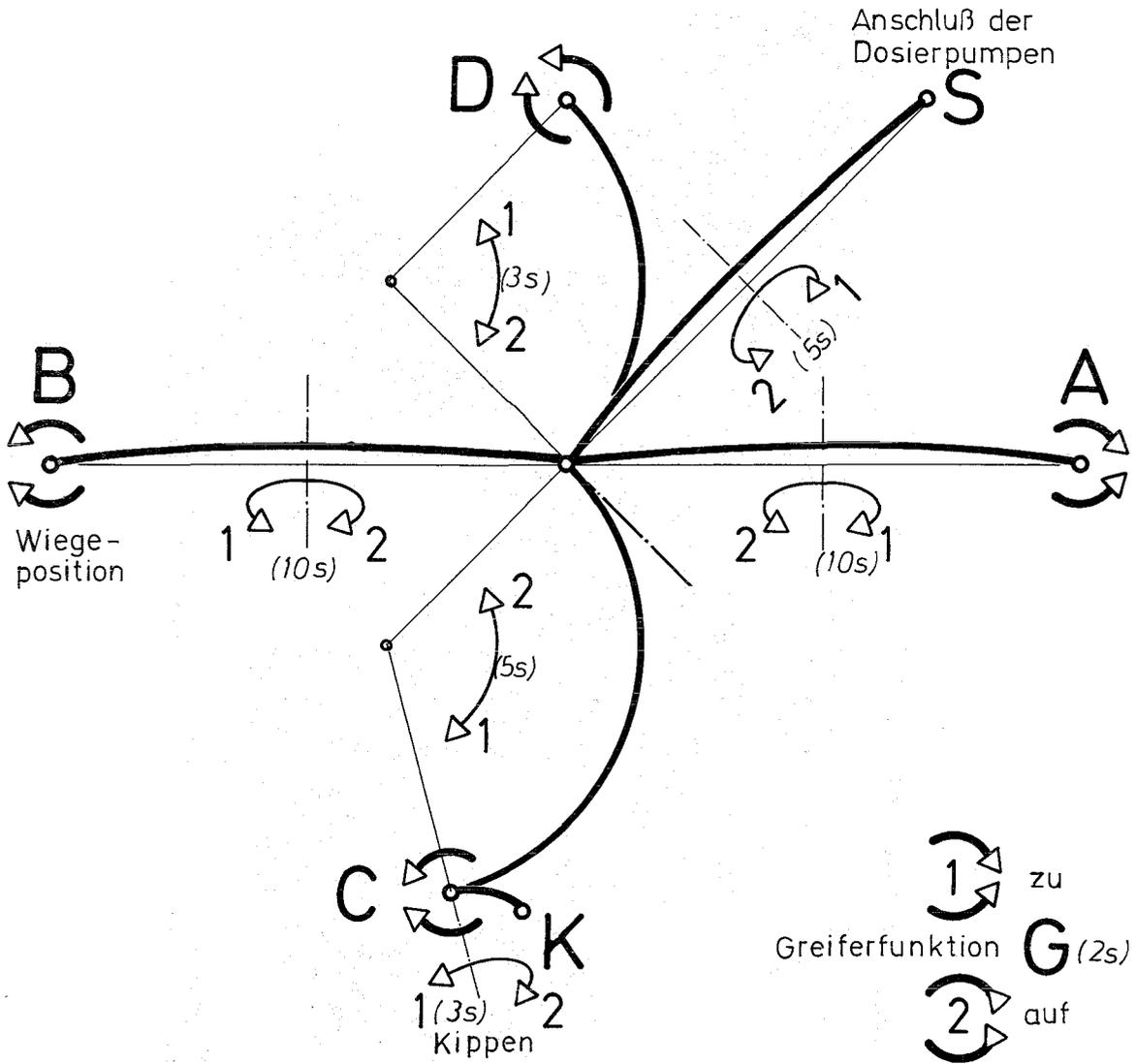


3.2.2

Abb.: 11, Probenwechsler Bewegungsschema

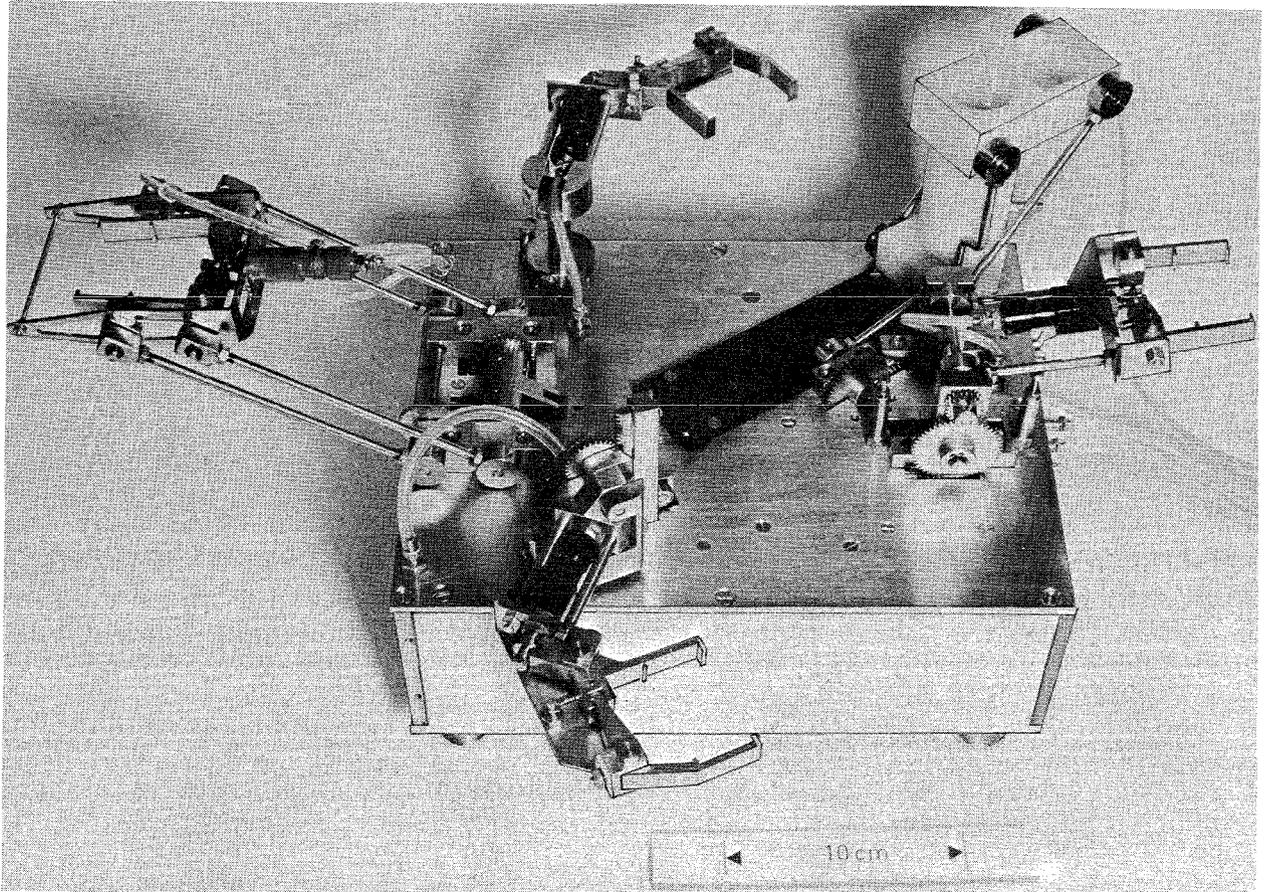


3.2.2.  
Abb.: 12 , Probenwechsler



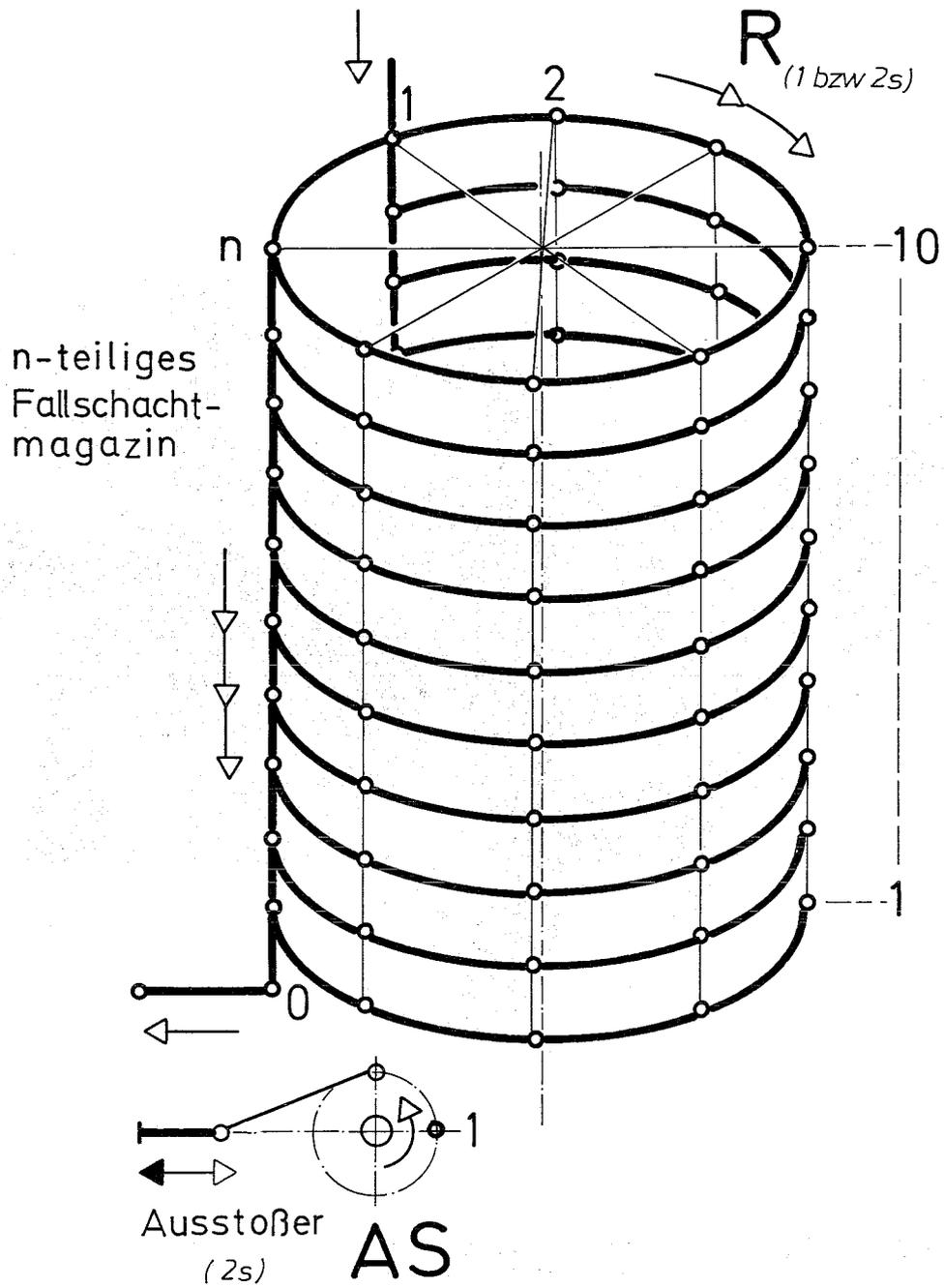
3.2.2

Abb.: 13 , Greifersystem Bewegungsschema



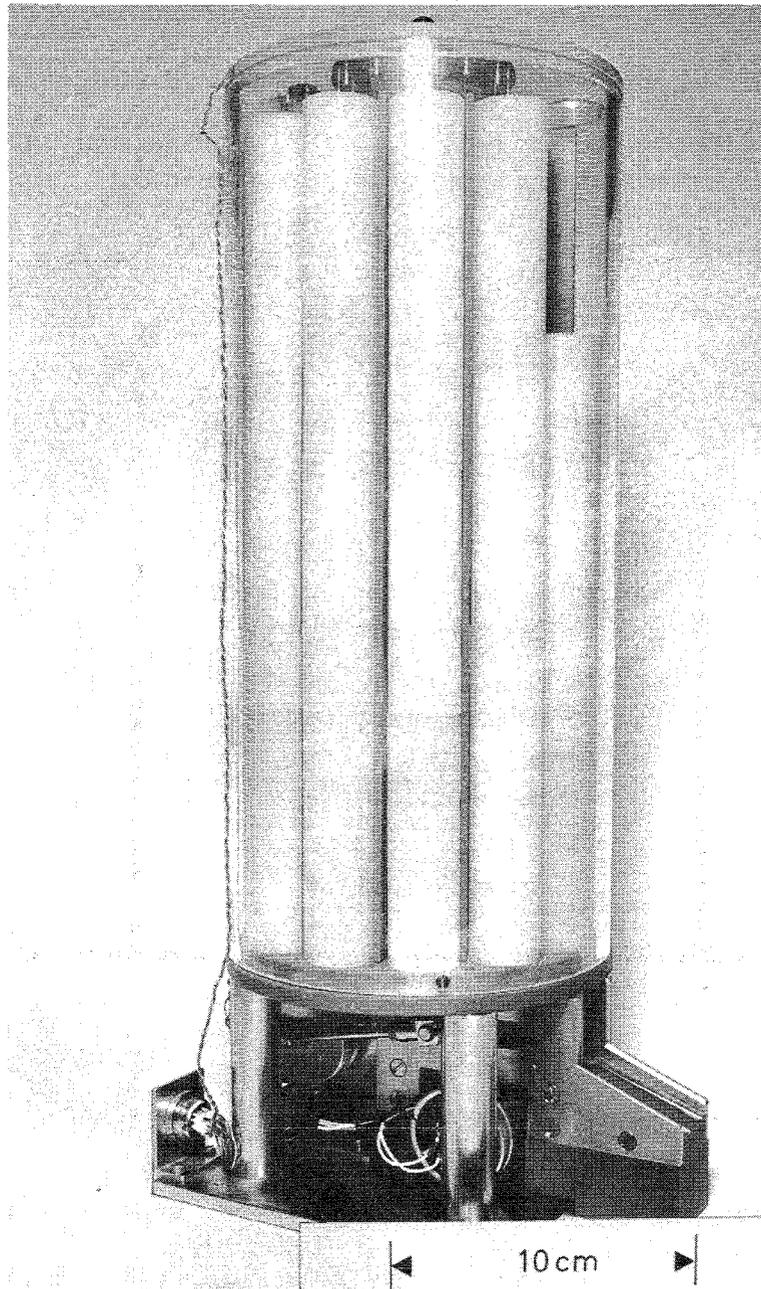
3.2.2.

Abb.: 14 , Greifersystem

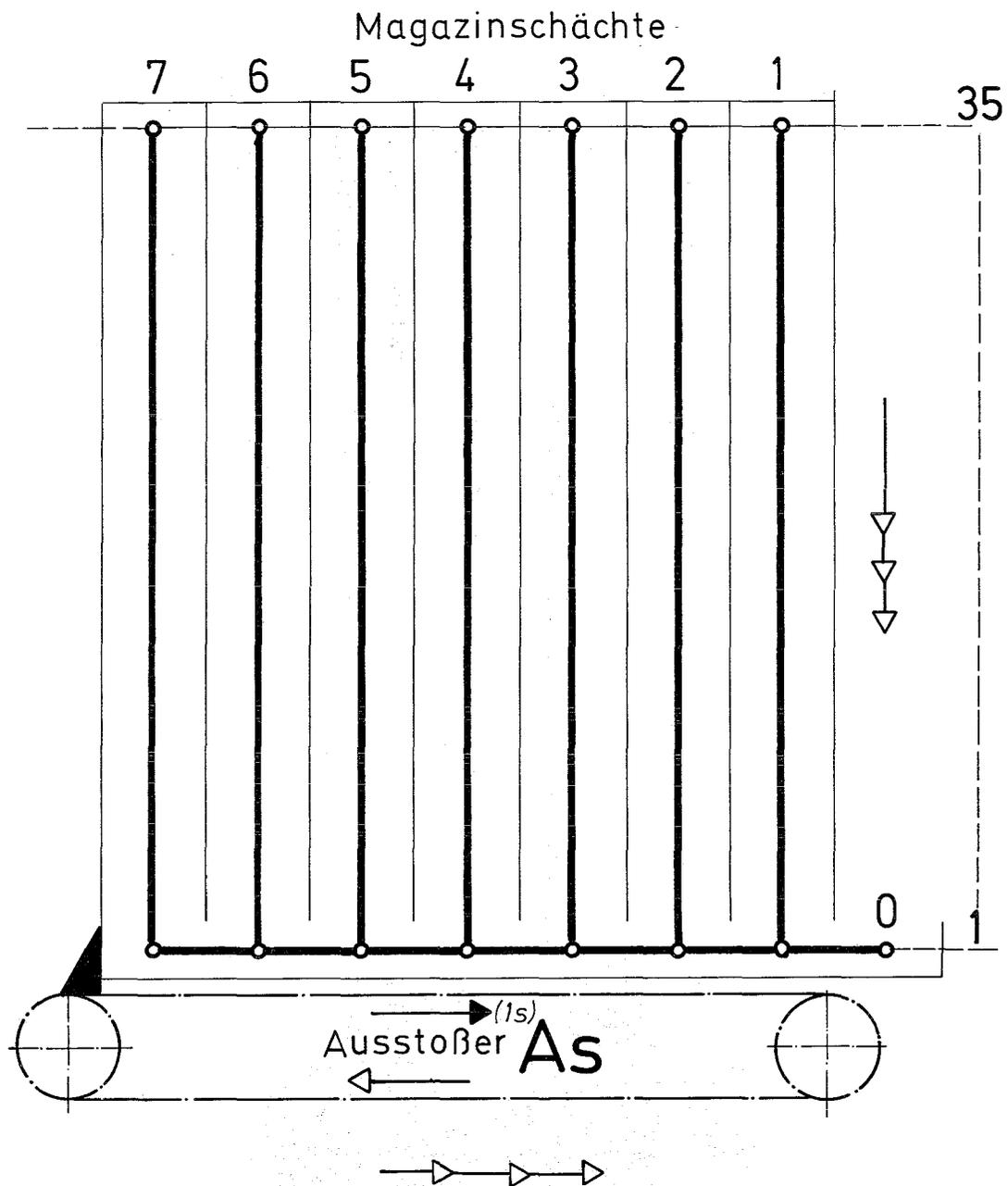


3.2.2

Abb. : 15, Bechermagazin Bewegungsschema

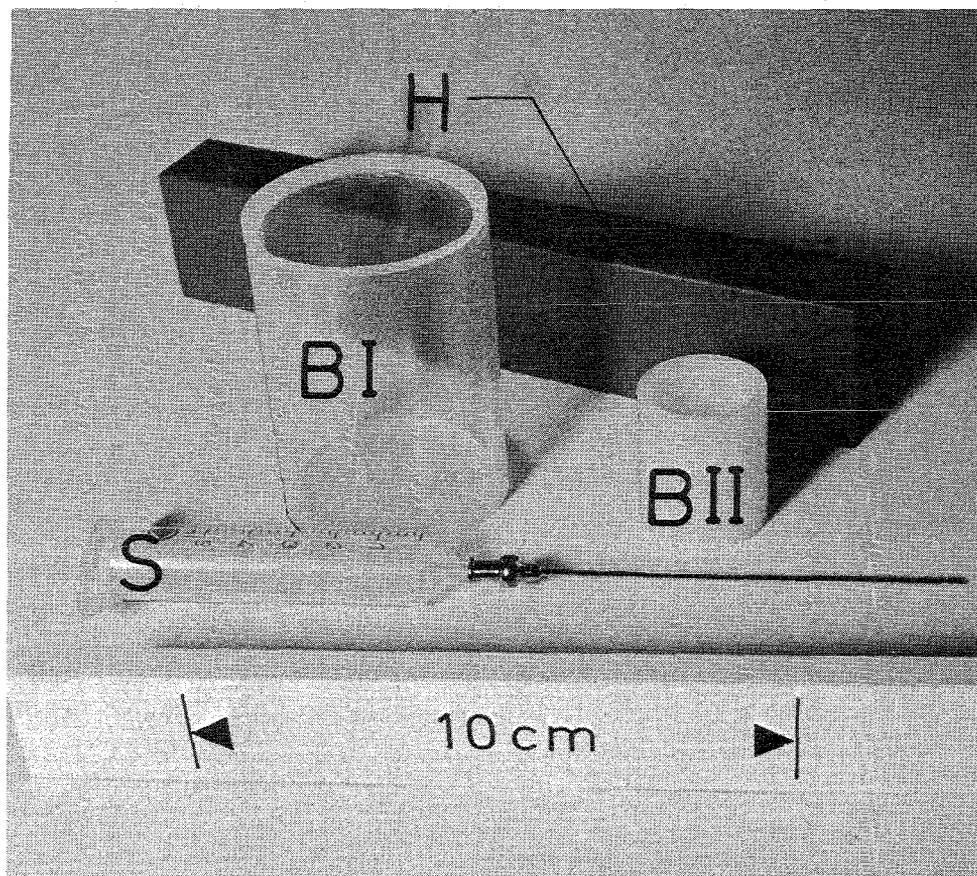


3.2.2.  
Abb.: 16 , Bechermagazin



3.2.2

Abb.: 17 Spritzenmagazin Bewegungsschema



3.2.2.

Abb.: 18 , Einweg-Teile

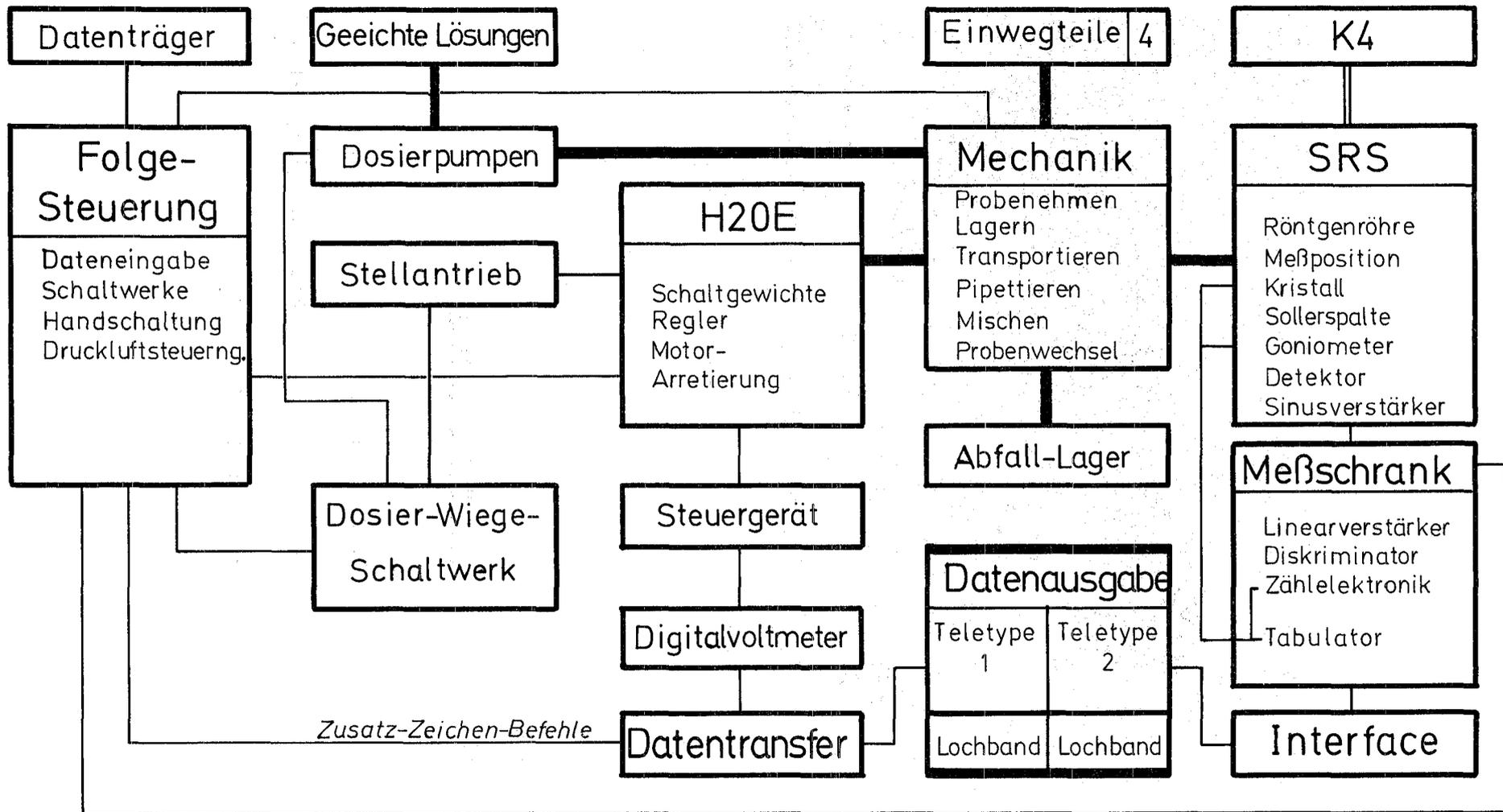
BI : Mischbecher , 50 ml

BII : Meßbecher , 5 ml

S : Pipette (5ml-Einmal-Spritze)

H : Hüllkörper für S

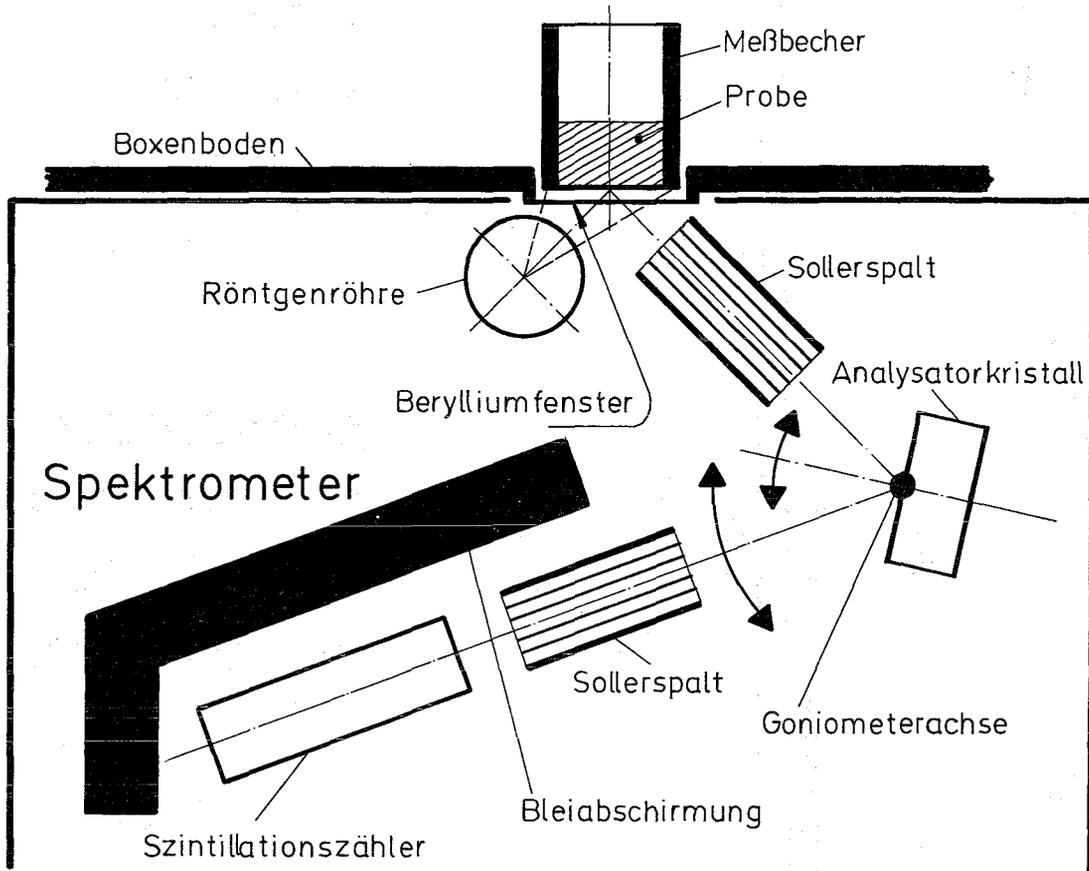
STEUERN	DOSIEREN	WIEGEN	HANTIEREN	MESSEN
---------	----------	--------	-----------	--------



3.2.2

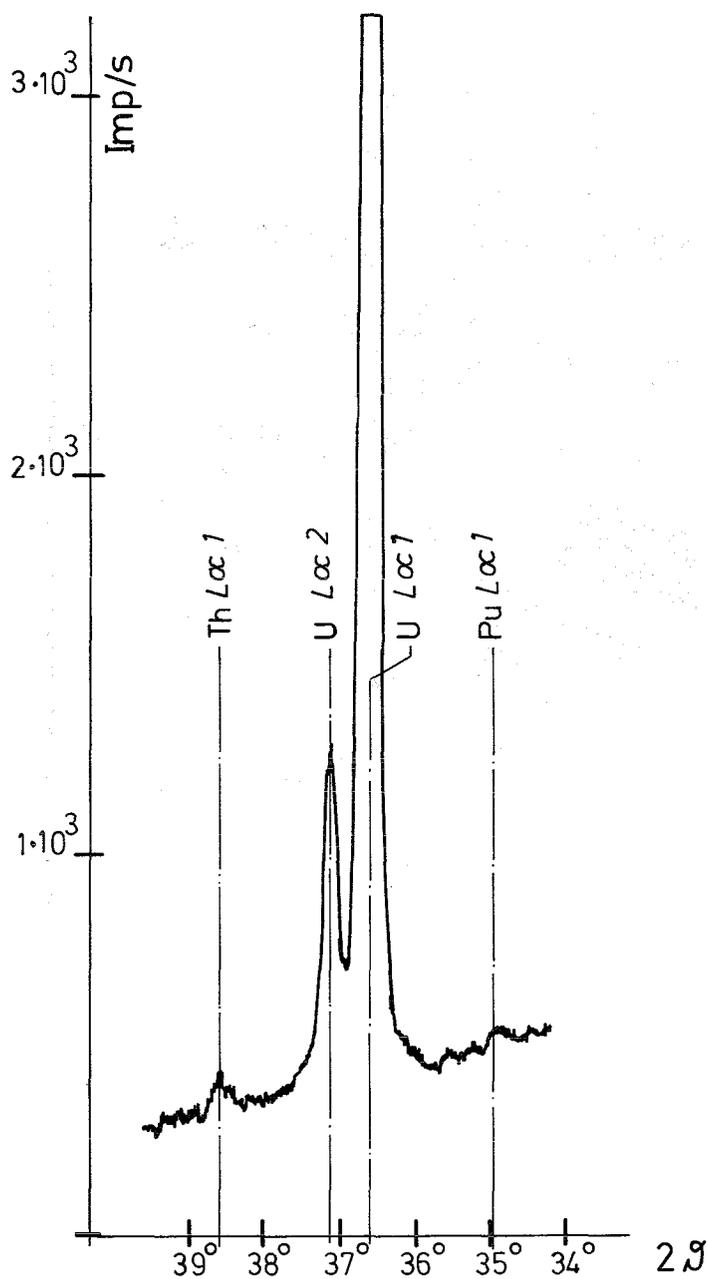
Abb.: 19, Blockschema

# Innenraum der Box



3.2.2

Abb.: 20, Meßanordnung



W-Röhre ,  
55 kV , 32 mA ,  
LiF 110 , n = 1 ,  
 $4 \cdot 10^3$  Imp/s

Konzentrationen :

Pu	0,29	mg/g
U	142	mg/g
Th	1,24	mg/g

3.2.2

Abb.: 21 , Spektrum im Meßbereich

### 3.2.2.6 Ausblick

Das Gesamtsystem wurde im Berichtszeitraum besonders in Hinblick auf die Ausstellung zur 4. Genfer Atomkonferenz, die Interkama in Düsseldorf und die Deutsche Industrieausstellung in Berlin unter erheblichem Zeitdruck weitgehend fertiggestellt. Für die Erprobung unter realistischen Bedingungen werden 1972 einige Bestandteile verbessert. Zudem sollen Erweiterungen zur Verarbeitung von Proben für die Massenspektrometrie vorgenommen werden /4/. Die Steuerung mit zugehörigen Programmen soll in Angriff genommen und das Rechenprogramm auf eine quadratische bzw. kubische Eichfunktion umgestellt werden.

#### Literatur zu 3.2.2

- /1/ Baeckmann A. von; "Safeguards Techniques" Proc. Sym. IAEA Wien 1970, Vol. 2, 45
- /2/ Pella P.A., A. von Baeckmann; Anal. Chim. Acta 47, 431-438 (1969)
- /3/ Baeckmann A. von, J. Neuber, E. Gantner; KFK 1429 S.155-162 (1971)
- /4/ Baeckmann A.von, L. Koch, J. Neuber, M. Wilhelmi; IAEA Sm 149/42 (1971)

### 3.2.3 Versuche zur emissionsspektroskopischen Isotopenbestimmung in Kernbrennstoffen

E. Mainka und H.-G. Müller, Institut für Radiochemie  
Kernforschungszentrum Karlsruhe

#### 3.2.3.1 Einleitung

Im vorhergehenden Jahresbericht des Projektes Spaltstoffflußkontrolle /1/ sind die Möglichkeiten der emissionsspektroskopischen Isotopenanalyse von Uran und Plutonium aufgezeigt worden. Aufgrund der Erkenntnis, daß bei Bogenanregungen effektive Linienbreiten  $< 35 \text{ m}\text{\AA}$  nicht zu erreichen sind, mußte zur Auflösung von Isotopenaufspreizungen von  $< 35 \text{ m}\text{\AA}$  nach kälteren Lichtquellen gesucht werden.

Elektrodenlose Entladungsröhren sowie die kalte Hohlkathode sind hier die Alternativen. Im Hinblick auf die Automatisierung kommt allein die Hohlkathodenanregung in Frage. Das Analysenmaterial liegt in den meisten Fällen als salpetersaure Lösung oder als Oxidpulver vor und es ist notwendig ein Präparat herzustellen, das entsprechend angeregt werden kann.

#### 3.2.3.2 Versuche zur Präparatherstellung

Kathoden aus Kupfer und Nickel wurden mit Oxid beschichtet, in dem die salpetersaure Lösung zunächst aufgetropft und anschließend die Kathode erhitzt wurde. Die Entladung unter diesen Bedingungen war bei geringen Konzentrationen  $\leq 1 \text{ mg}$  genügend stabil. Die notwendige Intensität konnte damit nicht erzielt werden. Bei Arbeiten mit größeren Konzentrationen (1-5 mg) zeigte sich, daß Schichten reproduzierbarer Oberfläche und Dicke nicht hergestellt werden konnten. Die Kathodenwände wurden von Probe zu Probe unterschiedlich beschichtet. Die Unterschiede in der physikalischen Beschaffenheit der Hohlkathoden verursachte unterschiedliche Anregungsbedingungen, was zu unkontrollierbaren

Verschiebungen der Eichgeraden führte. Um Lösungen in einer brauchbaren Hohlkathodenentladung zur Anregung zu bringen, ist eine grundlegende Präparationstechnik noch zu entwickeln.

Für unsere weiteren Untersuchungen haben wir Oxid als Ausgangsmaterial benutzt, da wir hier auf den Erfahrungen aufbauen konnten, die bei der Spurenbestimmung in Kernbrennstoff mit Hohlkathodenanregungen erarbeitet worden waren /2/. Die Präparationstechnik ist die folgende:

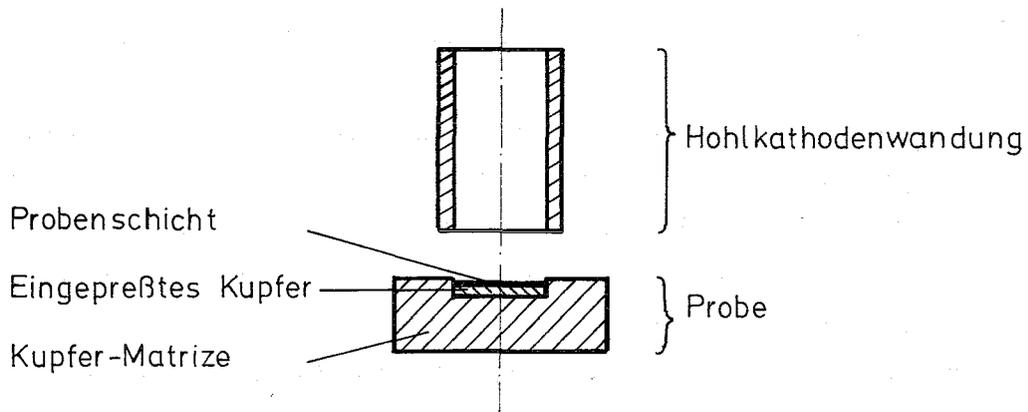
In einer Kupfermatrize wird das Probenmaterial eingepreßt. Um die bestmögliche Bindung zwischen Kupfermatrize und Probe zu erreichen, wird zunächst eine Kupferschicht mit etwa  $1,5 \text{ t/cm}^2$  eingepreßt. Erst darauf preßt man die Probenmischung. Da das zu analysierende Oxid zur Anregung elektrisch leitfähig sein muß, wird es mit Kupferpulver gemischt. Das Verhältnis  $\text{UO}_2/\text{Kupfer}$  beträgt 70:30%. Mit dieser Anordnung erreicht man auch die notwendige Wärmeleitfähigkeit, sodaß eine Überhitzung der Probe vermieden werden kann und das Material allein durch Kathodenzerstäubung abgebaut wird. Die gepreßte Mischung bildet den Boden der Hohlkathode. Als Wandung wird ein Nickelröhrchen benutzt. Abb.1 zeigt eine Skizze unserer Hohlkathodenanordnung. Sie ist wassergekühlt. Die so erhaltenen Analysenlinien haben Halbwertsbreiten von 12-15 mÅ.

### 3.2.3.3 Festlegung der Arbeitsbedingungen

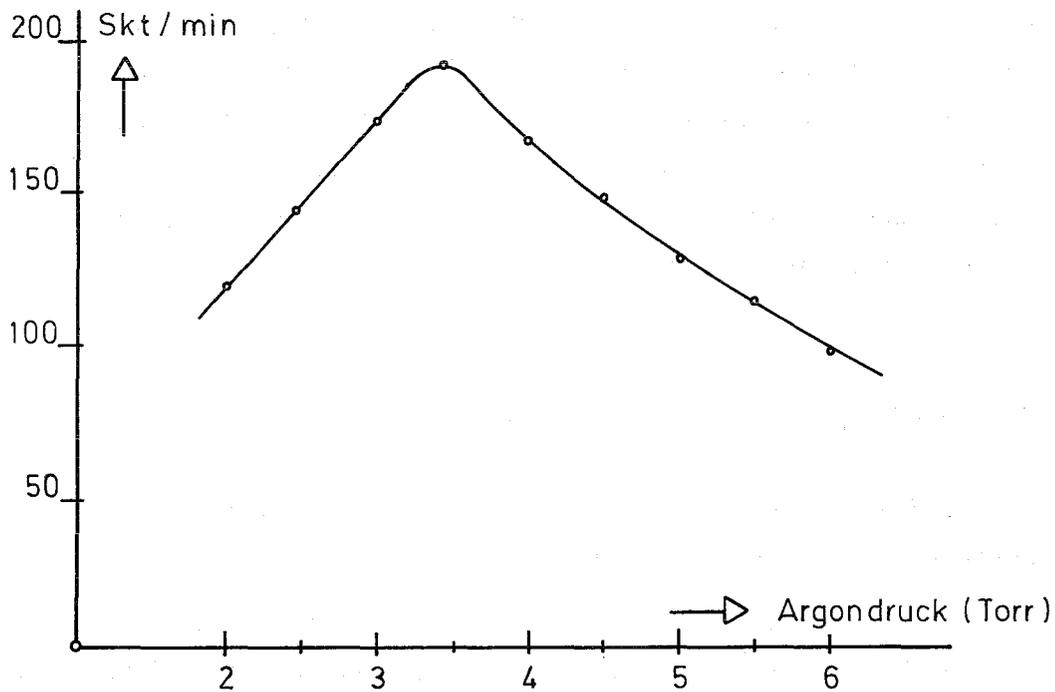
Zur Ermittlung der besten Arbeitsbedingungen wurden folgende Untersuchungen durchgeführt:

a) Die Abhängigkeit der Linienintensitäten vom Gasdruck.

Der Verlauf der Linienintensität mit zunehmendem Gasdruck ist in Abb.2 dargestellt. Das Intensitätsmaximum der benutzten Linie ( $\text{U } 5027, 398 \text{ Å}$ ) liegt bei 3,5 torr. Das Erscheinen des Maximums erklärt sich aus der kombinierten Wirkung von Energie und Anzahl der positiven Ionen. Mit wachsendem Druck nahmen die Elektronentemperaturen und die Energie der positiven Ionen ab. Ihre Anzahl nimmt aber zu. Da die Anregung des zerstäubten Materials vorwiegend durch Stöße zweiter Art



3.2.3 Abb.1: Hohlkathodenanordnung. Kupfermatrize mit eingepresster  $UO_2/Cu$ -Mischung als Boden der Hohlkathode.



3.2.3 Abb.2: Intensität der Uranlinie bei  $5027,398 \text{ \AA}$  in Abhängigkeit vom Gasdruck.

mit metastabil angeregten Zuständen der Gasatome erfolgt, wird die Konzentration der angeregten Atome des Analysenmaterials außer von der eigenen auch von der Konzentration der Trägergasatome im metastabilen Zustand bestimmt.

- b) Die Abhängigkeit der Linienintensität von der Stromstärke zeigt Abb.3. Man sieht, daß mit steigender Energie die Zerstäubung kontinuierlich wächst. Eine Grenze ist hier nur durch thermische Effekte gegeben. Unsere wassergekühlte Hohlkathode ist auf eine maximale Stromstärke von 500 mA begrenzt. Thermische Effekte treten unter diesen Bedingungen noch nicht auf, sodaß die angestrebte Verringerung der physikalischen Linienhalbwertsbreite garantiert ist. Aus den obigen Untersuchungen ergeben sich für unsere Analysemethoden folgende Betriebsparameter für die Hohlkathode:

Stromstärke  $i = 500 \text{ mA}$

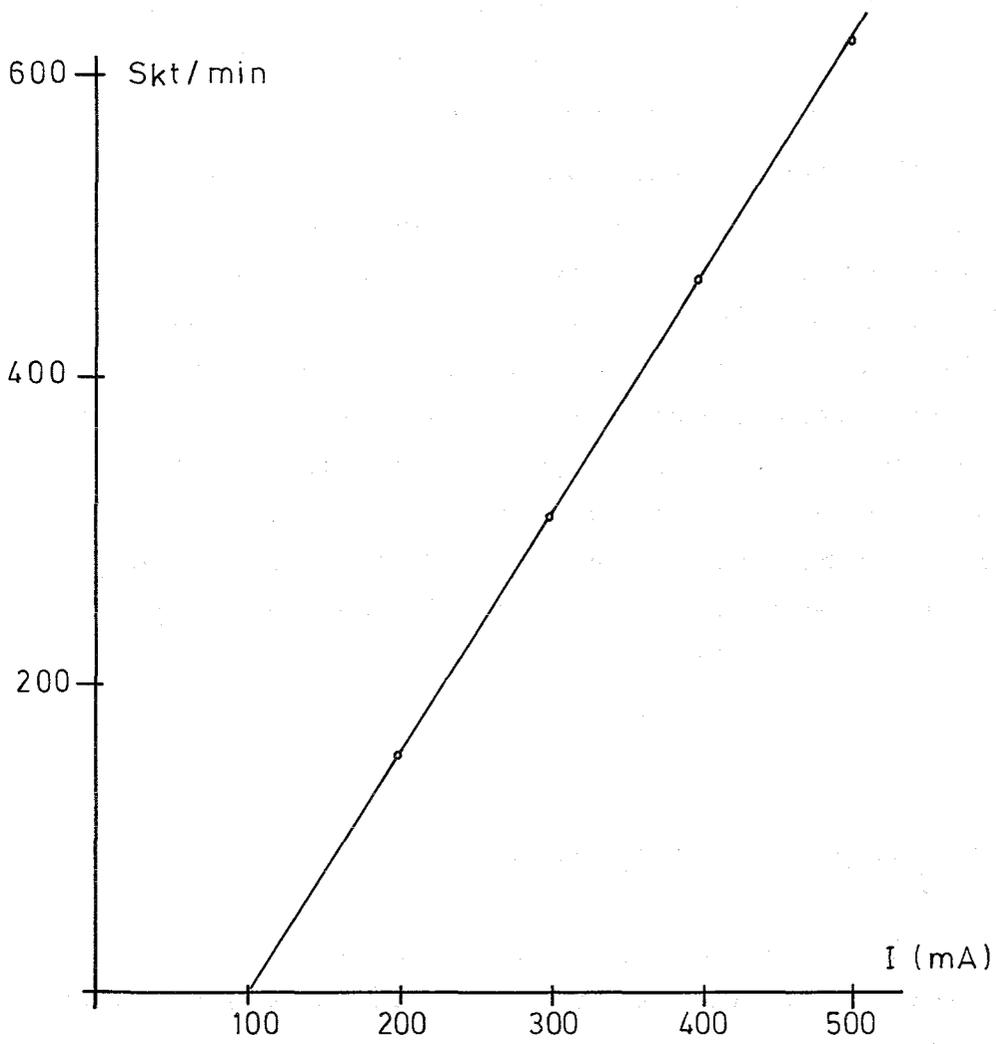
Ar-Druck  $p = 3,5 \text{ Torr}$

#### 3.2.3.4 Arbeitsweise des Empfängersystems

Zur Intensitätsmessung der Isotopenlinien steht uns ein Digimess der Firma RSV zur Verfügung. Eine Messung der Lichtintensität der Isotopenlinien erfolgt durch Sekundärelektronenvervielfacher (SEV). Je nach Linienintensität einer Spektrallinie entsteht am Sekundärelektronenvervielfacher ein mehr oder weniger großer Photostrom, der einem Meßkanal zugeordnet wird. Die am Arbeitswiderstand des Kanals abfallende Spannung geht direkt zum Verstärker und wird am Digitalvoltmeter angezeigt. Prinzipiell bestehen zwei Möglichkeiten um die Integration des Photostromes vorzunehmen:

1. Man integriert den Photostrom über eine bestimmte Zeiteinheit oder
2. man integriert den Photostrom der Linie und einer Bezugslinie solange, bis das Integral des Photostromes der Bezugslinie einen vorher festgelegten Wert erreicht hat.

Wir haben z.Zt. 7 Kanäle, sodaß 7 Spektrallinien nebeneinander gemessen werden können. In den meisten Fällen führt die zweite



3.2.3 Abb.3: Intensität der Uranlinie bei  $5027,398 \text{ \AA}$  in Abhängigkeit von der Stromstärke.

Möglichkeit zu reproduzierbareren Ergebnissen, da Unregelmäßigkeiten in der Probenpräparation sowie Schwankungen der Lichtquelle eliminiert werden können.

Die Integration nach einer Bezugslinie verläuft so, daß während einer Entladung aller Analysenlinienkanäle und auch der Bezugskanal gleichzeitig aufgeladen werden. Unabhängig von der Zeit ist die Integration dann beendet, wenn der Bezugskanal an einem Digitalvoltmeter den Wert 800,0 erreicht hat. Durch Abtasten der einzelnen Analysenkanäle läßt sich das Zeitintegral des Photostromes für jede Analysenlinie ermitteln.

Für unsere Arbeiten haben wir zur Bestimmung des U-235-Gehalts U-238 als Bezug gewählt. Zur Analyse wurden die Intensitätsverhältnisse von jeweils 10 Messungen eines Präparates ermittelt. Die Auswertung erfolgt z.Zt. noch über Eichkurven. Versuche zur Absolutmessung sind im Gange. Im untersuchten Konzentrationsintervall von 0,05% U-235 bis 5% U-235, konnten bei 5 Parallelbestimmungen Reproduzierbarkeiten zwischen 3 und 0,25% erreicht werden.

#### Literatur zu 3.2.3

- /1/ Projekt Spaltstoffflußkontrolle KFK 1429, S.163 (1971)
- /2/ Aya Ramirez, O.; KFK 1496 (1971)

### 3.2.4 Isotopenkorrelation der schweren Isotope und ausgewählter Spaltprodukte

G. Cottone, A. Cricchio, R. De Meester, L. Koch  
Europäisches Institut für Transurane

Es wurden an weiteren Leistungsreaktoren Analysen durchgeführt, so daß Informationen über die Isotopenzusammensetzung von Kernbrennstoffen nach ihrem Einsatz im Reaktor bis jetzt für folgende Siedewasserreaktoren vorliegen: VAK Kahl, Garigliano, KRB-Gundremmingen, sowie für den Druckwasserreaktor TRINO-Vercellese.

Alle Untersuchungen beziehen sich auf Pelletproben, die aus verschiedenen Stäben der Brennelemente herausgeschnitten wurden. Diese Pelletproben haben bekanntlich den Vorteil, daß sie einen sehr großen Abbrandbereich überdecken, entsprechend der axialen Abbrandunterschiede der Brennelemente. Sie haben jedoch den Nachteil, daß die Unterschiede im Neutronenenergiespektrum, die innerhalb eines Bündels zu beobachten sind, sich besonders stark auf die Isotopenzusammensetzung auswirken. Die Isotope, die von uns routinemäßig an Brennstoffproben analysiert werden, sind in der ersten Tabelle aufgeführt.

In der letzten Zeit untersuchen wir systematisch, inwieweit Verhältnisse der erwähnten Isotope sich mit Parametern korrelieren lassen, die für eine Spaltstoffflußkontrolle relevant sind. Im einzelnen untersuchten wir den Abbrand,  $F_T$ , die U-235-Abreicherung,  $D_5$ , und den Aufbau der Pu-239-, 240-, 241-, 242-Isotope. Im Gegensatz zu den üblichen Korrelationen gingen wir nicht von den chemischen Elementen aus, wie z.B. die von amerikanischen Autoren veröffentlichten Korrelationen der Abhängigkeit des U/Pu-Verhältnisses vom U-235/238-Verhältnis /1/, da Änderungen des Neutronenenergiespektrums im Reaktor Unregelmäßigkeiten in diesen Korrelationen bewirken. Wir meinen jedoch, daß diese Einflüsse sich wesentlich verringern, wenn man anstelle der globalen

U/Pu-Änderung nur die Korrelation einzelner Isotope untersucht. Der Grund dazu liegt darin, daß die Energieabhängigkeit des Wirkungsquerschnittes eines Pu-Isotopes sich besser mit einem einzelnen Isotopenverhältnis mit entsprechender Energieabhängigkeit des Wirkungsquerschnittes, z.B. Xe-132/131, korrelieren läßt, als das U/Pu-Verhältnis, in das eine Reihe von Wirkungsquerschnitten eingeht, die eine unterschiedliche Energieabhängigkeit zeigen. Im folgenden werden einige Beispiele dieser Isotopenkorrelationen erwähnt /2/.

Es läßt sich zeigen, daß sich der Abbrand, (in a/o) mit dem Verhältnis U-235/238 korrelieren läßt, (Abb.1). Diese Korrelation ist natürlich abhängig von der Anfangsanreicherung des Brennstoffes. Eine Abhängigkeit von der Anfangsanreicherung ist nicht zu beobachten, wenn man für die Korrelation die Pu-Isotope benutzt. Als Beispiel ist in Abb.2 die Abreicherung an U-235,  $D_5$ , gegen das Verhältnis Pu-240/239 aufgetragen. Dieses Bild ändert sich sofort, wenn die thermische Rückführung des Pu in Betracht gezogen wird. Eine Möglichkeit, den Einfluß der Ausgangsbedingungen des Brennstoffes zu umgehen besteht darin, die Korrelationen auf eine Analyse der Spaltprodukte aufzubauen. So läßt sich z.B. die Pu-240-Menge bezogen auf anfänglich vorhandene Brennstoffatome gegen das Verhältnis Nd-146/145 korrelieren (Abb.3). Ein weiteres Beispiel ist die Korrelation des Pu-241, ebenfalls bezogen auf die anfangs vorhandenen Brennstoffatome, gegen das Verhältnis Xe-132/131 (Abb.4). Die Gleichungen dieser erwähnten linearen Korrelationen mit der Standardabweichung des Arguments sind in Tabelle 2 wiedergegeben.

Um die Fülle der anfallenden Daten verarbeiten zu können, und mögliche, noch nicht erkannte Korrelationen aufzudecken, sind wir dazu übergegangen, eine Datenbank zu installieren, mit deren Hilfe systematisch die Einflüsse der Brennelementgeschichte auf bekannte Korrelationen untersucht werden. Ferner werden wir künftig Proben nach dem Auflösen ganzer Brennelemente analysieren, um zu untersuchen, inwieweit die lokalen Einflüsse, die für pelletgroße Proben beobachtet wurden, sich herausmitteln. Dazu untersuchen wir

im Rahmen des Mol-IV-Experiment bei der Wiederaufarbeitung des SENA-Reaktorbrennstoffes die Isotopenzusammensetzung des aufgelösten Brennstoffes, sowie die freigesetzten Spaltgase. Bei der Wiederaufarbeitung des Brennstoffes des Kraftwerks Obrigheim in der WAK Karlsruhe werden die gleichen Analysen von uns durchgeführt.

Literatur zu 3.2.4

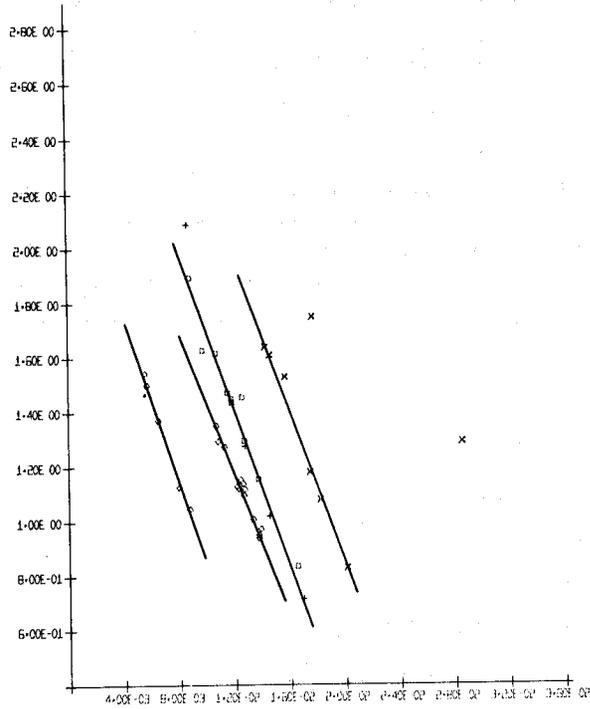
- /1/ Christensen D.E., R.A.Schneider, K.B.Stewart BNWL-SA-473 (1972)
- /2/ Koch L.,A.Cricchio, F.Gérin IAEA SM-149/2 (1971)

Thorium	230, 232,
Uranium	233, 234, 235, 236, 238,
Neptunium	237,
Plutonium	236, 238, 239, 240, 241, 242,
Americium	241, 242, 243,
Curium	242, 243, 244, 245, 246, 247, 248,
Cesium	134, 137,
Neodymium	143, 144, 145, 146, 148, 150
Krypton	83, 84, 85, 86,
Xenon	131, 132, 134, 136

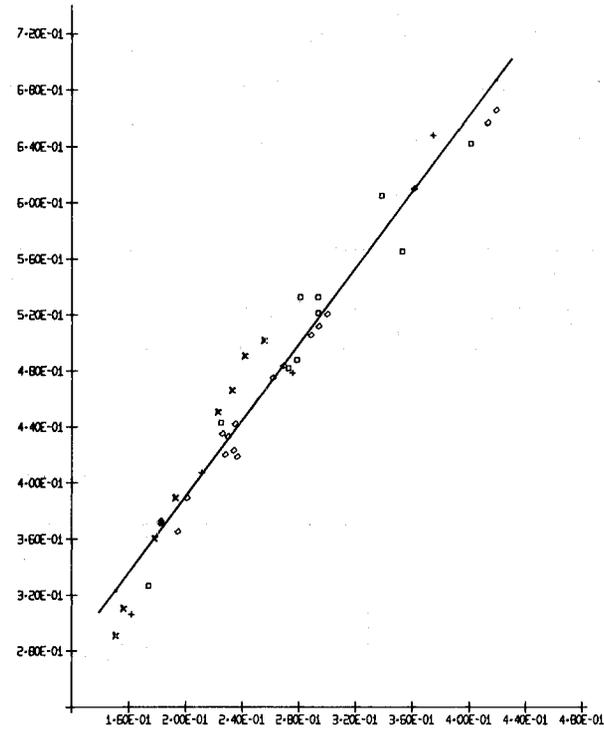
3.2.4 Tabelle 1 Analyzierte Isotope

K O R R E L A T I O N Argument	Variable	Gleichung der Regressionsanalyse	Abweichung vom Argument	Bereich des Argument
$F_T$	U-235/238	empfindlich gegen Anreicherung		
$D_5$	Pu-240/239	$y = 1.36x + 0.12$	0.02	$(2.8 \text{ bis } 6.8) \times 10^{-1}$
Pu-240	Nd-146/145	$y = (0.98x - 0.75) \times 10^{-2}$	$0.14 \times 10^{-3}$	$(0.4 \text{ bis } 1.8) \times 10^{-3}$
Pu-241	Xe-132/131	$y = (0.21x - 0.19) \times 10^{-2}$	$0.58 \times 10^{-4}$	$(1 \text{ bis } 8) \times 10^{-4}$

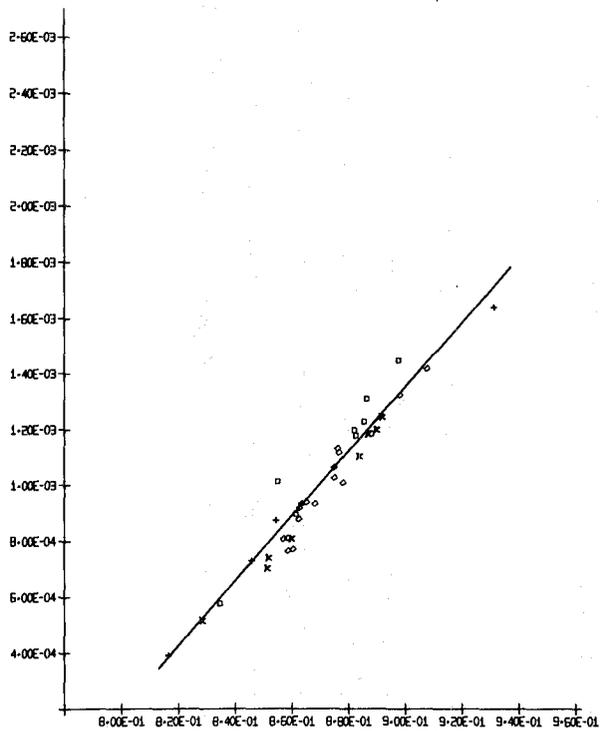
3.2.4 Tabelle 2 Korrelationen einiger schwerer Isotope



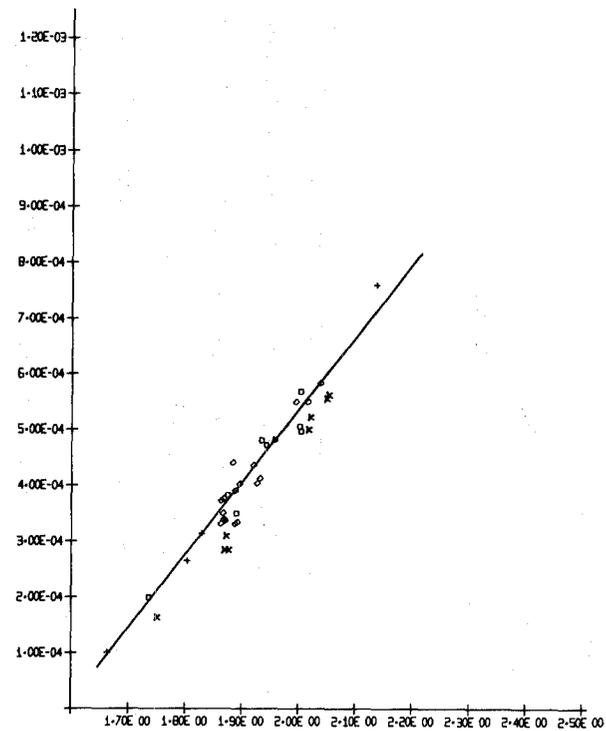
3.2.4 Abb.1: Korrelation zwischen dem Abbrand  $F_T$  und dem Verhältnis U-235/U-236



3.2.4 Abb.2: Korrelation zwischen der Anreicherung  $D_5$  und dem Verhältnis Pu-240/Pu-239



3.2.4 Abb.3: Korrelation zwischen Pu-240 bezogen auf anfänglich vorhandene Brennstoffatome und dem Verhältnis Nd-146/145



3.2.4 Abb.4: Korrelation zwischen Pu-241 bezogen auf anfänglich vorhandene Brennstoffatome und dem Verhältnis Xe-132/131

### 3.2.5 Sonstige analytische Verfahren

#### 3.2.5.1 Untersuchungen zur Bestimmung von U-235 und Pu-239 in Abfalllösungen von Wiederaufbereitungsanlagen durch Neutronenaktivierungsanalyse

A.H. Hawa, Institut für Radiochemie,  
Gesellschaft für Kernforschung

Die im Vorjahr aufgenommene Untersuchung über die Bestimmung von U-235 und Pu-239 in Abfalllösungen durch Neutronenaktivierungsanalyse /1/ wurde 1971 fortgesetzt und das Verhältnis der relativen Linienintensitäten für die 1836 keV-Linie des Rb-88 und die 1426 keV-Linie des Cs-138 für verschiedene Mischungen von U-235 und Pu-239 bestimmt. Infolge einer Veränderung der Meßgeometrie und der Arbeitsbedingungen ergaben sich für die relativen  $\gamma$ -Intensitätsverhältnisse etwas andere Werte als die, die in /1/ genannt wurden.

In Tabelle 1 sind die gemessenen Werte und ihre Standardabweichungen für verschiedene U-235/Pu-239-Verhältnisse sowie für die U-235-Spaltung angegeben. In Abb. 1 ist die Eichkurve wiedergegeben.

Besondere Schwierigkeiten ergaben sich bei der Entgasung der Proben vor der Messung, wobei gelegentlich ein vorzeitiges Entweichen von Kr-88 auftrat, welches zu Fehlmessungen führte. 1972 sollen deshalb einige Versuche ohne Abtrennung des Spaltkryptons und Spaltxenons ausgeführt werden. Auch sollen quantitative U-235- und Pu-239-Bestimmungen untersucht werden.

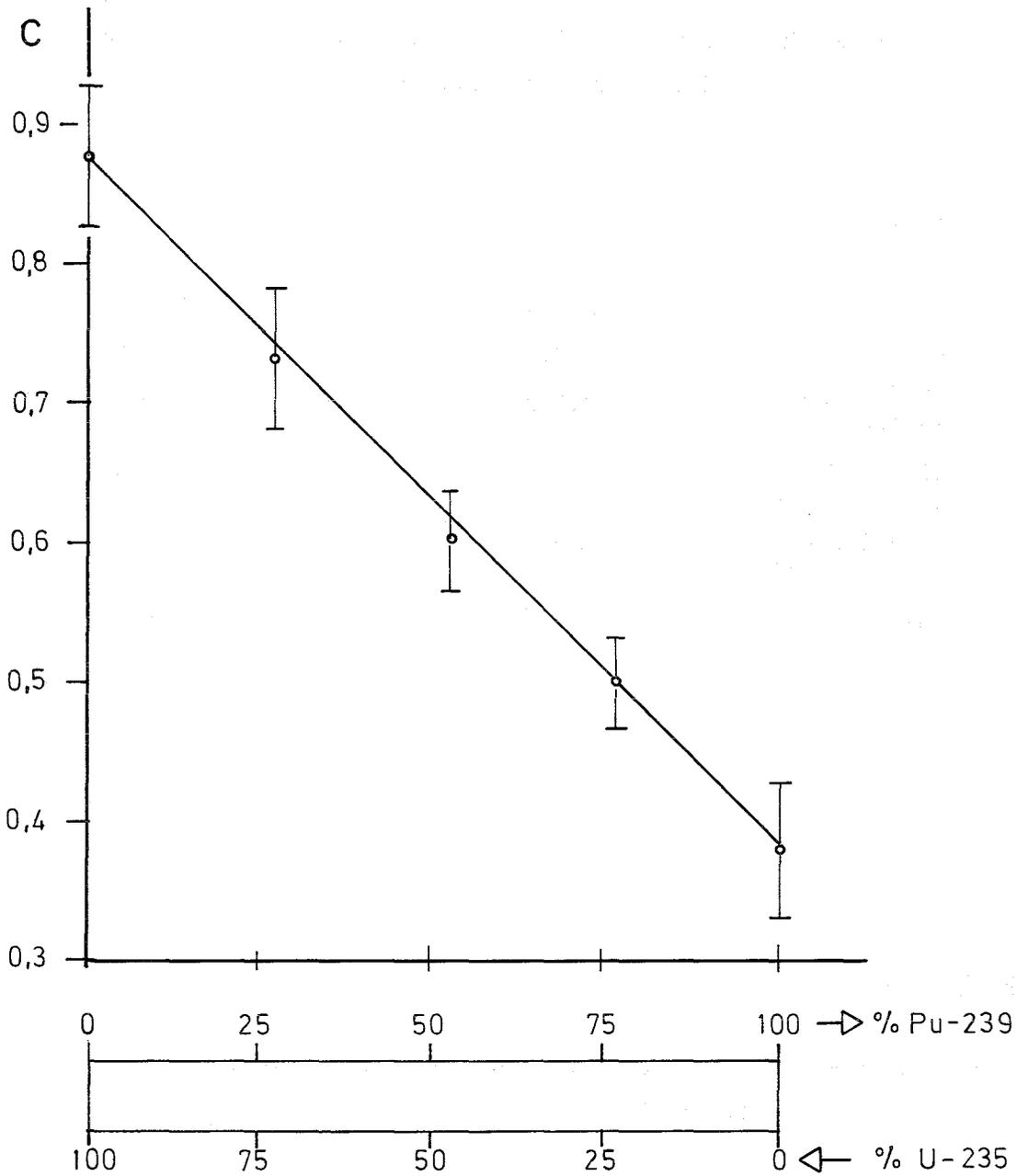
3.2.5.1 Tabelle 1

Relatives Verhältnis (C) der Linienintensitäten der 1836 keV-Linie des Rb-88 und der 1426 keV-Linie des Cs-138 zurückgerechnet auf den Zeitpunkt der Entgasung.

Probe	C	$\sigma$
U-233	1.444	0.136
U-235	0.875	0.050
27.86% Pu-239 72.14% U-235	0.728	0.054
52.58% Pu-239 47.42% U-235	0.605	0.037
77.46% Pu-239 22.54% U-235	0.495	0.029
Pu-239	0.376	0.052

Literatur zu 3.2.5.1

- /1/ Projekt Spaltstoffflußkontrolle Jahresbericht 1970  
KFK 1429, Seite 176 (1971)



3.2.5.1 Abb.1: Abhängigkeit des relativen Verhältnisses der Linienintensitäten bei 1836 und 1426 keV von der Zusammensetzung der Probe.

### 3.2.5.2 Verbesserung und Teilautomatisation der oxidimetrischen Plutoniumkonzentrationsbestimmung

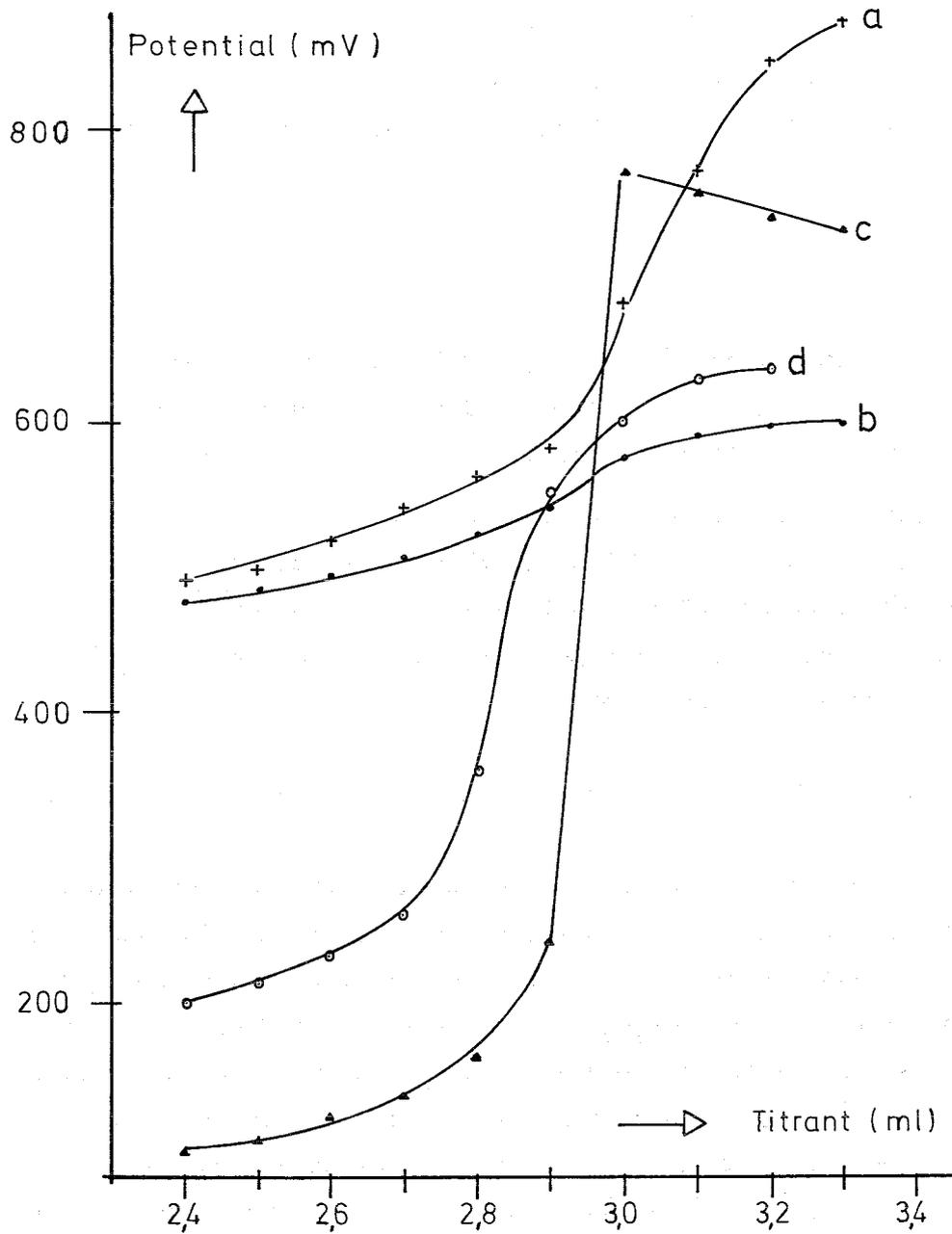
E. Mainka, W. Coerdts und W. König

Institut für Radiochemie, Kernforschungszentrum Karlsruhe

Die potentiometrische Bestimmung von Plutonium wird seit Jahren in unserem Laboratorium routinemäßig ausgeführt /1/. Die einzelnen Reaktionsschritte dabei sind die folgenden:

1. Plutonium wird mit AgO zu Pu-VI oxidiert
2. Pu-VI wird mit Fe-II-Überschuß zu Pu-IV reduziert
3. Der Fe-II-Überschuß wird mit Ce-IV zurücktitriert
4. Der Endpunkt wird potentiometrisch mit einem Platin-Hg<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>-Elektrodensystem bestimmt.

Wie die Diskussionen nach einem Interlaboratoriumstest /3/ gezeigt haben, ist die Art des Titrationsmittels von großer Bedeutung. In unserem Verfahren ist die Instabilität der Cer-Lösung ein schwacher Punkt. Der Einsatz eines stabileren Oxidationsmittels wäre hier wünschenswert. Wir haben deshalb zunächst versucht im 3. Reaktionsschritt K<sub>2</sub>Cr<sub>2</sub>O<sub>7</sub>-Lösung anstelle von Ce-IV-Lösungen zu verwenden. Der Potentialsprung am Äquivalenzpunkt betrug unter den gegebenen Bedingungen nur 50 mV, sodaß eine bessere Reproduzierbarkeit des Analysenverfahrens auf diesem Wege zunächst nicht erzielt werden konnte. Eine Verbesserung der Endpunktsanzeige kann man aber dann erreichen, wenn man das Meßelektrodensystem dem Redoxsystem der Analyse besser anpaßt. Pietri /2/ empfiehlt zur Potentialanzeige bei der Fe-II-Titration mit K<sub>2</sub>Cr<sub>2</sub>O<sub>7</sub> polarisierte Goldelektroden zu verwenden. In einer Arbeitsbeschreibung des Interlaboratoriumstests /3/ wird außerdem das Elektrodensystem Platin/Wolfram erwähnt. Wir haben beide Verfahren untersucht. Abb.1 zeigt eine Gegenüberstellung der einzelnen Titrationskurven bei gleichen Konzentrationsverhältnissen. Man sieht, daß Fe-II sowohl mit der polarisierten Goldelektrode als auch mit dem Elektrodensystem Platin/Wolfram gut gemessen werden kann. Der



3.2.5.2 Abb.1: Potentialkurven für die Titration von  $\text{Fe}^{2+}$ .  
a) mit Ce-IV (Elektrodensystem Pt/ $\text{Hg}_2\text{SO}_4$ )  
b) mit  $\text{K}_2\text{Cr}_2\text{O}_7$  (Elektrodensystem Pt/ $\text{Hg}_2\text{SO}_4$ )  
c) mit  $\text{K}_2\text{Cr}_2\text{O}_7$  (Elektrodensystem Au polarisiert)  
d) mit  $\text{K}_2\text{Cr}_2\text{O}_7$  (Elektrodensystem Pt/W )

Potentialsprung an der Platin/Wolfram-Elektrode bei der Fe-II-Titration mit Kaliumdichromat ist dem der Ce-IV-Titration an der Pt-Hg<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>-Elektrode vergleichbar. Mit den polarisierten Goldelektroden ist zwar ein größerer Potentialsprung zu erhalten, die Auswertung der Potentialkurve ist aber nicht einfach. Eine Titration mit dem Titroprint E 475, mit dessen Hilfe das Verfahren teilautomatisiert werden soll ist nicht möglich, da das Gerät einen rückläufigen Kurvenverlauf nicht verarbeiten kann. Durch die Einführung von K<sub>2</sub>Cr<sub>2</sub>O<sub>7</sub> als Titrationsmittel und die Durchführung der Titration mit dem Titrierautomaten Titroprint unter Verwendung des Elektrodensystems Platin/Wolfram, konnte die Analysenmethode verbessert werden. Z.Zt. arbeiten wir nach folgender Vorschrift:

1. Die Plutoniumlösung wird eingewogen (ca. 10-15 mg Pu)
2. Durch AgO-Zugabe wird alles Plutonium zu Pu-VI oxidiert
3. Überschüssiges AgO wird durch Zugabe von 1 ml 4,5 M Aminosulfonsäure (AMS) zerstört.
4. Pu-VI wird mit Fe-II reduziert. Die Potentialänderung bei der Zugabe von Fe-II wird mit einem Milivoltmeter beobachtet. Ein etwa 20%iger Überschuß an Fe-II-Lösung wird zugegeben.
5. Der Überschuß an Fe-II wird mit K<sub>2</sub>Cr<sub>2</sub>O<sub>7</sub>-Lösung zurücktitriert. Die Titration wird mit dem Titroprint E 475 unter Verwendung des Elektrodensystems Platin/Wolfram durchgeführt.

Mit dieser Arbeitstechnik wurden relative Standardabweichungen von  $1 \sigma = 0.06\%$  erzielt.

#### Literatur zu 3.2.5.2

- /1/ Lindner L. und A. von Baeckmann; KFK 701 (1967)
- /2/ Pietri C.E.; Talanta 6, 159 (1960)
- /3/ Joint Integral Safeguards Experiment (Jex 70) KFK 1100, EUR 4576e S.7-44 (1971)



**Kapitel 4: Containmentmaßnahmen**

**4.1 Arbeiten am Accountabilitytank**

**D. Nentwich, IASR**

**4.2 Brennelementversiegelung und Identifikation**

**G. Bork, IASR**

**Literaturverzeichnis zu Kapitel 4**

1998-1999

1999-2000

2000-2001

2001-2002

2002-2003

2003-2004

2004

2005

2006

2007

2008

2009

2010

2011

2012

2013

2014

2015

2016

2017

2018

2019

2020

2021

2022

2023

2024

2025

2026

2027

2028

2029

2030

2031

2032

2033

2034

2035

2036

2037

2038

#### 4. Containmentmaßnahmen

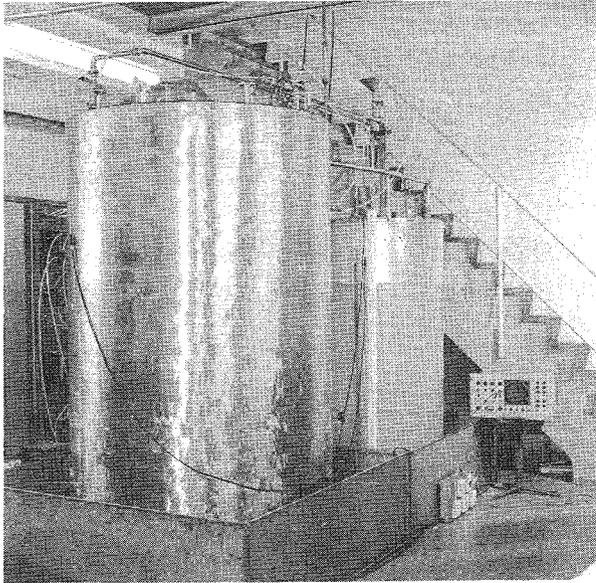
##### 4.1 Arbeiten am Accountabilitytank

Der im Jahre 1970 vorgelegte Arbeitsplan zu speziellen Untersuchungen des Problemkreises Eingangsmessung in einer Wiederaufarbeitungsanlage fand bei der IAEA so großes Interesse, daß diese sich in Form eines Forschungsvertrages (No. 990/RB) finanziell an den Aufwendungen beteiligt. Die für den Vertragszeitraum vom 1.2.71 bis 31.1.72 vorgesehenen Arbeiten konnten bis Ende 1971 zu einem Teil abgeschlossen werden.

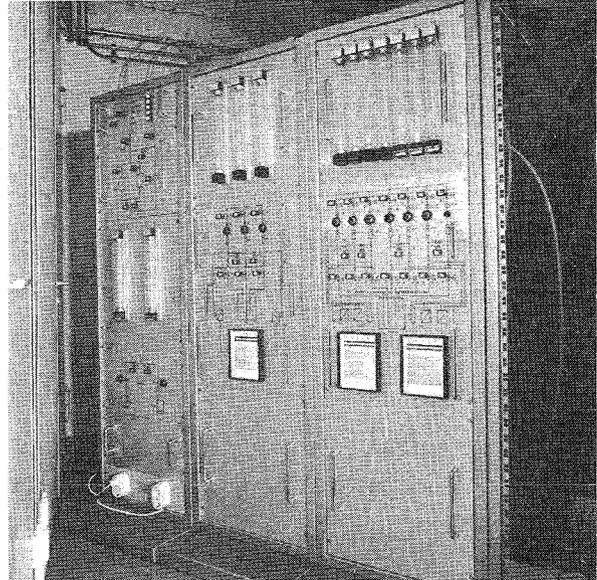
##### Zu untersuchende Problemkreise

Die Arbeiten, welche an einem Versuchsaufbau auszuführen sind, lassen sich in folgende Kategorien einteilen:

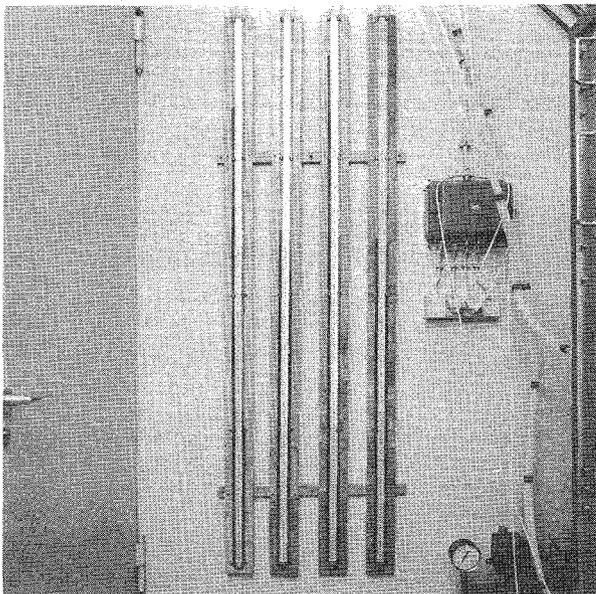
1. Entwicklung und Erprobung eines Meßsystems zum Nachweis von Flüssigkeiten in geschlossenen Behälteranschlußrohren.
2. Entwicklung und Erprobung der Tracertechnik als unabhängige Meßmethode zur Verifikation der Behälterkalibrierdaten und zur Messung des Spaltstoffinventars des Eingangsmeßbehälters.  
  
Dazu gehören Untersuchungen einer Reihe von damit zusammenhängenden Problemkreise wie:
  - a) Erzeugung exakter Kalibrierdaten zur Ermöglichung des Vergleichs herkömmliche Methode - Tracermethode
  - b) Untersuchungen zur Frage örtlicher Inhomogenitäten in der Behälterlösung
  - c) Untersuchungen zur Frage der Repräsentanz der Probe in Abhängigkeit von der Rezirkulationszeit am Probenahmesystem
  - d) Untersuchungen zur Effektivität des Luftmischers.
3. Untersuchungen zur Eingriffssicherheit der derzeitigen Instrumentierung.



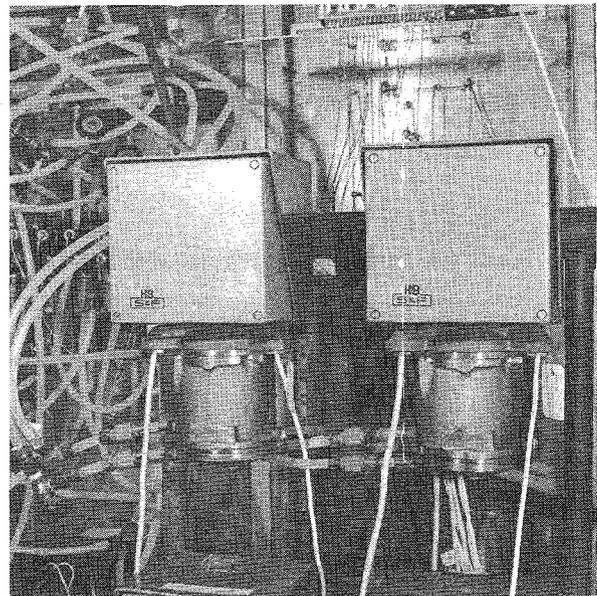
Im Vordergrund Tank II, dahinter Tank I, beide in den dazugehörigen Auffangwannen.



Die Bedienungsinstrumentierung für Tank I und Tank II (Panel).



U-Rohr-Manometer für Füllstand und Dichte.



Meßwertumformer (Transmitter) für Füllstand und Dichte von Tank II.

### Aufbau der Versuchsanlage

Der Versuchsaufbau besteht aus 2 Ringspaltbehältern, der eine mit dem äußeren Mantel aus Plexiglas, der andere besteht gänzlich aus Edelstahl. Beide sind Modelle im Maßstab 1:1 des Eingangsmeßbehälters der WAK. Tank I wurde bereits früher für verfahrenstechnische Untersuchungen im IHCh verwendet. Am Edeltank (Tank II) werden Verformungsphänomene untersucht, sowie Tracerversuche mit Uranyl nitrat durchgeführt werden. Beide Tanks sind mit der herkömmlichen Instrumentierung versehen (Tauchrohre, Transmitter, Recorder, U-Rohre, usw.), Tank II hat zusätzlich 4 Probenahmesysteme und 2 weitere Dichtetauchrohrsysteme zur Untersuchung örtlicher Inhomogenitäten. In Abb. 4.1/1 werden beide Tanks und die dazugehörige Instrumentierung gezeigt.

### Flüssigkeitsmeßsonde

Frühere Untersuchungen ergaben, daß in heute existierenden Anlagen die Möglichkeit besteht, Eingangslösung mit Hilfe der bestehenden Einrichtungen durch den Eingangsmeßbehälter unkontrolliert durchzuschleusen, z.B. dadurch, daß beim Füllen des Behälters gleichzeitig abgepumpt wird. Zum Nachweis eines solchen Vorgangs würde es genügen, wenn der Nachweis für gleichzeitiges Vorhandensein von Flüssigkeit in mehr als einem Behälteranschlußrohr erbracht wird.

Ein hierfür zu verwendendes Meßsystem muß im wesentlichen folgende Bedingungen erfüllen: der Nachweis muß durch die unverletzten, geschlossenen Edelstahlrohre hindurch erfolgen, und die Meßsonde muß strahlen- und korrosionsbeständig sein. Die Wahl fiel nach Untersuchung verschiedener Meßsysteme auf eine Anordnung auf der Grundlage der Ultraschallmessung, wie sie gegenwärtig hauptsächlich in der zerstörungsfreien Materialprüftechnik verwendet wird /1/, /2/.

Zentrale Einheit der Meßapparatur ist das serienmäßige Prüfgerät ECHOSKOP MPT 10 der Fa. KLN - Dr. Lehfeldt in Heppenheim, Bergstraße. Daran angeschlossen ist ein Meßstellenumschalter, der im Takt bis zu 8 Meßköpfe automatisch abfragen kann. Ergänzt wird die Anlage durch eine Speichereinheit, welche die positiven Signale der Meßsonden speichert und vergleicht und beim gleichzeitigen Eintreffen zweier Signale von verschiedenen Meßsonden einen Alarm auslöst.

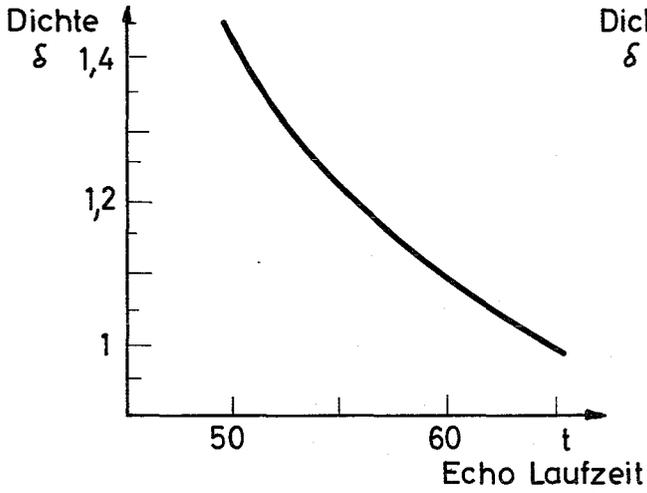


Abb. 4.1/2 Abhängigkeit der Echo-laufzeit von der Flüssigkeitsdichte

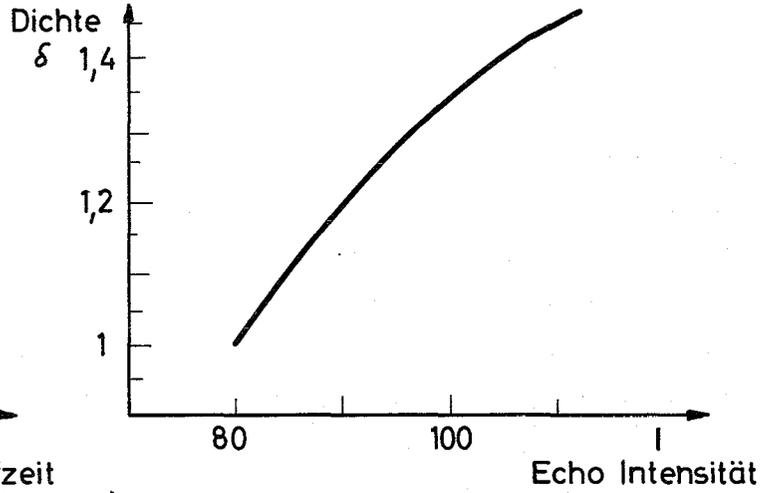


Abb. 4.1/3 Abhängigkeit der Echo-intensität von der Flüssigkeitsdichte

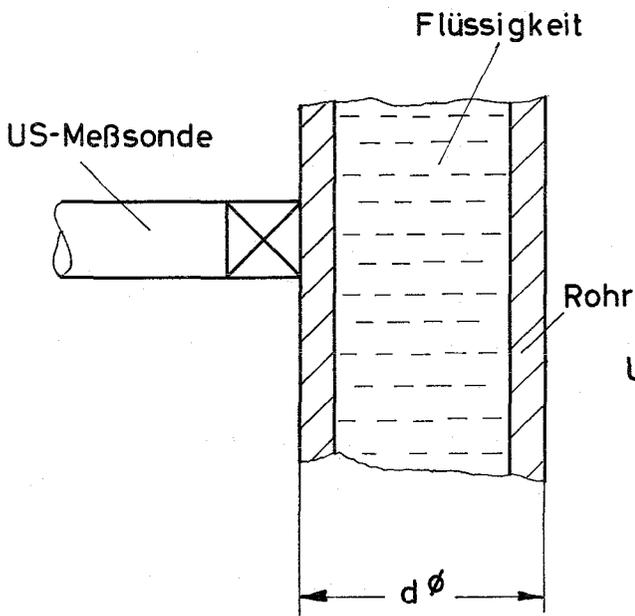


Abb. 4.1/4 Überwachung eines Rohres mit Durchmesser  $d$  (schem.)

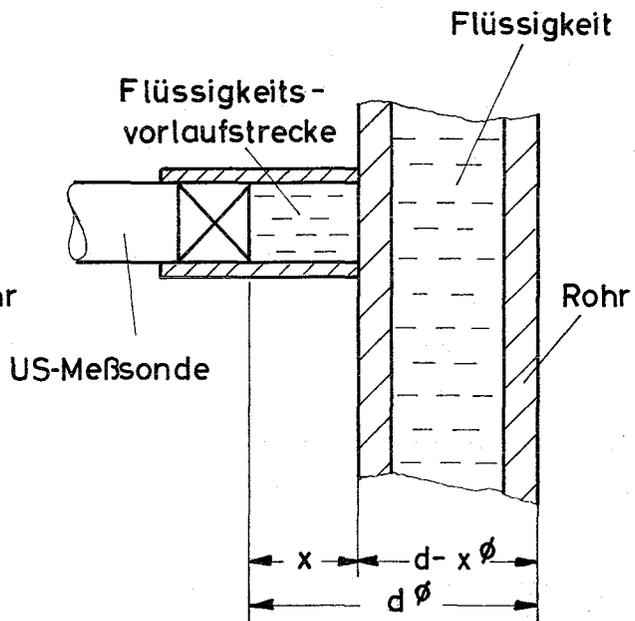


Abb. 4.1/5 Überwachung eines Rohres mit Durchmesser  $d-x$  (schem.)

Bei Versuchen zur Festlegung der Funktionsgrenzen der Meßanordnung wurde festgestellt, daß die Meßsonden bis zu Temperaturen von 70°C funktions-tüchtig bleiben. Da am Eingangsmeßbehälter auch höhere Temperaturen auftreten können, wurde mit dem Meßsondenhersteller vereinbart, eine höher belastbare Meßsonde zu entwickeln. Bei der Messung von Gemischen verschiedener Medien (Luftblasen in Wasser, wie sie beim air-lift vor- kommen) konnte festgestellt werden, daß beim Durchwandern der Luft- blasen durch den Schallgang das Rückwandecho, welches sich nur bei voll- ständig gefülltem Rohr bildet und welches zur Unterscheidung der Zustände Voll-Leer verwendet wird, kurzzeitig ausgeblendet wird. In dem Abfrage- rhythmus von 1,5 sec pro Meßsonde konnte jedoch immer ein positives Signal empfangen werden, was darauf hindeutet, daß auch air-lift Strecken überwacht werden können. Außerdem wurde der Einfluß der Flüssigkeits- dichte auf das Meßsignal untersucht und dabei nachgewiesen, daß bei stei- gender Dichte die Echolaufzeit kürzer (siehe Abb. 4.1/2) und die Echointen- sität höher wird (siehe Abb. 4.1/3).

Der Echomonitor erlaubt die Ausblendung eines Fensters, welches in Breite (Laufzeit) und Höhe (Echointensität) verstellbar ist und auf der Laufzeit- achse verschoben werden kann. Alle Echoimpulse, welche in dieses Fenster fallen und eine bestimmte Echointensität überschreiten, werden als ein positives Meßsignal gewertet. Bei konstant eingestelltem Monitor und bei Abfrage verschiedener Meßsonden muß der zur Meßsignal-Auslösung benötigte Echopeak in das ausgeblendete Fenster fallen. Da dies bei einer Überwachung von Rohren verschiedener Durchmesser nicht der Fall ist, wurde die Echo- laufzeit auf ein Maß normiert, in dem bei kleineren Rohrdurchmessern eine Flüssigkeitsvorlaufstrecke vorgekoppelt wurde. Die Anordnungen werden in Abb. 4.1/4 und 4.1/5 schematisch dargestellt.

Die gesamte Apparatur wurde aufgebaut und insgesamt 7 Meßköpfe an geeigneten Stellen der Zu- und Abflußrohre der beiden Tanks montiert. Bei simulierten Eingangsmessungen konnte ein zufriedenstellendes Funktionieren der Meßanlage festgestellt werden.

## Tracer

Durch Zugabe einer genau bekannten Menge eines Elements als Tracer zum Inhalt des Eingangsmeßbehälters und anschließender Homogenisierung kann einmal durch Messung der Tracerkonzentration (g/l) die sich im Augenblick im Behälter befindliche Lösungsmenge bestimmt werden (Verifikation eines Kalibrierpunktes). Zum anderen ist es möglich, durch Analyse des Verhältnisses Tracer zu Spaltstoff letzteren direkt zu bestimmen (unabhängige Eingangsmessung).

Aufgrund von eigenen Erfahrungen bei durchgeführten Vorversuchen, und wie auch von anderen berichtet wird, besteht die Hauptschwierigkeit in der vollständigen Einbringung des Tracers in den Tank. Es wurde versucht, kleinere Mengen Tracer über das Probenahmesystem einzuspülen, dieses Verfahren erwies sich bisher jedoch als unbefriedigend, da der Vorgang lange Zeit in Anspruch nimmt.

Ausgehend davon, daß sich geringe Verluste von Tracer bei Verwendung von insgesamt kleinen Tracermengen stärker auswirken als bei Verwendung größerer Tracermengen, wurden zwei Wege beschritten:

1. Verwendung von Tracermengen von ca. 1 kg ( $\hat{=}$   $\approx$  1 g Tracer/l Lösung). Geeignet zur Kalibrierverifikation bzw. zur Spaltstoffbestimmung, falls diese großen Mengen den Prozeßablauf nicht störend beeinflussen.
2. Verwendung von kleinen Tracermengen ( $\approx$  10-20 mg) mit dem Ziel, diese in fester Form (z.B. eingeschlossen in einer geeigneten vom Behälter auflösbaren Kapsel) in den Tank einzuführen.

Im Zusammenhang mit den Tracerversuchen wurde eine Reihe angrenzender Probleme untersucht.

### 1. Kalibrierung der Behälter

Um die Ergebnisse der Tracerversuche mit denen der herkömmlichen Differenzdruckmessung zu vergleichen, wurde insbesondere der Edeltank sorgfältig geeicht. So konnte die Eichgerade mit einer Genauigkeit von  $\pm 0,16$  %

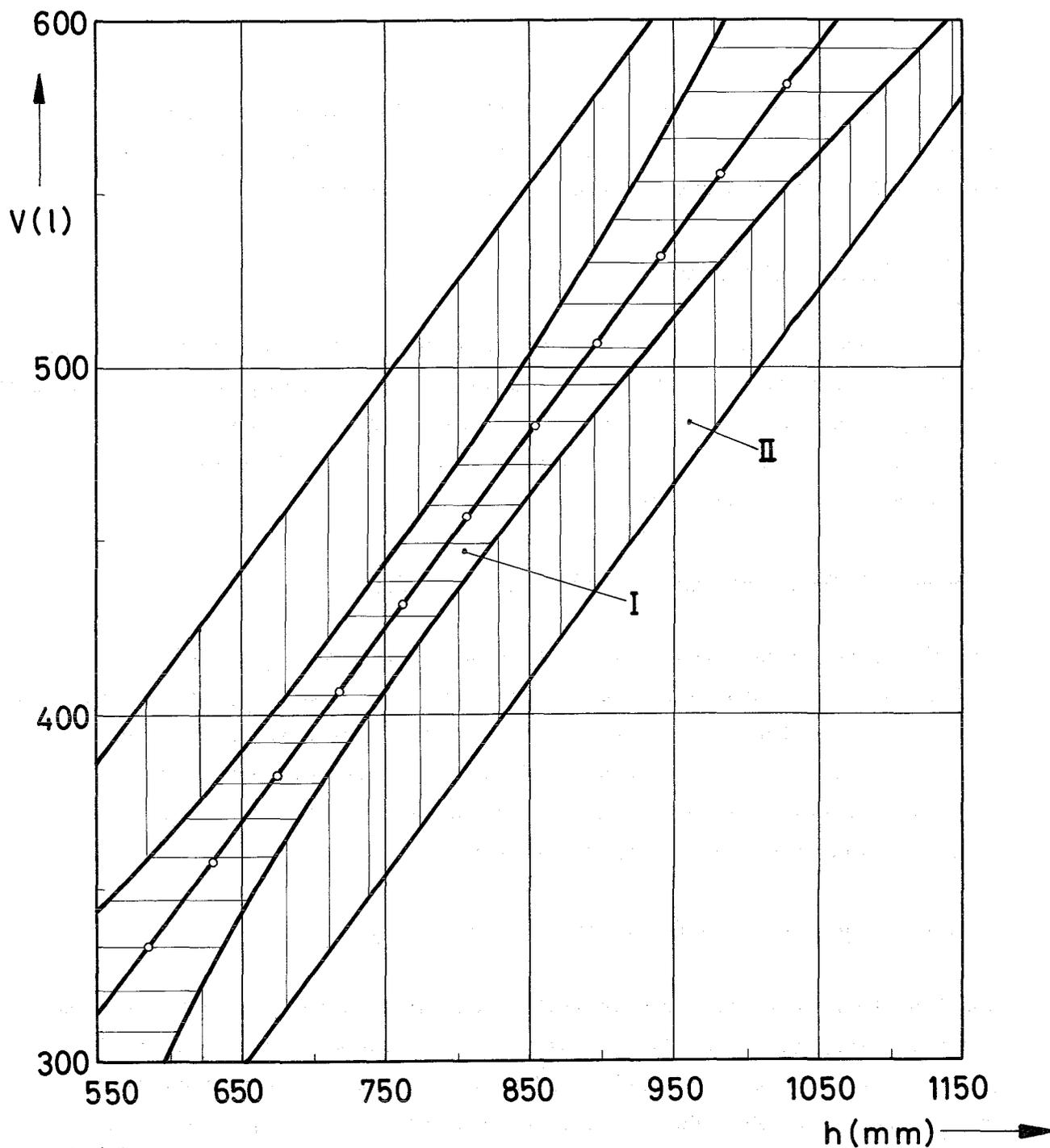


Abb. 4.1./6

Teilbereich der Kalibriergeraden mit  
100 fach vergrößertem Konfidenzbereich für I. Kalibrierung,  
20 fach vergrößertem Konfidenzbereich für II. Messung  
nach Kalibrierung.

erstellt und ein 95 %-Konfidenzintervall für die Volumenmessung von 0.7 % errechnet werden. Abb. 4.1/6 zeigt die Kalibriergerade für den Bereich von 300-600 l mit den eingetragenen Konfidenzbereichen.

## 2. Örtliche Inhomogenitäten

Zur Untersuchung örtlich verschiedener Inhomogenitätsverteilungen des zugeführten Tracers wurden nach dessen Zugabe an verschiedenen Stellen im Behälter Proben gezogen, die auf die Tracerkonzentration hin analysiert wurden. Die Auswertung der bisher vorliegenden Ergebnisse weist im Mittelwert eine Inhomogenität von 1,88 % aus.

## 3. Untersuchungen zur Repräsentativität der Probe

Dem mit Tracer versetzten Tankinhalt wurden im Abstand von jeweils 5 min Proben entnommen. Abb. 4.1/7 zeigt den Konzentrationsanstieg des Tracers (Zn) in der Probe abhängig der Zeit. Der Graphik kann entnommen werden, daß nach ca. 15 min Zirkulationszeit eine repräsentative Probe entnommen werden kann. Auch hier konnte zwischen den drei letztgezogenen Proben eine Inhomogenitätsschwankung von 0,8 % festgestellt werden.

## 4. Untersuchungen zur Effektivität des Luftmischers

Zur Schaffung extremer Inhomogenitätsverhältnisse wurden ca. 300 l Kaliumkarbonatlösung ( $\rho \approx 1,5 \text{ g/ml}$ ) in den Behälter gegeben. Sodann wurde die gleiche Menge Wasser vorsichtig darüber geschichtet, um eine vorzeitige Durchmischung zu vermeiden. Es sollte festgestellt werden, nach welcher Zeit beide Flüssigkeiten mit Hilfe des Luftmischers homogen vermischt werden. Gemessen wurde die elektrische Leitfähigkeitsänderung kurz unterhalb der Flüssigkeitoberfläche. Abb. 4.1/8 zeigt die Leitfähigkeitsänderung in Abhängigkeit von der Zeit. Die Auswertung ergibt, daß nach ca. 7 min Homogenität erreicht ist.

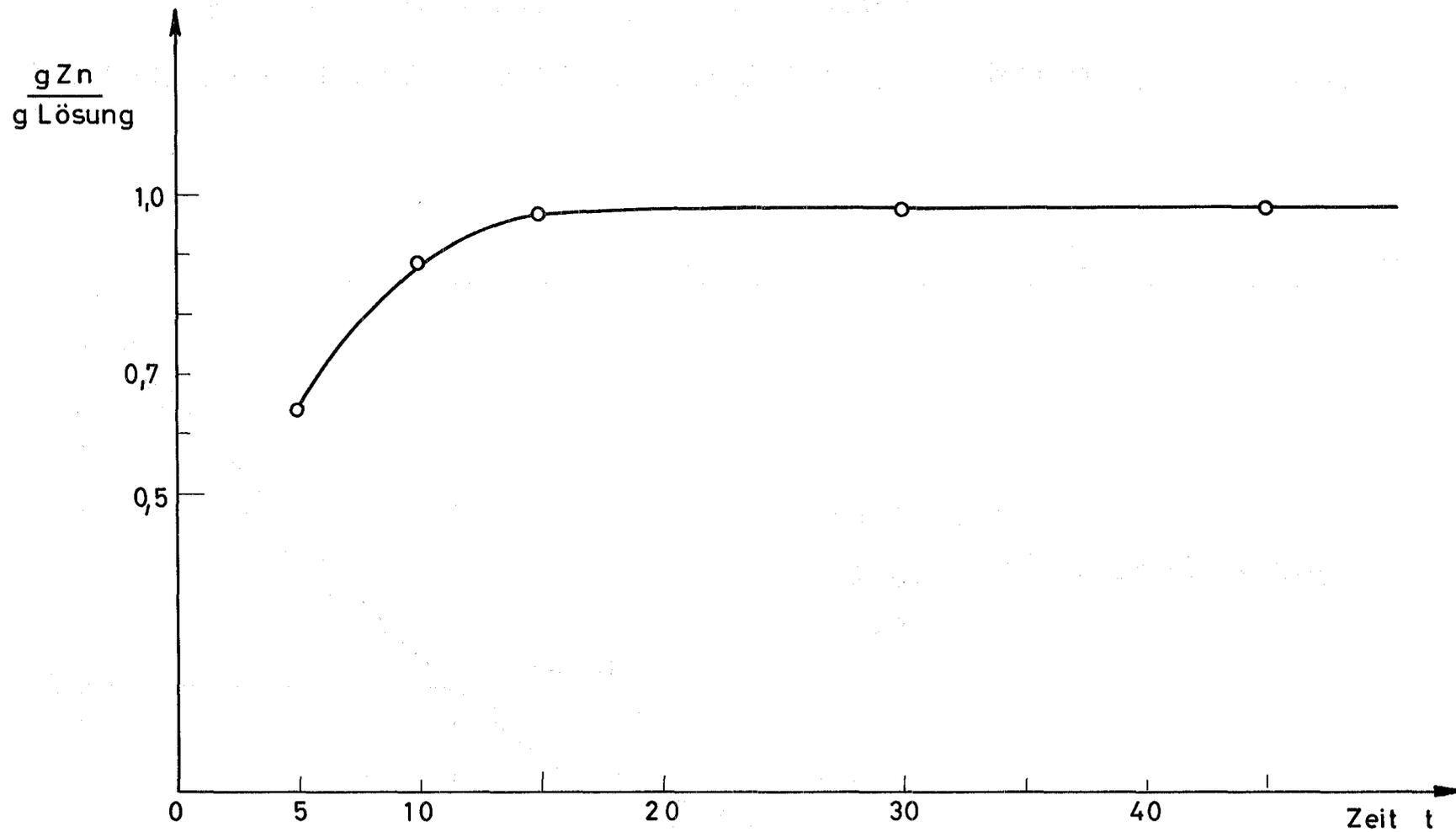


Abb. 4.1.17 Konzentrationsänderungen in Abhängigkeit von der Rezirkulationszeit

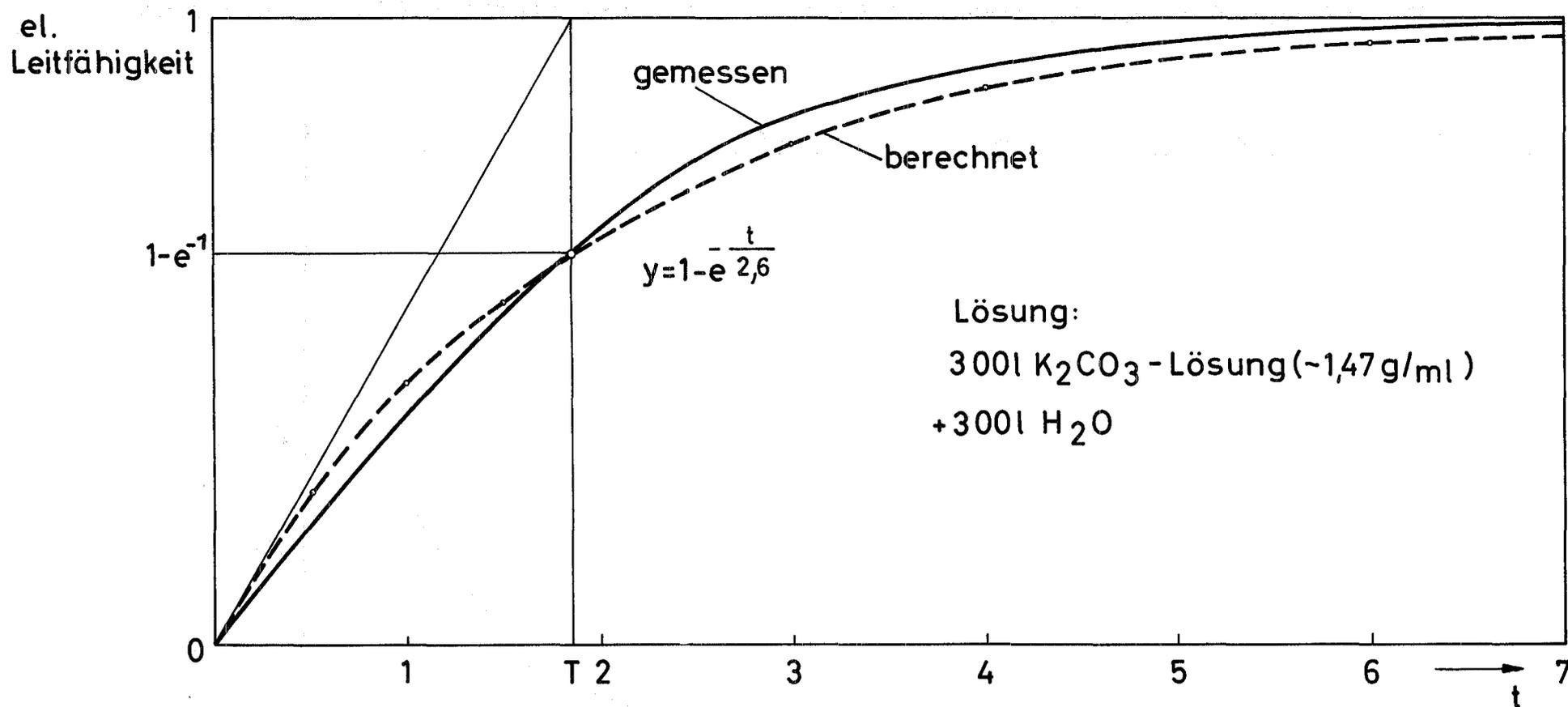


Abb. 4.1./8 Ermittlung des Zeitbedarfs zur Homogenisierung zweier Flüssigkeiten verschiedener Dichte.

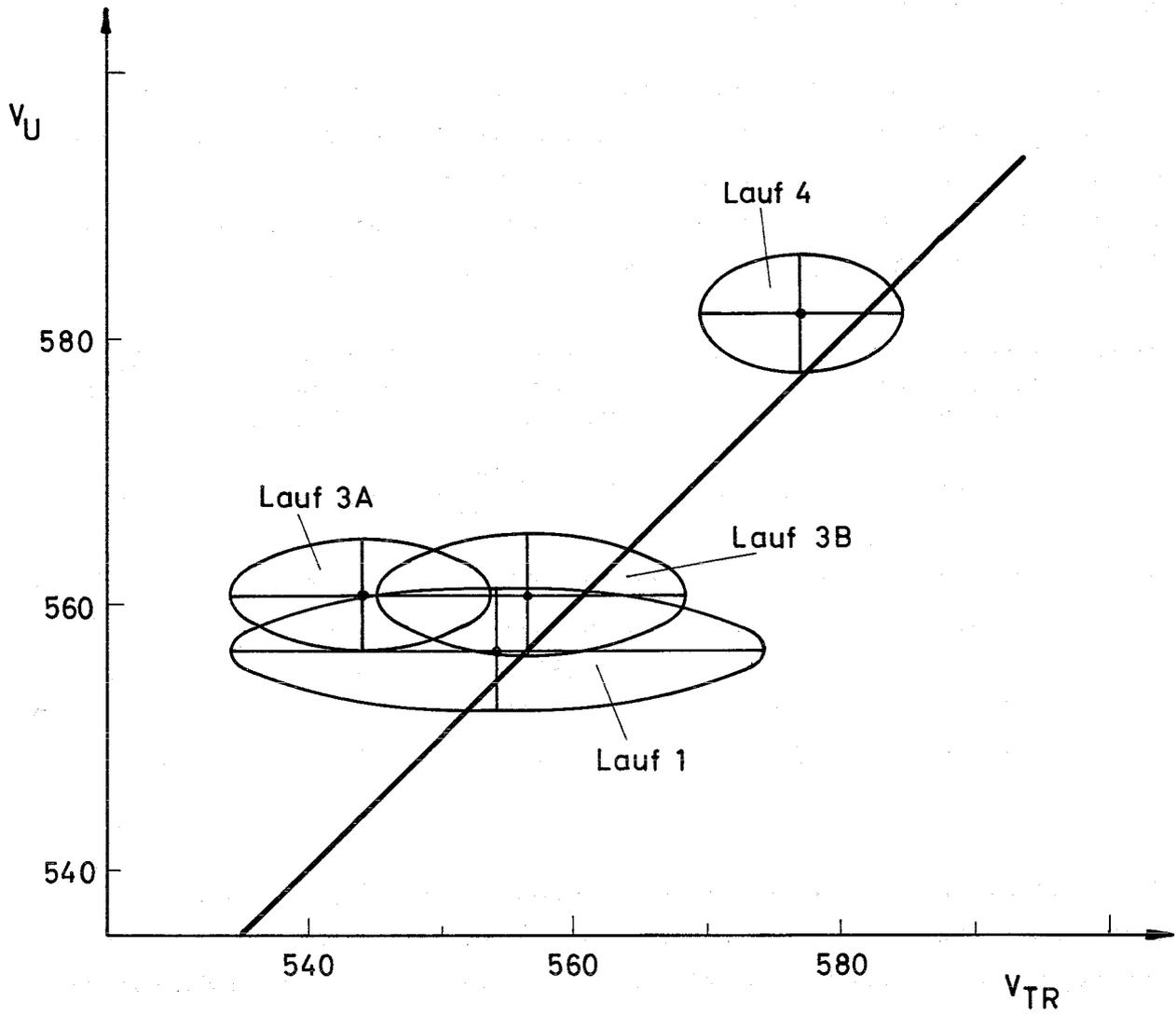


Abb. 4.1./9 Fehleranalyse der Volumenbestimmung mittels U-Rohr und mittels Tracer.

Ergebnisse der Tracerversuche

Aufgrund verschiedener Entscheidungskriterien wurde beschlossen, Zink als denjenigen Tracer zu verwenden, der in größeren Mengen dem Tank zugeführt wird. Die Zugabe des Zn erfolgte in Mengen von ca. 1 g pro Liter Tankinhalt. Die Zn-Konzentration wurde komplexometrisch bestimmt. Die folgende Tabelle enthält die wichtigsten Daten und Auswertungen:

Versuch Nr.	Tankinhalt gemessen per U-Rohr $G_U$ [kg]	Tracerzugabe $W_{TR}$ [g]	Analysierte Tracerkonzentration $C_A$ [ $\frac{g \text{ Zn}}{kg \text{ Lösung}}$ ]	Tankinhalt gemessen per Tracer $G_{TR}$ [kg]	$(1 - \frac{G_{TR}}{G_U}) \cdot 100$ [%]
1	556,4	553,7	0,9983	554,7	+ 0,32
2	377,4	351,4	0,9342	376,2	+ 0,33
3	560,6	536,0	0,9622	557,1	+ 0,63
4	582,2	602,8	1,045	576,8	+ 0,93

Eine entsprechende Fehleranalyse wurde durchgeführt. Abb. 4.1/9 zeigt die gemessenen Punkte mit den entsprechenden Fehlerbalken. Die bisher vorliegenden Ergebnisse zeigen eine deutliche Abhängigkeit der Tracerergebnisse von einer guten Homogenität der Lösung. Auffallend ist auch, daß alle Ergebnisse einen systematischen Fehler erkennen lassen: mittels U-Rohr wird entweder zuviel Volumen gemessen oder mittels Tracer zuwenig (bzw. eine zu hohe Tracerkonzentration). Diese Probleme werden weiter untersucht.

Auf der Suche nach einem geeigneten Analyseverfahren zum Nachweis geringster Tracerkonzentration fiel die Wahl auf das Neutronenaktivierungsverfahren. Für dieses Verfahren wiederum scheint das Element Rhenium als Tracer sehr geeignet zu sein. Es wurden bisher 4 Versuche durchgeführt, die lediglich die Durchführbarkeit dieser Methode testen sollten. Weitere Untersuchungen zur Inhomogenität, Probenalterung etc. sollen später durchgeführt werden.

Die folgende Tabelle zeigt die bisher erzielten Ergebnisse:

Versuch Nr.	Tankinhalt gemessen per U-Rohr	Tracerzugabe	Analysierte Tracerkonzentration	Tankinhalt gemessen per	$(1 - \frac{G_{TR}}{G_U}) \cdot 100$
	$G_U$ [kg]	[g]	$C_A$ [ $\frac{g \text{ Re}}{kg \text{ Lösung}}$ ]	$G_{TR}$ [kg]	[%]
1	367,5	0,010242	$26,0 \cdot 10^{-6}$	393,9	-7,2
2	367,5	0,010218	$28,4 \cdot 10^{-6}$	359,8	+2,1
3	569,0	0,015298	$26,88 \cdot 10^{-6}$	538,7	+5,3
4	548,4	0,015296	$31,55 \cdot 10^{-6}$	484,8	+11,6

Untersuchungen zur Eingriffssicherheit der derzeitigen Instrumentierung

Bei den durchgeführten Versuchen wurden speziell solche Eingriffe simuliert, welche ohne weitere Eingriffe mit Hilfe der installierten Apparaturen durchgeführt werden können. So konnte nachgewiesen werden, daß z.B. die Recorder bei einem Abfallen der Versorgungsspannung nicht mehr genau anzeigen, oder daß eine erhöhte Luftzufuhr zu den Tauchrohren eine verfälschte Füllstands- und Dichteablesung erzeugt. Die Arbeiten auf diesem Gebiet werden fortgesetzt.

#### 4.2 Brennelementversiegelung und Identifikation

Im Abschnitt 6.1.1 wird ausführlicher dargelegt, daß sich für die Kontrolle von Leichtwasserreaktoren ein statisches Konzept durchgesetzt hat. Dieses "statische Konzept" besagt folgendes: Wenn ein in geeigneter Weise realisierbares Identifizierungs- und Zählsystem für die zu überwachenden Einheiten existiert, so kann das Spaltstoffinventar durch Abzählen dieser Einheiten festgestellt werden. Als solche Einheiten können etwa die Brennstoff enthaltenden Pins angesehen werden, jedoch ist deren Anzahl verhältnismäßig groß: Für Siede- und Durckwasserreaktoren liegt sie zwischen 10 224 (Lingen) und 45 548 (Biblis I und Biblis II), für den geplanten SNR 300 beträgt sie 30 030 im Brutmantel und 25 519 oder 24 613 je nach verwendetem BE-Typ in der Spaltzone, zusammen also über 54 000. Eine Verminderung der Anzahl der zu überwachenden Objekte ist möglich unter Heranziehung der Tatsache, daß eine Reihe dieser Pins jeweils zu Bündeln (Brennelementen) zusammengefaßt ist. Dadurch ergeben sich Werte von einigen hundert Überwachungsobjekten je Reaktoranlage. Diese Reduktion ist aber an eine Voraussetzung geknüpft: Jedes Brennelement muß ein Individuum darstellen, d.h. ein einmal festgestellter Seinszustand muß entweder erhalten bleiben oder eine Veränderung muß als solche feststellbar sein. Mit einem Siegel, das schwer fälschbare Merkmale enthält und an geeigneter Stelle am Brennelement angebracht wird, ist obige Voraussetzung grundsätzlich erfüllbar. Bei der praktischen Ausführung ist außerdem zu beachten, daß das Siegel die Funktion des Brennelementes nicht behindern darf, möglichst einfach anzubringen und ebenfalls leicht und schnell zu identifizieren sein soll, um auch den Betriebsablauf einer Reaktoranlage nicht zu stören. Es ist klar, daß jeder Konstruktionstyp von Brennelementen eine für ihn passende Versiegelung benötigt, deshalb ist auch die parallele Ausarbeitung verschiedener Versiegelungssysteme unvermeidlich. Im folgenden sollen die bisher bekannt gewordenen Systeme beschrieben werden. Jedes System besteht aus 2 Gruppen von Teilen, nämlich dem Siegel und dem Identifizierungsgerät.

#### 4.2.1 Das AEG-System /3/ /4/

Bereits im Jahresbericht 1970 (S. 40) wurden die theoretischen Grundlagen dieses Systems dargestellt. Im Jahre 1971 wurden erstmals 2 Brennelemente des Kernkraftwerkes Lingen nach diesem System versiegelt. Wird über dieses Siegel die Hohlspule eines abgestimmten Oszillators geschoben, so verändert das Siegel die Grundfrequenz des Oszillators durch die Summe der in die Oszillatortspule eingebrachten magnetischen Massen, die aus folgenden Konstruktionsteilen besteht: Befestigungsmutter eines Brennstabes an der oberen Gitterplatte, dem diese Mutter überragenden Gewindestück, dem Verdrehsicherungsblech, mit seinen beiden hochgebogenen Fahnen, dem Siegelband, das die beiden Fahnen mechanisch verbindet und der Schweißstelle, mit der das Siegelband zu einem Ring verbunden wird (Abb. 4.2.1/1). Die Kombination aller zufällig entstehenden Fertigungstoleranzen der genannten Teile sowie deren räumliche Massenverteilung innerhalb des Meßvolumens ergeben zusammen die als Identifizierungsmerkmal dienende Frequenzänderung. Werden auf diese Weise mehrere BE-Stäbe des gleichen Elementes versiegelt, so entsteht durch die Kombination der Einzelmerkmale ein Kennzeichen, das für das gesamte BE charakteristisch ist (Abb. 4.2.1/2).

Ein solches Identifizierungskennzeichen kann nach Herstellung des Brennstabbündels und seiner Versiegelung am Ausgang der Fabrikationsanlage oder am Eingang der Reaktoranlage vom Inspektor aufgenommen und verwahrt werden. Spätere Nachmessungen sollten bei unverletztem Siegel das gleiche Bild wieder liefern und damit einen eindeutigen Identifikationsnachweis erbringen.

In Abb. 4.2.1/3 ist der mechanische Aufbau der 1971 erstellten Versuchsausführung des Siegelmeßgerätes dargestellt /4/. Es wird der Tastfinger mit den Schwingspulen über das Siegel geschoben. Dieser Teil der Meßeinrichtung ist an einem 4 m langen Tragrohr befestigt, dessen unteres Ende durch eine angeschweißte Tragplatte abgeschlossen ist. Im Zentrum der Platte ist der elektromagnetische Tastfinger eingeschraubt. Im Abstand von 35,6 mm (doppelter Brennstab-Abstand) ist ein Führungsstift eingeschraubt, der am unteren Ende eine Bohrung von 8 mm Durchmesser hat. Um beim Aufsetzen des Meßkopfes die Handhabung zu erleichtern, wurde eine Führungsplatte angebracht, in die der

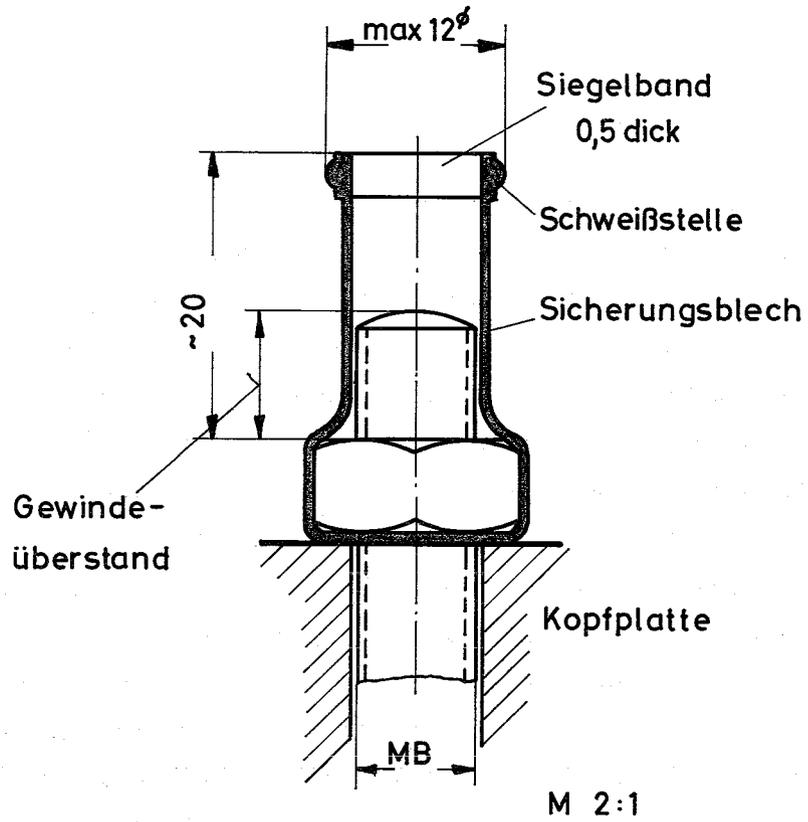


Abb.4.2.1/1 Siegelanordnung an KWL Brennstab

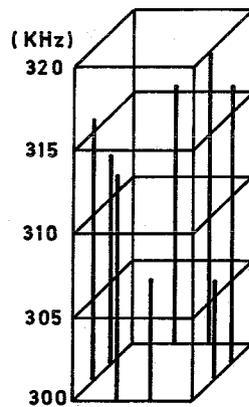


Abb.4.2.1/2 Oszillatormessungen an einem Bündel

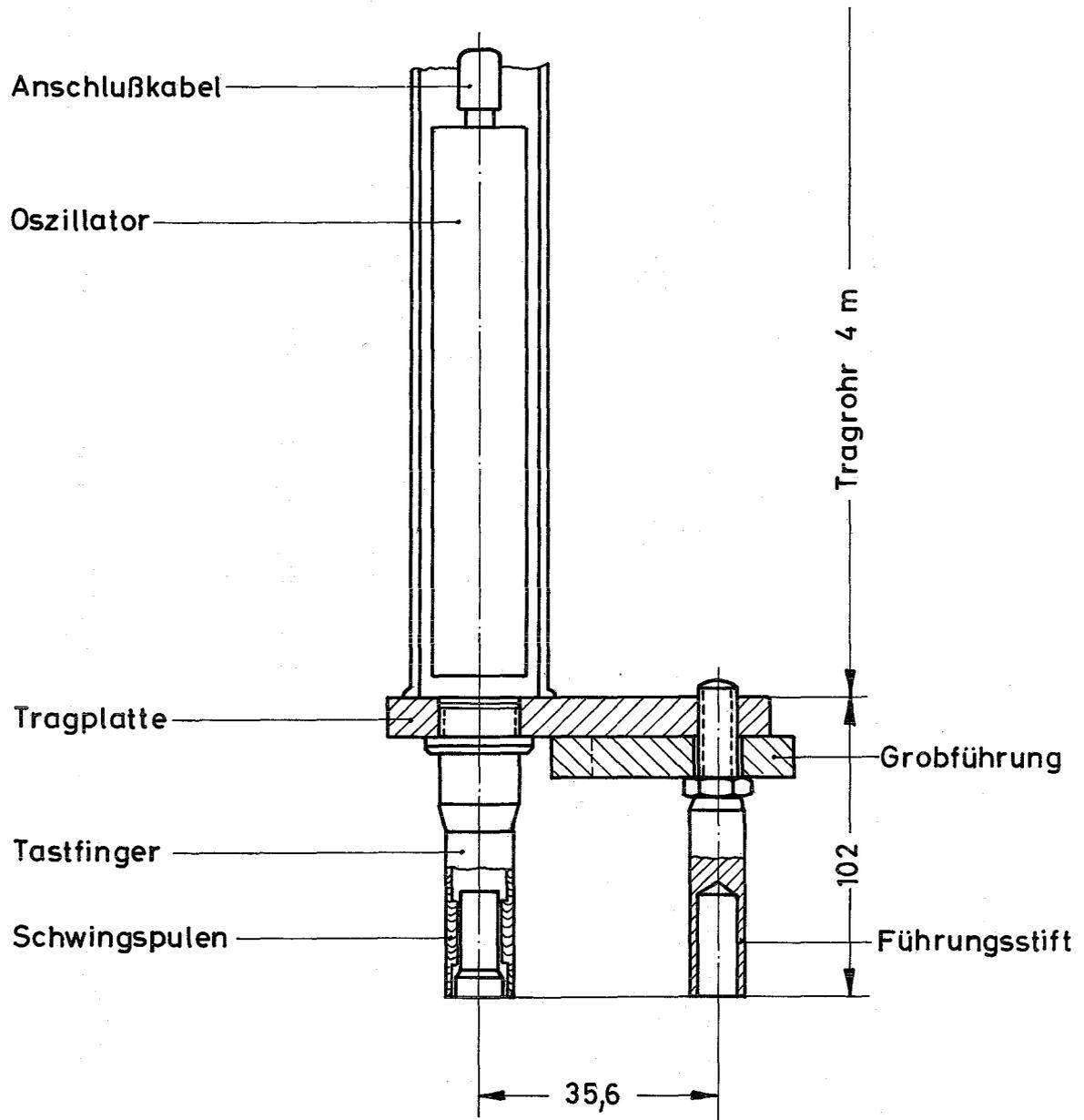


Abb.4.21./3 AEG-Siegelmeßgerät

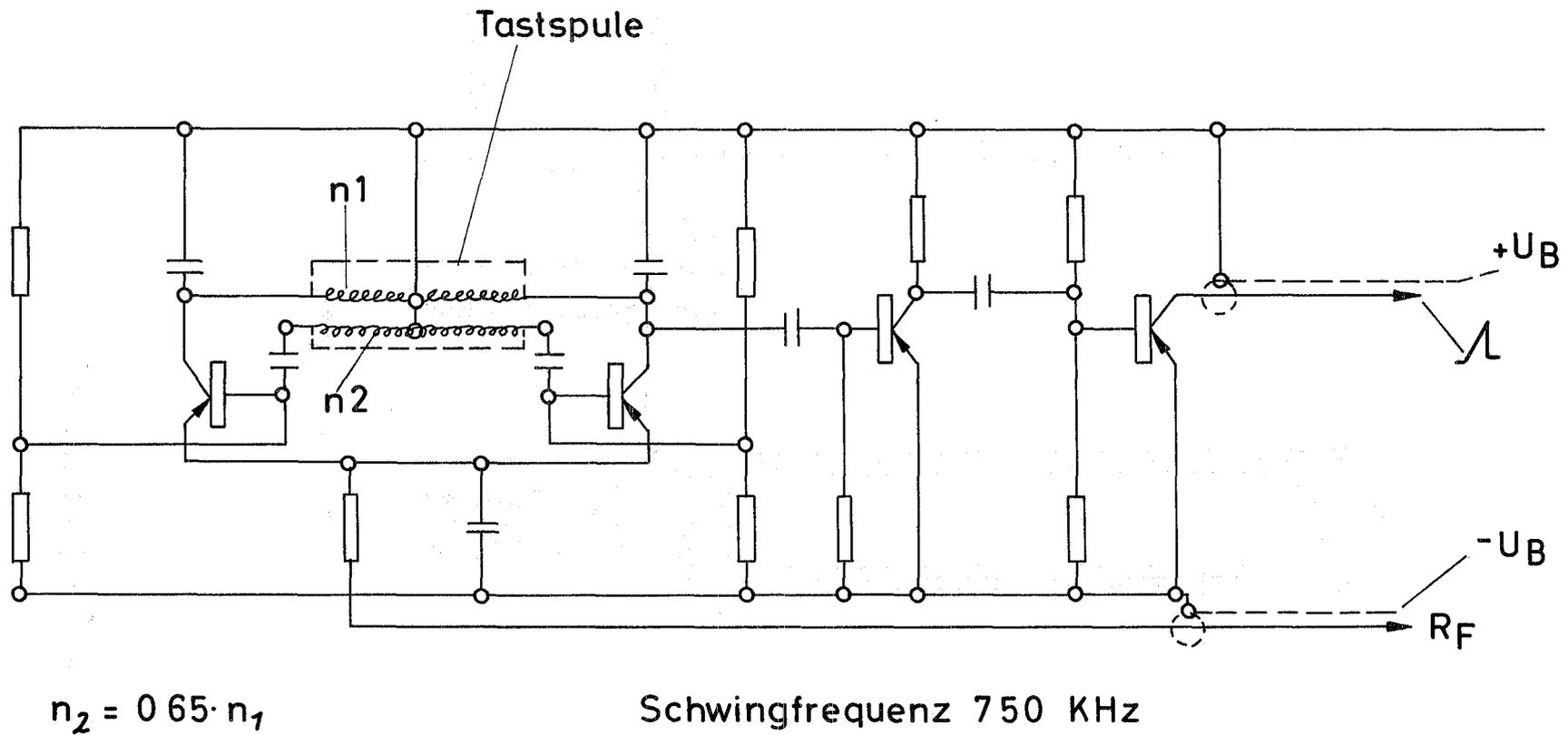


Abb.4.2.1/4 Oszillator für das Siegelmeßgerät Ausführung: KWL-Versuch

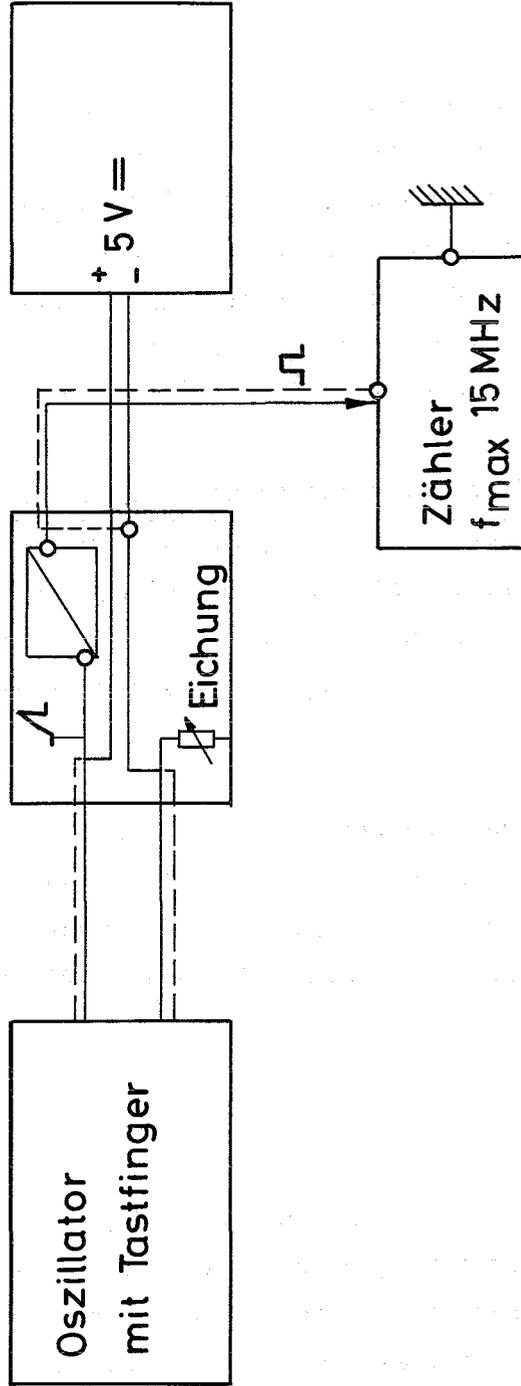


Abb.4.2.1./5 Anordnung für den Siegelmeßversuch an  
KWL-Bündeln

Tragbügel des Bündels seitlich hineingleiten kann. Der Tastfinger besteht aus einer Stahlhülse, (20 mm Außendurchmesser, 1 mm Wandstärke), in welche der Spulenträger aus Poliamid eingepreßt ist. Die Spule und ihre Anschlüsse sind in Silikon-Kautschuk vergossen.

Die Oszillatorschaltung (Abb. 4.2.1/4) wurde in einen Zylinder von 27 mm Durchmesser und 160 mm Länge eingebaut und ebenfalls vollständig mit Silikon-Kautschuk vergossen. Die Abdichtung der Verschraubung des Tastfingers in der Tragplatte wurde mit einer Gummidichtung und zusätzlicher Verwendung eines 2-Komponentenklebers erreicht. Als Verbindung zum Registriergerät bzw. Eichpotentiometer dienen 2 Koaxialkabel von 9 m Länge. Die Abschirmungen wurden als Leiter für die Versorgungsspannung benutzt.

Der Generator ist als Gegentakt-Oszillator aufgebaut. Die Frequenzeichung erfolgt über ein Potentiometer von außen, welches in das R-C-Glied in der Emitterleitung geschaltet ist. Die Schwingfrequenz wird über zwei Umkehrstufen ausgekoppelt. Der Arbeitswiderstand des letzten Transistors wurde im Eichkasten untergebracht, um die Kapazität der Verbindungsleitung zu kompensieren.

Die am Arbeitswiderstand auftretenden positiven Impulse werden durch einen monostabilen Multivibrator in Rechteckimpulse von 0,5 Mikrosekunden Länge umgewandelt und in ein Zählgerät eingespeist. Als Spannungsversorgung diente ein handelsübliches stabilisiertes Netzgerät. Funktionsschema der Anlage siehe Abb. 4.2.1/5.

#### 4.2.2 Das EURATOM-System /5,6,7/

Dieses System wurde im Euratom-Forschungszentrum Ispra entwickelt und sieht ebenso wie das AEG-System eine Blockierung einer oder mehrerer Schraubmuttern der Haltebrennstäbe der montierten Brennelementbündel mittels eindeutig identifizierbarer, fälschungssicherer Siegel vor. Diese Siegel sind kleine Stahlkörper, die einige willkürlich verteilte, mittels Ultraschall lokalisierbare Einschlüsse enthalten. Sie werden über die Haltestäbe geschoben und rasten dabei so in eine Nut ein, daß sie ohne Hinterlassung bleibender Spuren nicht mehr entfernt werden können. Abb. 4.2.2/1 zeigt ein Beispiel für die Anwendung der Methode.

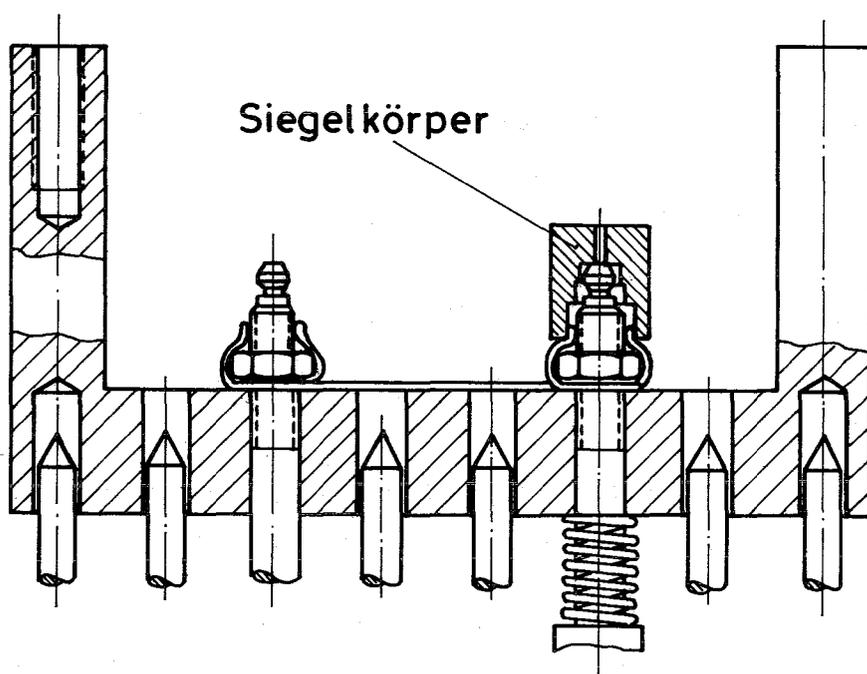


Abb. 4.2.2/1

Das Siegel ist so beschaffen, daß es möglich ist, es vom Brennelement zu entfernen, ohne seine Identitätskennzeichen zu zerstören und daß außerdem eine Wiederverwendung ausgeschlossen bleibt. Dies wird durch eine spezielle Ausbildung des im Innern des Siegels befindlichen Halterings erreicht, der eine nicht rückgängig zu machende Befestigung des Siegels garantiert und der den oberen Teil des Haltebrennstabs absichert, wenn am Siegel ein starker Zug ausgeübt wird. Nach dem Abreißen verbleibt im Inneren des Siegels außer dem Haltering dieser obere Teil, ohne damit die Funktionsfähigkeit des verbliebenen Teils zu beeinträchtigen. Metallteile, die sich zwischen die Brennstäbe setzen könnten, entstehen nicht. Wenn es nötig ist, auf einem Brennelement nach der Abnahme des Siegels ein neues, zweites Siegel zu befestigen, wird dazu ein anderer Haltebrennstab verwendet. Das Siegel besteht aus rostfreiem Stahl, in den bei der pulvermetallurgischen Herstellung zur Markierung Einschlüsse eingebracht wurden. Diese Einschlüsse bestehen z.B. aus Stücken von Wolframdraht von 1 mm Durchmesser und 1-2 mm Länge. Es ist bei einem befestigten Siegel nicht möglich, den Haltering zu öffnen, ohne die Markierung zu zerstören. Der Haltering wird vor dem Befestigen des Siegels in die dafür vorgesehene Nut eingebracht. Er wird aus einem flachen Ring aus rostfreiem Stahl durch Stauchverfahren hergestellt und weist eine hohe Elastizität und Festigkeit auf. In das Siegel eingebracht, widersteht er einer Zugbelastung von etwa 400 kg.

Für diese Art der Versiegelung sind zwei geringfügige Veränderungen an den Haltebrennstäben erforderlich:

- a) Eine zentrale Bohrung des Endstopfens vom Kopf bis 5 mm über das Gewindeende hinaus gibt die Möglichkeit einer Kontrolle mit Ultraschall, um eine eventuelle Fälschung feststellen zu können.
- b) Eine eingedrehte Nut erfüllt einen doppelten Zweck:
  1. Sie nimmt den Haltering des Siegels auf und blockiert das Siegel unabänderlich und
  2. Sie verringert den Querschnitt des Endstopfens so, daß hier der Bruch erfolgt, wenn am Siegel starker Zug ausgeübt wird.

Die praktischen Abmessungen, die bei einer Zugbelastung von ca. 300 kg einen Bruch an der vorgesehenen Stelle herbeiführen, wurden durch Zerreißproben ermittelt.

Wie schon oben betont, ist vorgesehen, die erste Feststellung der Identitätskennzeichen jedes einzelnen Siegels und die spätere Kontrolle an der gleichen zentralen Stelle vorzunehmen. Dies geschieht mittels Ultraschall unter Wasser /7/.

Die Abtastung des Siegels mittels eines Sende- und Empfangsprüfkopfes (dessen Charakteristik genau festgelegt ist) ermöglicht es, durch Ultraschallreflexion an den Einschlüssen eine Identitätskarte aufzunehmen bzw. zu kontrollieren. Die Übersetzung der reflektierten Schallwelle in elektrische Signale gibt die Möglichkeit zu analoger oder digitaler Registrierung, die leicht auswertbar und ganz oder teilweise als Identitätskarte verwendbar ist.

Der Vergleich der registrierten Daten erlaubt die Identitätskontrolle und die Feststellung einer eventuellen Fälschung, unter Berücksichtigung der in einer statistischen Untersuchung der Reproduzierbarkeit bestimmten Fehlerbreiten.

Im September 1971 wurde in Ispra auf der Tagung über zerstörungsfreie Prüfverfahren für Safeguards über diese Arbeiten im einzelnen berichtet /8/.

Das hier beschriebene Versiegelungs- und Identifikationssystem erfordert die Bereitstellung folgender Geräte:

a) Geräte für die Identifizierung

Zur Feststellung der charakteristischen Kennzeichen des Siegels werden benötigt:

1. Ein sehr präziser Mechanismus zur Positionierung des Siegels in Bezug auf den Prüfkopf;
2. ein Ultraschallprüfgerät einer normalen industriellen Serie;
3. ein Registriergerät, ebenfalls aus industrieller Serienproduktion.

Alle diese Geräte können auch in tragbarer Form ausgeführt werden, falls die Identifizierung statt an einer zentralen Stelle am Ort vorgenommen werden soll.

b) Geräte zum Entfernen des Siegels

Die zweckmäßigste Ausführung dieses Gerätes muß für jeden Einzelfall eines Brennelementes besonders festgelegt werden und darf weder das Brennelement beschädigen, noch das Siegel deformieren. Ein entsprechender Vorschlag wurde ausgearbeitet.

Literaturverzeichnis zu Kapitel 4

- /1/ Krautkrämer, H. und J.: Werkstoffprüfung mit Ultraschall.  
Springer-Verlag, Berlin/Göttingen/Heidelberg 1961
  
- /2/ Tietz, H.D.: Ultraschall-Meßtechnik  
VEB-Verlag Technik Berlin
  
- /3/ A. Neumann: Verfälschungssichere Spaltstoffflußkontrolle an  
Siedewasserbrennelementen, vorgetragen Reaktortagung Hamburg 1972
  
- /4/ AEG-Bericht E3-2011
  
- /5/ Patentanmeldung, Aktenzeichen P 1935 686.6  
Anmelder: Euratom, Brüssel
  
- /6/ P. Jehenson: Versiegelung von Brennelementen für Siedewasserreaktoren,  
Ispra, Juni 1971, Original französisch
  
- /7/ P. Jehenson et al. IAEA/SM/133/26, Karlsruhe, Juli 1970
  
- /8/ S. Crutzen: Uncertainties and tamperproofness of a unique identification  
method using a natural or artificial marking system.  
Int. Meeting on Nondestructive Measurement and Identification  
Techniques in Nuclear Safeguards, Ispra, Sept. 1971

**Kapitel 5: Experimentelle Prüfung von Überwachungsmaßnahmen**

Einführung

R. Kraemer

- 5.1 Experimente an Reaktoren  
Versiegelungsexperiment im Kernkraftwerk Lingen  
W. Scheuerpflug
- 5.2 Experimente an Wiederaufarbeitungsanlagen
  - 5.2.1 Identifikation bestrahlter Brennelemente  
R. Kraemer
  - 5.2.2 Simulationsstudien  
E. Drosselmeyer
  - 5.2.3 Experimentelle Demonstration einer neuen  
Inventurtechnik mit Hilfe von Isotopensignalen  
R. Kraemer
  - 5.2.4 Isotopenkorrelationen  
R. Kraemer
- 5.3 Interlaboratoriumstests
  - 5.3.1 Interlabtest zum Experiment Mol-III  
E. Drosselmeyer
  - 5.3.2 Interlabtest IDA-72, Vorbereitungen  
E. Drosselmeyer

**Literaturverzeichnis zu Kapitel 5**

1. The first part of the document discusses the importance of maintaining accurate records.

2. It then outlines the various methods used to collect and analyze data.

3. The next section describes the results of the study and the conclusions drawn.

4. Finally, the document provides a list of references and a bibliography.

5. The following table shows the distribution of data points across different categories.

6. The data indicates a significant correlation between the variables studied.

7. This finding has important implications for the field of research.

8. Further research is needed to explore these relationships in greater detail.

9. The study was conducted over a period of six months.

10. The results are presented in the following figures and tables.

11. The data shows a clear trend over the course of the study.

12. The findings are consistent with previous research in this area.

13. The study was supported by the following organizations.

14. The authors would like to thank the following individuals for their assistance.

15. The data was collected from a sample of 100 participants.

16. The results are summarized in the following table.

17. The study was conducted in accordance with the following protocol.

18. The data was analyzed using the following statistical methods.

19. The findings are discussed in the following section.

20. The study was published in the following journal.

21. The data is available for review upon request.

22. The study was funded by the following grant.

23. The authors have no conflicts of interest.

24. The study was conducted in a laboratory setting.

25. The data was collected over a period of 12 weeks.

## 5. Experimentelle Prüfung von Überwachungsmaßnahmen

### Einführung

Die Notwendigkeit von Integralen Überwachungsexperimenten ist inzwischen von den zuständigen Institutionen und Behörden klar herausgestellt worden, da sie die Verbindung zwischen Systemanalyse und Entwicklung einerseits und der praktischen Anwendung des Überwachungssystems andererseits herstellen. Zeugnis davon geben die in internationalem Rahmen durchgeführten Überwachungsexperimente in den Wiederaufarbeitungsanlagen EUROCHEMIC (Belgien) und EUREX (Italien). Auch in den USA sind umfangreiche Experimente in Pu-Fabrikationsanlagen (GE, Pu-laboratory, Pleasanton, California) und in Wiederaufarbeitungsanlagen (NFS, West Valley, N.Y.) im Auftrag der USAEC und ACDA durchgeführt worden.

Die bisherigen Experimente sind vorwiegend im offenen Teil des Brennstoffzyklus durchgeführt worden. Besondere Betonung wurde dabei auf die Erfassung von systematischen und statistischen Fehlerkomponenten analytischer Methoden gelegt. In diesem Zusammenhang wurden umfangreiche Interlaboratoriumstests unter Beteiligung von 8 verschiedenen Laboratorien durchgeführt, die über die Fehlerbaum-Varianzanalyse wichtige Aufschlüsse über einzelne Fehlerkomponenten gaben, wie z.B. Interlaboratoriumsabweichung, Probenahmefehler, Probenalterungseffekte und Reproduzierbarkeit.

Die Entwicklung von geeigneter Instrumentierung und Maßnahmen für die Überwachung des geschlossenen Teils des Zyklus (Reaktoren) ist aber jetzt in ein Stadium gerückt, das bereits eine experimentelle Überprüfung von einzelnen Instrumenten unter Industriebedingungen erlaubt. Dies gilt insbesondere für Versiegelungs- und Identifikationstechniken an bestrahlten und unbestrahlten Brennelementen.

## 5.1 Experimente an Reaktoren

### Versiegelungsexperimente im Kernkraftwerk Lingen

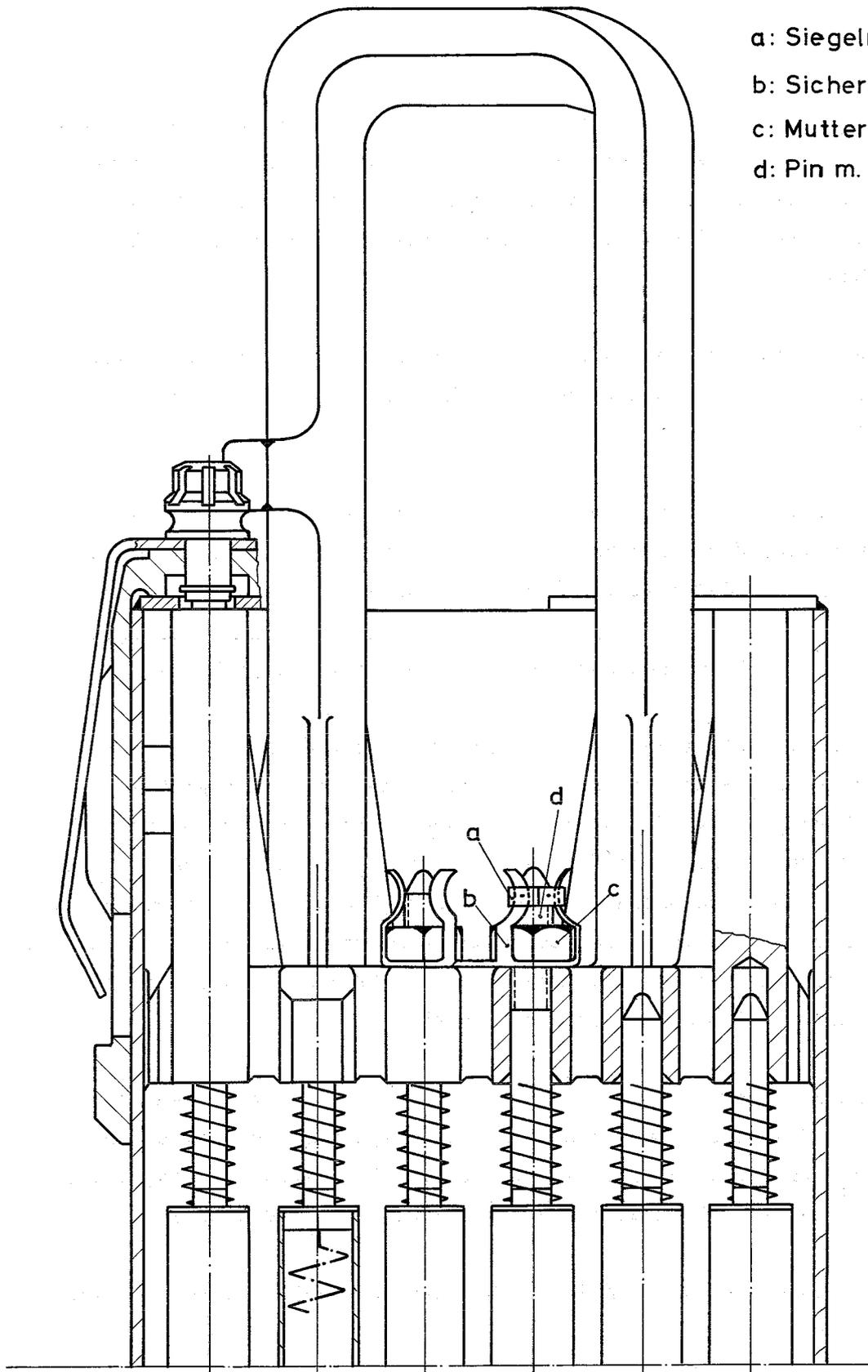
Um das von der Firma AEG-Telefunken im Rahmen eines Industrieauftrages entwickelte elektromagnetische Meßverfahren zur Identitäts- und Siegel-Intaktheitskontrolle an Siedewasserbrennelementen zu testen, wurde im April 1971 ein Versuchsprogramm entwickelt mit dem Ziel, unter realistischen Bedingungen (d.h. im Naßlager des Kraftwerks nach einjähriger Bestrahlung) den Einfluß nuklearer und thermischer Einwirkungen auf das Siegel zu überprüfen /1/.

Zwei für den Einsatz im Kernkraftwerk Lingen (KWL) vorgesehene Brennelemente wurden bei der Kernreaktorteile GmbH. (KRT) mit einem Siegelband versehen (Abb. 5.1/1) und zu ersten Versuchsmessungen in der kritischen Anordnung der AEG-Kernenergieversuchsanlage Großwelzheim und später im KWL-Naßlager eingesetzt. Das für den hier beschriebenen Versuch benutzte Gerät wurde in Kapitel 4.2 näher erläutert /2/.

Der eigentliche Siegelwert setzt sich zusammen aus dem Leerwert und dem überlagerten Siegelmeßwert (Siegelwert = Siegelmessung minus Leerwert). Beim Leerwert und bei der Siegelmessung muß unterschieden werden zwischen Naßmessung (Element und Meßkopf im Naßlager) und Trockenmessung. Die Trockenmessung dient zur BE-Identifikation in der Fertigungsanlage und im Trockenlager des Kraftwerkbetriebes, die Naßmessung zur Kontrolle im Absetzlagerbecken und Reaktorgefäß im Kraftwerk.

Die Meßwerte aus Trocken- und Naßmessungen weichen theoretisch bei gleicher Wasserqualität und Temperatur um eine Konstante voneinander ab, so daß die Identität der BE durch Trockenmessung in der BE-Fertigung und Naßmessung im Kraftwerk oder nach Abbrand im Naßlager der Aufarbeitungsanlage festgestellt werden kann.

Das gesamte Versiegelungs- und Identifikationssystem wurde zunächst in der Kritischen Anordnung der AEG Kernenergieversuchsanlage Großwelzheim getestet.



- a: Siegelring
- b: Sicherungsblech
- c: Mutter
- d: Pin m. Gewindezapfen

Abb.51.1 SWR-BE mit Siegelkörper

Zur Kontrolle der Meßapparatur wurde ein Eichkopf benutzt, auf dem 4 Siegel aufgebracht waren. Vor der eigentlichen Siegelmessung an den Brennelementen wurden Kontrollmessungen am Eichkopf durchgeführt, wobei die Elektronik so eingestellt wurde, daß sich der ursprüngliche, vor der letzten Siegelmessung erzielte Eichwert ergab.

Abb. 5.1/2 zeigt das Meßergebnis für den Eichkopf. Abb. 5.1/3 zeigt die Meßergebnisse der zwei für den Einsatz im KWL präparierten Brennelemente B 138 und B 131.

Aus Abb. 5.1/2 ist ferner zu ersehen, daß der Siegelmeßwert im wesentlichen vom Gewindeüberstand der Schraubstäbe geprägt ist. Der Beitrag des Dreh-  
sicherungsbleches und des geschweißten Siegelbandes ist relativ gering.

Siegelwert ( $\approx 3\%$ ) = Siegelmessung (100 %) minus Leerwert ( $\approx 97\%$ ).

Hieraus kann abgeleitet werden, daß dieses System nur dann verlässliche Werte liefert, wenn die Meßanordnung einerseits empfindlich gegenüber den magnetischen Verhältnissen des Siegels, andererseits jedoch unempfindlich gegenüber störenden Umgebungseinflüssen ist. Die in relativ kurzer Zeit erstellte erste Versuchsausführung der Anlage erfüllte diese Forderung nicht. Dies geht auch aus der Darstellung der Leerlaufmeßwerte in Abb. 5.1/4 hervor. Abgesehen von relativ großen Schwankungen (vermutlich Netzstörungen) ist hier eine eindeutige Temperaturdrift festzustellen.

Die beiden Brennelemente wurden unmittelbar vor dem Einsatz im Reaktor des KWL noch einmal überprüft, und es ergaben sich gegenüber den Naßmessungen in Großwelzheim unterschiedliche Werte, die eine Festlegung der Identität der Elemente nicht ermöglichten (Vergleiche Abb. 5.1/3 und 5.1/5).

Die Elemente befanden sich anschließend bis zum Mai 1972 im Core und erreichten einen Abbrand von

B 131 : 5082 MWd/t    und  
B 138 : 2995 MWd/t.

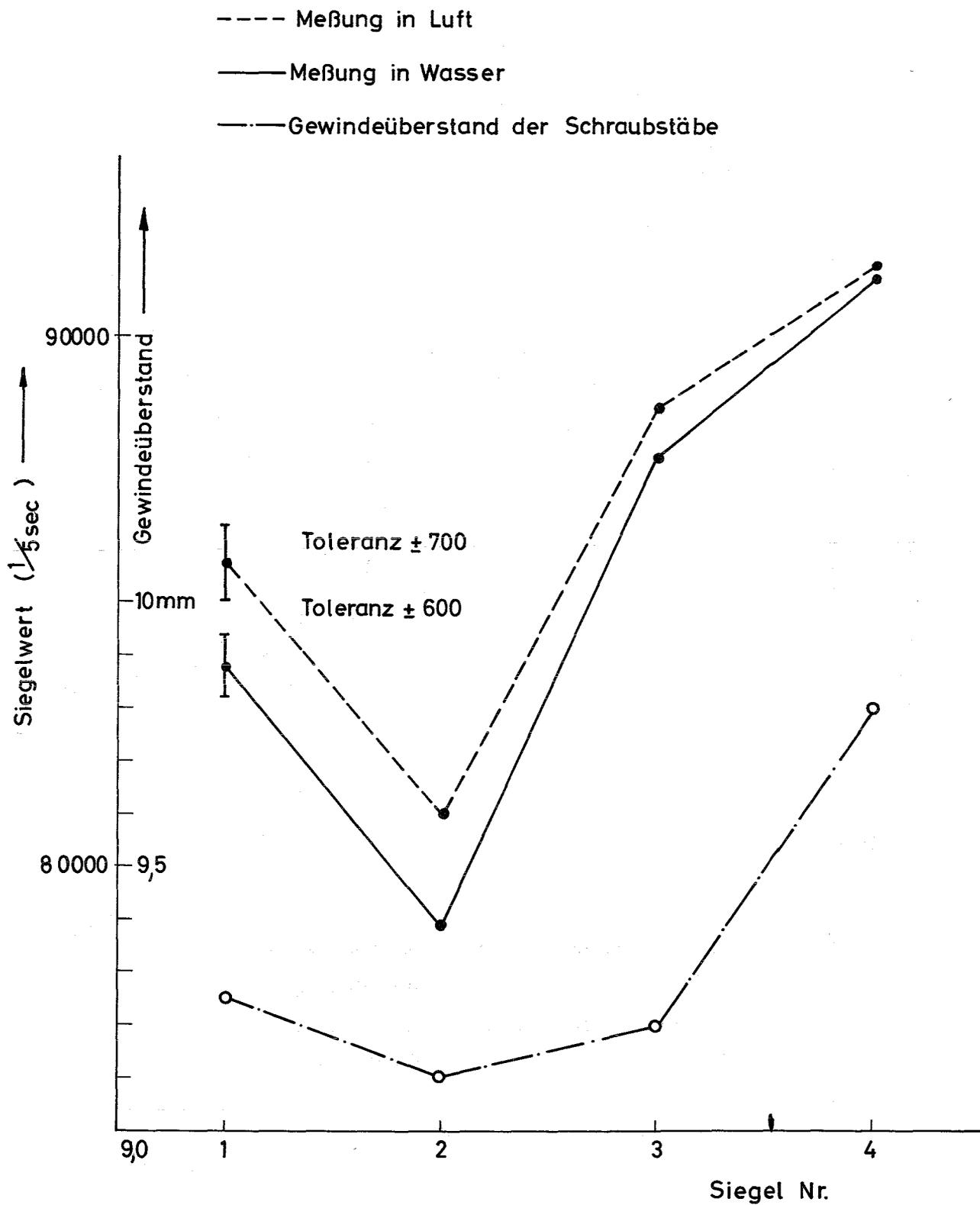


Abb. 5.1./2 Meßergebnisse an dem Eichkopf A 004 mit Versiegelung

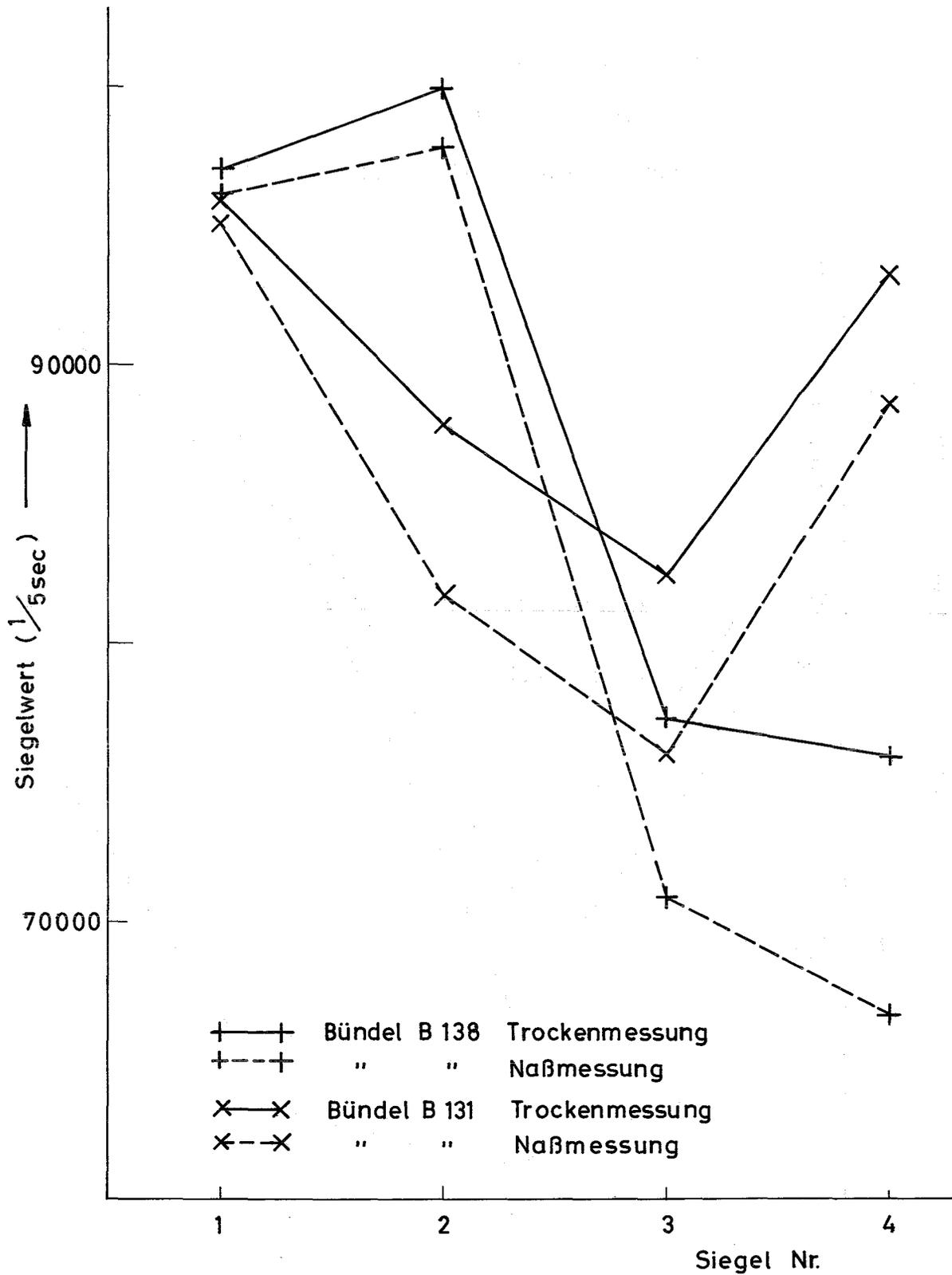


Abb.5.1./3 Trocken-u. Naßmessung an KWL II Bündeln mit Versiegelung

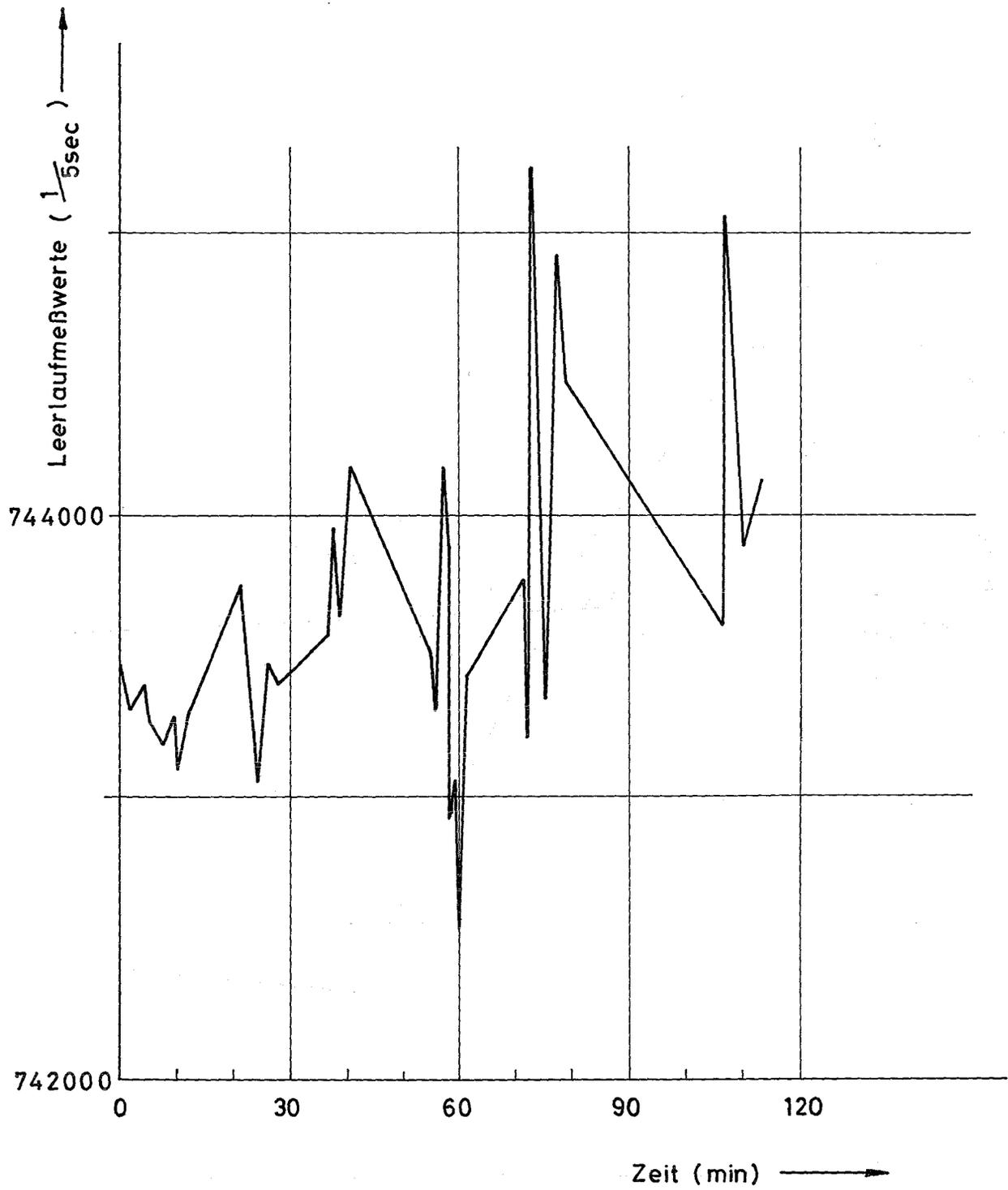


Abb.5.1./4 Änderung der Leerlaufmeßwerte  
Versuch im Naßlager KWL

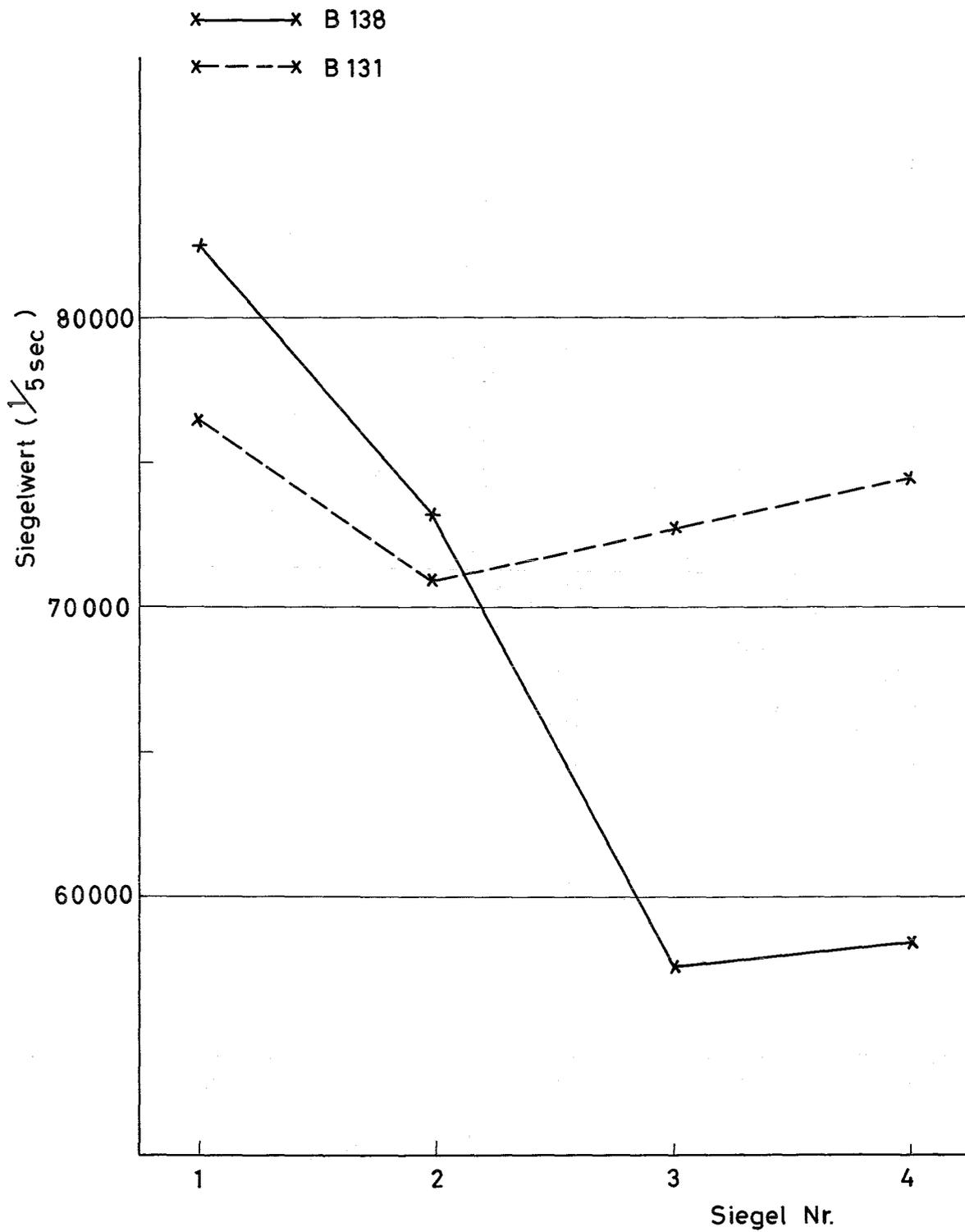


Abb. 5.1./5 Naßmessung 1971 der Bündel B 131 u. B 138

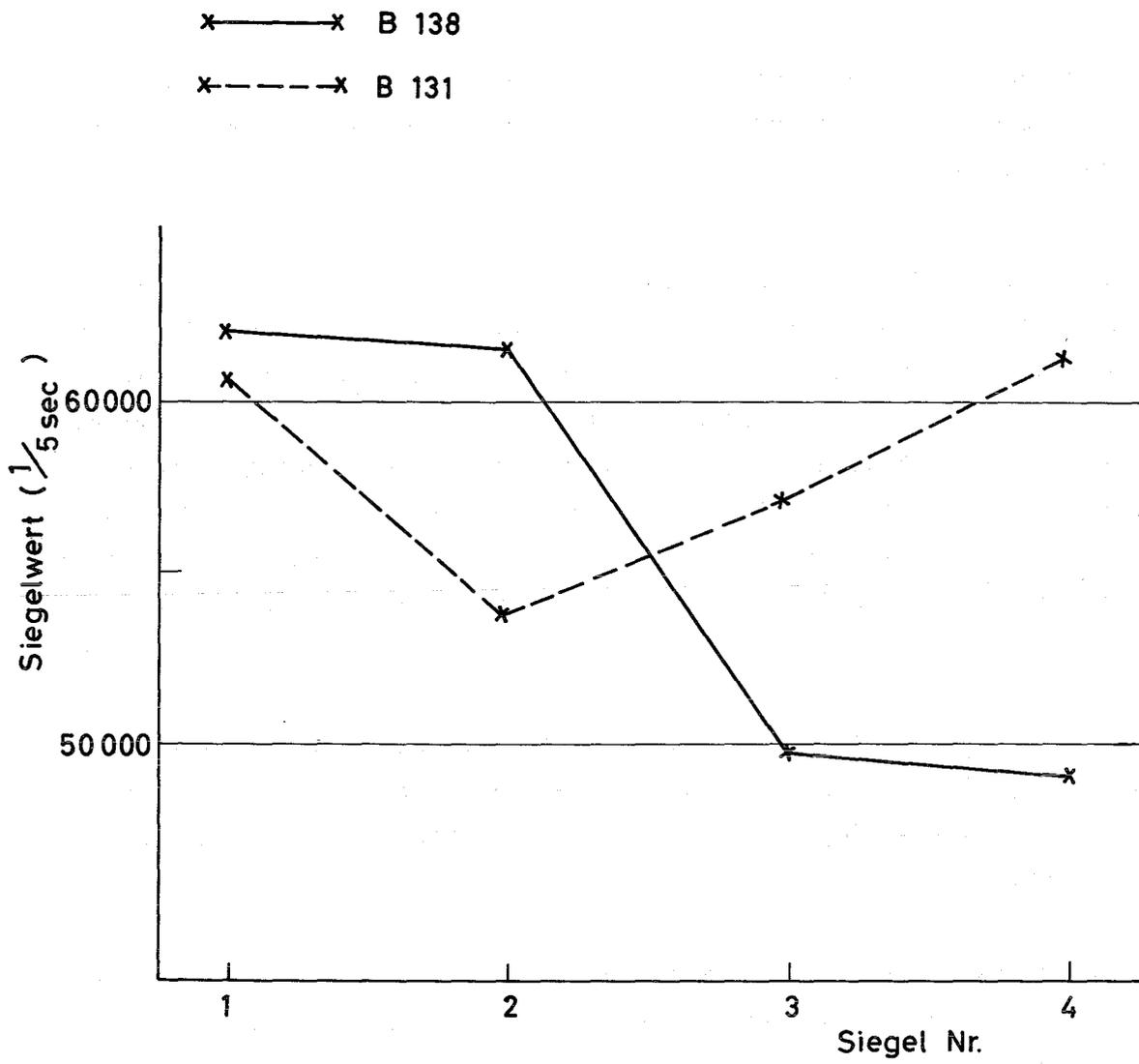


Abb.5.1/6 Naßmessung 1972 der Bündel B 131 u. B 138

Anlässlich des im Mai 1972 durchgeführten Brennelementwechsels im KWL wurden unter Benutzung derselben Meßapparatur Nachmessungen an den gleichen Brennelementen vorgenommen /3/.

Um eine Beziehung zwischen den Messungen 1971 und 1972 zu erhalten, wurde die Anordnung zunächst mit dem nicht bestrahlten Eichkopf geeicht. Danach wurde der Meßkopf ins Beckenwasser abgesenkt, und nachdem sich eine stabile Oszillatorfrequenz eingestellt hatte, die je 4 Siegelmeßwerte der beiden Brennelemente in mehreren Meßserien aufgenommen. Hierbei zeigte eine visuelle Inspektion der Siegelkörper (Werkstoff 4550) einen gleichmäßigen Oxydüberzug. Die Wiederholungsmessungen 1972 ergaben Werte, die nur entfernt mit den ursprünglichen Werten von 1971 (vor Einsatz im Reaktor) übereinstimmen (Vergl. Abb. 5.1/5 und Abb. 5.1/6).

Die Unterschiede in den Siegelmeßwerten können durch die verschiedensten Parameter hervorgerufen worden sein (instabile Elektronik, Temperatureinfluß, mech. Verformung des Siegelkörpers während der Bestrahlung, Oxydaufbau an den Siegelkörpern und dgl.).

Abschließend kann festgestellt werden, daß die benutzte Versuchsausführung erheblich verändert und verbessert werden müßte, um eine eindeutige Siegelkontrolle zu ermöglichen.

## 5.2 Integrales Überwachungsexperiment (Mol-III) in der Wiederaufarbeitungsanlage EUROCHEMIC, Mol, Belgien

Zu Beginn des Jahres 1971 wurden sämtliche Daten, die während des Experimentes aufgenommen wurden, endgültig ausgewertet. Anfang März 1971 fand eine 3-tägige Arbeitssitzung in Karlsruhe statt, auf der die Wissenschaftler aller beteiligten Organisationen die Ergebnisse der verschiedenen Zielstellungen, die für dieses Experiment ausgewählt worden waren, vortrugen.

In den folgenden Monaten wurden die einzelnen Kapitel in die endgültige Berichtsform gebracht. Zur Genfer Konferenz im September 1971 konnte der Bericht an Interessenten ausgegeben werden /4/.

Im folgenden werden die Hauptergebnisse dieses Experimentes zusammengefaßt wiedergegeben.

### 5.2.1 Identifikation bestrahlter Brennelemente

Voraussetzung für die Anwendung der im Projekt entwickelten Inventurtechnik mit Hilfe von Isotopensprungfunktionen des Eingangstromes einer Wiederaufarbeitungsanlage ist eine eindeutige Identifikationsmöglichkeit der zur Auflösung gelangenden bestrahlten Brennelemente. Außerdem ist in diesem Zusammenhang der Abbrandzustand ein wichtiger Parameter zur optimalen Beschickung des Auflösers. Nicht immer sind die an den Brennstabbündeln angebrachten Identifikationsnummern wegen Korrosion oder sonstiger Beschädigungen lesbar, und dadurch eine Zuordnung zu den Absenderlisten möglich.

Daher wurde die Alternative, mit  $\gamma$ -Messungen geeignete Abbrandparameter zu bestimmen, von Vertretern der IAEA und des CEN untersucht. Die Meßanordnung, die am Naßlager für bestrahlte Brennelemente in der EUROCHEMIC installiert wurde, ist aus Abb. 5.2.1/1 zu ersehen.

Insgesamt wurden an 2 BR2- und 25 VAK-Brennelementen Gamma-Spektren an verschiedenen axialen Positionen aufgenommen. Ein typisches Beispiel ist aus Abb. 5.2.1/2 zu ersehen.

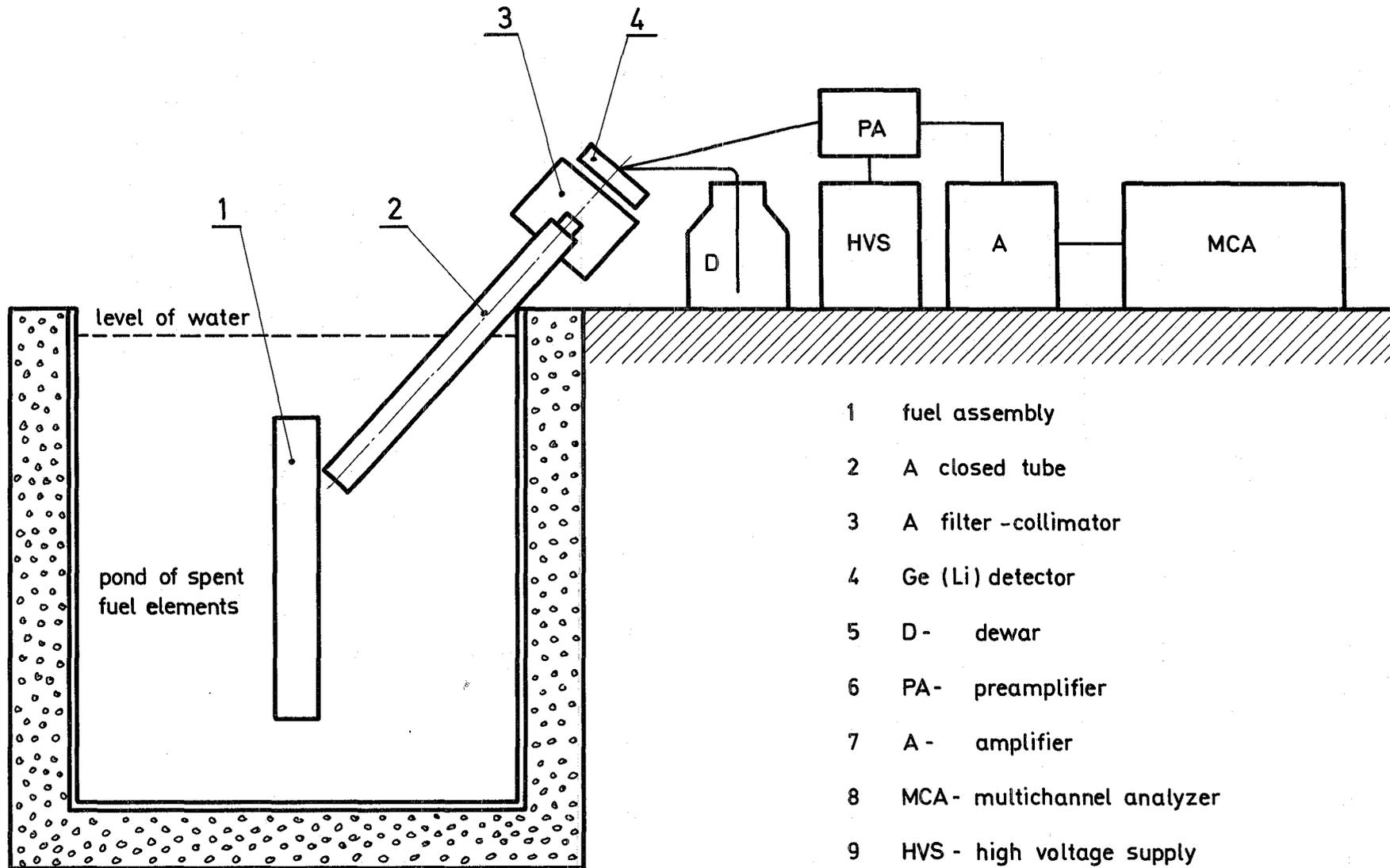


Abb.5.2.1/1 A Scetch of Measurements of Spent Fuel Elements with Ge (Li) Detector

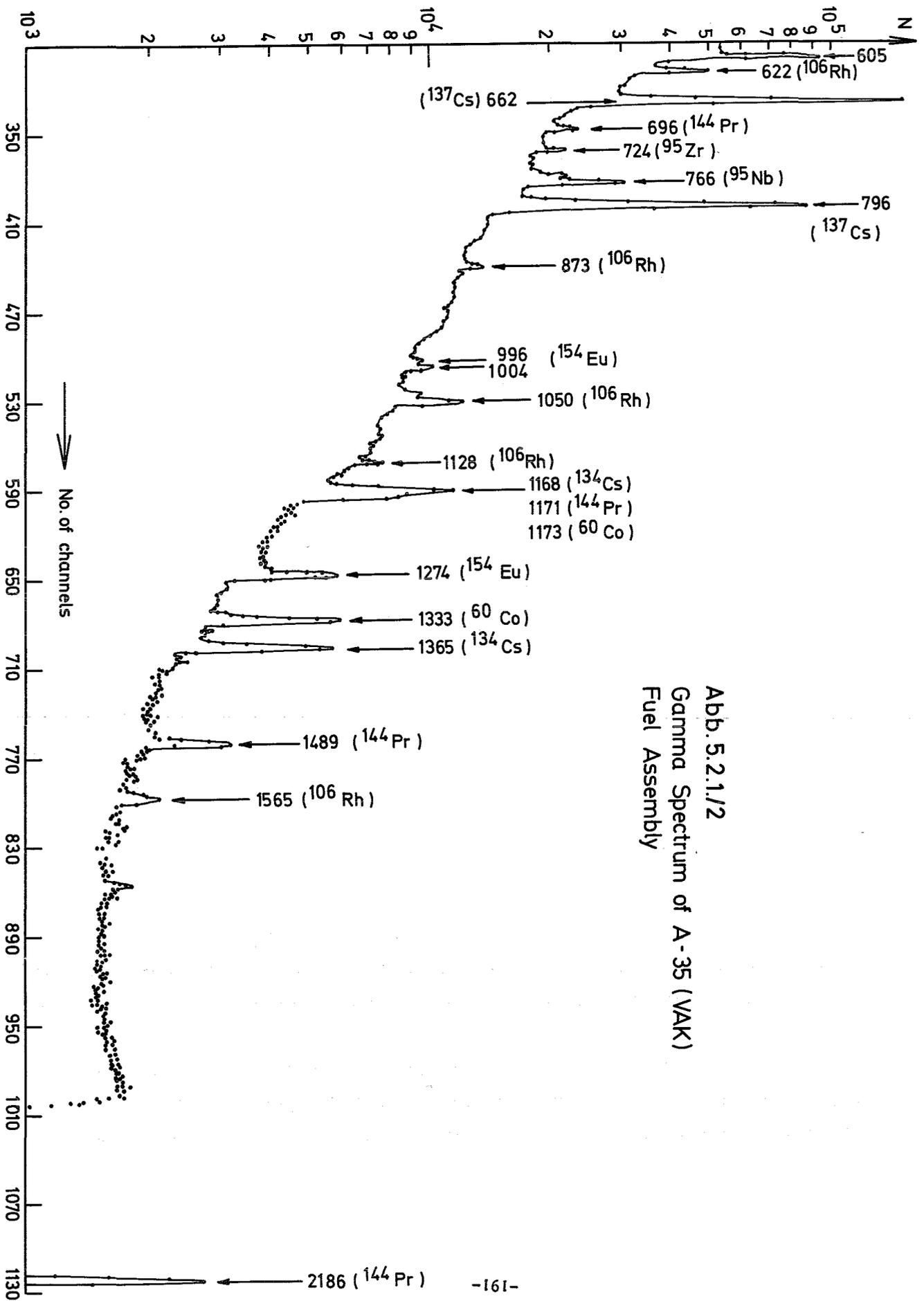


Abb. 5.2.1/2  
 Gamma Spectrum of A-35 (VAK)  
 Fuel Assembly

Die verschiedenen Spaltproduktaktivitäten bzw. Aktivitätsverhältnisse wurden als Abbrand- und Kühlzeitmonitoren verwendet. Teilweise ließ sich mit solchen Signalen auch das Verhältnis zwischen Pu- und U-Spaltungen abschätzen.

Neben diesen Gamma-Messungen wurde eine fernbediente Fernsehkamera zum Lesen von Identifikationsnummern unter Wasser eingesetzt, die sich unter den gegebenen Umständen gut bewährte.

### 5.2.2 Simulationsstudien

Im Rahmen des Mol III-Experimentes wurden die Simulationsstudien in Zusammenarbeit mit EURATOM fortgesetzt. Die Ergebnisse sind im Bericht über das Experiment veröffentlicht / 5/. Zweck dieser Rechnungen war es, die Güte der Inventarbestimmung mit Hilfe einer Isotopen-Stufenfunktion im Eingangstrom einer Wiederaufarbeitungsanlage und vor allem die Grenzen der Anwendbarkeit dieser Methode zu bestimmen. Dabei wurden Monte-Carlo-Verfahren benutzt, um verschiedene Serien von simulierten Kampagnen durchzuspielen. In diesen Serien wurden jeweils einzelne Prozeß- und Materialparameter systematisch variiert und dann der Einfluß dieser Änderungen untersucht.

Zusätzlich zu den schon im ersten Teil der Arbeit /6/ durchgeführten Studien über

- a) den Einfluß der "superbatch"-Größe auf die Ergebnisse der Methode und
- b) die Bedeutung der Anordnung der einzelnen "batches" innerhalb eines "superbatch"

wurden speziell

- c) die "Abbildungs-Funktion" eines "normal" arbeitenden Systems und
- d) die Verknüpfung zwischen den Input-Charakteristika (Höhe des Konzentrationsunterschiedes zwischen zwei superbatches und Variation der Konzentration innerhalb eines superbatches - jeweils für ein Isotop -) und der Genauigkeit der Prozeßinventarbestimmung analysiert.

ad c): Sowohl für den Pu- als auch für den U-Teil der Anlage wurden Untersuchungen über den Einfluß der Arbeitsweise des Systems auf die Abbildungsfunktion ange stellt. Abb. 5.2.2/1 zeigt die "Abbildungsfunktion" für verschiedene Fälle, d.h. es wird jeweils dargestellt, wie sich das Material aus einem Eingangs-"batch" in verschiedene Ausgangs-"batches" verteilt.

Die Ergebnisse stammen aus der mathematischen Simulation des Materialflusses.

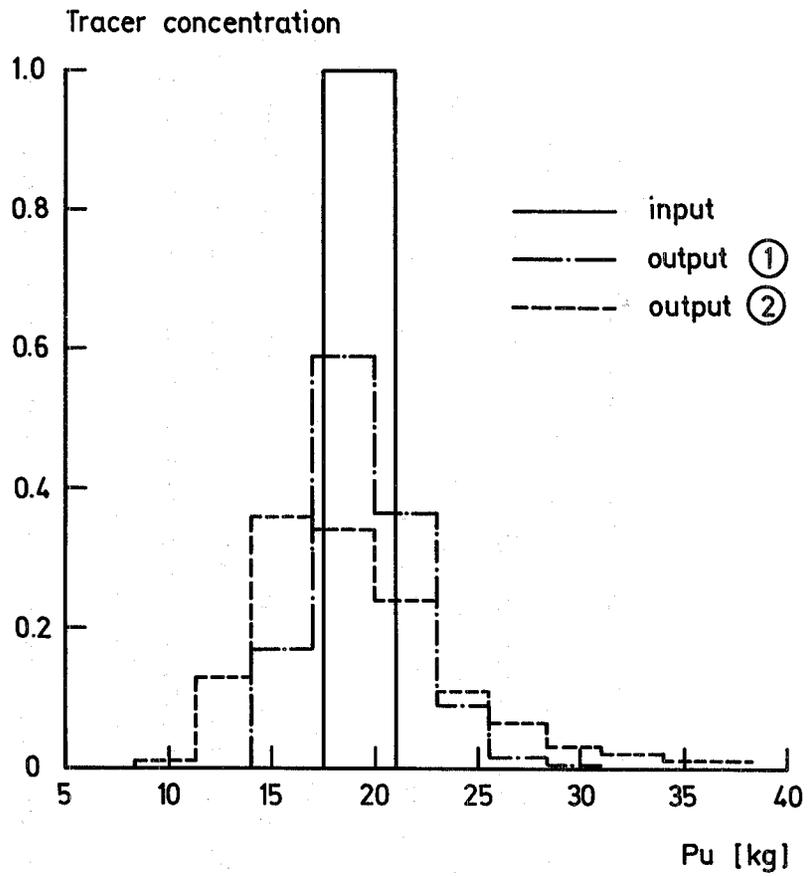


Abb.5.2.2/1a Pu response function

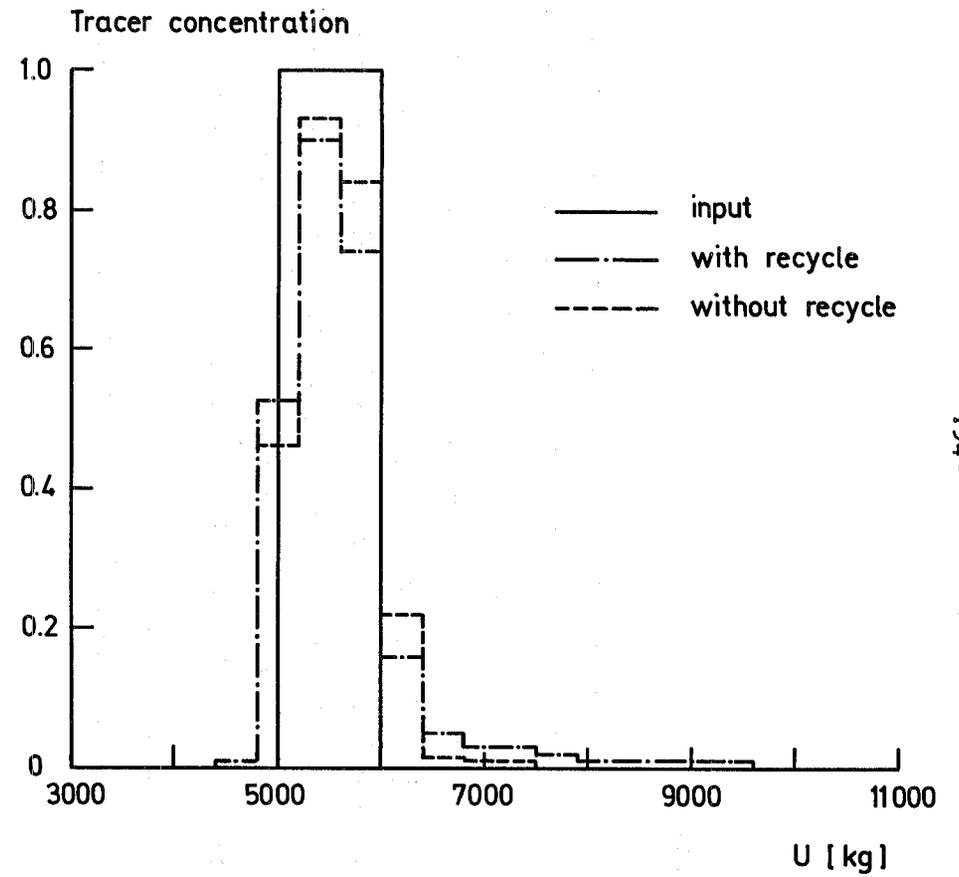


Abb.5.2.2/1b U response function

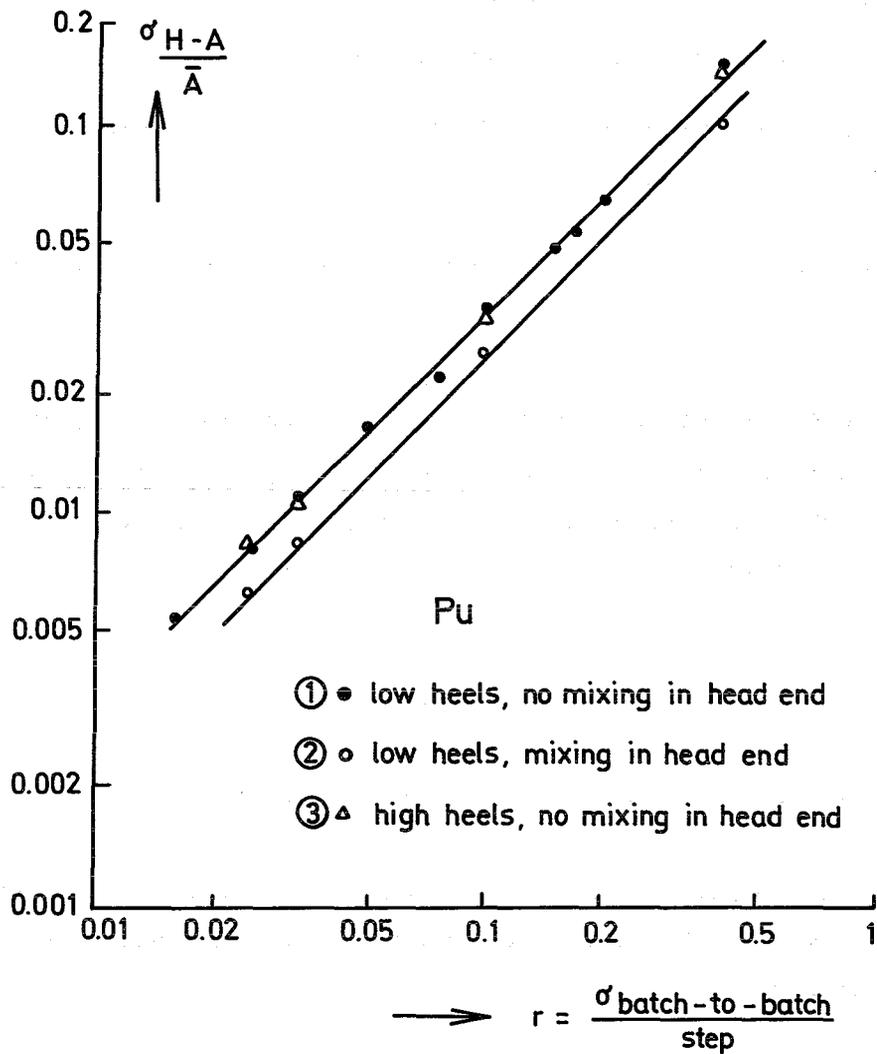


Abb. 5.2.2./2 Correlation between input characteristics and the precision of the process inventory determination

Die betrachteten Arbeits-Parameter waren

- α) die Rückstände in den Eingangstanks der Anlage (gering  $\hat{=}$  2 l, hoch  $\hat{=}$  200 l),
- β) das Mischverfahren in den ersten Tanks der Anlage
- γ) der Anteil von kontinuierlich innerhalb der Anlage rezykliertem Material.

Für die Einzelheiten dieser Studien sei auf den oben zitierten Bericht verwiesen.

ad d): Für das Verhältnis  $r$  (batch-zu-batch-Konzentrationsvariation zur Größe der Konzentrationsstufe des Tracer-Isotops) gilt generell die folgende Verknüpfung mit der Varianz der Differenz von Buchinventar (A) und berechnetem Prozeßinventar (H):

$$\frac{\sigma_{H-A}}{\bar{A}} = r \cdot \text{konst.}$$

Diese Verknüpfung ist in Abb. 5.2.2/2 dargestellt.

Es ergibt sich ferner, daß auch diese Konstante (const.) unabhängig von den Betriebsparametern der Anlage ist, außer für den Fall besonderer Mischverfahren am head-end der Anlage.

Aus den Untersuchungen zu den Punkten (a), (b) und (d) lassen sich Schlußfolgerungen in Bezug auf günstige Bedingungen für die Bestimmung des Prozeß-Inventars in Wiederaufarbeitungsanlagen ziehen.

Der Abschlußbericht ist inzwischen unter dem Namen der Assoziation: Europäische Gemeinschaften und Gesellschaft für Kernforschung als gemeinsamer Bericht mit den Nummern EUR 4576e und KFK 1100 veröffentlicht worden und konnte bereits zur 4. Genfer Konferenz (6.-16. Sept. 71) dem interessierten Personenkreis zur Verfügung gestellt werden.

### 5.2.3 Experimentelle Demonstration einer neuen Inventurtechnik mit Hilfe von Isotopensignalen

Im vorangegangenen Jahresbericht wurde bereits über Teilergebnisse dieses Experimentes für den Uranfluß berichtet. Die entsprechenden Isotopensignale des Pu-Einganges und Produktes, die aus Abb. 5.2.3/1 zu ersehen sind, konnten ebenfalls ausgewertet werden, wobei eine Monte Carlo-Technik angewendet wurde, die es gestattet, die Verteilungsfunktion und damit die Vertrauensgrenzen der Inventurbestimmung zu berechnen. In Abb. 5.2.3/2 sind sämtliche bisher durchgeführte Inventurergebnisse mit den entsprechenden 95 %-Vertrauensintervallen über den unabhängig bestimmten Buchinventar (= Sollinventar) eingezeichnet. Nur im Falle einer signifikanten Abweichung zwischen den beiden unabhängigen Inventurbestimmungen überdeckt die Fehlerellipse nicht die gestrichelte Sollgerade bei MUF = 0. Dieser Fall wurde bei keiner der sieben durchgeführten Experimente beobachtet.

### 5.2.4 Isotopenkorrelationen

Die Isotopen- und Gesamtbestimmungen von U und Pu der 20 Auflösechargen innerhalb des Mol III-Experimentes waren Gegenstand von statistischen Untersuchungen über Isotopenkorrelationen, die durch beteiligte Wissenschaftler des Battelle Institutes in Richland, USA durchgeführt wurden. Bekanntlich wurden während des Experimentes bestrahlte Brennelemente aus 4 verschiedenen Reaktoren aufgelöst.

Reaktor	Anzahl der Auflösechargen	Anfangsanreicherung (U-235 Gew. %)
CANDU	9	Natururan
CdN	5	4,48
VAK	2	2,33
	1	2,51
	1	2,40 <sup>+) </sup>
TRINO	1	2,92
	1	3,31

<sup>+)</sup> Mittelwert aus den Anfangsanreicherungen 2,53 und 2,51 %.

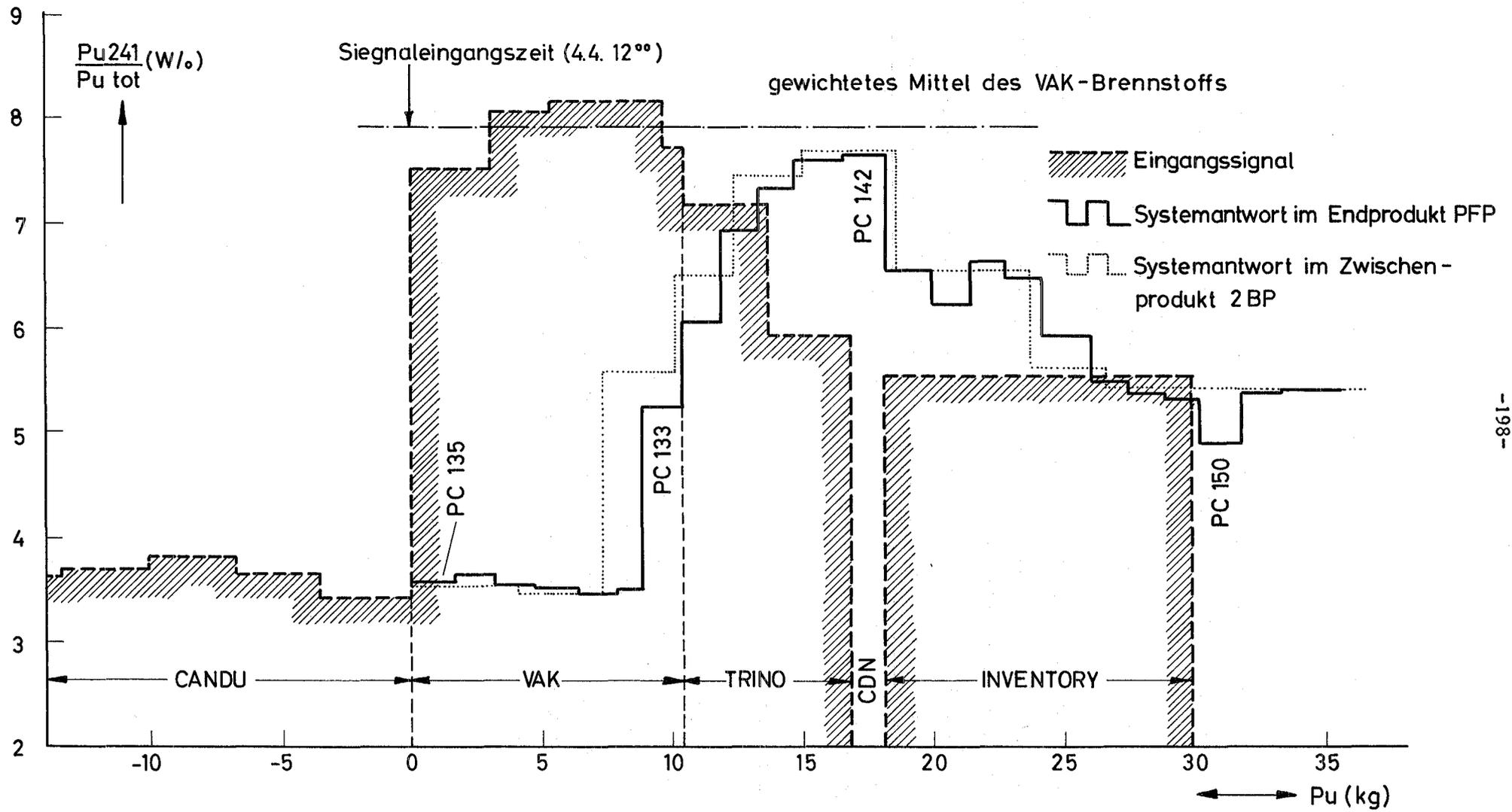


Abb. 5.2.3./1 Eingangssignal u. Systemantwort des Pu-Stromes in der Wiederaufarbeitungsanlage EUROCHEMIC, Mol, Belgien.

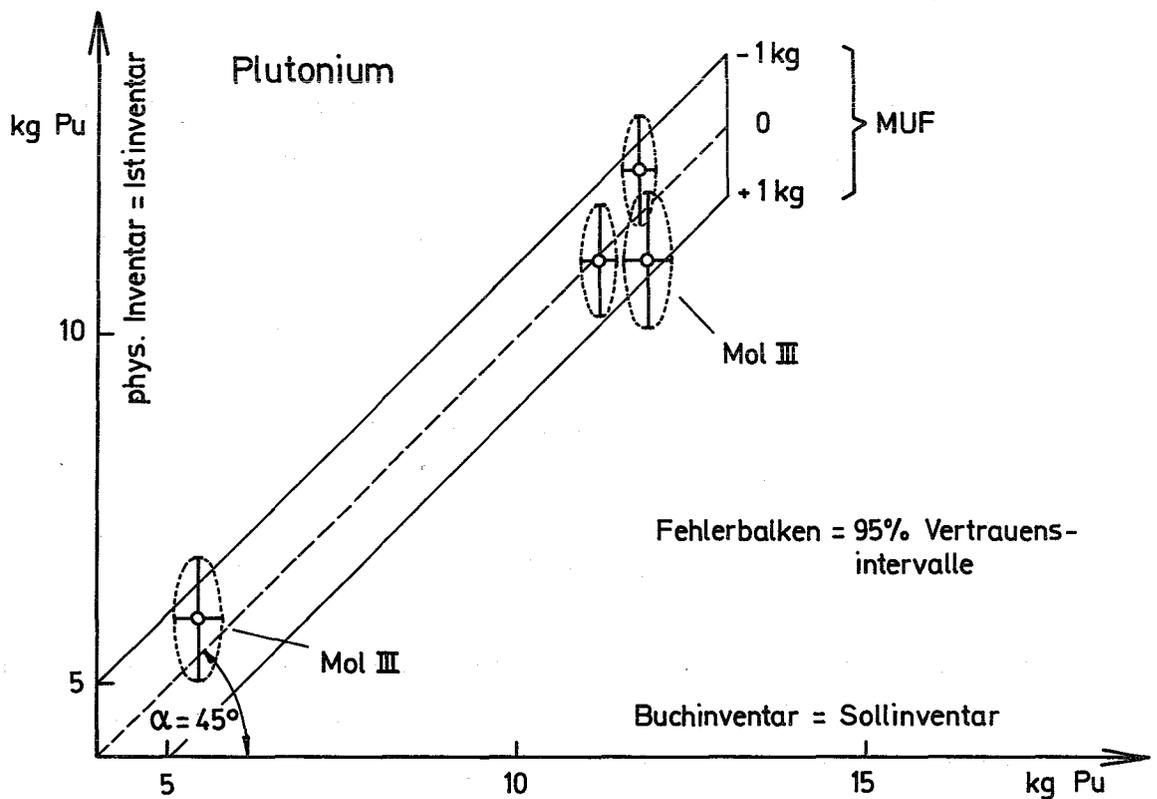
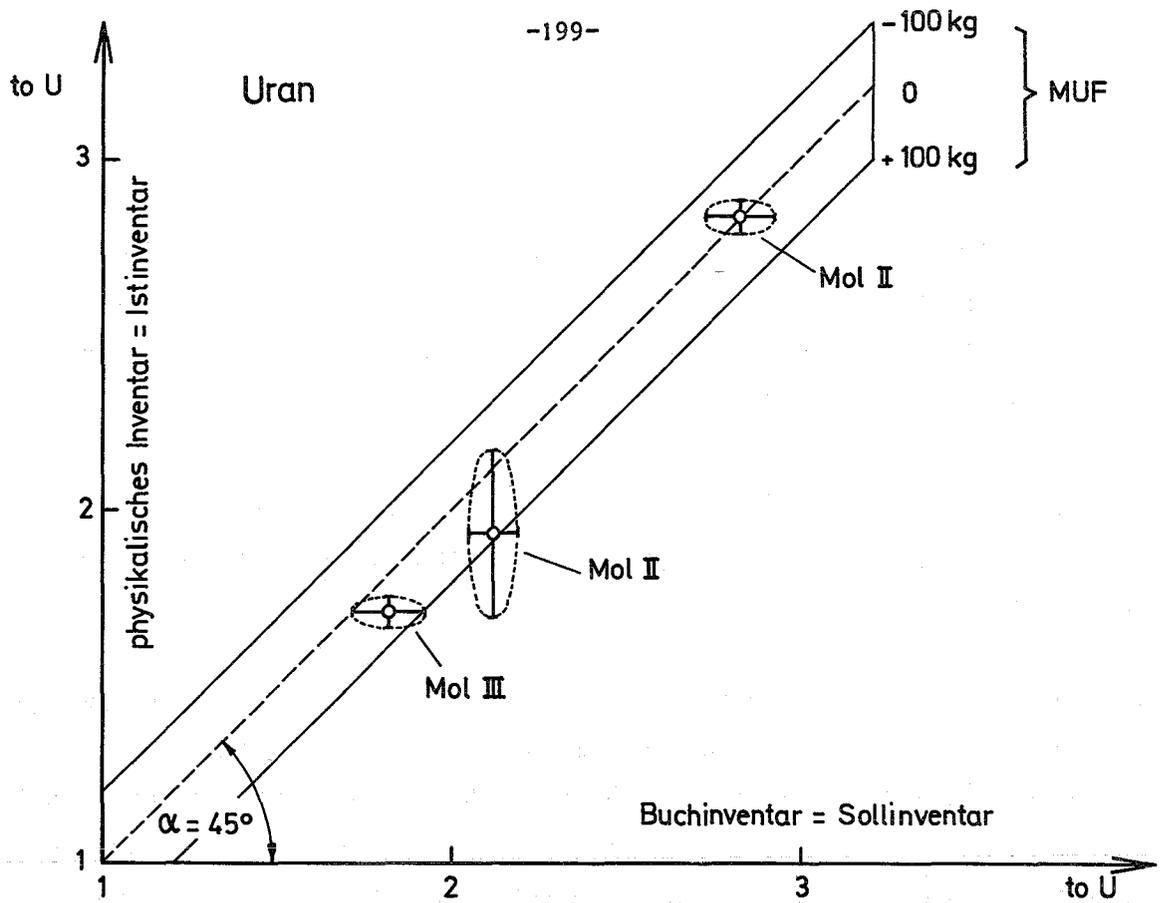


Abb. 5.2.3/2 Realisationen von verschiedenen Buch- und physikalischen Inventaren bei den integralen Experimenten Mol II und Mol III in der Wiederaufarbeitungsanlage EUROCHEMIC, Mol, Belgien.

Die Prozeßführung in der EUROCHEMIC gestattet die Wahrung der Identität der aufgelösten Brennelemente bis zur Eingangsmessung, so daß für jede Auflösecharge eine klare Zuordnung zu der Anfangsanreicherung bestand, wie aus obiger Tabelle ersichtlich ist.

Für Überwachungszwecke sind besonders die in Tabelle I aufgelisteten Korrelationen wichtig, deren Konsistenz innerhalb der verschiedenen Chargen statistisch geprüft wurden.

In Tabelle I sind die gemessenen Verhältnisse zwischen Pu, U und geeigneten Abbrandparametern nach abnehmender Endanreicherung in U-235 aufgelistet, um an den angegebenen Korrelationen eine Abbrandabhängigkeit festzustellen. Dieser Trend ließ sich offensichtlich nicht analysieren. Eine statistische Analyse der in Tabelle I angegebenen Werte ist in Tabelle II gegeben. Darin bedeuten

$\bar{y}$  = der Mittelwert der Korrelation für einen bestimmten Reaktor und gleiche Anfangsanreicherung

$S_y$  = die Standardabweichung der einzelnen Auflösecharge

$S_{\bar{y}}$  = die Standardabweichung des Mittelwertes

$F$  =  $t_{0.90}(f) S_{\bar{y}}$  = 90 % Vertrauensbereich um den Mittelwert  $\bar{y}$

$\% F$  =  $F/\bar{y} \times 100$  = relativer 90 % Vertrauensbereich

$\% F \times \sqrt{2}$  = Relativer 90 % Vertrauensbereich für eine Vorausschätzung einer best. Korrelation unter gleichen Voraussetzungen.

Die geringe Streuung der angegebenen Korrelationen läßt den Schluß zu, daß diese Verhältnisse unabhängig sind vom Abbrand und von der Position der Elemente im Reaktor. Eine Fehlerabschätzung unter Berücksichtigung aller Mess- und Analysenfehler der einzelnen Komponenten solcher Korrelationen ergibt nämlich Größenordnungen wie die ausgewerteten Vertrauensbereiche in Tabelle II. Die ausgewerteten statistischen Größen werden natürlich

Tabelle I

Isotopenkorrelationen bei den verschiedenen Auflösechargen des Mol III-Experimentes

Reaktor	Batch Nr.	Anfangsanreicherung in $^{235}\text{U}$ Gew./%	Endanreicherung in $^{235}\text{U}$ Gew./%	$\frac{\text{Pu/U}}{^{235}\text{D}}$ (g/t)/%	$\frac{\text{Pu/U}}{\Delta^{236}\text{U}}$ (g/t)/%	$\frac{\text{Pu/U}}{^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}}$ (g/t)	$\frac{\Delta^{236}\text{U}}{^{235}\text{D}}$ -
CANDU	400	0.7115	0.3362	7361	46110	10282	0.1597
	500		0.3040	7369	46979	10291	0.1569
	900		0.3032	7472	46995	9927	0.1590
	200		0.2794	7567	46172	9963	0.1639
	600		0.2778	7588	43063	10048	0.1762
	800		0.2735	7282	44353	9757	0.1642
	700		0.2708	7585	44980	10026	0.1686
	100		0.2700	7460	45546	10117	0.1645
	300		0.2535	7438	46027	9980	0.1616
CdN	400	4.48	3.1271	1271	8305	13299	0.1530
	100		3.0065	1196	7586	13374	0.1574
	300		2.9570	1185	7709	13229	0.1536
	500		2.9570	1153	7502	13003	0.1536
	200		2.9379	1177	7498	12025	0.1569
VAK	100	2.33	1.0666	3857	21822	14925	0.1768
	200	2.33	1.0289	3858	21877	14364	0.1764
	300	2.51	1.0623	3792	21283	15282	0.1781
	400	2.40	1.0922	3905	22462	16135	0.1741
TRINO	100	2.92	1.8000	5574	26577	30056	0.2102
	200	3.31	2.3088	5163	24909	28829	0.2063

Reactor	Statistic	$\frac{\text{Pu/U}}{^{235}\text{D}}$	$\frac{\text{Pu/U}}{\Delta^{236}\text{U}}$	$\frac{\text{Pu/U}}{^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}}$	$\frac{\Delta^{236}\text{U}}{^{235}\text{D}}$
CANDU	$\bar{y}$	7,458	45,581	10,043	0.1638
	$s_y$	108	1,274	170	0.0058
	$s_{\bar{y}}$	36.1	425	56.5	0.0019
	F	67.1	790	105.1	0.0036
	%F	0.9%	1.7%	1.0%	2.2%
	%F 2	1.3%	2.4%	1.4%	3.1%
CdN	$\bar{y}$	1,196	7,720	12,986	0.1549
	$s_y$	44.6	338	555	0.0021
	$s_{\bar{y}}$	19.9	151	248	0.0009
	F	42.5	322	529	0.00198
	%F	3.5%	4.2%	4.1%	1.3%
	%F 2	4.9%	5.9%	5.7%	1.8%
VAK	$y$	3,853	21,861	15,176	0.1763
	$s_y$	46.4	482	742	0.00167
	$s_{\bar{y}}$	23.2	241	371	0.00083
	F	54.6	567	873	0.00196
	%F	1.4%	2.6%	5.8%	1.1%
	%F 2	2.0%	3.7%	8.1%	1.5%
TRINO	$\bar{y}$	5,369	25,743	29,443	0.2083

Tabelle II zu 5.2.4

umso unsicherer je weniger Auflösechargen zur Verfügung standen.

Die empirisch gefundene Konsistenz der verschiedenen Korrelationen kann vorteilhaft bei der Reduktion der unabhängigen Überwachungsanalysen eingesetzt werden. Auflösechargen, die aus bestrahlten Brennelementen des gleichen Reaktors bestehen und nur im mittleren Abbrand differieren, bilden eine homogene Population in Bezug auf die erwähnten Korrelationen, so daß man sich für Überwachungszwecke auf Stichproben beschränken kann.

Die statistische nachgewiesene Korrelation zwischen dem Pu/U-Verhältnis und einem geeigneten Abbrandterm wie z.B.  $^{235}\text{D}$ ,  $^{236}\Delta$  oder  $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  läßt außerdem eine Reduktion des Analysenaufwandes zur Bestimmung des Pu/U-Verhältnisses pro Auflösecharge zu, da die angegebenen Abbrandterme bedeutend einfacher zu bestimmen sind, als das Pu/U-Verhältnis.

### 5.3 Interlaboratoriumstests

#### 5.3.1 Interlabtest zum Experiment Mol III

Im Rahmen des Mol III-Experimentes wurde im Jahre 1971 auch der Interlaboratoriumstest vollständig zu Ende geführt und ausgewertet. Zusätzlich zu den im Jahresbericht für 1970 dargestellten Ergebnissen zur Bestimmung der U-Konzentration im Produkt einer Wiederaufarbeitungsanlage wurden - ebenfalls mit den Methoden der Varianzanalyse - auch die systematischen und statistischen Fehler bei der Pu-Konzentrationsbestimmung und bei der Bestimmung der Isotopenzusammensetzung von U und Pu, wiederum im Produktstrom, untersucht.

Abb. 5.3.1/1 zeigt ein Modell des Tests für die Varianzanalyse.

Bei den Konzentrationsbestimmungen in salpetersaurer Lösung wurden naßchemische Methoden (Gravimetrie, Oxidimetrie, Coulometrie) und die Röntgenfluoreszenzmethode angewendet, zur Bestimmung der Isotopenzusammensetzung bediente man sich der Massenspektrometrie und der  $\alpha$ -Spektrometrie speziell für die Bestimmung des Pu-238.

Insgesamt waren 8 Labors an diesem internationalen Vergleichsexperiment beteiligt. Für die U-Konzentrationen wurden 75 Einzelbestimmungen vorgelegt, für die Pu-Konzentrationen waren es 55. Bei den Isotopenverhältnissen ergaben sich 1000 einzelne Bestimmungen für U und 1400 für Pu.

Es war das Ziel der Untersuchungen, den Anteil der einzelnen Fehlerkomponenten bei diesen Bestimmungen, ausgedrückt in relativen Standardabweichungen, zu quantifizieren.

In Abb. 5.3.1/1 sind auch diese verschiedenen Fehlermöglichkeiten angedeutet. Bei Konzentrationsbestimmungen hat man:

- i) den Probenahmefehler,
- ii) den Probenfehler,
- iii) den Interlaborfehler,
- iv) den Reproduzierbarkeitsfehler.

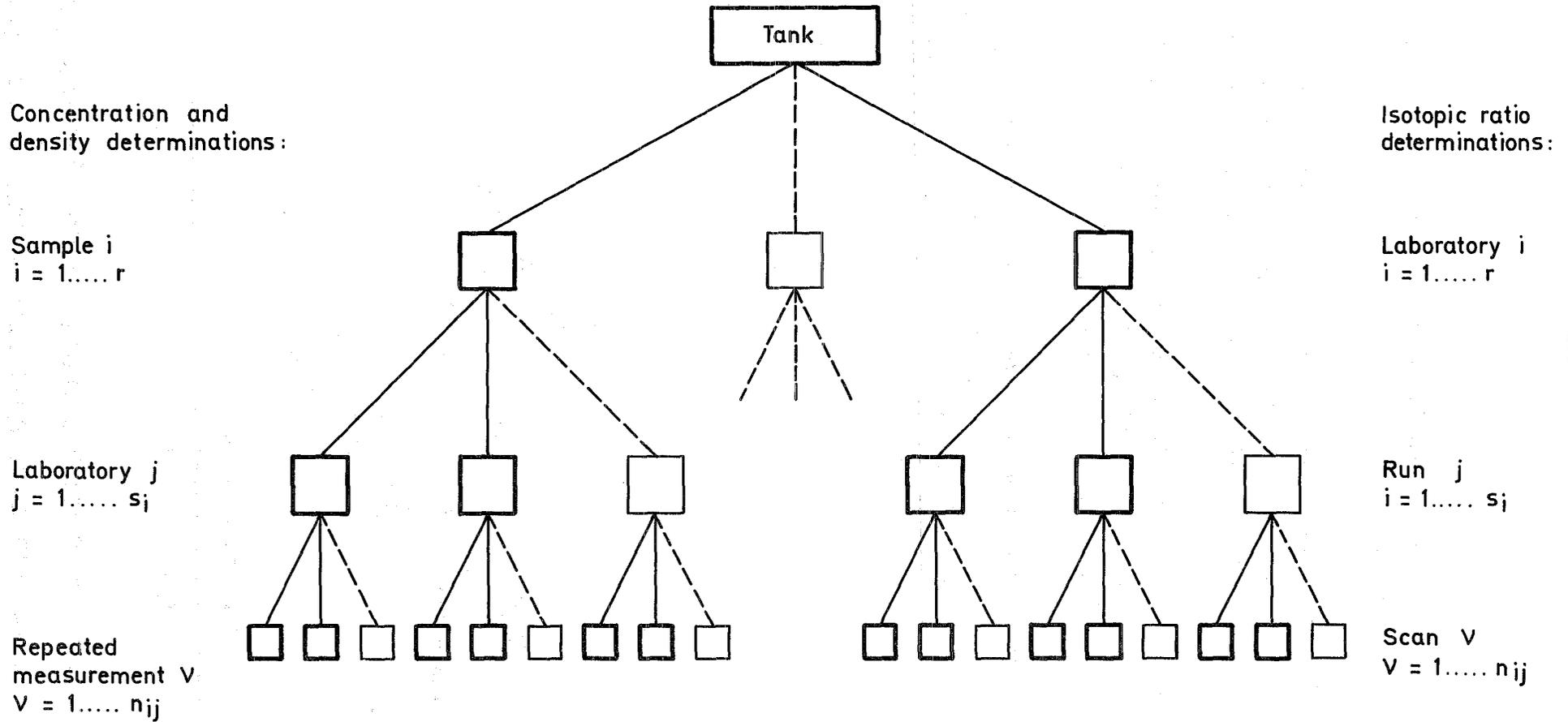


Abb. 5.31/1 Models for the Analyses of Variances

Bei der massenspektrometrischen Bestimmung der Isotopenzusammensetzung ergeben sich die folgenden Fehler:

- i) Interlabfehler (Unterschiede, die sich bei der Analyse von gleichartigem Probenmaterial ergeben, verursacht z.B. durch verschiedene Standards und zufällige Komponenten)
- ii) Run-Fehler (Unterschiede bei der Messung verschiedener "filaments" mit gleichem Probenmaterial, verursacht z.B. verschiedene Einstellung der "filaments"...)
- iii) Scan-Fehler (verschiedene Ergebnisse für die einzelnen Isotopenverhältnisse innerhalb desselben "run", möglicherweise durch Instabilitäten des Instruments verursacht).

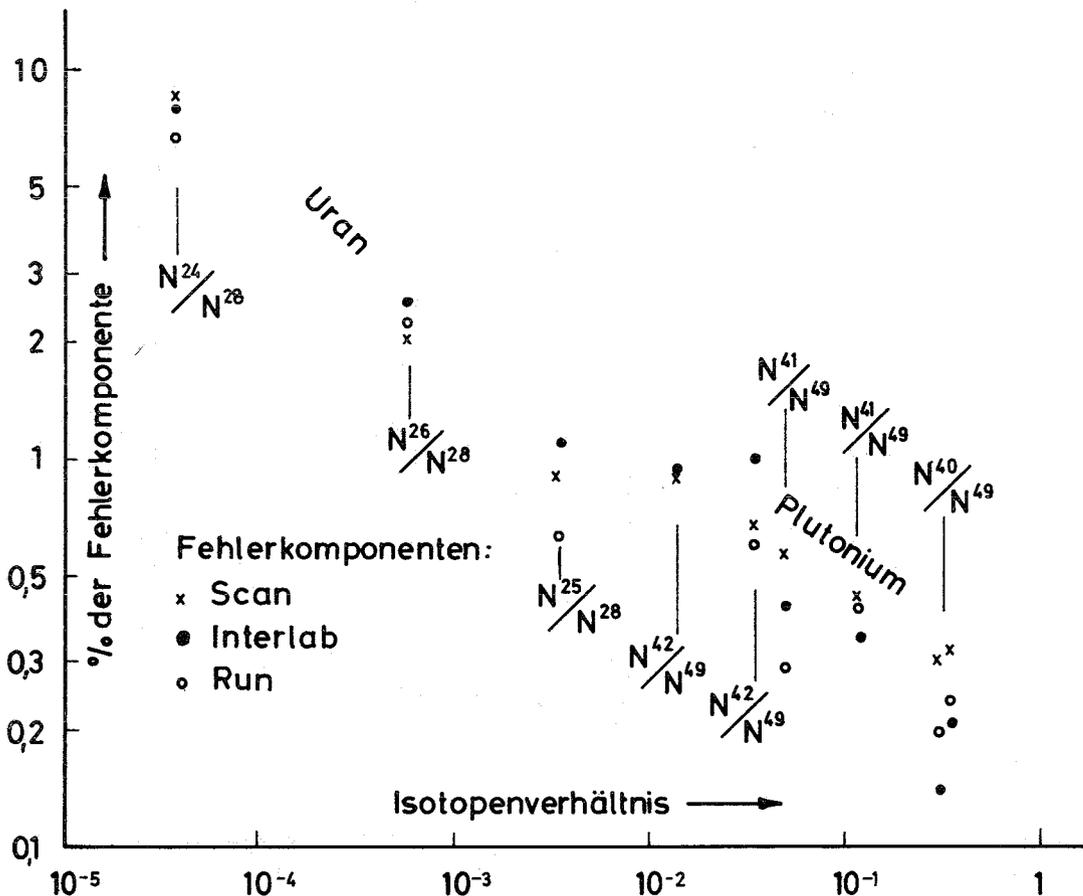


Abb.5.31/2 Relative Standardabweichung der Fehlerkomponenten für die massenspektrometrische Isotopenverdünnungsanalyse

Bei der Konzentrationsbestimmung für U ist die Hauptfehlerkomponente die Interlab-Abweichung, beim Pu dagegen der Probenfehler, der wahrscheinlich von Polymerisation und Platierungseffekten herrührt.

Die relativen Standardabweichungen, die mit massenspektrometrischen Bestimmungen der einzelnen Isotopenverhältnisse verknüpft sind, sind in Abb. 5.3.1/2 dargestellt. Danach scheinen alle 3 Fehlerkomponenten von derselben Größenordnung zu sein; sie nehmen mit abnehmender Isotopenhäufigkeit deutlich zu.

Bei der Umwandlung dieser Isotopenverhältnisse in Gewichtsprozent wurde auch die Fehlerfortpflanzung untersucht und festgestellt, daß der Fehler in den Gewichtsprozent bei den seltenen Isotopen (< 1 %) unwesentlich von den in Abb. 5.3.1/2 dargestellten Isotopenverhältnissen abweicht.

Außer diesen Analysen wurde ein erster Versuch unternommen, die erzielbare Genauigkeit bei der Anwendung der massenspektrometrischen Isotopenverdünnungsanalyse für U- und Pu-Konzentrationsbestimmungen an der aktiven Eingangs-lösung von Wiederaufarbeitungsanlagen abzuschätzen. An diesem Test nahmen 4 Labors teil. Abb. 5.3.1/3 gibt eine Übersicht über die erzielten Ergebnisse.

Die berechneten Standardabweichungen der verschiedenen Fehlerkomponenten sind in Tabelle I zusammengefaßt:

Reproduzierbarkeit	Interlababweichung	Gesamtfehler der Einzelanalyse
RSD [%]	RSD [%]	RSD [%]
Uranium : 1.1	1.4	1.7
Plutonium: 0.6	2.7	2.7

Tabelle I: Berechnete RSD der Fehlerkomponenten

Diese Werte sind jedoch wegen der geringen Teilnehmerzahl bei diesem Test mit einer großen Unsicherheit behaftet.

Die Werte der einzelnen Labors entsprechen etwas besser den Erfahrungswerten für die Reproduzierbarkeit der Ergebnisse, die zwischen 0.4 und 0.7 % liegen sollten, s. Tabelle II:

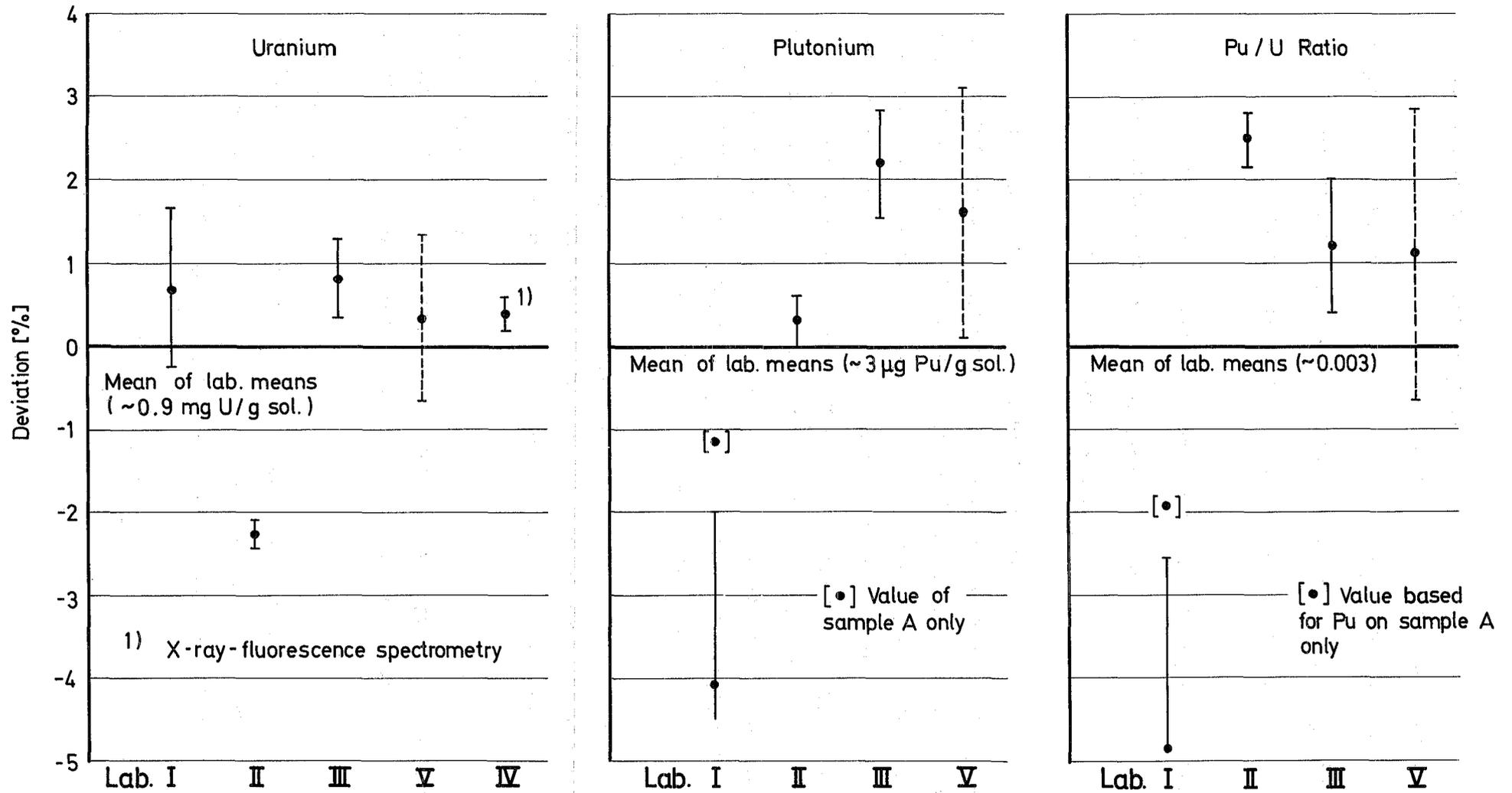
Labor- Code	Anzahl der berücksichtigten Analysen		Berechnete Reproduzierbarkeit für dieses Experiment		Angegebener Erfahrungswert	
	U	Pu	RSD [%]		RSD [%]	
			U	Pu	U	Pu
I	4	- <sup>1)</sup>	1.9	- <sup>1)</sup>	0.6	0.8
II	4	4	0.3	0.6	0.5	0.7
III	4	4	0.4	0.5	0.6	0.6
V	1	1	-	-	nicht angegeben	
VI <sup>2)</sup>	4	0	0.4	-	1.0	1.0 <sup>3)</sup>

1) Nicht berechnet, da die Werte nicht repräsentativ waren

2) Bestimmung mit der Röntgenfluoreszenzmethode

3) Beruht auf Erfahrungswerten an Proben mit höherer Pu-Konzentration als in diesem Test

Tabelle II: Berechnete und Erfahrungswerte für die Reproduzierbarkeit von U- und Pu-Konzentrationsbestimmungen pro Labor



( Mean values per laboratory; error bars indicate  $\pm 1\sigma$  range of these means )

Abb. 5.3.1/3 Interlabtest V: U- and Pu-Concentrations of Active Feed Solutions Determined by Isotopic Dilution Analyses

### 5.3.2 Interlabtest IDA 1972, Vorbereitungen

Im Anschluß an das Mol III-Experiment wurde vorgeschlagen, einen Teil des Interlab-Tests, nämlich die Untersuchungen zur Isotopenverdünnungsanalyse an aktiven Eingangslösungen einer Wiederaufarbeitungsanlage, zu wiederholen.

Es wurde beschlossen, daß neben den Teilnehmern vom Mol III-Experiment neue Laboratorien zur Mitarbeit eingeladen werden sollten, um den Untersuchungen eine breitere Basis zu geben.

Bei einem ersten informellen Vorbereitungstreffen in Wien waren 18 Teilnehmer aus 15 Organisationen anwesend; weitere Labors haben ihr Interesse an einer Beteiligung ausgesprochen.

Aus der Diskussion ergab sich, daß die Labors bereit sind, umfangreiche Untersuchungen zu einer Anzahl von Problemen in Zusammenhang mit der Methode der massenspektrometrischen Verdünnungsanalyse durchzuführen. Das Experiment soll an Proben aus dem Eingangstank der EUROCHEMIC-Wiederaufarbeitungsanlage und an synthetischen Proben mit ähnlichem Pu- und U-Gehalt, aber ohne Spaltprodukte, durchgeführt werden. Die Analyse solcher synthetischen Proben hat den Vorteil, daß deren Zusammensetzung bekannt ist, was bei der vorgesehenen Untersuchung der systematischen und statistischen Fehlerkomponenten der Methode von großem Nutzen sein wird. Im einzelnen wurden folgende Teilexperimente vorgeschlagen:

1. Standardexperiment an aktiven Proben
2. Standardexperiment an synthetischen Proben
3. Untersuchungen zum Zusatz eigener Spike-Lösungen in den verschiedenen Labors
4. Untersuchungen zum Proben transport in Aluminium-Kapseln
5. Untersuchungen zum Transport eingedampfter Proben in Glasfläschchen
6. Untersuchungen zum Alterungsverhalten Pu-haltiger Proben
7. Bestimmung der Pu- und U-Konzentration mit anderen Methoden, wie z.B. der Röntgenfluoreszenzspektroskopie.

Es wurde vereinbart, daß das Projekt SpFK in Karlsruhe die Koordination der Arbeiten und die Auswertung der Ergebnisse vornehmen sollte. Die EUROCHEMIC in Mol und das Zentralbüro für Kernmessungen der EURATOM in Geel erklärten sich bereit, gemeinsam die Probenvorbereitung zu übernehmen.

Literaturverzeichnis zu Kapitel 5

- /1/ AEG-Bericht E3-2011
- /2/ AEG-Bericht E3-2174
- /3/ AEG-Bericht E3-2280
- /4/ R. Kraemer, W. Beyrich: KFK 1100, EUR 4576e
- /5/ wie /4/, Kapitel 4
- /6/ E. Drosselmeyer, R. Kraemer, A. Rota  
Application of digital simulation techniques  
for process inventory estimations  
IAEA-SM-133/18  
Proceedings of a Symposium on Progress in  
Safeguards Techniques, July 6.-10. 1970, Karlsruhe  
Vol. II

## Kapitel 6: Studien für Überwachungsmaßnahmen

Einleitung

6.1 Überwachungsmaßnahmen in Kernanlagen

6.1.1 Überwachungsmaßnahmen in Kernkraftwerken mit  
Leichtwasserreaktoren

W. Scheuerpflug

6.1.2 Überwachungsmaßnahmen in Kernkraftwerken mit  
schnellen natriumgekühlten Brutreaktoren vom  
Typ SNR

G. Bork

6.2 Überwachungsmaßnahmen in Fabrikationsanlagen  
für die Verarbeitung von hochangereichertem Uran

R. Kraemer

6.3 Überwachungsmaßnahmen in GUZ-Anlagen

D. Gupta

Literaturverzeichnis zu Kapitel 6



## 6. Studien für Überwachungsmaßnahmen in Kernanlagen

### Einleitung

Die Erarbeitung von Studien für Überwachungsmaßnahmen in Kernanlagen stellt einen Aufgabenbereich dar, der durch eine enge Zusammenarbeit zwischen Kernindustrie und Projekt gekennzeichnet ist. Die Verfolgung und Koordinierung der Entwicklungsverträge für die Überwachungsstudien wurden im Berichtszeitraum von der Projektleitung wahrgenommen.

Außer auf dem hier beschriebenen Gebiet vollzieht sich die unmittelbare Zusammenarbeit mit der Industrie im Bereich der Instrumentenentwicklung. Hier lagen die Aufgaben der Koordinierung und Betreuung der Entwicklungsverträge bei den betreffenden Sachgebietsleitern. Darüber wird berichtet in den Kapiteln 2 und 3.

### 6.1 Überwachungsmaßnahmen in Reaktoranlagen

#### 6.1.1 Überwachungsmaßnahmen in Kernkraftwerken mit Leichtwasserreaktoren

Um ein möglichst realistisches Kontrollkonzept zu entwickeln, war es unumgänglich notwendig, intensiv mit Kraftwerksbetreibern und Brennelementherstellern zusammenzuarbeiten. Aus diesem Grunde wurden mit Siede- und Druckwasserreaktorbetreibern zunächst Kontakte aufgenommen, und, wie sich später herausstellte, in sehr effektiver Zusammenarbeit alle erdenklichen Abzweigmöglichkeiten und die hierfür notwendigen Kontrollaktivitäten diskutiert. Es stellte sich dabei heraus, daß eine dynamische Überwachung von Leichtwasserreaktoren für eine ausreichende Spaltstoffflußkontrolle weder mit vertretbarem Aufwand möglich, noch für die gestellte Aufgabe erforderlich ist.

Zählen, Identifizieren und Siegelintaktheitskontrollen der aus mehreren Einzelpins aufgebauten Brennelemente zu bestimmten Zeitpunkten ermöglichen eine relativ wenig aufwendige und dennoch lückenlose Überwachung des Brennstoffinventars in Leichtwasserreaktoranlagen.

Dieser Übergang von der ursprünglich diskutierten dynamischen zur nun statischen Kontrolle fand bei allen konsultierten und auch internationalen Behörden weitgehend Beachtung und Anerkennung.

Als Grundlage zur Ausarbeitung einer statischen Kontrolle sind erforderlich

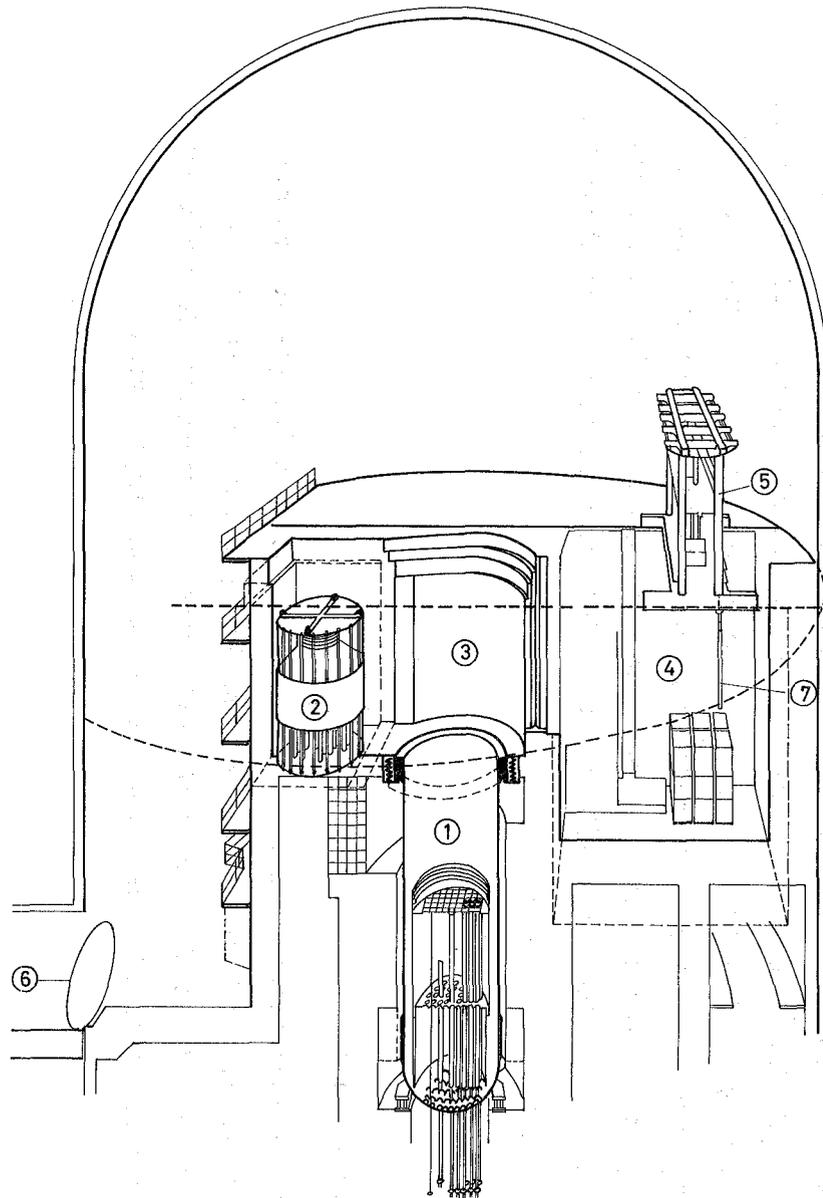
1. Eine Methode zur Identitäts- und Intaktheitskontrolle (s. 5.1) und
2. Analyse der Abschaltzeit zwecks Coreumbau, sowie ein repräsentatives Elementflußbild innerhalb der Reaktoranlage.

Für die beiden Leichtwasserreakortypen Siedewasser- (SWR) und Druckwasserreaktoren (DWR) zeigt sich, daß ein zu entwickelndes Überwachungskonzept für beide Reaktortypen anwendbar sein wird.

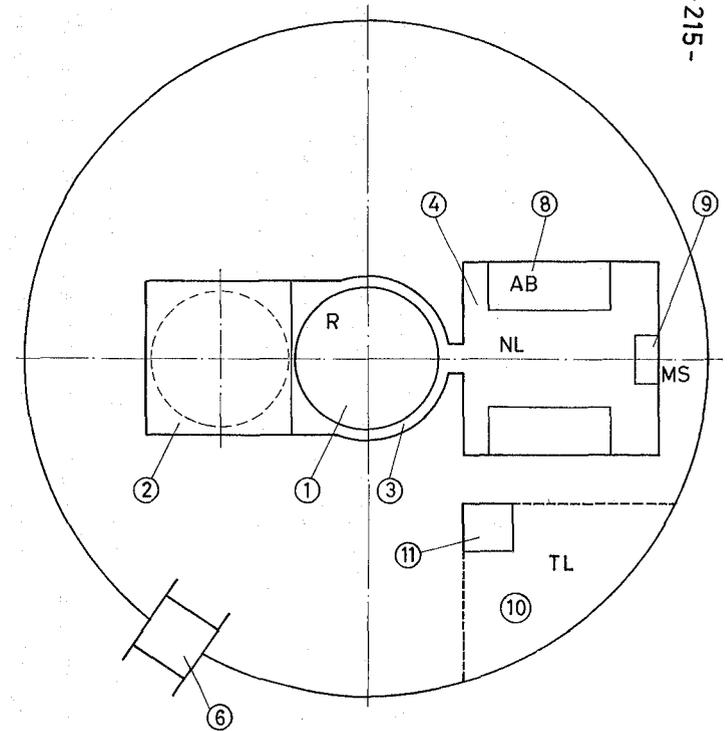
Die einzelnen Brennstäbe sind mit den Gitterplatten zu einem Bündel durch Verschraubung derart zusammengefaßt, daß eine Wiederzerlegung der Brennelemente in ihre Einzelteile möglich ist. Mit Hilfe von an den Schraubstellen angebrachten Siegel- und Identifikationskörpern lassen sich die Stabbündel auf Intaktheit der Assemblierung und auf Elementidentität überprüfen. Ein Pin-austausch muß wegen der auftretenden Hülschäden möglich sein, jedoch als solcher erkannt werden können. Eine Wiederversiegelungsmöglichkeit der im Kraftwerk komplettierten Brennelemente ist unter Umständen notwendig.

Ein wesentlicher Unterschied zwischen den beiden Elementtypen besteht darin, daß bei den DWR-Elementen das Elementskelett durch 16 oder 20 Regelstabführungsrohre, die mit den Abstandshaltern und dem Kopfstück verschweißt sind, gebildet wird. Die am unteren Ende der Regelstabführungsrohre eingeschweißten Gewindebolzen werden durch das Fußstück gesteckt und mit je einer selbsthemmenden Mutter verschraubt. Die Brennstoffpins werden durch die Abstandshalter positioniert und sind nicht mit Kopf- oder Fußstück verbunden.

Im Gegensatz hierzu sind die SWR-Brennelemente so aufgebaut, daß die Brennstoffpins zur Elementassemblierung benutzt werden. Bei 8 Pins sind die Endstücke als Gewindestopfen ausgebildet. Die unteren sind im Fußstück eingeschraubt, die oberen durch das Kopfstück gesteckt und mit Muttern verschraubt. Als Dreh-sicherung wird unter die Mutter ein Blech eingelegt, dessen Fahnen nach oben



- 1-Reaktordruckgefäß, geöffnet
- 2-Wasserabscheider u. Dampftrockner aus Reaktordruckgefäß herausgenommen und im Abscheiderlagerraum abgestellt.
- 3-Reaktor - Flutraum
- 4-Brennstofflagerbecken (Naßlager)
- 5-Brennstoffwechselbühne
- 6-Materialschleuse
- 7-Brennelementgreifer
- 8-Absetzblock
- 9-Montagegestand
- 10-Trockenlager + 25 m
- 11-Montageöffnung



Draufsicht Arbeitsbühne +32 m (schem.)

Abb.61.1./1 Schaubild zur Brennelementhandhabung im Reaktorgebäude eines Siedewasserreaktors

über die Mutter gebogen ein Lösen derselben verhindern (s.a. S. 168 ).

Ein weiterer wesentlicher Unterschied zwischen diesen beiden BE-Typen besteht darin, daß SWR-Elementen über das Pinnskelett ein Wasserführungskasten aufgezogen wird, der mit einer Schraube auf der Kopfplatte besfestigt ist. DWR-Elemente haben keinen Wasserführungskasten.

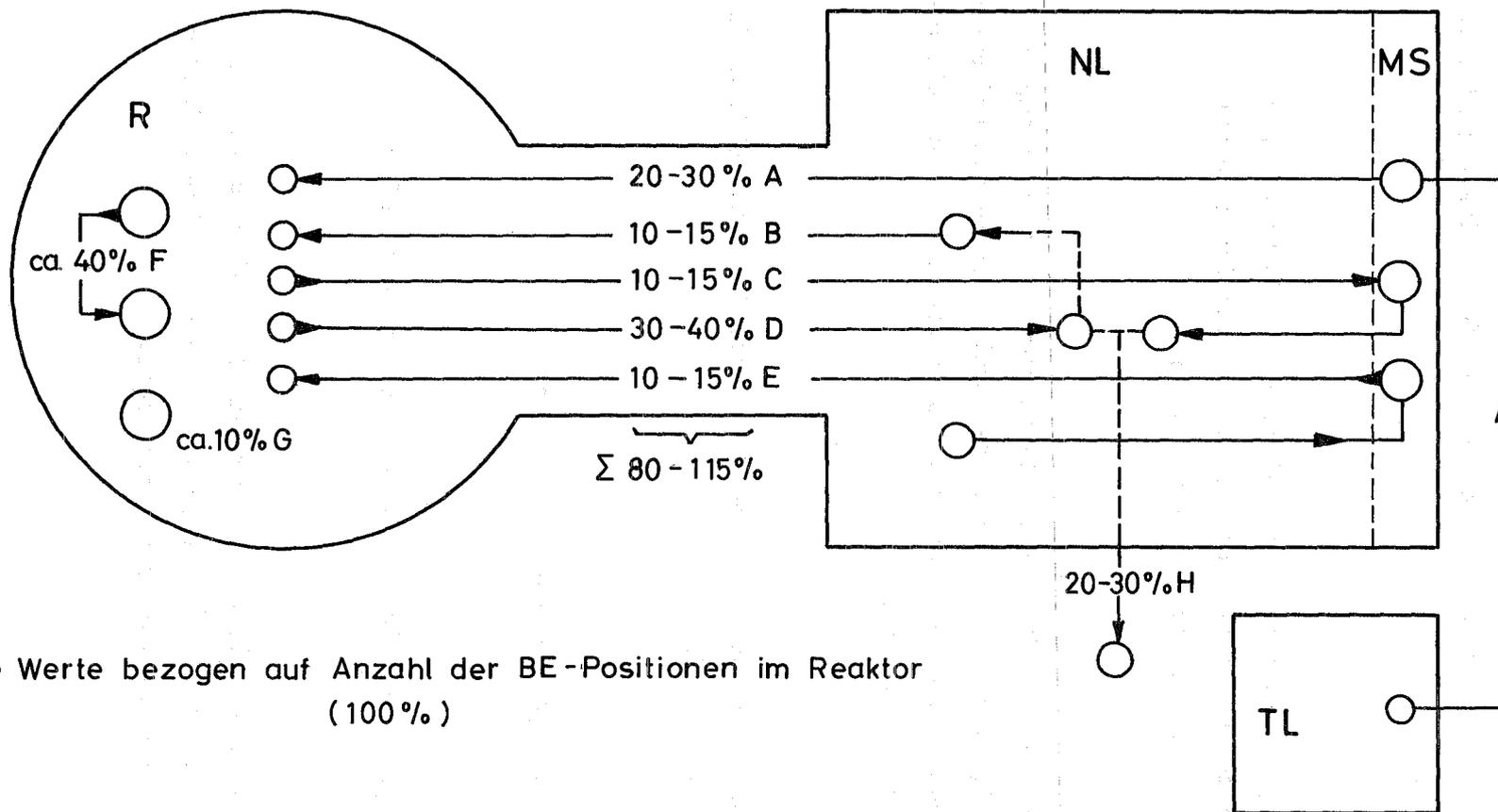
Im folgenden wird eine Brennelementtransportbilanz und der Zeitbedarf für typische Aktivitäten des Kraftwerkbetreibers während einer Abschaltphase zum Zwecke des BE-Wechsels in einem mit SWR betriebenen Kraftwerk etwas genauer durchleuchtet. Da die BE-Wechselmechanismen und die Art der BE-Handhabung der beiden Reaktortypen SWR und DWR sich kaum voneinander unterscheiden, können die Ergebnisse der Untersuchung in wesentlichen Teilen auch auf Druckwasserreaktoren übertragen werden.

In Abb. 6.1.1/1 sind die Bereiche dargestellt, in denen die Brennelemente nach Ankunft von der Fertigungsanlage (FA) bis zum Abtransport zur Wiederaufarbeitungsanlage (WA) innerhalb des Reaktorcontainments gehandhabt werden. Die Elemente gelangen durch die Materialschleuse ins Reaktorgebäude, werden auf der Arbeitsbühne ausgepackt und im Trockenlager (TL) zwischengelagert. In Abb. 6.1.1/2 ist der weitere Weg der Brennelemente bis zum Abtransport zur Wiederaufarbeitungsanlage dargestellt. Der Rücktransport der abgebrannten BE erfolgt vom Naßlager über eine Dekontaminationsstation (für Transportbehälter) ebenfalls durch die Materialschleuse.

Legende zu Fig. 6.1.1/2

Elemente Gruppe A:

Von der FA angelieferte im TL zwischengelagerte neue BE, sie werden mit einem Hilfshub der Wechselbühne in den Montagestand im NL transportiert. Hier wird der Elementkasten anmontiert (meist "gebraucht"), dann mit der Wechselmaschine in die vorgesehene Coreposition eingefahren.



Alle Werte bezogen auf Anzahl der BE-Positionen im Reaktor (100%)

Abb.6.1.1/2 Typische BE-Transportbilanz während einer Abschaltphase in einem SWR

Elemente Gruppe B:

Elemente, die zum Teil aus dem Core zwecks Inspektion von Reaktorkomponenten ausgebaut wurden (z.T. aus D), Elemente vom Vorjahr, die wegen Hüllschadenverdacht zerlegt und wieder komplettiert wurden (teilweise mit Pins aus "Spenderelementen").

Elemente Gruppe C:

Abgebrannte oder teilabgebrannte BE (hüllschadenverdächtig). Die Elementkasten werden im Montagestand abgezogen, die Skelette bis zur Weiterbehandlung im Naßlager zwischengelagert.

Elemente Gruppe D:

Elemente, die z.T. aus dem Core zwecks Inspektion von Reaktorkomponenten ausgebaut wurden (gelangen in B wieder ins Core), hüllschadenverdächtige oder voll abgebrannte BE deren Elementkasten zu einem späteren Zeitpunkt im Montagestand abgezogen werden.

Elemente Gruppe E:

Elemente von C, bei denen vor dem Einsatz im Core die Elementkästen im Montagestand abgezogen wurden.

Elemente Gruppe F:

Elemente, die im Reaktorcore umgesetzt werden.

Elemente Gruppe G:

Elemente, die in ihrer ursprünglichen Coreposition verbleiben.

Elemente Gruppe H:

Abgebrannte BE (aus C und D); werden nach ca. 100 d Abklingzeit im Naßlagerbecken in Transportbehälter gepackt (stets ohne Elementkasten) und zur Wiederaufarbeitungsanlage transportiert.

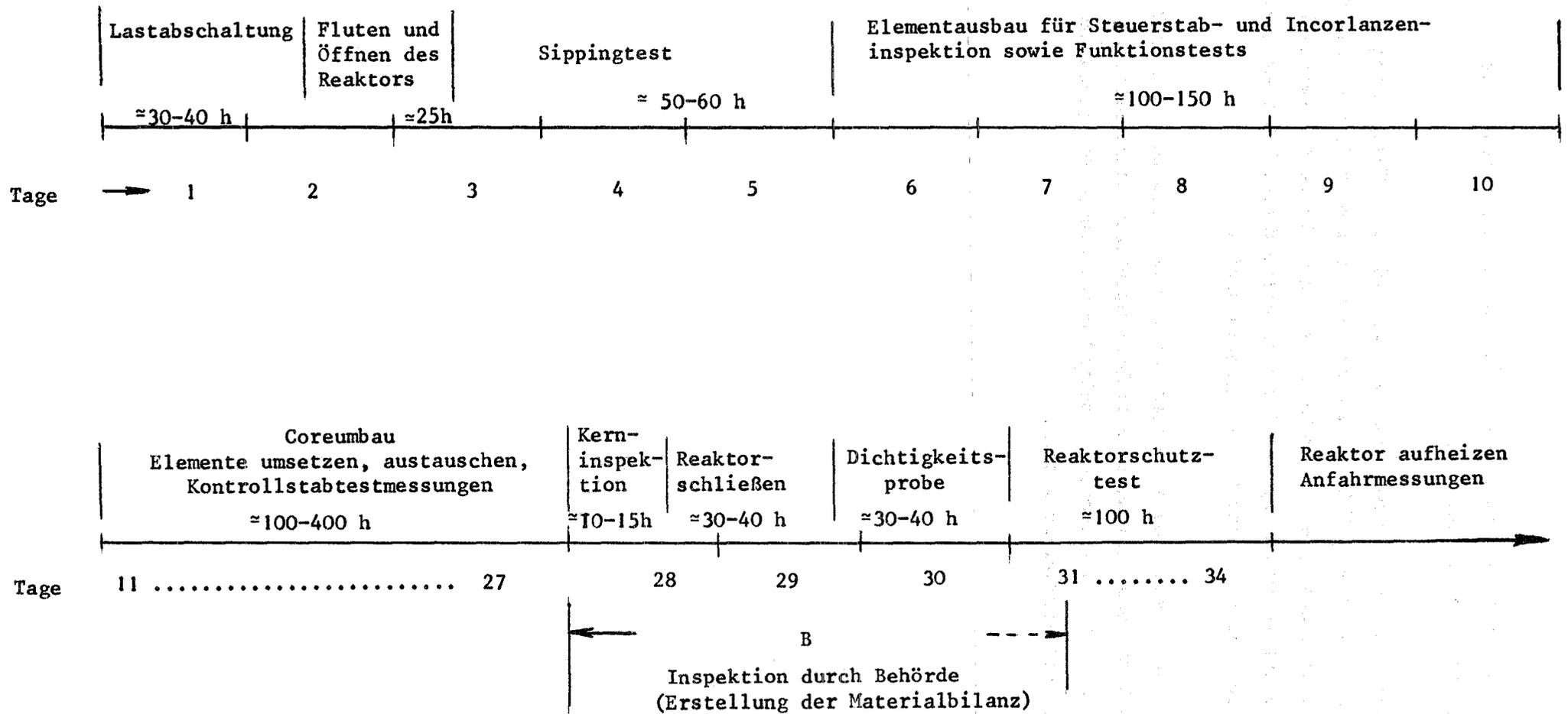


Abb. 6.1.1/3: Beispiel für den Zeitbedarf während einer Abschaltphase in einem SWR

In Abb. 6.1.1/3 wird der Zeitbedarf bei einer Routineabschaltung zum Zwecke des Brennelementwechsels dargestellt.

In dieser Darstellung wird der mögliche Zeitraum für eine Überprüfung des Spaltstoffinventars eingezeichnet. Während dieser Zeit wird eine Störung des Betriebsablaufs durch Inspektoren weitgehend vermieden. Weitere, eventuell statistische Kontrollen im Naßlager- oder Trockenlagerbereich können gegebenenfalls ohne Störung für den Betreiber vorgesehen werden.

Für weitere Untersuchungen dieses Problemkreises wird auch im Jahre 1972 ständiger Kontakt mit den Kraftwerksbetreibern notwendig sein; außerdem sollte die aufgestellte Datensammlung laufend durch neuere Betriebsdaten vervollständigt oder korrigiert werden.

### 6.1.2 Überwachungsmaßnahmen für Kernkraftwerke mit Schnellen Brutreaktoren vom Typ SNR /1/, /2/

Im vorangegangenen Abschnitt ist dargelegt worden, daß sich für die Überwachung von Leichtwasserreaktoren allgemein ein statisches Kontrollkonzept durchgesetzt hat. Auch für schnelle Brutreaktoren war nicht von vorneherein voraussehbar, ob ein solches Konzept auf sie anwendbar sein würde. Deshalb wurde zunächst im Rahmen eines Auftrages mit der Fa. Interatom die grundsätzliche Frage erörtert, wie ein für diesen Reaktortyp geeignetes Kontrollverfahren aussehen könnte, wobei ein dynamisches Grundkonzept zunächst im Vordergrund stand. Auf dieser Basis wurden die Arbeiten im Jahr 1970 bis zu einer gewissen Stufe gebracht, dann aber ergaben sich, wie im Jahresbericht 1970 auf Seite 40 bereits erwähnt wurde, konstruktive Änderungen sowohl am technischen Reaktorentwurf wie auch an mehreren Betriebseinrichtungen. Diese machten außer neuen Detailüberlegungen auch ein neues Überdenken des grundsätzlichen Überwachungskonzeptes erforderlich.

Für die Arbeiten des Jahres 1971 war das Grundkonzept der Studie mit seinen beiden Maßnahmen

- a) dynamische Kontrolle der Bewegungen spaltbaren Materials
- b) Versiegelung und Identifizierung der Brennelemente

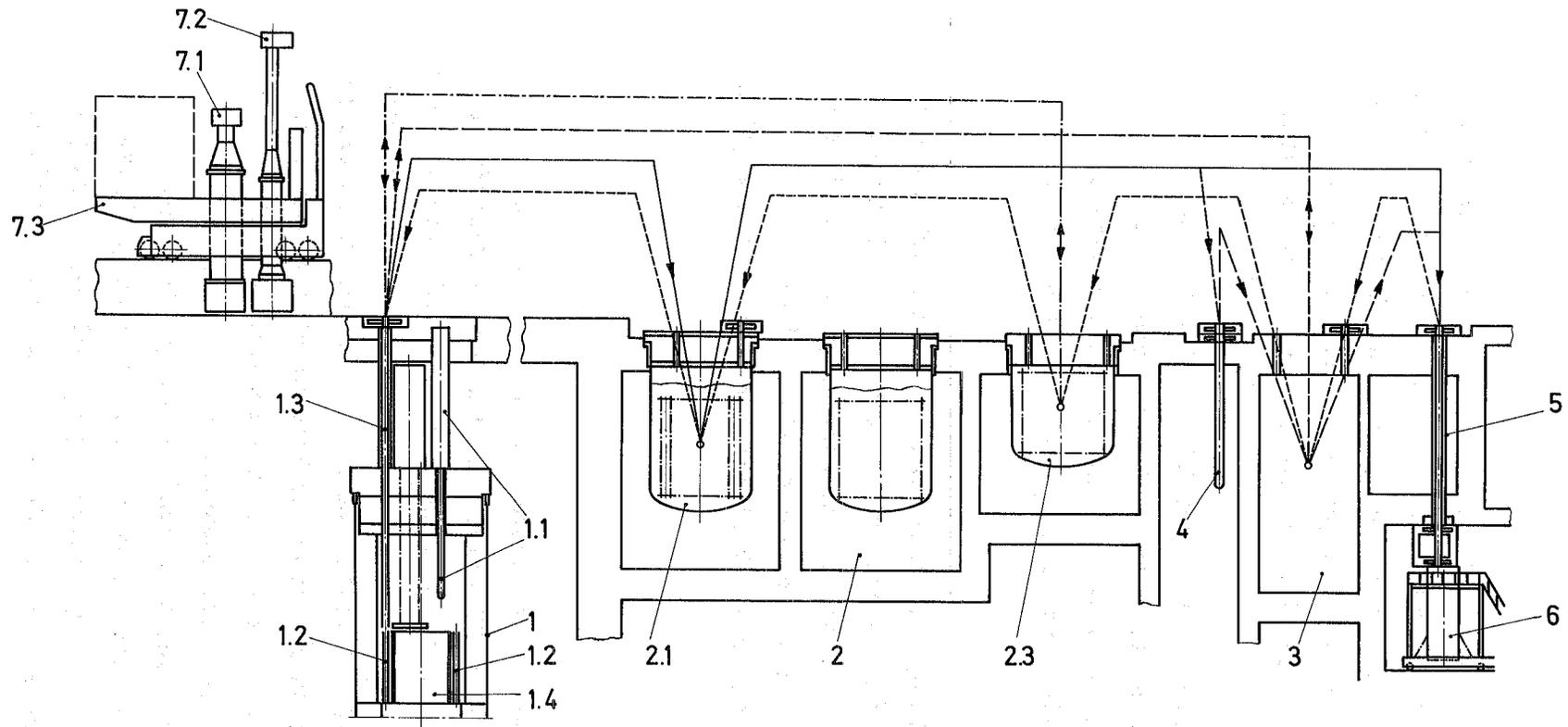
unverändert beibehalten worden. Es geht davon aus, daß eine alleinige Registrierung der ein- und ausgehenden Brennelemente an der Schleuse nicht ausreicht, weil die Aufenthaltszeit des einzelnen Elementes innerhalb des Reaktorcontainments zu lang ist, so daß eine evt. Abzweigung möglicherweise erst spät erkannt würde.

Die im Jahre 1971 an der Studie ausgeführten Tätigkeiten der Fa. Interatom konzentrierten sich im wesentlichen darauf, das oben skizzierte Grundkonzept an die neuen technischen Gegebenheiten anzupassen.

A. Die wichtigsten technischen Änderungen und deren Auswirkung auf die vorzuschlagenden Überwachungsmaßnahmen.

1. Der erste Entwurf des SNR sah für den Reaktor einen eigenen Gebäudeteil vor, der während des Betriebes durch ein Tor von den übrigen Betriebseinrichtungen getrennt wurde. Nach der neueren Planung stehen der Reaktor und alle Handhabungseinrichtungen für Brennelemente und für andere Reaktorteile innerhalb eines nur durch Schleusen begehbaren Containments. Für das Überwachungskonzept bedeutet dies, daß das gesamte Reaktorgebäude eine Materialbilanzzone wird, in der sich alles spaltbare Material befindet.
2. Der Reaktortank enthielt nach dem ersten Entwurf in seiner äußeren Randzone ein Ringlager für abgebrannte Brennelemente, wo diese bis zum nächsten planmäßigen BE-Wechsel verbleiben sollten und ihre Nachwärme noch durch das im Reaktortank enthaltene Natrium abgeführt werden konnte. Dieses Ringlager entfällt nunmehr. Auf seinem Radius werden nur noch 2-4 Übergabepositionen angeordnet, an denen sich die Ablösung der Transportvorrichtungen für die Brennelement vollzieht. Von der auf dem Reaktordeckel fest montierten Umsetzvorrichtung werden auszuwechselnde BE's von ihrer Coreposition auf eine Übergabeposition um- und damit gleichzeitig in eine mit Natrium gefüllte Büchse eingesetzt. Die in der ganzen Halle verfahrbare Wechsellmaschine zieht anschließend das Brennelement mit der Büchse aus der Übergabeposition und transportiert beides in das Natriumlager. Nach einer Abklingzeit von ca. 4 Monaten wird das Element aus seiner Büchse im Na-Lager gezogen, in einen Transportbehälter eingesetzt und zur Wiederaufarbeitungsanlage abtransportiert. Auf Abb. 6.1.2/1 sind die Einrichtungen, in denen sich Brennelemente befinden können, und die Transportwege zwischen diesen Einrichtungen schematisch dargestellt.

Für die visuelle Inspektion der Brennelemente gibt es nur noch drei Möglichkeiten während der Verweildauer der Elemente im Reaktorcontainment: nämlich einmal bei Anlieferung der neuen Elemente. Dies ist der Regelfall, d.h. hier werden alle Elemente einer Kontrolle unterzogen, in deren Verlauf auch Identitätsmerkmale festgestellt werden könnten. Kurzzeitig



#### Handhabungswege

- neue Elemente
- verbrauchte Elemente
- - - - - Inspektion bestrahlter Elemente
- bestrahlte Elemente bei Ausräumen des Reaktortanks

- 1 Reaktor für Brennstoffwechsel gerüstet
- 1.1 Umsetzvorrichtung
- 1.2 Übergabeposition mit Transportbüchse
- 1.3 Transferrohr
- 1.4 Reaktorkern
- 2 Element-Lager
- 2.1 Natrium - Betriebslager
- 2.2 Natrium - Reservelager
- 2.3 Gaslager
- 3 Beobachtungszellen

- 4 Waschkelle
- 5 Be- und Entladestation für Transportbehälter
- 6 Transportbehälter
- 7 Handhabungsmaschinen
- 7.1 Wechselflasche für Reaktorkernelemente
- 7.2 Wechselflasche für sonstige Komponenten
- 7.3 Koordinatenfahrwerk

Abb. 6.2.1/1 Handhabung von Reaktorkernelementen

(wenige Tage) abgeklungene Brennelemente können in einem, "Natriumzelle" genannten Teil der Beobachtungszelle ungewaschen äußerlich inspiziert und grob vermessen werden. Mit einer entsprechenden, fernbedienbaren Apparatur könnten hier Siegelkontrollen ebenfalls ausgeführt werden, was jedoch wegen des noch anhaftenden Natriums mit Schwierigkeiten verbunden sein dürfte.

Die dritte Möglichkeit schließlich besteht für länger (3-4 Monate) abgeklungene BE's, die im normalen Teil der Beobachtungszelle in gewaschenem, d.h. von Natrium gereinigtem Zustand untersucht werden können. Hier ist wieder eine leichtere Siegelkontrolle auf visueller Basis möglich.

Der früher unterbreitete Vorschlag, die Identitätskontrollen während des Transportes in der Wechselmaschine vorzunehmen, ist wegen der jetzt gegebenen Notwendigkeit, den BE-Transport in mit Natrium gefüllten Büchsen vorzunehmen, nicht mehr realisierbar. Im Reaktorgefäß ist wegen der dort gleichen Schwierigkeiten ebenfalls keine Identitätskontrolle möglich.

#### B. Änderungen im Kontrollkonzept.

In Abb. 6.1.2/2 wird eine schematische Darstellung des in der Studie erarbeiteten Kontrollverfahrens beim SNR vorgelegt. Sie deutet daraufhin, daß bei einem ausschließlich auf dynamischem Konzept aufgebauten Kontrollverfahren ein hoher Aufwand an Kontrolleinrichtungen aller Art verursacht würde. Die eingesetzten Meßgeräte, Stellungsanzeiger, Identitätskontrollgeräte sowie die fotografische Überwachung der Reaktorhalle produzieren eine große Menge von Daten, deren Auswertung eine automatische EDV-Anlage übernehmen müßte. Auch der fälschungssicheren Übertragung und Konservierung der Meßdaten sowie der Sicherung der Meßgeräte gegen unerlaubte Eingriffe müßte viel Aufmerksamkeit gewidmet werden. Diese Studienergebnisse haben maßgeblich dazu beigetragen, nach einer weniger aufwendigen Überwachungsmethode zu suchen. Sie könnte in einer optimalen Kombination von dynamischem und statischem Konzept liegen.

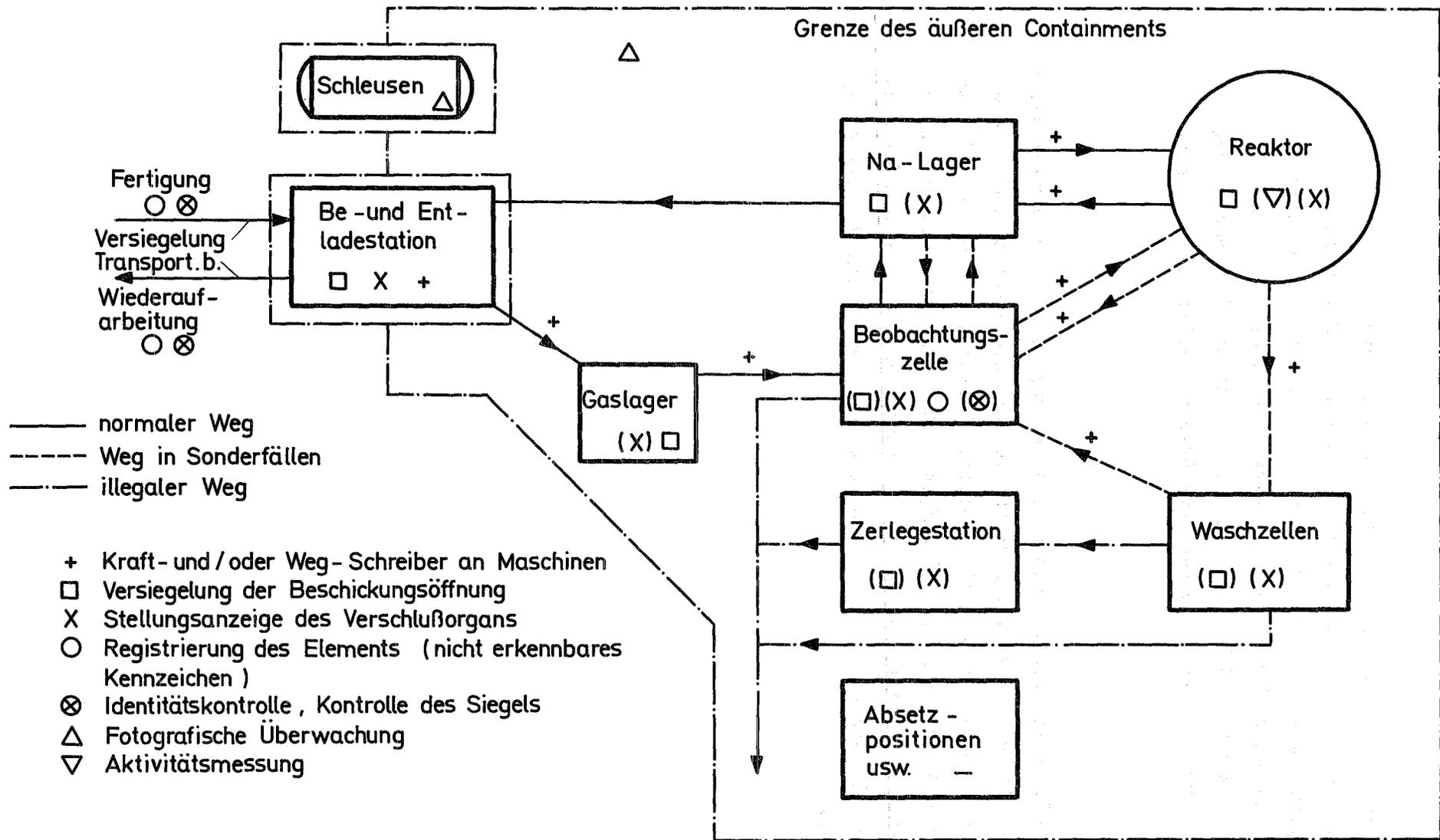


Abb. 6.2.1/2 Schematische Darstellung des Kontrollverfahrens beim SNR (Dynamisches Verfahren)

Infolgedessen wurde in Übereinstimmung zwischen Projektleitung und der Fa. Interatom die Studie zum rein dynamischen Kontrollkonzept abgeschlossen, obwohl noch nicht alle Fragen gelöst worden waren. Die innerhalb des Auftrages noch vorgesehenen Aufwendungen an Arbeitszeit werden im Jahr 1972 auf die Erarbeitung der wesentlichsten Kontrollmaßnahmen innerhalb eines vereinfachten Konzeptes verwendet werden.

Entscheidender Bestandteil eines solchen Konzeptes ist das Vorhandensein eines zuverlässigen Versiegelungs- und Identifizierungssystems für die Brennelemente, weil nur dann die Spaltstoffbilanz als Anzahl der in der Anlage vorhandenen Brennelemente aufgestellt werden kann. Für die SNR-Brennelemente sind gerade bezüglich der Versiegelung und Identifizierung noch viele Probleme ungelöst. Sie bedürfen der intensiven Weiterführung der Arbeiten.

## 6.2 Überwachungsmaßnahmen in Fabrikationsanlagen für die Verarbeitung von hochangereichertem Uran (NUKEM, Hanau)

Die Verarbeitung von hochangereichertem Uran (<90 % U-235) bedeutet wegen seines hohen strategischen Wertes und wegen seiner einfachen offenen Handhabung ein ernstzunehmendes Überwachungsproblem. Die Mengen, die in der BRD bei der Fa. NUKEM verarbeitet wurden, betragen 1971: 500 kg und werden 1972 etwa 700 kg erreichen. Je nachdem wie die THTR-Linie weiterverfolgt wird, werden in den nächsten Jahren noch beträchtliche Mengen an hochangereichertem Uran bei der Fa. NUKEM in Hanau verarbeitet.

Die im NV-Vertrag festgelegten Ziele und die zur Erreichung dieser Ziele in einigen Dokumenten (z.B. Modellabkommen INFCIRC 153) skizzierten Wege lassen bereits heute erkennen, daß NUKEM für die Verarbeitung von hochangereichertem Uran umfassende organisatorische und technische Maßnahmen durchführen muß.

Nachdem im "Projekt Spaltstoffflußkontrolle" umfangreiche Entwicklungsarbeiten aus dem gesamten Spaltstoffkontrollsektor geleistet wurden und werden, war es naheliegend, die für die Kontrolle der NUKEM-Betriebe notwendigen Voraussetzungen gemeinsam zu erarbeiten. Neben der Erstellung eines Kontrollsystems sollten auch die organisatorischen, technischen und baulichen Bedingungen für den Schutz der Anlage im Rahmen einer gemeinsamen Untersuchung erarbeitet werden.

Im Vordergrund steht dabei die Frage, ob die Spaltstoffkontrolle und der physikalische Schutz in den vorhandenen, in umgebauten oder nur in neuen Räumen realisierbar sind.

Zur Beantwortung dieser Frage ist eine Phase der Projektdefinition als notwendig erachtet worden, die die Aufnahme des gegenwärtigen Zustandes der bestehenden Fabrikationsanlage hinsichtlich des Bilanzierungssystems und des "containment" bzw. "physical protection" und eine Aufwandschätzung für die Erstellung von Auswahlkriterien für die drei Varianten (Beibehaltung der bestehenden Anlage, Modifikation der bestehenden Anlage, Neubau) zum Ziel hat. Die Untersuchung der Variante "Neubau" ist von NUKEM deshalb gewählt worden, da sich nach ihrer Ansicht die Spaltstoffkontrolle und der Schutz vor Entwendung von Spaltstoff in einem Neubau am ehesten verwirklichen lassen.

In diesem Sinne hat das Projekt Spaltstoffflußkontrolle am 29. Oktober 1971 NUKEM einen Auftrag zur Ausarbeitung der Projektdefinitionsphase eines Überwachungssystems, welches Maßnahmen zur Verhinderung einer Spaltstoffabzweigung einschließt, für eine Fabrikationsanlage zur Verarbeitung von hochangereichertem Uran erteilt.

Das Ergebnis der Arbeiten der Projektdefinitionsphase ist im Abschlußbericht /3/ dargelegt. Aus den vorliegenden Daten wird die Folgerung gezogen, daß die Erfordernisse der Spaltstoffkontrolle und des physischen Schutzes nur in einer modifizierten Fabrikationsanlage oder in einem Neubau realisiert werden können.

### 6.3 Überwachungsmaßnahmen in GUZ-Anlagen

Die Überwachung von spaltbarem Material in Uran-Anreicherungsanlagen mit Gas-Ultrazentrifugen wirft besondere Probleme auf, da für eine gegebene installierte Trennleistung einer Anreicherungsanlage sowohl niederangereichertes als auch hochangereichertes Uran hergestellt werden kann. Außerdem liegen in solchen Anlagen besonders viele industrieempfindliche Informationen vor. Um die Empfindlichkeit überwachungsrelevanter Parameter in solchen Anlagen zu erkennen, wurde zusammen mit der Fa. Dornier eine Parameterstudie angefertigt, deren Projektdefinitionsphase Ende 1970 beendet war. Diese Studie wird 1972 fortgesetzt.

Nach den Arbeitsergebnissen des Jahres 1971 reichen auch für diese Art von Kernanlagen die drei grundsätzlichen Maßnahmen für eine effektive Überwachung aus. Zu diesem Zweck ist die Erfassung und Überwachung von Trennleistung nicht erforderlich und auch technisch nicht möglich bzw. wirtschaftlich nicht vertretbar.

Es ist zu erwarten, daß einige zentrifugenspezifische Eigenschaften die Überwachung einer kommerziellen GUZ-Anlage begünstigen:

- a) Aus wirtschaftlichen Gründen werden große Zentrifugenanlagen sehr wahrscheinlich aus mehreren parallelgeschalteten kleineren Einheiten (ca. 500-600 tUTA/a) bestehen. Dieses hat zur Folge, daß die gesamten Meßunsicherheitsbereiche für eine Bilanzierungsperiode verhältnismäßig niedrig gehalten werden können (z.B. <2 eff. kg/a pro Einheit).
- b) Die Meßgenauigkeiten für die Hauptprozeßströme, die schon heute unter Betriebsbedingungen erreichbar sind, gehören zu den besten im Brennstoffzyklus. Dieser Vorteil ist jedoch für alle Arten von Urananreicherungsanlagen vorhanden.
- c) Das Gasphasen-Inventar in einer Zentrifugen-Kaskade ist gegenüber der durchgesetzten Menge pro Jahr sehr klein und bleibt weitgehend konstant. Dieses bringt einige Erleichterungen bei der Erstellung eines Bilanzierungssystems bzw. bei der Durchführung von Inventuren.

d) Durch geeignete Anlageauslegung kann der Anteil an schwererfaßbarem Prozeßinventar im nicht zugänglichen Teil der Anlage klein gehalten werden.

Die Arbeiten haben andererseits deutlich gemacht, daß

e) für die Verwirklichung eines effektiven Überwachungssystems die Dichtigkeits- und Beobachtungsmaßnahme in wesentlich stärkerem Maße (als im anderen Teil des offenen Brennstoffzyklus) eingesetzt werden muß,

f) sorgfältig geplante und eingehende experimentelle Untersuchungen erforderlich sein werden, um einige theoretisch angenommene Daten über Meßgenauigkeiten, MUF-Komponenten usw. unter Betriebsbedingungen bestätigen zu können.

Literaturverzeichnis zu Kapitel 6

- /1/ INTAT-71.19, Tätigkeitsbericht der Fa. INTERATOM zu Arbeiten an der Entwicklung von Methoden zur Spaltstoffflußkontrolle für den SNR (Juni 1971)
- /2/ INTAT-72.33, Tätigkeitsbericht der Fa. INTERATOM zu Arbeiten an der Entwicklung von Methoden zur Spaltstoffflußkontrolle für den SNR (Juni 1972)
- /3/ NUKEM-68, Projektdefinitionsphase eines Überwachungssystems für eine Fabrikationsanlage zur Verarbeitung von hochangereichertem Uran, (Dez. 71)



**Kapitel 7: Internationale Zusammenarbeit**

**D. Gupta**

- 7.1 Zusammenarbeit mit EURATOM**
- 7.2 Zusammenarbeit mit der IAEO**
- 7.3 Internationale Tagungen**

1. The first part of the document is a list of names and titles.

2. The second part of the document is a list of names and titles.

3. The third part of the document is a list of names and titles.

4. The fourth part of the document is a list of names and titles.

5. The fifth part of the document is a list of names and titles.

## 7. Internationale Zusammenarbeit

### 7.1 Zusammenarbeit mit EURATOM

Die Euratom-Assoziation zu den F.+E.-Tätigkeiten im Gebiet der Sicherheitskontrolle wurde 1971 um die Mitgliederschaft der Niederlande (vertreten durch RCN Petten) erweitert, so daß die Assoziation zur Zeit fünf Mitglieder zählt, nämlich Europäische Gemeinschaft (Ispra, Petten, Karlsruhe), Belgien (CEN), BR Deutschland (GfK), Italien (CNEN) und Niederlande (RCN). Für die Wahrnehmung der Tätigkeiten verfügt die Assoziation über zwei Organe, ein Entscheidungs- (Lenkungsausschuß) und ein Durchführungsorgan (Projektleitungsausschuß). Nach der Geschäftsordnung übernimmt das einzelne Mitglied turnusmäßig für ein Jahr den Vorsitz beider Ausschüsse. 1971 hatte die BRD den Vorsitz dieser Ausschüsse (Lenkungsausschuß: W. Häfele, Projektleitungsausschuß: D. Gupta). Das Arbeitsfeld der Assoziation umfaßt weitere Gebiete und die bisherigen Tätigkeiten dieses Ausschusses haben die Arbeit der Mitglieder positiv beeinflusst.

#### i) F.+E.-Arbeiten der Mitglieder

Die F.+E.-Programme werden normalerweise in enger Zusammenarbeit und gegenseitiger Abstimmung erstellt. Wie aus der Tabelle 7.1/1 ersichtlich ist, weisen die Schwerpunkte der F.+E.-Tätigkeiten einzelner Mitgliedsstaaten komplementäre Züge auf, obwohl gewisse Parallelität in Bereichen der Instrumentenentwicklung und Containmentstudien (auf besonderen Wunsch der Mitglieder) zu erkennen ist.

#### ii) Planung und Vorbereitung gemeinsamer Vorhaben

Dies ist ein besonders produktiver Bereich der Assoziationstätigkeiten. Das vielfach erwähnte Mol III-Experiment in der EUROCHEMIC-Anlage Mol sowie das von CNEN (Italien) und Ispra (EURATOM) durchgeführte Experiment in der EUREX-Wiederaufarbeitungsanlage in Italien wurden unter der Gesamtleitung der Assoziation durchgeführt. Auch fand

Tabelle 7.1/1: F+E-Programm-Schwerpunkte der Mitglieder der EURATOM-Assoziation für das Jahr 1971  
(EURATOM: Ispra, Petten, TU Karlsruhe; Belgien: CEN; Deutschland: GfK;  
Italien: CNEN; Niederlande: RCN)

Mitglieder	Systemanalyse	Zerstörungsfreie Methoden	Direkte Methoden	Integrale Experimente	Containment Studie	Dienstleistungen
EURATOM	<ol style="list-style-type: none"> <li>1. Korrelation: Kr-85-Pu/U</li> <li>2. Korrelation: Theoretische Studie</li> <li>3. Simulation</li> </ol>	<ol style="list-style-type: none"> <li>1. n-Methoden: passiv und aktiv</li> <li>2. Gamma-passiv und Transmission</li> <li>3. Tragbare Instrumente</li> </ol>	<ol style="list-style-type: none"> <li>1. Automatische Mass.Spektrometrie</li> <li>2. Tragbare X-Ray-Fluoreszenz</li> <li>3. Emissions-Spektroskopie für U</li> <li>4. Teilnahme am Umpire Qualification Programm d. USA</li> </ol>	<ol style="list-style-type: none"> <li>1. Mol-III</li> <li>2. EUREX</li> </ol>	<ol style="list-style-type: none"> <li>1. Versiegelung f. MTR- und LWR-BE</li> </ol>	<ol style="list-style-type: none"> <li>1. Chem. Analyse f. EUREX und Interlabtes</li> </ol>
Belgien	<ol style="list-style-type: none"> <li>1. Optimierung v. Überwachungsaufwand im BR2-Komplex (Fabrikation, Reaktor, Aufarbeitung) f. hochanger. Uran</li> </ol>	<ol style="list-style-type: none"> <li>1. Gamma-Spektroskopie f. hoch- u. niedrig-angereichertes U</li> <li>2. Thermische Neutronen f. Messungen f. BR2-BE</li> <li>3. Grundlagenforschung über Neutronen</li> </ol>	<ol style="list-style-type: none"> <li>1. Teilnahme am Umpire Qualification Programm d. USA</li> </ol>	<ol style="list-style-type: none"> <li>1. Teilnahme an Mol-III</li> </ol>		<ol style="list-style-type: none"> <li>1. Neutronenstrahl aus BR2 f. Forschung i.d. Überwachung</li> <li>2. Herstellung v. Th-228-Be-Quellen</li> </ol>
Deutschland	<ol style="list-style-type: none"> <li>1. Optimierung v. Überwachungsaufwand im gesamten BZ</li> <li>2. Effektivitätsstudie</li> <li>3. MUF-Daten</li> <li>4. Korrelation: Isotopen schwere Kerne</li> <li>5. Kriterien f. Anlageauslegung</li> </ol>	<ol style="list-style-type: none"> <li>1. Aktive n,γ-Methode hoch- u. niedrig-angereichertes U</li> <li>2. Kombinationssysteme mit mehreren einfachen Methoden</li> <li>3. Kalorimetrie u. Bleipile-Spektrometer</li> <li>4. Abfallmessung</li> <li>5. Gamma-Lock</li> <li>6. Aktive Methode für hochangereichertes U (TU Hannover)</li> </ol>	<ol style="list-style-type: none"> <li>1. Automatisierte Massenspektrometrie</li> <li>2. Automatisierte Röntgenfluoreszenz</li> <li>3. Emissionsspektroskopie</li> <li>4. Stabilität d. Proben</li> </ol>	<ol style="list-style-type: none"> <li>1. Mol-III</li> <li>2. Interlabtest</li> <li>3. Reaktorexperimente</li> </ol>	<ol style="list-style-type: none"> <li>1. Versiegelung v. Brennelementen im LWR</li> <li>2. Accountability-Studie für Wiederaufarbeitung</li> </ol>	<ol style="list-style-type: none"> <li>1. Chemische Analyse aller Proben aus Integralen Experimenten Interlabtest</li> <li>2. Analyse d. Accountability-tankstudie</li> </ol>
Italien	<ol style="list-style-type: none"> <li>1. Zusammenstellung von MUF-Daten</li> <li>2. Korrelationen schwerer Kerne</li> <li>3. Optimierung v. Anlageauslegung</li> <li>4. Auswertung v. Überwachungsaufwand</li> </ol>	-	-	<ol style="list-style-type: none"> <li>1. Integrales Experiment in EUREX</li> </ol>	-	-
Niederlande	<ol style="list-style-type: none"> <li>1. Simulation des relevanten Teils des BZ</li> <li>2. Statistische Auswertung v. Meßdaten</li> </ol>	<ol style="list-style-type: none"> <li>1. Gamma- und Röntgenspektroskopie in frischen BE</li> <li>2. Gamma-Spektroskopie für Spaltprodukte</li> <li>3. n, γ-Messungen für Spaltprodukte</li> </ol>	<ol style="list-style-type: none"> <li>1. Chemische Analyse von Pu-Isotopen und Elementen</li> </ol>			

die Planung und Durchführung des Internationalen Symposiums über zerstörungsfreie Methoden und Identifikationstechniken in Ispra, Italien, unter der Regie dieser Assoziation statt.

iii) Information und Kommunikation

Die Assoziation organisierte 1971 in regelmäßigen Abständen Diskussionsitzungen für Wissenschaftler und Techniker der Mitglieder-Organisationen für Systemanalyse, zerstörungsfreie und direkte Methoden. Die experimentelle Erprobungsphase von Identifikationsmethoden für Brennelemente (z.B. die Erprobung der Euratom-Versiegelungsmethode für Brennelemente in einem deutschen Reaktor) wurde auch gemeinsam geplant und die Ausführung begonnen. Außerdem dient die Assoziation dem Austausch von Informationen und Daten in relevanten Bereichen (z.B. MUF, Korrelationen usw.).

iv) Gemeinsame Erledigung verschiedener Tätigkeiten

In mehreren Bereichen werden die F.+E.-Arbeiten gemeinsam von den Mitgliedern durchgeführt. Als typische Beispiele seien hier die Automatisierung der Massenspektrometrie (EURATOM, GfK), Erprobung und Vergleich von Meßmethoden für MTR-Brennelemente (CEN, GfK/TU Hannover), Gamma-Messungen an MTR-Elementen (Euratom, CEN, RCN), Simulation der Inventarbestimmungsmethode für eine Wiederaufarbeitungsanlage (Euratom, GfK) usw. erwähnt.

v) Vorbereitung für die Euratom-IAEO-Verhandlungen

Die technischen Unterlagen für die anfänglichen Euratom-IAEO-Verhandlungen über ein Verifikationsabkommen wurden gemeinsam von CCR, Ispra, und dem Projekt fertiggestellt.

## 7.2 Zusammenarbeit mit der IAEO

Im Jahre 1971 veranstaltete die IAEO drei überwachungsspezifische Arbeitsausschußsitzungen und ein Symposium. Die Arbeitsausschüsse behandelten folgende Themen:

- a) Physische Sicherheit
- b) Gamma-Spektroskopie und Identifikations-Methode
- c) Daten und Ergebnisse über Systemanalyse und Integrale Experimente.

Das Symposium war analytischen Methoden im nuklearen Brennstoffzyklus gewidmet.

Außerdem fand eine Beratungssitzung über Empfehlungen für physische Schutzmaßnahmen statt. An allen diesen Sitzungen und an dem Symposium waren die Mitglieder des Projektes mit wissenschaftlichen Beiträgen vertreten. Erwähnenswert ist die Tatsache, daß eine Gruppe von Experten unter der Obhut der IAEO eine ausgewogene Zusammenstellung von möglichen physischen Schutzmaßnahmen für nukleares Material ausgearbeitet hat, die als Richtlinie für Überlegungen in nationalem Rahmen dienen kann. Diese Aktion war die Folge eines Wunsches mehrerer Mitgliedsstaaten der IAEO.

Bei den Verhandlungen zwischen Euratom und der IAEO über ein Verifikationsabkommen nahmen Mitglieder des Projektes teil. Die Verhandlungen werden voraussichtlich bis Ende 1972 dauern.

## 7.3 Internationale Tagungen

Die Beteiligung des Projektes an zwei der internationalen Tagungen ist zu erwähnen.

- i) 4. Internationale Konferenz über die friedliche Nutzung der Atomenergie.

Die Sitzungen G-5 und C-5 waren der Erörterung der Themen zur Überwachung gewidmet. Aus den 11 mündlich vorgetragenen Beiträgen waren 3 Beiträge vom Projekt. Außerdem war ein zusätzliches Paper über direkte Methoden eingereicht worden. Zwei vom Projekt angefertigte

Modelle über Brennstoffzyklus und Spaltstoffflußkontrolle sowie das im Projekt entwickelte automatisch arbeitende Röntgenfluoreszenzspektrometer wurden im Ausstellungsraum der BRD aufgestellt. Beides fand Anklang. In der Sitzung G-5 ging es um die Erörterung der allgemeinen Fragen der Überwachung auf internationaler und nationaler Ebene sowie um die Diskussion der Bedeutung der Systemanalyse im Bereich der Überwachung. In der Sitzung C-5 wurden Fragen mehr technischer Natur behandelt. Erwähnenswert ist:

- a) Der Generalinspektor der IAEO stellte fest, daß das Ziel der internationalen Überwachung die Entdeckung und nicht die Verhinderung einer Abzweigung einer signifikanten Menge spaltbaren Materials ist. Letzteres ist Aufgabe des nationalen Systems.
  - b) Das Euratom-System ist eines der ältesten und das zur Zeit am besten entwickelte internationale Überwachungssystem, verfügt über langjährige Erfahrungen und weist in seinen Grundzügen einige dem IAEO-System ähnliche Merkmale auf.
  - c) In den USA legt man verstärkte Betonung auf Maßnahmen auf nationaler Ebene zur Verhinderung einer Abzweigung.
  - d) Sowohl in den USA als auch in Europa sind - Dank intensiver Entwicklungsarbeiten - einige Meßinstrumente zur Serienreife entwickelt worden.
- ii) International Meeting on Non-Destructive Measurement and Identification Techniques in Nuclear Safeguards (Ispra, 20.-22.9.1971).

Wie schon erwähnt, wurde dieses Symposium unter der Regie der Euratom-Assoziation organisiert. Mitglieder des Projektes hatten bei der Planung und Organisation maßgeblich mitgewirkt. 105 Wissenschaftler aus 11 Ländern und 3 Internationalen Organisationen nahmen

an dem Symposium teil. 44 wissenschaftliche Beiträge, davon 9 vom Projekt, wurden vorgetragen. Außerdem gab es genügend Möglichkeit zur intensiven Diskussion zwischen den Wissenschaftlern sowie zwischen den Vertretern der Kernindustrie und Wissenschaftlern und Technikern.

Es wurde keine völlig neue Methode vorgeschlagen. Jedoch zeigten die schon in Angriff genommenen Methoden bemerkenswerte Fortschritte. Außerdem konnte man ziemlich deutlich einige Trends bei den Entwicklungen feststellen:

- Eine Präferenz für die Anwendung von passiven Methoden (d.h. Verwendung von Eigenstrahlung des Materials)
- Stärkeres Einbeziehen von r.a. Isotopen als Neutronenquellen statt Neutronengeneratoren
- Verstärkte Anwendung von Rechenmaschinen zur Datenverarbeitung.

Weiterhin war festzustellen, daß eine gewisse unterschiedliche Vorstellung über die Tragbarkeit von Instrumenten zwischen den europäischen und amerikanischen Wissenschaftlern besteht. Voraussichtlich werden noch weitere 3 bis 4 Jahre vergehen, ehe man einen gewissen Konsensus über die optimale Verwendung zerstörungsfreier Methoden erreichen kann.