

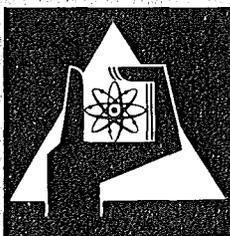
**KERNFORSCHUNGSZENTRUM
KARLSRUHE**

Oktober 1973

KFK 1852

Projekt Spaltstoffflußkontrolle

Jahresbericht 1972



**GESELLSCHAFT
FÜR
KERNFORSCHUNG M.B.H.**

KARLSRUHE

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

KFK 1852

Projekt Spaltstoffflußkontrolle

Jahresbericht 1972

Gesellschaft für Kernforschung m.b.H., Karlsruhe



Dieser Bericht wurde zusammengestellt

von

G. Bork

und enthält Beiträge von

R. Avenhaus¹, A.v. Baeckmann⁴, K. Baumung³, K. Böhnel³,
R. Braun⁴, A. Cricchio⁵, E. Drosselmeyer¹, R. Eberle⁶,
E. Gantner⁴, F. Gérin⁵, D. Gupta¹, G. Hartmann¹,
J. Klunker³, L. Koch⁵, R. Kraemer¹, W. Krause⁴,
W. Krappel⁶, M. Küchle³, R. Kuhn², E. Mäinka⁴,
P. Matussek², R. de Meester⁵, H.G. Müller⁴, D. Nentwich¹,
J. Neuber⁴, H. Ottmar², M. Romkowski⁵, H. Ruf⁴,
W. Scheuerpflug¹, D. Stegemann⁶, D. Steinert⁴, C. Weitkamp²,
M. Wilhelmi⁴, M. Zeller⁶.

In den Beiträgen sind auch Beschreibungen der von den Firmen Dornier, Hochtemperatur-Reaktorbau, INTERATOM, NUKEM und URANIT im Auftrage des Projektes durchgeführten Studienarbeiten enthalten.

- ¹ Gesellschaft für Kernforschung, Institut für Angewandte Systemtechnik und Reaktorphysik
- ² Gesellschaft für Kernforschung, Institut für Angewandte Kernphysik
- ³ Gesellschaft für Kernforschung, Institut für Neutronenphysik und Reaktortechnik
- ⁴ Gesellschaft für Kernforschung, Institut für Radiochemie
- ⁵ Europäisches Institut für Transurane
- ⁶ Technische Universität Hannover

Annual Report 1972

This report is a description of major activities performed in 1972 within the framework of the Nuclear Safeguards Project by the Institutes of Gesellschaft für Kernforschung participating in this Project, the European Institute of Transuranium Elements, and some industrial firms.

Zusammenfassung

Der vorliegende Bericht beschreibt die Arbeiten am Projekt Spaltstoffflußkontrolle, die von den an diesem Projekt beteiligten Instituten der Gesellschaft für Kernforschung, Karlsruhe, dem Europäischen Institut für Transurane und einigen Industriefirmen im wesentlichen im Jahr 1972 durchgeführt wurden.

<u>Inhaltsübersicht</u>	Seite
Einführung	1
<u>Kapitel 1:</u> Systemanalytische Arbeiten	5
1.1 Stichprobenverfahren	5
1.1.1 Überblick	5
1.1.2 Eine Klasse von Chargen	5
1.1.3 Mehrere Klassen von Chargen	6
1.2 Quantifizierung von Maßnahmen zur dichten Umhüllung (Containment)	10
1.2.1 Vorbemerkung	10
1.2.2 Qualitative Diskussion	10
1.2.3 Das Absender-Empfänger-(shipper-receiver-) Problem	13
1.2.4 Überwachung von versiegelten Pu-Lagern	13
1.3 IAEO-Forschungsauftrag zur Optimierung von Überwachungsmaßnahmen	16
 Literaturverzeichnis zu Kapitel 1	 19
<u>Kapitel 2 :</u> Zerstörungsfreie Methoden	
2.0 Einführung	21
2.1 Neutroneneinfang - Gammastrahlung	22
2.2 Gammaspektroskopische Bestimmung der Isotopenzusammensetzung von Plutonium	25
2.2.1 Messungen mit Eindetektor-Anordnungen	25
2.2.2 Unterdrückung des Untergrundes mit einer Mehrdetektoranordnung	29

2.3	Entwicklung einer Schleuse zur Überwachung von Personen auf mitgeführtes hochangereichertes Uran	32
2.4	Kalorimetrie	38
2.5	Bestimmung der axialen Homogenität von Brennstäben	41
2.6	Entwicklungen zur Aufnahme und Reduktion von Meßdaten	47
2.6.1	Computerintegriertes nukleares Zähler-Timer-System	47
2.6.2	Spektrometer-Automatisierung	49
2.6.3	Graphischinteraktive Auswertung von γ -Spektren an einem Großrechner	50
2.7	Bestimmung von ^{235}U und ^{232}Th in HTR-Kugel-Brennelementen	51
2.8	Automatisierung eines Neutronengenerators	60
2.9	Neutronenkoinzidenzmessungen zur Plutoniumbestimmung	63
2.9.1	Verzögerte Koinzidenzen mit Zyklusüberlappung	63
2.9.2	Schnelle Koinzidenz	65
2.9.3	Programmentwicklung	67
2.9.4	Bedarf an Nukleardaten für Koinzidenzmessungen	68
2.9.5	Schnellsplaltung	68
2.10	Bremszeitspektrometer	70
2.11	Bestimmung von Spaltstoff in Brennstäben nach der Fermialter-Methode	72
2.12	Bestimmung von Spaltstoff in Brennelementen mit Hilfe einer Antimon-Beryllium-Quelle	74
2.12.1	Reflektoren	74
2.12.2	Detektoren	77
2.13	Hülsenmonitor	81

2.13.1	Fehlerbetrachtungen	81
2.13.2	Programmentwicklung für Rotationskollimation	85

Literaturverzeichnis zu Kapitel 2

Kapitel 3 :

3.0	Einführung	89
3.1.1	Serviceleistungen der Abteilung Analytik des Instituts für Radiochemie	90
3.1.2	Serviceleistungen der Arbeitsgruppe Isotopenanalyse des Europäischen Instituts für Transurane	90
3.2.1	Automatisierung der massenspektrometrischen Isotopenverdünnungsanalyse	91
3.2.2	Automatisierung der Uran- und Plutoniumkonzentrationsbestimmung durch Röntgenfluoreszenzanalyse	101
3.2.3	Versuche zur emissionsspektrometrischen Isotopenbestimmung in Kernbrennstoffen	107
3.2.4	Isotopenkorrelationen der schweren Isotope und ausgewählter Spaltprodukte	111

Kapitel 4 : Containmentmaßnahmen 129

4.1	Arbeiten am Accountabilitytank	129
4.1.1	Prüfung der Strahlenbeständigkeit der Ultraschallsonden	129
4.1.2	Untersuchungen zum Probenahmefehler	130
4.1.3	Tracer	130
4.2	Arbeiten zur Versiegelung und Identifizierung von Brennelementen	131
4.3	Spaltstoffschutzmaßnahmen	132

<u>Kapitel 5</u> :	Experimentelle Prüfung von Überwachungsmaßnahmen	135
5.1	Vorbereitung eines integralen Experimentes in einer Gasultrazentrifugen-Anreicherungsanlage (GUZ)	135
5.2	Interlaboratoriumstest IDA-72	136
<u>Kapitel 6</u> :	Zusammenarbeit mit der Industrie	
6.1	Studienaufträge zur Entwicklung von Überwachungsmaßnahmen	139
6.1.1	Am SNR 300	139
6.1.2	Am THTR 300	147
6.1.3	In der NUKEM-Fabrikationsanlage zur Verarbeitung von hochangereichertem Uran	151
6.2	Ausarbeitung von Unterlagen für die Ergänzenden Abmachungen (Subsidiary arrangements (SA)) und der Anhänge dazu (Facility Attachment Outlines (FAO)) im Rahmen des Verifikationsabkommens Euratom-IAEA	155
6.2.1	KKS, Kernkraftwerk Stade	155
6.2.2	NUKEM, Fabrikationsanlage zur Verarbeitung von hochangereichertem Uran	157
6.2.3	WAK, Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe	158
<u>Kapitel 7</u> :	Internationale Zusammenarbeit	163
7.1	Zusammenarbeit mit Euratom	163
7.2	Zusammenarbeit mit der IAEO	164
	 Tabellen	
	 Literaturverzeichnis zu Kapitel 7	 170

Jahresbericht 1972

des Projektes Spaltstoffflußkontrolle

Einführung

D. Gupta, IASR

Die Tätigkeiten des Projektes im Jahre 1972 standen im wesentlichen unter dem Einfluß der Verifikationsverhandlungen zwischen der IAE0 und der europäischen Gemeinschaft mit den fünf Mitgliedstaaten. Die im November 1971 begonnenen Verhandlungen wurden Ende 1972 abgeschlossen. Das Hauptergebnis dieser Verhandlungen war das Verifikationsabkommen mit den zugehörigen Dokumenten, in dem die Überwachungstätigkeiten der IAE0 und Euratom sowie die Rechte und Pflichten der Überwachungsorganisationen und der einzelnen Staaten der Gemeinschaft * festgehalten sind.

Die technischen Einzelheiten der Überwachungsmaßnahmen sollen in sogenannten 'Ergänzenden Abmachungen' (allgemeiner Teil) bzw. 'Anlagespezifischen Anhängen' (anlagespezifischer Teil) festgehalten werden. Die Ergänzenden Abmachungen und Anlagespezifischen Anhänge können, wenn erforderlich, jederzeit geändert werden, um den technischen Entwicklungen Rechnung zu tragen, ohne daß das Hauptabkommen geändert werden muß.

* Bei Abschluß der Verhandlungen waren Belgien, BRD, Niederlande, Luxemburg und Italien die Unterzeichner-Staaten des Verifikationsabkommens.

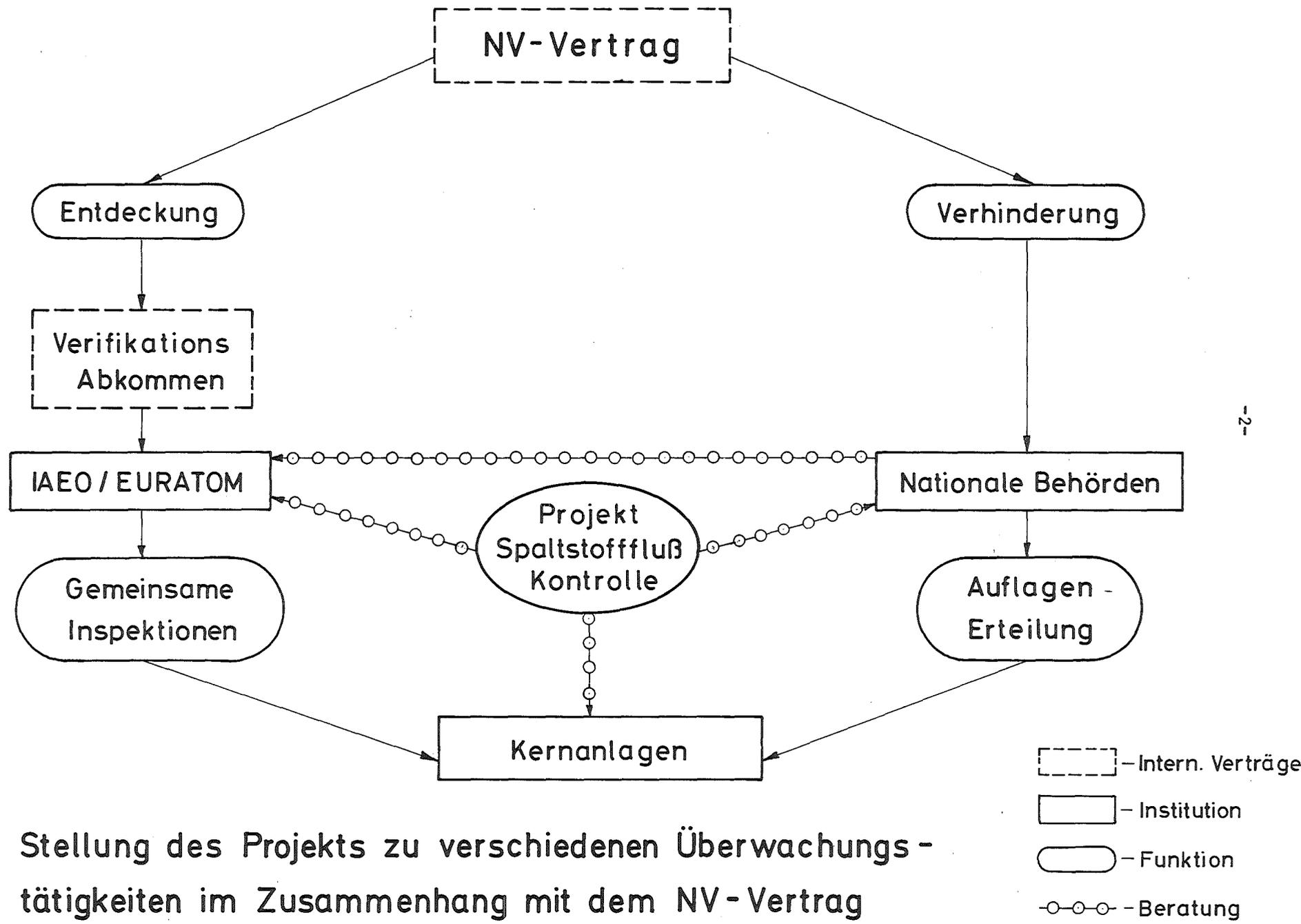


Abb. 1 Stellung des Projekts zu verschiedenen Überwachungs-
tätigkeiten im Zusammenhang mit dem NV-Vertrag

Bei Festlegung der Tätigkeiten, Rechte und Pflichten der betroffenen Staaten wurde auch deutlich, welchen Stellenwert die Arbeiten des Projektes bei der Verwirklichung der Überwachungstätigkeiten in der BRD haben können. Dies ist schematisch (nach einer Anregung von W. Häfele) in Abb. 1 dargestellt. Danach übernimmt das Projekt eine beratende Funktion für die wissenschaftlich-technischen Probleme, die aus dem NV-Vertrag entstehen. Außerdem wird das Projekt auch gezielte F+E-Arbeiten zur Lösung spezifischer Probleme durchführen. Der Rahmen dieser F+E-Arbeiten wurde schon 1971 (s. Jahresbericht 1971) abgesteckt.

Die Bundesrepublik Deutschland war sehr daran interessiert, daß die im Jahre 1972 beginnende Phase der Einführung und Anwendung des Verifikationsabkommens in der industriellen Praxis reibungslos verläuft. Da für die nach dem Verifikationsabkommen vorgesehenen Regelungen z.B. Datenübermittlung, Durchführung von Inventuren, Optimierung bei der Festlegung der strategischen Punkte, keine in der Praxis erprobten Beispiele existierten, waren Untersuchungen notwendig, um diese Regelungen in den Anlagenspezifischen Anhängen möglichst optimal für den Betrieb der Anlagen zu gestalten. Das BMFT beauftragte das Projekt, diese Untersuchungen in enger Zusammenarbeit mit den betroffenen Anlagenbetreibern durchzuführen.

Im Gegensatz zu den früheren Verhältnissen zur nuklearen Industrie, die überwiegend in Entwicklungsaufträgen ihren Ausdruck fanden, begann 1972 eine neue Art der Zusammenarbeit zwischen den nuklearen Industrien und dem Projekt. Es wurde versucht, gemeinsam die anstehenden Probleme zu lösen. Diese Art der gemeinsamen Anstrengung wurde auch auf die Entwicklung und Erprobung einiger spezifischer Instrumente erweitert.

Es wurde bereits 1971 festgestellt, daß internationale Kontrollen, wie die der Euratom und IAEO, sich nur auf die Entdeckung einer bereits erfolgten Abzweigung von nuklearem Material beziehen können. Verhindernde Maßnahmen, wie sie nach dem NV-Vertrag erforderlich sind, erfordern insbesondere gesetzgeberische und hoheitliche Vollmachten, die internationale Institutionen so nicht haben. Deshalb müssen die einzelnen Staaten dafür sorgen, daß hinreichende Schutzmaßnahmen in Kernanlagen vorgesehen werden, um die aus dem NV-Vertrag sich ergebenden Verpflichtungen erfüllen zu können. Das BMFT bat das Projekt, die dazu

erforderlichen F+E-Arbeiten in Angriff zu nehmen. Mit der Ausarbeitung eines Programms wurde bereits begonnen.

Der im Jahr 1971 geplante Interlaboratoriumstest 'IDA-72' (Isotopic Dilution Analysis) wurde zum großen Teil 1972 durchgeführt. Das ungewöhnlich große Interesse, das von internationalen und nationalen Stellen diesem Experiment entgegen gebracht wurde (21 namhafte Laboratorien aus 11 Ländern nahmen an diesem Experiment teil), hob sehr deutlich die Bedeutung dieser Art von Experimenten hervor. Sie werden als Begleittätigkeiten des Projektes auch in kommenden Jahren weitergeführt.

Im Jahr 1972 befand sich das Projekt mitten in der Implementierung der Überwachungstätigkeiten nach dem Verifikationsabkommen. Es ist zu erwarten, daß auch 1973 diese Arbeiten unvermindert fortgesetzt werden.

Kapitel 1 : Systemanalytische Arbeiten

- 1.1 Stichprobenverfahren
R. Avenhaus, IASR
- 1.1.1 Überblick
- 1.1.2 Eine Klasse von Chargen
- 1.1.3 Mehrere Klassen von Chargen
- 1.2 Quantifizierung von Maßnahmen zur
dichten Umhüllung (Containment)
R. Avenhaus, IASR
- 1.2.1 Vorbemerkung
- 1.2.2 Qualitative Diskussion
- 1.2.3 Das Absender-Empfänger- (shipper-receiver-) Problem
- 1.2.4 Überwachung von versiegelten Pu-Lagern
- 1.3 IAEO-Forschungsauftrag zur Optimierung
von Überwachungsmaßnahmen
G. Hartmann, IASR

Literaturverzeichnis zu Kapitel 1

Kapitel 1 : Systemanalytische Arbeiten

1.1 Stichprobenverfahren

1.1.1 Überblick

Wegen der Struktur des internationalen Überwachungssystems, die im Modellabkommen der IAEA festgelegt wurde, kommt der Verifikation der vom Anlagenbetreiber berichteten Daten auf der Basis von Stichprobenkontrollen eine besondere Bedeutung zu. Daher wurde der Analyse und Optimierung von Stichprobenkontrollen im Rahmen der systemanalytischen Überlegungen zur Spaltstoffflußkontrolle im letzten Jahr besondere Aufmerksamkeit gewidmet. Die Entwicklung wurde dabei in zwei verschiedenen Richtungen verfolgt:

- (i) Für den Fall einer Klasse von zu verifizierenden Daten (d.h. Daten von einer Klasse von Materialchargen, die einheitliche chemische und physikalische Zusammensetzung haben, mit den gleichen Methoden gemessen werden etc.) wurden die verschiedenen möglichen statistischen Verfahren in der Literatur gesammelt und diskutiert.
- (ii) Für den Fall mehrerer Klassen von zu verifizierenden Daten wurde das Problem der Aufwandsoptimierung (d.h. der optimalen Verteilung eines gegebenen Überwachungsaufwandes auf die verschiedenen Klassen) im Detail analysiert.

Diese Überlegungen, die im Jahr 1972 in drei Arbeiten ihren Niederschlag fanden, jedoch noch nicht abgeschlossen sind, sollen im folgenden kurz dargestellt werden.

1.1.2 Eine Klasse von Chargen

In einer bisher nicht veröffentlichten Arbeit /1/ wurden existierende Verfahren zur stichprobenartigen Kontrolle von Daten einer Klasse von Chargen zusammengestellt und erweitert. Dabei wurde unterschieden, ob

- (i) nur interessiert, ob die betreffende Charge Material enthält oder nicht ("attribute sampling")
- (ii) ein quantitativer Unterschied zwischen dem wahren Materialgehalt der Charge und dem berichteten Materialgehalt besteht ("variable sampling")

Die mathematische Behandlung der ersteren Problemstellung läuft auf die Anwendung der hypergeometrischen Verteilung hinaus; interessant ist hier vor allem die Entwicklung leicht handhabbarer Näherungsformeln.

Im zweiten Falle ist die Problemstellung sehr viel komplizierter, statistische Signifikanztests müssen zur Anwendung kommen. Aus diesem Grunde wurde bei allen bisher existierenden Verfahren die Annahme gemacht, daß bei allen Chargen, bei denen die zugehörigen Daten gefälscht werden, diese Daten um den gleichen Betrag gefälscht werden.

Das Ziel der Analyse eines Verfahrens ist es immer, eine Relation herzustellen zwischen

- der Zahl der kontrollierten Chargen
- der Zahl der gefälschten Chargen
- den Meßgenauigkeiten
- der gewählten Fehlalarmwahrscheinlichkeit
- der Entdeckungswahrscheinlichkeit

Dies wurde für verschiedene statistische Verfahren und verschiedene Annahmen (bezüglich der systematischen Fehler, der Auswahl der zu kontrollierenden Chargen etc.) getan.

1.1.3 Mehrere Klassen von Chargen

Wie schon angedeutet, ergibt sich bei der Analyse der stichprobenartigen Kontrolle von Daten von Chargen verschiedener Klassen das Problem der optimalen Verteilung eines vorgegebenen Überwachungsaufwandes auf die verschiedenen

Klassen. Bei dieser Optimierung ist zu berücksichtigen, daß der Betreiber seinerseits - falls er überhaupt zu fälschen die Absicht hat - die Fälschung in optimaler Weise auf die verschiedenen Klassen verteilen wird. Dies bedeutet aber, daß man zu einer spieltheoretischen Analyse geführt wird, bei der die Strategiemenge des Inspektors durch die - durch seinen gesamten verfügbaren Aufwand C begrenzte - Menge seiner Möglichkeiten, Stichproben auszuwählen, gegeben ist, und bei der die Strategiemenge des Betreibers durch die Menge seiner Möglichkeiten, die Charge auszuwählen, deren Daten er fälschen will, gegeben ist und wobei ferner angenommen wird, daß der Betreiber die Absicht hat, durch die Fälschung eine ganz bestimmte Menge M von Material zu entwenden. Es läßt sich theoretisch rechtfertigen, daß sich diese Problemstellung durch ein Zweipersonen-Nullsummenspiel mit der Entdeckungswahrscheinlichkeit als Auszahlungsfunktion darstellen läßt. Verfügbarer Aufwand C und zu entwendende Menge M sind dabei die korrespondierenden zentralen Parameter des Problems. Da diese Problemstellung in voller Allgemeinheit viel zu kompliziert ist, als daß geschlossene analytische Lösungen gewonnen werden könnten, wurden zwei Richtungen verfolgt:

(i) Beide Spieler entscheiden sich unabhängig und ohne gegenseitiges Wissen dafür, ihre Aktion auf eine - natürlich nicht notwendigerweise die gleiche - Klasse zu beschränken. Für diesen Fall konnten exakte Lösungen gewonnen werden.

(ii) Beide Spieler verteilen ihre Aktionen auf verschiedene Klassen. In diesem Fall konnten nur Näherungslösungen gewonnen werden.

Interessanterweise zeigte es sich, daß man in bestimmten Grenzfällen bei beiden Ansätzen zu korrespondierenden Lösungen kommt - womit der erste Ansatz, der auf den ersten Blick etwas unrealistisch erscheint, nachträglich gerechtfertigt wurde.

In einer in der Zeitschrift 'Operations Research Verfahren' veröffentlichten Arbeit /2/ wurde das Problem behandelt unter Vernachlässigung statistischer Aspekte, d.h. es wurde angenommen, daß der Inspektor die

Daten des Betreibers mit seinen eigenen entsprechenden Daten direkt und paarweise vergleicht, wobei zwar eine nicht 100 %-ige Entdeckungswahrscheinlichkeit zugelassen wird, die Möglichkeit eines Fehlalarms jedoch ausgeschlossen wird. Für den allgemeinen Fall von R Klassen konnte das sich im Falle der Beschränkung der Aktionen beider Spieler auf eine Klasse ergebende "Spiel" als $R \times R$ -Matrixspiel dargestellt werden und es konnte der Spielwert dieses Spieles, die resultierende Entdeckungswahrscheinlichkeit, analytisch angegeben werden. Für den allgemeineren Fall - keine Beschränkung der Aktionen beider Spieler auf eine Klasse - konnte nach der Entwicklung geeigneter Näherungsformeln für die Klassenentdeckungswahrscheinlichkeiten ebenfalls der Spielwert des Spieles angegeben werden.

In einem Beitrag zum IAEA Working Group Meeting 'On Accuracy of Nuclear Material Accountancy and Technical Effectiveness of Safeguards' im August 1972 /3/ wurde die gleiche Problemstellung wieder aufgenommen, wobei der statistische Aspekt berücksichtigt wurde. Dabei wurde die zuerst von K.R. Stewart von Batelle Northwest, USA, auf Safeguards-Probleme angewandte "D-Statistik" eingesetzt: In einer Klasse von Material werden nicht die Daten des Inspektors und die zugehörigen Daten des Betreibers paarweise verglichen, sondern es werden die aufaddierten Daten verglichen. Dies hat unter anderem den Vorteil, daß sich systematische Fehler in sehr einfacher Weise berücksichtigen lassen.

Für die Entdeckungswahrscheinlichkeit für eine Klasse ergibt sich der folgende Ausdruck

$$P = \sum_{l=\max(0, n+r-N)}^{\min(n, r)} \phi\left(\frac{\mu \cdot l}{n\sqrt{\frac{\sigma_r^2}{n} + \sigma_s^2}} - U_{1-\alpha}\right) \frac{\binom{r}{e} \binom{N-r}{n-1}}{\binom{N}{n}}$$

wobei

- N die Gesamtzahl der Chargen in einer Klasse ist
- n die Zahl der kontrollierten Chargen
- r die Zahl der gefälschten Chargen
- μ der bei einer Fälschung gefälschte Betrag pro Charge
- ϕ die Gauß'sche Verteilung
- u deren Umkehrfunktion
- α die Fehlalarmwahrscheinlichkeit

und

σ_r^2 und σ_s^2 die Summen der Varianzen der zufälligen und systematischen Meßfehler der Einzelmessungen von Betreiber und Inspektor sind.

Die "Spielmatrix" im Falle von R Klassen bei Beschränkung der Aktion der Spieler auf eine Klasse hat nunmehr folgende Form:

Inspektor:
Inspektion in Klasse i (i = 1... R)

		1	2	R
Betreiber: Entwendung aus Klasse j (j = 1...R)	1	1-P ₁	1-α	1-α
	2	1-α	1-P ₂	...	1-α
	.	.			.
	.	.			.
	.	.			.
	R	1-α	1-α		1-P _R

Dabei ist P_i die Entdeckungswahrscheinlichkeit in der i-ten Klasse und α die Fehlalarmwahrscheinlichkeit.

Auch bei dieser Problemstellung ließen sich die der früheren Arbeit entsprechenden Ergebnisse erzielen: exakte Lösung für den Spezialfall, Näherungslösung für den allgemeinen Fall.

Die Arbeiten an den Stichprobenverfahren wurden über die genannten Arbeiten hinaus weitergeführt und sind noch nicht abgeschlossen. Die wichtigste Erweiterung war die Zulassung verschiedener Fehlalarmwahrscheinlichkeiten α_i für die verschiedenen Klassen: Dies gibt dem Inspektor zusätzliche Möglichkeiten der Optimierung seiner Entdeckungswahrscheinlichkeit.

Eine Demonstration der Anwendbarkeit dieser neu entwickelten Verfahren soll in dem IAEO-Forschungsauftrag über Aufwandsoptimierungen gegeben werden, der im August 1972 begonnen wurde.

1.2 Quantifizierung von Maßnahmen der dichten Umhüllung (Containment)

1.2.1 Vorbemerkung

Maßnahmen der dichten Umhüllung (Containmentmaßnahmen) gehören neben der Erstellung der Materialbilanz und den Beobachtungsmaßnahmen (Surveillance) zu den drei grundsätzlichen Überwachungsmaßnahmen im Rahmen der Spaltstoffflußkontrolle. Neben der konstruktiven Erarbeitung neuer Containment-Techniken (z.B. der Entwicklung neuer Siegel) gehört die theoretische Untersuchung (Klassifizierung, Kosten-Nutzen-Analyse) von Containment-Maßnahmen, die im Gegensatz zu der der Materialbilanz-Maßnahmen besonders schwierig ist, seit langer Zeit zu den Aufgaben der Systemanalyse der Spaltstoffflußkontrolle. Im Jahr 1972 wurde zu diesem Thema eine längere Studie fertiggestellt /4/ .

1.2.2 Quantitative Diskussion

Eine Containmentmaßnahme wird definiert als eine Maßnahme oder ein System, das spaltbares Material oder Informationen einschließt, die gegen Entwendung oder Verfälschung geschützt werden sollen oder Systeme, die jedes versuchte illegale Eindringen erkennen lassen. Beispiele für Containmentmaßnahmen, die sowohl Material und Information, als auch die Menschen einschließen, die Material entwenden könnten, sind Zäune, Betonmauern etc. Beispiele für Containmentmaßnahmen, die nur Material und Informationen einschließen, sind versiegelte Behälter, Tresore etc. Da vor jeder Aufwand-Nutzen-Analyse klar sein muß, welches der Nutzen (bzw. was das Optimierungskriterium) ist, wurde zuerst eine qualitative Diskussion der Ziele einer Überwachung des spaltbaren Materials im Rahmen des Atomsperrvertrages an Hand der verbalen Formulierung des Zieles im Modellabkommen der IAEO gegeben. Dabei zeigt sich, daß es sich nicht um ein einheitliches (skalares) Kriterium handelt, sondern daß man einen Satz von Zielgrößen hat:

Entdeckungswahrscheinlichkeit

Kritische Menge

Entdeckungszeit

Fehlalarmwahrscheinlichkeit

Überwachungskosten

Table 1.2.3/1

Strategies of the Operators and the Inspector in the Shipper-Receiver-Situation

(A: Shipper Station resp. Shipper; B: Receiver Station resp. Receiver; from the point of time t_1 on Receiver is responsible for the material)

Strategies of the Inspector:

1. Checking of the operator's data at A
2. Sealing of the bottles at A after operator's measurements at A, identification of seals at B before operator's measurements
3. Checking of the operator's data at B

Strategies of the Operators:

	No Diversion Cooperation between A and B	Diversion Cooperation between A and B
Falsification of data at A	1.1	2.1
Diversion after measurement at A, before t_1	1.2	2.2
Diversion after t_1 , before measurement at B	1.3	2.3
Falsification of data at B	1.4	2.4

Table 1.2.3/2

Payoff Matrix for Single Inspection and Single Diversion Strategies

$(P_c(M))$: probability of detection; τ : critical time

Operators Inspector	No Diversion Cooperation				Diversion Cooperation			
	1.1	1.2	1.3	1.4	2.1	2.2	2.3	2.4
1	$(-1, \tau)^1$ $(-P_c(M), 0)$	$(-1, \tau)$	$(-1, \tau_2)$	$(-1, 0)^2$	$(-P_c(M), 0)$	$(0, \infty)$	$(0, \infty)$	$(0, \infty)$
2	$(-1, \tau)$	$(-1, \tau)$	$(-1, \tau_2)$	$(-1, 0)$	$(0, \infty)$	$(-1, \tau)$	$(-1, \tau_2)$	$(0, \infty)$
3	$(-1, \tau)$	$(-1, \tau)$	$(-1, \tau_2)$	$(-1, 0)$ $(-P_c(M), 0)$	$(0, \infty)^4$	$(0, \infty)$	$(0, \infty)$	$(-P_c(M), 0)$

- 1) If the inspector would check no measurements at all, the operator B would state after the time τ that operator A had falsified data. If the inspector checks the measurements at A he will state at once - dependent of his effort C - with a certain probability $P_M(C)$ that the data reported are falsified.
- 2) With the help of a comparison of the reported data of the operators A and B the inspector will detect at once that the data are falsified.
- 3) It is assumed here that operator B knows that the inspector checks only the measurements at A. Thus, all the falsifications will be done at B. (In case the inspector would check measurements at A and B, one could imagine that a distribution of the falsifications to the places A and B would be better from the side of the operators.)
- 4) It is assumed that the operator A knows that the inspector checks only the measurements at B. Thus, all the falsifications will be done at A.

Theoretisch möchte man die Werte jeder dieser Größen so klein bzw. so groß wie möglich haben; dies ist jedoch nicht möglich, da die Größen nicht unabhängig sind. Daher kann man praktischerweise nur eine dieser Größen als Optimierungskriterium wählen und den anderen die Rolle von Randbedingungen zuordnen; in Ref. /4/ wurde dargestellt, wie die praktischen Gegebenheiten im Falle von Containmentmaßnahmen bezüglich der einzelnen genannten Zielgrößen liegen.

1.2.3 Das Absender-Empfänger (shipper-receiver) Problem

Es ist klar, daß im Falle der Absendung einer Reihe von Materialchargen durch eine kerntechnische Anlage und des Empfanges dieser Chargen durch eine andere Anlage nicht in beiden Fällen eine stichprobenartige Kontrolle der Chargendaten notwendig ist, sondern daß man diese Aktionen durch Versiegelungs- und Identifizierungsmaßnahmen ergänzen bzw. reduzieren wird. Eine quantitative Bestimmung der optimalen Kombination von Datenverifikation, Versiegelung und Identifizierung, die sowohl eine hohe Entdeckungswahrscheinlichkeit als auch eine kurze Entdeckungszeit im Falle einer Entdeckung garantiert, ist jedoch erst nach einer detaillierten Analyse aller Inspektions- bzw. Entwendungsstrategien möglich.

In Tab. 1 ist eine vollständige Liste der Strategien beider "Spieler" für dieses Problem gegeben. In Tab. 2 ist die Auszahlungsmatrix für den Fall gegeben, daß sich beide "Spieler" nur auf eine mögliche Aktion beschränken; die Auszahlung ist hier ein Vektor mit den beiden Komponenten Entdeckungswahrscheinlichkeit und Entdeckungszeit. Die weitere Analyse dieses Problems zeigt, daß die optimalen Strategien im "Spiel", dessen Auszahlungsfunktion die Entdeckungswahrscheinlichkeit ist, verschieden sein können von den optimalen Strategien im "Spiel", dessen Auszahlungsfunktion die Entdeckungszeit ist. Eine Lösung dieses Problems könnte nur nach Einführung einer geeigneten Utility-Funktion gegeben werden, für die es aber im Augenblick keine reale Grundlage gibt.

1.2.4 Überwachung von versiegelten Pu-Lagern

Ein Pu-Lager wird betrachtet, in dem Pu für eine Zeit T gelagert wird; es wird angenommen, daß das Pu in n_2 Behältern gelagert ist und daß diese in n_1 Schränken untergebracht sind. Alle Behälter und Schränke sind mit

Siegeln desselben Typs versiegelt, die Wahrscheinlichkeit, ein gefälschtes Siegel als solches zu identifizieren, sei Π_1 . Der Inspektor kontrolliert das Lager im Mittel J -mal während der Zeit T . Die Kontrolle während einer Visite besteht darin, alle Schrankriegel und weiter k der Behältersiegel zu identifizieren und zu wechseln. Die Wahrscheinlichkeit Π , während eines Besuches eine Siegelfälschung zu entdecken, ist daher

$$\Pi = \Pi_1 \cdot \left(1 + \frac{k}{n_2} (1 - \Pi_1)\right)$$

Die Wahrscheinlichkeit p , während der Referenzzeit eine Entwendung zu entdecken, ist dann entsprechend früheren allgemeineren spieltheoretischen Überlegungen, die sich auf die hier gegebene Problemstellung anwenden lassen, gegeben durch

$$p = 1 - (1 - \Pi)^\xi \cdot \left(1 - \frac{\eta}{g} \cdot \Pi\right)$$

wobei

$$J = \xi \cdot g + \eta; \quad g = \left\lfloor \frac{T-1}{\tau} \right\rfloor$$

$$0 \leq \eta < g; \quad 0 \leq \xi; \quad \eta, \xi \text{ ganzzahlig}$$

und wobei weiter τ die kritische Zeit ist, d.h. die Zeit, die der Betreiber für seine Entwendung braucht.

Die Relation zwischen den Größen p , Π und $\frac{J}{g}$ ist in Fig. 1 dargestellt, bemerkenswert sind die Knicke in den Kurven, die sich auch analytisch angeben lassen.

Die Optimierungsaufgabe für das Problem wurde nunmehr so formuliert, daß die Gesamtüberwachungskosten im Referenzzeitraum bezüglich der Kostenvariablen J und k zu minimieren waren unter der Randbedingung einer fest vorgegebenen Entdeckungswahrscheinlichkeit p (man hätte auch die Kosten als Randbedingung und die Entdeckungswahrscheinlichkeit als Optimierungskriterium wählen können). Dazu war es notwendig, ein Kostenmodell aufzustellen.

Die Durchführung der Optimierung ergab für die meisten gewählten Parameterkombinationen $k_{\text{opt}} = 0$, $J_{\text{opt}} = \text{maximal}$. Mit anderen Worten, es ergab sich, daß es im Sinne einer großen Entdeckungswahrscheinlichkeit optimal ist, sehr häufige, aber flüchtige Inspektionen durchzuführen. Diese Lösung hat

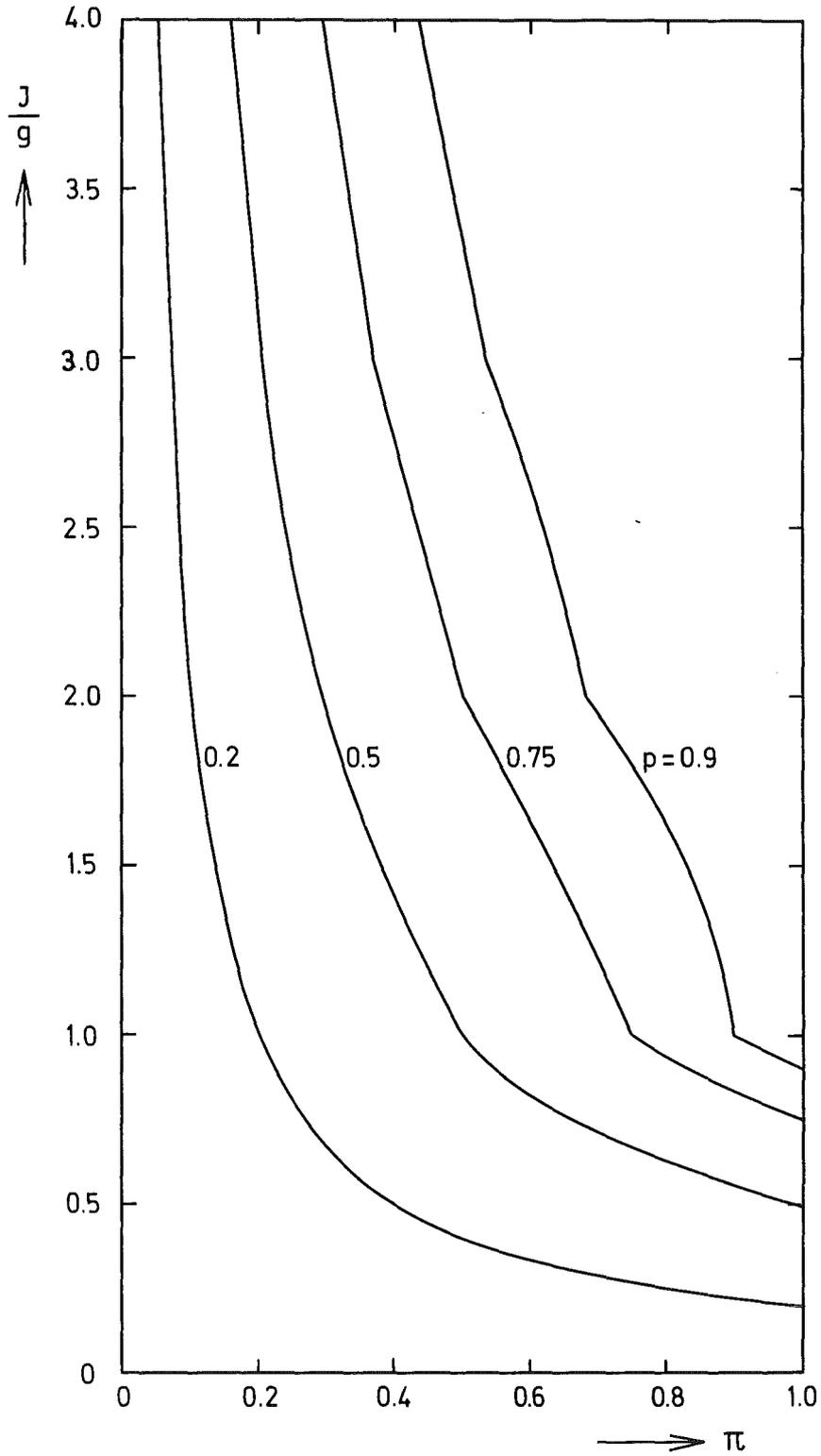


Fig.1 Graphical representation of the relation

$$1-p = (1-\pi)^\xi \left(1 - \pi \cdot \frac{\eta}{g}\right);$$

$$\frac{J}{g} = \xi + \frac{\eta}{g}; \quad \xi \text{ integer}; \quad 0 \leq \frac{\eta}{g} < 1$$

den zusätzlichen Vorteil, daß im Falle einer größeren Entwendung (d.h. im Falle, daß auch eine flüchtige Inspektion zu einer Entdeckung führt) die Entdeckungszeit sehr kurz ist.

1.3 IAEO - Forschungsauftrag zur Optimierung von Überwachungs- maßnahmen

Im Mai 1972 erhielt das Projekt von der IAEO einen Forschungsauftrag, aufgrund dessen untersucht werden soll, wie ein vorgegebener Überwachungsaufwand in realistischen Fällen optimal mittels spieltheoretischer Methoden verteilt werden kann. Dadurch kann auch die Effektivität des Überwachungsaufwandes gesteigert werden, besonders insoweit, als Entscheidungen des Managements damit verknüpft sind.

Zur Optimierung sollen alle überwachungsrelevanten Strategien von Inspektor und Betreiber herangezogen werden, ebenso die Parameter Irrtum erster und zweiter Art, kritische Menge und Zeit, Zahl der Inventuren pro Jahr und Inspektionsaufwand in Manntagen. Das Ergebnis der Untersuchung wird dann als Parameterstudie präsentiert werden.

Eine Pu-Fabrikationsanlage und eine Wiederaufarbeitungsanlage sollen als Referenzanlagen dienen.

Für die Pu-Fabrikationsanlage wurde im Oktober 1972 mit der Datensammlung begonnen. Da sich die Anlage jedoch noch im Aufbau befindet, kann sich die Datensammlung nur auf projektierte Daten stützen. Erst Mitte bis Ende 1973 wird die Anlage die Fabrikation aufnehmen. Die Datensammlung wird sich also bis zu diesem Zeitpunkt hinziehen, endgültig abgeschlossen werden kann sie erst, wenn Erfahrungswerte aus der Anlage vorliegen.

Die bis jetzt gesammelten Daten sind in den beiden folgenden Tabellen enthalten und nur als vorläufige Daten zu behandeln.

Tabelle 1.3/1

Data for Flow-Verification of Plutonium at the ALKEM

			Number of items/year	Amount of Pu/item	control point	measuring method	net-effort per measurement	acc./single meas	
								σ_r [%]	σ_s [%]
Input of Plutonium	Pu-oxide	container a 2 kg	350	2 kg	shipper (output)	weighing (gross ,tara) Coulometrie	1 min	0.1 0.3	- 0.4
	Pu-nitrate	stainless steel bottle a 8 l	350	2 kg	shipper (output)	weighing sampling concentr. determ.	1 min	0.02 0.5 0.4	- - 0.3
Output Product	sintered Pu/U mixed oxide	fuel-pins or partial piles or pellets	~ 20,000 or ~ 80,000	~70 g ~17.5 g	production line laborato- rium (random base	(weight 320g) weighing of the partial piles counting Pu-content through coulo- metrie		0.1	0.05
			~ 6,400,000	~ 0.22 g				0.3	0.4
Output Waste	dry waste	21 - bags	14,000	0.5 g	waste sto- rage	n-coincidence	1 h/day (recalibration) 1 min	5.0	5.0
	dry waste	21 - bags	1,400	5.0 g	waste sto- rage	n-coincidence		5.0	5.0
	liquid waste	2l-bottle	14,000	0.5 g	waste sto- rage	n-coincidence		5.0	5.0

Tabelle 1.3/2

Inventory Taking of Pu at the ALKEM at the End of a Fabrication-Campaign

Place of Inventory	Unit	Activity	average number of units	Pu-content per unit	δ_r	δ_s [%]	net-effort / unit	remarks
Pu-storage input	2kg PuO ₂ -container	seal control	120	2 kg	-	-	2 min	weight and Pu-content are determined at the shippers facility stored: need for 1 campagne
	8 l PuN-bottle	counting identification	120	2 kg			2 min	
Pin-storage output	Fuel-pin	counting identification γ -scanning	1,000	70 g	-	-	0.5 h â(5 pins)	data for fuel pins are given through flow-measurement, γ -scanning shows rough Pu-content of the pins
Waste-storage	8 l - bottle barrel	seal control	100	2 g	-	-	2 min	the sealing of barrels and 8 l- bottles is done during the flow- measurements
		identification	15		-	-	2 min	
Pu-storage (PuO ₂ from conversion area)	2 l container with 2 kg PuO ₂	counting weighing	50	2,75kg	0.1 3.0	- 2.0	30 min 30 min	rest of conversion should be empty Pu-content: n-coincidence
conversion area	800 l homogenisation tank	volume determination sampling concentr.determination	1	200 kg	0.5 0.5 0.4	0 - 0.2	2 h	volume determination is given through the difference between input and output; the error is mainly the error of output-determination
scrap recovery area	1 l container (7kg mixed oxide) with dry scrap	counting weighing Pu-content	50	0.5kg	0.1 0.5	- 0.5	1.5 h (sampling) 2.5h(anal)	weighing: gross , tara Pu/U fluorescence-spectrometry
	2 l bottle with liquid scrap	counting weighing sampling concentration determination	20	0.25kg	0.1 0.5 0.4	- - 0.3	1h(weigh) 2 h (sampl)	

Literaturverzeichnis zu Kapitel 1

Referenzen

- /1/ R. Avenhaus
Variable and Attribute Sampling
unveröffentlicht
Februar 1973
- /2/ R. Avenhaus, E. Höpfiner
Optimal Sampling for Safeguarding Nuclear Material
Op. Res. Verfahren XI, pp. 1-12 (1972)
- /3/ R. Avenhaus
Game Theoretical Treatment of a Statistical Inventory
Verification Model
Beitrag zum
IAEO Working Group Meeting on 'Accuracy of Nuclear Material
Accountancy and Technical Effectiveness of Safeguards'
Wien, 28. Aug.-1. Sept. 1972
- /4/ R. Avenhaus, L. Grünbaum, D. Nentwich
Quantification of Containment Measures Used in Safeguards
KFK 905
Juni 1973

2. ZERSTÖRUNGSFREIE METHODEN

- 2.0 Einführung
 - C. Weitkamp
- 2.1 Neutroneneinfang-Gammastrahlung
 - P. Matussek, H. Ottmar
- 2.2 Gammaskopische Bestimmung der Isotopenzusammensetzung von Plutonium
 - H. Ottmar, C. Weitkamp
 - 2.2.1 Messungen mit Ein-Detektor-Anordnungen
 - 2.2.2 Unterdrückung des Untergrunds mit einer Mehrdetektoranordnung
- 2.3 Entwicklung einer Schleuse zur Überwachung von Personen auf mitgeführtes hochangereichertes Uran
 - C. Weitkamp
- 2.4 Kalorimetrie
 - C. Weitkamp
- 2.5 Bestimmung der axialen Homogenität von Brennstäben
 - C. Weitkamp
- 2.6 Entwicklungen zur Aufnahme und Reduktion von Meßdaten
 - P. Matussek, R. Kuhn
 - 2.6.1 Computerintegriertes nukleares Zähler-Timer-System
 - 2.6.2 Spektrometer-Automatisierung
 - 2.6.3 Graphisch-interaktive Auswertung von Gammaskopien an einem Großrechner
- 2.7 Bestimmung von ^{235}U und ^{232}Th in HTR-Kugel-Brennelementen
 - W. Krappel, D. Stegemann, R. Eberle, M. Zeller
- 2.8 Automatisierung eines Neutronengenerators
 - M. Zeller, R. Eberle, W. Krappel, D. Stegemann
- 2.9 Neutronenkoinzidenzmessungen zur Plutoniumbestimmung
 - K. Böhnelt
 - 2.9.1 Verzögerte Koinzidenzen mit Zyklusüberlappung
 - 2.9.2 Schnelle Koinzidenz
 - 2.9.3 Programmentwicklung
 - 2.9.4 Bedarf an Nukleardaten für Koinzidenzmessungen
 - 2.9.5 Schnellspaltung

2.10 Bremszeitspektrometer

J. Klunker

2.11 Bestimmung von Spaltstoff in Brennstäben nach der Fermialter-Methode

K. Böhnel, M. Kühle

2.12 Bestimmung von Brennstoff in Brennelementen mit Hilfe einer Antimon-Beryllium-Quelle

K. Baumung, K. Böhnel

2.12.1 Reflektoren

2.12.2 Detektoren

2.13 Hülsenmonitor

K. Baumung, K. Böhnel

2.13.1 Fehlerbetrachtungen

2.13.2 Programmentwicklung für Rotations-Kollimation

2. ZERSTÖRUNGSFREIE METHODEN

2.0 Einführung

C. Weitkamp

Für die quantitative Spaltstoffbestimmung zur Schließung der Materialbilanz spielen zerstörungsfreie Meßverfahren nach wie vor eine wichtige Rolle. Für die physische Sicherung des Spaltmaterials genügt vielfach der qualitative Nachweis.

Zu beiden Anwendungsgebieten wurden 1972 Arbeiten durchgeführt. Die Darstellung schließt an die vorhergehenden Berichte für die Jahre 1971 und 1970 an^{1,2}. Mit Beginn der Implementierungsphase des Projekts hatten die Entwicklungsarbeiten der beteiligten Industrieunternehmen größtenteils ihren Abschluß erreicht; sie nehmen in diesem Bericht daher nur einen sehr geringen Raum ein. Neu hinzugekommen sind stattdessen die Forschungs- und Entwicklungsvorhaben des Instituts für Kerntechnik der Technischen Universität Hannover, die bisher nicht direkt über das Projekt gefördert worden waren.

Aus praktischen Gründen ist für die Arbeiten, über die im folgenden berichtet wird, eine andere Reihenfolge gewählt worden als in dem vorhergehenden Bericht¹. Die Arbeiten schließen aber i. allg. kontinuierlich an die Arbeiten des Vorjahres an, so daß es keine Schwierigkeiten machen dürfte, den Verlauf eines bestimmten Vorhabens zu verfolgen. Lediglich über die Personenschleuse für Plutonium und die Betrugsmengen-Rechnungen wird nicht mehr berichtet, weil diese Arbeiten schon 1971 ihren Abschluß gefunden haben; über Messungen der Uran-Anreicherung, die mangels geeigneter Proben 1972 nicht fortgesetzt werden konnten, wird erst 1973 wieder berichtet werden. Dagegen sind neu hinzugekommen ein Abschnitt über den Entwurf einer Personenschleuse für hochangereichertes Uran, ein Kapitel über Arbeiten zur Aufnahme und Reduktion von Meßdaten und ein kurzer Bericht über eine Service-Analyse der axialen Homogenität vibrierter Brennstäbe.

2.1 Neutroneneinfang-Gammastrahlung

P. Matussek, H. Ottmar

Die Erarbeitung grundlegender Kerndaten über die nach Neutroneneinfang emittierte γ -Strahlung als isotopenspezifisches Nachweismittel sowohl spaltbarer als auch nichtspaltbarer Isotope von Uran und Plutonium wurde fortgesetzt. Neben der Neutronen-Gamma-Antikoinzidenzanordnung für Untersuchungen mit thermischen Neutronen standen im Jahre 1972 erstmals auch eine Einrichtung zur Identifikation der Einfang-Gammastrahlung mittels Spaltprodukt- und β -Antikoinzidenz sowie ein epithermischer Neutronenstrahl zur Verfügung.

Epithermische Neutronen einer Energie von 2 keV wurden an einem Tangentialkanal des Reaktors FR2 mit Hilfe eines Scandium-Filters erzeugt. Neben den im Vergleich zu thermischen Neutronen besseren Transparenzeigenschaften von Kernbrennstoffen gegenüber 2 keV-Neutronen ist das günstigere Verhältnis Neutroneneinfangquerschnitt/Spaltquerschnitt (α -Wert) ein weiterer Vorteil. Diese α -Werte für 2 keV-Neutronen liegen bei ^{239}Pu ($\alpha_{2\text{ keV}} = 1,2$) um den Faktor 3, bei ^{235}U ($\alpha_{2\text{ keV}} = 0,35$) um den Faktor 2 höher als jene für thermische Neutronen. Daher war es möglich, die Gammastrahlung nach Einfang von 2 keV-Neutronen in relativ einfacher Anordnung mit einem Ge(Li)-Detektor nachzuweisen. Über die ersten erfolgreichen Messungen an ^{239}Pu wurde bereits an anderer Stelle berichtet^{1,3}. Weitere Untersuchungen erfolgten an den Kernen ^{235}U , ^{238}U und ^{232}Th . Bei ^{235}U erwiesen sich - wie aufgrund des α -Werts von 0,35 erwartet - die Peak-zu-Untergrund-Verhältnisse als ungünstiger als im Falle von ^{239}Pu . Die zum Nachweis von ^{235}U am besten geeignete γ -Linie ist, ebenso wie für thermische Neutronen, die mit der Energie 6397 keV. In Tabelle 2.1/I sind die nachgewiesenen hochenergetischen γ -Linien ($E_\gamma > 5,4$ MeV) aufgeführt.

Weil beim Einfang von 2 keV-Neutronen über viele Resonanzen gemittelt wird, stellen die gemessenen Intensitäten mittlere γ -Intensitäten mit geringer statistischer Fluktuation dar und variieren auch nur wenig von Kern zu Kern. Die gemessenen Absolutin-

Tabelle 2.1/I.

Hochenergetische γ -Linien aus dem Einfang von 2 keV-Neutronen in ^{235}U .

Energie keV	Absolute Intensität Quanten je 1000 Einfänge
6501,2	0,72
6397,2	1,52
5585,3	0,51
5545,5	0,75
5495,2	0,73
5487,7	0,62
5480,8	0,58
5453,1	0,34
5420,3	0,49

tensitäten für elektrische Dipolübergänge liegen in der Größenordnung 1 Photon je 1000 Einfänge. Diese geringen Intensitäten erfordern für quantitative Bestimmungen von Spaltstoff in kleinen Proben lange Meßzeiten; Vorzüge der Methode sind die isotopenspezifische Aussage und die gute Transparenz.

Die Einfangmessungen mit thermischen Neutronen, über die auf einer internationalen Konferenz im Zusammenhang berichtet worden ist^{4,5,6}, wurden 1972 an ^{233}U , ^{238}Pu und ^{240}Pu fortgesetzt. Die Zusammensetzung der Proben ist in Tabelle 2.1/II wiedergegeben.

Tabelle 2.1/II.

Isotopenzusammensetzung der Proben für die Messung von γ -Strahlung nach Neutroneneinfang.

^{233}U	^{238}Pu	^{240}Pu
^{233}U 97,8 %	^{238}Pu 80,5 %	^{238}Pu 0,002 %
^{234}U < 0,05%	^{239}Pu 16,4 %	^{239}Pu 0,8 %
^{235}U < 0,05%	^{240}Pu 2,2 %	^{240}Pu 98,3 %
^{238}U 2,2 %	^{241}Pu 0,7 %	^{241}Pu 0,8 %
	^{242}Pu 0,1 %	^{242}Pu 0,2 %

Für ^{233}U erwiesen sich die Intensitäten der primären Einfang-gammastrahlung als sehr schwach; es wurden keine Übergänge mit Intensitäten > 1 Quant je 1000 Einfänge gefunden. Eine quantitative Bestimmung von ^{233}U nach der Neutroneneinfangmethode ist daher sicher nicht möglich.

Für ^{238}Pu und ^{240}Pu sind in Tabelle 2.1/III die Energien und Intensitäten der intensivsten primären Gamma-Übergänge wiedergegeben. Die Absolutintensitäten der γ -Linien des ^{238}Pu wurden erhalten durch Normierung auf die Intensitäten von ^{239}Pu , das mit 16% im Targetmaterial enthalten war². Dagegen konnten die Intensitäten von ^{240}Pu bisher nur relativ bestimmt werden; ihre Absolutwerte liegen jedoch unter 3%. Die Fehler der in Tabelle 2.1/III angegebenen Werte liegen für die γ -Energien zwischen 0,5 und 1 keV, für die Intensitäten zwischen 10% und 30%.

Tabelle 2.1/III.

Energien und Intensitäten primärer Gammaübergänge nach Einfang thermischer Neutronen in ^{238}Pu und ^{240}Pu .

^{238}Pu		^{240}Pu	
Energie keV	Absolute Intensität Quanten je 1000 Einfänge	Energie keV	Relative Intensität
5646,6	2,0	5080,3	1,0
5176,9	22,5	5070,8	0,3
5154,6	3,5	4472,3	1,0
4894,9	2,0	4456,9	0,9
4848,8	2,0	4400,2	0,8
4842,0	3,6	4391,5	1,7
4821,8	24,2	4300,0	1,5
4759,0	1,0	4276,5	2,1
4714,7	1,8	4151,3	1,8
4547,1	7,3		

2.2 Gammaspektroskopische Bestimmung der Isotopenzusammensetzung von Plutonium

H. Ottmar, C. Weitkamp

2.2.1 Messungen mit Ein-Detektor-Anordnungen

Die verschiedenen zerstörungsfreien Meßmethoden zur Ermittlung des Plutoniumgehaltes umschlossener Proben können bezüglich der Gesamtmenge Plutonium nur dann quantitative Aussagen liefern, wenn gleichzeitig die Isotopenzusammensetzung bekannt ist. Diese wurde bislang ausschließlich massen- oder α -spektrometrisch, d.h. nicht zerstörungsfrei bestimmt.

Als zerstörungsfreie Meßmethode zur Bestimmung von Isotopenverhältnissen in Plutonium kommt die γ -Spektroskopie unter Verwendung der charakteristischen Eigenstrahlung der verschiedenen Isotope in Frage. Im Berichtszeitraum wurden experimentelle Untersuchungen darüber angestellt, inwieweit Isotopenverhältnisse auf diese Weise zerstörungsfrei gemessen werden können.

γ -spektroskopisch erfaßbar sind die Isotope $^{238,239,240,241}\text{Pu}$ und ^{241}Am . Dagegen bleibt ^{242}Pu bei den typischen Zusammensetzungen von Reaktorplutonium wegen seiner geringen spezifischen Aktivität γ -spektroskopisch nicht nachweisbar. Wesentliche Faktoren, welche die Genauigkeiten der meßbaren Isotopenverhältnisse bestimmen, sind

- Meßzeit,
- Detektoreigenschaften (Auflösung, Ansprechwahrscheinlichkeit),
- Probendicke,
- Wahl der γ -Linien und Größe der Störungen durch benachbarte Linien,
- Isotopenzusammensetzung (in erster Linie Höhe des ^{241}Pu - bzw. ^{241}Am -Anteils),
- Genauigkeit der Kerndaten (γ -Intensitäten, Halbwertszeiten),
- Art der Analyse der Spektren.

Tabelle 2.2/I.

γ-spektrometrische Bestimmung von Isotopenverhältnissen in Plutonium. Die Werte in Klammern bedeuten Fehler in %. Die Notationen F_I , F_H , F_P stehen für Fehler der Quotienten aus Intensitäten, Halbwertszeiten und Peakflächenbestimmung.

Isotopenverhältnis	Massenspektrometrischer Wert	γ-spektrom. Werte mit Absolutintens. nach		Verwendete γ-Linien (keV)	Fehlerkomponenten(%)		
		Ref. ⁸	Ref. ⁹		F_I Ref. ⁸	F_H	F_P
$^{239}\text{Pu}/^{238}\text{Pu}$	3118(10)	3260 (6)	4809(22)	203,55 152,77	4	0,2	2
		3333(14)	4513(32)	769,38 742,77 ⁺	2	0,2	12
		2753 (4)	3680(21)	769,38 766,41 ⁺	2	0,2	2
		2855(10)	6673(18)	769,38 786,30	2	0,2	8
$^{239}\text{Pu}/^{240}\text{Pu}$	10,512(0,4)	12,57(10)	40,41(25)	161,45 160,35	4	0,3	5
		12,74 (8)	40,21(22)	646,02 642,30	5	0,3	2,5
$^{239}\text{Pu}/^{241}\text{Pu}$	121,39(1,1)	113,7 (10)	139,6 (22)	203,55 208,00	8	1,1	0,3
$^{239}\text{Pu}/^{241}\text{Am}$	901,6(2,3)	635,2(11)	671,0 (26)	422,57 419,19	5	0,3	6
		846,9(20)	1214 (33)	451,45 454,58	7	0,3	13
		588,1(18)	1233 (31)	640,15 641,37	7	0,3	11
		604,6(4)	819,9 (11)	646,02 662,37 ⁺	3	0,3	0,6
		498,3(9)	639,0 (24)	652,19 652,38	5	0,3	4
		607,6(5)	618,7 (11)	658,99 662,37	4	0,3	0,7
		601,0(9)	-	686,16 688,70	6	0,3	2,7
599,4(7)	913,2 (23)	717,76 721,92	4	0,3	2,6		

⁺ Mögliche Störung durch langlebige Spaltprodukt-Gammalinien infolge einer früheren Bestrahlung der Probe mit Neutronen

Das Verhältnis $N(i)/N(k)$ zweier Isotope i und k ist aus den Peakflächen $P(i)$ und $P(k)$, den Halbwertszeiten $T_{1/2}(i)$ und $T_{1/2}(k)$, den Intensitäten (d.h. Anzahl emittierter γ -Quanten je Zerfall) $I(i)$ und $I(k)$, den Selbstabschirmungsfaktoren für die Quelle $S(i)$ und $S(k)$ und den Ansprechwahrscheinlichkeiten $\epsilon(i)$ und $\epsilon(k)$ des Detektors für Quanten der Isotope i und k nach der einfachen Beziehung

$$\frac{N(i)}{N(k)} = \frac{P(i) T_{1/2}(i) I(k) S(k) \epsilon(k)}{P(k) T_{1/2}(k) I(i) S(i) \epsilon(i)}$$

zu berechnen. Die Untersuchung des γ -Spektrums von Plutonium zeigt jedoch, daß vielfach γ -Linien zur Analyse herangezogen werden müssen, die Teile komplexer Strukturen sind, so daß die Bestimmung von $P(i)/P(k)$ nur bei Anwendung hochauflösender Spektroskopie mit Ge(Li) - Halbleiterdetektoren möglich ist. Da die Parameter S und ϵ im praktischen Fall kaum hinreichend genau zu bestimmen sind, muß man versuchen, soweit wie möglich unabhängig zu bleiben von der Geometrie und Dicke der Probe und damit von der stark energieabhängigen Absorption in Probe und Hüllmaterialien bzw. Ansprechwahrscheinlichkeit des Detektors. Das bedeutet, daß zur Analyse die Verwendung von γ -Linien wenig unterschiedlicher Energie vorteilhaft ist. Die so bestimmten Isotopenverhältnisse einer zylindrischen Plutoniumprobe ($\phi = 7,8$ mm, $L = 29,94$ mm) finden sich in Tabelle 2.2/I. Zur Analyse wurden Linien aus zwei Energiebereichen herangezogen:

- Energiebereich 150 - 210 keV mit γ -Linien der Isotope $^{238}, ^{239}, ^{240}, ^{241}\text{Pu}$: Das Peak-zu-Untergrund-Verhältnis für die γ -Linien aus ^{238}Pu und ^{240}Pu ist für die häufig vorkommenden Mischungsverhältnisse so niedrig, daß die Anwendung eines Compton-Reduktors in diesem Energiebereich eine wesentliche Verbesserung in der Genauigkeit⁷ der Peakflächenbestimmungen (s. Abb. 2.2/1 und Abschnitt 2.2.2) bieten kann.
- Energiebereich 640 - 770 keV mit γ -Linien der Isotope $^{238}, ^{239}, ^{240}\text{Pu}$ und ^{241}Am : Dem verhältnismäßig günstigen Peak-zu-Untergrund-Verhältnis steht eine sehr viel geringere Intensität der γ -Linien (ca. 50-100 fach kleiner) gegenüber. Abb. 2.2/2 zeigt einen Computer-Fit des γ -Spektrums in der Energieregion um 650 keV.

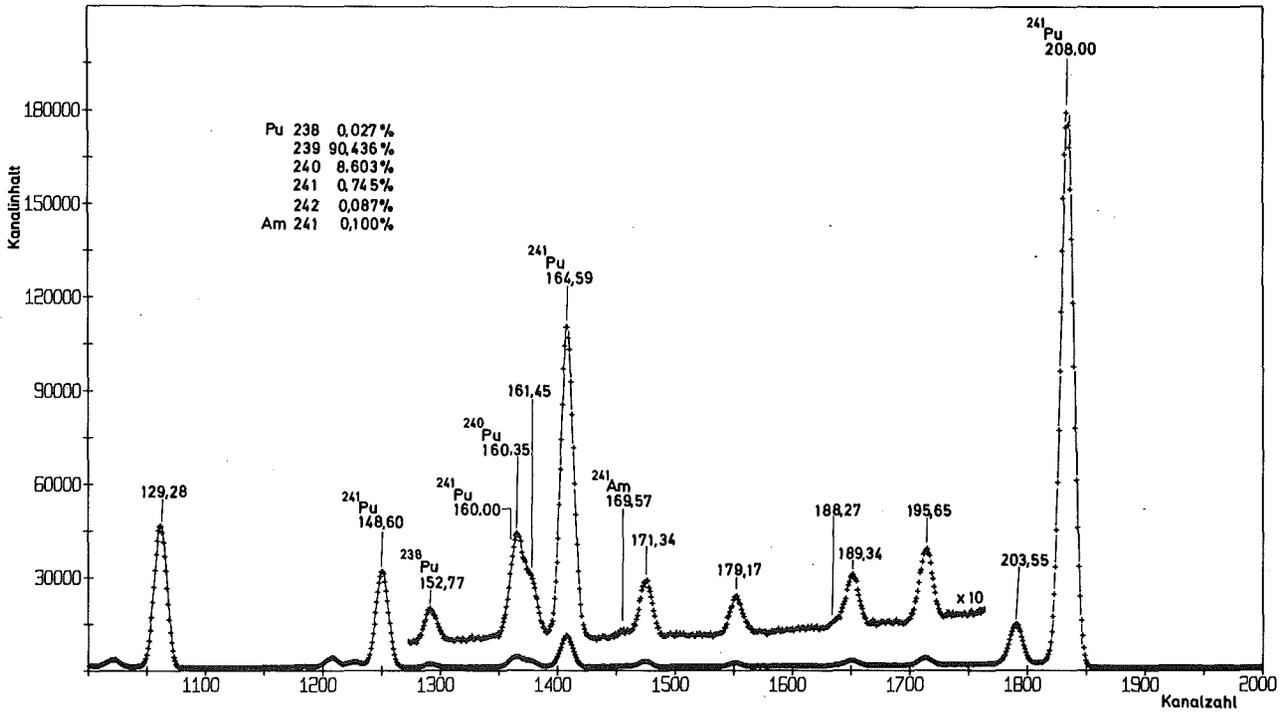


Abb. 2.2/1.

Passives γ -Spektrum von Reaktorplutonium der angegebenen Isotopenzusammensetzung im Energiebereich 120 - 230 keV, gemessen mit dem in Ref. 13 beschriebenen Anti-Compton-Spektrometer. γ -Linien ohne Isotopenkennzeichnung stammen aus ^{239}Pu .

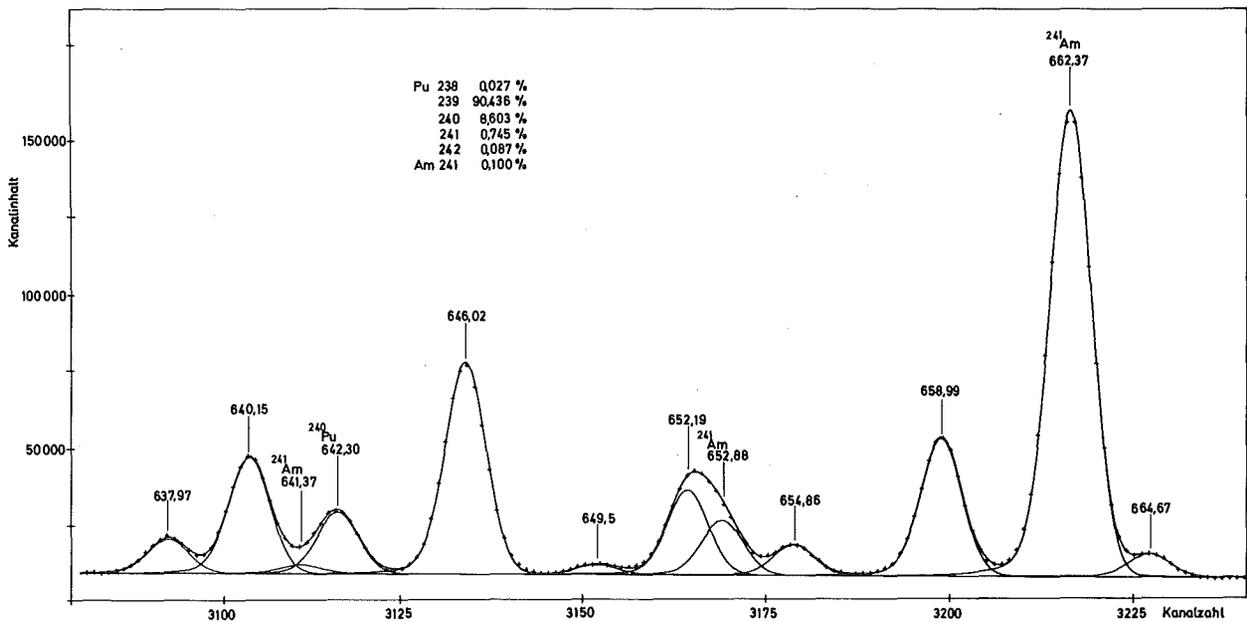


Abb. 2.2/2.

Computer-Fit des passiven γ -Spektrums von Reaktorplutonium der angegebenen Isotopenzusammensetzung im Energiebereich 630 - 670 keV. γ -Linien ohne Isotopenkennzeichnung stammen aus ^{239}Pu .

Sämtliche Analysen erfolgten graphisch-interaktiv in der in Abschnitt 2.6/3 dargestellten Weise.

Die Übereinstimmung der Ergebnisse mit den in Tab.2.2/I ebenfalls aufgeführten massenspektrometrischen Werten ist schlecht. Die großen Abweichungen sind in erster Linie auf die unzureichende Kenntnis der relevanten Kerndaten, d.h. der Absolutintensitäten sowie im Falle von ^{241}Pu auch der Halbwertszeit zurückzuführen. Wie die Fehlerkomponenten in der letzten Spalte der Tabelle zeigen, lassen sich - ausreichende Kenntnis der Kerndaten vorausgesetzt (Fehler $<1\%$ in I_γ und $T_{1/2}$) - die Isotopenverhältnisse $^{238}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ und $^{239}\text{Pu}/^{241}\text{Pu}$ γ -spektrometrisch aber im Prinzip mit vergleichbarer oder sogar größerer Genauigkeit als massenspektrometrisch bestimmen. Eine Abschätzung zeigt, daß dies für alle praktisch vorkommenden Isotopenhäufigkeiten von ^{238}Pu gilt, im Falle von ^{241}Pu bei Isotopenhäufigkeiten $<5\%$. Problematisch bleibt dagegen stets die γ -spektrometrische Bestimmung des Verhältnisses $^{239}\text{Pu}/^{240}\text{Pu}$. Die beiden für die Analyse verwendbaren γ -Linien aus dem Zerfall von ^{240}Pu - 160,35 und 642,30 keV - lassen sich selbst bei hochauflösender γ -Spektroskopie nur teilweise von benachbarten Linien trennen (s. Abb. 2.2/1 und 2.2/2). Genauigkeiten von 1-2 % erscheinen nur mit Hilfe der 642.30 keV-Linie und entsprechend langen Meßzeiten möglich.

2.2.2 Unterdrückung des Untergrundes mit einer Mehrdetektoranordnung

Wie schon weiter oben angeführt, stellt die große Liniendichte des γ -Spektrums eines Plutonium-Isotopengemisches nicht nur hohe Anforderungen an die Energieauflösung des Detektors, sondern erfordert auch ein hohes Signal-zu-Untergrund-Verhältnis. Der überwiegende Teil des Untergrundes entsteht durch Mehrfachprozesse im Detektor selbst (überwiegend Compton-Streuung); daher schien es angebracht, eine Anordnung aufzubauen, die den Compton-Untergrund zu reduzieren gestattet. Besonders wichtig ist es dabei,

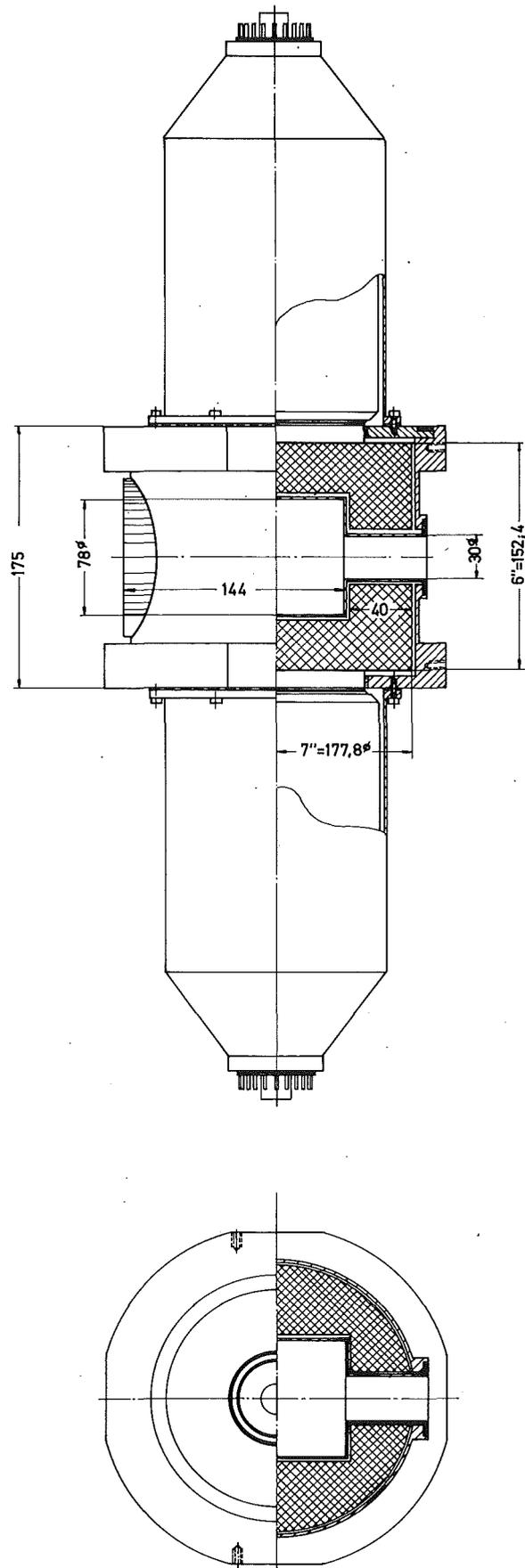


Abb. 2.2/III.
Compton-Reduktor, schematisch.

den Energiebereich zwischen etwa 150 und 210 keV freizuhalten von Ereignissen, bei denen diese Energiebeträge in einem Compton-Effekt freiwerden, den γ -Quanten der intensiven Linien zwischen 330 und 450 keV erleiden. Diesen Energieverhältnissen entspricht ein Streuwinkelbereich zwischen etwa 50° und 140° ; anders als bei den üblichen Anti-Compton-Spektrometern sind also hier nicht Vorwärts- und Rückwärtsstreuung die Prozesse, denen die größte Bedeutung zukommt, sondern Streuereignisse um einen Winkel im Bereich um 90° .

Dementsprechend wurde der Natriumjodidkristall so durchbohrt, daß die beiden Löcher für den primären γ -Strahl und für die Aufnahme des Germaniumdetektors coaxial angeordnet sind. Diese Durchbohrung erfolgte aber nicht axial, sondern radial. Dadurch entfällt das Anschleifen planer Flächen zum Aufsetzen der Photomultiplier auf die Mantelfläche des Kristalls. Die Dimensionen des NaJ(Tl)-Kristalls wurden so gewählt, daß die Ansprechwahrscheinlichkeit für Streuquanten nahezu 90 % beträgt und der Detektor mit Primär- (d.h. Halbleiter-)Detektoren in Kryostaten bis zu 3 Zoll Durchmesser betrieben werden kann. Das ergibt Außenabmessungen von 7 Zoll Durchmesser und 6 Zoll Dicke. Eine schematische Zeichnung des Compton-Reduktors zeigt Abb. 2.2/3.

2.3 Entwicklung einer Schleuse zur Überwachung von Personen auf mitgeführtes hochangereichertes Uran

C. Weitkamp

Eine wichtige Anwendung zerstörungsfreier Methoden auf Fragen der Spaltstoffflußkontrolle stellt auch die Überwachung von Personen auf mitgeführtes hochangereichertes Uran dar. Weil die leistungsfähigen aktiven Verfahren zur Uranbestimmung für die Personenüberwachung ausscheiden, bietet sich als praktisch einziges Verfahren die Ausnutzung der 185 keV-Eigengammastrahlung des ^{235}U an.

Die apparativen Möglichkeiten einer solchen Schleuse sind in einer Studie untersucht worden, in der auch versucht wird, Schwellenwerte für die Nachweisgrenze anzugeben.

Dabei wird davon ausgegangen, daß die Schleuse in Form einer telefonzellenähnlichen, mit zwei einander gegenüberliegenden verglasten Drehschwingtüren ausgestatteten Kammer von etwa 1 m x 1 m Grundfläche und 2 m Höhe ausgeführt wird. Derartige Schleusen-kammern sind auch für die von der Firma ALKEM entwickelten Personenschleusen für Plutonium verwendet worden und haben sich gut bewährt.

Als Detektoren werden NaJ(Tl)-Szintillationsdetektoren vorgeschlagen. Wie sich im Verlauf der Überlegungen zeigt, ist der Untergrund der die Nachweisgrenze bestimmende Faktor; daher wurden Lösungen mit großflächigen oder leichten Szintillatoren von vornherein ausgeschlossen. Zweckmäßig erscheinen Detektoren mit 6" Durchmesser und 1/2" Dicke; die Peak-Ansprechwahrscheinlichkeit solcher Detektoren für entfernte Quellen ist in Tabelle 2.3/I als Funktion des Einfallswinkels wiedergegeben. Multipliziert man

Tabelle 2.3/I.

Peak-Ansprechwahrscheinlichkeit eines 6" ϕ x 1/2"-NaJ(Tl)-Detektors für
185 keV- γ -Strahlung als Funktion des Inzidenzwinkels

Inzidenz	90° (normal)	75°	60°	45°	30°	15°	0° (parallel)
Ansprechwahrscheinlichkeit <u>ohne</u> bzw. <u>mit</u> Abschirmung der Mantel- fläche	0,69 0,69	0,69 0,68	0,67 0,64	0,61 0,57	0,51 0,45	0,36 0,26	0,11 0

diese Zahlen mit $(3")^2 / (4\pi d^2) = 4,62 \text{ cm}^2 / d^2$, so erhält man direkt den Bruchteil der im Detektor nachgewiesenen γ -Quanten aus einer Quelle an einem beliebigen Ort in der Kammer mit dem Detektorabstand $d \geq 10 \text{ cm}$.

Mögliche Anordnungen solcher Detektoren in der Kammer sind in Abb. 2.3/1 schematisch angedeutet. Weil der Innenraum der Schleuse nicht vollständig abgeschirmt werden kann, muß auch die Mantelfläche

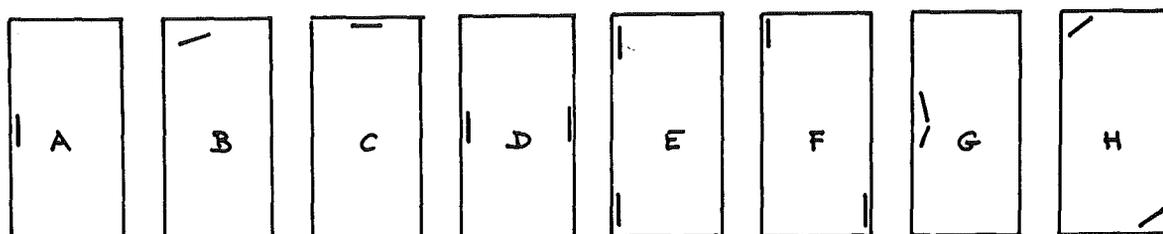


Abb. 2.3/1.

Möglichkeiten für die Anordnung von Detektoren in der Schleuse, schematisch.

des Detektors abgeschirmt werden. Daher sind die Werte der letzten Zeile der Tabelle I als realistisch anzusehen. Das bedeutet, daß die Ein-Detektor-Anordnungen A und C "tote Bereiche", die Anordnungen B und C Abstände bis zu 2 m zwischen Quelle und Detektor zur Folge haben. Aus diesem Grunde ist im folgenden die von den Zwei-Detektor-Anordnungen D bis H am günstigsten erscheinende Lösung H zugrundegelegt worden.

Uran zeigt für γ -Strahlung einer Energie von 185 keV extrem starke Selbstabschirmung. Definiert man eine effektive Schichtdicke

$$x_{\text{eff}} = \int_0^{\infty} \exp(-\Sigma x) dx = A/(\sigma\rho L),$$

die angibt, wieviel ein entfernter Detektor von einem dicken Stück Materie "sieht", so erhält man mit den entsprechenden Werten für die Massenzahl A, die Dichte ρ und den Querschnitt σ für die verschiedenen Substanzen effektive Schichtdicken x_{eff} , wie sie in Tabelle 2.3/II aufgeführt sind. L ist die Loschmidt-Zahl. Man

Tabelle 2.3/II.

Effektive Schichtdicken x_{eff} für 185 keV- γ -Strahlung.

Substanz	x_{eff}
Uranmetall (A= 235, $\rho=19,05 \text{ gcm}^{-3}$, $\sigma=575\text{b}$)	0,036 cm
Uranoxid, gesintert (A= 267, $\rho=10,96 \text{ gcm}^{-3}$, $\sigma=582\text{b}$)	0,069 cm
Uranoxid-Pulver (A= 267, $\rho=2,00 \text{ gcm}^{-3}$, $\sigma=582\text{b}$)	0,38 cm
U-Al-Legierung, 20 Gew.-% U (A=1175, $\rho=2,70 \text{ gcm}^{-3}$, $\sigma=765\text{b}$)	0,94 cm

erkennt, daß für reines Uran oder Uranoxid praktisch nur die Oberfläche gemessen werden kann, während für U-Al-Legierungen die Selbstabschirmung kein so ernstes Problem darstellt.

Sieht man von komplizierten Versuchen ab, Material unentdeckt durch die Schleuse zu bringen, so ist die für den Nachweis pessimale Geometrie für das uranhaltige Material die Kugelform. Geht man von einer vorgegebenen Zählrate in einem Detektor (NaJ(Tl), 6" ϕ x 1/2") aus, so ergeben sich für den bei einer Zwei-Detektor-Anordnung größtmöglichen Abstand von etwa 120 cm die in Tabelle 2.3/III aufgeführten Materialmengen.

Tabelle 2.3/III.

Uranmengen bei vorgegebener Peakzählrate in einem 6" ϕ x 1/2"-NaJ(Tl)-Detektor für pessimalen Abstand (120 cm) und pessimale Geometrie (Kugelform). Stoffwerte wie in Tabelle 2.3/II, Uranmengen in Gramm.

Zählrate, Impulse/sek	10	20	50	100	200	500	1000
Uranmetall	25	70	280	790	2200	9300	25000
UO ₂ , $\rho=10,96 \text{ gcm}^{-3}$	13	36	140	410	1200	4800	13000
UO ₂ , $\rho=2,00 \text{ gcm}^{-3}$	2,3	6,7	26	74	210	880	2400
U-Al	1,1	3,1	12	34	100	380	1100

Um einen Überblick über die zu erwartende Untergrundzählrate zu bekommen, wurden Messungen mit einem NaJ(Tl)-Detektor von 2" ϕ x 1/2" durchgeführt. Die Messungen erfolgten in einem sauberen Laborraum, in dem aber keine besonderen Vorkehrungen für eine Verminderung des natürlichen Untergrundes aus Baumaterialien und Höhenstrahlung getroffen worden waren. Mit einem Einkanaldiskriminator wurde der spektrale Bereich zwischen 170 und 200 keV registriert. Mit einer Verbesserung der Abschirmung erniedrigte sich erwartungsgemäß die Untergrundzählrate; die Abschirmungen sind in Abb. 2.3/2 skizziert, die Meßwerte und die hieraus für einen 6" ϕ -Detektor berechneten Untergrundraten zeigt die Tabelle 2.3/IV.

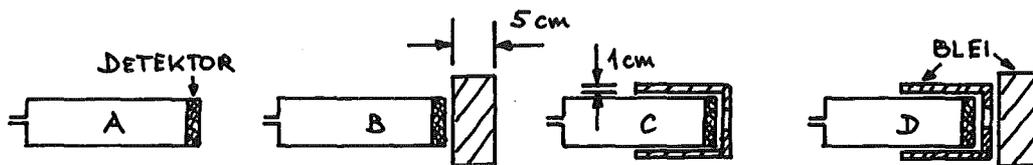


Abb. 2.3/2.

Anordnung der Abschirmung für den 2" ϕ x 1/2" - NaJ(Tl) - Detektor.

Tabelle 2.3/IV.

Untergrundzählraten in Impulsen pro Sekunde zwischen 170 keV und 200 keV γ -Energie für einen 1/2" dicken NaJ(Tl)-Detektor von 2" Durchmesser (gemessen) und von 6" Durchmesser (gerechnet); Geometrie der Abschirmung siehe Abb. 2.3/2.

Abschirmung	A	B	C	D
2" ϕ x 1/2" - Detektor	37	23	9	6
6" ϕ x 1/2" - Detektor	330	200	80	50

Aus Abb. 2.3/2 und Tabelle 2.3/IV geht hervor, daß bei sorgfältiger Auslegung der Abschirmung der näheren Umgebung des Detektors wie auch der Schleuse als Ganzes eine Untergrundrate zwischen 50 und 100 Impulsen je Sekunde erreicht werden kann. Nehmen wir an, daß eine

Erhöhung auf das Doppelte gerade noch mit Sicherheit nachgewiesen werden kann und beschränken wir uns auf oxidisches Material, so erkennen wir anhand Tabelle 2.3/III, daß unter den geschilderten Pessimalkbedingungen (Kugelgeometrie, Abstand zum Detektor 120 cm) die Schwellen für sicheres Ansprechen auf gesintertes Material zwischen etwa 150 und 400 g ^{235}U , für lose geschüttetes Pulver zwischen 25 und 75 g liegen. Wird das Material in die Nähe des Detektors gebracht oder flächenhaft ausgedehnt transportiert, so bringen schon viel kleinere Substanzmengen die Schleuse zum Ansprechen.

Nach den Regeln der Statistik genügt bei einer mittleren Zählrate von 50 Impulsen/sek und einer Integrationszeit von 1 Sekunde eine Schwelleneinstellung von 100 Impulsen/sek, seltener als einmal pro Jahr einen falschen Alarm auszulösen. In der Praxis zeigt sich jedoch, daß eine mindestens 5 mal längere Integrationszeit erforderlich ist, wenn man Fehlalarme zuverlässig vermeiden will. In der Tat scheint eine Zählzeit der Größenordnung 5 sek, wie sie sich hiernach für den betrachteten Detektor als ausreichend ergibt, zumutbar; andererseits ist dafür aber auch eine Detektorfläche von 6" Durchmesser, wie sie für die oben angestellten Berechnungen angenommen worden war, erforderlich.

Von großer Bedeutung ist die Frage, ob der Untergrund durch aktives Material, das in der Nähe der Schleuse transportiert, gehandhabt oder gelagert wird, sich zeitlich ändert. Für diesen Fall gelten diese einfachen Betrachtungen nicht. Eine Analyse der Gegebenheiten muß für diesen Fall zeigen, ob eine Zweidetektoranordnung, bei der neben der Summe der Zählraten auch ihre Differenz gemessen wird, Abhilfe schaffen kann. Dies ist z.B. dann nicht der Fall, wenn sich während des Betriebs der Schleuse auf ihrem Boden Uran ansammelt und die beiden Detektoren entsprechend dem Vorschlag H (Abb. 2.3/1) angeordnet sind.

Körpersubstanz schirmt γ -Strahlung von 185 keV nur schwach ab; erst nach 50 cm durchstrahlter Dicke ist die Intensität (eines kollimierten Strahls) auf die Hälfte abgefallen.

Dagegen genügen bei Blei bereits 0,6 mm, eine Abschwächung um den Faktor zwei zu erreichen; mit einer Bleiauskleidung der Schleuse von 6 mm Stärke kann man folglich den Teil des Untergrundes im Diskriminatorfenster, der von primärer 185 keV-Strahlung herührt (z.B. von außerhalb gelagertem Uran), um den Faktor 1000, mit 10 mm Blei um mehr als das 10^5 -fache reduzieren. Dabei ist es wichtig, daß auch die Türflächen abgeschirmt sind und, falls Fenster in den Türen erforderlich sind, diese entweder in Form schmaler Schlitze ausgebildet oder mit Bleiglas verglast werden.

Noch mehr Sicherheit für den Nachweis läßt sich erzielen, wenn man die γ -Meßeinrichtung mit einem Metalldetektor kombiniert, der sowohl auf das (metallische) Uran selbst als auch auf verwendetes Abschirmmaterial ansprechen kann.

Auf dem Markt befindliche Metalldetektoren erfordern gegenwärtig noch geschultes Bedienungspersonal und große Erfahrung bei der Auswertung der Ergebnisse; sie haben hinsichtlich Reproduzierbarkeit der Ansprechschwelle, Unabhängigkeit von äußeren Einflüssen und Betriebssicherheit noch ein erhebliches Entwicklungspotential.

Obgleich in näherer Zukunft technische Verbesserungen zu erwarten sind, kann nicht ausgeschlossen werden, daß für die Nutzung eines solchen Geräts in einer Personenschleuse noch Entwicklungsarbeit zu leisten ist.

Eine auf dem vorgeschlagenen Prinzip beruhende Schleuse kann hochangereichertes Uran in praktisch allen in einem Fabrikationsbetrieb vorkommenden Formen nachweisen. Die höchsten pessimalen Ansprechschwelle sind zu erwarten für nichtmetallisches Material hoher Dichte, d.h. gesintertes Uranoxid. Durch Verwendung einer größeren Zahl Detektoren läßt sich diese Schwelle über die Vergrößerung der minimalen Raumwinkel zwischen Probe und Detektor noch beträchtlich senken. Obgleich Strategien denkbar sind, deren konsequente Anwendung über lange Zeiträume die Ausschleusung interessanter Mengen ^{235}U ermöglicht, bietet eine Schleuse der vorgeschlagenen Art doch einen

so beträchtlichen Schutz vor wahrscheinlicheren, weil einfacheren, Abzweigungsaktionen, daß ihre Entwicklung und Anwendung gerechtfertigt erscheint.

2.4 Kalorimetrie

C. Weitkamp

Im Jahre 1972 wurden an den Kalorimetern keine weiteren Änderungen vorgenommen; die Entwicklungsarbeiten am Plättchen-, am Stab- und am sog. Kilokalorimeter werden als abgeschlossen betrachtet.

Die Konstruktion des Großkalorimeters für ganze Brennelemente oder Stabbündel wurde fertiggestellt. Ein Bauauftrag wurde aber bisher nicht erteilt, weil gegenwärtig kein dringendes Bedürfnis für die Verfügbarkeit eines solchen Geräts vorzuliegen scheint.

Als absolute Methode ist die Kalorimetrie stark abhängig von der Genauigkeit der für die Auswertung verwendeten Kerndaten. Daher wurden die Literaturwerte für die spezifische Wärmeleistung s der einzelnen Plutoniumisotope und des ^{241}Am neu zusammengestellt und, sofern erforderlich, Meßdaten aus Originalarbeiten neu ausgewertet. Die Ergebnisse sind in Tabelle 2.4/I zusammengestellt. Für die in der ersten Spalte aufgeführten Isotope enthalten die Spalten 2 bis 4 die α -Zerfallsenergie, die (nicht kalorimetrisch bestimmte) Lebensdauer und die aus diesen beiden Größen berechnete spezifische Leistung s . Wurde s auch kalorimetrisch bestimmt, so ist diese Größe in Spalte 5 angeführt. Die Spalten 6, 7 und 8 enthalten den prozentualen Unterschied der beiden s -Werte und zum Vergleich die prozentualen Fehler der einzelnen s -Bestimmungen. Die Übereinstimmung der beiden s -Werte für ^{239}Pu ist zufriedenstellend. Für ^{240}Pu ist der Unterschied der beiden Werte größer als die Summe der Fehler, und für ^{241}Am überlappen sich die beiden Fehlergrenzen gerade noch.

Diese Tabelle ist gelegentlich als Tabelle für empfohlene Halbwertszeit-Werte der einzelnen Isotope mißverstanden worden.

Tabelle 2.4/I.

Zerfallsenergie, Halbwertszeit, hieraus berechnete sowie direkt (kalorimetrisch) bestimmte spezifische Leistung von fünf Plutonium-Isotopen und von ²⁴¹Am. Die Unsicherheiten der spezifischen Leistung sind auch in Prozent angegeben, um leichter mit dem Unterschied zwischen den beiden Werten vergleichen zu können.

Isotop 1	Zerfallsenergie ^a 2	Halbwertszeit ^b 3	Spezifische Wärmeleistung s/mWg ⁻¹ aus Q und T _{1/2} ^c		Differenz 6	Prozentualer Fehler der s-Werte 7 8	
			4	5			
²³⁸ Pu	5593.40 ± 0.20 ^d	87.80 ± 0.02 ^e	567.17 ± 0.13	-	-	0.023	-
²³⁹ Pu	5243.6 ± 0.8 ^f	24401 ± 40 ^g	1.9052 ± 0.0032	1.9142 ± 0.0100 ^h	0.52 %	0.17	0.47
²⁴⁰ Pu	5255.5 ± 0.7 ^j	6620 ± 50 ^k	7.0088 ± 0.0530	7.1046 ± 0.0150 ^h	1.37 %	0.76	0.21
²⁴¹ Pu	entfällt	15.10 ± 0.14 ^l	-	3.62 ± 0.18 ^m	-	-	5.00
²⁴² Pu	4982.5 ± 1.2 ^f	386900 ± 1600 ⁿ	0.11277 ± 0.00050	-	-	0.44	-
²⁴¹ Am	5638.05 ± 0.12 ^d	436.6 ± 3.0 ^o	113.53 ± 0.80	114.50 ± 0.17 ^p	0.85 %	0.70	0.15

- ^a Zerfallsenergien sind nicht auf Konsistenz der Referenzenergien geprüft oder korrigiert.
- ^b Halbwertszeiten, die durch Messung der spezifischen Wärmeleistung und der Zerfallsenergie berechnet wurden, sind nicht berücksichtigt.
- ^c Berechnet nach der Beziehung $s = 2119,338(Q/\text{MeV}) / \{(A/\text{amu})(T_{1/2}/\text{Jahre})\}$, wo A die Massenzahl auf der ¹²C-Skala (s. z.B.A.H. Wapstra, N.B. Gove, Nuclear Data A 9 (1971) 265) ist.
- ^d Nach B. Grennberg, A. Rytz, Metrologia 7 (1971) 65.
- ^e Nach W.H. Smith, D.R. Rogers, G.L. Silver, Mound Laboratories Report MLM-1691 (1969).
- ^f Nach S.A. Baranov, et al., Yadern. Fiz.7 (1968) 727; Sovjet Journal of Nuclear Physics 7 (1968) 442.
- ^g Nach Ya. Dokuchaev, Atomnaja Energija 6 (1959) 74; J. Nuclear Energy 11 A(1960) 195, und T.L. Markin, J. Inorg. Nucl. Chem. 9 (1959) 320.
- ^h Neuauswertung der Daten aus F.L. Oetting, Thermodyn. of Nucl. Mat., IAEA, Wien 1970, S.55 und F.L. Oetting, Pu 1970 and other Actinides, Proceed. of the 4th Int. Conf., Santa Fe; New Mex., Oct. 5-9, 1970, Part I, p.154; Nucl. Metallurgy 17(1970) 154. Dazu wurde $T_{1/2}(\text{^{238}Pu}) = 87,80 (87,60) \text{ a}$, $T_{1/2}(\text{^{241}Pu}) = 15,10 (14,03) \text{ a}$, $s(\text{^{238}Pu}) = 3,62 (4,24) \text{ mW/g}$ (zur Korrektur der Wiener Daten), $s(\text{^{240}Pu}) = 567,17 (567,00) \text{ mW/g}$, $s(\text{^{240}Pu}) = 7,105 (7,097) \text{ mW/g}$ (zur Korrektur der Daten von Santa Fe) verwendet; die Zahlen in Klammern sind die ursprünglich benutzten Werte.
- Als Ergebnis erhält man
- $s(\text{^{239}Pu}) = 1,9054 \pm 0,0040 \text{ mW/g}$,
 $s(\text{^{240}Pu}) = 7,1046 \pm 0,0150 \text{ mW/g}$ für das Wiener Papier, und
 $s(\text{^{239}Pu}) = 1,9235 \pm 0,0039 \text{ mW/g}$,
 $s(\text{^{239}Pu}) = 1,9136 \pm 0,0039 \text{ mW/g}$, für die beiden Proben von Santa Fe.
- Der so berechnete Wert für ²⁴⁰Pu wurde in die Tabelle übernommen, für ²³⁹Pu wurde das Mittel der drei Ergebnisse übernommen. Man erkennt, daß der wahrscheinliche Fehler für den ²³⁹Pu-Wert größer ist als die angegebenen Unsicherheiten.
- ^j Nach C.F. Leang, Comptes Rendus Acad. Sci. 255 (1962) 3155.
- ^k Nach Ya. Dokuchaev, Atomnaja Energija 6 (1959) 74; J. Nucl. Energ. 11 A (1960) 195.
- ^l Nach M.J. Cabell, Chemical Nucl. Data, Measurements and Applications, Proceedings of the International Conference, 20-22 September 1971, Canterbury. Der neue Wert wurde während der Drucklegung hinzugefügt und erscheint weder im Resümee noch in der älteren Veröffentlichung v. M.J. Cabell, M. Wilkins, J. Inorg. Nucl. Chem. 33 (1971) 903.
- ^m Nach F.L. Oetting, Phys. Rev. 168 (1968) 1398.
- ⁿ Nach C.E. Bemis, Jr., J. Halperin, R. Eby, ORNL-4306 (1968) 31; J. Inorg. Nucl. Chem. 31 (1969) 599.
- ^o Nach R.E. Stone, E.K. Hulet, J. Inorg. Nucl. Chem. 30 (1968) 2003.
- ^p Nach F.L. Oetting, S.R. Gunn, J. Inorg. Nucl. Chem. 29 (1967) 2659.

Daher sind in Tabelle 2.4/II noch einmal die augenblicklich verfügbaren besten Literaturwerte ("empfohlene Werte") für die Halbwertszeiten zusammengestellt. Auch hier mußten teilweise Originalmeßwerte neu ausgewertet werden.

Tabelle 2.4/II.

Empfohlene Halbwertszeiten.

Isotop	Wert	Methode	Referenzen
^{238}Pu	87.80 ± 0.02 a	nicht angegeben; vermutlich direkte Beobachtung des Zerfalls	a
^{239}Pu	24401.5 ± 40 a	Zählung der α -Teilchen einer bekannten ^{239}Pu -Menge	b
^{240}Pu	6537.8 ± 10.0 a	Kalorimetrie und α -Energie	c
^{241}Pu	15.10 ± 0.14 a	Änderung der Verhältnisse $^{241}\text{Pu}/^{240}\text{Pu}$ und $^{241}\text{Pu}/^{242}\text{Pu}$ in 6,65 Jahren	d
^{242}Pu	$(3.869 \pm 0.016) \times 10^5$ a	Relative (zu ^{239}Pu) spezifische Aktivität	e
^{241}Am	432.9 ± 0.7 a	Kalorimetrie und α -Energie	f

^a W.H. Smith, D.R. Rogers, G.L. Silver: MLM-1691 (1969); Zitat auch in J.D. Nutter, F.A. O'Hara, W.W. Rodenburg: INMM 11th Annual Meeting, Gatlinburg, Tennessee, Mai 1970.

^b Durchschnitt der Werte von Ya. P. Dokuchaev, Atomn. Energ. 6 (1959) 74 (24390 ± 30 a) und T.L. Markin, J. Inorg. Nucl. Chem. 9 (1959) 320 (24413 ± 30 a).

^c F.L. Oetting, Thermodynamics of Nuclear Materials, IAEA, Wien, 4-8 Sept. 1967, p. 55, nach Korrektur auf spezifische Wärmeleistungen der Verunreinigungen.

^d M.J. Cabell, Chemical Nuclear Data, Measurements and Applications, 20-22 Sept. 1971, Canterbury, Kent.

^e C.E. Bemis, J. Halperin, R. Eby, ORNL-4306 (1968) 31; J. Inorg. Nucl. Chem. 31 (1969) 599.

^f F.L. Oetting, Thermodynamics of Nuclear Materials, IAEA, Wien, 4-8 Sept. 1967, p. 55, nach Korrektur auf spezifische Wärmeleistungen der Verunreinigungen.

2.5 Bestimmung der axialen Homogenität von Brennstäben

C. Weitkamp

Von der Firma Gelsenberg AG hergestellte einvibrierte Brennstäbe sollten auf die axiale Verteilung des Plutoniumoxids im Stab untersucht werden. Weil Uran und Plutonium erst als fertiges Oxid in unterschiedlichen Körnungen gemischt worden waren, bestand das Bedürfnis sicherzustellen, daß nicht beim Füllen oder beim Vibrieren eine gewisse Entmischung eingetreten war.

Zur Messung der Plutoniumverteilung wurde die 400 keV-Eigengammastrahlung des ^{239}Pu ausgenutzt. Weil für die Messung nur wenige Stunden zur Verfügung standen, wurde eine Meßapparatur improvisiert, wie sie in Abb. 2.5/1 schematisch wiedergegeben ist. Der zu messende Stab wurde in einem Cadmiumrohr, das die intensive niederenergetische Röntgen- und γ -Strahlung absorbiert, vor einem Schlitz vorbeigeschoben, der die γ -Strahlung des Plutoniums aus einem kurzen Stababschnitt auf einen α -stabilisierten NaJ(Tl)-Detektor kollimiert.

Dabei wurden zwei verschiedene geometrische Anordnungen benutzt, von denen die erste (Geometrie A) ein 8,5 mm langes Stück des Stabes, die zweite (Geometrie B) ein 5,5 mm langes Stück Stab freigeben. Die entsprechenden Filterfunktionen sind in Abb. 2.5/1 ebenfalls wiedergegeben. Verwendet wurde bei der Messung in Geometrie A nur der Teil des Spektrums, der den komplexen ^{239}Pu -Peak um 400 keV enthält; weil in Geometrie B nur ein kleiner Teil des Detektors ausgeleuchtet wird, wurde hier zur Verkürzung der Zählzeit der ganze Bereich zwischen etwa 35 keV und 500 keV ausgenutzt. Dabei entsteht ein Fehler durch den Beitrag des ^{235}U aus der Probe. Daß dieser Fehler unbedeutend ist, erkennt man anhand der Darstellung der Spektren zweier Stäbchen mit Brennstoffpellets von 8 mm Durchmesser und 30 mm Länge, die Uranoxid mit einem ^{235}U -Anteil von 8,3 g und Plutoniumoxid mit einem ^{239}Pu -Anteil von ebenfalls 8,3 g enthalten, wenn man berücksichtigt, daß das $^{235}\text{U} : ^{239}\text{Pu}$ -Verhältnis der Gelsenberg-Stäbe zwischen etwa 0,07 und 0,30 lag.

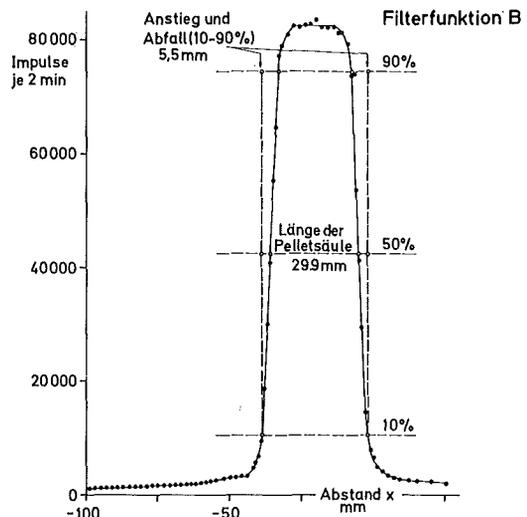
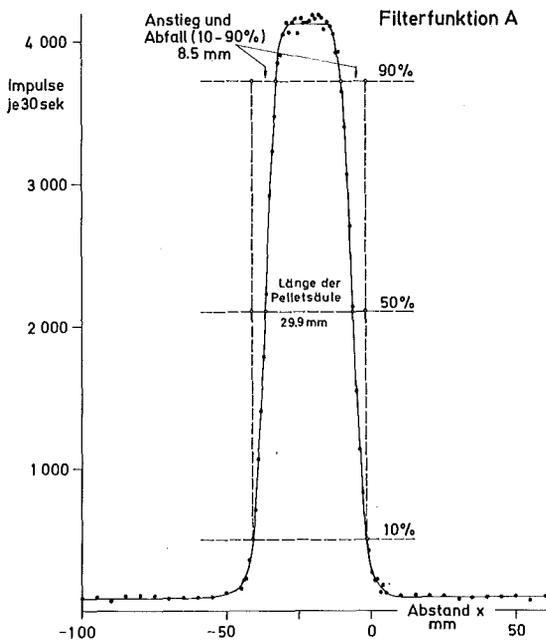
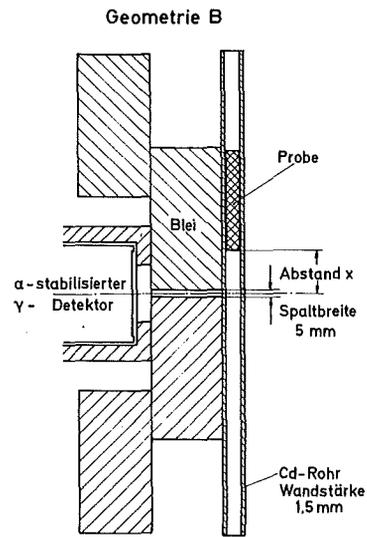
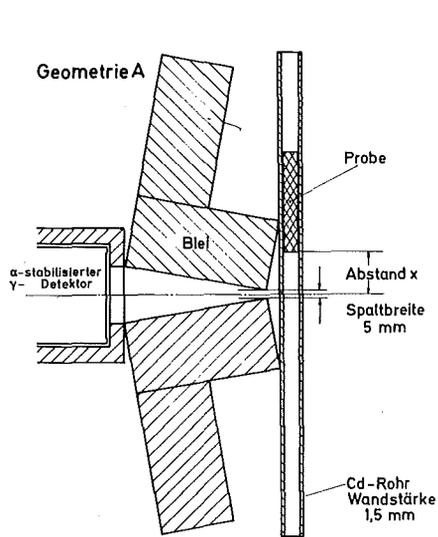
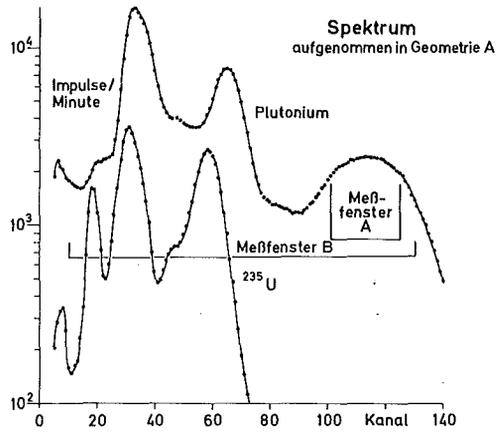


Abb. 2.5/1.

Zur Messung der axialen Homogenität von Brennstäben.

Die Stäbe waren vorher mittels photometrischer Messung der Transmission von γ -Strahlung aus einer ^{192}Ir -Quelle untersucht worden. Die Ergebnisse der beiden Messungen stimmen i. allg. gut überein. Daraus folgt, daß eine Entmischung des Urans und des Plutoniums in den Stäben nicht eingetreten war. Weil die Stäbe den Anforderungen der Benutzer trotz teilweise beträchtlicher Schwankungen der axialen Dichte entsprachen, wurden aber auch einige Diskrepanzen zwischen der Durchstrahlungs- und der Emissionsmessung nicht aufgeklärt.

Ein Beispiel für eine solche Diskrepanz zeigt Abb. 2.5/2, in der γ -Zählrate und Filmschwärzung als Funktion der axialen Position in einem Stab aufgetragen sind. Man erkennt deutlich die geringere Dichte in der Mitte des Stabes, deren Ursache darin liegt, daß der Stab zunächst nur halb gefüllt, dann vibriert, dann ganz gefüllt und erneut vibriert wurde, - ein Verfahren, das hinsichtlich der axialen Dichteverteilung offensichtlich noch verbesserungsfähig ist. Ungeklärt hingegen bleiben der Grund dafür, daß die Minima der Dichteverteilung nach den beiden Messungen um etwa 7 mm gegeneinander verschoben sind, und der scheinbare Dichteabfall nach beiden Enden, den die Durchstrahlungsmessung zeigt und der sich bei der Emissionsmessung nicht reproduzieren läßt. Der endliche Abstand der Quelle vom Objekt müßte bei der Durchstrahlungsmessung die Enden des Stabes sogar um etwa 2,2 % dichter erscheinen lassen, als sie wirklich sind.

Die kurze zur Verfügung stehende Meßzeit, die Tatsache, daß die beiden Arten Untersuchungen in verschiedenen Labors durchgeführt wurden, das Fehlen einer Möglichkeit zur zerstörenden Untersuchung einiger Stäbe und der improvisierte Aufbau der Emissionsmessung lassen einen wirklichen Vergleich der beiden Verfahren anhand der beschriebenen Messungen nicht zu. Trotzdem sollen in Tabelle 2.5/I die wichtigsten Eigenschaften der beiden Meßverfahren einander gegenübergestellt werden.

Tabelle 2.5/I.

Vergleich zweier Verfahren zur Bestimmung der axialen Brennstoffdichte in Stäben.

	Durchstrahlungsmessung mit ortsfester Quelle und Photomatrix eines Filmstreifens	Emissionsmessung mit stabilisiertem NaJ(Tl)-Detektor
Meßbare Größe	Massenbelegung ($U_{\text{total}} + Pu_{\text{total}}$)	Isotopenverteilung (hier ^{239}Pu)
Ortsauflösung	vergleichbar	
Meßzeit	kurz (Belichtungszeit 1,5 Minuten)	lang (Meßzeit pro Punkt 0,1-1 Minute)
Verfügbarkeit der Ergebnisse	erst nach Entwickeln und Photometrieren des Films	sofort nach Beendigung des Scans
Empfindlichkeit	gut	mäßig infolge Selbstabschirmung
Reproduzierbarkeit	mäßig	gut bei Verwendung stabilisierter Detektoren
Eichbarkeit absolut	nein	ja

Die Tabelle zeigt, daß sich die beiden Verfahren ergänzen, weil sie verschiedene Meßgrößen zu bestimmen gestatten. Während die Durchstrahlungseinrichtung praktisch ortsfest ist, ist die Apparatur zur Emissionsmessung handlich und tragbar. Für längere Stäbe erfordern beide Anlagen eine Vorrichtung zur mechanischen Bewegung des Stabes oder der Meß- bzw. Meß- und Bestrahlungseinrichtung. Die Anlage zur Emissionsmessung eignet sich außerdem auch für die Bestimmung der Gesamtmenge Spaltstoff, wenn man Selbstabschirmungseffekte geeignet berücksichtigt. Obwohl die Meßbedingungen für die Emissionsmeßapparatur hinsichtlich Reproduzierbarkeit, Stabilität usw. nicht ideal waren, sind die Zählraten der

Gesamtmenge Plutonium gut proportional, wenn man den Effekt der teilweise sehr unterschiedlichen Dichten nur aufgrund des Stabgewichts korrigiert (Abb. 2.5/3). Für Dichten zwischen $4,4$ und $8,9 \text{ g/cm}^3$ ergaben sich dabei Selbstabschirmungsfaktoren (Zahl der emittierten / Zahl der nicht im Brennstoff absorbierten oder inelastisch gestreuten γ -Quanten) zwischen etwa $1,5$ und $2,1$. Warum die beiden Stäbe mit $13,9$ und $15,3 \text{ g}$ Plutonium signifikant von der eingezeichneten geraden Linie abweichen - die statistischen Fehler entsprechen der Größe der eingezeichneten Punkte - konnte aufgrund der kurzen Verfügbarkeit der Stäbe nicht geklärt werden.

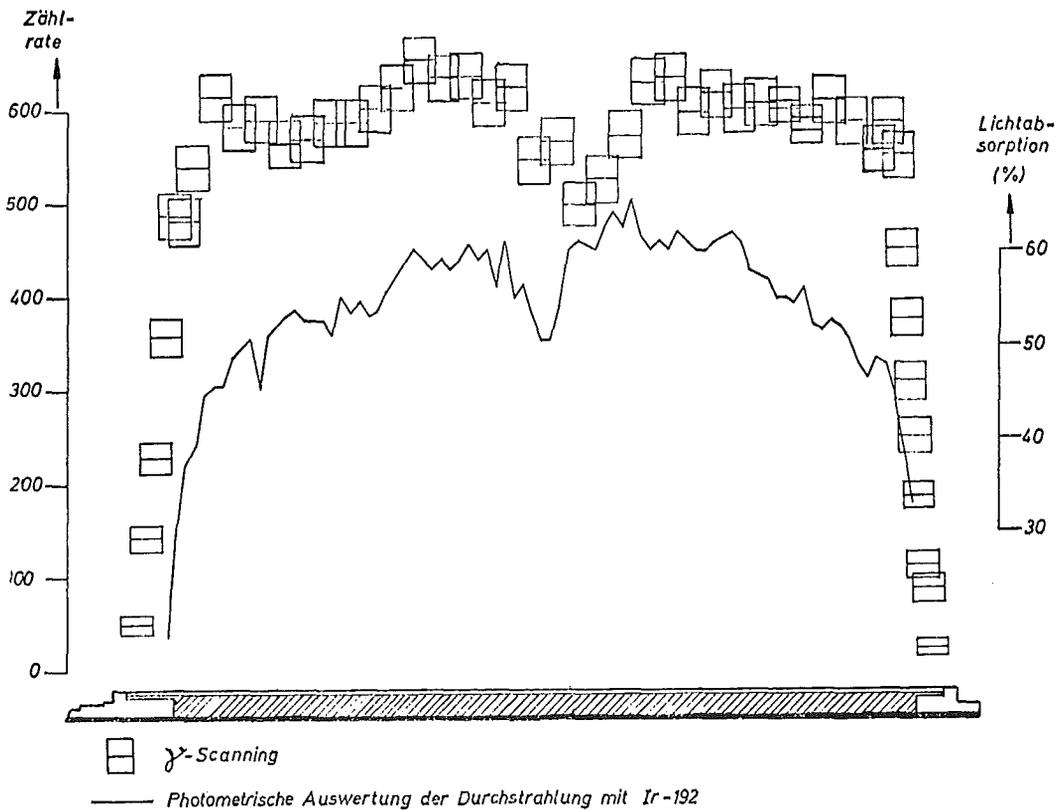


Abb. 2.5/2.

Ergebnis der Dichtemessung mittels Durchstrahlung (durchgezogene Linie) und der Bestimmung der Plutoniumkonzentration (Kästchen) eines einviertelten Brennstabes. Die Breite der Kästchen entspricht der Steilheit der Filterfunktion, die Höhe dem doppelten statistischen Fehler.

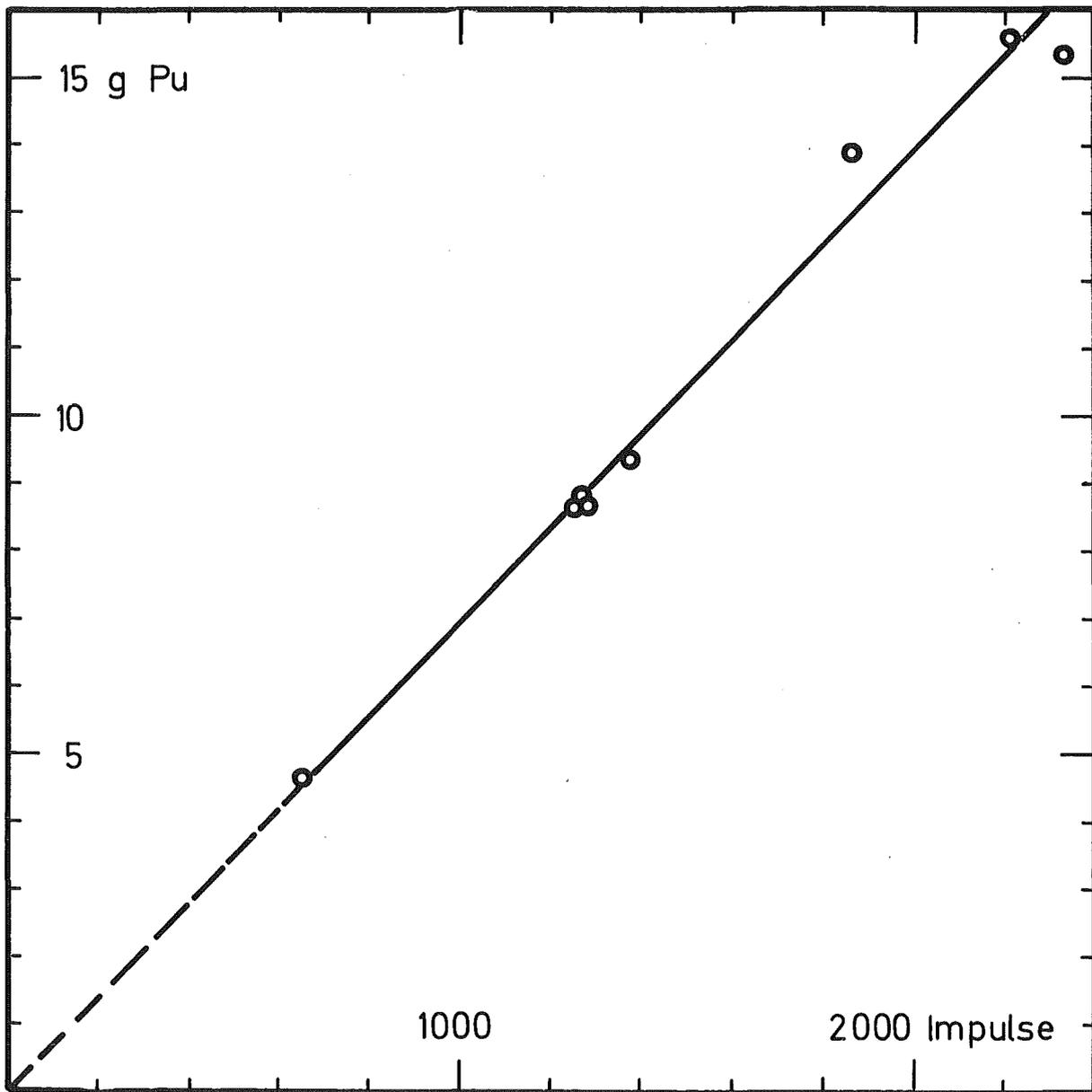


Abb.2.5/3.

Zusammenhang zwischen Plutoniummenge und γ -Zählrate, die aufgrund des Stabgewichts auf Selbstabschirmung korrigiert wurde.

2.6 Entwicklungen zur Aufnahme und Reduktion von Meßdaten

P. Matussek, R. Kuhn

2.6.1 Computerintegriertes nukleares Zähler-Timer-System

Die mannigfachen Zählprobleme, die bei der Entwicklung indirekter Methoden anfallen, machen oftmals neben der eigentlichen Meßdatenaufnahme eine gleichzeitige oder unmittelbar anschließende Datenreduktion und -auswertung nötig. Dazu wird normalerweise das Zählersystem über ein spezielles Interface (z.B. CAMAC) mit einem Kleinrechner gekoppelt.

Als Alternative dazu wurde ein computerintegriertes System entwickelt, das im wesentlichen nur aus dem Kleinrechner besteht. In fast allen Kleinrechnern sind 5 - 10 Leerpositionen zur Aufnahme von Eingabe/Ausgabe-Controllern vorgesehen. Diese Leerstellen nehmen in dem neuentwickelten System die Zähler auf, die damit direkt an den Eingabe/Ausgabe-Unibus des Rechners angeschlossen sind und vom Rechner wie Controller angesprochen und bedient werden können. Sog. Data Highways und Interface entfallen; die Zähler sind physikalisch, elektronisch und versorgungsmäßig voll in den Rechner integriert.

Solche integrierten Systeme zeichnen sich durch Kompaktheit und hohe Betriebssicherheit - Überwachung der Versorgungsspannungen, Restart des Programms durch den Rechner nach Netzspannungsausfall - aus und werden daher vielfach in der Prozeßsteuerung eingesetzt. Das neue System erweitert den Einsatz von computerintegrierten Zählern auf den Bereich der nuklearen Meßtechnik.

Die Zähler sind modular auf Steckkarten aufgebaut, je 8 voreinstzbare Zähler auf einer Karte. Die Kapazität beträgt 10^9 Impulse/Zähler. Jeder Zähler besitzt einen schnellen Koinzidenzeingang, jede Karte ein gemeinsames Gate. Das System kann bis zu 8 Karten, d.h. 64 Zähler aufnehmen. Zwei Zähler sind als Zeitgeber mit einer Quarzuhr ausgeführt. Die Grenzfrequenz der Zähler ist ~ 40 MHz, die Schwellen für die Eingangsimpulse sind im Bereich von -10 V bis + 10 V kontinuierlich verstellbar. Die Flexibilität des Systems



Abb. 2.6/1.

Computerintegriertes Zähler-Timer-System.

ist sehr groß, da fast alle Steuerfunktionen programmiert, d.h. nicht fest verdrahtet sind und somit bei Bedarf leicht abgeändert werden können.

Die Steuerung des Systems kann erfolgen über die Rechner-tastatur, über Teletype oder über ein kompaktes Bedienungs-feld mit 18 Multiswitches zur Eingabe von Meßparametern (Meßzeit, Nummer des Meßprogramms, Probennummer usw.). Die Ausgabe erfolgt wahlweise oder auch kombiniert über eine 10-stellige Digital-anzeige, Teletype oder einen Kolonnendrucker.

Das computerintegrierte Zähler-Timer-System wurde in Zusammen-arbeit mit der Fa. Dr. Ing. Seufert GmbH entwickelt und befindet sich in der Testphase. Abb. 2.6/1 zeigt eine Photographie des Systems.

2.6.2. Spektrometer-Automatisierung

Bei der fortschreitenden Entwicklung zerstörungsfreier Meß-instrumente sind größere Einfachheit und höherer Automatisierungs-grad die vorherrschenden Trends. Um Erfahrung mit einem auto-matisierten γ -Spektrometer zu sammeln, wurde ein System, mit dem gegenwärtig Neutroneneinfang-Gammastrahlung spektroskopiert wird, auf vollautomatische Aufnahme der Daten auf Magnetband (9-Spur-Band, 800 bit/inch, IBM-Standard) umgerüstet. Die Datenaus-gabe kann extern gesteuert werden oder in vorwählbaren Zeit-abständen erfolgen. Zur Identifizierung der Meßdaten dient ein Schlüsselwort von 12 x 8 bit, das jeweils vor den Daten auf das Band geschrieben wird. Zur Zeit sind nur 4 BCD-Zahlen als Code (z.B. Datum oder Probennummer) implementiert. Die Blockung der Daten ist variabel, d.h. die Länge der Datenblöcke auf Band kann mit 64×2^n ($n = 1, \dots, 8$) verändert werden, so daß die Meß-daten auch an Kleinrechnern mit beschränktem Puffer verarbeitet werden können.

2.6.3. Graphisch-Interaktive Auswertung von γ -Spektren an einem Großrechner

Die quantitative Bestimmung von Energie und Intensität von γ -Strahlung erfolgt i.a. in der Weise, daß mit Hilfe eines geeigneten Computerprogramms eine Soll-Kurve so an ein gemessenes γ -Spektrum angepaßt wird, daß die Summe der Abweichungsquadrate ein Minimum annimmt. Bei sehr komplexen γ -Spektren, wie sie zum Beispiel bei der Bestrahlung spaltbarer Kerne mit Neutronen registriert werden, muß die Zahl und Größe der einzugebenden Parameter iterativ durch Vergleich mit der Plotausgabe des Fits bestimmt werden. Dieses Verfahren ist sehr zeitaufwendig.

Es wurde daher für die IBM 370/165 ein Programmsystem entwickelt, das es gestattet, die gesamte Auswertung der γ -Spektren am Bildschirm der IBM 2250 "on-line" durchzuführen und zu überwachen sowie die Parameter über Lightpen und/oder die Tastatur der 2250 einzugeben. Ein Fit ist in der Regel erst nach mehreren Versuchen voll befriedigend, weil die Zahl der Linien, die in einer komplexen Struktur enthalten sind, und hinreichend gute Ausgangsnäherungen für die Linienenergien, für die Form des Untergrundes usw. erst nach einigen Versuchen richtig angegeben werden können. Ein mißlungener Fit kann jetzt sofort mit geänderten Parametern wiederholt werden.

Das Programm umfaßt u.a.:

- ein Korrekturprogramm KØRR zur Korrektur von Meßfehlern oder Fehlern des Datenträgers (z.B. Lochstreifen);
- ein Kompatibilisierungsprogramm KØMP4K, das es gestattet, für alle Messungen eine einheitliche Kanal-Energie-Relation herzustellen;
- ein Additions- und Subtraktionsprogramm DISSUB zur geeigneten Aufbereitung von Meßreihen;
- ein Eichprogramm DISFIT zur Bestimmung der Sollwerte für die Peakform und zur Bestimmung der Kanal-Energie-Beziehung aus den gemessenen Spektren;
- ein Separationsprogramm DISSEP zur Gewinnung "reiner" Spektren aus mehreren Messungen unter verschiedenen Bedingungen (Matrixinversionsverfahren);

- ein Fitprogramm DIS15P zur gleichzeitigen Bestimmung von Energie und Intensität von 15 γ -Peaks und des Untergrundes durch Least-Squares-Anpassung an modifizierte Gaußfunktionen.

Die einzelnen Programmteile sind beliebig kombinierbar. Eine rationelle Auswertung komplexer γ -Spektren wird durch ein solches Programmsystem überhaupt erst möglich.

2.7 Bestimmung von ^{235}U und ^{232}Th in HTR-Kugel-Brennelementen

W. Krappel, D. Stegemann, R. Eberle, M. Zeller,
Institut für Kerntechnik, Technische Universität Hannover

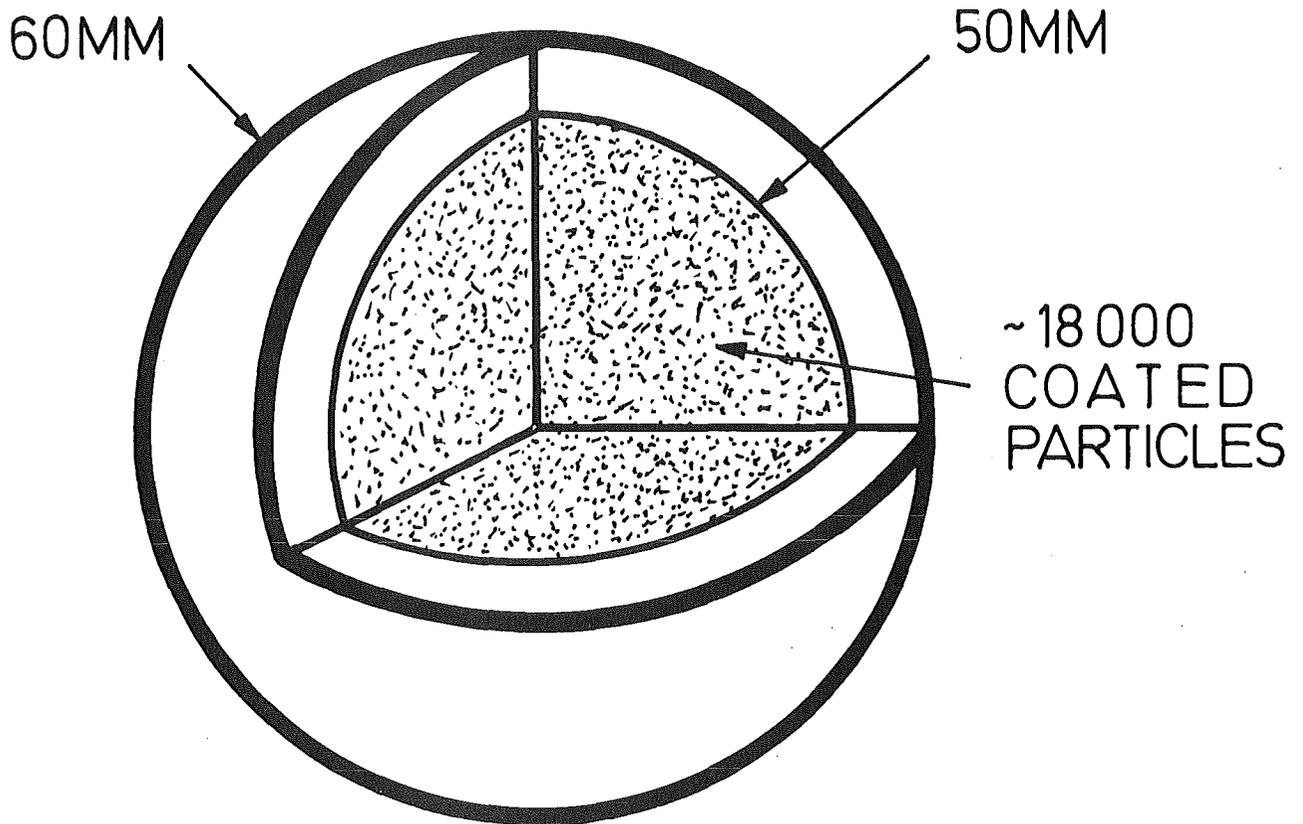
Es gibt im Augenblick drei Verfahren, mit denen nach den Methoden der nuklearen Meßtechnik eine zerstörungsfreie Bestimmung von ^{235}U und Thorium in Kugel-Brennelementen durchgeführt wird. Bei diesen Elementen handelt es sich um kugelförmige Brennelemente des AVR-Versuchsreaktors und des 300 MWe-THTR-Kernkraftwerkes in Uentrop, für das die Brennelementproduktion in Kürze anläuft.

Das erste Verfahren beruht auf der Messung verzögerter Neutronen, wobei zur Erzeugung der Kernspaltungen eine ^{252}Cf -Quelle verwendet wird. Mit diesem Verfahren wird ^{235}U nachgewiesen.

Das zweite Verfahren beruht ebenfalls auf der Messung verzögerter Neutronen. Jedoch wird als Neutronenquelle zur Erzeugung der Kernspaltungen ein gepulster 14-MeV-Neutronengenerator verwendet, und je nach Wahl des Neutronenmoderators wird entweder ^{235}U oder Thorium in den Kugelbrennelementen nachgewiesen.

Das dritte Verfahren - und über dieses Verfahren wird hier berichtet - ist ein gamma-spektrometrisches Verfahren. Es beruht auf der Messung der Gamma-Eigenstrahlung aufgrund der natürlichen Radioaktivität von ^{235}U und Thorium. Dieses Meßverfahren liefert bei einer Meßzeit von ca. 3 Minuten gleichzeitig die Menge an ^{235}U und Thorium mit einer Genauigkeit von etwa 1 %, relativ zur Spaltstoffmenge eines Standardbrennelements.

NATÜRLICHE
GAMMA
STRAHLUNG
(keV) { ^{235}U : 144, 163, 186
 ^{232}Th : 238, 582, 911, 2614



GRAPHIT - KUGEL

~ 1g	^{235}U	193g	GRAPHIT
~ 5g	^{232}Th	0,07g	^{238}U

Abb. 2.7/1.

Kugelbrennelement eines HTR-Reaktors.

Die beiden zuletzt genannten Meßverfahren wurden am Institut für Kerntechnik der Technischen Universität Hannover im Rahmen des Forschungsvorhabens Spaltstoffflußkontrolle entwickelt.

Der prinzipielle Aufbau und die Zusammensetzung eines HTR-Brennelements (Typ AVR) ist in Abb. 2.7/1 dargestellt. Das Kugelbrennelement besteht im wesentlichen aus Graphit und besitzt einen Außendurchmesser von 60 mm. Es ist in 2 Zonen eingeteilt, nämlich

- die äußere brennstofffreie Zone mit einer Dicke von 5 mm, und
- die innere Brennstoffzone von 50 mm Durchmesser.

Die Brennstoffzone enthält Thorium und hochangereichertes (90-93 %) Uran in Form von beschichteten Brennstoffteilchen, deren Anzahl bei einem AVR-Brennelement bei ca. 18 000 und bei einem THTR-Brennelement bei ca. 33 000 liegt. Die Zusammensetzung der beiden Kugelbrennelemente ist in Tabelle 2.7/I angegeben. Grob gesehen unterscheidet sich ein THTR-Brennelement von einem AVR-Brennelement durch den

Tabelle 2.7/I.

Zusammensetzung von zwei typischen Hochtemperaturreaktor-Brennelementen.

	AVR-Brennelement	THTR-Brennelement
^{235}U	1 g	0,96 g
^{238}U	0,07 g	0,07 g
Thorium	5 g	10,2 g
Kohlenstoff	193 g	192 g

doppelten Thoriumgehalt.

In meßtechnischer Hinsicht stellt ein Kugelbrennelement eine Gamma-Strahlungsquelle mit räumlich verteilten Punktquellen in Form der beschichteten Th-U-Teilchen dar, die, wie Röntgenaufnahmen (85 kV) von AVR-Brennelementen gezeigt haben, mehrere typische Arten Inhomogenität der Brennstoffzone aufweisen können wie z.B.

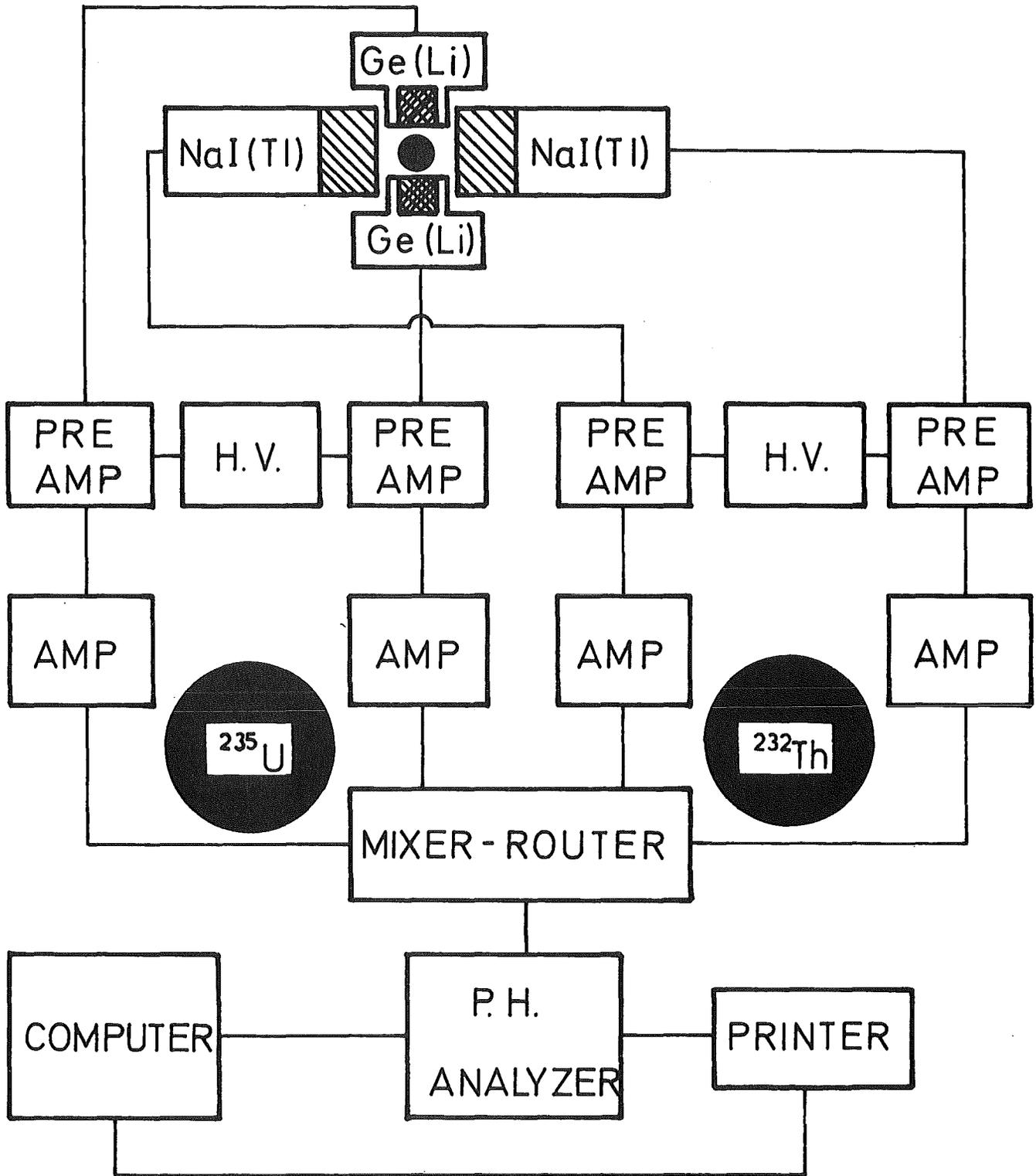


Abb. 2.7/2.

Blockschaltbild der HTR-Kugelbrennelement-Meßapparatur.

- Dichteschwankungen in der Verteilung der beschichteten Teilchen am Rand der Brennstoffzone,
- partikelfreie Stellen in der Brennstoffzone,
- ovale Form der Brennstoffzone,
- Brennstoffzone nicht konzentrisch zur Brennelement-Oberfläche.

Die Bestimmung von ^{235}U und Thorium beruht auf der Messung der Gamma-Eigenstrahlung dieser beiden Elemente (bzw. deren Zerfallsprodukte). Während die Energie der Gammastrahlung von ^{235}U unter ca. 210 keV liegt, reicht die Energie der Gammastrahlung, die von ^{232}Th und dessen Zerfallsprodukten ausgeht, bis 2,6 MeV.

Die Menge ^{235}U wird aus der Intensität der Gammastrahlung mit der Energie von 185,7 keV bestimmt. Diese Strahlung wird mit zwei Ge(Li)-Detektoren gemessen; die Intensität erhält man aus den beiden entsprechenden Impulshöhenspektren.

Die Menge an Thorium wird durch die Gamma-Strahlung, die im Energiebereich zwischen 450 keV und 2,6 MeV liegt, bestimmt. Diese Strahlung stammt nicht nur aus dem Zerfall von ^{232}Th , sondern auch von dessen Zerfallsprodukten wie z.B. ^{228}Ac und den kurzlebigen Zerfallsprodukten von ^{228}Th , das mit einem Anteil von ca. 0,0001 ppm vorhanden ist. Die Gammastrahlung der ^{232}Th -Zerfallsreihe wird mit zwei großvolumigen NaJ(Tl)-Detektoren gemessen. Die Auswertung erfolgt ebenfalls über die beiden dazugehörigen Impulshöhenspektren.

Die Abb. 2.7/2. zeigt das Blockschaltbild der Meßapparatur. Das Kugelbrennelement ist von den vier Detektoren dicht umgeben, die jeweils paarweise gegenüberliegend angeordnet sind. Die Signale der vier Detektoren werden den Vierteln des Impulshöhenanalysators über ein Verstärker- und Mixer-Router-System zugeführt.

Die Spektrums-Integration erfolgt analysator-intern, und die Meßwerte werden auf einem Drucker ausgegeben. Der Anschluß der Anlage an einen Computer, der die Steuerung und Datenverarbeitung der Brennelementmessung übernimmt, ist vorgesehen.

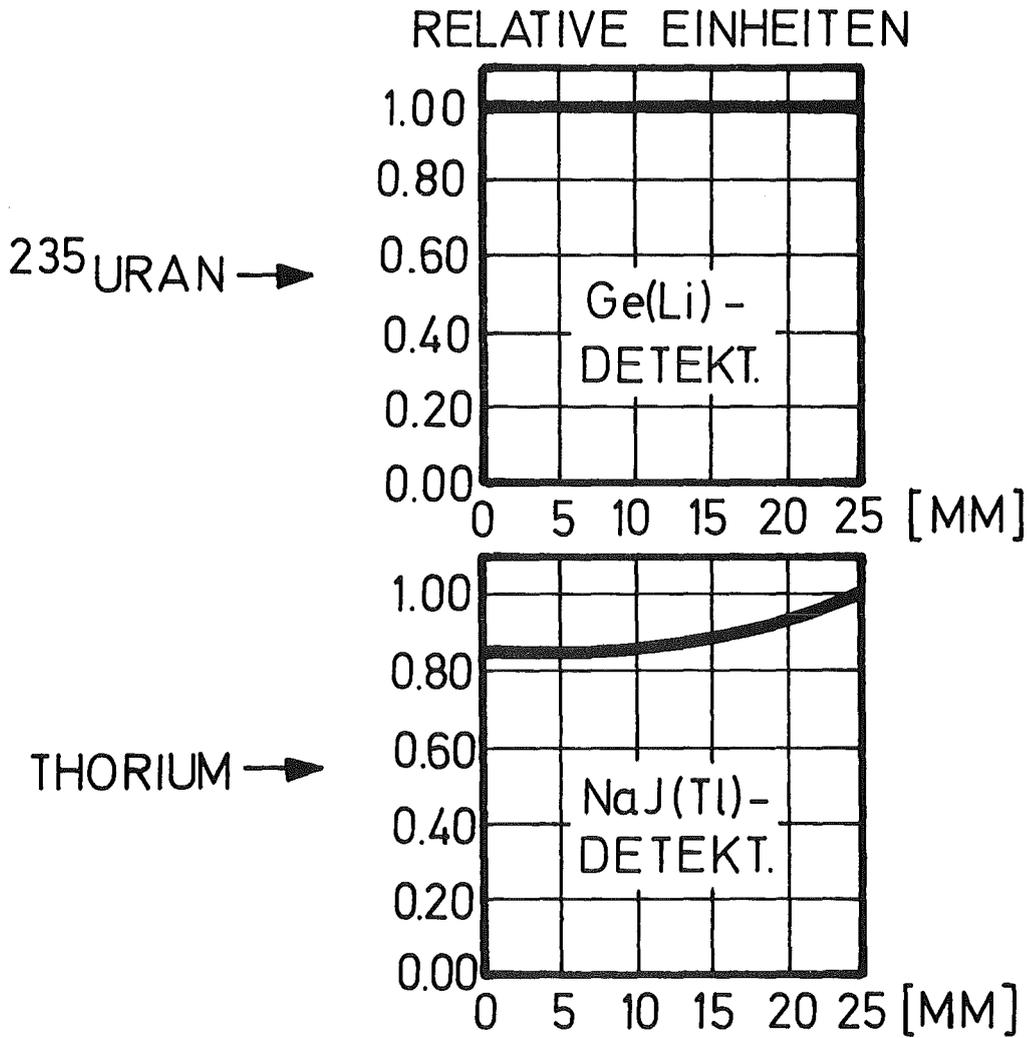
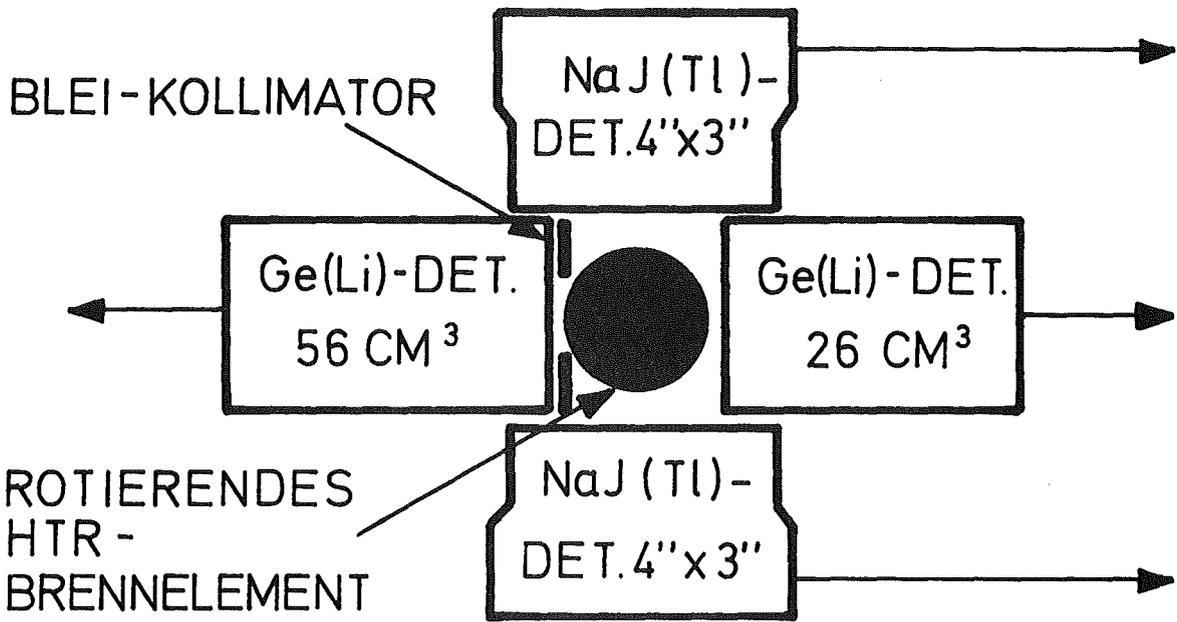


Abb. 2.7/3.

Radiale Nachweiswahrscheinlichkeit von ²³⁵U und Thorium in HTR-Brennelementen.

Die besondere Eigenschaft der Meßapparatur liegt in der geometrischen Anordnung der beiden Ge(Li)-Detektoren und dem Kugelbrennelement. Durch die beiden folgenden Maßnahmen wird die Verfälschung des Meßergebnisses für ^{235}U durch Inhomogenitäten innerhalb der Brennstoffzone weitgehend vermieden:

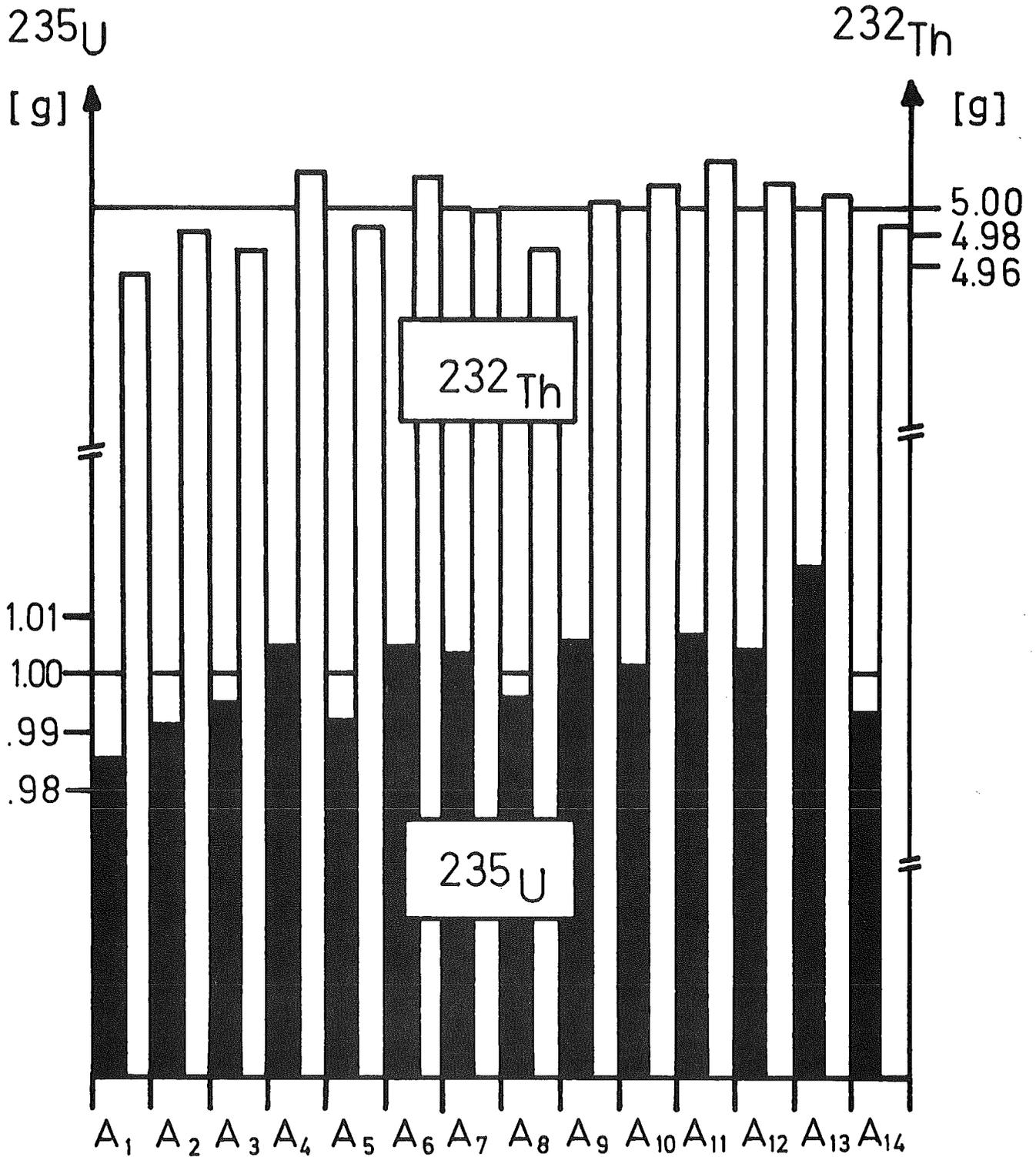
- Kreisförmige Blende aus Blei vor dem größeren Ge(Li)-Detektor, und
- Rotation des Kugelbrennelements um die horizontale und vertikale Achse.

Dadurch ergibt sich eine konstante Nachweiswahrscheinlichkeit für ^{235}U über die ganze Brennstoffzone (Abb. 2.7/3).

Bei den beiden NaJ(Tl)-Detektoren wurde auf eine ähnliche Pb-Kollimatoranordnung verzichtet. Die radiale Nachweiswahrscheinlichkeit für Thorium in der Brennstoffzone nimmt dadurch von innen nach außen um ca. 15 % zu. Starke Inhomogenitäten können dadurch das Thorium-Meßergebnis verfälschen, was jedoch über das Th : U-Verhältnis korrigiert werden kann. Die Verwendung von Pb-Kollimatoren würde die Zählraten um etwa 70 % verringern.

Abb. 2.7/4 zeigt das Meßergebnis von 14 AVR-Brennelementen, deren Gehalt an ^{235}U und Thorium relativ zu einem Brennelement, das als Standard-Brennelement deklariert wurde, aufgetragen ist. Von diesem Standardelement wird eine ^{235}U - und Thoriummenge von 1,00 Gramm bzw. 5,00 Gramm angenommen.

Bei einer Meßzeit pro Brennelement von 15 Minuten beträgt der statistische Fehler (Standardabweichung 1σ) etwa 0,6 %. Die Meßergebnisse zeigen, daß die Schwermetallabweichungen bezüglich des Standardbrennelements innerhalb von $\pm 1,6\%$ liegen und daß die Schwankungen im Gehalt von ^{235}U und Thorium pro Kugel im Rahmen der Meßgenauigkeit stets dasselbe Vorzeichen haben bis auf das Meßergebnis von Brennelement A 13. Hier ist das Th : U-Verhältnis zu ^{235}U hin verschoben, was durch starke Inhomogenitäten (Röntgenaufnahmen) in der Brennstoffzone begründet ist.



HTR - KUGEL - BRENNELEMENTE (AVR)

Abb. 2.7/4. ^{235}U und ^{232}Th in
Gammaspektrometrische Bestimmung von ^{235}U und ^{232}Th in
HTR-Brennelementen.

Die Genauigkeit dieses Meßverfahrens wird im wesentlichen durch die folgenden Fehlerkomponenten bestimmt:

- 1.) Statistischer Fehler; typische Zählraten der o.a. Meßapparatur sind für das
 - ^{235}U Uran beim AVR-BE 650, beim THTR-BE 500 Impulse/Sekunde,
 - Thorium beim AVR-BE 1150, beim THTR-BE 1800 Impulse/Sekunde;

hierzu gehören auch Fehler bei der Auswertung des Impulshöhenspektrums;

- 2.) γ -Quellstärkeschwankungen aufgrund der unterschiedlichen Größenverteilung der Th-U-Partikeln,
- 3.) Inhomogenität der Brennstoffzone,
- 4.) unterschiedliches Alter des verwendeten Thoriums,
- 5.) unterschiedlicher Kohlenstoffanteil der Brennelemente ($\pm 2\%$),
- 6.) Reproduzierbarkeit der Meßanordnung, begrenzt z.B. durch Drift der Elektronik.

Die Größenordnung dieser Meßfehler ist in Tabelle 2.7/II zusammengefaßt.

Bis jetzt wurden nur Messungen an AVR-Brennelementen durchgeführt. ^{235}U - und Thorium-Bestimmungen von THTR-Brennelementen sind mit einer modifizierten Detektoranordnung für die nächste Zeit vorgesehen.

Tabelle 2.7/II.

Beitrag der verschiedenen Fehlerquellen zum Gesamtfehler der ^{235}U - und Thorium-Bestimmung in AVR-Kugelbrennelementen.

Fehlerquelle	Fehlerbeitrag in %	
	^{235}U	Thorium
Zählstatistik bei 15 Minuten Zählzeit	$\pm 0,15$	$\pm 0,12$
Größenunterschiede der Partikeln $250\mu-425\mu$	$\pm 0,40$	$\pm 0,30$
Inhomogenitäten der Brennstoffzone (10 %)	$\pm 0,30$	$\pm 0,65$
Graphit-Dichte ($\pm 2\%$)	$\pm 0,20$	$\pm 0,17$
Drift der Elektronik (1/2 Kanalbreite)	$\pm 0,14$	$\pm 0,20$
Sonstige Reproduzierbarkeit	$\pm 0,16$	$\pm 0,19$
Mittlere Abweichung zwischen Uran und Thorium $\pm 0,19$		

2.8 Automatisierung eines Neutronengenerators

M. Zeller, R. Eberle, W. Krappel, D. Stegemann

Institut für Kerntechnik, Technische Universität Hannover

Das Institut für Kerntechnik der TU Hannover bearbeitet im Rahmen des Projekts Spaltstoffflußkontrolle die Aufgabe, eine automatische rechnergesteuerte Anlage zu entwickeln und zu erstellen, die den Spaltstoffgehalt in hochangereicherten Brennelementen mit Hilfe der Technik der verzögerten Neutronen zerstörungsfrei zu bestimmen gestattet. Als Quelle für die Spaltungen induzierenden Neutronen wird ein nach dem Cockroft-Walton-Prinzip arbeitender Neutronengenerator benutzt¹⁰. Das Gesamtsystem soll bezüglich nuklearer Meßdatenerfassung und -auswertung und bezüglich Steuerung und Regelung des Neutronengenerators und der sonstigen Hilfseinrichtung voll rechnergesteuert betrieben werden.

In der ersten Phase der Entwicklung wurde der Generator noch von Hand gesteuert, und die Arbeiten zur Automation beschränkten sich auf die nukleare Meßdatenerfassung und -auswertung. Dieser Programmteil ist sehr flexibel aufgebaut und kann leicht an verschiedene Typen Brennelemente angepaßt werden. Bisher wurde der Einsatz für MTR- und THTR-Elemente erfolgreich demonstriert¹¹. Letztere stellen den eigentlichen Testfall dar. Es wurde gezeigt, daß der ²³⁵U-Gehalt dieser Kugelelemente in einer Gesamtzeit von 50 sec auf 3 % Standardabweichung je Einzelelement bestimmt werden kann¹².

Beim rechnergesteuerten Generatorbetrieb, dessen Realisierung in der jetzigen zweiten Entwicklungsphase im Mittelpunkt steht, wird zwischen drei Betriebsphasen unterschieden:

- a) Die Anfahrphase überwacht die Inbetriebnahme der Anlage, prüft die Funktionstüchtigkeit aller Teilsysteme, fährt den Generator schließlich in einen Anfangszustand und übergibt dann die weitere Kontrolle der Betriebsphase.
- b) Die Abschaltphase dient zum Stillsetzen der Anlage durch Abschalten der Teilsysteme in definierter Reihenfolge. Die Initialisierung erfolgt aufgrund eines größeren Defektes oder

auf Wunsch des Operateurs.

- c) Die Betriebsphase übernimmt die eigentliche Generatorregelung. Anhand eines Prozeßmodells wird der Generator in den optimalen stationären Betriebszustand gebracht. Bei Änderung der Sollwerte wird zum entsprechenden stationären Betriebszustand übergegangen.

Hierzu war ein Umbau des Generators erforderlich. Dieser Umbau des Generators erfolgte im wesentlichen unter zwei Gesichtspunkten: Erstens sollte außer dem rechnergesteuerten Betrieb weiterhin Handbetrieb möglich sein mit gegenseitiger Verriegelung der beiden Betriebsarten. Zweitens wurde eine möglichst große Verfügbarkeit des Generators angestrebt, was den Einbau möglichst zuverlässiger Bauteile sowie die Installierung von Zusatzaggregaten erforderte wie z.B. eines geschlossenen Kühlkreislaufs, eines frigengekühlten Baffles zum Zurückhalten von Öldämpfen etc. Das gesamte Generatorsystem ist in Abb. 2.8/1 dargestellt.

Das Steuersystem wurde einschubweise modular aufgebaut, um Änderungen bzw. Erweiterungen möglichst einfach ausführen zu können. Alle Teilsysteme, deren Betriebszustand in der Betriebsphase und in der Abschaltphase geändert werden muß, sind vom Rechner aus steuerbar, während die Teilsysteme, deren Betriebszustand nur während der Anfahrphase geändert werden muß, weiterhin nur von Hand verstellbar sind. Aus Sicherheitsgründen kann das Einschalten der Stromversorgung sowie die Umschaltung von Hand- auf Rechnerbetrieb nur durch den Operateur erfolgen. Der Operateur kann durch Zurückschalten auf Handbetrieb jederzeit die Kontrolle über das Generatorsystem übernehmen. Die Simultananzeige aller erdseitigen digitalen und analogen Meßstellen am Steuerpult ermöglicht ihm einen optimalen Überblick über den aktuellen Betriebszustand der gesamten Anlage. Das vereinfachte Blockschaltbild des Steuer- und Sicherheitssystems wird in Abb. 2.8/2 wiedergegeben.

Die Erfassung aller zur Generatorregelung notwendigen analogen Meßwerte erfordert neben der erdseitigen Analogeingabe zusätzlich den Einbau einer Analogeingabe im Hochspannungsterminal. Beide

Analogeingabesysteme sind völlig identisch aufgebaut, bestehend aus einem Multiplexer, einem Eingangverstärker mit Bereichsumschaltung, einem Spannungs-Frequenz-Umformer mit nachgeschaltetem Zähler als ADC sowie der entsprechenden Ablauf-Steuerung. Die Steuerung der hochspannungsseitigen Analogeingabe sowie die bitserielle Übertragung der verschlüsselten Analogwerte erfolgt über Lichtleiter.

Der Rechner erhält Auskunft über den aktuellen Systemzustand durch Abfrage der statistischen Digitaleingabe, welche sämtliche Schalter- und Ventilstellungen, die Meßbereiche der Analogwertgeber und die Betriebszustände der Zusatzaggregate und des Sicherheitssystems erfaßt.

Änderungen des Systemzustandes, die ein sofortiges Eingreifen des Rechners notwendig machen, wie z.B. Ansprechen eines Grenzwertmelders, lösen über die dynamische Digitaleingabe einen Interrupt aus.

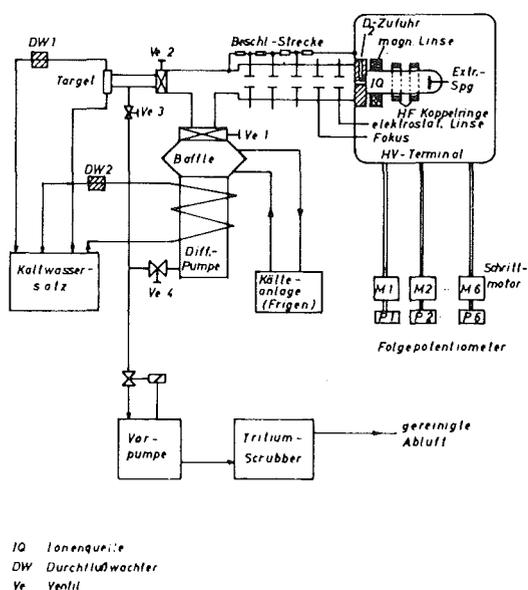


Abb. 2.8/1.

Aufbau des erweiterten Generatorsystems.

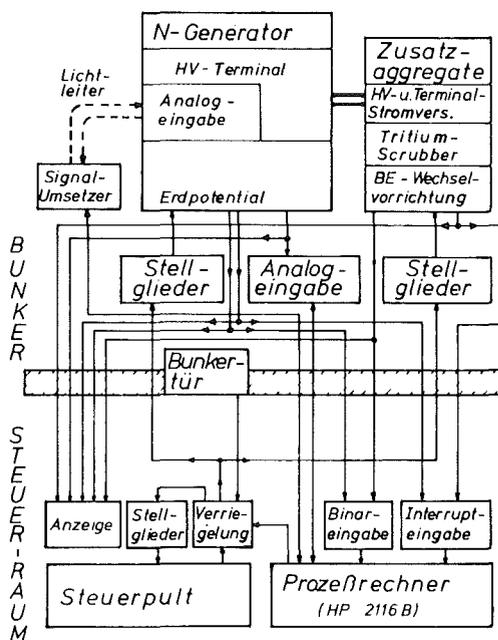


Abb. 2.8/2.

Blockschaltbild der Generator-Regelung.

2.9 Neutronenkoinzidenzmessungen zur Plutoniumbestimmung

K. Böhnel

2.9.1 Verzögerte Koinzidenzen mit Zyklusüberlappung

Das im vorigen Jahresbericht¹ beschriebene neue Gerät zur quantitativen Bestimmung von Plutonium in moderierender Umgebung auf Grund seiner Spontanspaltung wurde einer weiteren Erprobung unterzogen. Dabei wurde insbesondere die Übereinstimmung mit theoretischen Überlegungen geprüft und der Vergleich mit der konventionellen Schaltung durchgeführt.

Im Bereich der Plutoniummengen, der von den vorhandenen Teststäben bestimmt wird, wurde die Proportionalität des Meßsignals zur Plutoniummenge bestätigt (Abb.2.9/1). Die Verbesserung gegenüber der konventionellen Schaltung besteht in einer höheren

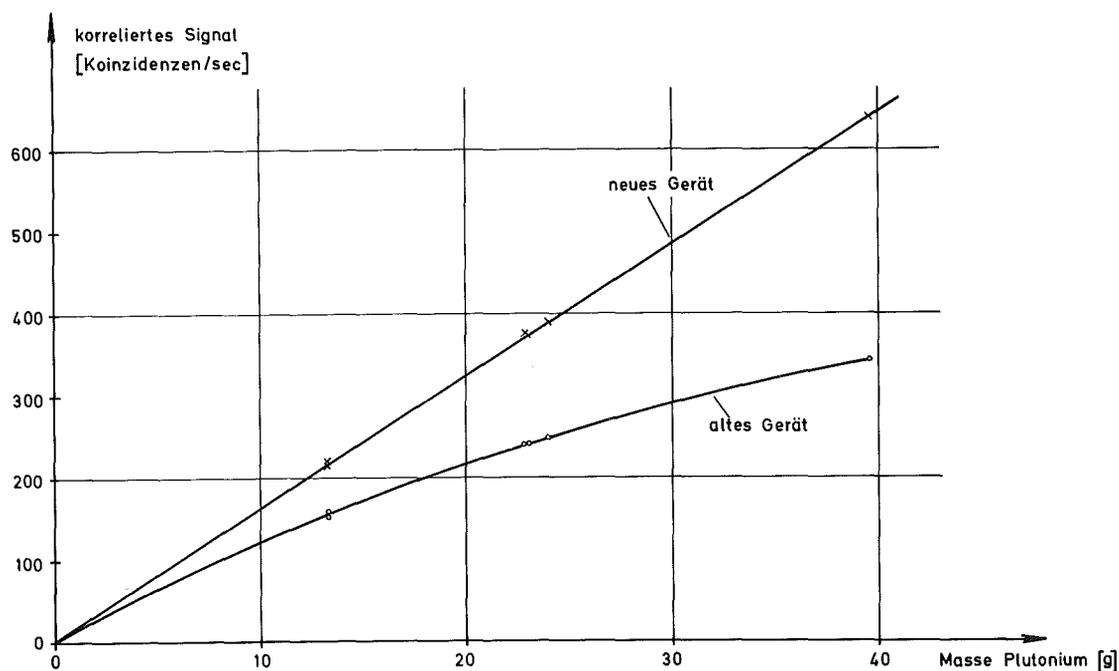


Abb.2.9/1 Eichkurven für Koinzidenzmessungen

Koinzidenzzählrate und deren linearem Verlauf mit der Plutoniummenge. Bei konstanter Spontanspaltrate wurde die Abhängigkeit des korrelierten Signals von einem durch eine AmBe-Quelle verursachten zusätzlichen unkorrelierten Untergrund gemessen (Abb. 2.9/2). Während die Abnahme des Nutzsignals im Falle der konventionellen Schaltung 9% pro 1000 zusätzlicher Impulse beträgt, wird sie durch das neue Prinzip auf 0,6% pro 1000 Impulse herab-

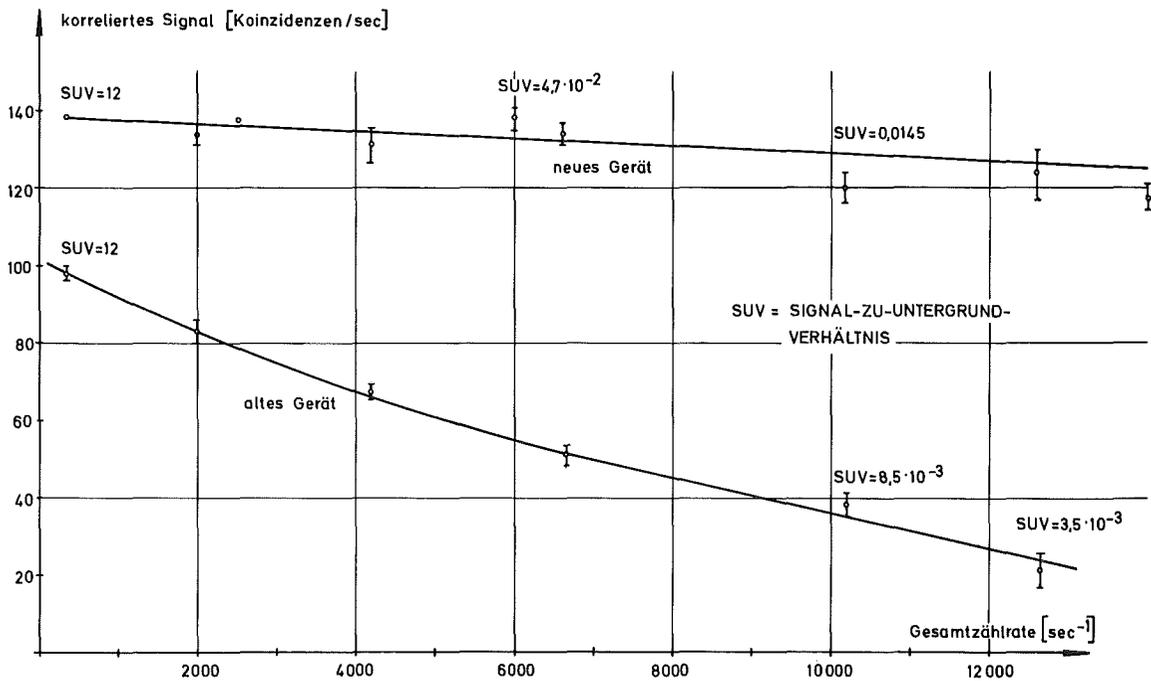


Abb.2.9/2 Abhängigkeit des korrelierten Signals von einer zusätzlichen Neutronenquelle

gesetzt. Mit einer Kaliforniumquelle wurde eine weitere von der Theorie geforderte Eigenschaft nachgewiesen, daß nämlich das korrelierte Signal proportional zum Quadrat der Empfindlichkeit ist. Bei 30000 Impulsen pro Sekunde tritt noch keine Abweichung auf (Abb.2.9/3). Diese Messungen wurden mit 80 µsec Zykluslänge und einer Abfallkonstanten von etwa 10⁴ sec⁻¹ im Polyäthylenmoderator durchgeführt.

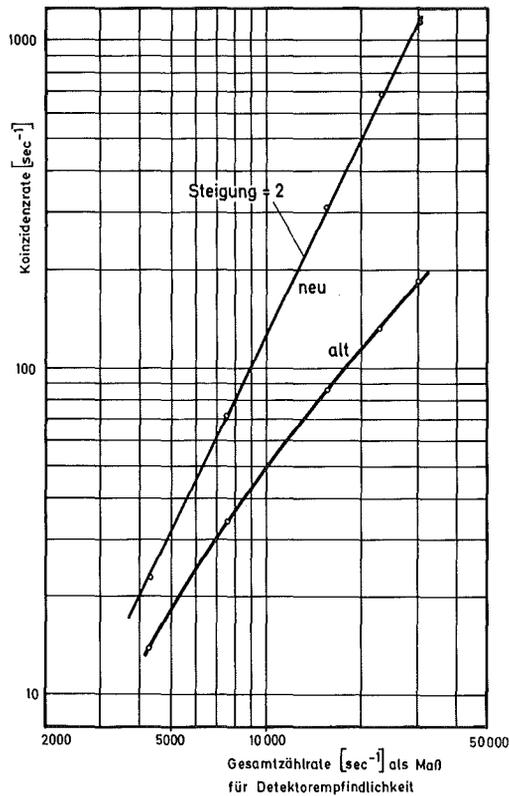


Abb.2.9/3 Abhängigkeit des korrelierten Signals von der Detektorempfindlichkeit

Eine Verbesserung des Geräts wurde durch den Anschluß einer Tischrechenmaschine vom Typ Wang 600 erzielt. Damit ist eine sofortige Datenverarbeitung möglich und ebenso eine Archivierung

2.9.2 Schnelle Koinzidenz

Neben Meßanordnungen, in denen thermalisierte Neutronen nachgewiesen werden, sind auch Systeme zu betrachten, in denen die Neutronen nicht moderiert werden. In diesen Fällen können Detektoren für schnelle Neutronen in Verbindung mit einer Koinzidenzeinheit mit kurzer Koinzidenzzeit verwendet werden. Die kurzen Koinzidenzzeiten verringern den störenden Untergrund der zufälligen Koinzidenzen und sind deshalb langen vorzuziehen. Außerdem lassen sich bei Proben, die keinen Moderator enthalten, die Multiplikationseffekte durch rückgestreute Neutronen verringern. Nachteilig könnte sich die Empfindlichkeit von Szintillatoren gegenüber γ -Strahlung auswirken. Außerdem bestehen

u.U. Schwierigkeiten beim stabilen Betrieb über längere Zeit. Abb.2.9/4 zeigt ein Schema der Anordnung, die zur Messung von Plutonium enthaltenden Brennstäben aufgebaut wurde. In möglichst kompakter Geometrie wird der Stab von drei Szintillatoren des Typs NE 213 umgeben. Die darin von Neutronen- und γ -Strahlen erzeugten Lichtblitze unterscheiden sich durch ihr zeitliches Abklingverhalten. Dies wird in einem Pulsformdiskriminator (Elscint PSD) ausgenutzt, um neben einem schnellen Signal mit der Zeitinformation einen Normimpuls mit der Information zu liefern, ob ein Neutron oder γ vorliegt. Für die folgende Signalverarbeitung wurde eine Koinzidenzeinheit entwickelt, deren Schaltbild ebenfalls in Abb.2.9/4 wiedergegeben ist. Zunächst wird in allen drei Kanälen durch eine Schnell-Langsam-Koinzidenz die Zeitinformation der Neutronennachweise gewonnen. Die nachfolgende Stufe bestimmt dann die Zahl der in den jeweils anderen Kanälen innerhalb kurzer Zeiten (< 100 nsec) folgenden Impulse. Erste Versuche verliefen erfolgversprechend, so daß umfangreiche Tests folgen können. Um auch diesen Versuch automatisch auswerten zu können, wurde ein Interface gebaut, das das Zähler-Timer-System Berthold-Frieseke 227 an den Wang-600-Rechner anschließt.

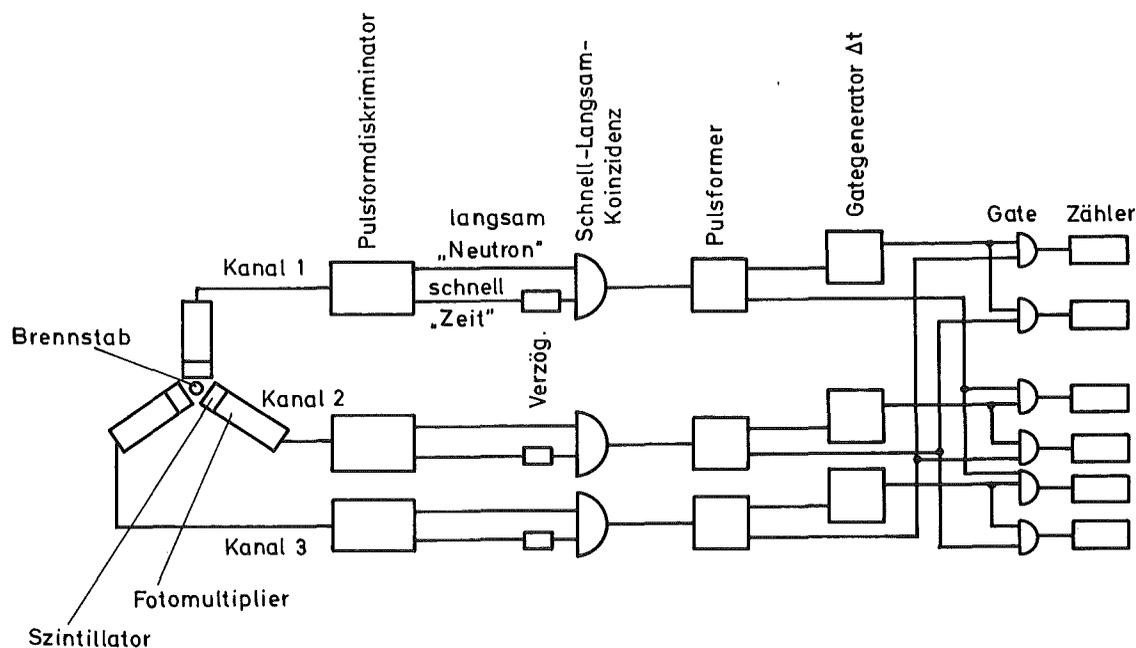


Abb.2.9/4 Blockschaltbild der schnellen Koinzidenzanordnung

2.9.3 Programmentwicklung

Die theoretische Behandlung des Einflusses bestimmter Parameter auf die Meßergebnisse ist oft so verwickelt, daß man selbst mit Näherungen nicht auskommt. Das trifft z.B. für Effekte zu, die durch Totzeiten in Detektoren und Meßelektronik auftreten. Deshalb wurde ein Monte-Carlo-Programm geschrieben, das die Verwendung von verschiedenen Koinzidenzeinheiten unter verschiedenen experimentellen Bedingungen simuliert. Es generiert einen Satz von Nachweiszeiten für ein System mit vorgegebener Neutronenlebensdauer $1/\alpha$, Spaltrate s_f , Verteilung $p(v)$ der Zahl v der prompten Neutronen und poissonverteiletem Untergrund s_p . In einem zweiten Schritt werden Detektorempfindlichkeit ϵ , Detektortotzeit und die Eigenschaften der Koinzidenzlogik eingeschlossen, um die für die Auswertung wichtigen Daten zu berechnen, wie zum Beispiel Zählraten, Koinzidenzraten, Fehler usw. Ein Beispiel ist in Abb.2.9/5 wiedergegeben.

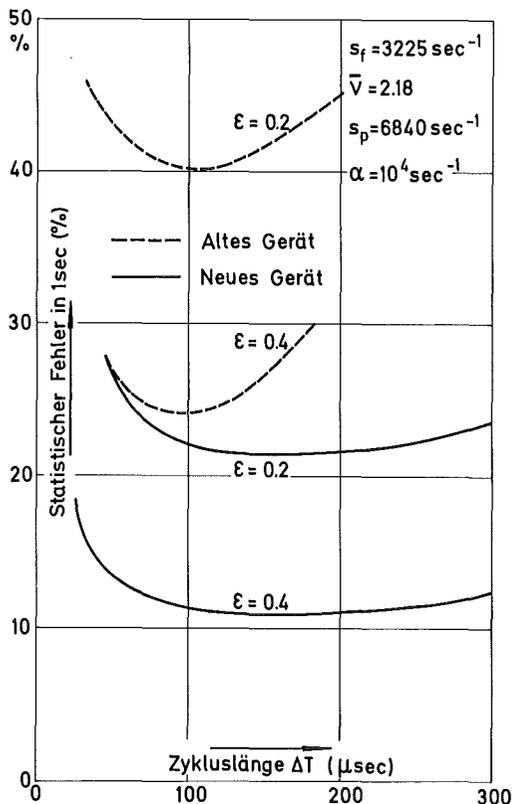


Abb.2.9/5 Abhängigkeit des statistischen Fehlers bei Koinzidenzmessungen von der Zykluslänge (nach Rechnungen)

2.9.4 Bedarf an Nukleardaten für Koinzidenzmessungen

Die Nettokoinzidenzrate C hängt von den Massen m_i der spontan-spaltenden Isotope i gemäß folgender Gleichung ab

$$C = \sum_i m_i \frac{L}{A_i} \frac{\ln 2}{T_{1/2 i}^{SpSp}} \frac{\overline{v_p(v_p-1)}^{(i)}}{2} \cdot I$$

wobei L die Loschmidtzahl, A die Massenzahl des Isotops i und I eine für Instrument und Methode charakteristische Konstante ist, die jedoch auch von Masse und Zusammensetzung der Probe abhängen kann. Die vorkommenden Nuklearkonstanten sind die Halbwertszeit für Spontanspaltung $T_{1/2 i}^{SpSp}$ und der Term $\overline{v_p(v_p-1)}^{(i)}$. Letzterer kann aus der Wahrscheinlichkeitsverteilung $p(v_p)$ gewonnen werden, die angibt, mit welcher Wahrscheinlichkeit v_p prompte Neutronen bei der Spontanspaltung emittiert werden. In den in der Praxis vorkommenden Fällen wird meist der vorhandene Satz von Standards unvollständig sein, d.h. es wird die Zahl der Standards kleiner als die Zahl der Unbekannten in obiger Gleichung sein. In diesem Zusammenhang braucht man die Nuklearkonstanten zu Extra- oder Interpolation. Dabei treten Fälle auf, in denen die Genauigkeit der Nukleardaten und nicht die Kenntnis der Zusammensetzung die Genauigkeit der Rechnung bestimmt. Eine ausführlichere Diskussion ist in Ref.14 zu finden. Man sollte jedoch im Auge behalten, daß andere Faktoren, wie z.B. die Brennstoffverteilung in der Probe, die Messungen oft weit stärker beeinflussen. In diesem Zusammenhang spielt dann die Frage nach den geeigneten Standards eine wesentliche Rolle.

2.9.5 Schnellsplaltung

Für die Behandlung der Spaltquelle ist es unerheblich, ob die Neutronen aus einer oder mehreren Spaltungen stammen, wenn diese nur gleichzeitig stattfinden und korreliert sind. Gleichzeitig bedeutet hier innerhalb einer Zeitspanne, die kurz gegen die mittlere Lebensdauer der Neutronen im System ist. Ereignis-

nisse dieser Art, die wir hier als Superspaltung bezeichnen wollen, entstehen dann, wenn schnelle Spontanspaltneutronen im umgebenden Material eine Spaltung induzieren. Dies kann auch im ^{238}U geschehen, das meist als wesentliche Komponente im Brennstoff enthalten ist. Die in einer Superspaltung vorhandene Spontanspaltung und induzierte Spaltung werden durch die Wahrscheinlichkeiten $p_1(v)$ für die Zahl der emittierten prompten Neutronen beschrieben. Der Index sp stehe für Spontanspaltung, der Index ind für induzierte Spaltung. Ist q die Wahrscheinlichkeit, daß ein Primärneutron eine Spaltung auslöst, so wird die Wahrscheinlichkeit Q_{1v} , daß aus 1 Primärneutron v Neutronen werden, durch die folgende Beziehung beschrieben:

$$Q_{1v} = q \cdot p_{\text{ind}}(v) + (1-q) \cdot \delta_{1v}$$

Die Wahrscheinlichkeit Q_{kv} , daß statt k Primärneutronen v Neutronen den Brennstoff verlassen, setzt sich aus allen Wahrscheinlichkeiten zusammen, daß ein Primärneutron μ_1 Neutronen erzeugt und daß aus den anderen Primärneutronen $v - \mu_1$ Neutronen werden

$$\begin{aligned}
 Q_{Rv} &= \sum_{\mu_1=0}^v Q_{1\mu_1} \cdot Q_{(k-1)(v-\mu_1)} \\
 &= \sum_{\mu_1=0}^v \sum_{\mu_2=0}^{v-\mu_1} \dots \sum_{\mu_{k-1}=0}^{v-\mu_1-\mu_2-\dots-\mu_{k-2}} Q_{1\mu_1} \dots Q_{1\mu_{k-1}} \cdot Q_{1(v-\mu_1-\dots-\mu_{k-1})}
 \end{aligned}$$

Daraus berechnet sich die Verteilung $P(v)$ der bei einer Superspaltung entstehenden Neutronen

$$P(v) = \sum_{k=0}^{k_{\text{max}}} p_{\text{sp}}(k) \cdot Q_{kv}$$

Geht man von $\bar{v}_{\text{sp}} = 2.21$ aus (für ^{240}Pu nach Ref.15) und verwendet die von Terrell¹⁶ angegebene Gaußverteilung für $p(v)$, so ergibt die numerische Auswertung für die Zahl der Paare in Abhängig-

keit von der Schnellspaltwahrscheinlichkeit q und der mittleren Zahl $\bar{\nu}_{\text{ind}}$ der bei der induzierten Spaltung entstehenden Neutronen Werte, die durch die Gleichung

$$\frac{\nu(\nu-1)}{2}^{\text{Super}} = 1,967 + 0,59 \cdot q \cdot \bar{\nu}_{\text{ind}} (1+0,42 \cdot q) (1+2,69 \cdot \bar{\nu}_{\text{ind}})$$

mit mehr als 0,2% Genauigkeit beschrieben werden, wenn $0 \leq q \leq 4\%$ und $2.04 \leq \bar{\nu}_{\text{ind}} \leq 3.01$.

Für $\bar{\nu}_{\text{ind}} = 3$ (was für ^{239}Pu bei etwa 1 MeV gilt) und $q = 1\%$ erhält man daraus eine Änderung des korrelierten Signals von etwa 8%, während die Zahl der Gesamtneutronen nur um etwa 1,4% zunimmt. Dies zeigt, daß die Methode empfindlich auf Änderungen der Brennstoffverteilung reagiert, die die Schnellspaltung beeinflussen.

2.10 Bremszeitspektrometer

J. Klunker

Die Arbeiten am Bremszeitspektrometer wurden abgeschlossen¹⁷. Dazu wurden an der von INTERATOM entwickelten und bei der GfK aufgestellten Anlage Messungen durchgeführt, um die Genauigkeit der Spaltstoffbestimmung auch bei größerer Variation der Brennstäbe und bei gemischtem Spaltstoff (^{235}U und Plutonium) zu bestimmen. Es wurden Spaltneutronenzählraten von Eichstäben mit unterschiedlicher Anreicherung, Spaltstoffmischung, Dichte und unterschiedlichem Durchmesser in verschiedenen Bremszeitintervallen gemessen, deren Verlauf als Funktion der Spaltstoffmenge den Einfluß der Resonanzselbstabschirmung und der wechselseitigen Resonanzabschirmung erkennen ließ.

Zur Berechnung der Resonanzabschirmungseffekte wurden mit Hilfe der Theorie der Resonanzabsorption analytische Ausdrücke mit mehreren freien Parametern abgeleitet. Die Parameter für reine Uran-235- oder Plutoniumstäbe wurden aus den Messungen, die für Spaltstoffmischungen aus numerischen Rechnungen ge-

wonnen. Es zeigte sich, daß fast alle Meßergebnisse innerhalb der Meßgenauigkeit von 1% durch die analytischen Ausdrücke wiedergegeben werden. Diese gute Übereinstimmung konnte nur durch Berücksichtigung der wechselseitigen Abschirmung zwischen Uran-235, Uran-238 und Plutonium hergestellt werden.

Mit einem Neutronentransportprogramm¹⁸, das Stoßwahrscheinlichkeiten in 10000 Energiegruppen berechnet, wurden effektive Spaltquerschnitte von Brennstäben als Funktion von Anreicherung, Spaltstoffmischung, Dichte und Durchmesser bestimmt. Das Programm wurde so modifiziert, daß der Wirkungsquerschnitt von Uran-235 aus Multi-Niveau-Resonanzparametern bestimmt werden kann. Mit den im Bleipile in den verschiedenen Bremszeitintervallen herrschenden Spektren und den numerisch berechneten effektiven Spaltquerschnitten wurden Reaktionsraten zum Vergleich mit den Meßwerten ermittelt. Bei diesem Vergleich zeigten sich für jeden Spaltstoff spezifische systematische Abweichungen in der Größenordnung von 5%, die auf Ungenauigkeiten der verwendeten Kerndaten zurückzuführen sind. Abgesehen von diesen systematischen Unterschieden war die Übereinstimmung zwischen numerisch berechneten Werten und Meßwerten innerhalb der Fehlergrenzen der Messung zufriedenstellend.

Die Konsistenz der Ergebnisse der Messungen von Eichstäben, der numerischen Rechnungen und der analytischen Darstellung läßt den Schluß zu, daß die Spaltstoffbestimmung an gemischten Brennstäben mit dem Bremszeitspektrometer möglich ist und daß dabei im Rahmen der Meßgenauigkeit kein systematischer Fehler auftritt. Die Meßgenauigkeit der Spaltneutronenzählraten für Brennstäbe mit 1 m Länge, Spaltstoffanreicherungen von 2 bis 6% und Durchmessern von ca. 1 cm betrug für die bei den Experimenten verwendete Anlage bei einer Meßzeit von ca. 50 min pro Stab 1%; sie kann für Stäbe mit mehr als 2 m Länge bei einer dreimal so hohen Leistung des Neutronengenerators und einer Meßzeit von 2 min pro Stab mit 2% angenommen werden. Der Fehler der aus den Spaltneutronenzählraten ermittelten Spaltstoffmengen liegt in der Größenordnung der Meßgenauigkeit dieser Spaltneutronenzählraten.

2.11 Bestimmung von Spaltstoff in Brennstäben nach der Fermialter-Methode

K. Böhnel, M. Kühle

Die im vorigen Jahresbericht¹ ausführlich beschriebene Methode zur Messung von spaltbarem Uran in Brennstäben für Leichtwasserreaktoren wurde auf ihre Empfindlichkeit gegen Temperaturänderungen weiter untersucht. Die Methode beruht auf dem Nachweis von Neutronen aus Spaltungen, die von Neutronen einer Sb-Be-Quelle im Brennstab induziert werden. Quell- und Spaltneutronen werden dabei auf Grund ihrer unterschiedlichen Bremslänge verschieden stark im umgebenden Moderator abgeschwächt, so daß der relative Anteil der Spaltneutronen am Meßsignal aus ³He-Zählrohren mit der Entfernung von Brennstab und Quelle zunimmt.

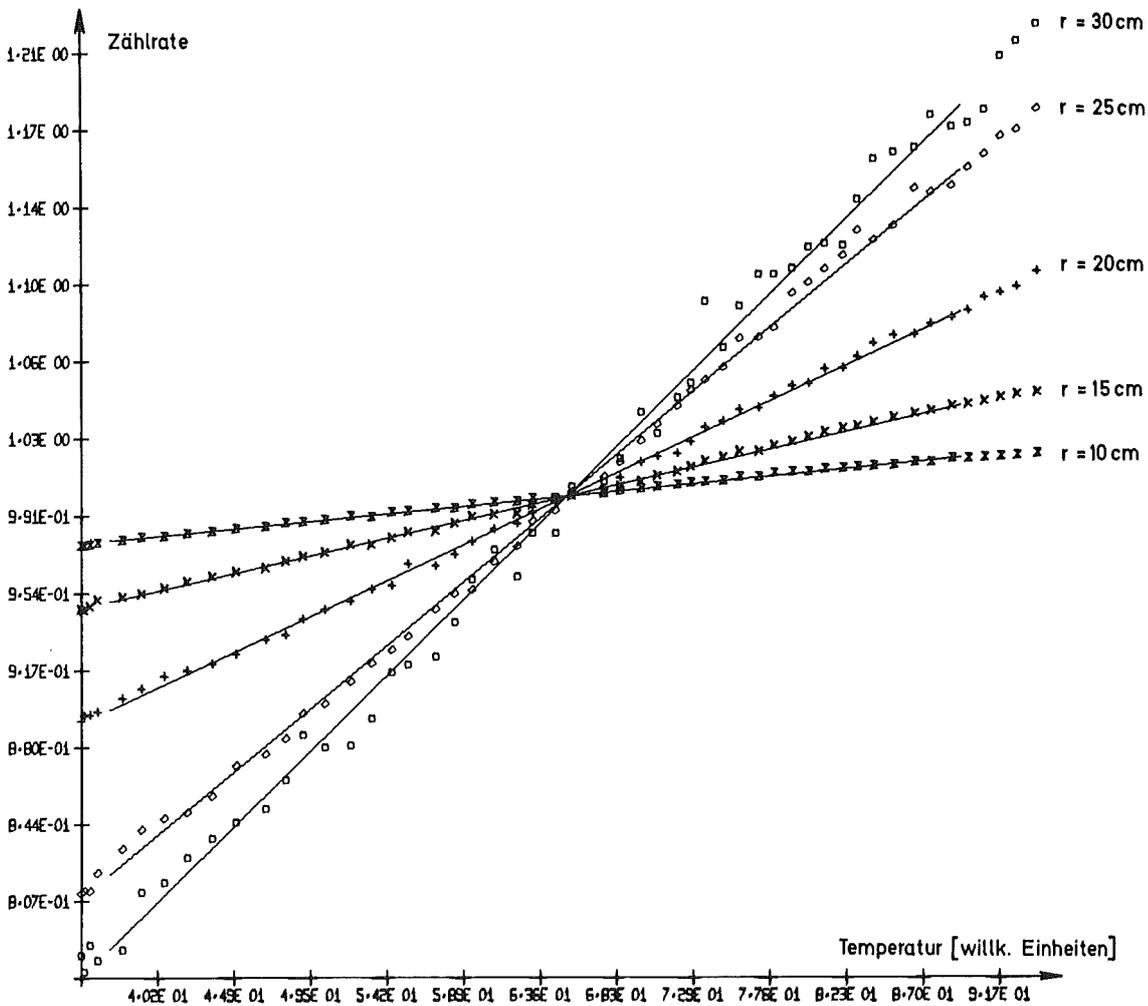


Abb.2.11/1 Temperaturabhängigkeit der Zählrate

Der räumliche Flußverlauf kann mit Hilfe der Zwei-Gruppen-Theorie gut beschrieben werden. Die Moderatoreigenschaften, wie Diffusionslänge, Diffusionskonstante und Fermialter, sind dabei temperaturabhängig. In Experiment und Theorie läßt sich die daraus resultierende Temperaturabhängigkeit des Neutronenflusses mit einer linearen Beziehung gut annähern (Abb. 2.11/1). Dabei ist die Änderung dort besonders groß, wo die Abschwächung erheblich ist, nämlich bei den Quellneutronen und großem Abstand. Abb.2.11/2 zeigt die Änderung der Temperaturabhängigkeit mit der Position des Zählrohrs. Kann man Temperaturänderungen klein halten und wird immer wieder gegen Standards geeicht, so kann dieser Nachteil der Meßmethode als nicht schwerwiegend angesehen werden. Dabei muß jedoch beachtet werden, daß sich die Charakteristik der Zählrohre ebenfalls mit der Temperatur verändert. Bei richtiger Diskriminatoreinstellung sind auch hier keine Schwierigkeiten zu erwarten, solange man sich im Bereich von Schwankungen der Raumtemperatur bewegt.

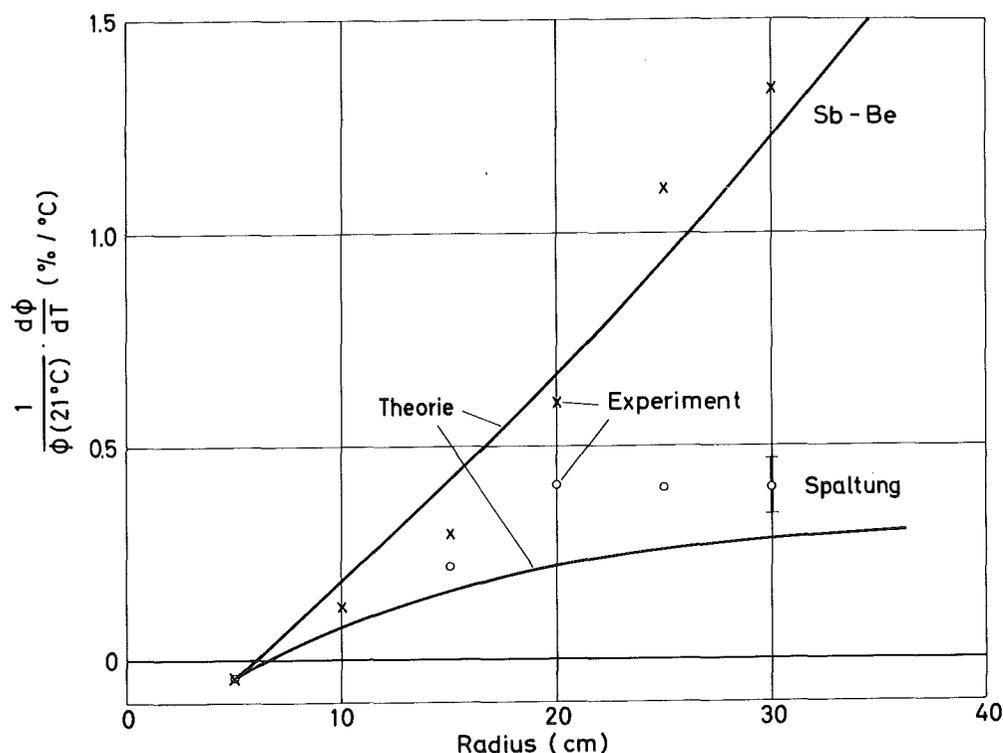


Abb.2.11/2 Änderung der Temperaturabhängigkeit der Zählrate mit dem Abstand des Detektors vom Brennstab

Unter diesen Voraussetzungen wurde die Eichkurve in Abb.2.11/3 gemessen. Dabei entspricht die Anreicherung von 6% im Teststab einer Anreicherung von 2,5% eines Siedewasserreaktorstabes von 12,4 mm Durchmesser (vgl. Ref.19).

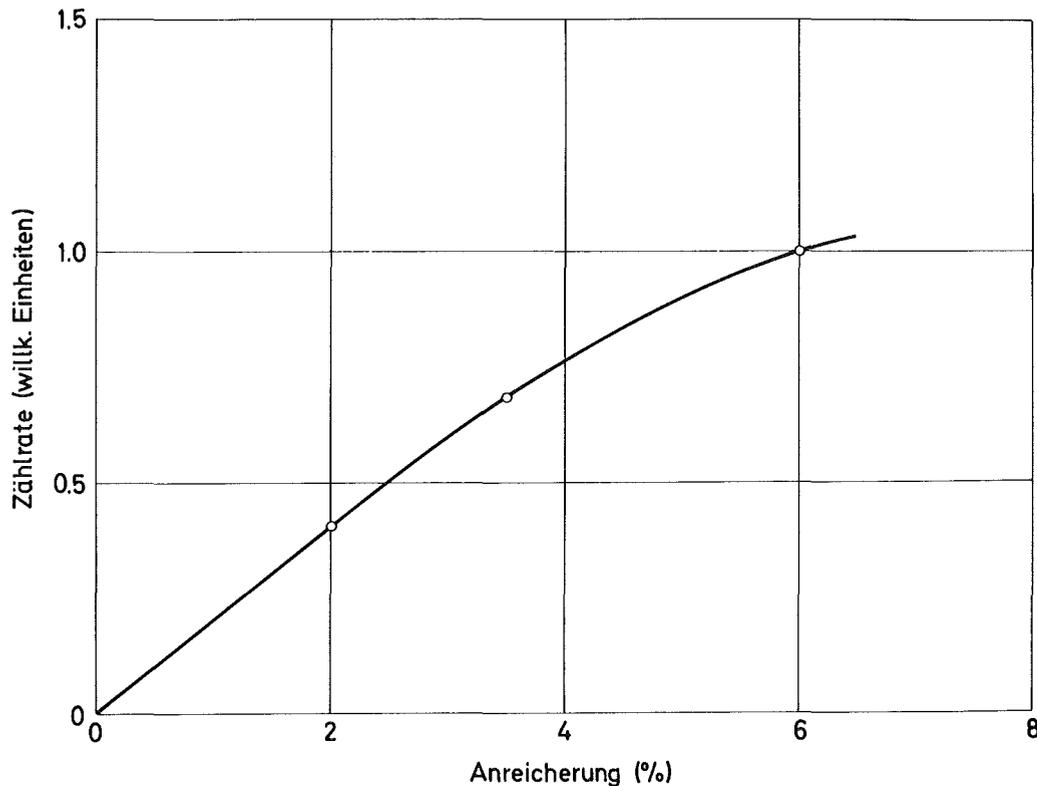


Abb.2.11/3 Eichkurve für ^{235}U -Bestimmung in Leichtwasserreaktorbrennstäben

2.12 Bestimmung von Brennstoff in Brennelementen mit Hilfe einer Antimon-Beryllium-Quelle

K. Baumung, K. Böhnel, P. Kreuter

2.12.1 Reflektoren

Die Messung des Urangehalts von fertigen Brennelementen kann, wie im vorigen Jahresbericht¹ dargestellt, mit einer Antimon-Beryllium-Quelle durchgeführt werden. Um die starke Radioaktivität der Quelle zu reduzieren, die einem bei der Handhabung gewisse Beschränkungen auferlegt, wird nach einer besseren Ausnutzung der Quellneutronen gesucht. Eine Möglichkeit dazu bietet die Verwendung von Neutronenreflektoren, wie sie in

Abb.2.12/1 dargestellt ist. Als Reflektormaterial bieten sich Nickel und Titan an, da diese Metalle um 20 keV Streuresonanzen besitzen. Ein 20 mm dicker Reflektor hinter der Quelle soll die Neutronen, die die Quelle nicht in Richtung des Elements verlassen, zurückstreuen. Bei ausreichender Höhe (40 cm) wurde durch Nickel eine Verbesserung um etwa 60%, durch Titan um etwa 50% erzielt.

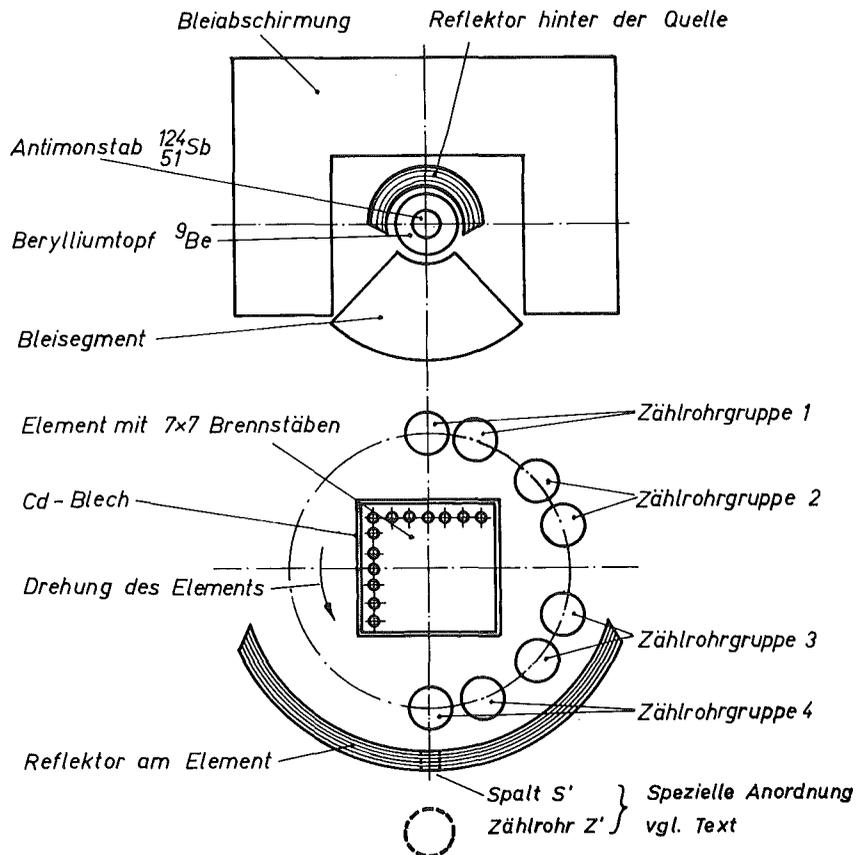


Abb.2.12/1 Versuchsaufbau für die ^{235}U -Bestimmung in Brennelementen mit einer Sb-Be-Quelle

Die Quellneutronen, die das Element ungenutzt durchflogen haben, werden in einem Reflektor unmittelbar hinter den Zählrohren gestreut und teilweise in das Element zurückgeworfen. Die Auswirkung des Nickelreflektors ist für verschiedene Dicken des Reflektors in Abb.2.12/2 dargestellt. Der Gewinn ist für die Zählrohrgruppe, die am weitesten von der Quelle entfernt ist, mit 55% für 13 mm Nickel am größten. Entsprechende Messungen ergeben

für 20 mm Titan 37%. Ein Teil des Effekts wird besonders bei Nickel der Reflexion von Spaltneutronen zugeschrieben. Die Verwendung der genannten Nickel- oder Titanreflektoren erhöht somit die Zählrate um mehr als 110%, bzw. fast 90%, für die Zählrohrgruppe mit der kleinsten Zählrate.

Diese Zählrohrgruppe 4 hat ohne den Reflektor am Element die sehr erwünschte Eigenschaft, daß der Nachweis des Spaltstoffes praktisch unabhängig von dessen Verteilung im Brennelement ist. Eine bestimmte Menge Spaltstoff bringt z.B. den gleichen Effekt, ob sie im Zentralstab des Elements oder in einem ECKelement hinzugefügt wird. Mit Reflektor ist dies nicht mehr der Fall. Es wurde gemessen, daß der Spaltstoff im ECKelement etwa 20% mehr Effekt liefert als im Zentrum.

Es wurden weiterhin Versuche durchgeführt, bei denen der Reflektor am Element einen Spalt S' besitzt, der schmaler als das dahinter befindliche Zählrohr Z' ist (gestrichelt in Abb.2.12/1). Da die Spaltneutronen - wie schon erwähnt - im Reflektor gestreut werden, treffen von den äußeren Brennstäben weniger Spaltneutronen auf Z' . Dadurch wird das Zentrum des Elements bevorzugt gemessen. Durch Addition des vor und hinter dem Spalt

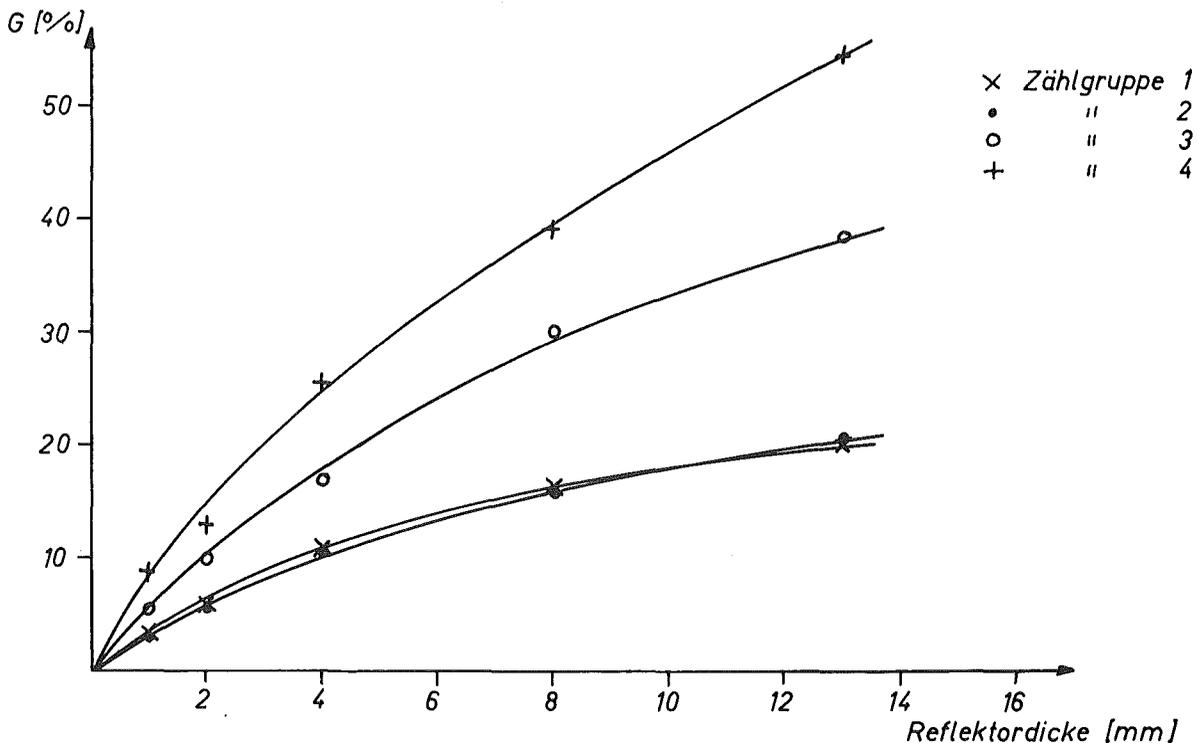


Abb.2.12/2 Reflektorgewinn in Abhängigkeit von der Dicke des Nickelreflektors

gemessenen Spaltneutronensignals mit geeigneter Amplitude ist eine Verbesserung der Abhängigkeit des Signals von der Spaltstoffverteilung im Element zu erwarten.

2.12.2 Detektoren

Die hier diskutierte Methode beruht wesentlich darauf, Spaltneutronen in Gegenwart eines starken Neutronen- und γ -Untergrunds der die Spaltungen induzierenden Quelle zu messen. Im INR wurden bisher zu diesem Zweck Protonenrückstoßproportionalzählrohre verwendet. Dabei wird zur Unterscheidung der Spaltneutronen vom Untergrund die von der Energie des nachgewiesenen Teilchens abhängige Impulshöhe ausgenutzt, wobei zusätzlich die gegenüber Neutronennachweisen langsamer ansteigenden γ -Impulse unterdrückt werden. Von der Gruppe in Los Alamos werden zum Nachweis von Spaltneutronen bei gleichzeitig vorhandenem niederenergetischen Neutronenuntergrund ^4He -gefüllte Rückstoßproportionalzählrohre verwendet²⁰. Die Argumente für das ^4He -Zählrohr sind besonders der Verlauf des Streuquerschnitts (Abb.2.12/3 nach Ref.21) und die Anisotropie der Streuung.

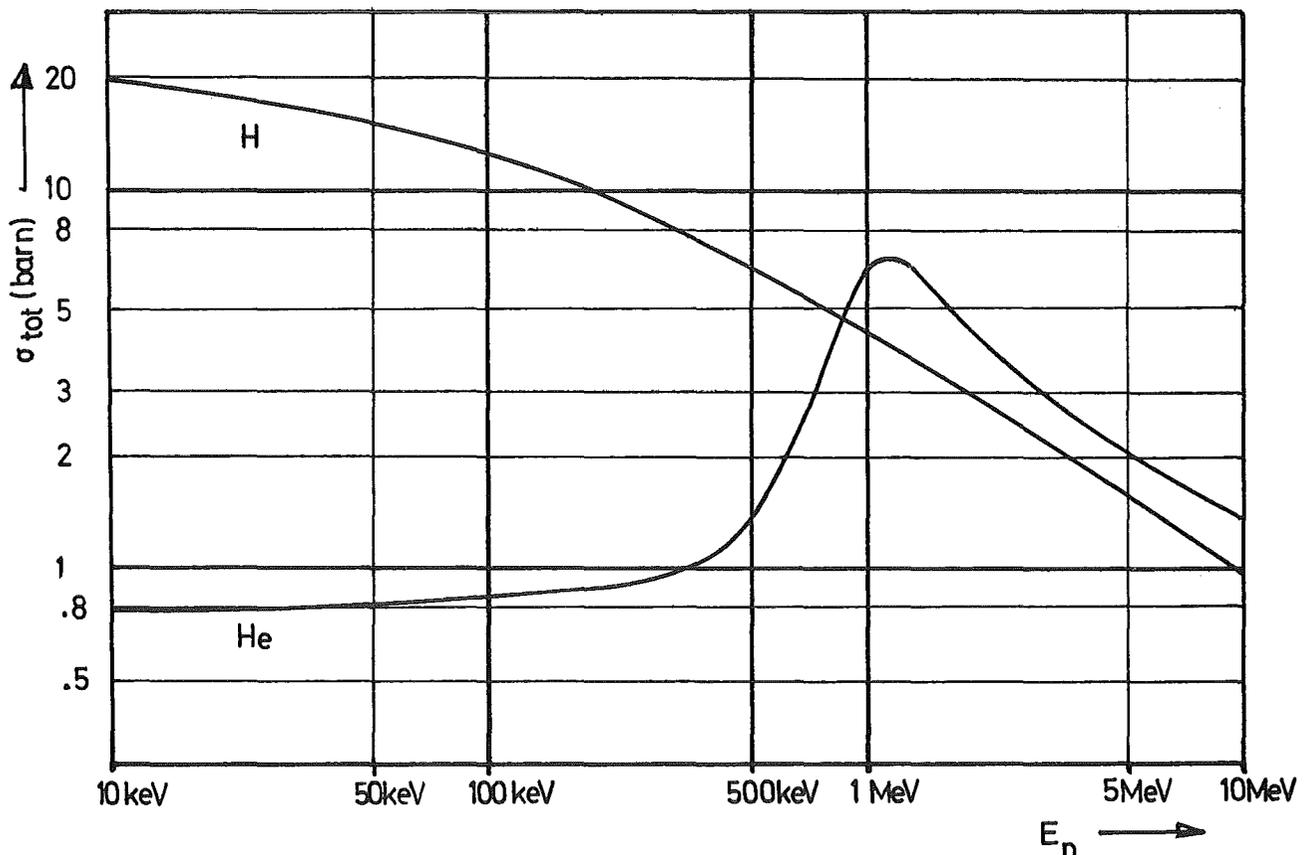


Abb.2.12/3 Streuquerschnitt von Helium und Wasserstoff als Funktion der Neutronenenergie

Der Streuquerschnitt besitzt ein ausgeprägtes Maximum bei etwa 1 MeV und bevorzugt dadurch Spalt- gegenüber niederenergetischen Neutronen. Die Anisotropie bewirkt durch die Vorwärtsstreuung der ^4He -Kerne eine vorteilhafte Verteilung der von den Neutronen übernommenen Energien und läßt einen flacheren Verlauf des Impulshöhenspektrums erwarten, der für die Stabilität einer Diskriminatoreinstellung günstig ist. Ein weiterer Vorteil der He-Zählrohre ist deren niedrige Betriebsspannung. Gegen die He-Zählrohre spricht zunächst nur der hohe Fülldruck, der zum Erreichen der gleichen Empfindlichkeit wie bei CH_4 -Zählrohren nötig ist, und damit verbundene konstruktive Einschränkungen ihres Durchmessers. Um die Entscheidung über die Bevorzugung eines Zählrohrtyps experimentell abzusichern, wurden die 4 in der Tabelle 2.12/I aufgeführten Zählrohre nach verschiedenen Gesichtspunkten untersucht.

Tabelle 2.12/I: Verwendete Zählrohre

Bezeichnung	Hersteller	Füllgas	Fülldruck [at]	Durchmesser [cm]	Betriebs- spannung	
B	Berthold	CH_4	3	4,5	3600	
M1	Reuter Stokes	CH_4	3	3,85	2200	
M2	"	"	CH_4	4,5	3,85	2600
HE	"	"	He	18	3,85	1400

Am Van-de-Graaff-Beschleuniger wurde mit 1 MeV-Neutronen das resultierende Impulshöhenspektrum aufgenommen und die Gasverstärkung bestimmt. Die in Tabelle 2.12/I angegebenen Spannungen gelten jeweils für einen Gasverstärkungsfaktor 10. Wandeffekte, die zu einem unerwünschten Abfall des Spektrums bei höheren Energien führen, nehmen mit wachsendem Durchmesser und Druck ab. Die im He-Zählrohr auftretenden Anstiegszeiten sind so groß, daß im Hauptverstärker Zeitkonstanten von mindestens 1 μsec verwendet werden mußten, während für die CH_4 -Zählrohre 0,1 μsec

genügte. Diese Eigenschaft wirkt sich für das He-Zählrohr dann nachteilig aus, wenn durch hohe Zählraten Pile-up-Probleme auftreten.

Das Verhalten der Zählrohre im kombinierten γ -Neutronen-Feld wurde in der in Abb.2.12/1 dargestellten Apparatur verglichen. Dazu stand eine Sb-Quelle von (nur) 10 Ci zur Verfügung. Mit einer Messung der Häufigkeit von Neutronen in Abhängigkeit von Anstiegszeit und Amplitude wurde gezeigt, daß die langsamer ansteigenden γ -Impulse in allen Fällen durch Differenzieren mit geeigneten Zeitkonstanten gegenüber den schneller ansteigenden Neutronenimpulsen reduziert werden können, und zwar im He-Zählrohr um einen Faktor 2 bis 2,5, bei den CH_4 -Zählrohren um einen Faktor 2,5 bis 3. Unter diesen Bedingungen wurden die Impulshöhenspektren, normiert auf die Energie der einfallenden Neutronen, gemessen, die in Abb.2.12/4 dargestellt sind. Zur Energieeichung diente im He-Zählrohr der natürliche ^3He -Gehalt, während ein Zählrohr vom Typ B mit einer zusätzlichen ^3He -Dotierung versehen wurde. Das Kurvenpaar 1 gibt das Spektrum der γ -Quelle (1.7 MeV) wieder. Hier tritt auch beim CH_4 -Zählrohr schon Pile-up auf. Die Tatsache, daß die He-Rückstoßkerne maximal nur $\frac{16}{25}$ der Neutronenenergie übernehmen können, bedeutet, daß die γ -Impulse im He-Zählrohr im Verhältnis zu den Neutronenimpulsen größer erscheinen. Die Kurven 2 zeigen das Spektrum des Quelluntergrunds (zusammen mit dem γ -Spektrum). Vor allem beim He-Zählrohr sind die im Quellspektrum vorhandenen Anteile von Neutronen mit Energien von 360 keV und 550 keV deutlich zu sehen. Die für das He sprechende Unterdrückung der sich überlagernden 26 keV-Neutronen ist deutlich. Die Anisotropie macht sich jedoch bei den 550 keV-Neutronen als Nachteil bemerkbar, da sie sie im Untergrund hervorhebt. Das Kurvenpaar 3 zeigt den Gesamteffekt bei einer Beladung des Elements mit 565 g ^{235}U . Aus Stabilitätsgründen ist für keines der Zählrohre eine Diskriminatorschwelle angebracht, die unter 400 keV liegt. Bis 600 keV ist das Methan der He-Füllung überlegen, im realistischen Bereich über 600 keV sind die Zählrohrfüllungen äquivalent.

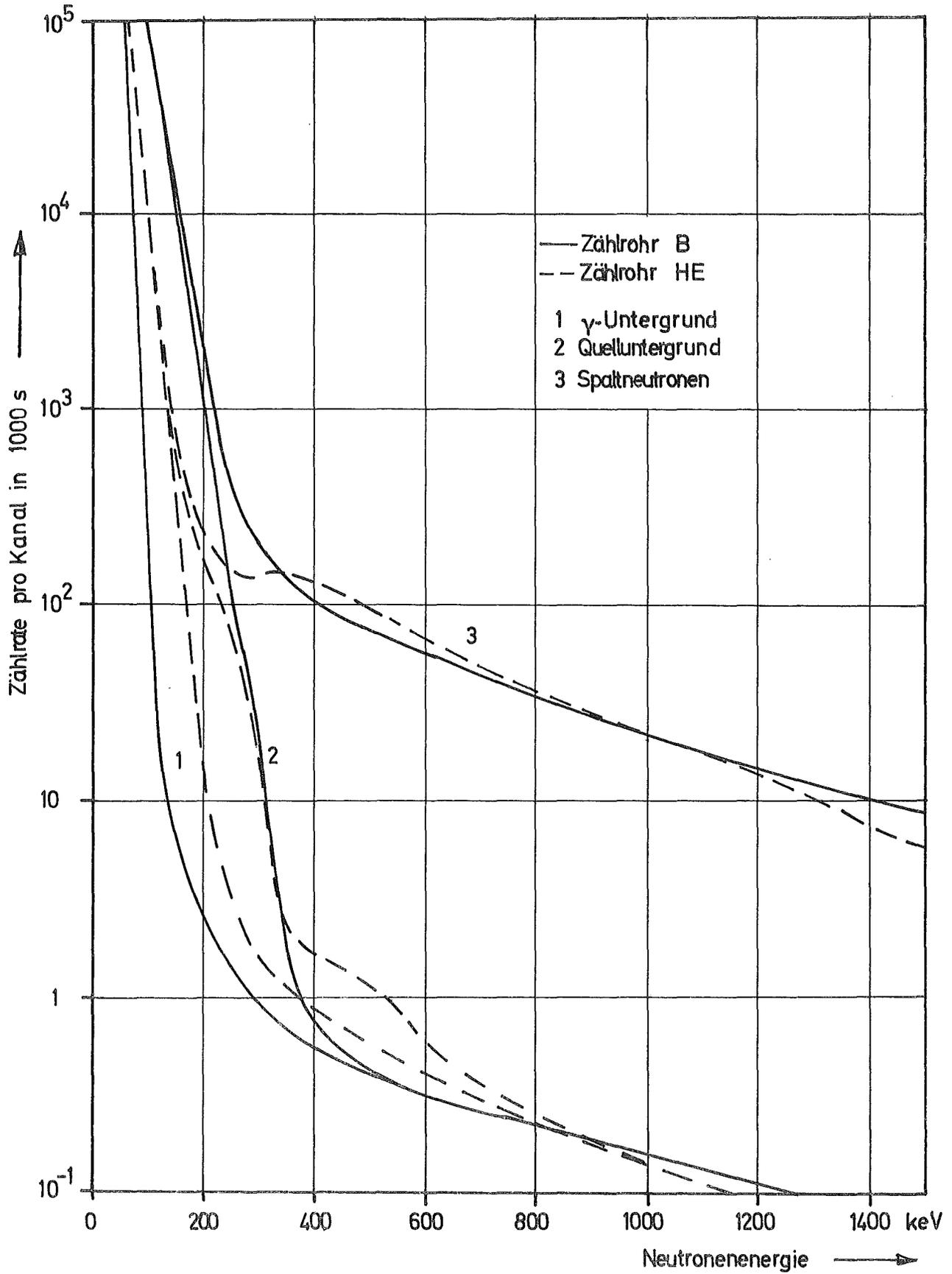


Abb.2.12/4 Impulshöhenspektren normiert auf die Neutronenenergie

Bei den für schnelle Messungen notwendigen höheren Quellstärken wirken sich jedoch Pile-up-Effekte zu Ungunsten des Heliums aus, so daß für diese Apparatur Methanzählrohre trotz der höheren Betriebsspannung vorzuziehen sind.

2.13 Hülsenmonitor

K. Baumung, K. Böhnel

2.13.1 Fehlerbetrachtungen

Die Messung des Brennstoffgehalts in einem Abfallfaß¹, in dem die Brennelementreste nach dem Herauslösen des Brennstoffs einbetoniert werden, beruht auf der Messung der Aktivität des Spaltprodukts ^{144}Ce über die Aktivität A_{Pr} seines Tochterelements ^{144}Pr . Dabei wird die aus dem Faß austretende 2,18 MeV- γ -Strahlung mit einem Detektor der Empfindlichkeit ϵ in eine Zählrate Z umgesetzt, wobei noch eine Apparatekonstante $R(r, \rho, x)$ eingeht, die den Anteil der γ -Strahlung angibt, der nach Durchdringen der Faßfüllung und des benötigten Kollimators den Detektor erreicht. Diese Konstante hängt von der Position r des emittierenden Restbrennstoffs im Faß, von der Dichte ρ der Faßfüllung (Hülsen+Beton) und den Kollimatorendaten x (Position, Material, Spaltdimensionen) ab.

$$Z = A_{\text{Pr}} \cdot R(r, \rho, x) \cdot \epsilon$$

Die Masse des Restbrennstoffs m im Faß hängt mit der Aktivität A_{Pr} über die spezifische Aktivität $a_{\text{Faß}}$ zusammen

$$A_{\text{Pr}} = a_{\text{Faß}} \cdot m$$

Aus der Dissolverlösung wird die dortige spezifische Aktivität a_{Diss} (Pr-Aktivität pro Gramm Brennstoff) bestimmt. Die spezifischen Aktivitäten in Faß und Dissolverlösung stehen in einem Verhältnis γ ,

$$\frac{a_{\text{Faß}}}{a_{\text{Diss}}} = \gamma$$

Man erhält somit

$$m = \frac{Z}{\gamma \cdot a_{\text{Diss}} R(r, \rho, x) \cdot \epsilon}$$

Man macht nun die wichtige Annahme, daß beide spezifische Aktivitäten gleich sind, d.h. $\gamma=1$. Dies bedeutet u.a., daß kein selektiver Lösungsprozeß stattgefunden hat.

Die durchgeführte Fehleruntersuchung unterscheidet zwischen maximalen Fehlern einer Einzelmessung (Spalte 1), mittleren Fehlern einer Einzelmessung (Spalte 2) und möglichen systematischen Fehlern (Spalte 3), die nach der Messung vieler Fässer den einzelnen Größen noch anhaften.

Tabelle 2.13/I

Größe	Fehlerquelle	relative Fehler $\left[\frac{\%}{\%}\right]$		
		maximal	Mittel	systematisch
Z	Statistik	<10	<10	<1
R	Ungenauere Dichteangaben	20	8	4
	Inhomog. Spaltstoffverteilung	30	5	3
ϵ	Eichung	5	5	5

Die Fehler, vor allem aus Spalte 3, sind z.T. geschätzt. Die experimentellen Erfahrungen stehen bisher noch nicht zur Verfügung.

Der Fehler aus der Zählstatistik liegt für die erwarteten Brennstoffmengen bei Meßzeiten um 1000 sec unter 10%. Für sehr viele Messungen verschwindet er.

Für die Größe $R(r, \rho, x)$ wurden mit dem im nächsten Kapitel beschriebenen Programm Parameterstudien über den Einfluß von Dichte, Kollimator und Brennstoffverteilung durchgeführt und zum Teil experimentell verifiziert. Abb.2.13/1 zeigt Ergebnisse

für die Kollimatoroptimierung und die Empfindlichkeit gegenüber Dichteänderungen. Bei festgehaltener Geometrie hängt die optimale Kollimatorbreite nur von der Dichte des Materials im Faß ab. Die Rechnungen zeigen, daß eine Zunahme um 10% in der Dichte und damit im Absorptionskoeffizienten eine Verringerung der Spaltbreite um 15% erfordern würde. Eine laufende Korrektur der Spaltbreite erscheint zu aufwendig. Wählt man die optimale Spaltbreite für die durchschnittliche Dichte, so erwartet man für homogen gefüllte Fässer 8%, in Extremfällen 20% Fehler. Wenn Hülsen und Strukturmaterialien in verschiedenen Fässern ausgelagert werden, erscheint dieses Ergebnis befriedigend. Da die Dichte des vollen Fasses näherungsweise bestimmt werden soll, eigentlich aber die Dichte der die Hülsen und damit den Brennstoff enthaltenden Zone bekannt sein sollte, lassen sich systematische Fehler nicht ausschließen.

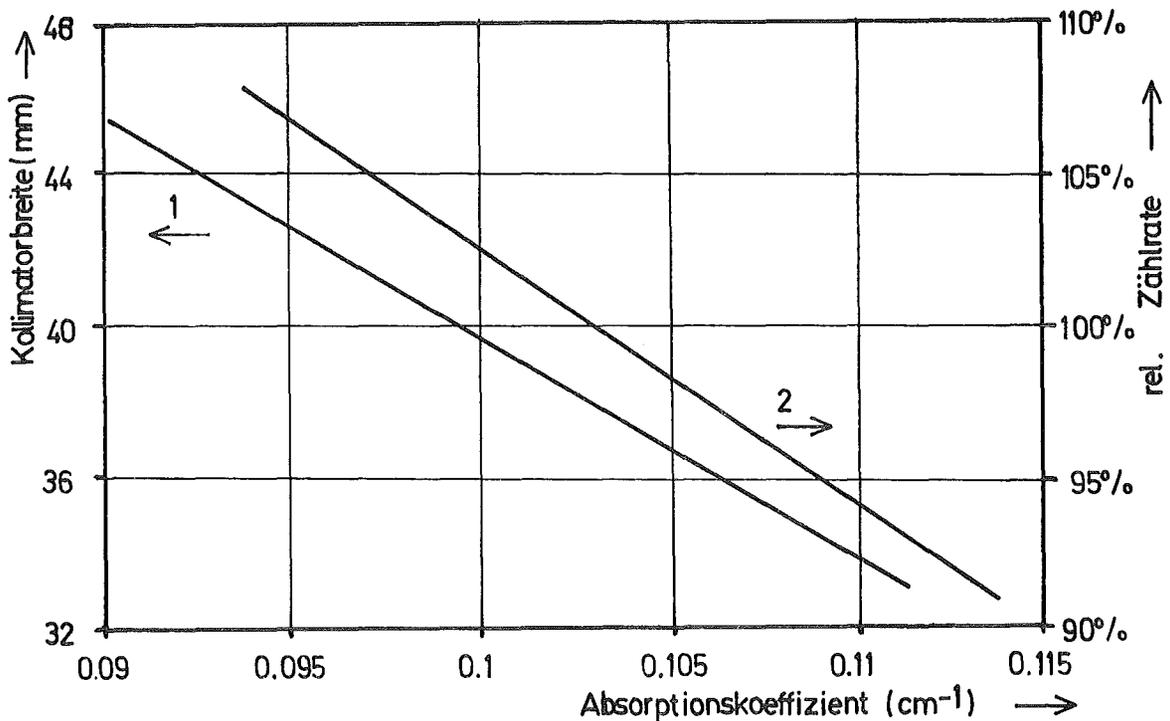


Abb. 2.13/1 Abhängigkeit der optimalen Kollimatorbreite und der Zählrate bei fester Kollimatorbreite vom Absorptionskoeffizienten der Faßfüllung

Das auf verschiedenen Radien oder Höhen im Faß befindliche Material erscheint vom Detektor gesehen mit verschiedenem Gewicht (vgl. dazu Abb.2.10/3 im Jahresbericht 1971¹). Wäre der Brennstoff nur in den äußersten Zonen vorhanden, träten Fehler von etwa 30% auf, bei durchschnittlich gefüllten Fässern sind etwa 5% Unsicherheit zu erwarten. Da die Funktion $R(r)$ an speziellen Exemplaren nichtaktiver Fässer bestimmt wird, deren Übereinstimmung mit dem Langzeitmittel nicht gesichert ist, und diese Messungen eventuell durch Rechnungen extrapoliert werden müssen, sind systematische Fehler von etwa 3% durchaus möglich.

Die Empfindlichkeit des Detektors wird mit Proben geeicht, deren Aktivität mit einer Genauigkeit von $\pm 5\%$ angegeben wird. Dieser Fehler geht auch bei Langzeitmittelung nicht zurück.

Die Größen a_{Diss} und γ sind radiochemisch zu bestimmen, weshalb an dieser Stelle keine Aussagen darüber gemacht werden sollen. Deshalb ist es auch nicht möglich, einen Gesamtfehler der Meßmethode anzugeben.

Der mechanische Teil der Meßanordnung, bestehend aus justierbarem Spaltkollimator und Drehteller wurde fertiggestellt. Der Drehteller wurde einer Dauerprüfung unterzogen, die etwa der Betriebszeit während eines Jahres entspricht.

Als Ersatz für einen für das vorliegende Meßproblem zu aufwendigen Vielkanalanalysator wurde in Zusammenarbeit mit der Firma ELSCINT, Wiesbaden, ein stabilisierter Dreikanaldiskriminator konzipiert, der aus einem peakstabilisierten Einkanaldiskriminator und zwei einfachen Einkanaldiskriminatoren besteht, deren Referenzspannungen vom stabilisierten Gerät gesteuert werden. Damit ist es möglich, die Peaksumme sowie den Untergrund oberhalb und unterhalb der Linie zu messen sowie durch Einführen einer kleinen ^{144}Ce -Probe in eine geeignete Position das Gerät in etwa 5 Min. Meßzeit auf diesen Peak zu eichen, womit Stabilität gegen Driften und eine einfache Handhabung für den Routinebetrieb gewährleistet ist.

2.13.2 Programmentwicklung für Rotationskollimation

Bei γ -Messungen an Proben, die eine erhebliche Absorption der γ -Strahlung zeigen, wie dies beim Hülsenmonitor der Fall ist, wird durch die Methode der Rotationskollimation eine weitgehende Unempfindlichkeit des Meßsignals von der Position des γ -Emitters in der Probe erreicht. Um Optimisierungen und Parameterstudien ohne Experiment durchführen zu können, wurde ein Fortran IV-Programm geschrieben, das folgende Parameter vorzugeben gestattet: Radius des den γ -Emitter enthaltenden Zylinders und dessen Absorptionskonstante für die gewählte γ -Energie; Position des γ -Emitters (Radius und Höhe); Position, Länge und Breite des Kollimatorspalts; Absorptionskonstante des Kollimatormaterials; Abstand des Detektors vom Faß; Durchmesser des Detektors. Die Empfindlichkeit des Detektors wird unabhängig von der Einfallsrichtung angenommen, kann jedoch leicht im Bedarfsfall geändert werden.

Literatur

- 1 G. Bork, ed., Projekt Spaltstoffflußkontrolle - Jahresbericht 1971, KFK 1618 (1972)
- 2 G. Bork ed., Projekt Spaltstoffflußkontrolle - Jahresbericht 1970, KFK 1429 (1971)
- 3 H. Ottmar, P. Matussek, C. Weitkamp, H. Woda, Average Widths of E1 and M1 Radiative Transitions from Neutron Capture States in ^{240}Pu , Proceedings of the Conference on Nuclear Structure Study with Neutrons, Budapest, Ungarn, 1972, p. 88
- 4 P. Matussek, H. Ottmar, I. Piper, C. Weitkamp, H. Woda, Measurement of Gamma-Ray Spectra from Thermal Neutron Interaction with ^{235}U , *ibid.*, p. 84
- 5 P. Matussek, H. Ottmar, C. Weitkamp, H. Woda, Study of ^{240}Pu by Thermal Neutron Capture, *ibid.*, p. 86
- 6 P. Matussek, H. Ottmar, C. Weitkamp, H. Woda, Octupole Bands in ^{242}Pu , *ibid.*, p. 90
- 7 W. Michaelis, C. Weitkamp, On the Potential of Advanced Gamma-Ray Spectrometers for Nuclear Material Assay, KFK 1480 (1971)
- 8 R. Gunnink, R.J. Morrow, Gamma-Ray Energies and Absolute Branching Intensities for $^{238}, ^{239}, ^{240}, ^{241}\text{Pu}$ and ^{241}Am , UCRL-51087 (1971)
- 9 J.E. Cline, R.J. Gehrke, L.D. McIsaac, Gamma Rays Emitted by the Fissionable Nuclides and Associated Isotopes, ANCR-1069, Supplement to IN-1448 (1972)
- 10 R. Eberle, W. Krappel, D. Stegemann, Fissile Material Assay in Highly Enriched Fuel Elements Using Delayed Neutrons, Paper zum International Meeting on Nondestructive Measurement and Identification Techniques in Nuclear Safeguards, Ispra, Italien, 20.-22. September 1971.
- 11 R. Eberle, W. Krappel, D. Stegemann, M. Zeller, Rechnergesteuerte 14 MeV-Neutronengenerator-Anordnung für die "Spaltstoff-Flußkontrolle", Reaktortagung des Deutschen Atomforums Hamburg (1972) 379

- 12 R. Eberle, M. Zeller, Computerized Nondestructive Neutron Interrogation Technique for Safeguards Application, ANS Winter Meeting, Washington, D.C., 12.-17. November 1972; ANS Trans. 15 (1972) 798
- 13 D. Heck, U. Fanger, Ein Gamma-Spektrometer mit Compton-Unterdrückung für Kernstrukturuntersuchungen nach Neutroneneinfang, KFK 1604 (1972)
- 14 C. Weitkamp, A.v. Baeckmann, K. Böhnel, M. Kühle, L. Koch, The Role of Nuclear Data in Nuclear Materials Safeguards, IAEA Symposium on Applications of Nuclear Data in Science and Technology, Paris, 12.-16. März 1973
- 15 F. Manero, V.A. Konshin, Status of the Energy-Dependent $\bar{\nu}$ -Values for the Heavy Isotopes from Thermal to 15 MeV and of $\bar{\nu}$ -Values for Spontaneous Fission, INDC(NDS)-34/6 (1972)
- 16 J. Terrell, Distributions of Fission Neutron Numbers, Phys. Rev. 108 (1957) 783
- 17 J. Klunker, Spaltstoffbestimmung an Reaktorbrennstäben mit dem Bremszeitspektrometer, Dissertation, Karlsruhe 1973
- 18 P.H. Kier, A.A. Robba, RABBLE, A Program for Computation of Resonance Absorption in Multiregion Reactor Cells, ANL-7326 (1967)
- 19 K. Böhnel, Assay of LWR-Rods for their ^{235}U -Content, Nuclear Technology, im Druck
- 20 H.O. Menlove et al., Characteristics of ^4He -Gas Tubes for Fast-Neutron Detection, LA-4605-MS (1970) 13
- 21 D.J. Hughes, R.B. Schwartz, Neutron Cross Sections, BNL 325 2nd edition (1958)

Kapitel 3 :

- 3.0 Einführung
A.v. Baeckmann IRCh
- 3.1.1 Serviceleistungen der Abteilung Analytik des
Instituts für Radiochemie
A.v. Baeckmann, E. Gantner, E. Mainka, H. Ruf, alle IRCh
- 3.1.2 Serviceleistungen der Arbeitsgruppe Isotopenanalyse
des Europäischen Instituts für Transurane
R. de Meester, L. Koch, TU, D. Steinert, IRCh
- 3.2.1 Automatisierung der massenspektrometrischen Isotopen-
verdünnungsanalyse
F. Gérin, L. Koch, M. Romkowski, alle TU
M. Wilhelmi, IRCh
- 3.2.2 Automatisierung der Uran- und Plutoniumkonzentrations-
bestimmung durch Röntgenfluoreszenzanalyse
J. Neuber, R. Braun, A.v. Baeckmann, alle IRCh
- 3.2.3 Versuche zur emissionsspektrometrischen Isotopen-
bestimmung in Kernbrennstoffen
E. Mainka, H.-G. Müller, IRCh
- 3.2.4 Isotopenkorrelationen der schweren Isotope und
ausgewählter Spaltprodukte
A. Cricchio, F. Gérin, L. Koch, alle TU
W. Krause, IRCh

Kapitel 3.

Direkte Verfahren

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

3.0 Einführung

Dieser Bericht schließt unmittelbar an den Jahresbericht 1971 des Projektes Spaltstoffflußkontrolle /1/ an, dessen Gliederung und Numerierung beibehalten wurde.

An der Entwicklung direkter Verfahren zur Spaltstoffflußkontrolle und an der Ausführung von Serviceanalysen für das Projekt Spaltstoffflußkontrolle waren im Berichtszeitraum die Arbeitsgruppe Isotopenanalyse des Europäischen Institutes für Transurane (L. Koch) und die Abteilung Analytik des Instituts für Radiochemie der Gesellschaft für Kernforschung (A.v.Baeckmann) beteiligt. Größere Aufträge wurden von den Firmen Varian MAT, Bremen (Automatisierung des Massenspektrometers) und NTG Nukleartechnik, Hailer (Automatisierte Schleuse für das Massenspektrometer) bearbeitet.

Die Zahl der Serviceanalysen nahm 1972 gegenüber dem Vorjahr bedingt durch die Teilnahme beider Laboratorien am Analysenkontroll-Experiment IDA-72 wieder deutlich zu. Die Automatisierung der Massenspektrometrie und der Röntgenfluoreszenzanalyse wurde so weit vorangetrieben, daß für 1973 mit der Inbetriebnahme des automatisierten Massenspektrometers und der Schleuse sowie mit der Inbetriebnahme der automatisierten Probenvorbereitung für die Röntgenfluoreszenzanalyse zu rechnen ist. Für die Spaltstoffflußkontrolle wichtige Daten zur Erstellung von Isotopenkorrelationen - insbesondere die Korrelation zwischen den Isotopenzusammensetzungen der Spaltedelgase und dem Spaltstoffgehalt scheinen für die Spaltstoffflußkontrolle Bedeutung zu erlangen - wurden erarbeitet und das Verfahren der emissionsspektrometrischen Isotopenanalyse verbessert. Die Untersuchungen zur simultanen Bestimmung von U-235- und Pu-239-Spuren in Abfalllösungen durch Aktivierungsanalyse wurden inzwischen beendet /2/, sodaß über sie im Jahresbericht 1973 voraussichtlich abschließend berichtet werden wird. Außerdem wurde ein Verfahren zur Bestimmung von Uran in wässrigen Lösungen mittels Absorptiometrie entwickelt /3/.

Literatur

- /1/ Projekt Spaltstoffflußkontrolle; Jahresbericht 1971, KFK 1618 S.85ff (1972)
- /2/ Dissertation A.H. Hawa, Universität Karlsruhe, voraussichtlich 1973.
- /3/ O. Cristallini, E. Gantner, A. von Baeckmann; KFK 1703 (1972)

3.1.1 Serviceleistungen der Abteilung Analytik des Instituts für Radiochemie

A. v. Baeckmann, E. Gantner, E. Mainka, H. Ruf

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

209 γ -spektrometrische Messungen

25 α -spektrometrische Messungen

28 massenspektrometrische U- bzw. Pu-Isotopenanalysen (Doppelanalysen)

122 U- bzw. Pu-Konzentrationsbestimmungen

4 naßchemische U- bzw. Pu-Konzentrationsbestimmungen

6 Spurenanalysen

68 Zn- bzw. Re-Konzentrationsbestimmungen

Die meisten der angewandten Analysenverfahren sind im Jahresbericht 1970 (KFK 1429) ausführlich beschrieben worden. Die massenspektrometrischen und α -spektrometrischen Analysen erfolgten vorwiegend im Rahmen des IDA-72-Experimentes, die γ -spektrometrischen und röntgenfluoreszenzspektrometrischen Messungen dienten vor allem der Erarbeitung des Verfahrens zur Bestimmung von Uran in wässrigen Lösungen mittels γ -Absorptiometrie (KFK 1703).

3.1.2 Serviceleistungen der Arbeitsgruppe Isotopenanalyse des Europäischen Institutes für Transurane

R. De Meester, L. Koch, D. Steinert

Im Berichtszeitraum wurden die folgenden Analysen ausgeführt:

	Zahl der Proben	Bestimmung von				Massenspektrom. Messungen
		U	Pu	Nd	Xe/Kr	
IDA-72-Exp.	16	16	16			125
Al-Kapseln Exp.	4	4	4			8
Isotopenkorrelat.	24	19	19	19	40	179

Die Analysen für das IDA-72-Experiment umfaßten die Analysen der Standard- und der Zusatzexperimente mit Ausnahme der Untersuchungen zur Probenalterung. Die Untersuchungen über die Lagerfähigkeit von Proben in Al-Kapseln wurde fortgeführt. Die Ergebnisse der Analysen, welche die Isotopenkorrelationen betreffen, sind in diesem Bericht unter 3.2.4 angeführt.

3.2.1 Automatisierung der massenspektrometrischen Isotopenverdünnungs-
analyse /1,2/

F. Gérin, L. Koch, M. Romkowski
Europäisches Institut für Transurane

M. Wilhelmi
Institut für Radiochemie

3.2.1.1 Das automatisch arbeitende Hochvakuum-Schleusensystem /1/S.124

Die von der GfK in Zusammenarbeit mit dem TU beauftragte Firma konnte das Hochvakuum-Schleusensystem im Jahre 1972 noch nicht ausliefern. Bei den Probeläufen ergaben sich Schwierigkeiten: Das geforderte Hochvakuum konnte nicht erreicht werden, die in die Kammern hineingesetzten Heizstäbe zum Ausheizen erwiesen sich als ungeeignet, und der Transport von Schlitten und Kassetten lief nicht zufriedenstellend. Bedingt durch diese Mängel mußten grundlegende Veränderungen an der Anlage vorgenommen werden. Die Lieferung der Anlage wird sich voraussichtlich bis Mitte 1973 verzögern.

3.2.1.2 Das automatisch arbeitende Massenspektrometer /1/S.128-30

Am Stand der Arbeiten am Steuer-, Meß- und Auswertesystem zur Automatisierung unseres Massenspektrometers CH5 mit Thermionenquelle war bereits Ende 1972 abzusehen, daß das System nur mit Verspätung von einigen Monaten ausgeliefert werden kann. Fertiggestellte Hardware-Teile konnten von der Lieferfirma nicht vorgezeigt werden. Bisher sind offensichtlich nur die theoretischen Vorarbeiten geleistet und Teile der Software-Arbeiten an eine Zweitfirma weitergegeben worden.

3.2.1.3 Auswerteprogramm der massenspektrometrischen Isotopenverdünnungs-
analyse

Das Problem der automatischen Verarbeitung der aus den massen- und α -spektrometrischen Isotopenmessung von Uran (233, 234, 235, 236, 238), Plutonium (238, 239, 240, 241, 242), Thorium (228, 229, 230, 232), Americium (241, 242, 243), Curium (242, 244),

Neodym (142, 143, 144, 145, 146, 148, 150), Krypton (78, 80, 82, 83, 84, 85, 86) und Xenon (124, 126, 128, 129, 130, 131, 132, 134, 136) gewonnenen Daten wurde definiert und untersucht.

Die seit langem angewandten Arbeitsmethoden zur Identifizierung der Proben und die bestehenden Analysenverfahren sollten nicht verändert werden, um neue Fehlerquellen zu vermeiden. In den vorhandenen Auswerteprogrammen sollte der mathematische Inhalt erhalten bleiben, doch mußte die Datenübergabe für die Automatisierung völlig geändert werden. Die Systemanalyse hatte diese Verhältnisse zu berücksichtigen.

Für die automatische Verarbeitung wurde ein System von Programmen entwickelt, dessen Flußbild in Abb. 1 wiedergegeben ist, und die in einem IBM 370/165-Rechner eingesetzt werden.

Das System wurde schließlich auf der Verarbeitung von drei Grundmessungen aufgebaut, deren Ergebnisse auf Lochstreifen übertragen wurden, nämlich:

1. Massenspektrometrie
2. α -Spektrometrie
3. Wiegen

Diese Grundmessungen werden mit Hilfe von drei Grundprogrammen (GOMASS, GOALFA, GOWGT) ausgewertet und die Ergebnisse in einer kleinen Datenbank, der sogenannten IDABANK, gespeichert.

IDABANK kann sämtliche reduzierten Messungen von 30 vollständigen Analysen zusammen mit bestimmten zusätzlichen Rechenparametern aufnehmen; d.h., daß das System 30 vollständige Analysen gleichzeitig verarbeiten kann.

Folgende Daten werden in IDABANK gespeichert:

1. Isotopenverhältnisse von U-Pu-Nd-Am-Kr-Xe aufgrund der Massenspektrometrie;
2. jeweiliger Prozentanteil und Aktivität von Pu-Am-Cm aufgrund der α -Spektrometrie;
3. Gewicht der Probe und des Indikators für U-Pu-Nd;
4. Parameterdaten: Werte für die Berechnung des Zerfalls von Pu-241 zu Am-241 und von Cm-242 zu Pu-238; Daten der Indikatoren, Lösungskonzentrationen usw.

Wenn alle für eine Analyse geforderten Messungen durchgeführt, verarbeitet und in IDABANK gespeichert sind, geht das System automatisch zum nächsten Programm = BURNUP über (s. Abb. 2).

Das Programm BURNUP verarbeitet die in IDABANK gespeicherten Daten und gibt für jede vollständige Analyse die gefragten endgültigen Ergebnisse an.

Vier verschiedene Ergebnisse können abgefragt werden:

1. Isotopenverhältnisse der schweren Elemente;
2. Konzentration der schweren Elemente;
3. Abbrandrate;
4. Isotopenverhältnisse der Spaltprodukte
(Kr - Xe - Nd usw.).

Diese endgültigen Ergebnisse (maximal 40 Werte pro Analyse) werden dann in einer neuen Datenbank, der sogenannten TESTBANK, gespeichert.

In TESTBANK wird jede Probe durch folgende Daten (jeweils mit zwei Buchstaben) gekennzeichnet:

- Art des Reaktors (z.B. boiling water = BW, fast reactor = FR etc;
- Name des Reaktors (z.B. GARIGLIANO = GA, OBRIGHEIM = OB etc);
- Core
- Anreicherungsgrad (kodiert)
- Probenart (pellet sample = PS oder batch sample = BS).

Außerdem wird noch die Proben-Identifizierung angegeben. Ein Beispiel zeigt Tab. 1. Die Ergebnisse von maximal 100 Analysen können in TESTBANK aufgenommen werden.

In der 1. Spalte steht der Abbrand in % der ursprünglich vorhanden gewesenen schweren Kerne.

Die Spalten 2, 17, 23-30 und 32-40 geben Isotopenverhältnisse in bestrahltem Brennstoff an.

Die Spalten 3-16 und 18-22 geben die relativen Mengen der genannten Nuklide in bestrahltem Brennstoff bezogen auf die Menge der ursprünglich vorhandenen schweren Kerne wieder.

In Spalte 31 ist die U-235-Abnahme eingetragen.

Danach ist der automatische Ablauf der ersten Phase des Programmsystems beendet.

Die sogenannte DATABANK, die die Daten in gleicher Weise wie die TESTBANK speichert, aber maximal 500 Analysenergebnisse (zur Zeit ca. 150) aufnehmen kann, dient als Basis für die Korrelation mit "historischen" Daten.

In der zweiten Phase des Programmsystems kann die gegenseitige Übereinstimmung der in TESTBANK gespeicherten Ergebnisse durch mehrere Korrelationen dieser Ergebnisse mit den in DATABANK vorhandenen historischen Daten kontrolliert werden (s. Abb. 3). Mit Hilfe eines Systems von Kriterien entnimmt dieses Programm = CORLTEST aus DATABANK eine bestimmte Anzahl von Wertepaaren, berechnet die Koeffizienten der Funktion, die diese Werte durch die Methode der kleinsten Fehlerquadrate miteinander verknüpft, und zeichnet eine Kurve der berechneten Funktion. Dann werden mit CORLTEST die aus TESTBANK entnommenen und zu untersuchenden Werte in das Diagramm eingetragen sowie die Differenzen, Abweichungen und die Standardabweichung errechnet. Auch ist mit CORLTEST die Bestimmung des Korrelationskoeffizienten möglich, der zwischen neuer Analyse und historischen Werten besteht.

Die dritte Phase des Programmsystems umfaßt die Übertragung der genauen Daten aus TESTBANK in DATABANK, das Löschen der entsprechenden Daten in TESTBANK und IDABANK, damit Plätze frei werden und für nachfolgende Analysen zur Verfügung gestellt werden können und die Herstellung von Lochkarten mit den Ergebnissen für das Archiv.

Das Programmsystem beinhaltet darüber hinaus die Hilfsprogramme die notwendig sind, um die Datenbanken zu errichten, in Betrieb zu nehmen, zu verändern, zu korrigieren, umzustrukturieren, aufzubereiten und zu löschen.

Bis Ende des Jahres 1972 waren alle erwähnten Verarbeitungsprogramme vorhanden und ständig in Gebrauch:

- Bestimmung der Massenspektren,
- Bestimmung der α -Spektren,
- Berechnung des Abbrand,

Berechnung der Isotopenkonzentrationen,
drei Korrelationsprogramme,
drei Hilfsprogramme.

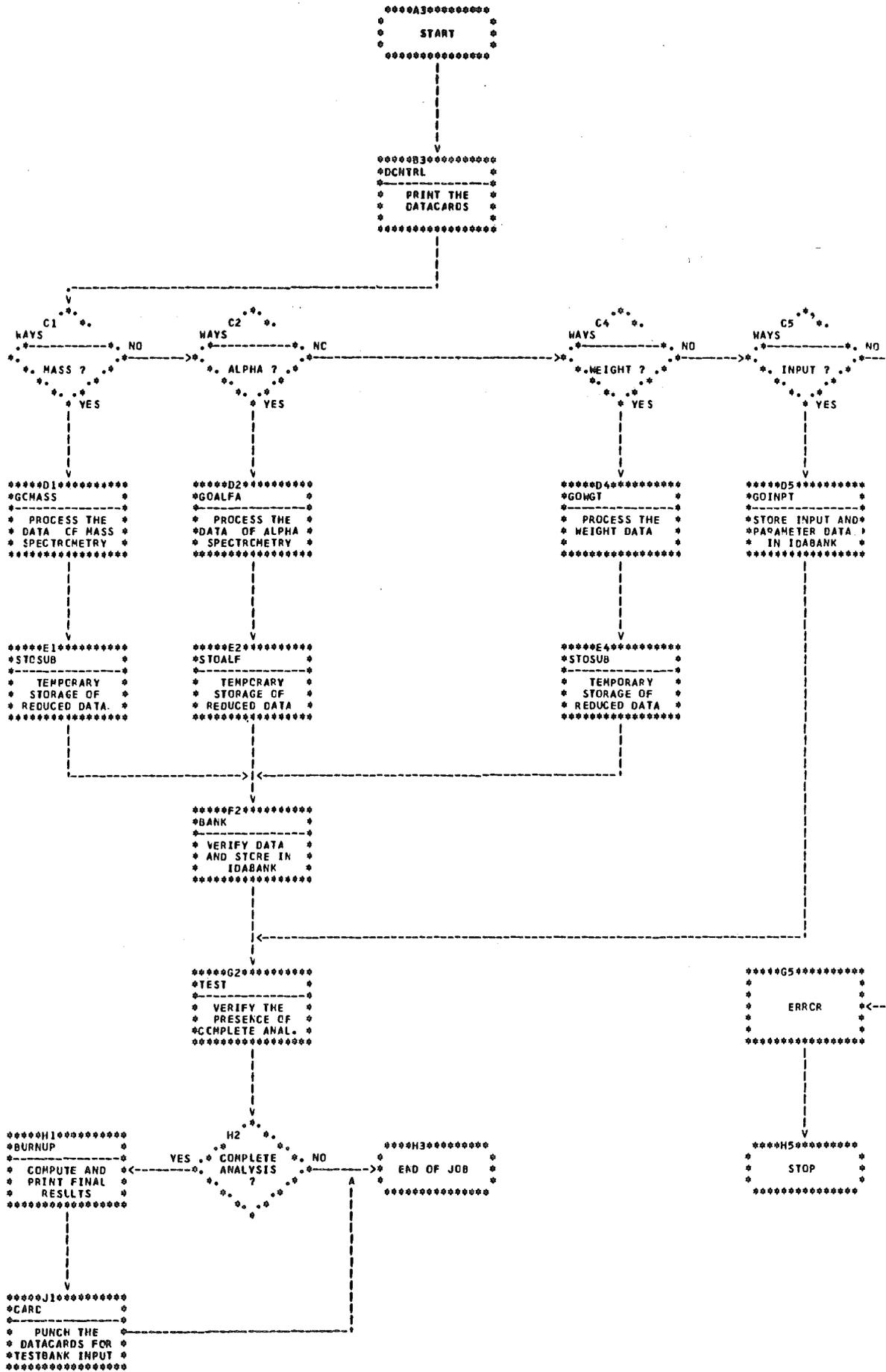
IDABANK, TESTBANK und DATABANK wurden errichtet und die beiden
letztgenannten regelmäßig benutzt.

Für 1973 ist vorgesehen noch einige direkte, automatische Ver-
bindungen zu schaffen, nämlich:

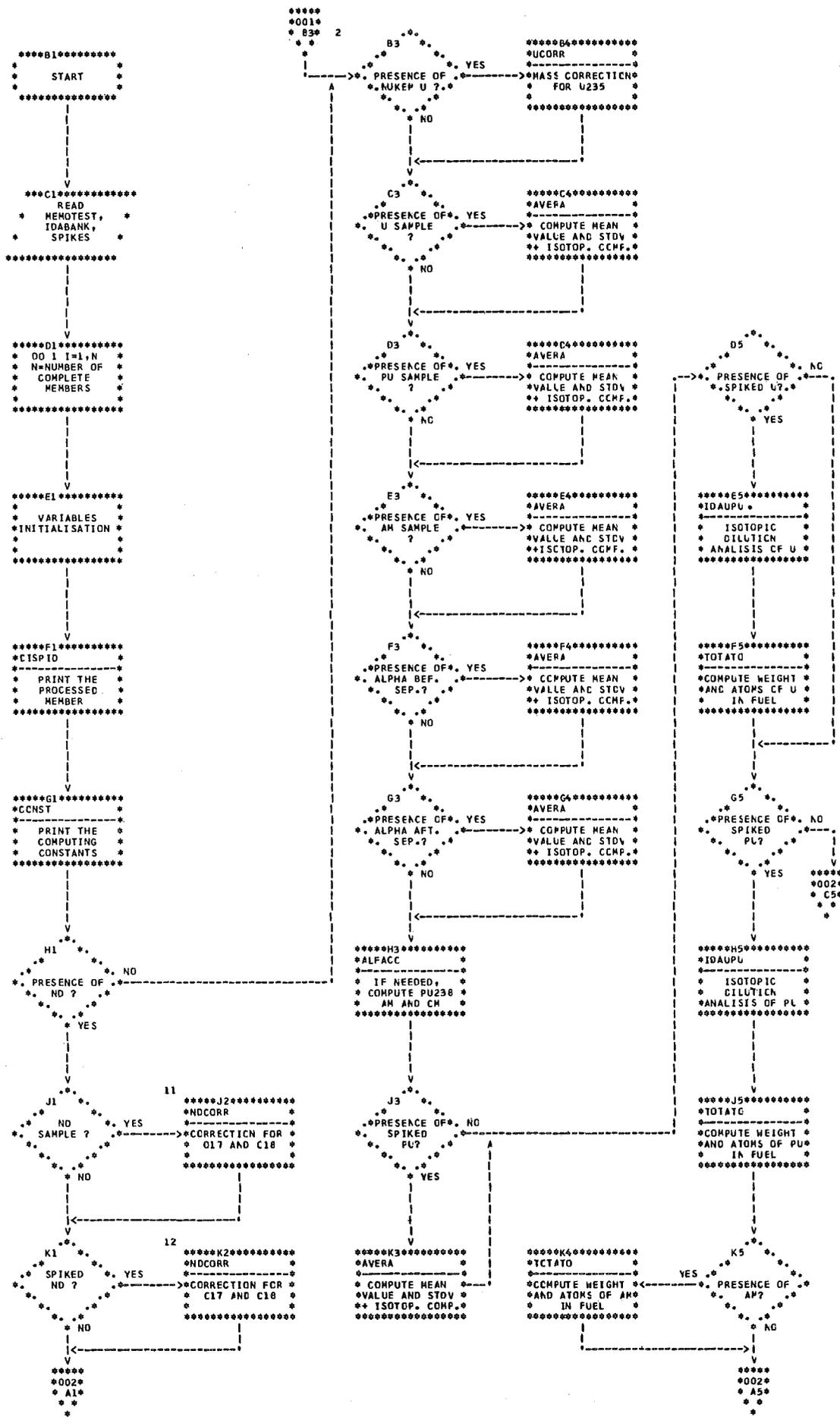
- (1) α -Spektrum \longrightarrow IDABANK
- (2) Waage \longrightarrow IDABANK
- (3) IDABANK \longrightarrow BURNUP

Literatur:

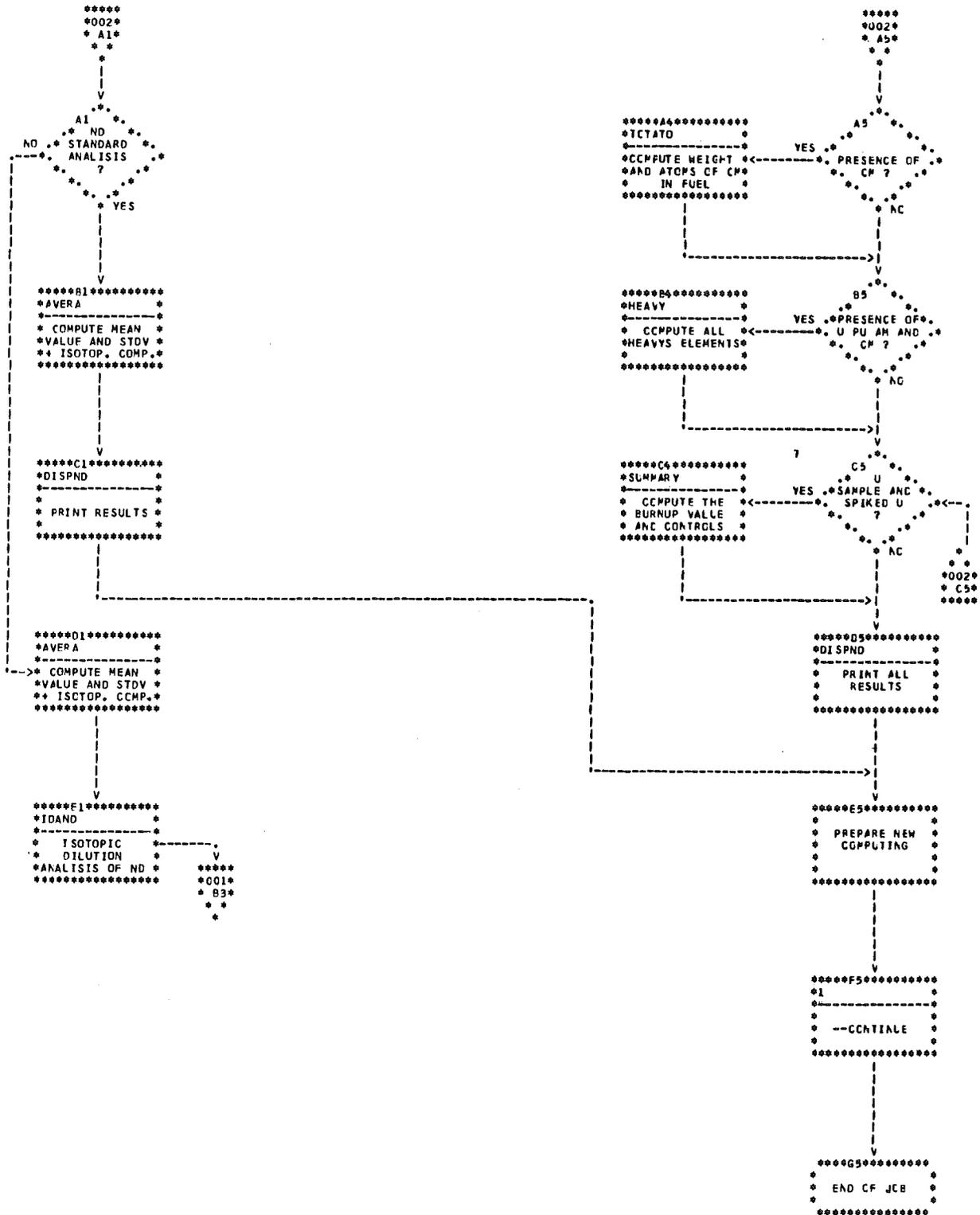
- /1/ Projekt SpFK, Jahresbericht 1970, KFK 1429 (1971) S.103ff
- /2/ Projekt SpFK, Jahresbericht 1971, KFK 1618 (1972) S.87ff



3.2.1 Abb. 1: Flußbild des gesamten Auswerteprogrammes



3.2.1
Abb.2a Flußbild des BURMUP Programmes

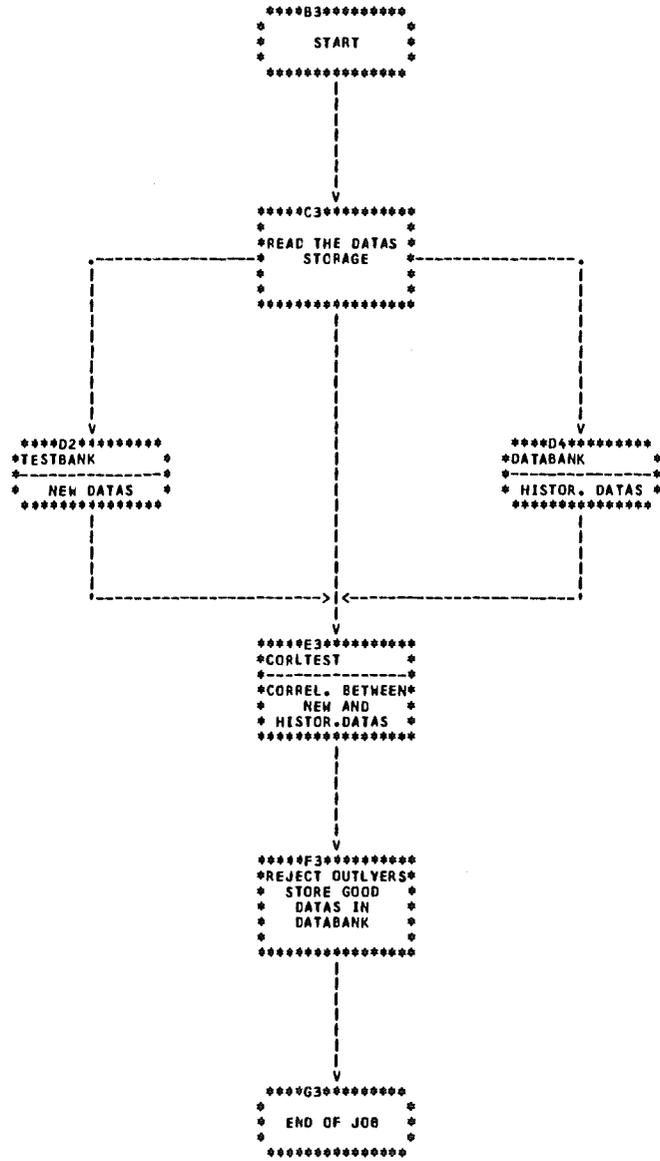


3.2.1
Abb.2b Flussbild des BURNUP Programms

AR	I	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10
AR	I	I	I	I	I	I	I	I	I	I	I
DESIGNATION	BWGAC101PS	BWGAC101PS	BWGAC101PS	BWGAC101PS	BWGAC101PS	BWGAC101PS	BWGAC102PS	BWGAC102PS	BWGAC102PS	BWGAC102PS	BWGAC102PS
I	* A1	* A9	* B1	* J1	* J9	* A3	* A5	* B2	* B8	* C1	I
1	I FT	.11260E+01	.14990E+01	.10460E+01	.13700E+01	.15420E+01	.11180E+01	.11280E+01	.10940E+01	.12930E+01	.11380E+01
2	I NC-144/148	*****	*****	*****	*****	*****	*****	*****	*****	*****	*****
3	I U-233	*****	*****	*****	*****	*****	*****	*****	*****	*****	*****
4	I U-234	*****	*****	*****	*****	*****	*****	*****	*****	*****	*****
5	I U-235	.7770E-02	.5550E-02	.8510E-02	.6310E-02	.5410E-02	.12350E-01	.11850E-01	.12310E-01	.10500E-01	.12250E-01
6	I U-236	.1610E-02	.1840E-02	.1420E-02	.1800E-02	.1510E-02	.18700E-02	.17300E-02	.18900E-02	.19900E-02	.18800E-02
7	I U-238	.9739E+00	.97200E+00	.97420E+00	.97250E+00	.97140E+00	.96930E+00	.96970E+00	.96960E+00	.96930E+00	.96920E+00
8	I PL-238	.1860E-04	.26690E-04	.18640E-04	.29000E-04	.32460E-04	.17510E-04	.15860E-04	.17010E-04	.20040E-04	.17740E-04
9	I PL-239	.37250E-02	.34390E-02	.38550E-02	.36630E-02	.35180E-02	.38840E-02	.39770E-02	.39570E-02	.36850E-02	.39290E-02
10	I PL-240	.11170E-02	.14200E-02	.10100E-02	.13240E-02	.14740E-02	.91900E-03	.93500E-03	.87900E-03	.10640E-02	.91900E-03
11	I PL-241	.43940E-03	.54960E-03	.40300E-03	.54570E-03	.58400E-03	.37220E-03	.38470E-03	.35060E-03	.40360E-03	.37610E-03
12	I PU-242	.86100E-04	.16490E-03	.67600E-04	.14070E-03	.18200E-03	.54400E-04	.55500E-04	.45400E-04	.73500E-04	.56100E-04
13	I AM-241	*****	*****	*****	*****	*****	*****	*****	*****	*****	*****
14	I AM-243	*****	*****	*****	*****	*****	*****	*****	*****	*****	*****
15	I CM-242	*****	*****	*****	*****	*****	*****	*****	*****	*****	*****
16	I CM-244	*****	*****	*****	*****	*****	*****	*****	*****	*****	*****
17	I NC-150/148	*****	*****	*****	*****	*****	*****	*****	*****	*****	*****
18	I CS-134	*****	*****	*****	*****	*****	*****	*****	*****	*****	*****
19	I CS-137	*****	*****	*****	*****	*****	*****	*****	*****	*****	*****
20	I CE-144	*****	*****	*****	*****	*****	*****	*****	*****	*****	*****
21	I EL-154	*****	*****	*****	*****	*****	*****	*****	*****	*****	*****
22	I EL-155	*****	*****	*****	*****	*****	*****	*****	*****	*****	*****
23	I KR-83/86	.26260E+00	.24450E+00	.26940E+00	.25670E+00	.24810E+00	.26330E+00	*****	.26820E+00	.25610E+00	.26410E+00
24	I KR-84/86	.57630E+00	.59020E+00	.59230E+00	.59590E+00	.59660E+00	.56710E+00	*****	.56980E+00	.57070E+00	.56710E+00
25	I XE-131/134	.35440E+00	.33850E+00	.35120E+00	.34170E+00	.33650E+00	.34880E+00	*****	.35090E+00	.34330E+00	.34960E+00
26	I XE-132/134	.66780E+00	.68240E+00	.66540E+00	.68170E+00	.68570E+00	.65010E+00	*****	.65500E+00	.66140E+00	.65310E+00
27	I XE-136/134	.14310E+01	.15175E+01	.14232E+01	.14810E+01	.15380E+01	.13712E+01	*****	.13580E+01	.14130E+01	.13680E+01
28	I ND-143/148	*****	*****	*****	*****	*****	*****	*****	*****	*****	*****
29	I ND-145/148	.20354E+01	.19928E+01	.20405E+01	.20182E+01	.20829E+01	.20829E+01	.20816E+01	.20827E+01	.20755E+01	.20925E+01
30	I ND-146/148	.17844E+01	.18088E+01	.17914E+01	.18125E+01	.17867E+01	.17908E+01	.17973E+01	.17961E+01	.19159E+01	.18052E+01
31	I D5	.52070E+00	.65760E+00	.47500E+00	.61070E+00	.66630E+00	.41830E+00	.44180E+00	.42020E+00	.50540E+00	.42300E+00
32	I U-235/238	.75782E-02	.57099E-02	.87354E-02	.64884E-02	.55693E-02	.12741E-01	.12220E-01	.12696E-01	.10833E-01	.12639E-01
33	I PL-240/239	.29987E+00	.41291E+00	.26173E+00	.36145E+00	.41899E+00	.23661E+00	.23510E+00	.22790E+00	.28874E+00	.23390E+00
34	I PL-240/241	.25421E+01	.25837E+01	.25062E+01	.24086E+01	.25240E+01	.24691E+01	.24305E+01	.25071E+01	.26363E+01	.24435E+01
35	I PL-240/242	.12973E+02	.86113E+01	.14941E+02	.94101E+01	.80989E+01	.16893E+02	.16847E+02	.17794E+02	.14476E+02	.16381E+02
36	I PL-241/242	.51034E+01	.33329E+01	.55615E+01	.39069E+01	.32088E+01	.68419E+01	.69315E+01	.70972E+01	.54912E+01	.67041E+01
37	I CS-134/137	.71620E-01	.86240E-01	.67730E-01	.82350E-01	.86980E-01	.66470E-01	*****	.64470E-01	.69940E-01	.67100E-01
38	I KR-84/83	.21946E+01	.24139E+01	.21986E+01	.22214E+01	.24047E+01	.21538E+01	*****	.21245E+01	.22284E+01	.21473E+01
39	I XE-132/131	.18843E+01	.20160E+01	.18946E+01	.19950E+01	.20377E+01	.18638E+01	*****	.18666E+01	.19266E+01	.18681E+01
40	I NC-146/145	.87668E+00	.90767E+00	.87922E+00	.89808E+00	.86260E+00	.86264E+00	.86342E+00	.86239E+00	.87492E+00	.86270E+00

3.2.1

Tab.1 Daten von 10 in TESTBANK gespeicherten Analysen



3.2.1

Abb. 2: Flußbild der Prüfung von Analysendaten durch Korrelationen

3.2.2 Automatisierung der Uran- und Plutoniumkonzentrationsbestimmung durch Röntgenfluoreszenzanalyse /1,2,3/

J. Neuber, R. Braun und A. von Baeckmann

Institut für Radiochemie, Kernforschungszentrum Karlsruhe

3.2.2.1 Einleitung

Im Jahresbericht 1971 des Projekts Spaltstoffflußkontrolle /1/ wurden Aufgabe und Möglichkeiten einer vollautomatischen Uran- und Plutoniumkonzentrationsbestimmung durch Röntgenfluoreszenzanalyse dargelegt. Ein mechanisiertes Probenvorbereitungssystem wurde in diesem Zusammenhang beschrieben und einige seiner wesentlichen Bestandteile in Abbildungen gezeigt.

Vordringlicher Zweck des kompletten Vorbereitungs- und Meßsystems war zunächst gewesen, auf Ausstellungen durch eine betriebsfähige Anlage die Überwachungsmaßnahmen an einem definierten strategischen Punkt bis ins Detail gehend vorzuführen.

3.2.2.2 Probenvorbereitung

Zwangsläufig muß bei einem schnell erstellten Demonstrationsmodell auf Vollkommenheit verzichtet werden. Die Arbeiten im Berichtszeitraum mußten sich deshalb überwiegend auf Ergänzungen und Verbesserung im Detail konzentrieren.

Das gesamte Teilsystem für Lagerung, Transport und Austausch von Einweg-Pipetten wurde neu konstruiert und gebaut. Abb. 1 zeigt ein Gerät aus diesem System.

Um mit Sicherheit homogene Lösungen zu erzielen, mußte ein möglichst einfaches und Querkontaminationen sicher vermeidendes Verfahren gefunden werden, das zudem im sehr gedrängten Aufbau des sog. Greifersystems Platz finden sollte. Als gangbarer Weg erwies sich der Einbau eines kleinen Drehtellers, der den mit einer Rippe versehenen Einweg-Becher (zum Ansatz der Lösungen) in wechselseitige Rotation versetzt.

Abb. 2 zeigt das Greifersystem von oben mit der eingebauten Mischvorrichtung.

Im Zusammenhang mit der stark verzögerten Lieferung des Datentransfersystems der elektronischen Waage waren die Bedingungen gegeben,

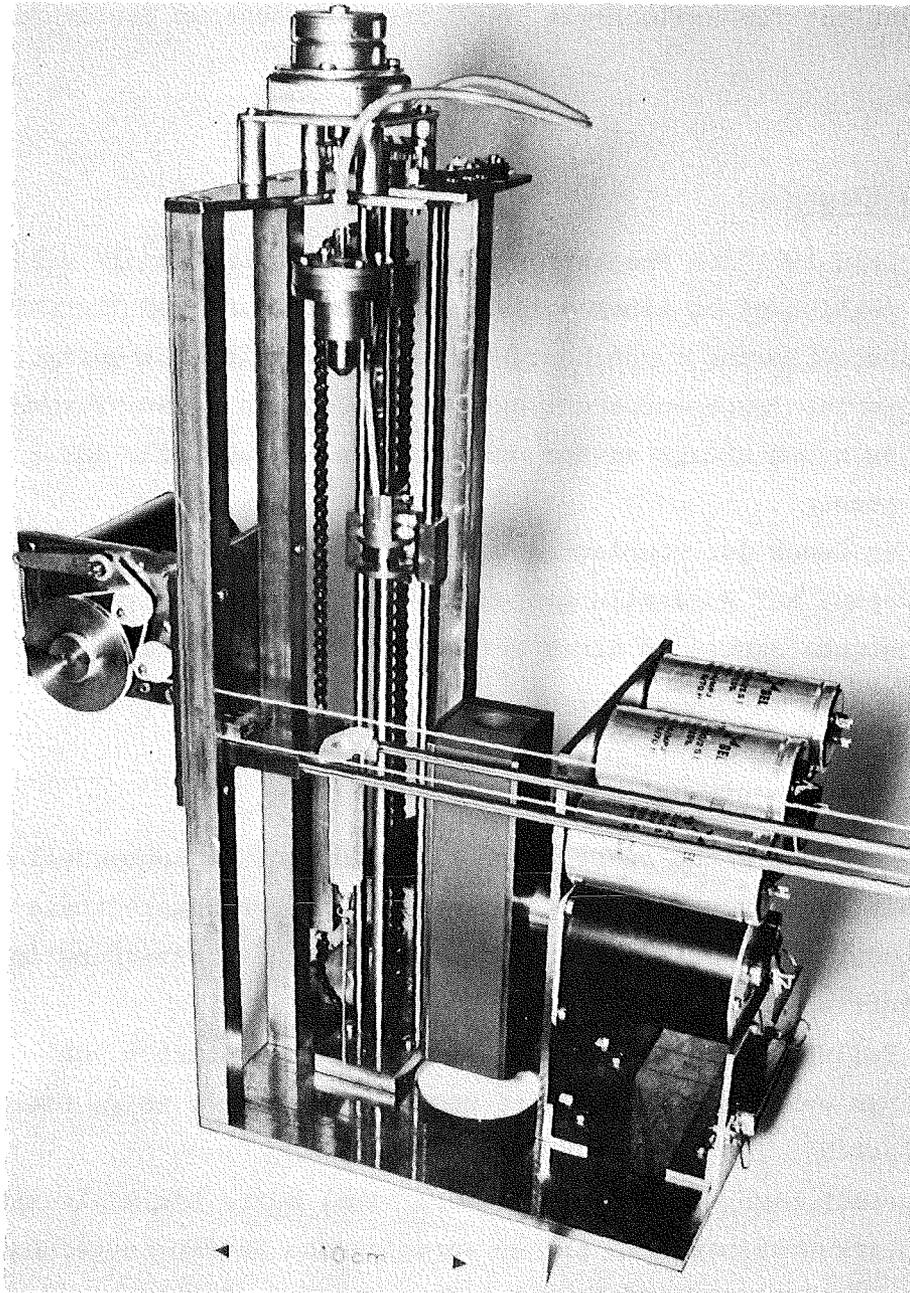


Abb.:1 Lademaschine

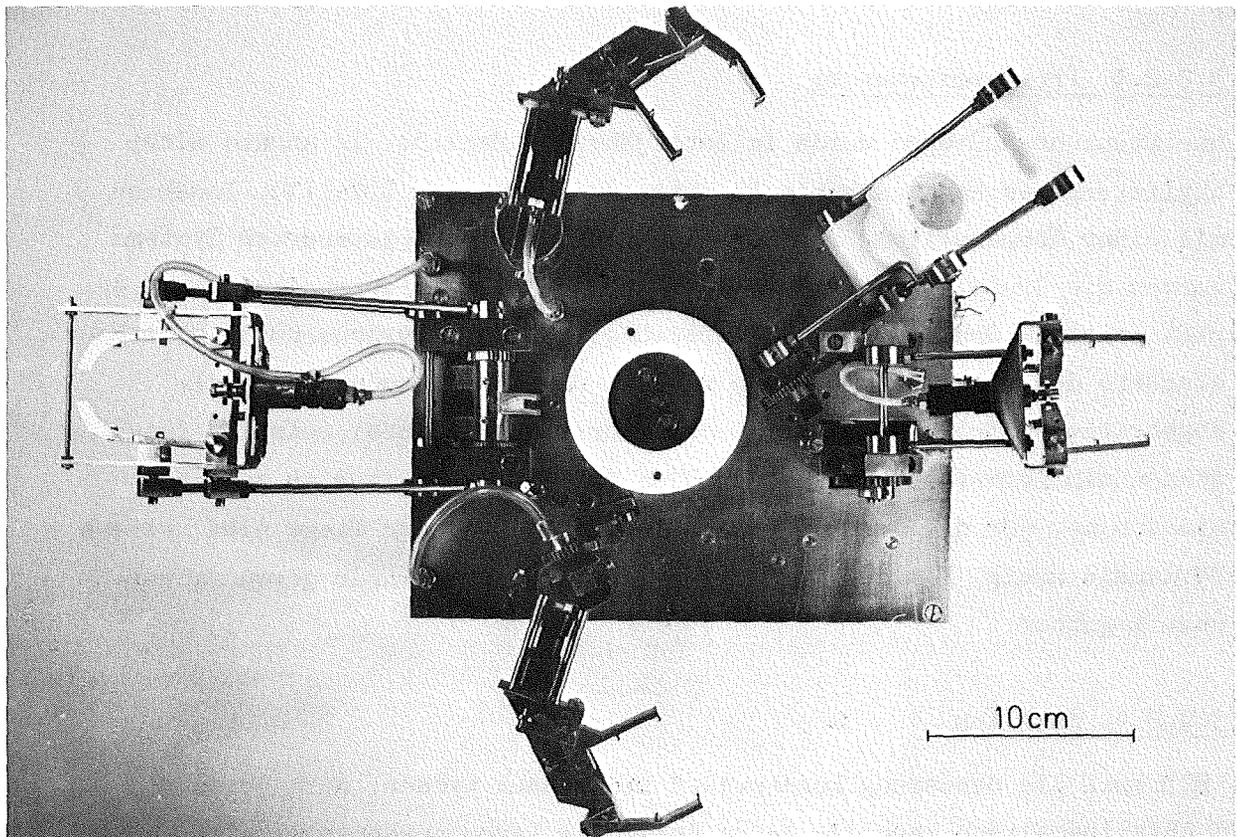


Abb. 2 : Greifersystem

versuchsweise inaktive Lösungen ferngesteuert herzustellen. Die Ergebnisse gleichen denjenigen von Proben, die sorgfältig von Hand verarbeitet wurden. Abb. 3 zeigt den endgültigen Zustand der Vorbereitungsbox nach Abschluß des mechanischen Aufbaus in einer schematisierten Draufsicht.

3.2.2.3 Programmsteuerung

Der Steuerungsaufwand wurde im letztjährigen Bericht /1/ anhand einer Auflistung des Handlungsablaufs charakterisiert (S. 107-117). Zusammen mit einer Überarbeitung der Stromlaufpläne des handgesteuerten Systems wurden die Grundlagen für eine Schaltfolgesteuerung erarbeitet. Abb. 4 gibt in einem Grundriß der Vorbereitungsbox die anzusteuern den Antriebselemente der Anlage schematisch wieder. Jeder Antrieb versetzt die angetriebenen Teile in 2 bis 15 definierte Lagen; dabei entsteht insgesamt ein Bedarf von ca. 150 Kanälen für den Signalfluß in beiden Richtungen. Für die Regelung und Datenübertragung der Waage sind weitere 34 Kanäle nötig. Mit dem Aufbau des Schaltschranks wurde gegen Jahresende begonnen.

3.2.2.4 Ausblick

1973 soll die Steuerung konstruiert und gebaut werden. Nach Anbau von 3 Abfallbehältern kann die ganze Anlage im Labor zusammengestellt werden und in Betrieb gehen.

Literatur

- /1/ Projekt SpFK, Jahresbericht 1971, KFK 1618 (1972)
- /2/ A. v. Baeckmann; IAEA STI/PUB/337 33 (1972) Wien
- /3/ A. v. Baeckmann, J. Neuber, M. Wilhelmi und L. Koch;
IAEA STI/PUB/291 (1972) Wien

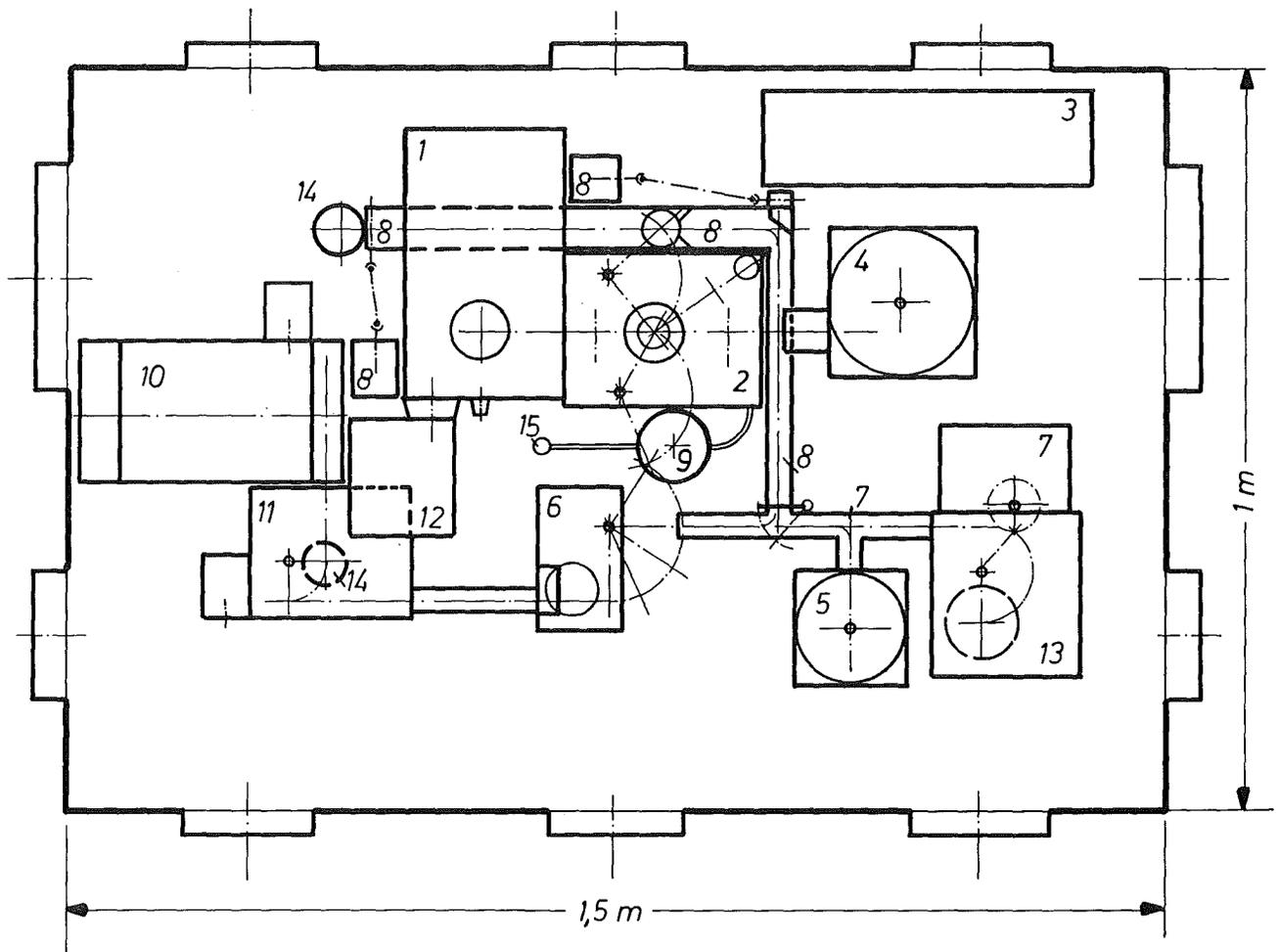


Abb. 3: Schematisierte Draufsicht

- | | |
|-----------------------|-----------------------------------|
| 1 Elektronische Waage | 9 Ausguß |
| 2 Greifersystem | 10 Pipettenmagazin |
| 3 Dosierpumpen | 11 Lademaschine |
| 4 Bechermagazin | 12 Stellantrieb |
| 5 Bechermagazin | 13 Probenwechsler |
| 6 Pipettiermaschine | 14 Fallrohre für festen Abfall |
| 7 Transportband | 15 Ableitung für flüssigen Abfall |
| 8 Transportband | |

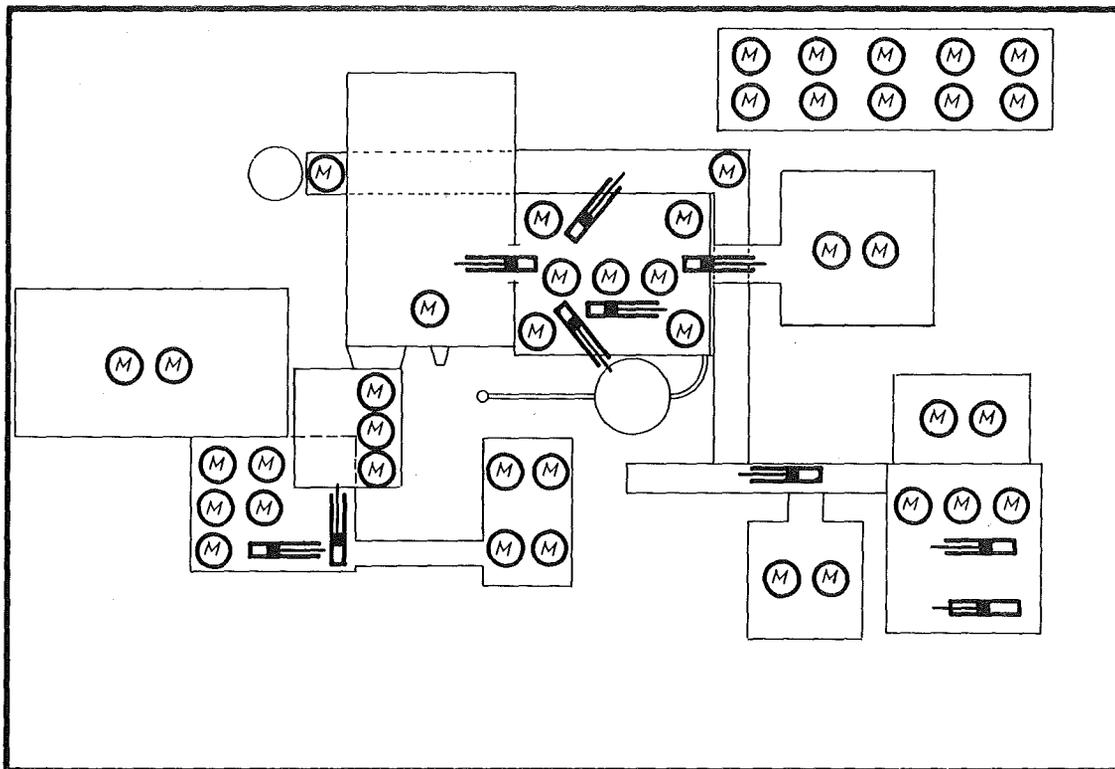


Abb. 4 : Antriebselemente

Symbole :

- Ⓜ Synchron-Getriebemotor
- ☰ Pneumatikzylinder, einfach wirkend, mit Rückholfeder
- ☒ Pneumatikzylinder, doppelt wirkend

3.2.3 Versuche zur emissionsspektrometrischen Isotopenbestimmung in Kernbrennstoffen

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

3.2.3.1 Einleitung

Wie vorhergehende Untersuchungen gezeigt haben /1/ sind für die emissionsspektroskopischen Isotopenanalysen Linienbreiten von $< 15 \text{ m}\text{\AA}$ erforderlich, damit die Isotopenlinien, deren Abstand in der Größenordnung von ca. $30 \text{ m}\text{\AA}$ liegen, noch getrennt gemessen werden können.

Unsere Apparatur wurde deshalb um die sogenannte "Grimmsche-Lampe" erweitert, da mit dieser Anregung, wie Dogan et al /2/ zeigen konnte, sehr scharfe Linien erreicht werden können. Die Neumontage der gesamten Anlage, die dadurch notwendig geworden war, wurde abgeschlossen. An der Feinjustierung wird z.Zt. gearbeitet.

3.2.3.2 Versuche zur Messung der Untergrundstruktur

Für unsere Versuche zur Absolutmessung mußte der Einfluß der Untergrundstruktur auf die Meßergebnisse analysiert werden. Zunächst sind photographische Aufnahmen mit NBS Uranisotopenstandards gemacht worden. Auf diese Weise kann der gesamte interessierende Wellenlängenbereich gleichzeitig erfaßt werden. Die photographische Registrierung zeigte eine Feinstruktur im Bereich der U-236-Linie, deren Einfluß bei geringem U-235-Gehalt untersucht werden sollte (Abb. 1).

Bei Versuchen, diese Feinstruktur mit Hilfe der photoelektrischen Messungen aufzuklären, stießen wir auf Schwierigkeiten, die nicht erklärt werden konnten, da die Empfindlichkeit der Photomultiplier im Vergleich zur photographischen Platte größer ist. Im Laufe der Arbeiten zeigte sich, daß die Fehlmessungen im Zusammenhang mit der Nachvergrößerung standen.

3.2.3.3 Kontrolle der Zylinderlinsen

Die zur photoelektrischen Messung notwendige Nachvergrößerung erreichten wir, wie in /3/ ausführlich beschrieben, durch eine Zylinderlinse ($\emptyset 2 \text{ mm}$ $f = 2 \text{ mm}$), für die ein gezogener dünner Glasstab verwendet wird. Ihre Abbildungsverhältnisse wurden eingehend überprüft.

Durch photographische Aufnahmen mit einem Doppelspalt konnten die vorher nicht meßbaren Unebenheiten dieser Linse sichtbar gemacht werden (Abb. 2 bis 5).

Abbildung 2 zeigt den für diese Zwecke hergestellten Doppelspalt.

Abbildung 3 zeigt das durch die fehlerhafte Linse vergrößerte Bild des Doppelspalt. Die Verzerrungen sind deutlich sichtbar. Eine Aufnahme eines einfachen Spaltes zeigt Abbildung 4. Anstelle eines breiten homogenen Bandes sieht man, daß ganze Teile ausgeblendet werden, während in Abbildung 5 der Doppelspalt durch eine einwandfreie Zylinderlinse abgebildet wird.

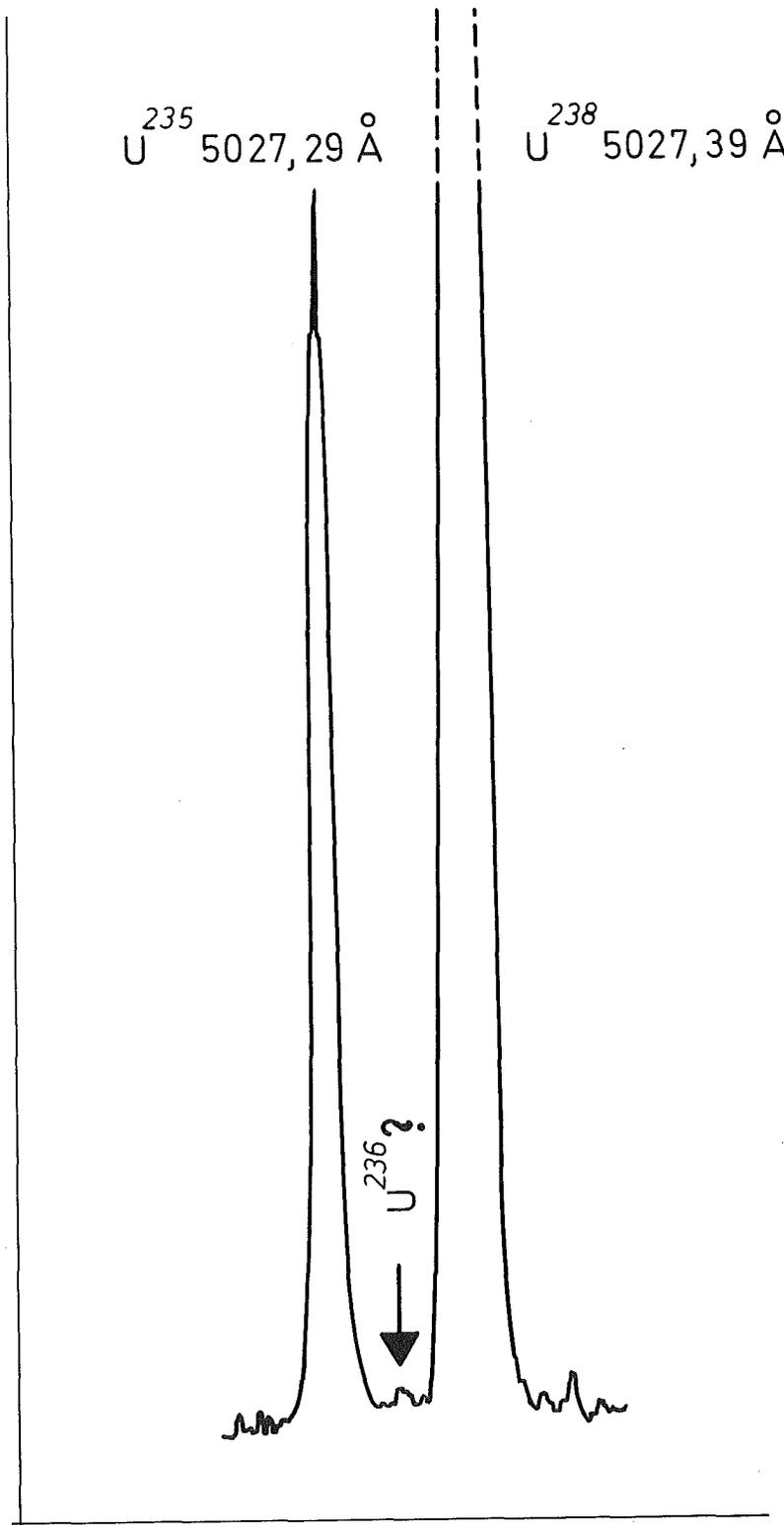
Die Versuche zeigen, daß kleinste Fehler im Linsensystem bei derart starken Vergrößerungen in das Meßsystem stark eingehen. Durch Aussortieren wurden inzwischen zwei fehlerfreie Zylinderlinsen ausgewählt und eingebaut.

Unsere Versuche zur Absolutmessung wurden Anfang 1973 wieder aufgenommen.

Die Montage der Lampe in den Handschuhkästen ist abgeschlossen.

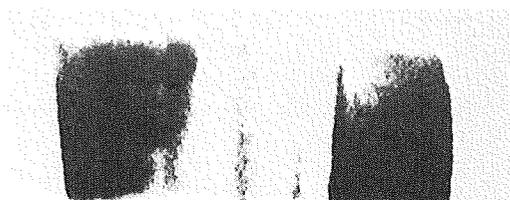
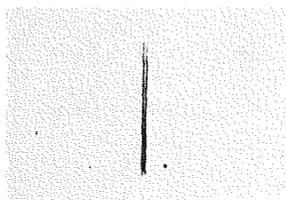
Literatur zu 3.2.3

- /1/ KFK 1618, S. 136 (1972)
- /2/ M. Dogan, K. Laqua, H. Massmann;
Spectrochim. Acta, Vol.26B, 631 (1971)
- /3/ KFK 1429, S.167 (1971)



3.2.3

Abb. 1: Feinstruktur der Uranisotopen-Emissionslinien bei 5027,3 Å

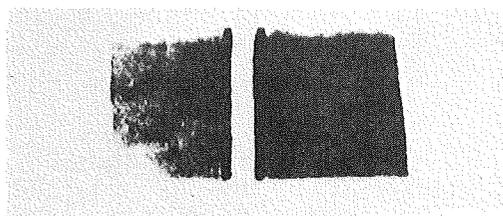


3.2.3

Abb. 2: Doppelspalt

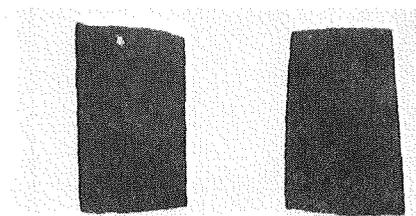
3.2.3

Abb. 3: Abbildung des Doppelspalts durch fehlerhafte Linse



3.2.3

Abb. 4: Abbildung eines Einfachspaltes durch fehlerhafte Linse



3.2.3

Abb. 5: Abbildung des Doppelspaltes durch eine einwandfreie Zylinderlinse

3.2.4 Isotopenkorrelationen der schweren Isotope und ausgewählter Spaltprodukte /2/

A. Cricchio, F. Gérin, L. Koch; Europäisches Institut für Transurane
W. Krause; Institut für Radiochemie

Im Berichtszeitraum wurden Korrelationen der Uran- und Plutoniumisotope und der Spaltproduktisotope für verschiedene Reaktoren untersucht und an Hand von zwei Experimenten bei der Wiederaufarbeitung bestrahlter Brennelemente die Brauchbarkeit der Spaltedelgasisotopenkorrelationen demonstriert.

3.2.4.1 Datenbank

Die DATABANK des TU-Instituts /1/ enthält zur Zeit Analysenresultate von ca. 150 Proben bestrahlter Brennstoffe verschiedener Leichtwasserreaktoren mit unterschiedlicher U-235-Anfangsanreicherung. Diese Analysenresultate wurden zum großen Teil bei Nachbestrahlungsuntersuchungen einzelner Brennstofftabletten erhalten. Sie haben sich als sehr nützlich für die Untersuchungen von Isotopenkorrelationen erwiesen. Diese Isotopenkorrelationen können im Rahmen der Spaltstoffflußkontrolle auch auf die Verifikation von Analysenresultaten angewendet werden, obgleich jene bei der Wiederaufarbeitung von ganzen Brennelementbündeln erhalten werden. Durch geeignete Auswahl von Brennstofftabletten eines Brennelementbündels unter Berücksichtigung verschiedener Abbrandparameter kann man sowohl die Gültigkeit der Isotopenkorrelationen über einen großen Abbrandbereich, als auch den Einfluß der einzelnen Abbrandparameter auf die Isotopenkorrelationen untersuchen.

Die Möglichkeit, die Datenbank zur Untersuchung von Isotopenkorrelationen zu verwenden, sei im Folgenden dargestellt:

Für verschiedene Druckwasserreaktoren wurden Korrelationen zwischen dem Verhältnis Cs-134/137 und den verschiedenen Abbrandparametern beobachtet. Der Vorteil dieser Isotopenkorrelationen besteht in der Möglichkeit das Cäsium-Isotopenverhältnis mittels γ -Spektrometrie zerstörungsfrei zu messen.

Wenn auch die Bestimmung der Spaltstoffmengen durch Isotopenkorrelation zweifelhaft ist, so scheint doch die Identifizierung eines Brennelementes über seinen Abbrand möglich. Aus unseren Resultaten folgt, daß auch für Siedewasserreaktoren diese Korrelation zur Identifizierung des Brennstoffs herangezogen werden kann. Es wurden Analysenresultate der drei Siedewasserreaktoren Garigliano, Lingen und Dodewaard verwandt.

In Tab. 1 sind die Faktoren a und b der Korrelationsgleichung $F_t = ax \pm b$ für $x = \text{Cs-134/137}$ -Verhältnisse eingetragen. Wie die unterschiedlichen Faktoren zeigen, gilt dieser Typ von Korrelation nicht universell für Siedewasserreaktoren, wie es für die stabilen Produkte des Neodyms und der Spaltedelgase beobachtet wurde.

Reaktor	a	b
GARIGLIANO BWR	23,0 \pm 2,6	(0,37 \pm 0,18)
LINGEN BWR	31,6 \pm 2,8	(0,49 \pm 0,20)
DODEWAARD BWR	20,44 \pm 1,82	(0,177 \pm 0,121)

3.2.4

Tab. 1 Faktoren der Korrelationsgeraden $F_t = ax \pm b$ für $x = \text{Cs-134/137}$ von verschiedenen Siedewasserreaktoren

Bekanntlich werden Isotopenkorrelationen mehr oder weniger stark durch Änderung des Neutronenenergiespektrums beeinflusst. Auf Grund des unterschiedlichen Dampfblasengehaltes läßt sich dieser Effekt an Tabletten des Brennstoffes von Siedewasserreaktoren besonders gut untersuchen.

Wie unterschiedlich die bekannten Isotopenkorrelationen auf eine Änderung des Neutronenenergiespektrums reagieren, ist aus den vier Abbildungen (Abb. 1,2,3,4) zu ersehen. Zugrunde gelegt sind Analysenresultate, die anlässlich von Nachbestrahlungsuntersuchungen des Siedewasserreaktors Lingen erhalten wurden. Die bekannte /2/ Schwerisotopenkorrelation zwischen $(\text{Pu/U})/D_5$ und U-235/U-238 zeigt sich besonders empfindlich gegenüber Änderungen des Neutronenenergiespektrums. Dies ist nicht der Fall für die Korrelationen zwischen den Plutonium-Isotopen und den stabilen

Spaltprodukten des Neodyms und Xenons (Abb. 2,3) und auch nicht für die Korrelationen zwischen dem Abbrand und dem U-235/238-Verhältnis. Aus der letztgenannten Korrelation ist ersichtlich, daß die untersuchten Proben zwei verschiedene U-235-Anreicherungen hatten (Abb. 4).

3.2.4.2 Spaltisotopenkorrelationen bei der Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen

Um zu überprüfen inwieweit Spaltisotopenkorrelationen zur Verifikation der Eingangsanalyse bei der Wiederaufarbeitung benützt werden können, wurden 2 Experimente durchgeführt:

1. In der Anlage der Eurochemic in Mol wurden während sieben Auflösungen des Brennstoffes des Druckwasserreaktors SENA Gasproben entnommen. Die Entnahme der Proben gestaltete sich sehr einfach (Abb. 5):

Aus einer Abgasleitung wurde während des ganzen Zeitraums der Auflösung ständig in einer evakuierten Flasche, deren Saugwirkung man durch Kühlung mit flüssigem Stickstoff erhöht hatte, ein Aliquot der Abgase gesammelt. Nach Beendigung der Auflösung brachte man die Flasche auf Raumtemperatur, sodaß sich das Gas vermischen konnte. Danach wurde eine kleine Probe von ca. 100 ccm entnommen. Für die massenspektrometrische Analyse in Karlsruhe mußte das Gas durch fraktionierte Kühlung von Stickstoff, Stickoxiden und Feuchtigkeit getrennt werden. Die massenspektrometrische Analyse der Spaltedelgasisotope war danach ohne Schwierigkeiten möglich. Für die Aufstellung der Isotopenkorrelationen zog man zusätzlich Resultate der Nachbestrahlungsuntersuchungen von TRINO-Brennstofftabletten hinzu, da der Abbrand der SENA-Brennelemente bis auf eine Auflösung so ähnlich war, daß mit diesen Daten alleine keine Isotopenkorrelation hätte aufgestellt werden können. Die Abb. 6 und 7 illustrieren die Möglichkeit der Isotopenkorrelationen. Eine ausführliche Beschreibung dieses Experimentes ist in den Proceedings des Mol IV-Experiments gegeben /3/.

2. Während der Wiederaufarbeitung des Brennstoffes des Druckwasserreaktors (KWO) in der WAK in Karlsruhe wurden ebenfalls von fünf Auflösungen Gasproben genommen. Im Gegensatz zu der Anlage in Mol, wo die Hülle des Brennstoffs chemisch aufgelöst wird, benutzt man in Karlsruhe das sog. "chop and leach"-Verfahren. Dadurch wird eine weitgehende Homogenisierung des Brennstoffes erreicht, sodaß es nicht erforderlich ist, während der ganzen Auflösungszeit eine Gasprobe zu ziehen. Für die Probenahme wurde in einem bereits existierenden by-pass zur Messung der Aktivität der Abgase ein Gasprobenbehälter eingeführt (Abb. 8). Der Behälter wurde während der Zeit der Probenahme gekühlt, um eine größere Gasmenge zu kondensieren. Die Reinigung des Gases erfolgte wie vorher beschrieben.

Zwischen den Resultaten der Gasanalyse und den Isotopenmengen in der Eingangsanalyse wurden erwartungsgemäß Korrelationen aufgedeckt (Abb. 9 und 10). Zu berücksichtigen ist hier, wie auch im Falle der Analysen bei der Eurochemic, daß die Eingangsanalysen korrigiert wurden für den in der Anlage rückgeführten Brennstoff (Abb. 11 und 12).

3.2.4.3 Isotopenkorrelationen als Möglichkeit zur Verifikation der Eingangsanalyse

Die Resultate der beiden oben beschriebenen Experimente, insbesondere die, welche bei der Aufarbeitung des KWO-Brennstoffs gewonnen wurden, lassen einen Vergleich folgender Möglichkeiten der Eingangsanalyse zu:

1. die meist angewandte, vom Standpunkt des Betreibers besonders geeignet erscheinende Analysenmethode ist eine direkte Bestimmung der Uran- und Plutonium-Isotopenmengen in der Speiselösung. Hierbei werden Volumen und Dichte gemessen und in einem repräsentativen Aliquot mittels massenspektrometrischer Isotopenverdünnungsanalyse die Uran- und Plutonium-Isotopenkonzentrationen bestimmt. Dieses Resultat muß korrigiert werden für die Brennstoffmengen, die in der rückgeführten Säure zur Auflösung des Brennstoffes enthalten sind.
2. Eine weitere Möglichkeit zur Bestimmung der Eingangsmenge bei der Wiederaufarbeitung geht über die massenspektrometrische Bestimmung des U/Pu-Verhältnisses durch Isotopenverdünnungsanalyse (die Kenntnis des Abbrandes ist erforderlich). Die Uranmenge ist aus der Brennelementherstellung bekannt. Dieses Verfahren wird in der Anlage in

Windscale angewandt. Der Vorteil dieser Methode gegenüber der erstgenannten ist, daß die Volumenmessung der Speiselösung und somit die Aliquotierung der Probe entfällt; doch auch hier stört das Plutonium, das in der rückgeführten Säure enthalten ist.

3. Die Isotopenkorrelationen zwischen Uran und Plutonium können auch als unabhängige Methode zur Eingangsanalyse benutzt werden, indem man davon ausgeht, daß aus einer Datenbank eine geeignete Korrelation ausgewählt wird. Werden die Uran- und Plutonium-Isotopenverhältnisse der Dissolverlösung gemessen, so lassen sich die Isotopenkonzentrationen mit Hilfe der Korrelationen ermitteln. Die Gesamtmenge des Plutoniums und Urans folgt dann aus den Brennstoffanfangsgewichten. Auch hier stört die Rückführung des Plutoniums in der Säure insofern, als seine Isotopenzusammensetzung von der des gerade aufzulösenden Brennelementes abweicht. Verglichen mit der unter 1) erwähnten direkten Bestimmung und der U/Pu-Verhältnismethode, entfällt die Isotopenverdünnung. Somit ist das Analysenresultat praktisch vorgegeben durch das bekannte Brennstoffanfangsgewicht, die Isotopenkorrelation und die Uran-, Plutonium-Isotopenanalyse der Speiselösung.
4. Die Isotopenkorrelationen der Spaltedelgase besitzen gegenüber den eben erwähnten schweren Isotope den Vorzug, daß sie in keinem Fall durch Rückführung von Plutonium innerhalb der Anlage gestört werden. Außerdem ist zur Durchführung der Analysen ein direkter Zugang zur Anlage nicht mehr erforderlich, da die Gasproben aus dem Schornstein entnommen werden.

Wie bereits erwähnt, kann diese Probenahme beim "chop and leach"-Prozeß innerhalb von 10 Minuten erfolgen, sodaß das Analysenresultat vorliegt, bevor die Auflösung beendet ist.

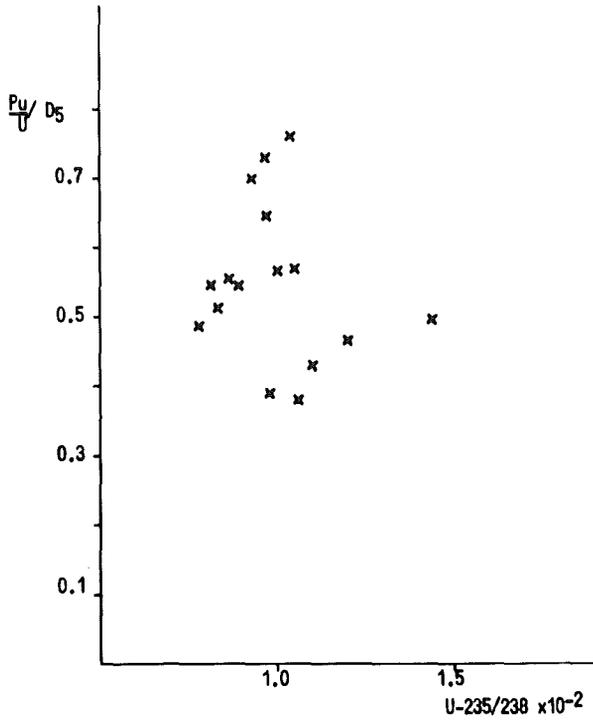
In der Tab. 2 sind die Resultate, die für die Wiederaufarbeitung des KWO-Brennstoffes nach den vier verschiedenen Methoden erhalten wurden, zusammengestellt. Es werden angegeben:

die Gesamtmenge jedes einzelnen Isotops für alle untersuchten Chargen, die Resultate sind bezogen auf die der U/Pu-Verhältnismethode (Methode 2), die relative prozentuale Abweichung und die relative prozentuale Standardabweichung für die einzelnen Chargen.

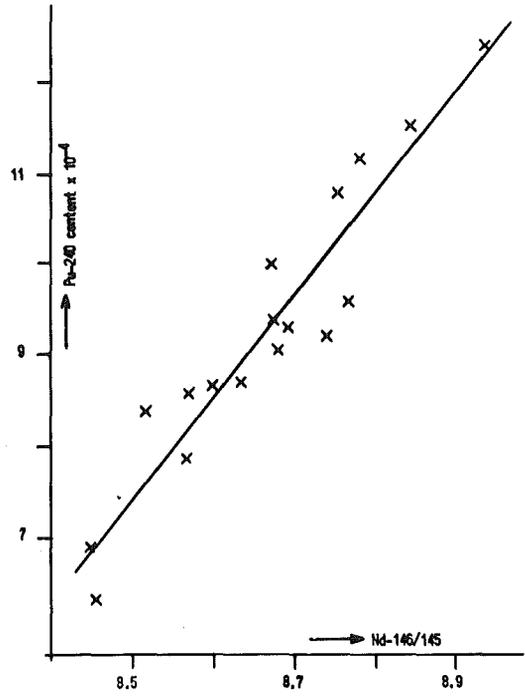
Die Übereinstimmung zwischen den Resultaten der direkten Bestimmung und denen der U/Pu-Verhältnismethode ist am besten. Dabei darf man jedoch nicht übersehen, daß mit Ausnahme der Bestimmung der Uranmenge die gleichen Werte der Berechnung zugrunde liegen, d.h., der Einfluß der Isotopenzusammensetzung des rückgeführten Plutoniums z.B. tritt nicht in Erscheinung und erklärt zumindest teilweise die Abweichung für die Plutoniumwerte der beiden anderen Methoden. Die Uranwerte der Schwerisotopenkorrelationsmethode werden analog zur U/Pu-Verhältnismethode berechnet und zeigen deshalb keine Abweichung. Die Abweichungen zwischen den einzelnen Methoden können z.T. durch systematische Fehler hervorgerufen werden. Die Wahrscheinlichkeit für das Auftreten eines systematischen Fehlers ist größer für die direkte Analyse und für die U/Pu-Verhältnismethode (Tab. 3); auch ist der Arbeitsaufwand für diese Methoden größer. Betrachtet man die Verfälschungssicherheit der Analysenergebnisse so wird ersichtlich, daß bei der direkten Analyse alle Meßgrößen für den Betreiber der Anlage frei einstellbar sind. Bei der U/Pu-Verhältnismethode jedoch ist die Gesamtmenge des Brennstoffes vorgegeben. Für die Schwerisotopenkorrelation wird der Uran- und Plutoniumgehalt des Brennstoffes zusätzlich festgelegt; doch genügt jeder beliebige Teil des Brennstoffes der angewandten Isotopenkorrelation, sodaß eine eindeutige Zuordnung zwischen Plutoniumisotopenanalyse einerseits und aufgelösten Brennelementen andererseits nicht ohne weiteres zwingend ist. Nur die Spaltdelgasisotopenkorrelation ist auch in diesem Falle eindeutig, da die Identifizierung des Brennstoffes im Auflöser und die Freisetzung der Spaltgase beim Auflösen mit gleichzeitiger Probenahme unmittelbar sind. Wenn auch die Ergebnisse der hier geschilderten zwei Experimente kein endgültiges Urteil zulassen, so kann man doch feststellen, daß Isotopenkorrelationen im Rahmen der Spaltstoffflußkontrolle eine geeignete Möglichkeit der Verifikation der Eingangsanalysen darstellen können.

Referenzen:

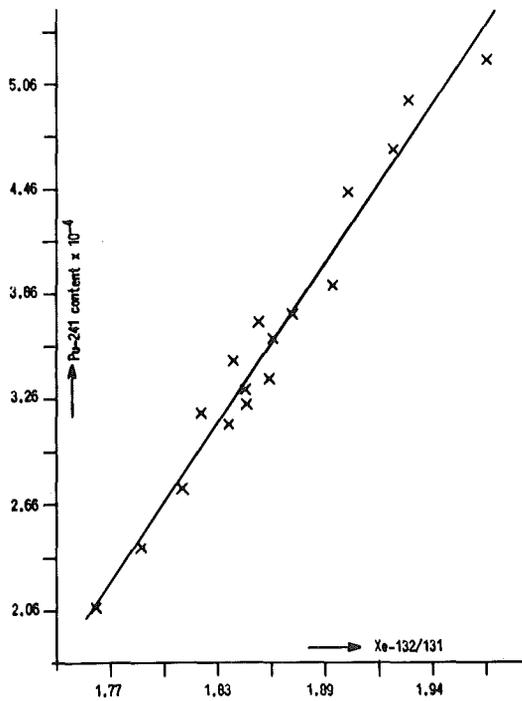
- /1/ Dieser Bericht Kapitel 3.2.1.3
- /2/ KFK 1618, Seite 142ff (1972)
- /3/ CEN-Mol im Druck (1973)



3.2.4
Abb.1 Korrelation zwischen
(Pu/U)D₅ und U-235/238

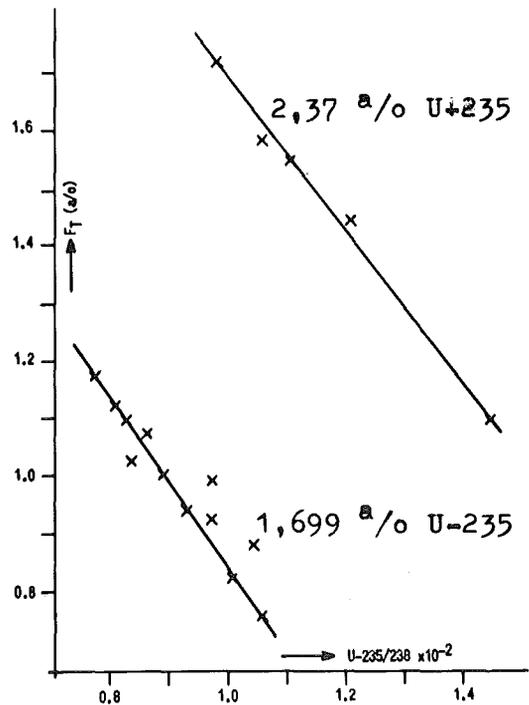


3.2.4
Abb.2 Korrelation zwischen
Pu(2)-240/U(1)gesamt
und Nd-146/145

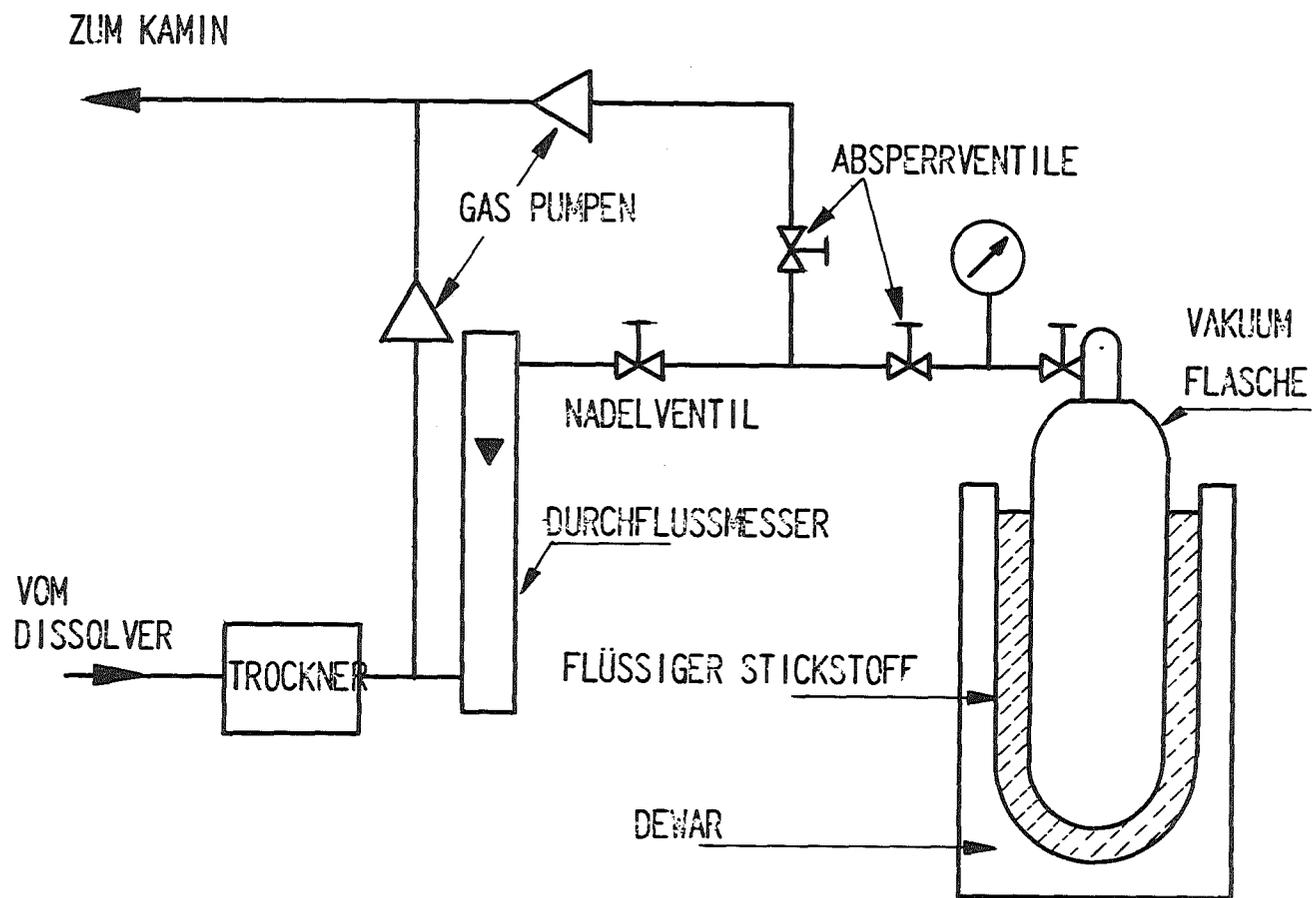


3.2.4
Abb.3 Korrelation zwischen
Pu(2)-241/U(1)gesamt
und Xe-132/131

Pu(2) = Plutonium-Menge nach Bestrahlung
U(1)gesamt = Gesamt-Uranmenge vor Bestrahlung

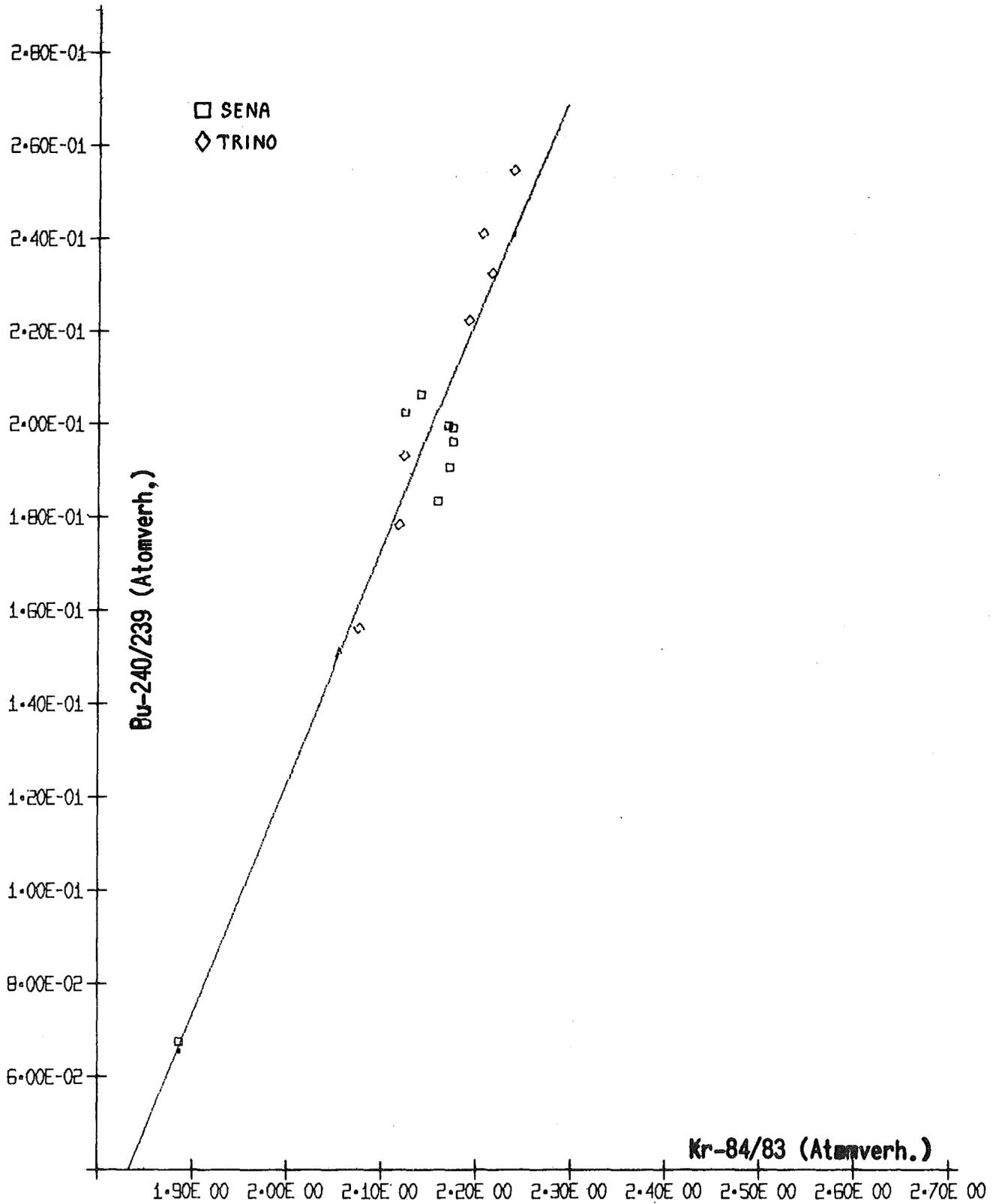


3.2.4
Abb.4 Korrelation zwischen
F_T und U-235/238



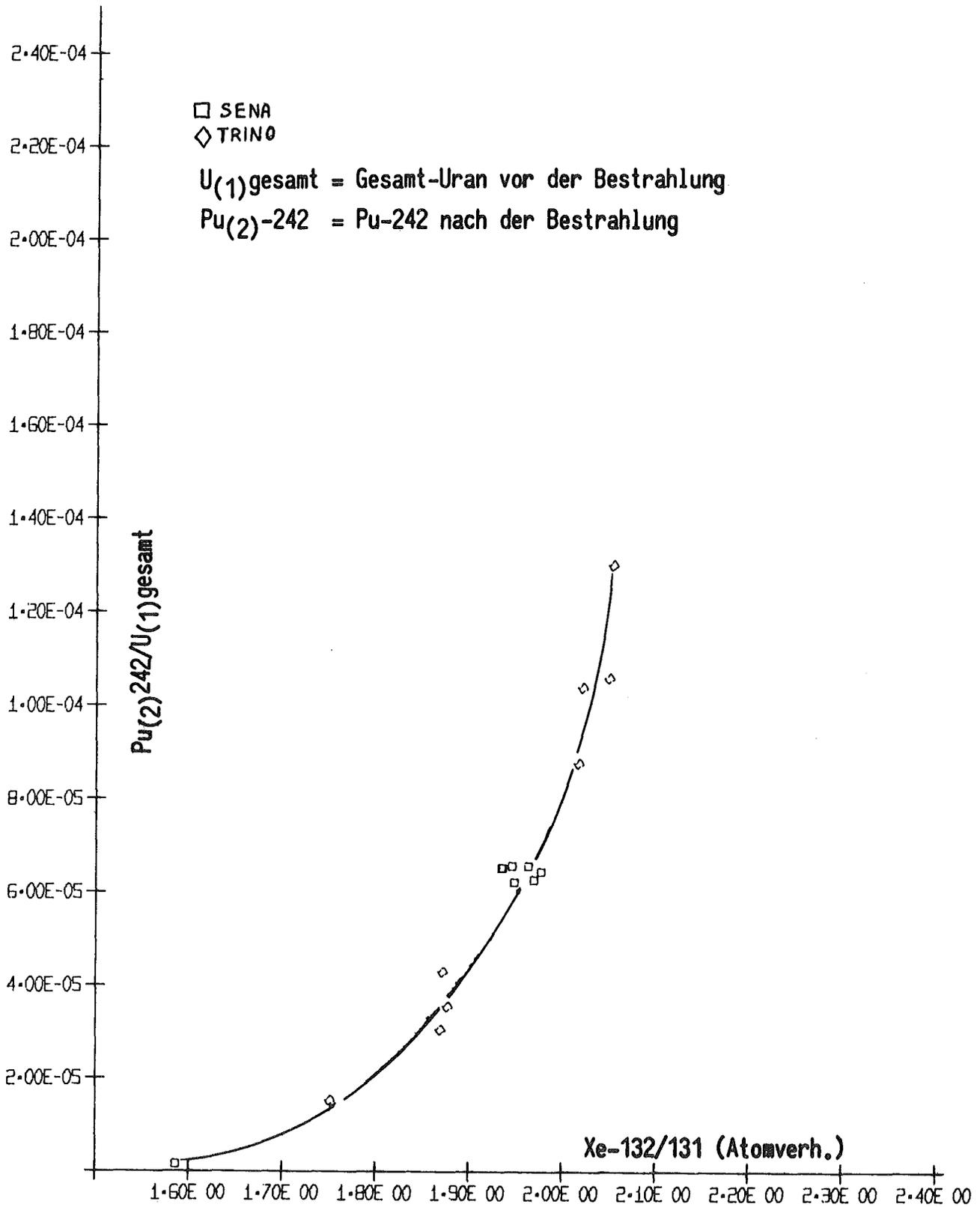
3.2.4
Abb.5

ANORDNUNG DER GASENTNAHME BEI DER EUROCHEMIC IN MOL



3.2.4.

ABB-00006 CORRELATION BETWEEN PU-240/239 AND KR-84/83

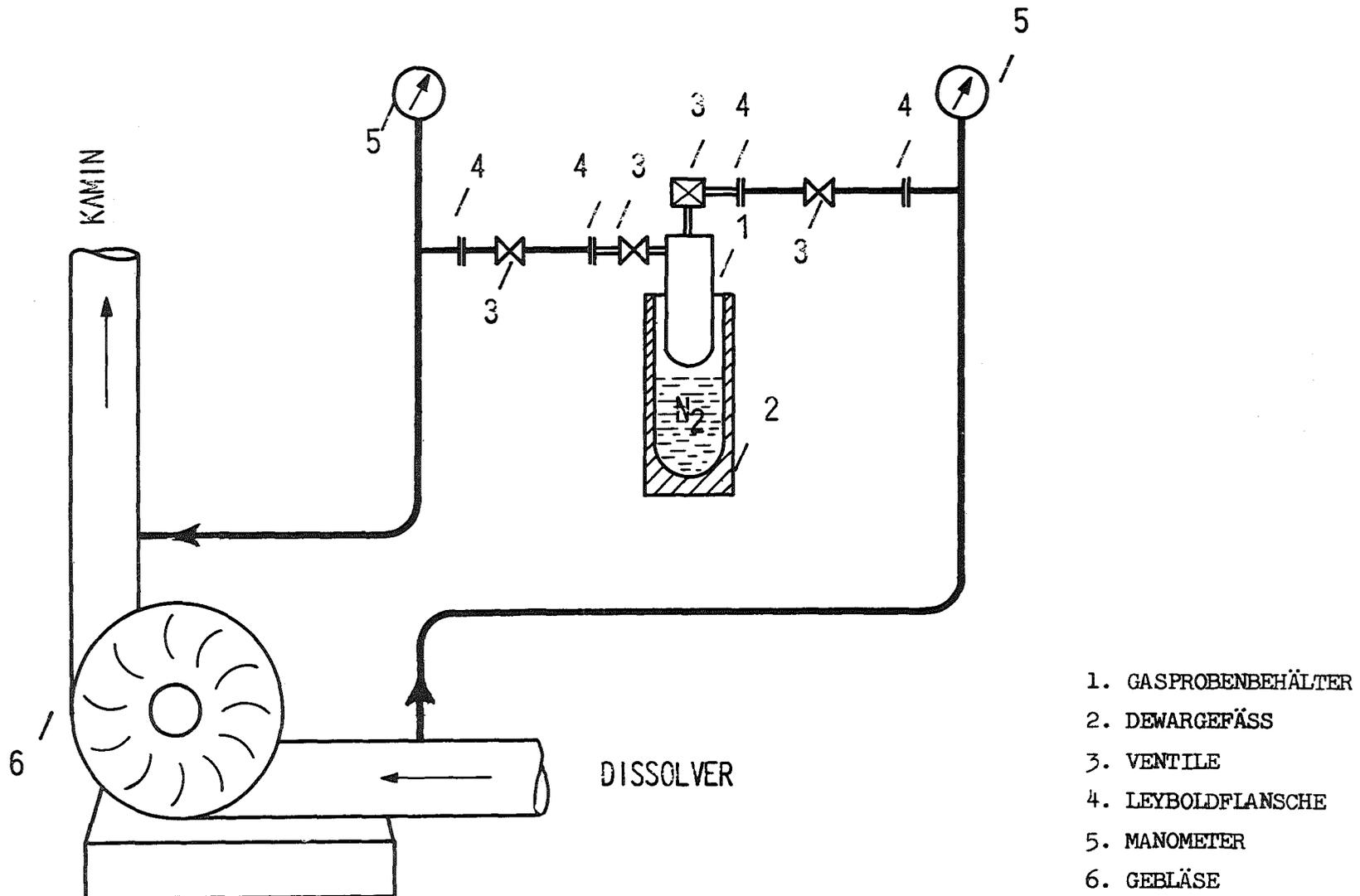


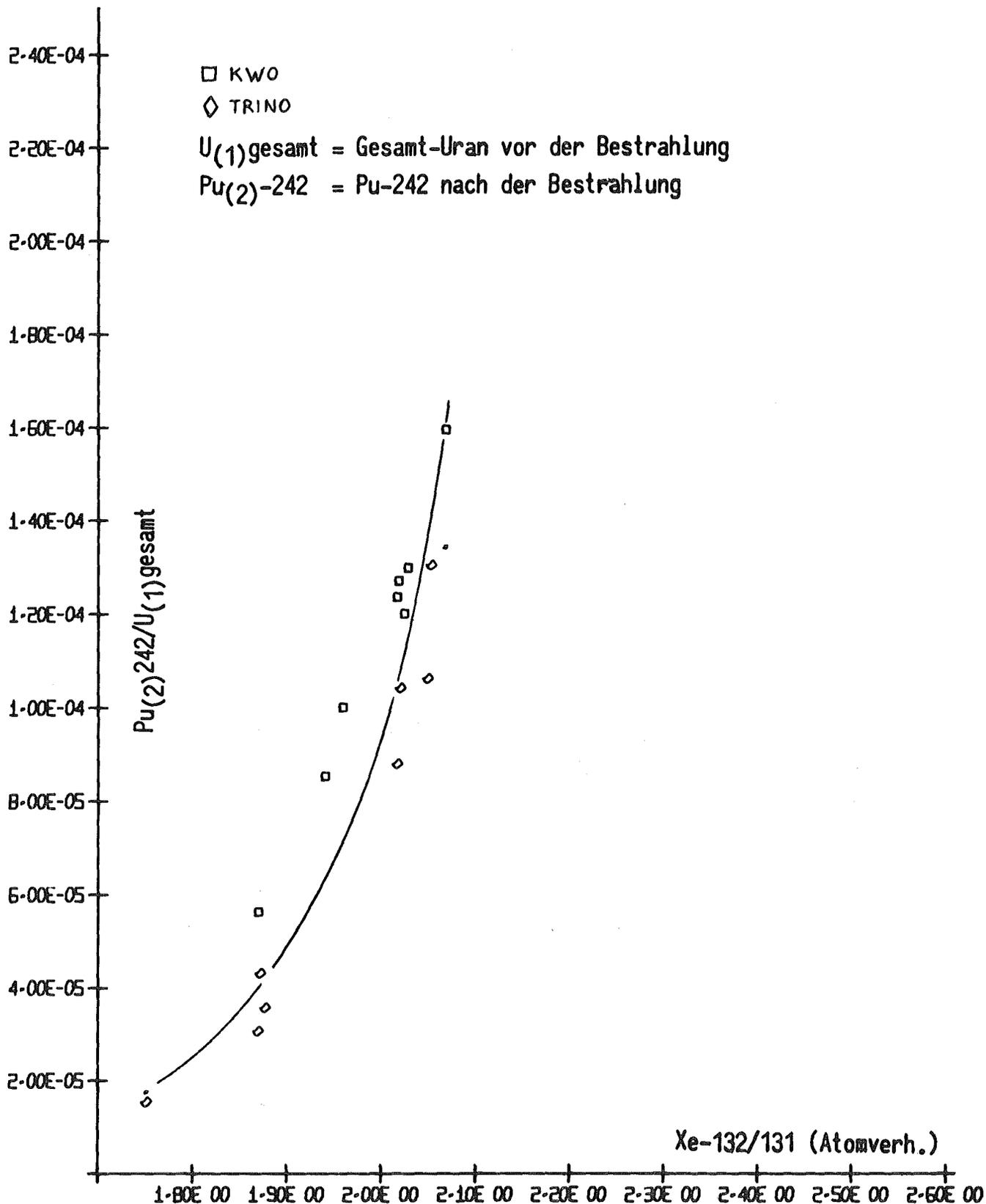
3.2.4.

ABB-00007 CORRELATION BETWEEN PU-242 AND XE-132/131

3.2.4.

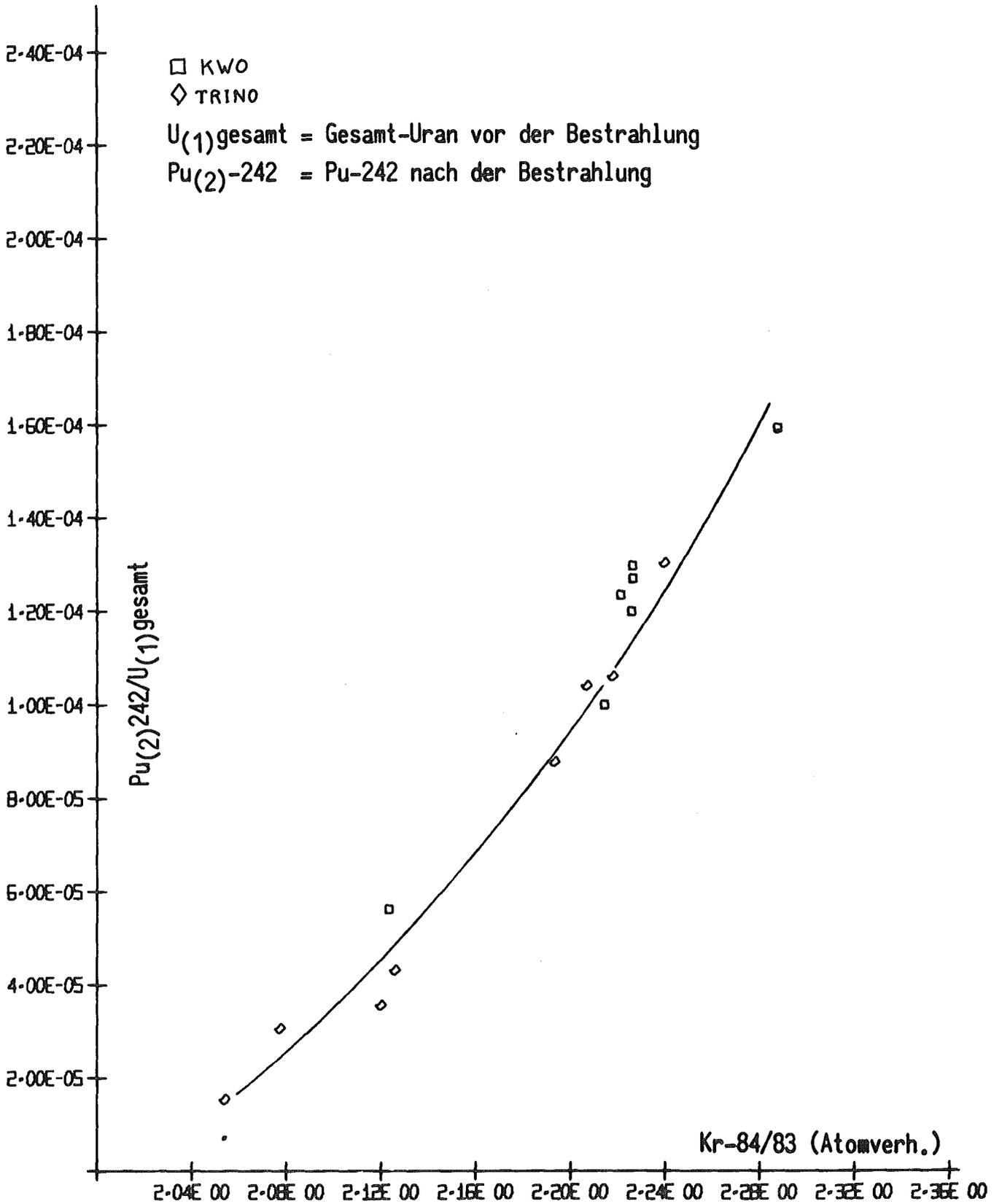
Abb. 8 ANORDNUNG DER GASENTNAHME BEI DER W A K





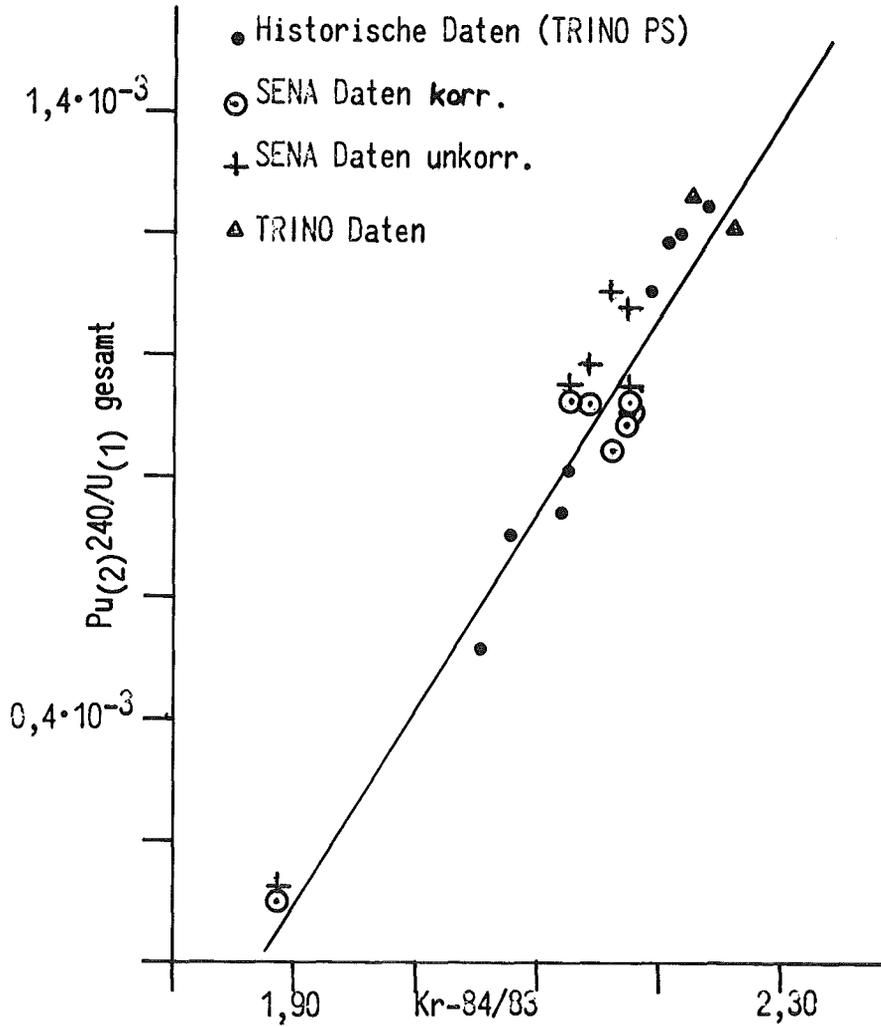
3.2.4.

ABB-00009 CORRELATION BETWEEN PU-242 AND XE-132/131



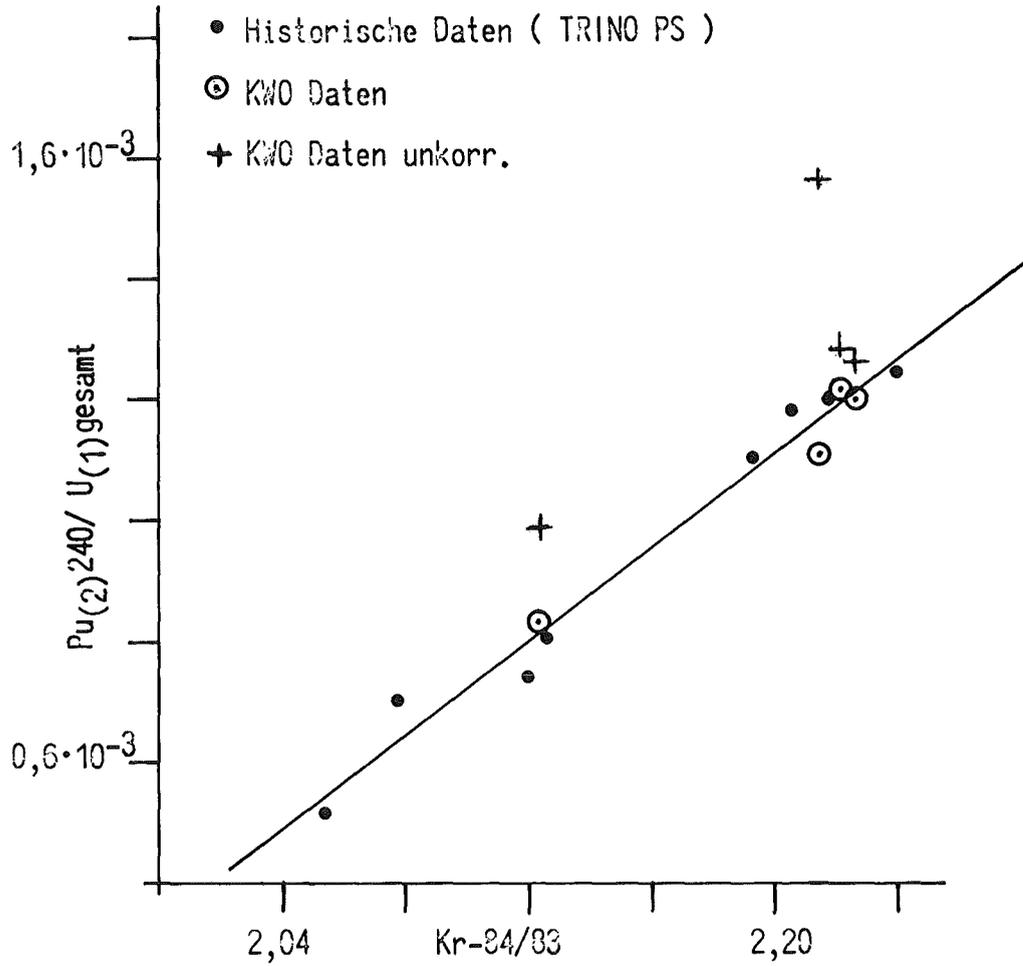
3.2.4.

ABB-00010 CORRELATION BETWEEN PU-242 AND KR-84/83



3.2.4.

Abb 11 Isotopenkorrelation zwischen $Pu(2)240/U(1)$ gesamt und Kr-84/83 (Atomverh.)



3.2.4.

Abb.12 Isotopenkorrelation zwischen $Pu_{(2)}^{240} / U_{(1)gesamt}$ und $Kr-84/83$ (Atomverh.)

METHODE	U-235 (Kg) ± 6%; Δ%	U-238 (Kg) ± 6%; Δ%	Pu-239 (Kg) ± 6%; Δ%	Pu-240 (Kg) ± 6%; Δ%	Pu-241 (Kg) ± 6%; Δ%	Pu-242 (Kg) ± 6%; Δ%
1 Direkte Methode	10,78 ±0,80; +0,14	686,2 ±0,78; +0,06	3,048 ±0,83; +0,09	0,8021 ±0,84; +0,01	0,3576 ±0,85; +0,03	0,0733 ±0,79; -0,14
2 U/Pu-Verhältnis	10,80	686,6	3,051	0,8022	0,3577	0,0732
3 Pu-240/241 Korr.	10,80 ± 0 ; 0	686,6 ± 0 ; 0	3,003 ±2,2 ; +1,6	0,7808 ±2,3 ; +2,7	0,3451 ±2,6 ; +3,5	0,0699 ±2,7 ; +4,4
4 Kr-84/83 Korr.	10,70 ±1,2 ; +0,87	687,8 ±0,13; -0,17	2,980 ±1,8 ; +2,3	0,7784 ±1,9 ; +3,0	0,3427 ±2,7 ; +4,2	0,0670 ±5,4 ; +8,5

$$\pm 6 \% = \pm 100 \left[\frac{\sum (IV - I)^2}{n (n-1)} \right]^{-1/2}$$

$$\Delta \% = 100 \left(\frac{\sum IV - \sum I}{\sum IV} \right)$$

3.2.4

Tab.2

METHODENVERGLEICH (Genauigkeit) anhand der Wiederaufarbeitung des KWO Brennstoffes

Kapitel 4 : Containmentmaßnahmen

- 4.1 Arbeiten am Accountabilitytank
 D. Nentwich

- 4.1.1 Prüfung der Strahlenbeständigkeit
 der Ultraschallsonden

- 4.1.2 Untersuchungen zum Probenahmefehler

- 4.1.3 Tracer

- 4.2 Arbeiten zur Versiegelung und Identifizierung
 von Brennelementen
 D. Nentwich, W. Scheuerpflug

- 4.3 Spaltstoffschutzmaßnahmen
 D. Gupta

Kapitel 4 : Containmentmaßnahmen

4.1 Arbeiten am Accountabilitytank

Die im Jahre 1971 begonnenen Arbeiten konnten zum größten Teil beendet werden. 1972 konzentrierten sich die Arbeiten auf die Auswertung der Versuchsdaten sowie auf die Fertigstellung des für die IAEA bestimmten Abschlußberichtes. Die IAEA hat sich unter der Vertragsnummer 990/RB finanziell an dem Versuchsprogramm beteiligt. Der Abschlußbericht ist inzwischen als KFK 1700 veröffentlicht worden.

Darüber hinaus wurde ein weiterführendes Versuchsprogramm entwickelt, welches insbesondere zur Lösung von Fragen führen soll, die im Laufe der bisherigen Untersuchungen verstärkt aufgeworfen wurden, und welches 1972 teilweise in Angriff genommen werden konnte:

4.1.1 Prüfung der Strahlenbeständigkeit der US-Meßsonden:

Laut Auskunft der WAK ist die γ -Dosisleistung an Behältern und Rohren, welche Eingangslösung führen, etwa 10^4 bis 10^5 R/h. Die Leistung verteilt sich in etwa in folgender Weise auf die Energiegruppen E_j des Spaltproduktspektrums:

$$E_j = 0.25 \text{ MeV} \quad 14 \%$$

$$E_j = 0.63 \text{ MeV} \quad 85 \%$$

$$E_j = 1.13 \text{ MeV} < 1 \%$$

$$E_j = 1.58 \text{ MeV} \quad 4 \%$$

$$E_j = 2.4 \text{ MeV} \quad 7 \%$$

Da der Einbau einer Meßsonde in der WAK zum Zwecke der Untersuchung der Strahlenbeständigkeit mit unverhältnismäßig hohem Aufwand verbunden gewesen wäre, wurde beschlossen, Bestrahlungsversuche an der im IRCh vorhandenen Co-60-Quelle ($1,7 \cdot 10^4$ rad/h) zu unternehmen.

Die Versuchsapparatur wurde so aufgebaut, daß an einer unbestrahlten Parallelsonde etwaige Veränderungen von Echolaufzeit und -intensität festgestellt werden konnten. Dies hätte Rückschlüsse darauf zugelassen, welche Teile der Sonde zuerst in ihrer Funktion beeinträchtigt wurden. Die Sonde wurde insgesamt 1128 h bestrahlt, ohne daß irgendwelche Veränderung der Echosignale feststellbar waren.

4.1.2 Untersuchungen zum Probenahmefehler

Im Laufe der bisherigen Traceruntersuchungen konnten Inhomogenitätsschwankungen von bis zu 2 % festgestellt werden. Die Versuchsbedingungen lassen den Schluß zu, daß es sich dabei in der Hauptsache um Probenahmefehler handeln kann. Deshalb soll diesem Problem eingehender nachgegangen werden. Zu diesem Zweck wurde damit begonnen, das Probenahmesystem zu modifizieren um einen Zwangsumlauf der Probenlösung zu erreichen. Dies läßt u.U. Rückschlüsse auf die Güte des bisher verwendeten Systems mit Hilfe des air-lifts zu.

4.1.3 Tracer

Die Versuche insbesondere mit Re werden weitergeführt, da hier bisher nicht geklärte Abweichungen von bis zu 11 % auftraten. Auch soll parallel hierzu die Möglichkeit untersucht werden, ob sich bei der WAK feste Tracer (z.B. in Form von löslichen Kapseln u.ä.) in den Eingangsmessbehälter einführen lassen.

4.2 Arbeiten zur Versiegelung und Identifizierung von Brennelementen

Die im Auftrag des Projektes von der AEG durchgeführten Arbeiten zur Entwicklung und Erprobung eines Versiegelungsverfahrens für Siedewasserreaktor-Brennelemente wurden im Juni 1972 abgeschlossen. Die AEG führte zuletzt einen Versuch mit zwei nach ihrem Verfahren versiegelten Elementen im Reaktor Lingen durch. Die Ergebnisse der Arbeiten sind in zwei Berichten zusammengestellt / AEG-E3-2011, AEG-E3-2280 /.

Die Anwendbarkeit des AEG-Versiegelungsverfahrens ist inzwischen durch eine Änderung der Brennstabverschraubung am Kopfstück von SWR-Brennelementen, die die Reparierbarkeit der Elemente verbessert, in Frage gestellt worden. Innerhalb der Projektgruppe wurde mit der Entwicklung von Alternativlösungen begonnen.

Nach der Untersuchung mehrerer Möglichkeiten konzentrierten sich die Arbeiten auf folgendes Meßsystem:

In einen zylindrisch geformten Siegelkörper werden metallische Teilchen (z.B. Kugeln od. Zylinder) unterschiedlicher Masse und rel. Permeabilität in statistischer Schüttung eingebracht. Die somit entstehende Säule ist die einmalige Kennung eines Siegels und wird nur solange gehalten, solange das Siegel sich "in situ" befindet. Bei Entfernung des Siegels wird die Kennung zerstört. Die Kennung wird mit Hilfe einer übergestülpten Spule abgetastet. Die Spule ist Teil eines Oszillators. Der durch die Induktivitätsänderungen hervorgerufene Frequenzgang über der Kennungssäule wird festgehalten und stellt die Identifizierung eines Siegels dar.

1972 wurde damit begonnen die Auswerteapparatur zu erstellen, sowie verschiedene Reaktorbaumaterialien auf ihre Brauchbarkeit als Kennmaterial zu untersuchen.

4.3 Spaltstoff-Schutzmaßnahmen

Die elementare Bedeutung der Spaltstoff-Schutzmaßnahmen (SSM) im Zusammenhang mit dem NV-Vertrag war dem Projekt SpFK von Anfang an gegenwärtig. Aus mehreren Gründen wurden jedoch die F+E-Arbeiten zu den SSM im Rahmen des Projektes im Anfang nicht in Angriff genommen. In der ersten Phase der Erarbeitung der Grundzüge eines internationalen Überwachungssystems sollte eine Verbindung zu den SSM möglichst vermieden werden. Je nach den Anlagentypen können die SSM zwischen 0,5 und 5 % der Anlageninvestition ausmachen und dadurch die Wirtschaftlichkeit der Produktion einer Anlage wesentlich unmittelbarer als die Überwachungsmaßnahmen beeinflussen. Wenn internationale Überwachungsorganisationen, z.B. die Häufigkeit und Intensität ihrer Inspektionen sowie den Umfang ihrer Überwachungstätigkeiten von der Güte der SSM in einer Anlage abhängig gemacht hätten, so hätten sie einen großen Einfluß auf die wirtschaftlich empfindlichen Parameter ausgeübt. Außerdem waren die verschiedenen Verpflichtungen für die Entdeckung bzw. Verhinderung einer Abzweigung im Rahmen einer internationalen Sicherheitskontrolle für alle Beteiligten im Anfang der Entwicklung nicht deutlich.

Nach Abschluß der Verifikationsverhandlungen sind die Verantwortlichkeiten auf nationaler und internationaler Ebene bezüglich der Überwachungstätigkeiten klarer festgelegt. Danach liegt die Verantwortung für die Entwicklung und Durchführung der SSM nicht bei der IAEA. Da außerdem von seiten der Kernanlagebetreiber das Interesse an optimalen physischen Schutzsystemen für ihre Anlage ständig zunimmt, scheint es notwendig zu sein, die Situation über die F+E-Arbeiten zu den SSM neu zu durchleuchten.

Die Bereiche der F+E-Arbeiten für Spaltstoffschutzmaßnahmen in Kernanlagen sind ziemlich umfangreich. Diese Maßnahmen sind hauptsächlich daraufhin ausgerichtet, eine Abzweigung spaltbarer Materialien aus Lagern, Bearbeitungsanlagen und während ihres Transportes zu verhindern bzw. diese Materialien gegen Schritte, die zu einer Abzweigung führen könnten, zu schützen. Außerdem können SSM auch gegen verschiedene Arten von Sabotage (die z.B. nicht eine Abzweigung, sondern eine Freisetzung von Material wie Pu zum Ziel haben können) gerichtet sein.

Für die Entwicklung eines funktionierenden Spaltstoff-Schutzsystems (SSS) müssen zuerst die Gefahren-Strategien festgelegt werden, d.h. die Typen von Gefahren, vor denen das System die Spaltmaterialien schützen soll (z.B. organisierte bzw. unorganisierte Überfälle, Diebstahle, Sabotage usw.) . Das System soll sowohl die Art und Verfügbarkeit des Materials (z.B. reines Pu, hochangereichertes Uran, im Lager oder beim Transport) als auch die Menge (z.B. kg von Pu bzw. Tonnen von leichtangereichertem Uran) berücksichtigen. Die Umgebung der Anlagen (dicht besiedeltes Gebiet, Verkehrswege u.s.w.) spielt oft eine entscheidende Rolle. Darüberhinaus muß das System mindestens aus drei Komponenten bestehen, nämlich

- i) Anzeige und Entdeckung (beschädigter Zaun im Falle eines Diebstahls; Alarmanlage, Wache),
- ii) Verhinderung (Mauer, Tresore, Sicherheitsschlösser, Personalkontrolle) und
- iii) Wiedergewinnung (Möglichkeit der Einschaltung der Polizei, Anzeige, Kommunikation).

Für die Verwirklichung eines Spaltstoffschutzsystems sind Maßnahmen aus den Bereichen der Personalkontrolle, der Anwendung technischer Geräte, der Organisation und Administration sowie der Bauausführung miteinander zu kombinieren.

In den Vereinigten Staaten sind in den letzten 3 - 4 Jahren besonders intensive F+E-Arbeiten zu den SSM aus Gründen nationaler Sicherheit durchgeführt worden. Etwa 20 - 25 Wissenschaftler, davon 6 - 7 Fachleute für Spaltstoffschutzmaßnahmen, sind daran beteiligt. Nach Feststellungen der USAEC verursachen Spaltstoffschutzmaßnahmen wesentlich höhere Kosten für die Anlagenbetreiber als die Maßnahmen zur Überwachung. Etwa 10-20 Millionen US \$ sind notwendig, um die erforderlichen Maßnahmen in den bestehenden Anlagen des friedlichen Brennstoffzyklus in den USA einzuführen.

Da diese Maßnahmen sehr kostenintensiv sind, ist eine Optimierung des SSS einzelner Anlagen fast unerlässlich. Die USAEC hat vor, Entwurfskriterien für Kernanlagen mit Detailangaben über Spaltstoff-Schutzsysteme zu veröffentlichen.

Kapitel 5 : Experimentelle Prüfung von Überwachungsmaßnahmen

5.1 Vorbereitung eines integralen Experimentes in einer
Gasultrazentrifugen-Anreicherungsanlage (GUZ)

D. Nentwich

5.2 Interlaboratoriumstest IDA-72

E. Drosselmeyer

Kapitel 5: Experimentelle Prüfung von Überwachungsmaßnahmen

5.1 Vorbereitung eines integralen Experimentes in einer Gasultrazentrifugen-Anreicherungsanlage (GUZ)

Systemanalytische Untersuchungen, die im Rahmen einer Gemeinschaftsarbeit zwischen den Firmen URANIT und DORNIER und dem Projekt SpFK (siehe 27.3) durchgeführt wurden, haben ergeben, daß praktische Erfahrungswerte zur Überwachung einer solchen Anlage notwendig sind. Deshalb wurde im Berichtszeitraum ein integrales Experiment vorbereitet, welches ursprünglich in der Versuchskaskade k52 in Jülich noch im Jahre 1972 stattfinden sollte. Aufgrund technischer Schwierigkeiten ist mit der Inbetriebnahme der k52 voraussichtlich erst im August 1973 zu rechnen. Daher hat sich das Projekt in Übereinstimmung mit URANIT und DORNIER entschlossen, das Experiment in der Demonstrationsanlage UTA 25 in Almelo durchzuführen, die im März 1973 den Betrieb mit der 1. Ausbaustufe aufnehmen wird.

In der Projektdefinitionsphase wurden folgende Hauptziele für das Experiment definiert:

1. Quantitative Erfassung des versteckten Spaltstoffbestandes (hidden inventory) während des Trocknungsvorganges der Kaskade und bei Kaskadenbetrieb.
2. Bestimmung des Gasinventars mit Hilfe geeigneter Kaskadenparameter (Druck, Temperatur usw.)
3. Erprobung von Abfallmessungen an Dekontaminationslösungen.
4. Bestimmung der leichten Komponente (HF) im Verfahrensgas.
5. Erprobung eines Protokoll- und Bilanzierungssystems.

5.2 Interlabtest IDA 72

Im Kernteil des Interlaboratoriumstestes zur Isotopenverdünnungsanalyse (Isotope Dilution Analysis - IDA 72) wurde einheitliches Probenmaterial an alle teilnehmenden Laboratorien verschickt und in allen diesen Laboratorien nach dem gleichen Verfahren mehrfach analysiert, so daß eine statistische Auswertung möglich ist. Diese Methode dient dazu, a) den Gesamtfehler des untersuchten Analysenverfahrens zu ermitteln und ihn b) in Einzelkomponenten zu zerlegen, die bestimmten Verfahrensschritten zugeordnet werden können. Die wichtigste Einzel-Fehlerkomponente ist dabei die sog. Interlababweichung, die die Abweichungen der Labormittelwerte voneinander beschreibt und z.B. durch Eichfehler hervorgerufen werden kann. Aus Erfahrung weiß man bisher wenig über diesen Fehleranteil, der aber zur absoluten Bestimmung vorliegender Spaltstoffmengen von besonderer Bedeutung ist. Es ist daher sehr positiv zu beurteilen, daß an dem vorliegenden Test 21 Laboratorien aus 13 Ländern und Organisationen teilnehmen. Sie sind in Tabelle I aufgeführt.

Tabelle I: Teilnehmer an IDA-72

Land oder Organisation	Namen der Labors
Belgien	EUROCHEMIC
BRD	AEG-Großwelzheim, GfK-Karlsruhe
England	UKAEA: AERE-Harwell, UKAEA: AWRE-Aldermaston
EURATOM	BCMN - Geel, CCR - Ispra, TU - Karlsruhe
Frankreich	CEA - La Hague, CEN - Saclay
IAEO	Seibersdorf
Indien	BARC - Bombay
Japan	Tokai Works, PNC
Niederlande	RCN - Petten
Norwegen	Institutt for Atomenergi - Kjeller
Schweden	AB Atomenergi - Studsvik
USA	Los Alamos Scientific Laboratory, Oak Ridge National Laboratory, USAEA - New Brunswick Laboratory
Jugoslawien	Josef Stefan Institute, Ljubljana

19 dieser Labors nahmen am sog. Standardexperiment teil, in dem wie geplant /1/ die Fehlerkomponenten bei der Mehrfach-Analyse von

1. aktivem und
2. inaktivem, synthetischem Probenmaterial

untersucht werden.

Ebenso haben einzelne Labors zusätzliche Spezialuntersuchungen entsprechend den Planungen /1/ übernommen (die Zahl der beteiligten Labors ist jeweils in Klammern angegeben):

3. Untersuchungen zum Zusatz eigener Spike-Lösungen in den verschiedenen Labors (11)
4. Untersuchungen zum Probentransport in Aluminium-Kapseln (6)
5. Untersuchungen zum Transport eingedampfter Proben in Glasfläschchen (8)
6. Untersuchung zum Alterungsverhalten Plutonium-haltiger Proben (3)
7. Bestimmung der Pu- und U-Konzentrationen mit Röntgenfluoreszenzspektroskopie (1)

Im Frühjahr 72 wurden zunächst die Details der Durchführung sowohl des Standard-Experimentes als auch der zusätzlichen Untersuchungen mit den beteiligten Laboratorien festgelegt und der spezifische Probenbedarf für die einzelnen Teilnehmer ermittelt. Gleichzeitig wurden geeignete Behälter für die Verpackung der hochaktiven Proben angefertigt bzw. bereitgestellt und die Durchführung der Transporte selbst vorbereitet.

Das Zentralbüro für Kernmessungen der EURATOM in Geel/Belgien stellte die erforderlichen Eichlösungen her. Nach Abschluß dieser Vorarbeiten konnte in enger Zusammenarbeit mit diesem Institut und der EUROCHEMIC, Mol/Belgien, am 21.6.72 bei letzterer das aktive Probenmaterial aus der Eingangslösung einer Wiederaufarbeitungskampagne bestrahlter Brennelemente entnommen werden.

Nach umfangreichen Arbeiten zur Verdünnung, Spiken und Aufteilung der Lösungen sowie der Herstellung spezieller Proben zur Untersuchung der Dry-Spike- und Aluminium-Kapsel-Methode durch Vertreter der IAEA bzw. des Europäischen Instituts für Transurane waren die Proben am 1.7.72 transportfertig in Birdcages verpackt. Während der überwiegende Teil noch im Juli die Empfängerlaboratorien erreichte, ergaben sich in einzelnen Fällen aus vorwiegend administrativen Gründen Verzögerungen um 2-3 Monate.

Anschließend lag der Schwerpunkt der Arbeiten bei der Erstellung und Erprobung umfangreicher Rechenprogramme, mit denen die zu erwartenden ca. 30 000 Einzelmeßwerte auf der IBM 370/175 ausgewertet werden sollen.

Der Schlußtermin für die Einsendung der Meßdaten wurde auf Bitten mehrerer Laboratorien vom 1.11.72 auf den 15.3.1973 verschoben.

Kapitel 6 : Zusammenarbeit mit der Industrie

- 6.1 Studienaufträge für Entwicklung von Überwachungsmaßnahmen
 - 6.1.1 Am SNR 300
C. Brückner
 - 6.1.2 Am THTR 300
D. Nentwich
 - 6.1.3 In der NUKEM - Fabrikationsanlage zur Verarbeitung von hochangereichertem Uran
R. Kraemer
- 6.2 Ausarbeitung von Unterlagen für die Ergänzenden Abmachungen (Subsidiary arrangements (SA)) und der Anhänge dazu (Facility Attachment Outlines (FAO)) im Rahmen des Verifikationsabkommens EURATOM-IAEA
 - 6.2.1 KKS, Kernkraftwerk Stade
C. Brückner
 - 6.2.2 NUKEM, Fabrikationsanlage zur Verarbeitung von hochangereichertem Uran
R. Kraemer
 - 6.2.3 WAK, Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe
D. Nentwich

Kapitel 6: Zusammenarbeit mit der Industrie

6.1 Studienaufträge zur Entwicklung von Überwachungsmaßnahmen

6.1.1 Überwachungsmaßnahmen in Kernkraftwerken mit Schnellen Brutreaktoren vom Typ SNR

Die Studienarbeiten über die Durchführung von Überwachungsmaßnahmen zur Kernmaterialüberwachung am SNR 300, die die Fa. INTERATOM im Auftrag des Projekts SpFK seit 1970 durchführte, konnten im Berichtszeitraum endgültig abgeschlossen werden. *

Die Fa. INTERATOM hatte in den beiden vorangehenden Jahren zunächst ein dynamisches Kontrollverfahren konzipiert, das im wesentlichen auf einer Kontrolle der Bewegungen der - gekennzeichneten und versiegelten - Brennelemente und Brutelemente in der Reaktoranlage beruhte. Es zeigte sich jedoch, daß die Durchführung des Konzepts mit einem erheblichen Aufwand verbunden sein würde.

Ein hierauf alternativ entwickeltes Verfahren basiert auf einem statischen Kontrollkonzept. Seine Ausarbeitung erfolgte in engem Kontakt mit dem Projekt SpFK im Berichtszeitraum.

Beim statischen Kontrollkonzept liegt der Schwerpunkt der Überwachungsmaßnahmen bei Inventarkontrollen, mit denen in angemessenen Zeitabständen der reale Bestand an - gekennzeichneten und versiegelten - Brennelementen und Brutelementen im Vergleich mit dem Buchbestand nachgeprüft wird. Die Inventarkontrollen können dabei, aufgrund der Kennzeichnungs- und Versiegelungsmaßnahmen durch Zählen und - gegebenenfalls stichprobenweises - Identifizieren der Elemente ausgeführt werden. Die Inventarkontrollen werden durch Beobachtungsmaßnahmen während der Umladezeit am Reaktor ergänzt.

Bei der Erarbeitung des Konzepts war zu berücksichtigen, daß an einem schnellen Brutreaktor unter Überwachungsgesichtspunkten sehr unterschiedlich zu bewertendes Kernmaterial vorliegt: Frische Brennelemente haben einen hohen Gehalt an Plutonium und sind ohne besondere Schwierigkeiten zu

* unveröffentl. Bericht der Fa. INTERATOM über die Entwicklung von Methoden zur Spaltstoffflußkontrolle für den SNR.

handhaben, wären für eine Kernmaterialentwendung also besonders interessant. Nach dem Einsetzen in Natrium ist die Handhabbarkeit erschwert. Bestrahlte Brennelemente, die etwa den gleichen Plutoniumgehalt aufweisen wie frische, wären wegen ihrer Radioaktivität nur mit einem großen Aufwand zu entwenden. Brutelemente enthalten in frischem Zustand kein, nach der Bestrahlung nur relativ wenig Plutonium, an ihnen bestünde für eine Entwendung kein, beziehungsweise vergleichsweise geringes Interesse. Die Festlegung der Überwachungsmaßnahmen das heißt in diesem Fall die Wahl der Verfahren für die Inventarkontrollen wie auch der Zeitabstände zwischen zwei Bestandsprüfungen, muß sich an diesen Unterschieden orientieren.

Es waren weiter bestimmte Bedingungen in Rechnung zu stellen, die aus den konstruktiven Eigenschaften des Reaktors und der Art der Kernmaterialhandhabung am Reaktor folgen. Die wichtigste dieser Bedingungen ist, daß eine Inventaraufnahme im Reaktortank nicht durchgeführt werden kann, da sie zu unzumutbaren Verfügbarkeitseinschränkungen für die Reaktoranlage führen würde. Aus ihr ergibt sich die Notwendigkeit, Beobachtungsmaßnahmen während einer Reaktorumladung vorzunehmen.

Das Kontrollkonzept muß von den Grundzügen der betrieblichen Kernmaterialhandhabung ausgehen.

Ein schneller Brutreaktor vom SNR-Typ wird etwa einmal pro Jahr umgeladen. Der Antransport der hierzu benötigten frischen Kernelemente, das sind neben den Brenn- und Brutelementen noch Absorberelemente und Reflektorelemente, die äußerlich aber ähnlich dimensioniert sind, beginnt fünf bis vier Monate vor der Umladung. Die Elemente werden in ihren Transportbehältern durch eine Materialschleuse in das Reaktorgebäude gebracht, in einer Be- und Entladestation entladen, einer betrieblichen Eingangskontrolle unterzogen und schließlich, mittels eines Hilfszuges an der Wechselmaschine, ins Vorratslager (Trockenlager) abgesetzt.

Kurz vor der Umladung des Reaktors kommen die Elemente ins Natriumlager. Mit dem Wechselmaschinen-Hilfszug werden sie in eine Übergabestation gebracht, dort unter Inertgas gesetzt und schließlich mit der Wechselmaschine unter Inertgas ins Natriumlager transportiert. Dort stehen sie in Büchsen unter flüssigem Natrium. Bei der Umladung des Reaktors werden sie mit den

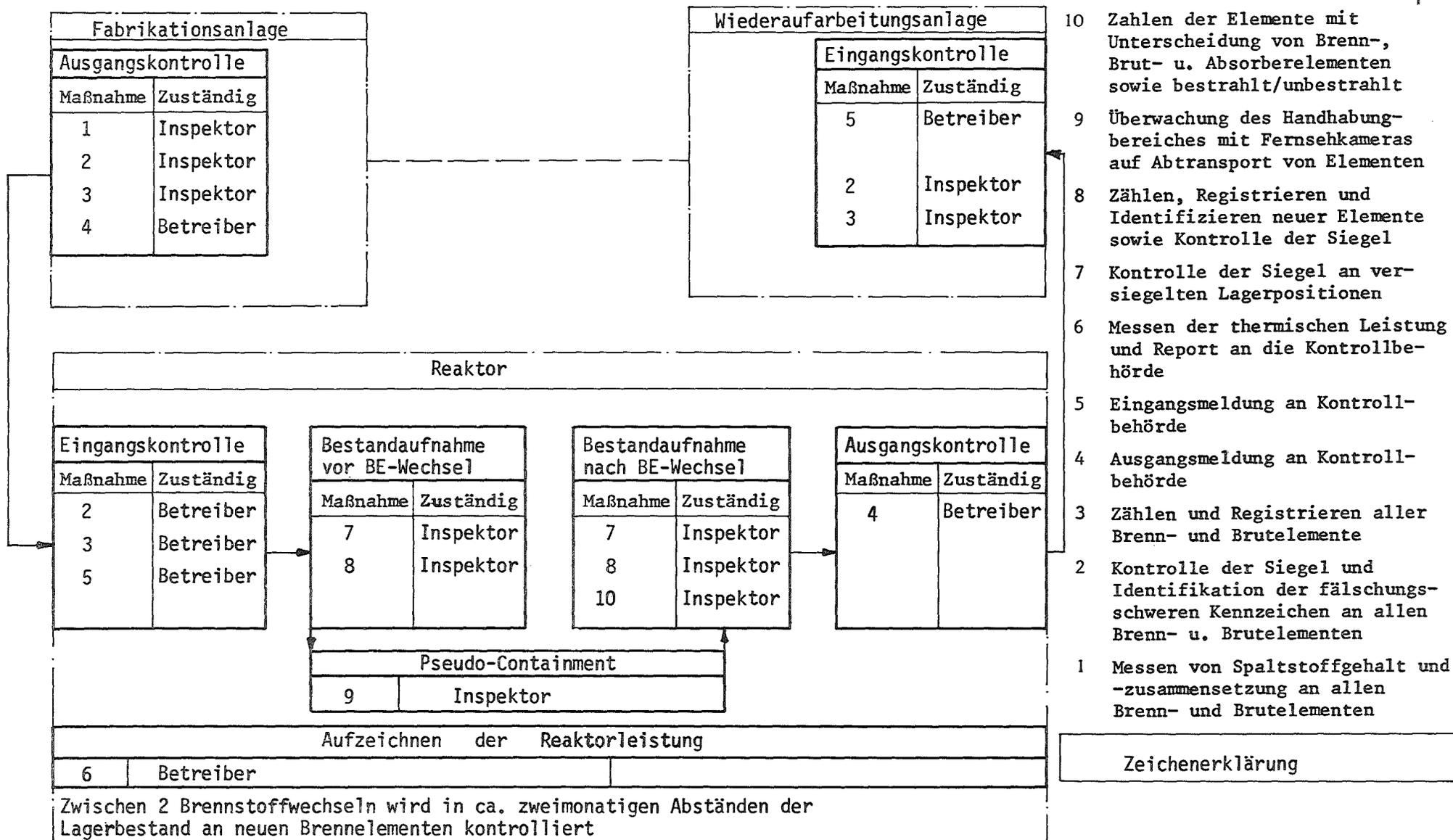
Büchsen in den Reaktortank gebracht, dort unter Natrium entnommen und endlich auf Position gesetzt. Die abgebrannten Kernelemente gelangen umgekehrt in den Büchsen ins Natriumlager.

Für den Kernelementwechsel im Reaktor steht eine Zeit von etwa 18 Tagen zur Verfügung. Die abgebrannten Elemente können nach einer Abklingzeit von mindestens 4 Monaten mit der Wechselmaschine aus dem Natriumlager entnommen, unter Schutzgas in der Be- und Entladestation in Transportbehälter eingesetzt und durch die Materialschleuse aus der Reaktoranlage abtransportiert werden.

In Sonderfällen kann die vorübergehende Entnahme aller Kernelemente aus dem Reaktortank erforderlich werden. Dann werden die Brennelemente im Natriumlager und die anderen Elemente in einem Absetzlager unter Schutzgas gelagert. Sie gelangen später wieder in den Reaktortank zurück. Außerdem kann es erforderlich werden, im Rahmen einer Umladung einzelne Kernelemente einer betrieblichen Inspektion zu unterziehen. Sie werden dann mit der Wechselmaschine in eine Beobachtungszelle gebracht, in der sie unter Schutzgas untersucht werden können. Schließlich ist es möglich, Kernelemente, an denen zum Beispiel Nachbestrahlungen durchgeführt werden sollen, in einer Waschzelle vom anhaftenden Natrium zu reinigen.

Frische, unbestrahlte Brenn- und Brutelemente befinden sich in der Reaktoranlage, also nahezu ausschließlich im Vorratslager. Sie sind dort nicht natriumbenetzt. Nur während einer kurzen Zeitspanne vor der Umladung des Reaktors sind frische Elemente im Natriumlager eingesetzt. Die Kernbeladung des Reaktors bleibt außer Betracht. Einzelne frische Kernelemente können, als Reserve bei einer Umladung vorgesehen, auch nach dem Wiederauffahren des Reaktors im Natriumlager verbleiben.

Bestrahlte Brenn- und Brutelemente sind, von der Kernbeladung abgesehen, nur im Natriumlager zu finden. Allein in Sonderfällen können bestrahlte Elemente auch im Absetzlager, der Beobachtungszelle und einer Waschzelle untergebracht sein.



Spaltstoffflußkontrolle

Abb.1

Schema des Kontrollverfahrens

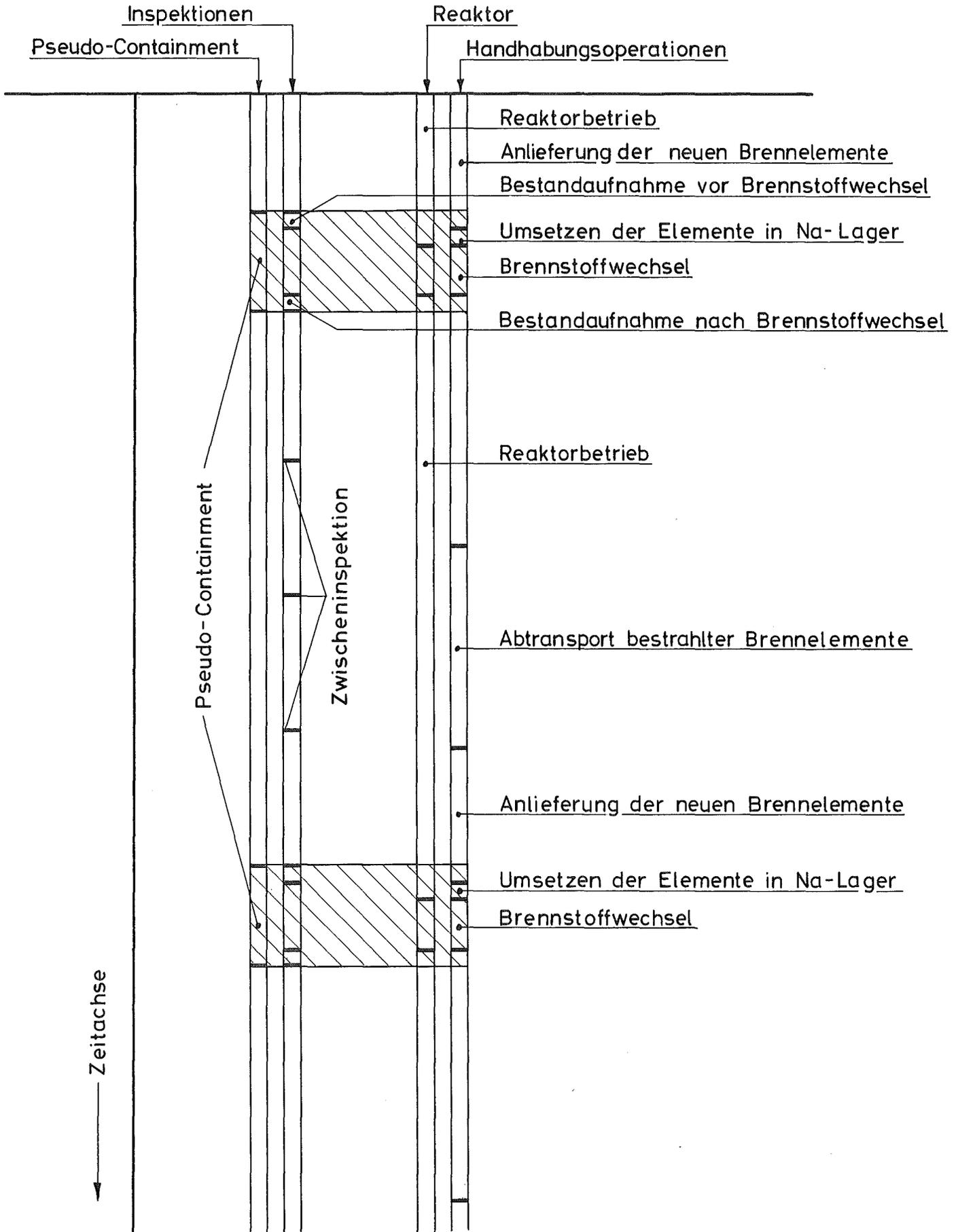


Abb. 2 Gegenüberstellung von Handhabungszeiten und Kontrollzeiten

Das gemeinsam mit dem Projekt SpFK von der Fa. INTERATOM entwickelte Konzept für die Durchführung von Überwachungsmaßnahmen am Schnellen Brutreaktor wird von den Abbildungen 1 und 2 verdeutlicht. Die Überwachungsmaßnahmen sind dort im Zusammenhang mit der betrieblichen Kernmaterialhandhabung dargestellt.

Das Konzept geht davon aus, daß die Brenn- und Brutelemente vom Hersteller an mit Siegeln versehen sind, die die Integrität der Elemente aufzeigen und darüberhinaus als schwerfälschbare Kennzeichen für ihre Identität dienen. Weiter sollen die Kernelemente mechanisch oder elektrisch-induktiv abtastbare Merkmale besitzen, die eine Unterscheidung ihrer Arten (Brennelemente, Brutelemente und andere Kernelemente) erlauben, oder es sollen Verfahren existieren, die eine Unterscheidung der Arten aufgrund ihrer charakteristischen Eigenstrahlung ermöglichen.

Es wird vorgesehen, daß die Prüfungen des realen Bestands an frischen, nicht natriumbenetzten Brennelementen in Zeitabständen von 3 Monaten durchgeführt werden. Die Erstprüfung der angelieferten Brennelemente in der Anlage umfaßt ihre Zählung und die Prüfung ihrer Siegel. Dazu werden sie mit dem Hilfszug der Wechselmaschine aus ihren Positionen im Vorratslager heraus und in einen mit dem Führungsrohr des Hilfszuges verbundenen Inspektionsstand hineingezogen, dort die Siegel geprüft und die Elemente wieder abgesenkt. Die Lagerpositionen der geprüften Brennelemente werden danach versiegelt, so daß bei Folgeinspektionen nur die Lagersiegel zu prüfen sind. Diese Lagerversiegelung bedeutet eine wesentliche Erleichterung, da sie die Handhabung der Elemente bei Folgeprüfungen unnötig macht. Sie kann auch auf Reserveelemente, die nach einer Umladung des Reaktors im Vorratslager verbleiben, angewandt werden.

Als Alternativlösung ist denkbar, die betriebliche Eingangskontrolle der frischen Brennelemente in der Reaktoranlage in Anwesenheit eines Inspektors und mit Siegelkontrolle durchzuführen. Der Inspektor überwacht anschließend das Umsetzen der Elemente in das Vorratslager und versiegelt die belegten Lagerpositionen. Dieses Verfahren würde jede zusätzliche Brennelementhandhabung vermeiden, dafür müßte der Inspektor jeweils beim Eintreffen der Brennelementlieferungen in der Reaktoranlage anwesend sein.

Für die Prüfung des realen Bestands an frischen Brennelementen im Natriumlager werden Inspektionsintervalle von 6 Monaten vorgesehen. Die Elemente müssen für diese Prüfungen mit der Wechselmaschine zu einer Inspektionszelle transportiert werden, die eigens für diesen Zweck installiert ist und in der, unter Schutzgas und fernbedient, die Siegel an den Elementen geprüft werden können. Eine Versiegelung von Positionen im Natriumlager ist wegen der Konstruktion des Lagerdeckels nur bedingt möglich. Die Prüfung des realen Bestands an frischen Brutelementen wird nicht vorgesehen, da diese für eine Entwendung uninteressant sind.

Die bisher beschriebenen Bestandsprüfungen an frischen Brennelementen liegen zeitlich als sog. Zwischeninspektionen zwischen und sind gleichzeitig Teil von zwei umfassenden Prüfungen des realen Bestandes, deren eine vor, die zweite nach der Umladung des Reaktors vorgenommen wird. Bei beiden wird der gesamte reale Bestand an Kernelementen in der Reaktoranlage, mit Ausnahme der Kernelemente im Reaktortank, aufgenommen und geprüft.

Die Bestandsprüfung vor der Brennstoffumladung soll unmittelbar vor dem Umsetzen der frischen Kernelemente vom Vorrats- in das Natriumlager durchgeführt werden, die Bestandsprüfung nach der Umladung nach dem Schließen des Reaktordeckels und Wiederanfahren des Reaktors. Während die erste Prüfung entsprechend der Wahl des Zeitpunkts nahezu ausschließlich frische Brennelementbündel im Vorratslager, vereinzelt im Natriumlager, betrifft und so im wesentlichen durchgeführt werden kann wie die Zwischeninspektionen, liegt der Schwerpunkt der zweiten Prüfung bei der Aufnahme und Inspektion des realen Bestands an bestrahlten Brenn- und Brutelementen im Natriumlager.

Als Mindestinspektionsintervall für bestrahlte natriumbenetzte Brennelemente sind 1 Jahr, für bestrahlte, natriumbenetzte Brutelemente 1,5 Jahre vorgesehen. Die Durchführung der beiden Gesamtinspektionen im Maximalabstand von etwas weniger als einem Jahr erfüllt diese Forderungen. Entsprechend der durch Radioaktivität und Nachwärme verminderten Entwendungsmöglichkeit wird auf eine Identifizierung mittels des Siegels verzichtet und lediglich eine Bestimmung des Elementtyps durchgeführt, das heißt, der reale Bestand der

bestrahlten Kernelemente durch Zählung der nach ihrem Typ unterschiedenen Elemente aufgenommen und geprüft. Das Erkennen der Elementtypen soll entweder durch Ausmessen der charakteristischen Eigenstrahlung oder anhand der mechanisch oder elektrisch-induktiv abtastbaren Merkmale erfolgen. Es ist vorgesehen, die dazu erforderlichen Geräte in die Wechselmaschine einzubauen, so daß die Typbestimmung lediglich ein Einheben der Elemente in die Maschine und Wiederabsenken in ihre Lagerposition erfordert. Die Messung der Eigenstrahlung gestattet, auch unbestrahlte und bestrahlte Kernelemente zu unterscheiden. Bei Anwendung dieser Methode würde die Bestandsprüfung im Natriumlager in der Weise durchgeführt werden, daß zuerst alle Kernelemente im Lager ausgemessen und nach Typ geordnet gezählt, dann die dabei aufgefundenen frischen Brennelemente zusätzlich in die Inspektionszelle gebracht und durch Siegelprüfung identifiziert werden.

Die Durchführung der Gesamtinspektionen vor und nach der Umladung des Reaktors ermöglicht, das Kernmaterialinventar des Reaktors nach dem Brennstoffwechsel indirekt aus dem Inventar im Vorjahr und der Differenz der Lagerinventare zu ermitteln. Dabei muß allerdings ausgeschlossen sein, daß Kernmaterial zwischen den beiden Gesamtinspektionen entwendet werden kann. Zu diesem Zweck wird in dieser Zeitspanne ein den Reaktortank, die Lager und alle sonstigen Handhabungsstationen umfassendes Pseudo-Containment gebildet. Das Pseudo-Containment besteht aus optischen Überwachungsrichtungen, die alle Handhabungsvorgänge, die entweder betriebsmäßig dazu dienen oder auf sonstige Weise geeignet sind, Brenn- oder Brutelemente innerhalb des Handhabungsbereichs mit oder ohne Behälter zu transportieren, automatisch, störungsunabhängig und mit einer zur Beurteilung hinreichenden Häufigkeit und Genauigkeit aufzuzeichnen. Es ist die Verwendung von automatischen Kameras vorgesehen, deren Anordnung und Betrieb sich am Vorbild des am CANDU-Reaktor in Rolphton/Kanada getesteten Überwachungssystems orientieren soll.

Die Verwirklichung des beschriebenen Kontrollverfahrens erfordert weitere Anstrengungen für die Entwicklung der erforderlichen Geräte, wie des Siegels, der Einrichtungen zur Siegelprüfung, des Inspektionsstandes und der Inspektionszelle, der Einrichtungen zur mechanischen bzw. elektrisch-induktiven Erkennung von Elementtypen oder Messung der Eigenstrahlung und schließlich des Kamerasystems. Diese Arbeiten werden vom Projekt SpFK nach einer eingehenden Prüfung des Ergebnisses der Arbeiten mit der Fa. INTERATOM in der Zukunft durchzuführen oder zu veranlassen sein.

6.1.2 Überwachungsmaßnahmen am THTR 300

Anfang des Jahres 1972 traten Vertreter der Fa. Hochtemperatur-Reaktorbaugesellschaft (HRB) an das Projekt SpFK mit der Absicht heran, Erfahrungen des Projektes in Planung und Bau des z.Zt. in Uentrop-Schmehausen entstehenden THTR-300 mit einfließen zu lassen. Das Projekt schlug eine Zusammenarbeit in 3 Phasen vor:

1. Die Vordefinitionsphase sollte dem gegenseitigen Informationsaustausch und Verständnis dienen.
2. In der Projektdefinitionsphase sollten überwachungsrelevante Probleme erkannt und so analysiert werden, daß dem Erbauer die Unterbreitung eines Vorschlages für ein Überwachungssystem, sowie die Abgabe eines Angebots für die Erstellung einer Studie über Safeguards am THTR-300 ermöglicht würden.
3. Die Erstellung einer Studie über Überwachungsmaßnahmen am THTR-300

Nach Ablauf der 1. Phase konnte Mitte April der Auftrag zur Projektdefinitionsphase an HRB erteilt werden, der mit Abgabe eines Berichtes (unveröffentlicht) Ende September abschloß.

Der THTR-300 ist ein Kugelhaufenreaktor mit keramischen Brennelementkugeln und Helium als Wärmeübertragungsmittel. Er wird in integrierter Bauweise erstellt, d.h. der Spannbetonbehälter umfaßt alle Komponenten des Primärsystems.

Das Erstcore des Reaktors wird mit

359.550	Brennelementen, (BE)
277.000	Graphitelementen (GE) und
38.000	Absorbelementen (AE)

beladen. In der Gleichgewichtsphase (nach ca. 3 Jahren) enthält das Core ca. 674.550 Brennelemente. Ein frisches BE enthält 0,96 g U-235 und 10,2 g Th. Der Anreicherungsgrad des Urans ist 93 %.

Nächster Schritt war die Aufstellung eines Katalogs realistischer Entwendungsstrategien, einmal unter dem Gesichtspunkt, daß lediglich 2-3 Angehörige der Betriebsmannschaft ohne Wissen des Anlagebetreibers beteiligt sind, und zum anderen unter dem Gesichtspunkt, daß die gesamte Belegschaft abzweigt.

Die Analyse dieser Entwendungsstrategien machte frühzeitig deutlich, daß der THTR-300 bis auf den Eingangsbereich für frische BE relativ einfach zu überwachen ist, da eine Entnahme von einmal in das Core eingebrachten BE nur über den Ausgang bestrahlter BE möglich ist, wobei dieser dann durch Versiegelung überwacht werden kann. Etwas komplizierter gestaltet sich eine Überwachung am Eingang des Reaktors: hier werden die frischen BE aus den Transportbehältern zu je 1000 Kugeln in die Beschickungsanlage gefüllt, wo sie einer letzten visuellen Kontrolle unterzogen und wo eventuell beschädigte Kugeln per Hand aussortiert werden.

Seitens des Projektes wurden hier 2 alternative Überwachungskonzepte vorgeschlagen:

1. Durch eine statistisch verteilte Beimengung von Kontrollkugeln in die Transportbehälter und dem Zwang, die Anzahl dieser Kugeln der Kontrollbehörde mitzuteilen wird erreicht, daß alle Kugeln dem Abbrandmeßreaktor zugeführt werden, was wiederum bedeutet, daß diese Kugeln nur über den - versiegelten - BE-Ausgang das Core verlassen können.
2. Durch das Anbringen geeigneter Flansche an Beschickungsstation und Transportbehälter im Sinne der Doppeldeckeltechnik ist eine Entnahme von Kugeln aus den Transportbehältern nur dann möglich, wenn diese an der Beschickungsstation angeflanscht ist. Das Ausschleusen beschädigter Kugeln kann umgekehrt auf gleiche Weise erfolgen.

Von grundlegender Bedeutung für den Entwurf eines Überwachungskonzepts am THTR-300 waren die folgenden 3 Eigenheiten dieses Reaktortyps:

1. Die Beladung und Entnahme der Brennelementkugeln erfolgt kontinuierlich während des Betriebs. Gleichzeitig damit werden ebenfalls kontinuierlich BE aus dem Core entnommen, deren Abbrand gemessen und die noch nicht völlig abgebrannten Elemente dem Core wieder zugeführt. Die Messung des Abbrandes, sowie die Unterscheidung von BE, GE und AE erfolgt mit Hilfe des Abbrandmeßreaktors. Die Zahl der BE ist so groß, daß ein Versiegeln und identifizieren einzelner BE nicht möglich ist.
2. Eine physikalische Bestandsaufnahme des Cores kann nicht erfolgen. Einziger Anhaltspunkt ist der jeweilige Buchbestand.
3. Das sich in den frischen BE befindliche hochangereicherte Uran ist für einen potentiellen Abzweiger strategisch äußerst wertvoll, da dies ohne größere Schwierigkeiten chemisch abgetrennt werden kann.

Anhand des Fließschemas des Spaltstoffes und der baulichen Gegebenheiten des THTR-300 wurde die Einteilung der Anlage in 3 Materialbilanzzonen (MBA) für zweckmäßig erachtet

MBA 1 : Lager für frische BE

MBA 2 : Core einschließlich aller Beschickungs- und Umwälzorgane

MBA 3 : Lager für abgebrannte BE

Nichtsdestoweniger wurde die Möglichkeit der Reduzierung auf 2 MBA (Zusammenfassung von MBA 2 und MBA 3) offengelassen, was insbesondere Vorteile im Hinblick auf die Reduzierung des Berichts- und Protokollwesens bringen würde. Abb. 1 zeigt die MBA-Einteilung anhand des Spaltstofffließschemas des THTR-300.

MBA 2

-150-

MBA1

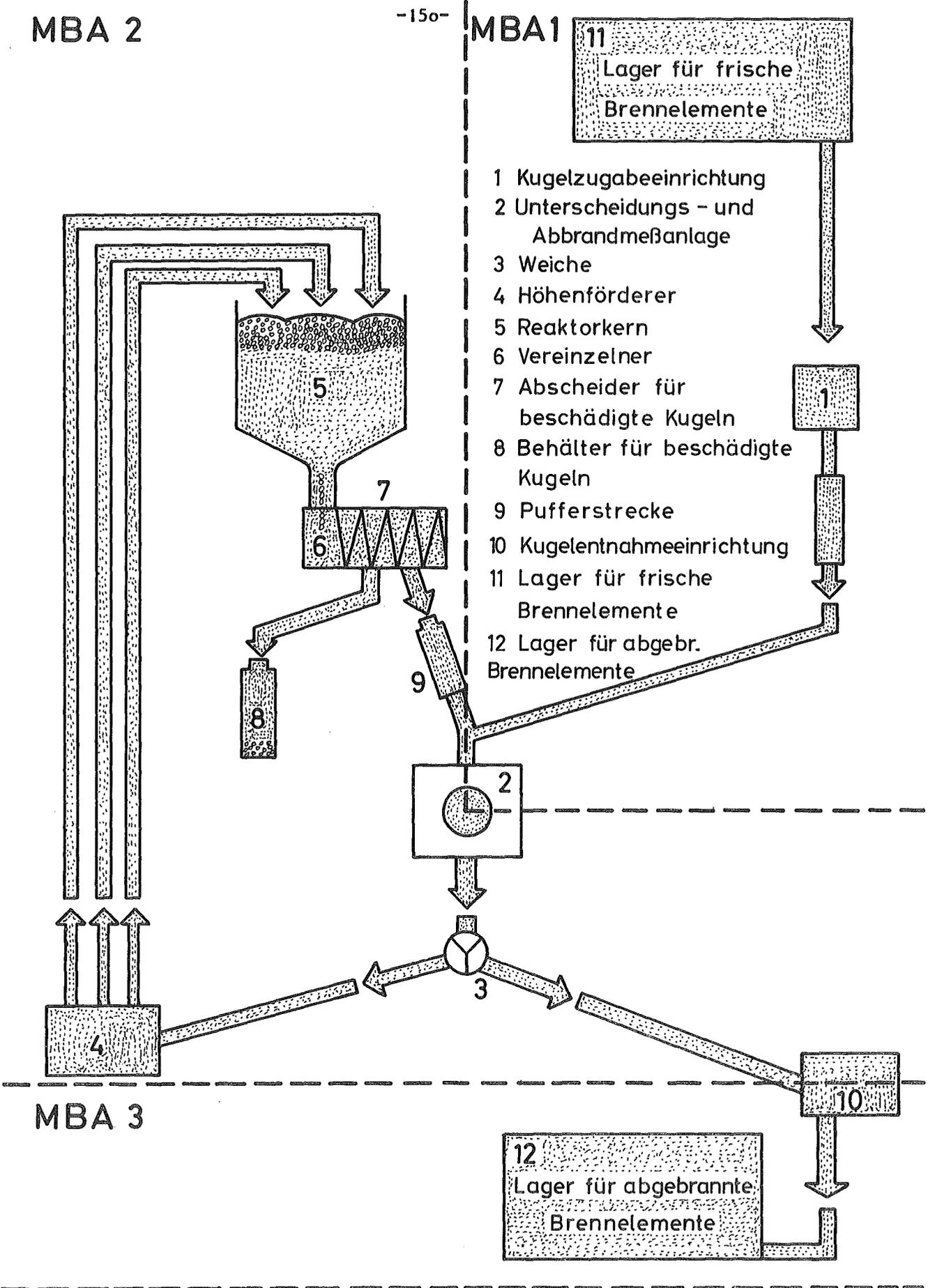


Abb.1 Fließschema des Spaltstoffes im THTR-300

Eine weitere Betreuung dieser Arbeiten wurde seitens des Projektes auf Ende 1973 verschoben, da erstens der Reaktor erst gegen 1976 in Betrieb gehen wird und von daher kein Zwang besteht, schon jetzt für die Ausarbeitung der Facility Attachment (FA) tätig zu werden, und zweitens das Projekt mit den vorhandenen Arbeitskräften 1973 die FA derjenigen Anlagen bevorzugt analysiert, die bereits in Betrieb sind oder deren Bau weiter vorangeschritten ist.

6.1.3 Überwachungsmaßnahmen in Fabrikationsanlagen für die Verarbeitung von hochangereichertem Uran

Im Jahre 1971 wurde die Zusammenarbeit mit der Fa. NUKEM mit einer Projektdefinitionsphase begonnen (siehe /1/) deren wichtigstes Ergebnis war, daß die Erfordernisse der Spaltstoffflußkontrolle und des Objekt-Schutzes nur in einem gegenüber der jetzigen Anlage modifizierten Anlagenumbau oder in einem Neubau realisiert werden können.

In einer weiteren Studie wurde im Jahre 1972 eine ausführliche Fall- und Kostenstudie dieser beiden Varianten durchgeführt /2/ um die Entscheidung qualitativ und quantitativ zu untermauern, welches Konzept endgültig weiterverfolgt werden sollte. Es wurden zunächst die baulichen Maßnahmen und Umgruppierungen einzelner Teilbetriebe spezifiziert, die erforderlich sind, wenn man die bestehende Anlage auf einen mit einem Neubau vergleichbaren Containmentstandard modifiziert. Das Ziel dieser Überlegungen war, alle Betriebe und Lager, in denen hochangereichertes Uran verarbeitet bzw. gelagert wird innerhalb eines geschlossenen Containments zu vereinigen. Die Aspekte einer rationellen und übersichtlichen Prozeßführung konnten bei dieser Modifikation nicht in dem Maße berücksichtigt werden, wie das bei einem Neubau möglich sein wird.

/1/ Jahresbericht 1971, KFK 1618

/2/ NUKEM-79, unveröffentlicht, auf Anforderung bei
Firma NUKEM, 645 Hanau, Postfach 869, erhältlich

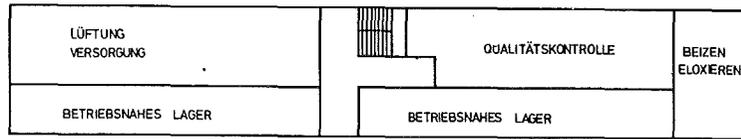
Aus einem Kostenvergleich für beide Varianten ergibt sich, daß bereits die Baukosten für die Modifikation der bestehenden Anlage mindestens 70 % der Neubaukosten ausmachen.

Weiterhin ist bei einer betriebswirtschaftlichen Beurteilung zu berücksichtigen, daß die unterschiedlichen Abschreibungszeiten den Neubau begünstigen. Auch der Vergleich der Produktionsausfallkosten spricht eindeutig für den Neubau. Dabei wurde aber noch nicht berücksichtigt, daß lange Ausfallzeiten Umsatz- und Marktanteilverluste nach sich ziehen können.

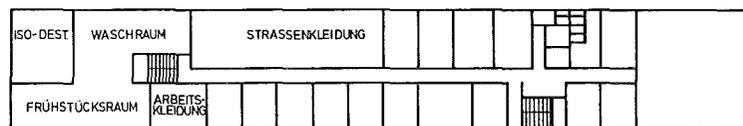
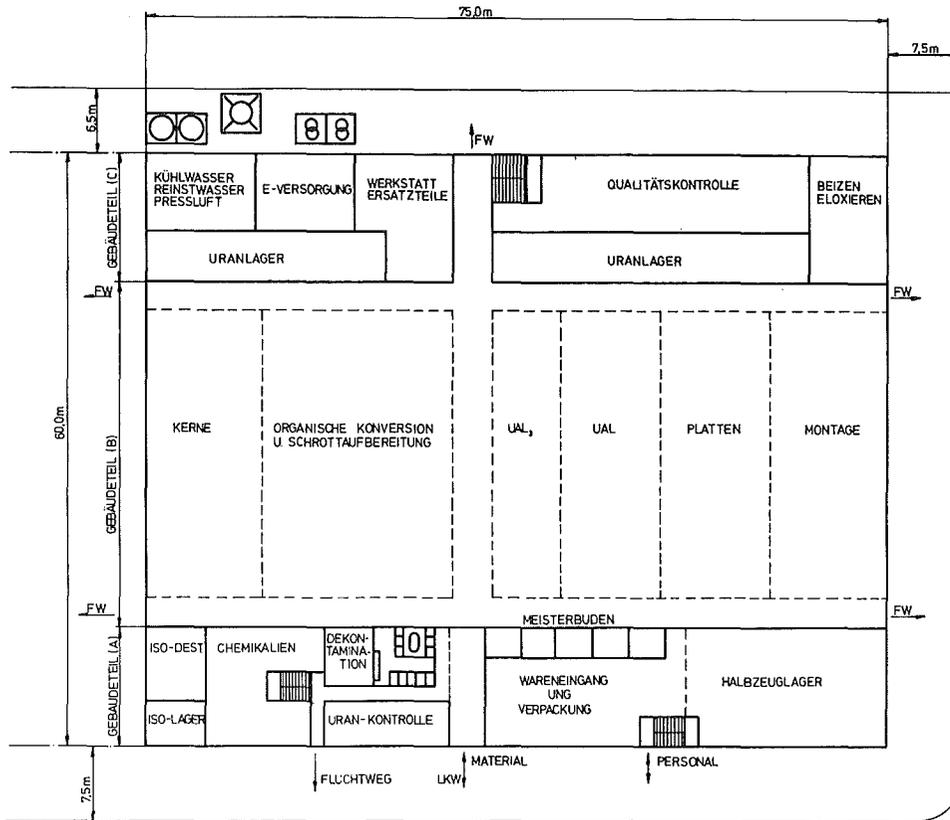
Der Neubau (Abb.1) nimmt ohne Außenanlagen eine Grundfläche von 4500 m² (60 x 75 m) in Anspruch. Er ist in die Gebäudeteile A, B und C gegliedert. Gebäudeteil B ist die eigentliche Produktionshalle, während in den Gebäudeteilen A und C - zweigeschossig geplant - Hilfsbetriebe und Sozialräume untergebracht sind. Im Gebäudeteil B sind auf der linken Seite die Chemiebetriebe (Kerne- Anlage, Organische Konversion und Schrottaufarbeitung), auf der rechten Seite die Cermetfertigung (UA1₃), die Legierungsbildchen-Herstellung (UA1), der Plattenbetrieb und die Elementmontage vorgesehen. Die Aufstellung ist so gewählt, daß sich kurze Transportwege ergeben.

Längs der Produktionsbetriebe wird im Gebäudeteil C ein Spaltstofflager eingerichtet, das je nach Bedarf in entsprechende Abschnitte unterteilt werden kann.

Alle Betriebsbereiche, in denen hochangereichertes Uran verarbeitet, geprüft oder gelagert wird, sind nur über einen Kontrollpunkt (Urankontrolle), der sich etwa in der Mitte des Gebäudeteils A befindet, zugänglich, so daß eine gute Überwachung des ein- bzw. ausgehenden Spaltstoffes gewährleistet ist.



OBERGESCHOSS (3,5m)
ZU GEBÄUDETEIL (C)



OBERGESCHOSS (3,5m)
ZU GEBÄUDETEIL (A)

Der Ein- und Ausgang für das Personal (Gebäudeteil A) sowie die Sozialräume liegen außerhalb des eigentlichen Containments, das nur in Arbeitskleidung durch eine Personalkontrollstation (evtl. Personalschleuse) die gleichzeitig Strahlenschutzfunktionen übernimmt, betreten werden kann.

Zusammenfassend kommt die Studie zu dem Ergebnis, daß nicht nur der Kostenvergleich, sondern auch die Überwachungs- und Sicherheitstechnische Anlagenauslegung für den geplanten Neubau sprechen.

6.2 Arbeiten im Zusammenhang mit der Einführung von Überwachungsmaßnahmen an kerntechnischen Anlagen nach dem Verifikationsabkommen zum NV-Vertrag

Im Jahre 1972 wurden von der IAEO und EURATOM erstmals technische Einzelheiten für die Durchführung der im Verifikationsabkommen zum NV-Vertrag vorgesehenen Überwachungsmaßnahmen an kerntechnischen Anlagen ausgearbeitet und in den Anlagespezifischen Anhängen der Ergänzenden Abmachungen zum Verifikationsabkommen niedergelegt. Bezüglich der Anlagen in der BRD legten IAEO und EURATOM die Anlagespezifischen Anhänge für das Kernkraftwerk Stade (KKS) als Muster eines leichwassergekühlten Leistungsreaktors, die NUKEM als Beispiel einer Brennelement-Fabrikationsanlage und die WAK als Beispiel einer Wiederaufarbeitungsanlage für bestrahlten Kernbrennstoff vor.

Die Bundesregierung betonte in diesem Zusammenhang ihr Interesse an einer reibungslosen Einführung und Anwendung des Verifikationsabkommens in der industriellen Praxis, Das BMFT beauftragte das Projekt SpFK, in enger Zusammenarbeit mit den Anlagebetreibern klärende Untersuchungen der Probleme durchzuführen, die sich bei der Durchführung der Überwachungsmaßnahmen ergeben können, mit dem Ziel, eine für den Betrieb der Anlagen optimale Gestaltung der Überwachungsmaßnahmen zu finden.

Das Projekt SpFK begann mit diesen Arbeiten im Herbst 1972. Nach vorbereiteten Studien konnte gemeinsam mit den Betreibern der drei Anlagen KKS, NUKEM und WAK, die eine Art Modellcharakter haben, Listen der Problemkreise zusammengestellt werden, die weiter zu untersuchen sind.

6.2.1 Kernkraftwerk Stade

Eine Reihe vorbereitender Tätigkeiten befaßte sich allgemein mit leichwassergekühlten Leistungsreaktoren:

Es wurde eine Zusammenstellung aller für die Kernmaterialüberwachung relevanten Daten von Leichtwasserreaktoranlagen in der BRD angefertigt und untersucht, inwieweit übereinstimmende Merkmale vorhanden sind, die eine gemeinsame

Behandlung der Probleme im Zusammenhang mit den Regelungen für die Überwachungsmaßnahmen erlauben. Im Ergebnis zeigte sich, daß in der Tat gleichartige Problemstellungen zu erwarten sind, die gemeinsame Untersuchungen nahelegen, beziehungsweise erwarten lassen, daß Untersuchungsergebnisse weitgehend von einer auf andere gleichartige Angaben übertragen werden können.

Eine zweite Studie diente der Sammlung von Unterlagen zur Frage der Brennelementreparatur an Siede- und an Druckwasserreaktoren. Dabei konnten Lösungsansätze für die Behandlung der Reparaturen in einem Überwachungskonzept entwickelt werden. Es zeigte sich auch hier, daß im Prinzip eine gleichartige Behandlung der Fragestellung für beide Leichtwasserreaktortypen möglich ist.

Die Arbeitsergebnisse legten nahe, für die Untersuchungen der Probleme im Zusammenhang mit den Regelungen der Überwachungsmaßnahmen am KKS die Zusammenarbeit auch mit anderen Betreibern leichtwassergekühlter Leistungsreaktoren anzustreben und damit auch einer Anregung des BMFT zu folgen, das die Zusammenfassung von Betreibern ähnlicher Anlagen zu einer Gruppe bei der Durchführung der Studienarbeiten angeregt hatte.

Gemeinsam mit der Vereinigung Deutscher Elektrizitätswerke (VDEW) und bei dieser wurde ein ad-hoc-Arbeitskreis "Spaltstoffüberwachung" ins Leben gerufen, in dem Vertreter der Leichtwasserreaktorbetreiber gemeinsam, in Zusammenarbeit mit dem Projekt SpFK die Untersuchungen durchführen.

Für eine erste Unterrichtung des Arbeitskreises fertigte das Projekt SpFK eine Analyse des Leitfadens für Anlagespezifische Anhänge in den Ergänzenden Abmachungen an, die, im Lichte der Bestimmungen des Verifikationsabkommens und der Regelungen in den Ergänzenden Abmachungen, Umfang und Inhalt der Anhänge für Leistungsreaktoren verdeutlicht.

Neben diesen vorbereitenden Tätigkeiten konnte, ausgehend von dem von der IAEO und EURATOM ausgearbeiteten Anlagespezifischen Anhang, gemeinsam mit dem Betreiber des KKS eine Liste der Probleme zusammengestellt werden, die mit dem Ziel der Optimalisierung der vorgesehenen Überwachungsmaßnahmen zu untersuchen sind. Die Liste umfaßt die folgenden Problemkreise:

1. Die Verwirklichung eines Versiegelungs-/Beobachtungskonzepts oder die Entwicklung alternativer Überwachungsmaßnahmen unter Berücksichtigung der Brennelementreparaturen
2. Die Ausarbeitung eines Buchführungs- und Berichterstattungssystems
3. Die Bereitstellung nuklearer Daten für das Buchführungs- und Berichterstattungssystem
4. Die Ausarbeitung eines Verfahrens für die Aufnahme und die Inspektion des realen Bestands im Zusammenhang mit betrieblichen Brennelementmanipulationen

Die Bearbeitung dieser Problemkreise im Zusammenwirken mit dem ad-hoc-Arbeitskreis "Spaltstoffüberwachung" der VDEW ist Aufgabe für das Jahr 1973.

6.2.2 NUKEM, Fabrikationsanlage zur Verarbeitung von hochangereichertem Uran

Gegenüber den Reaktoren, in denen der Spaltstoff in definierten Einheiten (z.B. Stabbündel) gehandhabt wird, liegen die Problemkreise für die Überwachung in den kerntechnischen Anlagen, die Kernbrennstoffe offen verarbeiten, überwiegend im Bereich der Materialbilanzierung und Meßtechnik sowie im Buchführungs- und Berichterstattungswesen. Insbesondere bedeuten die erforderlichen physikalischen Inventuren (2 pro Jahr) eine gravierende Belastung für den Anlagenbetreiber, so daß hier eine Optimierung der notwendigen Maßnahmen mit höchster Priorität vorgenommen werden muß.

In dem von EURATOM und IAEO vorgelegten Anlagen-spezifischen Anhang für die Fa. NUKEM ist bereits eine Einteilung der Materialbilanzzonen und eine Festlegung der sog. Schlüsselmeßpunkte für die Erfassung von Spaltstoffflüssen und Spaltstoffinventar vorgenommen worden. Nach Prüfung dieser Unterlage wurden gemeinsam mit der Fa. NUKEM vom Projekt 6 Problemkreise analysiert, deren Bearbeitung in Form eines Zusammenarbeitsvertrages im Jahre 1973 in Angriff genommen werden soll.

1. Definition von Primärdaten die an Schlüsselmeßpunkten für Spaltstoffflüsse und Inventuren gemessen und protokolliert werden müssen.
2. Beschreibung und Erprobung des für Ziffer 1 notwendigen Meßsystems einschl. der Eichverfahren und der Abschätzung systematischer und statistischer Fehler.
3. Durchführung eines Analysenprogramms zur Ermittlung von bisher nicht identifizierten Verlustströmen, die in der Materialbilanz bislang noch nicht berücksichtigt worden sind.
4. Erarbeitung und Erprobung einiger Verfahren zur Bestimmung des realen Spaltstoffbestandes in Lager- und Produktionsbereichen (Basis: 2 Inventuren pro Jahr)
5. Erarbeitung und Erprobung statistischer Verfahren, die auf der Basis der individuellen Messung dieser Primärdaten (Ziffer 1 und 3) die Gesamtunsicherheit von SRD und MUF innerhalb eines Bilanzzeitraumes erfassen.
6. Erarbeitung und Erprobung eines Protokollsystems - unter Berücksichtigung der Verwendung von EDV- zur übersichtlichen Erfassung aller für die Verifikation notwendigen Primärdaten.

Die Ergebnisse dieses Zusammenarbeitsvertrages sollen nicht nur für die gegenwärtige Fabrikationsanlage sondern auch für die neu geplante Fabrikationsanlage gültig sein. Insbesondere ist eine enge Abstimmung aller Vorhaben und Lösungswege mit der Überwachungsbehörde EURATOM vorgesehen.

6.2.3 WAK, Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe

Das Projekt SpFK verhandelte mit WAK über Art und Umfang der geplanten Zusammenarbeit nach eingehender Analyse des von EURATOM und IAEA vorgelegten Anlagenspezifischen Anhangs.

Es wurden folgende 9 Themenkreise vorgeschlagen und der dafür erforderliche personelle und finanzielle Aufwand erarbeitet. Der Terminplan sieht ein vorläufiges Ende der Arbeiten für Ende 1974 vor.

1. MBA-Einteilung

Untersuchung aller Vor- und Nachteile der von EURATOM vorgeschlagenen Einteilung für die Materialbilanzzonen (MBA).

2. Detaillierte Erarbeitung eines Protokoll- und Berichtswesens

Angestrebt wird eine EDV-gesteuerte Abzweigung aller safeguards-relevanten Primärdaten, die in einem getrennten Protokollsystem erfaßt und gespeichert werden. Neben der Erfassung der Primärdaten sollte in diesem Protokollsystem die Auswertung der für die Berichte erforderlichen Chargendaten geprüft werden können (Tankkalibrierungen, Korrekturen, Instrumenteneichungen, Fehlerschätzungen etc.). Ein solches System sollte entwickelt und anschließend praktisch erprobt werden.

3. Problemkreis IAEA- und EURATOM-Proben

Sowohl die IAEA als auch EURATOM erhalten Proben aus den Eingangschargen. Dabei ist insbesondere für die IAEA-Proben noch ungeklärt, ob und wie diese zu lagern sind. Dabei stellen sich Fragen nach dem Platzbedarf, dem technischen Konzept der Lagerung, der Anzahl der zu lagernden Proben, der Häufigkeit der Probenentnahme sowie nach der Probenlagerungszeit, was insbesondere im Hinblick auf die Probenalterung wichtig ist. Zu diesem Problemkreis gehören weiterhin die Überprüfung der in den Anlagenspezifischen Anhängen vorgeschlagenen "attribute" - und "variable"- Proben.

4. Untersuchungen zu Fragen der Säurerückführung

Es ist bisher in der WAK üblich, einen aufkonzentrierten, uran- und plutoniumhaltigen Strom aus den Waschlösungen der beiden Extraktionszyklen (sog. 2WW-Strom) dem Lösekessel zurückzuführen. Der Gehalt an U und Pu ist nicht einwandfrei bestimmbar, da die Lösung ein organisches und wässriges Gemisch ist. Es soll untersucht werden, ob der Lösekessel umgangen werden könnte, um repräsentative Werte für den ursprünglichen Spaltstoffgehalt der aufgelösten BE zu erhalten. Damit ließe sich auch die Absender-Empfänger-Differenz (SRD) besser ermitteln sowie die Anwendung der Isotopenkorrelationstechnik optimieren.

5. Qualitätsprogramm der Analytik

Erarbeitung von systematischen und zufälligen Fehlerabschätzungen der beteiligten analytischen Messungen durch Analyse von Standardlösungen und Auswertung von historischen Doppeltanalysen. Untersuchungen zur Güte und Häufigkeit von Nachkalibrierungen (evtl. mit Tracertechnik).

6. Zeitverzug zwischen Buchung und Transfer

Zum gegenwärtigen Zeitpunkt sind Zeitverzögerungen von 4 Wochen zwischen Transfer und Messung üblich, so daß Probleme bei einer aktuellen Buchinventarbestimmung auftauchen. Problematisch wird dieser Umstand am Ende einer Kampagne, da die Auswertung des MUFs vor Beginn der neuen Kampagne erfolgen muß. Eine Beschleunigung der Analysenergebnisse durch evtl. Einsatz schnellerer Analysenverfahren (X-Ray-Fluoreszenz) oder eine Buchung von vorläufigen Ergebnissen, die später korrigiert werden können, wären Maßnahmen, um diese Schwierigkeiten zu umgehen.

7. Abfallerfassung

Der Anlagenspezifische Anhang sieht eine Beendigung der Überwachungsaktivitäten vor, wenn der Spaltstoff in entsprechend verdünnter und nicht aufarbeitungswürdiger Form vorliegt (Code 3.3). Euratom strebt die Festlegung einer höchsten Konzentration von Spaltstoff in der Abfalllösung an. Untersuchungen von alternativen Konzepten (eigene Probenahme, Überwachung der Lösungen bis ADB, usw.) sollten vorgenommen werden.

8. Pu/U-Konzept

Untersuchungen über Anwendbarkeit der Isotopenkorrelationstechnik.
Wahrung der Identität des Brennstoffs bis zur Eingangsbestimmung
(bekannte Beziehung aufgelöster BE zu gemessener Eingangsmenge).
Minimalisierung des rückgeführten Pu (s. auch Punkt 4).

9. Inspektionsaufwand

Analyse und Festsetzung derjenigen Eingangsdaten, die für die Fest-
legung des Inspektionsaufwandes von EURATOM von Bedeutung sein können.

Bei der Bearbeitung dieser Themenkreise, soll ebenfalls eine enge
Abstimmung mit EURATOM vorgesehen werden, damit divergierende Auf-
fassungen der erforderlichen Überwachungsmaßnahmen rechtzeitig ab-
gebaut werden können.

Kapitel 7 : Internationale Zusammenarbeit
D. Gupta

7.1 Zusammenarbeit mit EURATOM

7.2 Zusammenarbeit mit der IAEO

Tabellen

Literaturverzeichnis zu Kapitel 7

7. Internationale Zusammenarbeit

7.1 Zusammenarbeit mit Euratom

Im Rahmen der Euratom-Assoziation * wurden im Jahr 1972 in mehreren Bereichen gemeinsame Tätigkeiten entfaltet, wovon einige im folgenden zusammengefaßt sind.

- a) Instrumenten-Entwicklung : Der Status der Instrumenten-Entwicklung, sowie die geschätzten Zeitpläne für die möglichen Einsätze dieser Instrumente wurden gemeinsam im Projektleitungsausschuß analysiert. Die Ergebnisse sind in Tabellen 7-1 bis 7-4 zusammengestellt.
- b) Anwendung der Isotopen-Korrelation : Die insbesondere in den Instituten TU (europäische Gemeinschaft), IASR (GfK) und Battelle Memorial (USA), erzielten Ergebnisse in diesem Gebiet zeigten deutlich, daß die Isotopen-Korrelationen außer bei der Überwachung auch in anderen Gebieten (z.B. bei der Reaktorphysik und der Brennstoffzyklus-Optimierung) ihre Anwendung finden können. Es wurden deshalb durch die Assoziation vorbereitende Schritte unternommen, um die Reaktorbetreiber der Gemeinschaft auf die verschiedenen Möglichkeiten dieser Anwendung aufmerksam zu machen und ggf. zu diesem Zwecke eine Datenbank zu organisieren.
- c) Vorbereitung für ein Informationssymposium: Schon im Jahre 1971 wurde von den Mitgliedern der Assoziation die Notwendigkeit eines Informationssymposiums für die beteiligten Stellen in der Gemeinschaft erkannt. In einem solchen Symposium sollten die Anlagenbetreiber, Forschungsstellen der Assoziation, Regierungsstellen sowie Überwachungsorganisationen wie Euratom und IAEA, die Probleme bei der Durchführung von Überwachungsmaßnahmen gemeinsam diskutieren sowie die möglichen Lösungswege aufzeigen. Außerdem sollten neue Richtlinien für die zukünftigen F+E-Arbeiten erarbeitet werden. Im Laufe des Jahres 1972 wurde auch ein vorläufiges Programm erstellt. Das Symposium mußte jedoch auf Anfang 1974 verschoben werden, da zu erwarten war, daß die Festlegung der Modalitäten zur praktischen Durchführung der Überwachungstätigkeiten zwischen Euratom und IAEA (im Rahmen des NV-Vertrages) bis dahin dauern würde.

* Mitglieder der Euratom Association (Stand Dezember 1972)
CEN(Belgien), CNEN(Italien), Europäische Gemeinschaft, GfK(BRD),
RCN(Niederlande)

- d) Eine der wichtigsten Tätigkeiten des Projektes im Rahmen der Zusammenarbeit mit der Euratom war die Erstellung von technischen Unterlagen zu den Verifikationsverhandlungen zwischen der europäischen Gemeinschaft und IAE0. Die Ergebnisse dieser Verhandlungen sind in mehreren Dokumenten festgehalten.

Das wichtigste davon ist das Verifikationsabkommen, Neben dem Hauptvertragstext, der in Anlehnung an das Musterabkommen der IAE0 (infcirc 153) aufgebaut ist, enthält das Abkommen ein Protokoll (das Bestandteil des Abkommens ist und somit die gleiche Bedeutung wie das Abkommen hat), in dem die Verpflichtungen und Rechte sowie der Modus der Zusammenarbeit von IAE0 und EURATOM geregelt sind. Außerdem gibt es ein Rats-Protokoll, das kein Teil des Hauptabkommens ist, in dem die Verpflichtung von EURATOM gegenüber den einzelnen Staaten der Gemeinschaft, die das Verifikationsunterzeichnet haben, festgelegt ist. Die technischen Einzelheiten der Überwachungsmaßnahmen sollen in sogenannten 'Ergänzenden Abmachungen' (allgemeiner Teil) bzw. 'Anlagespezifischen Anhängen' (anlagespezifischer Teil) festgehalten werden. Die Ergänzenden Abmachungen und Anlagespezifischen Anhänge können, wenn erforderlich, jederzeit geändert werden, um den technischen Entwicklungen Rechnung zu tragen, ohne daß das Hauptabkommen geändert werden muß.

7.2 Zusammenarbeit mit der IAE0

Wie in den vergangenen Jahren beteiligte sich das Projekt an den Arbeiten der IAE0 in mehreren Arbeitsausschüssen dieser Organisation. Im einzelnen waren folgende Problemkreise Gegenstand der Beratungen:

- a) Thema : Use of Isotope Composition Data in Safeguards /1/

Die wesentlichen Diskussionspunkte waren:

- Verifikation der Pu-Eingangsbestimmung in Aufarbeitungsanlagen mit Hilfe von Isotopenkorrelationen

- Bestätigung von Informationen durch Isotopenkorrelationstechnik
- Identifikation von Kernbrennstoff durch Isotopendaten
- Dynamische Bestimmung des Prozeßinventars mit Hilfe von Isotopendaten
- Andere Anwendungen von Isotopendaten.

b) Thema: Überwachungsmaßnahmen für Isotopen-Anreicherungsanlagen /2,3/

Hauptdiskussionsthemen waren:

- Beschreibung von Überwachungsmaßnahmen und - grundzügen
- Allgemeine Überwachungsmaßnahmen
- Anforderungen an die Informationen zur Anlagenauslegung
- Auslegungskennzeichen, die die Überwachung erleichtern können
- Anforderungen an Berichte und Protokolle.

c) Thema: Genauigkeit der Bilanzierung von Kernmaterial und technische
Wirksamkeit der Überwachung /7-4,5/

Hauptdiskussionsthemen waren:

- Genauigkeit von Messungen und MUF-Daten
- Probleme der Definition, Abschätzung und Fortpflanzung von Meßfehlern
- Stufen der Verantwortung

- Pläne für statistische Probennahme von Spaltstoffen für unabhängige Messungen
- Zahlenmäßige Bestimmung des MUF
- Technische Wirksamkeit der Überwachung.

Tabelle 7-1 :

Programm und Zeitplan für die Instrumentenentwicklung der Europäischen
Gemeinschaft

1. Type of Instrument	2. application	3. mobility	4. accuracy	5. measuring time	6. capacity	7. value of safeguards	8. value for plant operation	9. status	10. remarks
1. active neutron techniques									
1.1. with Sb-Be source	U235, Pu239, Pu240 in pins		U235: 1% Pu239: 2% Pu240: 3%	15' for 3 isotopes				in 1972: demonstration for fuel; later for scraps	
1.2. with Cf252 source	pebbles (AVR)	stationary	1-1,5 %	1' per pebble		tamperproof	automatic statistical sampling in production line	ready end 1972	
2. spontaneous fissions	PuO ₂ -UO ₂ pins	transportable	1 %					for fuel: ready for waste: later	
3. gamma-measurements	U235 in MTR fuel	stationary						with computer data handling: ready end 1972	
4. Multichannel analyser	for gamma spectra measurement	portable			256 channels			prototype ready improved model: oct. 72	
5. Seals and identification									
5.1	general purpose seals							ready now field tests started	
5.2	MTR fuel seals							operational end 1972. in 1973: all MTR elements irradiation tests under way ready middle 1973	
5.3	BWR fuel seals								
6. Direct methods									
6.1 Mass-spectrometry at TU Karlsruhe at JCR Ispra								(see GfK program) modified mass spectrometer ready for middle 1972	
6.2 X-ray fluorescence	for inactive solutions	portable	2,7 %			not possible to separate U, Pu, Th		fields under way	

Literaturverzeichnis zu Kapitel 7

/7-1/ KFK 1583

E. Drosselmeyer, R. Kraemer, R. Rota: User's Manual for the Application of the Dynamic Process Inventory Determination using Isotopic Step-Signals in Reprocessing Plants.

/7-2/ KFK 1696

R. Otto, E. Wenk, E. Kraska, R. Avenhaus, D. Gupta
Assessment of Material Unaccounted For (MUF) in a Centrifuge Plant.

/7-3/ wird als KFK veröffentlicht:

R. Otto, E. Wenk, E. Kraska, D. Gupta: Basis of Material Accountancy for Safeguards in a Centrifuge Plant.

/7-4/ R. Avenhaus: Game Theoretical Treatment of a Statistical Inventory Verification Model. Paper presented at IAEA-Working Group Meeting.
Available from the Author.

/7-5/ KFK 1695

F. Schinzer, D. Gupta, R. Kraemer
Expected Measurement Accuracies and Limits of Error in a Fabrication Plant for High Enriched Uranium.