

KERNFORSCHUNGSZENTRUM

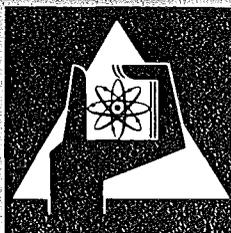
KARLSRUHE

Oktober 1974

KFK 1980

Projekt Spaltstoffflußkontrolle

Jahresbericht 1973



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

KARLSRUHE

Als Manuskript vervielfältigt

Für diesen Bericht behalten wir uns alle Rechte vor

GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M. B. H.
KARLSRUHE

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

KFK 1980

Projekt Spaltstoffflußkontrolle

Jahresbericht 1973

Gesellschaft für Kernforschung mbH., Karlsruhe

Dieser Bericht wurde zusammengestellt

von

G. Bork

und enthält Beiträge von

A.v. Baeckmann⁴, K. Baumung³, K. Böhnel³, R. Braun⁴, Chr. Brückner¹,
W. Coerdts⁴, A. Cricchio⁶, E. Drosselmeyer¹, R. Eberle⁷, H. Frick¹,
E. Gantner⁴, F. Gérin⁶, D. Gupta¹, G. Hartmann¹, L. Koch⁶, R. Kraemer¹,
W. Krappel⁷, M. Klüchle³, E. Mainka⁴, P. Matussek², H.-G. Müller⁴,
D. Nentwich¹, J. Neuber⁴, H. Ottmar², H. Ruf⁴, W. Rust⁵, W. Scheuerpflug¹,
C. Weitkamp², M. Wilhelmi⁴ und M. Zeller⁷.

In den Beiträgen sind auch Beschreibungen der von den Firmen Dornier, GWK, Interatom, Nukem, Uranit und der VDEW gemeinsam mit dem Projekt durchgeführten Arbeiten enthalten.

¹Gesellschaft für Kernforschung, Institut für Angewandte Systemtechnik und Reaktorphysik

²Gesellschaft für Kernforschung, Institut für Angewandte Kernphysik

³Gesellschaft für Kernforschung, Institut für Neutronenphysik und Reaktortechnik

⁴Gesellschaft für Kernforschung, Institut für Radiochemie

⁵Gesellschaft für Kernforschung, Abt. Reaktorbetrieb und Technik

⁶Europäisches Institut für Transurane

⁷Technische Universität Hannover

Annual Report 1973

This report is a description of major activities performed in 1973 within the framework of the Nuclear Safeguards Project by the institutes of the Gesellschaft für Kernforschung Karlsruhe participating in this Project, the European Institute of Transuranium Elements, some industrial firms and the Technical University of Hannover.

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, einigen Industriefirmen und dem Institut für Kerntechnik der TU Hannover im wesentlichen im Jahre 1973 durchgeführt wurden.

<u>Inhaltsübersicht</u>	<u>Seite</u>
Einführung	1
<u>Kapitel 1:</u> Systemanalytische Arbeiten	1-1
1.1 IAEA-Forschungsauftrag zur Optimierung von Überwachungsmaßnahmen	1-1
1.1.1 Theoretischer Teil	1-1
1.1.2 Daten der Aufarbeitungsanlage vom Typ der NFS	1-3
1.1.3 Daten der Fabrikationsanlage vom Typ der ALKEM	1-4
1.1.4 Anwendung	1-4
1.1.5 Ergebnisse	1-6
1.2 Weiterentwicklung des 2-fachen Inventurmodells	1-7
1.3 Theoretische Untersuchungen über Schwerisotopen- korrelationen	1-10
Literaturverzeichnis zu Kapitel 1	1-11
<u>Kapitel 2:</u> Zerstörungsfreie Methoden	2-1
2.0 Einführung	2-1
2.1 Neutroneneinfang - Gammastrahlung	2-2
2.2 Gammaskopmetrische Bestimmung der Isotopen- zusammensetzung von Plutonium	2-7
2.3 Gammaskopmetrische Bestimmung der Anreicherung von oxidischem Uranpulver	2-13
2.4 Kerndaten	2-17

	Seite
<u>Kapitel 3:</u> Direkte Verfahren	3-1
3.0 Einführung	3-1
3.1 Serviceleistungen	3-3
3.2 Entwicklung von Analysenverfahren	3-4
3.2.1 Automatisierung der massenspektrometrischen Isotopenverdünnungsanalyse	3-4
3.2.2 Automatisierung der Uran- und Plutonium- konzentrationsbestimmung durch Röntgen- fluoreszenzanalyse	3-14
3.2.3 Versuche zur emissionsspektrometrischen Isotopenbestimmung in Kernbrennstoffen	3-18
3.2.4 Verbesserte Methode zur potentiometrischen Uranbestimmung	3-24
Literaturverzeichnisse bei den einzelnen Unterkapiteln.	
<u>Kapitel 4:</u> Spaltstoffschutzmaßnahmen	4-1
<u>Kapitel 5:</u> Experimentelle Prüfung von Überwachungsmaßnahmen	5-1
5.1 Durchführung eines integralen Experimentes in einer Gas-Ultra-Zentrifugenanreicherungsanlage	5-1
5.2 Interlaboratoriumstest IDA-72	5-4
<u>Kapitel 6:</u> Arbeiten im Zusammenhang mit der Einführung von Überwachungsmaßnahmen an kerntechnischen Anlagen nach dem Verifikationsabkommen zum NV-Vertrag	6-1
6.1 Leichtwasserreaktoren	6-1
6.1.1 Buchführungs- und Berichterstattungssystem	6-3
6.1.2 Anwendung von Versiegelungs- und Beobachtungsmaß- nahmen bei der Überwachung	6-4

	Seite	
2.5	Messungen an Uran-Brennstäben für Leichtwasser- reaktoren	2-20
2.5.1	Anreicherungsmessung	2-22
2.5.2	Nachweis von Spalten	2-24
2.5.3	Gesamtbrennstoffmessung	2-26
2.6	Zerstörungsfreie Bestimmung von ^{235}U und Thorium von 15 THTR-Brennelementen mit Hilfe der Gamma-Spektrometrie	2-27
2.7	Rechnergesteuerter Betrieb eines Neutronengenerators	2-33
2.8	Rechnergesteuerte automatische Bestimmung des ^{235}U - Gehaltes in AVR-Kugelelementserien	2-39
2.9	Neutronenkoinzidenzmessung zur Plutoniumbestimmung	2-44
2.9.1	Statistischer Fehler bei der Zählung von Spalt- neutronen	2-45
2.9.2	Statistischer Fehler von Koinzidenzmessungen in einem Demonstrationsexperiment	2-47
2.9.3	Schnellsplaltung	2-50
2.9.4	Multiplikation thermischer Neutronen	2-53
2.9.5	Abfallmeßgerät	2-54
2.10	Untersuchungen zur Spezifikation einer Meßanlage für Spaltstoffe in LWR-Brennelementen mit einer Antimon- Beryllium-Quelle	2-57
2.10.1	Minimalisierung der Ortsabhängigkeit	2-57
2.10.2	Reproduzierbarkeit	2-60
	Literaturverzeichnis zu Kapitel 2	2-63

		<u>Seite</u>
6.2	SNR 300	6-7
6.3	Überwachungsmaßnahmen für GUZ-Anlagen	
6.4	Erarbeitung der im Zusammenhang mit den FA stehenden Hauptproblemen der WAK	6-8
6.5	NUKEM, Fabrikationsanlage zur Verarbeitung von hochangereichertem Uran	6-13
<u>Kapitel 7:</u>	Internationale Zusammenarbeit	7-1
7.1	Zusammenarbeit mit EURATOM/ESARDA	7-1
7. 1.1	Arbeitsausschüsse der ESARDA	7-1
7.1.2	Vorbereitung für das Informations-Symposium, Rom	7-2
7.2	Zusammenarbeit mit der IAEO	7-3
7.2.1	Arbeitspanel über nichtradioaktive Abfälle aus Kernanlagen	7-3
7.2.2	Arbeitspanel über staatliche Systeme	7-3
7.3	Gedankenaustausch mit Vertretern verschiedener Stellen in den USA	7-4
7.3.1	Überwachungssystem, allgemein	7-5
7.3.2	Stand der Erprobung und Entwicklung von zerstörungsfreien Instrumenten in den USA	7-5
7.3.3	Spaltstoffschutzsysteme	7-7

Jahresbericht 1973

des Projektes Spaltstoffflußkontrolle

Einführung

D. Gupta, IASR

Das Jahr 1971 leitete eine Wende bei den Prioritäten der Projektarbeiten ein. Die Demonstrationsphase wurde weitgehend abgeschlossen und es begann die Phase der Implementierung. Im Jahr 1972 standen die Projektaktivitäten im wesentlichen unter dem Einfluß der Verifikationsverhandlungen zwischen der IAEA und EURATOM mit den fünf Mitgliedstaaten. Die Modalitäten für die Durchführung der Überwachungstätigkeiten durch IAEA und EURATOM in Kernanlagen dieser Mitgliedstaaten wurden festgelegt. Die unterstützenden Arbeiten zur Einführung des Überwachungssystems begannen auch in diesem Jahr.

Die Arbeiten im Jahre 1973 waren hauptsächlich gekennzeichnet durch die Feststellung von Problemen, die bei der Einführung und Durchsetzung des Überwachungssystems in Kernanlagen der BRD entstehen können und durch die Erarbeitung von möglichen Lösungswegen zu diesen Problemen, die gemeinsam mit den betreffenden Anlagenbetreibern und EURATOM vorzunehmen sind. Außerdem nahm in diesem Jahr der ad-hoc-Instrumentenausschuß des BMFT, der das Projekt bei der Auswahl von Meßinstrumenten für ihre Erprobung in den Kernanlagen der BRD beraten sollte, seine Arbeit auf.

Die praktischen Arbeiten zum in internationalem Rahmen durchgeführten Interlaboratoriumstest IDA-72 und die statistische Auswertung des Experimentes wurden in diesem Jahr nahezu abgeschlossen. Ein Teil der Integralen Experimente in einer Urananreicherungsanlage mit Gasultrazentrifugen wurde ebenfalls beendet.

Die ersten Untersuchungen zu den Spaltstoffschutzmaßnahmen haben gezeigt, daß weitere F.+E.-Arbeiten in diesem Bereich nur unter geänderten Bedingungen durchgeführt werden können. Im Gegensatz zur Spaltstoffflußkontrolle, die erst neu erarbeitet werden mußte, werden die Maßnahmen zum Spaltstoffschutz

in der BRD seit langem gemeinsam mit dem allgemeinen Gesamtobjektschutz (nach dem Atomgesetz) behandelt, wofür andere Stellen auf Bundes- und Länderebene (z.B. das BMI, Genehmigungsbehörden auf Länderebene, Kriminalämter auf Bundes- und Länderebene usw.) zuständig sind. Für eine vernünftige Abwicklung der F+E.-Arbeiten ist eine enge Abstimmung mit diesen Stellen erforderlich. Außerdem sind für diese Arbeiten Informations- und Erfahrungsaustausch mit diesen Stellen eine unabdingbare Voraussetzung.

Voraussichtlich werden die Arbeiten zur Lösung von Problemen, die bei der Einführung des Überwachungssystems entstanden sind, noch mehrere Jahre in Anspruch nehmen. Die Arbeiten zur Erprobung und Entwicklung von Meßsystemen sowie zu Schutzmaßnahmen sind langfristiger Natur.

Kapitel 1: SYSTEMANALYTISCHE ARBEITEN

- 1.1 IAEA-Forschungsauftrag zur Optimierung von
Überwachungsmaßnahmen
H. Frick, G. Hartmann
 - 1.1.1 Theoretischer Teil
 - 1.1.2 Daten der Aufarbeitungsanlage vom Typ der NFS
 - 1.1.3 Daten der Fabrikationsanlage vom Typ der ALKEM
 - 1.1.4 Anwendung
 - 1.1.5 Ergebnisse

- 1.2 Weiterentwicklung des 2-fachen Inventurmodells
H. Frick

- 1.3 Theoretische Untersuchung über Schwerisotopenkorrelationen
R. Kraemer

Literaturverzeichnis zu Kapitel 1

Kapitel 1: Systemanalytische Arbeiten

1.1 IAEA-Forschungsauftrag zur Optimierung von Überwachungsmaßnahmen

Im November 1973 konnte der IAEA-Forschungsauftrag "Optimization of Safeguards Effort" fertiggestellt werden /1/.

Die Studie enthält die Aufstellung und die mathematische Behandlung eines Inspektionsmodells sowie eine ausführliche Anwendung der theoretischen Überlegungen auf eine Wiederaufbereitungsanlage vom Typ der NFS und eine Fabrikationsanlage vom ALKEM Typ.

1.1.1 Theoretischer Teil

Es werden 2 Arten von Materialentwendungen berücksichtigt.

1. Entwendung mittels Datenverfälschung
2. Entwendung ohne Datenverfälschung im Rahmen der Meßgenauigkeit.

Für 1. wurden zwei verschiedene statistische Modelle betrachtet. Das erste sieht eine Kontrolle der Betreiberdaten durch Nachmessen von Stichproben seitens des Inspektors vor und sei kurz skizziert.

Es liegen R Klassen von Batches vor mit den Klassenumfängen N_i , $i=1, \dots, R$. Im Falle einer Entwendung beabsichtigt der Betreiber in der i ten Klasse aus r_i Batches jeweils die Menge μ_i abzuzweigen. Die aus den verschiedenen Klassen entwendeten Mengen sollen zusammengenommen mindestens die Menge M ergeben, d.h. Nebenbedingung ist $\sum \mu_i \cdot r_i \geq M$. Der Inspektor kontrolliert in der i ten Klasse n_i zufällig ausgewählte Batches, wobei er für jeden Batch den Aufwand ε_i verbraucht. Der zur Verfügung stehende Gesamtaufwand sei C , die Nebenbedingung lautet $\sum \varepsilon_i \cdot n_i \leq C$. Das Gesamt MUF (Material Unaccounted For) wurde als normalverteilt angenommen. Diese Annahme schien durch die Ergebnisse der dazu durchgeführten Simulationsrechnungen gerechtfertigt. Die Entdeckungswahrscheinlichkeit (d.h. die Wahrscheinlichkeit, daß das MUF eine durch die Fehlalarmwahrscheinlichkeit gegebene Signifikanzschranke überschreitet) für gegebenes M und gegebene Fehlalarmwahrscheinlichkeit α ist dann

$$P(\vec{n}, \vec{r}) := 1 - \Phi\left(\frac{U(1-\alpha) \sigma_0 - M}{\sigma_1}\right)$$

$$\text{wobei } \sigma_0^2 = \sum_{i=1}^R N_i^2 \cdot \left(\frac{\sigma_{ri}^2}{n_i} + \sigma_{si}^2\right)$$

$$\sigma_1^2 = \sigma_0^2 + \sum_{i=1}^R \mu_i^2 \cdot r_i \cdot (N_i - r_i) \cdot \left(\frac{1}{n_i} - \frac{1}{N_i} \cdot \frac{n_i - 1}{N_i - 1}\right)$$

dabei ist Φ die Verteilungsfunktion der Normalverteilung und U ist ihre Umkehrfunktion.

$$\text{Es ist } \sigma_{ri}^2 = \sigma_{Bri}^2 + \sigma_{Iri}^2, \quad \sigma_{si}^2 = \sigma_{Bsi}^2 + \sigma_{Isi}^2$$

σ_{Iri}^2 ist die Varianz des zufälligen normalverteilten Meßfehlers des Inspektors in der i ten Klasse, σ_{Isi}^2 die Varianz des normalverteilten Kalibrierfehlers des Inspektors in der i ten Klasse.

Analog $\sigma_{Bri}^2, \sigma_{Bsi}^2$ für die Betreibermessungen. Bezüglich $p(\vec{r}, \vec{n})$ wurden optimale Inspektor- und Betreiberstrategien $\vec{n}^0 = (n_1^0, \dots, n_R^0)$ bzw. $\vec{r}^0 = (r_1^0, \dots, r_R^0)$ berechnet; optimal heißt hier $p(\vec{n}^0, \vec{r}^0) = \max_{\vec{n}} \min_{\vec{r}} p(\vec{n}, \vec{r})$.

Für den Fall, daß nach erfolgter Betreibermessung eines Batches eine Kontrolle des Batches durch den Inspektor nicht mehr möglich ist, wurde ein zweites statistisches Modell entwickelt, auf das wir hier nicht weiter eingehen.

Zu 2. Die Entwendung ohne Datenverfälschung im Rahmen der Meßunsicherheit wurde anhand der Materialbilanz bei zweifacher Inventur betrachtet. Es wurde eine Gesamtfehlalarmwahrscheinlichkeit α vorgegeben, die sich für die erste und zweite Inventur vermöge der Nebenbedingung $1-\alpha = (1-\alpha_1)(1-\alpha_2)$ aufteilt. Der Betreiber entnimmt im Falle einer Entwendung in der ersten Inventurperiode die Menge M_1 , in der zweiten die Menge M_2 unter der Nebenbedingung $M = M_1 + M_2$. Statistische Überlegungen, auf die wir hier nicht eingehen, führten zu einer Entdeckungswahrscheinlichkeit

$$P(\alpha_1, \alpha_2, M_1, M_2) = \Phi\left(U(1-\alpha_1) - \frac{M_1}{\sigma_1}\right) \cdot \Phi\left(U(1-\alpha_2) - \frac{aM_1 + M_2}{\sigma_2}\right)$$

σ_1^2 und σ_2^2 sind dabei Kombinationen von Varianzen der verschiedenen zufälligen normalverteilten Meßfehler, a ist eine Zahl zwischen 0 und 1.

Es konnte die Existenz einer optimalen Inspektor- und Betreiberstrategie (α_1^0, α_2^0) bzw. (M_1^0, M_2^0) gezeigt werden; optimal heißt hier

$$P(\alpha_1, \alpha_2, M_1^0, M_2^0) \leq P(\alpha_1^0, \alpha_2^0, M_1^0, M_2^0) \leq P(\alpha_1^0, \alpha_2^0, M_1, M_2)$$

In einem für die Praxis wichtigen Fall konnte gezeigt werden, daß die optimale Inspektorstrategie unabhängig von der Größe von M ist.

1.1.2 Daten der Aufbereitungsanlage vom Typ der NFS

Die Wiederaufbereitungsanlage verarbeitet verbrauchte Brennelemente nach dem Purex-Verfahren. Der Durchsatz der Anlage liegt bei 175 Jahrestonnen niedrig angereichten Urans. Das physikalische Inventar am Ende einer Kampagne wird durch Auswaschung bestimmt, es beläuft sich auf 1 kg Pu \pm 1 kg. Die Zahl der Kampagnen im Jahr beträgt 10. In folgender Tabelle werden die Daten der Plutoniumflußmessungen angegeben.

Strom	Batches/ Kampagne	Pu/Batch (kg)	Aufwand/B. in US \$	Meßmethoden	Stand.abw. pro Messung zuf. /%/ syst.
Input Input	25	7,0	- - 400	Volumenbest. Probenahme Konz.best.	0,35 0,1 1 - 0,6 0,3
Produkt	76	2,3	- - 200	Wägung Probenahme Konz.best.	0,02 - 0,5 - 0,4 0,3
Abfall	90	0,019	- - 40	Füllstand Probenahme Konz.best.	5 5 50 - 10 10

1.1.3 Daten der Fabrikationsanlage vom Typ der ALKEM

Die Anlage stellt Brennelemente für thermische Reaktoren (0,5-4% Plutoniumgehalt) und schnelle Brüter (10-16% Plutoniumgehalt) her. Eine physikalische Inventur wird am Ende einer Kampagne gemacht, wenn das Material in leicht überschaubarer, inventarisierbarer Form vorliegt. Die Anlage ist dann leergefahren, bis auf Messungen von trockenem und flüssigem Schrott werden nur versiegelte Behälter geprüft und gezählt. Die Anlage hat einen Jahresdurchsatz von 1,1 bis 1,6 t Plutonium bei 1 bis 10 Kampagnen (200 Arbeitstage). Es werden ungefähr 20.000 Brennelemente gefertigt, deren durchschnittlicher Plutoniumgehalt von 70g durch Analyse von Pellets auf Stichprobenbasis und Wägung der Teilsäulen erhalten wird. Die Eingangsmessungen werden durch Kontrolle der Siegel ersetzt, eine Entwendung durch Datenverfälschung ist hier nicht möglich.

1.1.4 Anwendung

Nach der ersten Inventurperiode schließt der Inspektor die Materialbilanz und berechnet MUF_1 . Die Signifikanzschranke für den Hypothesentest erhält er aus der von ihm gewählten Fehlalarmwahrscheinlichkeit α und der Varianz σ_1^2 der normalverteilten Zufallsvariablen MUF_1 .

(für NFS ist $\sigma_1^2 = 17,02 \text{ kg}^2$; für die ALKEM ist $\sigma_1^2 = 31,7 \text{ kg}^2$)

Im Falle zweier Inventurperioden müssen α_1 und α_2 sowie M_1 und M_2 optimal gewählt werden. Es ergibt sich $\alpha_1^0 \cong \alpha_2^0$ und $M_1^0 \cong M_2^0$, deshalb gilt für den Hypothesentest $S_1 = S_2$ (gleicher Durchfluß und kleines Inventar in beiden Inventurperioden).

Im Falle der NFS wurden die Durchflußdaten mittels D-Statistik verifiziert, bei der ALKEM konnte das nur auf flüssigen und trockenen Schrott angewendet werden. Das Produkt wurde als Einklassenproblem behandelt und auf Stichprobenbasis durch γ -Scanning überprüft. Der Abfall konnte in diese Überlegungen noch nicht einbezogen werden, da die Varianzen der Messung zu groß sind. Die interessierenden Daten und Figuren sind im folgenden angegeben.

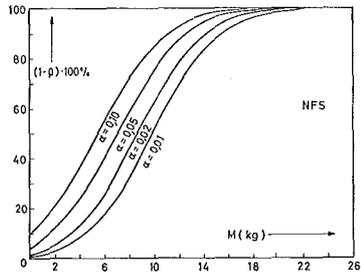
Data of NFS for D_1 -statistics

Stream	N(half a year)	c(US\$)	σ_1^2 (in kg ²)	σ_2^2 (in kg ²)
Input	125	400	$5,6 \cdot 10^{-3}$	$1,2 \cdot 10^{-3}$
Product	380	200	$1,7 \cdot 10^{-4}$	$1,0 \cdot 10^{-4}$
Waste	450	40	$1,8 \cdot 10^{-5}$	$0,9 \cdot 10^{-5}$

Table 3.2: Optimal sample size for a given effort in case of D_1 -statistics

X	100	80	60	50	30	20	10
Effort C in US\$	14,000	115,200	86,400	72,000	43,200	28,800	14,400
n_1^0	125	125 ¹⁾	125	105	63	42	21
n_2^0	380	281	157	130	78	52	26
n_3^0	450	225	125	100	60	40	20

¹⁾ $n_1^0 > N_1$, therefore full coverage in that class, $C-c_1N_1$ distributed in an optimal way on the classes 2 and 3.



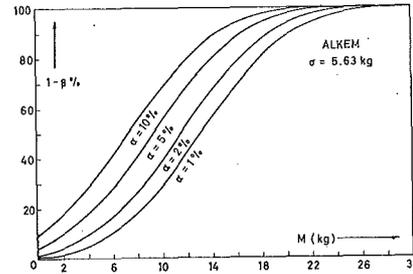
Probability of detection $1-\beta$ as a function of the diverted amount M of Plutonium in case of one inventory period of half a year for the NFS; parameter: probability α of a false alarm.

Data of Alkem for D_1 -statistics

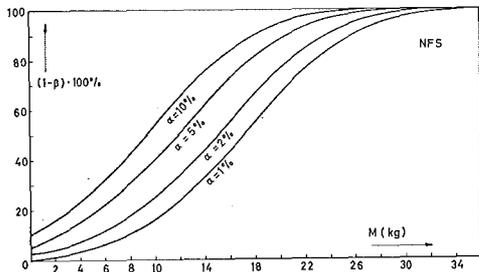
Class	N	σ_1^2 (kg ²)	σ_2^2 (kg ²)	c (US\$)
Dry scrap	50	$2,45 \cdot 10^{-3}$	$8 \cdot 10^{-6}$	2,5
Liquid scrap	20	$4,51 \cdot 10^{-3}$	$1,25 \cdot 10^{-5}$	3,0
Fuel-pins	10,000	$8,8 \cdot 10^{-6}$	$3,9 \cdot 10^{-9}$	0,17
Dry waste 1	25	$2 \cdot 10^{-6}$	$2 \cdot 10^{-4}$	1
Dry waste 2	75	$2 \cdot 10^{-6}$	$2 \cdot 10^{-6}$	1
Liquid waste 1	30	$4,6 \cdot 10^{-5}$	$1,04 \cdot 10^{-4}$	3
Liquid waste 2	25	$4,15 \cdot 10^{-4}$	$9,33 \cdot 10^{-4}$	3

Optimal sample size for a given effort for the classes liquid and dry scrap

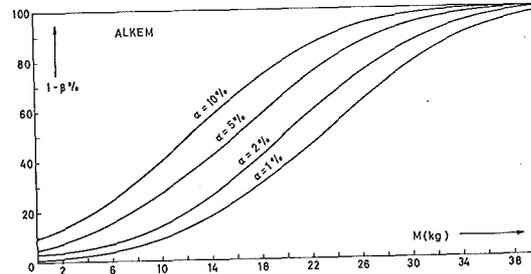
X	100	80	60	50	30	20
Effort C	185	148	111	92,5	55,5	37
n_1^0	50	41	31	26	16	10
n_2^0	20	15	11	9	5	4



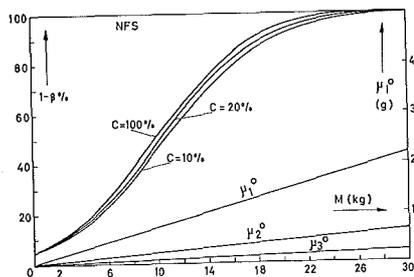
Probability of detection $1-\beta$ as a function of the diverted amount M of Plutonium in case of one inventory period of half a year for the Alkem; parameter: probability α of a false alarm.



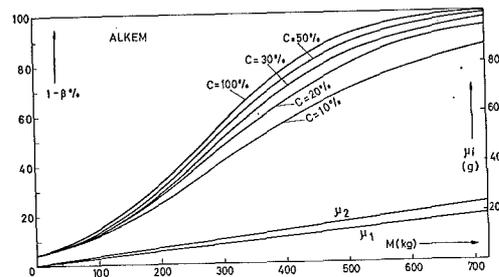
Probability of detection $1-\beta$ as a function of the diverted amount M of Plutonium in case of two inventory periods for the NFS; parameter: probability α of a false alarm.



Probability of detection $1-\beta$ as a function of the diverted amount M of Plutonium in case of two inventory periods of half a year for the Alkem; parameter: probability of false alarm.



Probability of detection $1-\beta$ and per batch diverted amount μ_i^0 ($i=1,2,3, R=N/2$) as a function of the total diverted amount M in case of D_1 -statistics (Parameter: Effort)



Probability of detection $1-\beta$ and per batch diverted amount μ_i^0 ($i=1,2, R=N/2$) for the classes dry and liquid scrap as a function of the total diverted amount M; (parameter: Effort)

1.1.5 Ergebnisse

Im Falle der ALKEM konnten nur die Daten der physikalischen Inventur von festem und flüssigem Schrott mittels D-Statistik verifiziert werden, bei der NFS ließ sich das auf die Input-, Produkt- und Abfallmessungen anwenden. Die Daten der Abfallmessungen bei der ALKEM konnten, da die Varianzen der zufälligen und systematischen Meßfehler zu groß sind, nicht in die Überlegungen einbezogen werden. Es zeigte sich, daß eine beträchtliche Verminderung des Inspektionsaufwandes bei der Datenverifikation nur schwache Änderungen bei der Entdeckungswahrscheinlichkeit der D-Statistik induziert, die vor allem von der Größe des systematischen Fehlers beeinflusst wird. Dadurch wird der Inspektionsbehörde eine beträchtliche Reduktion des Überwachungsaufwandes bei der Datenverifikation ermöglicht, ohne daß viel an Aussagekraft verloren geht.

Für die Verifikation der Materialbilanz wurden für ALKEM und NFS die Entdeckungswahrscheinlichkeit α als Funktion der entwendeten Menge M für eine und zwei Inventurperioden in Abhängigkeit von der Fehlalarmwahrscheinlichkeit angegeben.

Für 2 Inventurperioden wurde die Betreiberstrategie - die Wahl von M_1 und M_2 mit $M = M_1 + M_2$ - und die Inspektorstrategie - die Wahl von α_1 und α_2 mit $1-\alpha = (1-\alpha_1)(1-\alpha_2)$ - mit den im theoretischen Teil angegebenen Methoden optimiert. Die Arbeit schließt mit einem Ausblick auf Gebiete, in denen weitere Arbeit nützlich sein könnte.

1.2 Weiterentwicklung des 2-fachen Inventurmodells

Im IAEA Vertrag 1209 RB wurde ein Modell für eine zweifache Inventur aufgestellt /1/. Dieses Modell ist auf den Fall n-facher Inventuren erweitert worden /3/. Dazu werden ein Zeitintervall $J := [t_0, t_n]$ und Zeitpunkte $t_i \in J$, $i = 0, \dots, n$, $t_i < t_{i+1}$ betrachtet.

Zwischen t_{i-1} und t_i mißt der Betreiber den Durchfluß einer nuklearen Anlage. Die Varianz dieser Messung sei $\sigma_{D_i}^2$, $i = 1, \dots, n$.

Bei t_i , $i = 0, \dots, n$ mißt der Inspektor das phys. Inventar der Anlage und entscheidet, ob die Differenz: Buchinventar - phys. Inventar signifikant größer Null ist. Die Varianz dieser Messung sei $\sigma_{I_i}^2$, $0 \leq i \leq n$. Die Wahrscheinlichkeit, im Falle keiner Entwendung von Material zum Zeitpunkt t_i , $1 \leq i \leq n$ dennoch (aufgrund der Meßungenauigkeit) eine signifikante Differenz festzustellen, wird mit α_i bezeichnet, d.h. α_i ist die Fehlalarmwahrscheinlichkeit zum Zeitpunkt t_i . Die Menge von Material, die der Betreiber zwischen t_{i-1} und t_i entwenden will, sei mit M_i bezeichnet.

Will der Inspektor mit einer Gesamtfehlalarmwahrscheinlichkeit α kontrollieren und der Betreiber insgesamt die Menge M entwenden, so ist die Strategiemenge des Inspektors:

$$S_1 : \{ s_1 := (\alpha_1, \dots, \alpha_n) \in \mathbb{R}^n, \prod_{i=1}^n (1 - \alpha_i) = 1 - \alpha, 0 \leq \alpha_i \leq \alpha \}$$

und des Betreibers

$$S_2 := \{ s_2 := (M_1, \dots, M_n) \in \mathbb{R}^n, \sum_{i=1}^n M_i = M \}$$

Die Entdeckungswahrscheinlichkeit, d.h. die Wahrscheinlichkeit, daß der Inspektor mindestens einmal eine signifikante Differenz feststellt, ist (unter der Voraussetzung der statistischen Unabhängigkeit der einzelnen Messungen) mit $(s_1, s_2) \in S_1 \times S_2$ gegeben durch

$P(s_1, s_2) = 1 - F(s_1, s_2)$, wobei

$$F(s_1, s_2) = \prod_{i=1}^n \Phi\left(U(1 - \alpha_i) - \frac{1}{\sigma_i} \sum_{j=1}^n a_{i,j} M_j\right)$$

Hierbei ist $\Phi(x) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_{-\infty}^x e^{-\frac{1}{2}t^2} dt$

und U die Umkehrfunktion von Φ .

Die σ_{I_i} sind positive Zahlen, die von $\sigma_{I_k}^2$, $\sigma_{D_k}^2$ $k = 0, \dots, i$ abhängen; die a_{ij} hängen von $\sigma_{I_1}^2$, $\sigma_{D_1}^2$, $l = 0, \dots, i-1$ und $\sigma_{I_i}^2$ ab, $0 \leq a_{ij} \leq 1 \quad \forall i \geq j$, $a_{ij} = 0 \quad \forall j > i$.

Der Inspektor wird versuchen P zu maximieren, der Betreiber wird versuchen, P zu minimieren.

Gesucht ist daher $\max_{s_1 \in S_1} \min_{s_2 \in S_2} P(s_1, s_2) = : P_1$,

und $\min_{s_2 \in S_2} \max_{s_1 \in S_1} P(s_1, s_2) = : P_2$

Es konnte die Existenz eines Paares optimaler Strategien, d.h., eines Sattelpunktes $(s_1^*, s_2^*) \in S_1 \times S_2$ von P auf $S_1 \times S_2$ gezeigt werden, also

$$P_1 = P(s_1^*, s_2^*) = P_2.$$

Die Komponenten von s_1^* und s_2^* sind durch ein nichtlineares Gleichungssystem bestimmt, das iterativ gelöst werden kann. Die Strategie s_1^* hängt nur von α ab, d.h. der Inspektor kann seine optimale Strategie ohne Kenntnis der Größe von M wählen.

In Fig. 1 ist $P(s_1^*, s_2^*)$ als Funktion von M aufgetragen für eine Anlage vom Alkem Typ.

In der Praxis ist häufig $\sigma_{D_i}^2 = \sigma_D^2 \quad i = 1, \dots, n$ und $\sigma_{I_j}^2 \ll \sigma_D^2 \quad j = 0, \dots, n$.

In diesen Fällen ist $\hat{s}_1 := (1 - (1 - \alpha)^{\frac{1}{n}}, \dots, 1 - (1 - \alpha)^{\frac{1}{n}})$ eine brauchbare Näherung von s_1^* und die Entdeckungswahrscheinlichkeit $P(s_1^*, s_2^*)$ hat näherungsweise den

Wert $1 - \prod_{i=1}^n \Phi(U((1 - \alpha)^{\frac{1}{n}}) - \frac{M}{n\sigma_D})$

Im weiteren Verlauf der Arbeiten sollen nun optimale Anzahl und Lage der Zeitpunkte $t_i \quad 1 \leq i \leq n-1$ der Zwischeninventuren bestimmt werden.

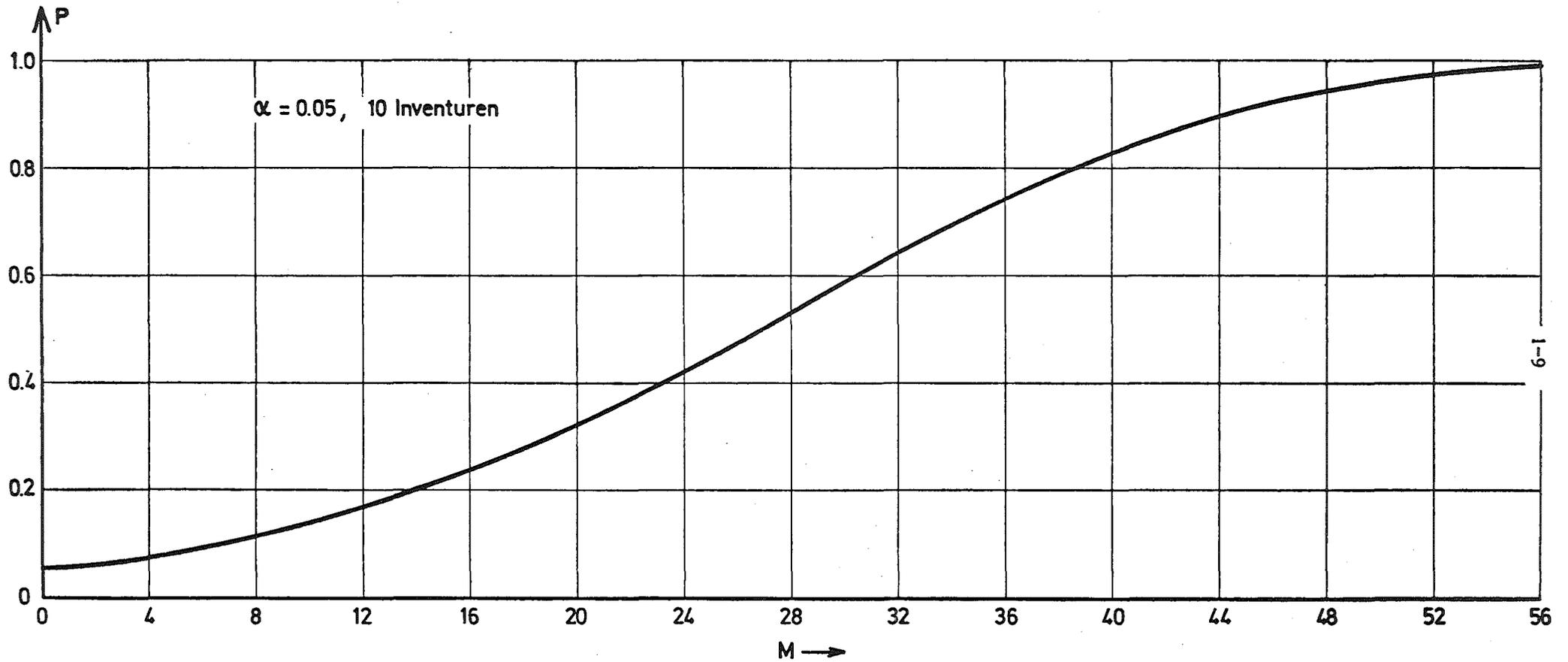


Fig. 1 Entdeckungswahrscheinlichkeit als Funktion von M. Parameter: $\alpha = 0.05, n = 10, \sigma_{D_i}^2 = 6.326,$
 $\sigma_{I_i}^2 = 0.013$

1.3 Theoretische Untersuchung über Schwerisotopenkorrelationen

Im Rahmen einer nulldimensionalen Betrachtung wurde die experimentell beobachtete Proportionalität zwischen dem Pu-Aufbau und der U 235-Abreicherung in bestrahltem DWR-Brennstoff theoretisch untersucht und Parameterstudien über Einflußparameter der Reaktorauslegung und des Betriebes durchgeführt, um den Gültigkeitsbereich dieser Proportionalität zu analysieren.

Diese Untersuchungen wurden mit dem nulldimensionalen spektrumsabhängigen Abbrandcode LEOPARD durchgeführt. Als Referenzreaktor wurde der DWR YANKEE, ROWE, USA ausgewählt, über dessen Coreentladungen schon umfangreiche Nachbestrahlungsanalysen vorliegen, so daß der Vergleich von Experiment und Theorie gewährleistet ist.

Die "quasi"-Linearität zwischen Pu und ΔU -235 über einen großen Abbrandbereich wurde auch durch den Code bestätigt.

Literaturverzeichnis

/1/ R. Avenhaus, D. Gupta

Optimization of Safeguards Effort

Contract No. 1209/RB of International Atomic Agency

KFK 1109

/2/ W. Zijp, R. Avenhaus, H. Frick, G. Hartmann

Guidelines for the evaluation of Data in Nuclear Material

Accountability and Safeguards-

Statistical Methods and Examples

Reactor Centrum Netherlands, Petten, Netherlands

Gesellschaft für Kernforschung Karlsruhe

/3/ R. Avenhaus, H. Frick

Game Theoretical Treatment of Material Accountability Problems

Institut für Volkswirtschaftslehre und Statistik der

Universität Mannheim

Discussion Paper No. 41/74

Kapitel 2: ZERSTÖRUNGSFREIE METHODEN

- 2.0 Einführung
H. Ottmar
- 2.1 Neutroneneinfang - Gammastrahlung
P. Matussek, H. Ottmar
- 2.2 Gammaskopmetrische Bestimmung der Isotopenzusammensetzung von Plutonium
H. Ottmar
- 2.3 Gammaskopmetrische Bestimmung der Anreicherung von oxidischem Uranpulver
H. Ottmar, C. Weitkamp
- 2.4 Kerndaten
C. Weitkamp, A.v. Baekmann, K. Böhnel, M. Kühle, L. Koch
- 2.5 Messungen an Uran-Brennstäben für Leichtwasserreaktoren
C. Weitkamp, H. Ottmar
 - 2.5.1 Anreicherungsmessung
 - 2.5.2 Nachweis von Spalten
 - 2.5.3 Gesamtbrennstoffmessung
- 2.6 Zerstörungsfreie Bestimmung von ^{235}U und Thorium von 15 THTR-Brennelementen mit Hilfe der Gamma-Spektrometrie
W. Krappel
- 2.7 Rechnergesteuerter Betrieb eines Neutronengenerators
M. Zeller
- 2.8 Rechnergesteuerte automatische Bestimmung des ^{235}U -Gehaltes in AVR-Kugelelementserien
R. Eberle

2.9 Neutronenkoinzidenzmessung zur Plutoniumbestimmung

K. Böhnel

2.9.1 Statistischer Fehler bei der Zählung von Spaltneutronen

2.9.2 Statistischer Fehler von Koinzidenzmessungen in einem
Demonstrationsexperiment

2.9.3 Schnellspaltung

2.9.4 Multiplikation thermischer Neutronen

2.9.5 Abfallmeßgerät

2.10 Untersuchungen zur Spezifikation einer Meßanlage für Spaltstoff in LWR-Brennelementen mit einer Antimon- Beryllium-Quelle

K. Baumung, K. Böhnel

2.10.1 Minimalisierung der Ortsabhängigkeit

2.10.2 Reproduzierbarkeit

2. ZERSTÖRUNGSFREIE METHODEN

2.0 Einführung

H. Ottmar

Der folgende Bericht gibt einen Überblick über die F+E-Arbeiten des Jahres 1973 zur Entwicklung zerstörungsfreier Meßverfahren im Rahmen des Projektes Spaltstoffflußkontrolle. An diesen Entwicklungen beteiligt waren das Institut für Angewandte Kernphysik und das Institut für Neutronenphysik und Reaktortechnik der Gesellschaft für Kernforschung sowie das Institut für Kerntechnik der Technischen Universität Hannover.

Die Projektarbeiten in diesen Instituten stellen vielfach eine kontinuierliche Fortsetzung von Forschungs- und Entwicklungsvorhaben früherer Jahre dar, die sich bereits in vorhergehenden Berichten^{1,2} finden. Der Übersichtlichkeit halber hält sich deshalb der folgende Bericht weitgehend an die Gliederung des Vorjahresberichtes². Über das Bremszeitspektrometer und die Kalorimetrie wird im folgenden nicht mehr berichtet; die hierzu vom Projekt und den beteiligten Industrieunternehmen geleisteten Entwicklungsarbeiten werden als abgeschlossen betrachtet.

In der gegenwärtigen Implementierungsphase besteht jedoch weiterhin eine enge Kooperation zwischen dem Projekt und den nuklearen Industrieunternehmen. So werden beispielsweise, weil geeignete Eichstandards vielfach nicht oder nicht in ausreichendem Maße verfügbar sind, die bei der Entwicklung von Meßgeräten erforderlichen Testmessungen in zunehmendem Maße in den nuklearen Anlagen erfolgen, wo in der Regel genügend Referenzproben mit ausreichenden Spezifikationen zur Verfügung stehen. Beispiele für solche Testmessungen sind die wiederaufgenommenen Messungen der Uran-Anreicherung, die bei der Fa. RBG durchgeführt wurden, und die Erprobung eines Meßsystems zur Analyse von THTR-Brennelementen bei der Fa. Nukem.

Neu hinzugekommen sind in dem folgenden Bericht ein Abschnitt über die Bedeutung von Kerndaten für die Spaltstoffflußkontrolle, eine Studie über ein passives Stabmeßgerät für LWR-Brennstäbe sowie ein Kapitel über die Bestimmung des ²³⁵U-Gehaltes in AVR-Kugelelementen nach der Methode der verzögerten Neutronentechnik.

2.1 Neutroneneinfang-Gammastrahlung

P. Matussek, H. Ottmar

Die Arbeiten zur Ermittlung von Kerndaten (Energien und Intensitäten der primären Gammastrahlung nach Neutroneneinfang), deren Kenntnis Voraussetzung für die Anwendung der (n,γ) -Methode zur zerstörungsfreien Analyse von Kernbrennstoffen ist, wurden fortgesetzt und konnten im Laufe des Jahres 1973 weitgehend abgeschlossen werden. Es liegen nunmehr die Ergebnisse für ^{233}U , ^{235}U , ^{238}Pu , ^{239}Pu , ^{240}Pu und ^{241}Pu nach Einfang thermischer Neutronen und für ^{235}U und ^{239}Pu nach Einfang von 2keV-Neutronen vor. ^{1,2,3}. Neben der Neutroneneinfang-Gammastrahlung wurden für die spaltbaren Isotope auch die Spektren der prompten Spaltgammas und die der verzögerten Gammastrahlung nach β -Zerfall der Spaltprodukte gemessen. Die relevanten Daten wurden dem ENEA-Datenzentrum der OECD zur Weiterleitung an Interessenten übergeben.

Ergänzend wurden im Jahre 1973 am 2keV-Neutronenstrahl des FR2 (n,γ) -Messungen an ^{232}Th durchgeführt. Die Energien und Intensitäten der intensivsten hochenergetischen Gammaübergänge nach Einfang von 2keV-Neutronen in ^{232}Th sind in Tabelle 2.1/I zusammengefaßt. Die Bestimmung der Absolutintensitäten erfolgte relativ zu den in Ref.4 angegebenen partiellen Wirkungsquerschnitten für primäre γ -Linien aus dem 2keV-Neutroneneinfang in ^{204}Pb . Hierzu wurde ein Sandwich-Target aus Metallfolien von Thorium und natürlichem Blei angefertigt, wobei zu bemerken ist, daß in natürlichem Blei der 2keV-Neutroneneinfang in ^{204}Pb dominiert. Für den Einfangquerschnitt von 2keV-Neutronen in ^{232}Th wurde ein Wert von 2,3 barn benutzt.

Um die Anwendbarkeit der (n,γ) -Methode für eine isotopenspezifische Analyse zu prüfen, wurden 1973 Testmessungen an Uranbrennstäben in einer sehr einfachen Ein-Detektor-Anordnung an einem thermischen Neutronen-Strahl des FR2 in Karlsruhe durchgeführt. Die Anreicherungsgrade des Urans in den Brennstäben betragen $3,50 \pm 0,02 \%$ und $5,98 \pm 0,03 \%$. Die Ergebnisse der (n,γ) -Messungen stimmten innerhalb der Fehlergrenzen mit den massenspektrometrischen Anreicherungsgraden überein.

Tabelle 2.1/I

Energien und Intensitäten primärer Gammaübergänge nach
Einfang von 2keV-Neutronen in ^{232}Th

Energie keV	absolute Intensität	
	Photonen / 1000 Einfänge	
4788,7 ± 0,5	2,0	± 0,2 †
4771,9 ± 0,5	2,0	± 0,2
4249,3 ± 0,7	1,6	± 0,4
4216,1 ± 0,5	2,2	± 0,2
4202,8 ± 0,8	4,0	± 0,4
4106,8 ± 0,6	3,4	± 0,3
4047,6 ± 0,6	1,5	± 0,2
3948,7 ± 0,7	1,5	± 0,4
3863,2 ± 1,0	1,8	± 0,3
3775,7 ± 0,6	1,2	± 0,2
3757,0 ± 0,6	1,4	± 0,2
3748,3 ± 0,6	1,2	± 0,1
3737,5 ± 0,6	1,3	± 0,2
3727,5 ± 0,6	0,9	± 0,1
3715,1 ± 0,6	1,1	± 0,2
3616,3 ± 0,8	1,3	± 0,1
3531,8 ± 0,6	1,8	± 0,3
3476,2 ± 0,8	1,7	± 0,4
3450,8 ± 0,7	1,7	± 0,3

† Die Fehlerangaben der Absolutintensitäten beinhalten nicht einen gemeinsamen Fehler von ca. 30%, der auf Unsicherheiten in den Wirkungsquerschnitten von ^{204}Pb und ^{232}Th für den Einfang von 2keV Neutronen beruht.

Die Messungen zeigten aber auch zwei grundsätzliche Schwierigkeiten dieser Methode:

1. Lange Meßzeiten.

Um eine statistische Genauigkeit von etwa 1% entsprechend einer Zahl von $\geq 10^4$ Impulsen im Gammapeak zu erhalten, sind Meßzeiten bis zu einigen Stunden erforderlich.

Das hat seinen Grund darin, daß einerseits wegen der erforderlichen hohen Energieauflösung bei einem Ge(Li)-Detektor die Gesamtgammazählrate auf einige 10 000 Impulse pro Sekunde beschränkt bleiben muß, andererseits die zur Analyse verwendeten intensiven primären Gammaübergänge aber nur einen relativ kleinen Beitrag (10^{-3} bis 10^{-4}) zum gesamten Gammaskpektrum liefern.

2. Neutronenschäden bei Ge(Li)-Detektoren.

Ge(Li)-Detektoren zeigen eine merkliche Verschlechterung der Energieauflösung nach einer Bestrahlung mit 10^{10} bis 10^{11} schnellen Neutronen. Bei der Bestrahlung von ^{235}U bzw. ^{239}Pu mit thermischen Neutronen werden aber selbst unter Berücksichtigung der intensivsten primären Gammaübergänge $\approx 4 \cdot 10^3$ bzw. $8 \cdot 10^2$ Spaltneutronen pro Gammaübergang emittiert. Um Neutronenschäden zu vermeiden, muß daher der Ge(Li)-Detektor sorgfältig gegen schnelle Neutronen abgeschirmt werden. Andererseits muß aber die Neutronenabschirmung für Gammastrahlung noch ausreichend transparent bleiben. Unter den realistischen Annahmen:

Abschwächung des schnellen Neutronenflusses um
einen Faktor 100,
typische Peak-Ansprehwahrscheinlichkeit von
Ge(Li)-Detektoren $\approx 10^{-2}$
und der für 1 % statistische Genauigkeit mindestens
erforderlichen 10^4 Impulse im Gammapeak

läßt sich abschätzen, daß Detektoren, wie sie heute zur Verfügung stehen, nur wenige Analysen ohne Neutronenschäden überstehen. Der für die oben erwähnten Stabmessungen benutzte Detektor zeigte etwa nach 300 Stunden Meßzeit eine deutliche Auflösungsver schlechterung.

Es war daher zu prüfen, ob sich die wesentlich intensiveren sekundären Gammaübergänge nach Neutroneneinfang zur quantitativen Analyse eignen. Dazu wurde im Berichtszeitraum die Gammastrahlung im Energiebereich von 300 bis 1400 keV nach dem Einfang thermischer Neutronen für die Isotope ^{235}U , ^{238}Pu , ^{239}Pu , ^{240}Pu und ^{241}Pu untersucht. Während für die hochener-

getischen primären Gammaübergänge Störungen durch die Gammastrahlung aus den Spaltprodukten relativ klein sind und durch kleine Korrekturen berücksichtigt werden können, dominiert im Energiebereich unterhalb von 1 MeV eindeutig die Komponente der verzögerten Gammastrahlung aus den Spaltprodukten. Die Messungen wurden daher in dem Spaltneutronen-Antikoinzidenzspektrometer mit gepulstem thermischen Neutronenstrahl durchgeführt. Mit dieser Anordnung, die schon bei der Messung hochenergetischer Gammaübergänge die Zuordnung der Gammalinien zu Einfang- und Spaltprozess ermöglichte, konnten im niederenergetischen Gammaskpektrum intensive Neutroneneinfang-Gammalinien identifiziert werden.

Ein typisches Meßergebnis ist in Abb. 2.1/1 für ^{235}U dargestellt. Abb. 2.1/1a zeigt einen Teil des Gammaskpektrums für ein ^{235}U Target bei Bestrahlung mit thermischen Neutronen, das mit einer einfachen Ein-Detektor-Anordnung aufgenommen wurde. Die Neutroneneinfang-Gammalinien des ^{235}U werden vom Gammaskpektrum der Spaltprodukte weitgehend verdeckt. In Abb. 2.1/1b sind für den gleichen Energiebereich die Ergebnisse dargestellt, die man mit Spaltneutronen-antikoinzidenz und gepulstem Neutronenstrahl erhält. Es zeigt sich, daß mit dieser Methode eine saubere Abtrennung der für eine Analyse verwendbaren prompten Einfang-Gammastrahlung von der Gammastrahlung aus den Spaltprodukten möglich ist.

Die gemessene Intensität der 642,3 keV Gammalinie des ^{235}U beträgt 5,8 Photonen/100 Neutroneneinfänge gegenüber 0,32 Photonen/100 Neutroneneinfänge für die intensivste primäre Gammalinie bei 6395 keV. Die größere Intensität der 642,3 keV Linie und die um einen Faktor 5 bis 10 höhere Ansprechwahrscheinlichkeit von Ge(Li)-Detektoren für niederenergetische Gammas würden bei gleicher statistischer Genauigkeit in der Peakflächenbestimmung die Meßzeit um etwa einen Faktor 100 verkürzen. Allerdings ist der apparative Aufwand zur Abtrennung der Einfang-Gammastrahlung vom Spaltproduktspektrum nicht unerheblich. Für die anderen untersuchten Isotope ist die Intensität der starken sekundären Gammaübergänge ebenfalls wesentlich größer als die der primären.

Testmessungen an Uran- bzw. Plutoniumpellets verschiedener Isotopenzusammensetzungen sind für 1974 vorgesehen.

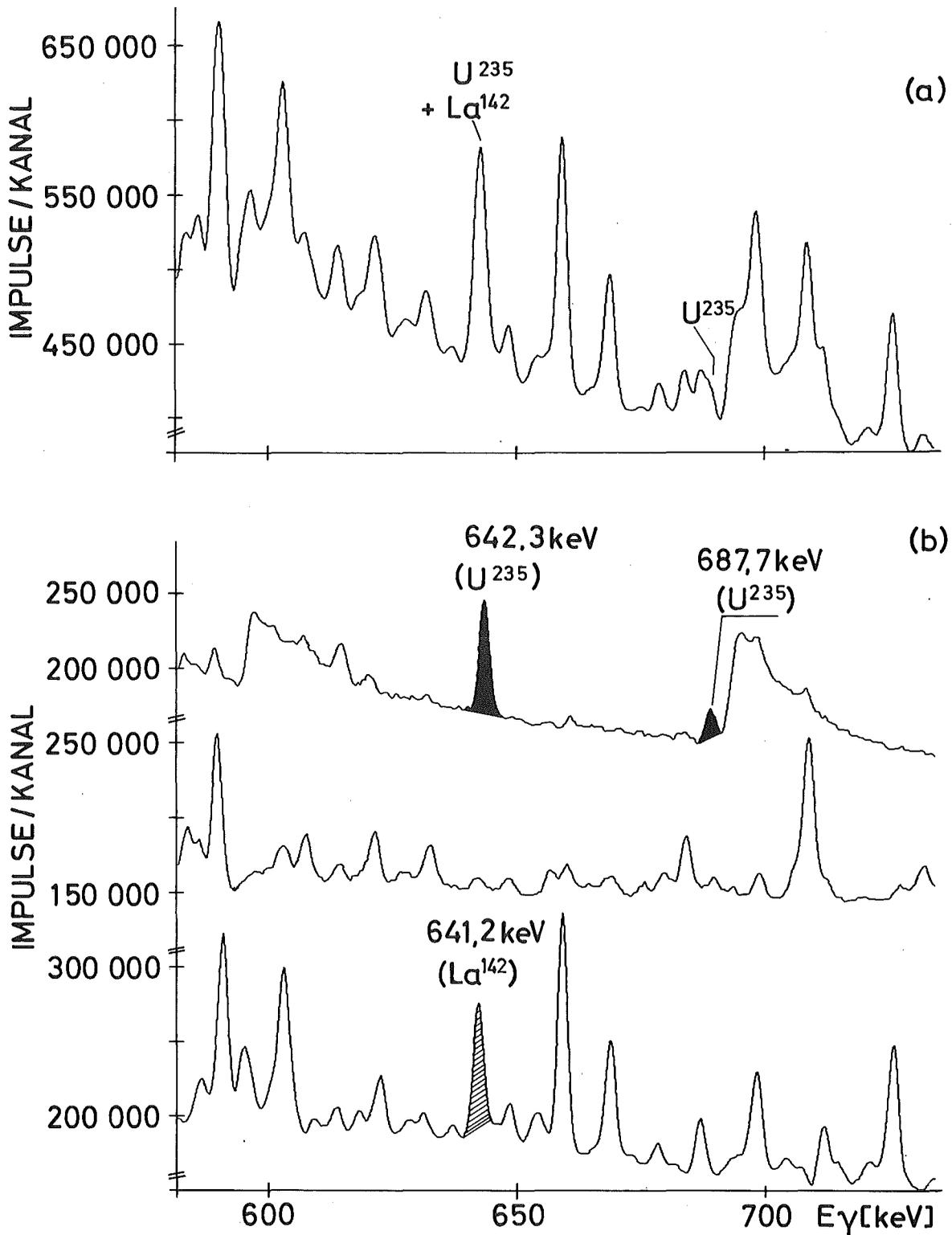


Abb. 2.1./1

- a) Gammaspektrum bei Bestrahlung von 1 g ^{235}U mit thermischen Neutronen, gemessen in einer einfachen Ein-Detektor-Anordnung.
- b) Die gleiche Messung mit Spaltneutronenantikoinzidenz und gepulstem Neutronenstrahl. Von oben nach unten:
 Neutroneneinfang-Gammaspektrum, promptes Spaltprodukt-Gammaspektrum, Gammaspektrum der Spaltprodukte nach β -Zerfall.

2.2 Gammaskpektrometrische Bestimmung der Isotopenzusammensetzung von Plutonium.

H. Ottmar

Die Untersuchungen zur zerstörungsfreien Bestimmung der Isotopenzusammensetzung von Plutonium beschränkten sich im Jahre 1973, bedingt durch einen nicht kurzfristig behebbaren Defekt am Compton - Reduktor², auf die Bestimmung des Isotopenverhältnisses $^{239}\text{Pu}/^{241}\text{Pu}$. Dieses spezielle, wiewohl nicht unwichtige Teilproblem der γ -spektrometrischen Isotopenanalyse - erfaßt es doch die beiden spaltbaren Plutoniumisotope - läßt sich experimentell auch mit Ein-Detektor-Anordnungen relativ einfach behandeln.

Als geeignetste γ -Linien für die Bestimmung des Isotopenverhältnisses $^{239}\text{Pu}/^{241}\text{Pu}$ bieten sich die 203,52 keV Linie aus dem Zerfall von ^{239}Pu sowie die 207,97 keV Linie aus dem Zerfall von ^{237}U , einer Tochter von ^{241}Pu , an. Hierbei ist allerdings zu berücksichtigen, daß sich ^{237}U aufgrund seiner Halbwertszeit $T_{1/2} = 6,75 \text{ d}$ erst nach ca. 1 Monat mit ^{241}Pu im Gleichgewicht befindet.

Zur Ermittlung des Peakflächenverhältnisses F_{203}/F_{208} als Funktion des Isotopenverhältnisses wurden die γ -Spektren von 5 Plutoniumproben verschiedener Isotopenzusammensetzung gemessen. Als Detektor stand eine koaxiale Ge(Li)-Diode ($V = 18 \text{ cm}^3$) mit einer Auflösung von 0,83 keV bei einer γ -Energie von 200 keV zur Verfügung. In Abb. 2.2/1 ist der interessierende Spektralbereich aus den 5 Spektren wiedergegeben. Die Meßzeiten betragen 200 min bis 1000 min je nach Probenmenge und Isotopenzusammensetzung. Die Ergebnisse sind in Tabelle 2.2/I zusammengefaßt.

Die in Spalte 2 der Tabelle angegebenen Isotopenverhältnisse beruhen auf massenspektrometrischen Analysen. Der Zeitpunkt dieser Analysen lag allerdings zum Teil mehrere Jahre zurück, so daß die Isotopenverhältnisse zum Zeitpunkt der γ -Messung auf den zwischenzeitlichen Zerfall des ^{241}Pu korrigiert werden mußten. Hierzu wurde eine Halbwertszeit $T_{1/2} = 15,10 \pm 0,14 \text{ a}$ für ^{241}Pu verwendet². Der durch diese Korrektur einfließende prozentuale Fehler im ^{241}Pu -Gehalt betrug maximal 0,24 %.

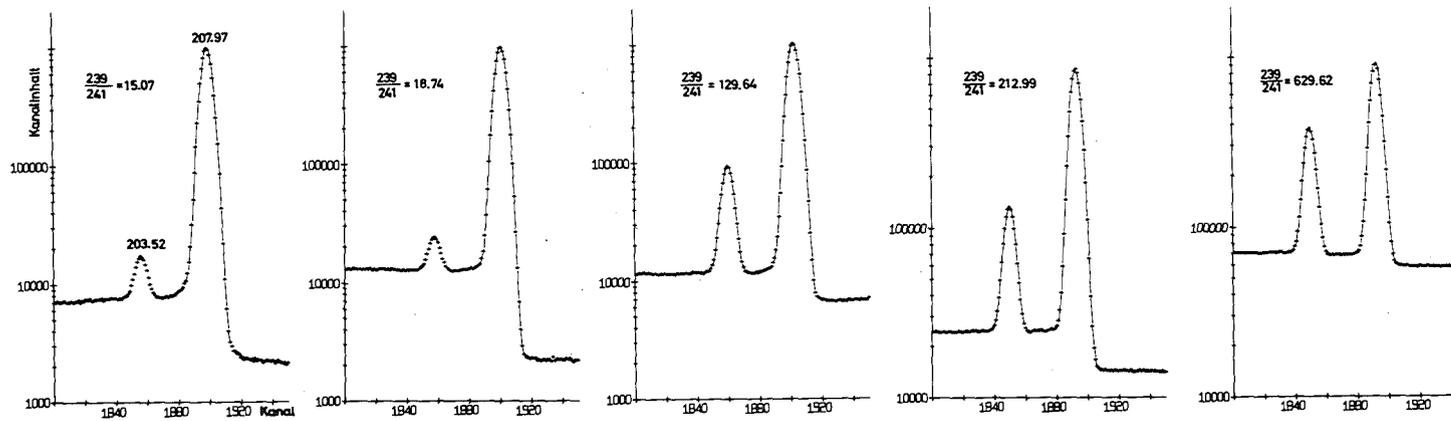


Abb. 2.2/1 Ausschnitte aus Gammaskpektren von Plutoniumproben verschiedener Isotopenzusammensetzung mit Gammalinien 203,52 (^{239}Pu) und 207,97 (^{241}Pu)keV. Die Isotopenverhältnisse $^{239}\text{Pu}/^{241}\text{Pu}$ sind jeweils angegeben.

Tabelle 2.2/I

γ-spektrometrische Bestimmung des Peakflächenverhältnisses

F_{203}/F_{208} als Maß für das Isotopenverhältnis $^{239}\text{Pu}/^{241}\text{Pu}$

Probe ⁺⁾	$\frac{^{239}\text{Pu}}{^{241}\text{Pu}}$	Unkorr. Peakfl.		^{241}Am in Linie		$\frac{\eta_{203} - \eta_{208}^+}{\eta_{203}}$	$\frac{F_{203}}{F_{208}}$ korr	Fehler %	ΔF_Q [§] %
		F_{203}	F_{208}	203keV %	208keV %				
1	15,07	85 539	8 803 124	0,68	1,73	-2,48	0,010068	0,85	3,62
2	18,74	101 924	8 474 729	0,32	0,95	+1,54	0,011920	0,90	0,88
3	129,64	720 745	9 005 480	0,067	1,42	-2,47	0,08319	0,59	3,95
4	212,99	937 965	7 314 833	0,11	3,60	+0,93	0,13164	0,51	2,66
5	629,62	2 692 821	7 375 425	0,048	4,58	-2,05	0,39043	0,73	6,94

- +) Probe 1: 76,5 g PuO_2 als Plättchen, 50 x 50 x 3 mm, 0,3 mm Stahlumhüllung
 Probe 3: 8,9 g PuO_2 in zylindr. Form ($\varnothing = 7,8$ mm, L = 29,94 mm) , 0,35mm Stahlumhüllung
 Probe 2,4,5: jeweils 0,25 g Pu, Standard Referenzmaterial vom National Bureau of Standards, Washington, in massiver Originalversandkapsel aus Stahl

+ $\eta(E) =$ Selbstabsorption S(E) x Absorption in Hülle A(E) x Detektoransprechwahrsch. $\epsilon(E)$

$$\S \Delta F_Q = \frac{F_{203}/F_{208} - (F_{203}/F_{208}) \text{ korr}}{F_{203}/F_{208}}$$

Die Bestimmung der Peakflächen F_{203} und F_{208} erfolgte sowohl per Computer durch Least - Squares - Anpassung an modifizierte Gaußfunktionen als auch durch einfache Integration der Kanalhalte mit entsprechender Untergrundsubtraktion. Die Ergebnisse beider Methoden differierten aufgrund der günstigen Peak - zu - Untergrundverhältnisse maximal um nur 0,4 % . Die Quotienten der aus den Spektren direkt ermittelten Peakflächen sind im allgemeinen jedoch nicht exakt dem Isotopenverhältnis $^{239}\text{Pu}/^{241}\text{Pu}$ proportional; dies aus zweierlei Gründen:

- i) Sowohl die 203,52 keV Linie als auch die 207,97 keV Linie koinzidieren energetisch mit γ -Linien aus dem ^{241}Am -Zerfall. Die ^{241}Am -Beiträge zu beiden Linien sind in der Tabelle angegeben. Sie lassen sich spektroskopisch leicht an anderer Stelle des γ -Spektrums, z.B. aus dem $^{239}\text{Pu}/^{241}\text{Pu}$ Verhältnis anhand der γ -Linien 419,19 (^{241}Am) und 422,57 (^{239}Pu), bestimmen.
- ii) Trotz der geringen Energiedifferenz von 4,45 keV zwischen den beiden γ -Linien läßt sich bei einer genauen Analyse die unterschiedliche Nachweiswahrscheinlichkeit für beide γ -Energien aufgrund der energieabhängigen Selbstabsorption in der Probe, der Absorption in Hüllmaterialien und der Ansprechwahrscheinlichkeit des Detektors nicht vernachlässigen. Die prozentualen Unterschiede in der Nachweiswahrscheinlichkeit der beiden γ -Linien sind in der Tabelle angegeben. Bei 3 Proben nimmt die Nachweiswahrscheinlichkeit als Funktion der Energie in diesem Energiebereich monoton zu, bei 2 Proben fällt sie dagegen monoton ab. Dieser Tatbestand reflektiert die sehr unterschiedliche Geometrie, Quantität und Umhüllung der untersuchten Proben.

Die auf Am-Anteile und Nachweiswahrscheinlichkeiten korrigierten Peakflächenverhältnisse finden sich in der Tabelle und sind in Abb. 2.2/2 als Funktion des Isotopenverhältnisses aufgetragen. Die Ausgleichsgerade durch die 5 gewichteten Meßpunkte ergibt für das Isotopenverhältnis $^{239}\text{Pu}/^{241}\text{Pu}$ als Funktion des Peakflächenverhältnisses F_{203}/F_{208} die Beziehung

$$(2.2.1) \quad ^{239}\text{Pu}/^{241}\text{Pu} = (1615,81 \pm 6,72) F_{203}/F_{208} - (0,96 \pm 0,93).$$

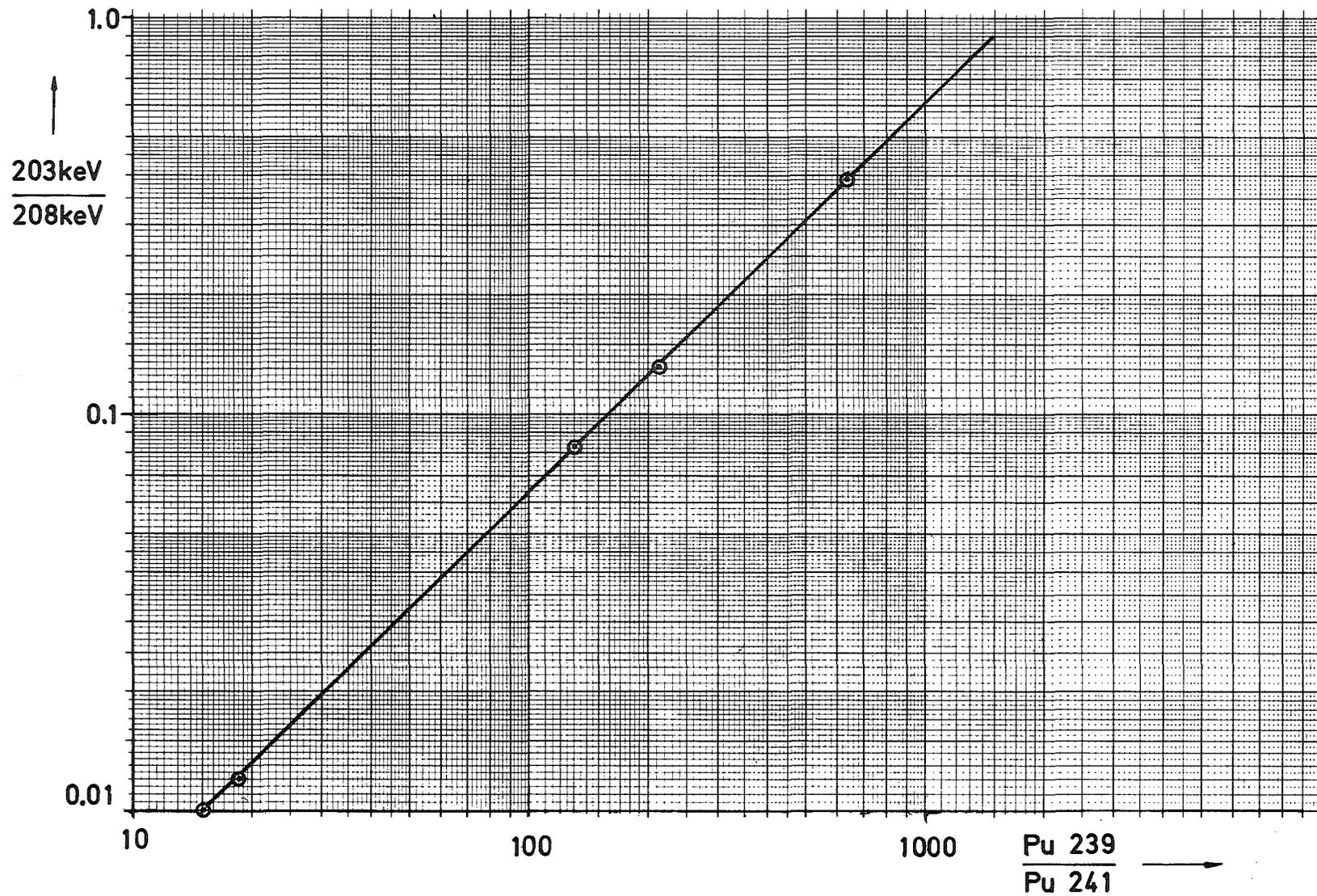


Abb. 2.2/2 Wahres Peakflächenverhältnis F_{203}/F_{208} als Funktion des Isotopenverhältnisses $^{239}\text{Pu}/^{241}\text{Pu}$.

Logischerweise sollte die Eichgerade durch den Ursprung verlaufen. Das innerhalb der Fehlergrenzen nahezu verschwindende Konstantenglied deutet daraufhin, daß systematische Fehler in der Bestimmung der Peakflächen-Verhältnisse ausgeschlossen werden können. In Tabelle 2.2/II sind die nach obiger Beziehung ermittelten Isotopenverhältnisse $^{239}\text{Pu}/^{241}\text{Pu}$ neben den massenspektrometrischen Werten aufgeführt. Die Übereinstimmung ist befriedigend, wenngleich zur Einengung der Fehlergrenzen in den Eichkonstanten der Beziehung 2.2.1 Messungen an einer größeren Anzahl von Proben erforderlich scheinen. Prinzipiell läßt sich für den angegebenen Bereich des Isotopenverhältnisses (das entspricht ^{241}Pu -Anteilen von 0,1 - 4 %) das Peakflächenverhältnis F_{203}/F_{208} mit einer Genauigkeit von besser als 1 % einschließlich der Korrekturen für Americium-Anteile und Ansprechwahrscheinlichkeit bestimmen (s.Tab. 2.2/I). Im Gegensatz zur massenspektrometrischen Analyse ist dabei die γ -spektrometrische Bestimmung des Isotopenverhältnisses $^{239}\text{Pu}/^{241}\text{Pu}$ umso genauer möglich, je kleiner der ^{241}Pu -Anteil in der Probe ist. Umgekehrt wird die γ -spektrometrische Analyse bei größerem ^{241}Pu -Anteil wegen des ungünstigen Peakflächenverhältnisses F_{203}/F_{208} immer schwieriger (s.z.B. Abb. 2.2/1).

Tabelle 2.2/II

γ -spektrometrische Bestimmung des Isotopenverhältnisses
 $^{239}\text{Pu}/^{241}\text{Pu}$

Isotopenverhältnis $^{239}\text{Pu}/^{241}\text{Pu}$		
massenspektrometr.	γ -spektrometr. nach Gl. 2.2.1	Differenz %
15,07	15,30	+ 1,53
18,74	18,30	- 2,35
129,64	133,45	+ 2,86
212,99	211,75	- 0,58
629,62	629,90	+ 0,05

2.3 Gammaspektrometrische Bestimmung der Anreicherung von oxidischem Uranpulver

H. Ottmar, C. Weitkamp

Die passive Gammaspektroskopie stellt ein einfaches, schnelles und genaues Verfahren zur Bestimmung der Urananreicherung dar. Die Methode beruht auf dem Nachweis der 185 keV Eigenstrahlung des ^{235}U , deren Intensität bei wohldefinierter Geometrie und Probendicken, welche für die 185 keV-Strahlung nicht mehr transparent sind, direkt der Anreicherung proportional ist.

Das relativ einfache Gammaspektrum von Uran gestattet die Verwendung von NaJ(Tl)-Detektoren als Meßinstrument. Typische Gammaspektren von niedrig angereichertem Uran, gemessen mit einem 2" x 1/2" NaJ(Tl)-Detektor, zeigen die Abb. 2.3/1 und 2.3/2. Man sieht, daß die interessierende γ -Linie des ^{235}U bei 185 keV einem kontinuierlichen Untergrund superponiert ist, der von hochenergetischen γ -Linien aus dem Zerfall des $^{234\text{m}}\text{Pa}$ - einem Zerfallsprodukt von ^{238}U - herrührt. Die Höhe dieses Untergrundes ist vom Alter des Urans, d.h. von der Zeitdauer seit der Konversion, abhängig und erreicht - bestimmt durch die Halbwertszeit von ^{234}Th ($T_{1/2} = 24,1 \text{ d}$) - ca. 5 Monate nach der Konversion ein maximales, konstantes Niveau.

Blendet man aus dem Gesamtspektrum den Energiebereich mit der 185 keV-Linie und einen Untergrundbereich oberhalb dieser γ -Linie aus, so ergibt sich die Anreicherung ϵ durch Linearkombination der Zählraten x und y in diesen beiden Fenstern:

$$\epsilon = ax + by$$

Die Konstanten a , b ($a > 0$, $b < 0$) folgen aus einer Eichmessung an mindestens 2 Proben verschiedener Anreicherung.

Für die γ -spektrometrische Bestimmung der Urananreicherung bietet die Fa. Eberline ein kommerzielles Gerät - SAM 2 (Stabilized Assay Meter) - an, welches alle notwendigen Komponenten enthält. Es ist ein tragbares Meßgerät und umfaßt einen americiumdotierten NaJ(Tl)-Detektor, Hochspannungsgerät, Vor- und Hauptverstärker, Amplitudenstabilisierung, zwei Differentialdiskriminatoren, elektronische Uhr und Zähler. Ein Exemplar dieses Meßsystems, ausgestattet mit einem 2" x 1/2" NaJ(Tl)-Detektor, diente als experimentelles

185 keV

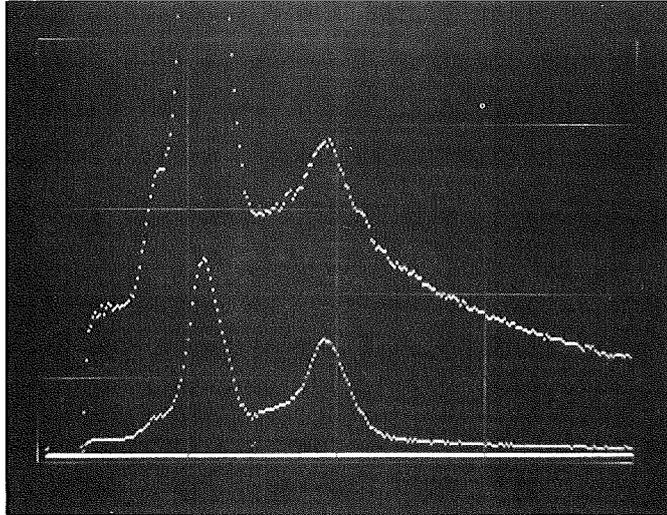


Abb. 2.3/1 γ -Spektren von UO_2 mit 0,711 % ^{235}U .
 Spektrum oben: Alter der Probe ca. 1 Jahr,
 Spektrum unten: Alter der Probe 1 Tag.
 Gleiche Meßzeit und gleiche Nulllinie für
 beide Spektren.

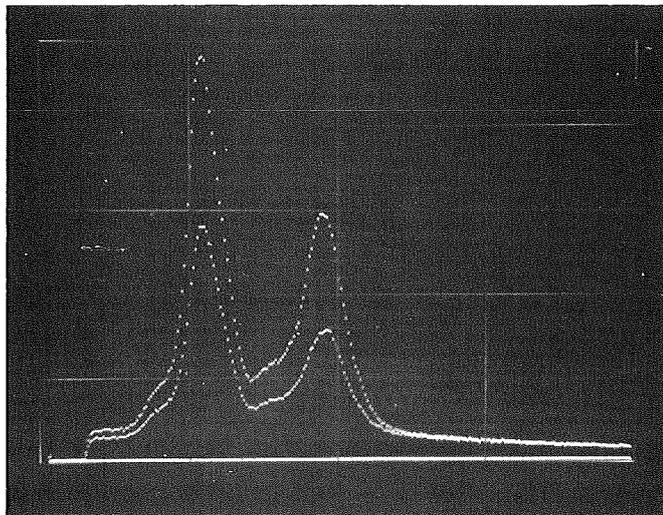


Abb. 2.3/2 γ -Spektren von UO_2 gleichen Alters (6 Tage),
 jedoch verschiedener Anreicherung.
 Spektrum oben: Anreicherung 2,497 %,
 Spektrum unten: Anreicherung 1,1763%.

Hilfsmittel für erste Probemessungen zur Bestimmung der Urananreicherung an oxidischem Material. Geeignete Proben stellte die Fa. RBG Reaktor-Brennelemente GmbH in Wolfgang zur Verfügung, wo auch die Messungen ausgeführt wurden. Die Proben variierten bezüglich der Anreicherung, des Alters, der Menge und der Form (Pulver, Schleifschlamm). Insgesamt standen 7 verschiedene Anreicherungen zwischen 0,711 % und 3,02 % zur Verfügung, darunter gleiche Anreicherungsgrade mit verschiedenem Alter und in verschiedener Menge. Die überwiegende Zahl der Proben befand sich in verzinkten Blecheimern mit 28 cm Durchmesser und 30 cm Höhe, die bei typischen Probenmengen von ca. 20 kg zu etwa 70 % gefüllt waren. Drei Proben wiesen bei einer Eimerhöhe von 65 cm Füllgewichte von ca. 85 kg auf. Die UO_2 -Vorratsbehälter wurden dem Lagerbestand der Fa. RBG entnommen und ohne besondere Vorbereitung der Messung zugeführt. Bei allen Messungen befand sich der NaJ(Tl)-Detektor in zentraler Position an der Bodenfläche der Eimer.

Tabelle 2.3/I

Vergleich zwischen Meßwerten ϵ und Buchwerten e
für die ^{235}U -Anreicherung

Probe Nr.	Eimer-Größe	Form des UO_2	Alter Tage	Buchwert e %	Meßwert ϵ %	$(\epsilon - e) / e$ %
1	klein	Schleifschlamm	>180	0.711	0.7054	-0.78
2	klein	Schleifschlamm	>138	0.8585	0.8644	+0.68
3	groß	Pulver	6	1.1763	1.1865	+0.86
4	klein	Pulver	80±6	1.73	1.7560	+1.50
5	klein	Pulver	67±4	1.94	1.9586	+0.95
6	klein	Pulver	6	2.497	2.4886	-0.33
7	groß	Pulver	6	2.497	2.4771	-0.79
8	groß	Pulver	ca. 77	2.5	2.4493	-2.02
9	klein	Pulver	118±6	3.02	2.9948	-0.83
						$\sigma = 1.08\%$

Die Meßergebnisse sind zusammen mit Daten über die Proben in Tabelle 2.3/I zusammengefaßt. Die maximale Abweichung zwischen Buchwert und Meßwert beträgt 2 % relativ, die Standardabweichung für alle Differenzen 1,08 %. Der Anteil der Standardabweichung aufgrund der Zählstatistik liegt bei der gewählten Meßzeit von 2 Minuten je nach Probe zwischen 0,2 % und 0,3 %. Eine evidente systematische Abhängigkeit des Meßergebnisses z.B. vom Alter oder der Anreicherung des Probenmaterials ist innerhalb dieses Ensembles von 9 Proben nicht zu erkennen.

Eine weitergehende Beurteilung der erzielbaren Meßgenauigkeit und Leistungsfähigkeit der Methode setzt für einige Proben genauere Analysendaten voraus.

Tabelle 2.3/II

Verbesserung der Abweichungen zwischen gemessener Anreicherung und Buchanreicherung durch Beschränkung auf Proben mit genauer angegebenen Anreicherungs-Buchwerten

kleinste angegebene Einheit der Buchanreicherung (absolut)	Anzahl Proben	$(\epsilon - e)/e$:			Beitrag durch Rundung (relativ)
		minimale	maximale	Standard-	
		Abweichung	Abweichung	Abweichung	
		(relativ)	(relativ)	(relativ)	
$\leq 0.1 \%$	9	-2.02 %	+ 1.50 %	1.08 %	$\leq 2.00 \%$
$\leq 0.01 \%$	8	-1.20 %	+ 1.18 %	0.90 %	$\leq 0.28 \%$
$\leq 0.001 \%$	5	-1.03 %	+ 0.73 %	0.75 %	$\leq 0.07 \%$

Beschränkt man die Regression zur Bestimmung der Eichkonstanten a und b auf die Proben, bei denen die Buchanreicherung auf drei oder mehr bzw. auf zwei oder mehr Dezimalen nach dem Prozentkomma angegeben sind, so vermindern sich die Abweichungen zwischen Meßwert und Buchwert erheblich (Tabelle 2.3/II); dies ist ein deutliches Zeichen dafür, daß für weitere Testmessungen die Anreicherung des Materials mit drei Dezimalstellen hinter dem Prozentkomma angegeben sein muß (d.h. Rundungsfehler $\leq 0,0005 \%$ absolut) und für die Anreicherung selbst massenspektrometrische Werte (Genauigkeit zwischen 0,1 und 0,3 % relativ) zur Verfügung stehen müssen.

Die vorstehenden Messungen mit dem mittels einer α -Quelle amplitudenstabilisierten NaJ(Tl)-Meßsystem erfolgten bei relativ konstanten Nebenbedingungen, insbesondere bei konstanter Temperatur. Bei einer Testmessung über mehrere Stunden an derselben Probe erwies sich der durch das Gerät verursachte Anteil der Reproduzierbarkeit als so klein, daß er bei einer statistischen Reproduzierbarkeit von 0,2 % noch keinen Beitrag lieferte. Langzeittests mit mehreren Exemplaren des oben erwähnten kommerziellen SAM2-Gerätes deuten jedoch daraufhin, daß unter wechselnden Temperaturverhältnissen mit einer Schwankung der Peakzählrate der 185 keV-Strahlung um ca. 0,2 %/°C Temperaturänderung zu rechnen ist. Die Ursache hierfür liegt in dem unterschiedlichen Temperaturverhalten der Lichtausbeute der durch α - bzw. γ -Strahlung induzierten Lumineszenzstrahlung in einem NaJ(Tl)-Detektor, das elektronisch nur unvollkommen kompensiert werden kann. Amplitudenkonstanz bei einer Amplitudenstabilisierung mittels einer α -Quelle ist daher nur bei angenähert konstanter Kristalltemperatur zu erwarten. Als Alternativverfahren bietet sich die temperaturunabhängige, elektronisch allerdings aufwendigere Amplitudenstabilisierung mit Hilfe einer niederenergetischen γ -Quelle an.

Weitere Untersuchungen, besonders auch im Hinblick auf den im Jahre 1974 zu entwickelnden Prototyp eines Meßsystems zur Bestimmung der Urananreicherung an den Pressenbunkern der Fa. RBG, wo Temperaturschwankungen von 15 - 20 °C zu verzeichnen sind, werden sich hieran anschließen.

2.4 Kerndaten

C. Weitkamp, A.v. Baeckmann, K. Böhnelt, M. Kühle, L. Koch

Nachdem sowohl die systematischen Untersuchungen über den Bedarf als auch das Messen von Kerndaten bisher überwiegend auf die Anwendung der Spaltungsreaktion zur Energiegewinnung beschränkt waren und die Anforderungen nach Zahl und Dringlichkeit dort allmählich zurückgehen, rücken neue Anforderungen aus Gebieten, in denen nukleare Techniken erst neuerdings Eingang gefunden haben, mit neuen Datenforderungen nach.

Um dieser Situation Rechnung zu tragen, hat die Internationale Atomenergie-Organisation im abgelaufenen Jahr zwei internationale Konferenzen einberufen, von denen die erste im März 1973 in Paris dem allgemeinen Bedarf an Kerndaten für Anwendungen in Wissenschaft und Technik sowie der Verarbeitung, Speicherung und Verbreitung dieser Daten gewidmet war. Die zweite Tagung war speziell auf solche Themen hin ausgerichtet, die Kerndaten von Spaltprodukten zum Gegenstand hatten, und befaßte sich wiederum außer mit Fragen des Bedarfs, die den Schwerpunkt der Tagung bildeten, mit Problemen der Evaluation, Archivierung und Dissemination von Spaltprodukt-Kerndaten. Diese Tagung fand im November 1973 in Bologna statt. Während die erste Tagung jedoch den Charakter eines großen internationalen Symposiums mit nahezu 100 Vorträgen hatte, war die zweite Tagung in der Form eines Panels organisiert, auf dem nur wenige zusammenfassende Übersichtsvorträge gehalten wurden, das aber genügend Raum für die intensive Diskussion der einzelnen Themenkreise bot und anlässlich dessen, gewissermaßen als Schlußfolgerungen, auch ein Katalog offizieller Empfehlungen ausgearbeitet wurde. Während der Konferenzbericht über die Pariser Tagung inzwischen im Druck vorliegt⁵, ist die gedruckte Version des Panels in Bologna noch nicht verfügbar.

Das Projekt Spaltstoffflußkontrolle in Karlsruhe hat Beiträge zu beiden Konferenzen geliefert. Für die Konferenz in Paris wurde eine Untersuchung über allgemeine Datenanforderungen und über die besondere Rolle von Kerndaten in der Spaltstoffflußkontrolle durchgeführt, bei der der Schwerpunkt bei den instrumentellen Methoden zur quantitativen Bestimmung von Uran und Plutonium sowie deren Isotopen lag⁶. Auf Einladung der IAEA wurde für die Tagung in Bologna dagegen ein Übersichtsartikel verfaßt, der, beschränkt auf Spaltprodukt-Kerndaten, die Bedürfnisse der drei wichtigsten auf dem Spaltprozeß beruhenden und damit von Spaltprodukt-Kerndaten abhängigen Methoden untersucht, nämlich der quantitativen zerstörungsfreien Bestimmung frischen Brennstoffs, der Untersuchung abgebrannten Kernbrennstoffs auf γ -spektroskopischem Wege sowie der Anwendung sog. Korrelationstechniken bei der Verifikation analytischer Daten im offenen Teil des Brennstoffzyklus⁷. Die Datenerfordernisse sind nicht nur für die drei verschiedenen Bereiche, sondern auch für die einzelnen Meß- bzw. Analysenmethoden innerhalb eines Bereichs sehr unterschiedlich.

So konnte für die Bestimmung frischen Brennstoffs die Ausnutzung der γ -Resonanzfluoreszenz als Methode bisher überhaupt nicht untersucht werden, weil die erforderlichen Kerndaten mit einer auch nicht angenähert ausreichenden Genauigkeit verfügbar sind. Neutroneneinfang-Gammaspektrometrie erwies sich als weniger

gut geeignet als ursprünglich angenommen; die Grenzen der Methode hätten viel früher erkannt werden können, wenn die erforderlichen Kerndaten frühzeitig vorgelegen hätten. Bei der Kalorimetrie wie bei der α -Spektrometrie gehen Kerndaten direkt in die Auswertung der Meßdaten ein, und die kürzlich mit besserer Genauigkeit bestimmten Lebensdauer-Werte haben einige vorher nicht erklärliche Diskrepanzen bei integralen Experimenten beseitigt, für deren Auswertung zunächst ältere Kerndaten verwendet worden waren. Kerndaten sind auch wichtig bei Verfahren, die die Aktivierung mit Neutronen ausnutzen oder bei denen passiv Neutronen-Koinzidenzen gemessen werden, wobei ihre Kenntnis zur Erhöhung der Genauigkeit, zur Verringerung des Eichaufwandes und dergleichen beitragen kann. Grundsätzlich erfolgt der Eichprozess für diese Methoden jedoch anhand bekannter, sogenannter Eichproben, deren Herstellung, Analyse und Gebrauch jedoch nicht ohne Probleme sind.

Bei Messungen an abgebranntem Spaltstoff werden Kerndaten für die Auswertung der gemessenen γ -Spektren benötigt. Kritische Daten sind Ausbeuten, Wirkungsquerschnitte und Zerfallsdaten (Halbwertszeiten, Teilchenenergien, Verzweigungsverhältnisse) von Spaltprodukten sowie die Abhängigkeit dieser Daten von dem schweren Isotop, bei dessen Spaltung sie entstehen, und von der Energie des einfallenden Neutrons (bzw. vom Neutronenspektrum). Auch die Wirkungsquerschnitte der schweren Isotope spielen eine Rolle. Diese Daten sind bisher nur zum Teil bekannt. - Die Parameter, die aus solchen Messungen erschlossen werden können, sind z.B. Standzeit und Kühlzeit der Brennelemente, Abbrand, Fluenz, Plutonium/Uran-Spaltungsverhältnis, Ausgangsanreicherung, Endanreicherung, nicht gelöster Brennstoff in Hülssen nach der ersten Stufe der Aufarbeitung usw. Gegenwärtig werden detaillierte Empfindlichkeitsstudien durchgeführt, die als Grundlage für verfeinerte Datenanforderungen dienen können.

Korrelationstechniken erfordern zunächst keine Kerndaten, weil ihre praktische Anwendung auf der Ausnutzung empirischer Korrelationen beruht. Obgleich heute recht umfangreiches historisches Material vorliegt, ist über die Anwendung des Verfahrens auf neu entwickelte Reaktortypen (wie z.B. Brutreaktoren) oder bisher nicht angewandte Varianten des Brennstoffzyklus (wie die thermische Rückführung von Plutonium) so wenig bekannt, daß die zu erwartenden Korrelationstypen, ihre Empfindlichkeit und Allgemeingültigkeit gegenwärtig nur durch Rechnung bestimmt werden können. Hierfür sind Kerndaten vonnöten.

Für die Einzelergebnisse sei auf die Originalartikel ^{6,7} verwiesen.

2.5 Messungen an Uran-Brennstäben für Leichtwasserreaktoren

C. Weitkamp, H. Ottmar

Nachdem mit der Entwicklung, dem Bau und dem probeweisen Betrieb einer Demonstrationsanlage ⁸ schon frühzeitig gezeigt worden war, daß die vollautomatische Messung des ²³⁵U-Gehalts von Brennstäben mit niedrig angereichertem Uran routinemäßig möglich ist, wurde der Frage der Stabmessungen zunächst weniger Aufmerksamkeit gewidmet, weil

- a) intensive Arbeiten potenter kommerzieller Hersteller zur Entwicklung von Stabmeßeinrichtungen in Gang kamen,
- b) Arbeiten zum Nachweis strategisch wichtigeren Kernbrennstoffs wie hochangereicherten Urans und Plutoniums vordringlich waren, und
- c) Leistungsfähigkeit und Grenzen passiver Alternativverfahren zu den in Entwicklung befindlichen Methoden relativ schnell bestimmbar schienen.

Die Situation hat sich inzwischen insofern gewandelt, als die Kosten und teilweise auch die Leistungsfähigkeit der entwickelten und jetzt käuflich erhältlichen Systeme ausreichend beurteilt werden können, sich aber mit der fortgeschrittenen Entfaltung der kerntechnischen Industrie auch die qualitativen und quantitativen Anforderungen an ein Stabmeßsystem gewandelt haben. So sind z. B. die Durchsätze an Kernbrennstoff gegenüber früheren Abschätzungen angestiegen, was zur Folge hat, daß für die Messung eines Stabes nur wenige Minuten zur Verfügung stehen. Außerdem hat sich gezeigt, daß eine wirtschaftliche Messung von Daten für Zwecke der Spaltstoffflußkontrolle nur möglich ist, wenn diese Messung mit Messungen für Sicherheits-, Qualitätskontroll- und andere betriebliche Zwecke kombiniert werden kann. Das bedeutet, daß nicht stichprobenartige Verifikationsmessungen, sondern als Bilanzierungsgrundlage dienende Messungen der gesamten Produktion durchzuführen sind. Andererseits wird aus Gründen der einfachen Bedienbarkeit von seiten der Anwender passiven Verfahren allgemein vor aktiven der Vorrang eingeräumt, wenn sie den vorgesehenen Zweck z. B. bei geringerer Meßgeschwindigkeit ebenfalls erfüllen.

Ogleich verbindliche Werte für die zu fordernden Meßgrößen sowie deren Genauigkeiten noch nicht vorliegen, kann schon jetzt davon ausgegangen werden, daß die folgenden Daten erforderlich sind:

- a) Gesamtpaltstoffmenge eines Stabes (statistischer Fehler $\lesssim 10\%$, systematischer Fehler $\lesssim 2\%$);
- b) Anreicherungsprofil des Stabes (Ortsauflösung $\lesssim 1$ cm, Auflösung verschiedener Anreicherungen, die sich relativ um $\gtrsim 30\%$ unterscheiden);
- c) Nachweis von Spalten $\gtrsim 0,5$ mm zwischen Pellets.

Die angegebenen Genauigkeiten sollen dabei die Größenordnung abstecken, die die Meßfehler nicht überschreiten sollten, wenn die Meßdaten den vorgesehenen Zweck erfüllen sollen, und sind keineswegs als Vorgriff auf festzulegende Normen o. dergl. zu verstehen.

Für die Bestimmung der einzelnen Meßgrößen an Stäben mit niedrig angereichertem Uran kommen unter den angeführten Nebenbedingungen im Prinzip folgende Verfahren in Betracht:

- a) für Gesamtpaltstoffmenge und/oder Anreicherung:

- α) aktive Messung der verzögerten Neutronen,
- β) aktive Messung der verzögerten γ -Strahlung,
- γ) aktive Messung der prompten Spalt-Neutronen (und -Gammas),
- δ) passive Messung der Eigen- γ -Strahlung aus dem radioaktiven Zerfall,
- ϵ) Wägung von Tara und fertigem Stab in Verbindung mit Anreicherungs-messung.

Kommerziell sind einige Geräte erhältlich, die nach den Methoden β (Intelcom Rad Tech High-Speed Fuel Rod Scanner, Eberline ²⁵²Cf Fuel Rod Assay System) und γ (Intelcom Rad Tech ISAS, National Nuclear Corporation Rod Assay Systems) ⁹ arbeiten. Während die Verfahren α bis γ primär die Gesamtpaltstoffmenge messen, wird nach dem Verfahren δ primär die Anreicherung, nach dem Verfahren ϵ primär die Gesamtbrennstoffmenge bestimmt.

- b) für den Nachweis von Spalten:

- α) Röntgendurchstrahlung mit visueller Inspektion der entwickelten Filme,
- β) γ -Durchstrahlung mit automatischer Registratur von Spalten, die eine bestimmte Breite überschreiten.

Für den vorliegenden Zweck wird eine Lösung untersucht, bei der die Pelletanreicherung über passive γ -Spektrometrie gemessen wird. Die Gesamtpaltstoffmenge soll alternativ über dieselbe Messung oder über die Gesamtbrennstoffbestimmung anhand einer einfachen Wägung bestimmt werden; welches der beiden

Verfahren in der Praxis anzuwenden ist, müssen die Ergebnisse zeigen. Für das Auffinden von Spalten zwischen Pellets ist eine γ -Durchstrahlung vorge-
sehen.

2.5.1 Anreicherungsmessung

Wird die Anreicherungsmessung über den Nachweis der 185 keV - Eigengammastrahlung des ^{235}U durchgeführt und ist eine Kenntnis der Anreicherung einzelner Pellets verlangt, so ist aus Zählratengründen ein NaJ(Tl) - Ringdetektor erforderlich, der amplitudenstabilisiert betrieben werden muß. Je nach den äußeren Bedingungen (Temperaturkonstanz) kann diese Stabilisierung über eine in den Detektor eingebrachte α -Quelle erfolgen (s. z. B. Abschnitt 2.3), wobei der Einsatz preiswerter hochintegrierter Gerätekombinationen möglich ist, oder muß mit Hilfe einer (externen) Quelle niederenergetischer γ -Strahlung geschehen, wobei der Aufwand an Stabilisierungselektronik wie auch an Meßelektronik beträchtlich höher wäre.

Die Zählrate in einem solchen Detektor hängt bei konstanter Wandstärke nur vom Verhältnis seiner Länge L und seines Radius R ab; mit zunehmender Größe wird aber die Ortsauflösung in Richtung der Stabachse immer besser bzw. werden die Kollimatorverluste immer kleiner. Für die Zählrate N im Detektor läßt sich schreiben

$$N = Q \cdot 4 r \ell d_{\text{eff}} a e \rho \cdot t \cdot \left[2 \sqrt{(2R/L)^2 + 1} \right]^{-1} \cdot c \cdot \epsilon,$$

wobei für die einzelnen Größen folgende Werte angenommen werden:

Q = Quellstärke der 185 keV-Strahlung $4,6 \cdot 10^4$ Quanten/sek g,

r = Stabradius 0,45 cm (PWR-Brennstab),

ℓ = Pelletlänge 1 cm,

d_{eff} = effektive Schichtdicke bei planer Geometrie²
0,069 cm für UO_2 der Dichte $\rho = 10,96 \text{ g cm}^{-3}$,

a = U : UO_2 - Verhältnis 238/270,

e = Anreicherung ($^{235}\text{U}/\text{gesamt}_\text{U}$) 0,02,

ρ = Dichte $10,96 \text{ g cm}^{-3}$,

t = Transmission durch 0,7 mm Stahl 0,9835,

L = Detektorlänge 10 cm,
 R = Detektorradius 4 cm,
 c = Kollimatortransmission 0,3,
 ϵ = Ansprechwahrscheinlichkeit im Photopeak 0,7.

Damit erhält man für die Zählrate im Photopeak eines NaJ(Tl)-Ringdetektors, der ein 1 cm langes Pellet aus 2 % angereichertem UO_2 sieht,

$$N = 90 \text{ Impulse/Sekunde.}$$

Nun verschlechtert sich, besonders bei älterem Material (chemische Verarbeitung > 24 Tage vor der Messung), die statistische Genauigkeit durch den dem 185 keV - Photopeak überlagerten Untergrund, der im wesentlichen von Compton-Ereignissen höherenergetischer γ -Linien aus den Zerfallsprodukten des ^{238}U herrührt. Sind

$$P = \eta \cdot N \cdot T$$

die bei einer Fensterbreite, die den Bruchteil η der im Detektor stattfindenden Photoereignisse zu registrieren gestattet, in der Zeit T gemessene Gesamtimpulszahl im Peak und B die in dieser Zeit dem Peak überlagerte Untergrundzählrate, die aus der Impulszahl B^* in einem Seitenfenster bestimmt wird, so ist der relative statistische Fehler der Peakfläche P gegeben durch die Beziehung

$$\frac{\delta P}{P} = \frac{1}{\sqrt{P}} \sqrt{1 + \frac{1}{\alpha} + \frac{1}{\alpha\beta}}$$

Empirische Werte für die verschiedenen Parameter in dieser Gleichung sind z. B.

$\alpha = P/B$ Peak-zu-Untergrund - Flächenverhältnis 0,8.

$\beta = B^*/B$ relative Breite des Seitenfensters 1,6.

Nimmt man an, daß 50 % der 185 keV - Photoereignisse registriert werden ($\eta = 0,5$), so folgen hieraus für einen Stab von 3 m Länge die in Tab. 2.5/I angegebenen Meßzeiten,

Tabelle 2.5/I

Abhängigkeit der Meßzeit für einen Stab von der geforderten Genauigkeit für die Anreicherung bzw. den Spaltstoffgehalt von Einzel-Pellets und Brennstab

relativer statistischer Fehler für das Einzelpellet	δ_P/P für den ganzen Stab	Meßzeit T für einen Stab
30 %	1,7 %	5 min
10 %	0,6 %	45 min
3 %	0,2 %	8,3 h

2.5.2 Nachweis von Spalten

Der Nachweis von Spalten läßt sich automatisch, d. h. ohne gleichzeitige oder spätere visuelle Auswertung von Filmen o. dergl. am besten nach der γ -Durchstrahlungsmethode führen.

Die optimale Energie für die Durchstrahlung ergibt sich aus der Forderung, daß einerseits auch gedichtete Pellets mit stehengebliebenen Stegen bis zu einer Dicke von etwa 1 mm auf beiden Seiten noch undurchlässig sind, d. h. gegenüber dem vollen Material eine höchstens um 1 % größere Transmission (bezogen auf das leere Hüllrohr) zeigen, daß aber andererseits das Hüllmaterial noch keinen merklichen Einfluß auf die Transmission ausübt. Hieraus ergibt sich eine Energie von etwa 150 keV. Infolge der engen Nachbarschaft der Eigenstrahlung des ^{235}U bei 185 keV wird man nach Möglichkeit aber eine niedrigere Energie wählen.

Auch an die Intensität der Quelle muß man bestimmte Forderungen stellen. Insbesondere muß, da die Transmission als Funktion der axialen Position von Quelle und Detektor für einen Spalt bestimmter Breite die Gestalt eines Dreiecks hat, dessen Flanken desto steiler sind, je schmaler die Quelle ist, und aus Gründen der Selbstabsorption in der Quelle nicht beliebig lange Quellen-Scheibchen ver-

wendet werden können, auch die spezifische Aktivität (d. h. die Aktivität je Volumeneinheit) einen bestimmten Mindestwert erreichen, dessen Absolutwert indessen wieder von der Vorschubgeschwindigkeit abhängt. Ist diese Bedingung jedoch erfüllt, so ist die Höhe des Dreiecks ein direktes Maß für die Spaltbreite, und verdächtige Stäbe lassen sich besonders leicht und zuverlässig aussondern.

Aus praktischen Gründen muß die Quelle schließlich ausreichend langlebig und nicht zu schwer oder teuer herzustellen sein.

Tabelle 2.5/ II

Mögliche Quellen für eine γ -Durchstrahlung von LWR-Brennstäben zum Nachweis von Spalten zwischen Pellets

Isotop	γ -Energie keV	Halbwertszeit	Produktion	maximal erreichbare spezifische Aktivität §	Transmission durch 2 mm Stahl	Probleme
^{241}Am	60,0	433 a	Zerfall von ^{241}Pu und chemische Trennung	$4,5 \times 10^{14}$	22 %	niedrige Energie
^{109}Cd	88,0	453 d	Cd (n, γ) im Reaktor	$3,7 \times 10^9$	62 %	niedere Energie, geringe spezifische Aktivität, Verunreinigungen
^{147}Pm	121,1	2,62 a	Nd (n, γ) im Reaktor	$1,4 \times 10^{10}$	84 %	Verunreinigungen
^{57}Co	122,1	270 d	Ni (p, α) im Zyklotron	ausreichend	85 %	kurze Lebensdauer

§ Photonen pro cm^3 und Sekunde, unter Zugrundelegung eines Flusses von $\phi = 10^{14} \text{ cm}^{-2} \text{ sek}^{-1}$ und einer Bestrahlungszeit von 30 Tagen (für ^{109}Cd und ^{147}Pm).

In Tab. 2.5/II sind die am aussichtsreichsten erscheinenden Quellenmaterialien zusammengefaßt. Die vorteilhafteste Quelle ist offensichtlich ^{147}Pm , das durch Neutroneneinfang in natürlichem Neodym mit nachfolgendem Zerfall des ^{147}Nd mit einer Halbwertszeit von 11 Tagen hergestellt werden kann. Des kleinen Querschnitts und der geringen Häufigkeit des ^{146}Nd wegen ($\sigma = 1,3 \text{ b}$, $a = 17,2 \%$) können sich aber schon geringe Verunreinigungen durch Samarium und andere seltene Erden u. U. störend auswirken.

2.5.3. Gesamtbrennstoffmessung

Inwieweit sich die Anreicherungs-messung für die Bestimmung der Gesamtsplattstoffmenge heranziehen läßt, ist gegenwärtig nicht geklärt. Diese Frage wird Hauptgegenstand weiterer Untersuchungen sein. Ihr Ergebnis wird vermutlich davon abhängen, ob ein ausreichend dichtes Netz an Eichproben verfügbar ist und mit welchen Variationen und Toleranzen bei der Fertigung gerechnet werden muß.

Deshalb sollen auch Überlegungen dazu angestellt werden, ob nicht auf eine getrennte direkte Messung der Gesamtsplattstoffmenge nach nuklearen Methoden verzichtet werden kann und stattdessen das Ergebnis einer Wägung mit heranzuziehen ist, auch einer Wägung des fertigen Stabes, wenn das Gewicht der Tara (Hüllrohr, Endstopfen, Federn usw.) vorher separat bestimmt worden ist. Obgleich bei der gegenwärtigen Praxis der Wiederaufarbeitung von LWR-Stäben keine direkte Verwendung dafür besteht ¹¹, könnten diese Daten bei einer Modifikation des Zerkleinerungsprozesses von großem Interesse für ein neues, auf Wägung beruhendes System zur Sicherstellung der vollständigen Auslaugung der leeren Brennstabhülsen (sog. Hülsenmonitor) sein ¹².

2.6 Zerstörungsfreie Bestimmung von U-235 und Thorium von 15 THTR-Brennelementen mit Hilfe der Gamma-Spektrometrie.

W. Krappel

Institut für Kerntechnik, Technische Universität Hannover

Am Institut für Kerntechnik der T.U. Hannover wurde im Rahmen des Forschungs- und Entwicklungsvorhabens "Spaltstoff-Flußkontrolle" eine transportable Meßapparatur zur zerstörungsfreien Bestimmung von U-235 und Thorium in AVR- und THTR-Brennelementen nach einem passiven Prüfverfahren erstellt. Das Prüfverfahren beruht auf der Messung der Gamma-Eigenstrahlung der fabrikneuen, unbestrahlten Brennelemente unter Verwendung eines Gamma-Spektrometers. Mit der Meßapparatur wurden bereits am Institut für Kerntechnik relative Brenn- und Brutstoffbestimmungen von AVR-Brennelementen^{2,13} mit Erfolg durchgeführt. Die vorliegenden Messungen wurden bei der Firma Nukem durchgeführt und hatten eine relative Gehaltsbestimmung von U-235 und Thorium von 15 ausgesuchten THTR-Brennelementen zum Ziel. Diese Brennelemente wurden mit freundlicher Genehmigung der Firma Nukem und von EURATOM/Ispra zur Verfügung gestellt. Es wurde vereinbart, daß EURATOM/Ispra eine relative U-235-Bestimmung derselben THTR-Brennelemente nach der "verzögerten Neutronentechnik" vornimmt.

Ein unbestrahltes THTR-Brennelement stellt aufgrund der natürlichen Radioaktivität von U-235 und Thorium eine kugelförmige Gamma-Strahlungsquelle dar. In Abb. 2.6/1 ist die Gammastrahlung eines THTR-Brennelementes im Energiebereich von 0,1 MeV bis 2,6 MeV in Form eines Impulshöhenspektrums eines Ge(Li) -Detektors dargestellt. Das Spektrum läßt sich deutlich in zwei Anteile trennen:

- 1) Gamma-Strahlung von U-235 : < 210 keV
- 2) Gamma-Strahlung der Thorium-Zerfallsprodukte : > 210 keV

Die relative U-235 Bestimmung von Kugel-Brennelementen beruht auf der Messung der 185,7 keV Gamma-Strahlung mit Ge(Li)- oder NaJ(Tl)-Detektoren; die relative Thorium-Bestimmung beruht auf der Messung der Gamma-Strahlung im Bereich von 0,450 MeV bis 2,615 MeV mit 4" x 3" NaJ(Tl) -Detektoren.

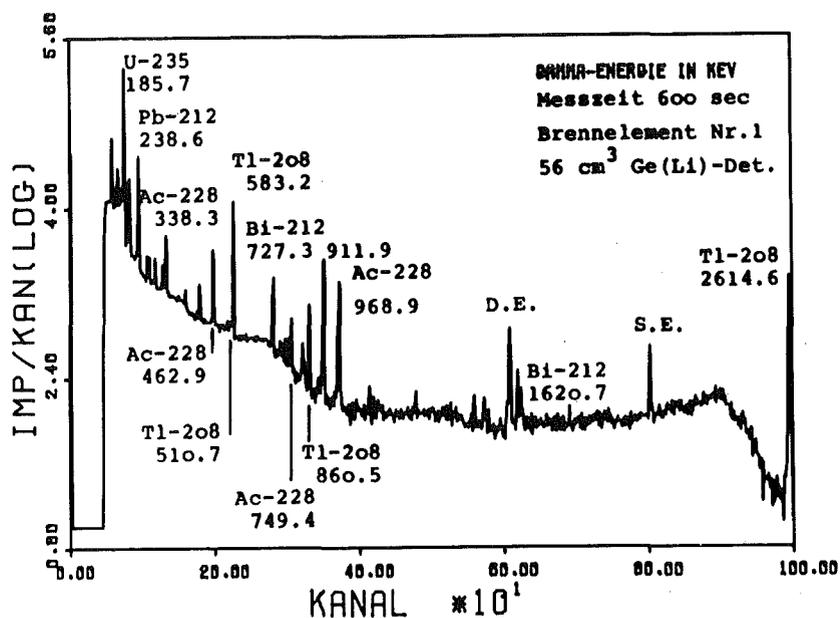


Abb. 2.6/1 Gamma-Strahlung eines unbestrahlten THTR-Brennelements

Bei Relativmessungen von THTR-Brennelementen derselben Charge verliert die Zeitabhängigkeit der Thorium-Gamma-Strahlungsaktivität an Bedeutung, da sichergestellt ist, daß bei allen Brennelementen Thorium desselben Aufbereitungsalters verwendet wird.

Im Gegensatz zu der in Ref. 2 beschriebenen Meßanordnung wurden bei der vorliegenden Messung der 15 THTR-Brennelemente nur ein Ge(Li) - und ein NaJ(Tl) - Detektor verwendet, da nach Entfernung der beiden anderen Detektoren eine wesentlich bessere Abschirmung des starken Gamma-Strahlungs-Untergrundes möglich wurde. Das Verhältnis von Thorium-Nutzimpulse : Untergrundimpulse konnte dadurch von 1 : 1 auf 15 : 1 erhöht werden. Abb. 2.6/2 zeigt zwei typische Impulshöhenspektren, die man bei der Messung eines unbestrahlten HTR-Brennelements erhält.

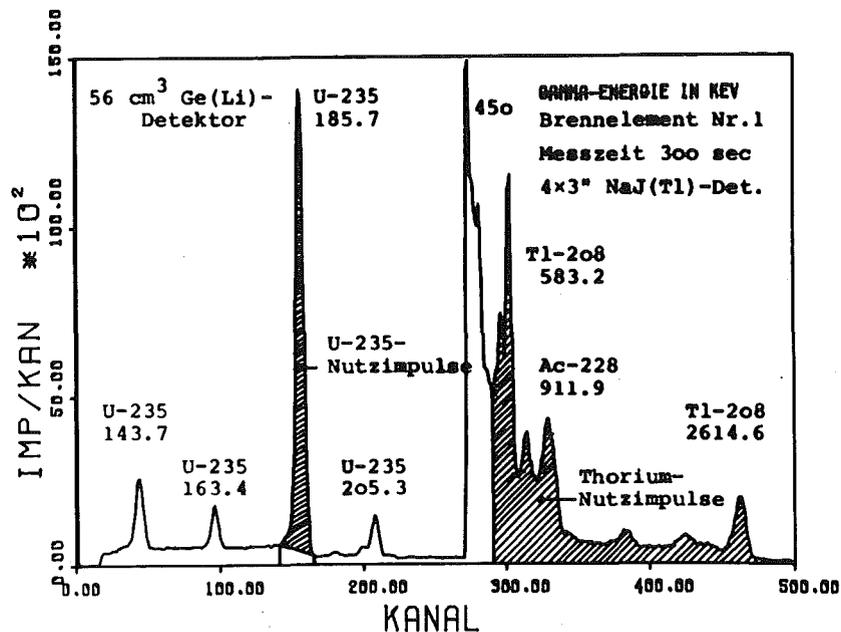


Abb. 2.6/2 Auswertung des Impulshöhenspektrums zur Bestimmung von U-235 und Thorium in THTR-Brennelementen.

Zur Bestimmung der 185,7 keV-Peakfläche erweist sich -aufgrund des geringen und kaum schwankenden Untergrundes- eine einfache Kanalintegrationsmethode als hinreichend genau. Eine Computer-Auswertung der Spektren zur Peakflächenbestimmung ist nicht erforderlich. Die Thorium-Nutzimpulse ergeben sich aus der Kanalaufsummierung von 0,45 MeV bis 2,6 MeV.

Bei Relativmessungen von Kugel-Brennelementen tritt stets das Problem auf, daß Brennelemente mit gleichem Brennstoffgehalt, aber unterschiedlicher Verteilung der Brennstoffpartikel (inhomogene Brennstoffzone), zu unterschiedlichen Meßergebnissen und damit zu erheblichen systematischen Meßfehlern führen können. Diese unterschiedlichen Meßergebnisse sind im allgemeinen auf zwei Ursachen zurückzuführen:

- 1) Abschirmungs- und Selbstabschirmungseffekte der Brennelemente,
- 2) ortsabhängige Nachweiswahrscheinlichkeit der Brennstoffteilchen durch die Meßapparatur.

Beide Ursachen sind stark energie- und geometrieabhängig. Die verwendete Meßapparatur (Gamma-Spektrometer) zeichnet sich dadurch aus, daß systematische Meßfehler, die durch Brennstoffinhomogenitäten verursacht werden, durch folgende Maßnahmen auf ein Minimum reduziert werden:

- 1) Rotation des Kugel-Brennelements während der Messung um zwei Achsen,
- 2) Blei-Blenden-Technik.

Durch diese beiden Maßnahmen wird erreicht, daß U-235 mit konstanter Nachweiswahrscheinlichkeit über das ganze Kugelvolumen gemessen wird. Bei der Thoriümbestimmung ergibt sich eine bevorzugte Nachweiswahrscheinlichkeit der Brennstoffrandzone um 8 % gegenüber dem Kugelmittelpunkt. Daraus resultiert ein systematischer Meßfehler pro Einzelmessung von ca. $\pm 0,6$ %. Aus dem Verhältnis des relativen Brenn- und Brutstoffgehaltes eines Brennelements ergibt sich zusätzlich die Möglichkeit, die Zuverlässigkeit der Einzelmessung nachzuprüfen.

Da in Brennelementen derselben Charge U-235 und Thorium in einem konstanten Verhältnis vorliegen, ist eine Abweichung von diesem Verhältnis als ein Maß für die Meßgenauigkeit anzusehen.

Aufgrund der verwendeten Meßapparatur besteht bei Relativmessungen von Kugelbrennelementen gleichen Typs (gleicher Brenn- und Brutstoffgehalt) eine hinreichend gute Proportionalität zwischen U-235-Nutzimpulsen N^{25} bzw. Thorium-Nutzimpulsen N^{02} und der vorliegenden Menge an Brenn- bzw. Brutstoff, die mit m^{25} und m^{02} bezeichnet ist.

Es gilt:

$$N^{25} = f^{25} \cdot p_1 \cdot p_2 \cdot p_3 \cdot m^{25}$$

$$N^{02} = f^{02} \cdot g_1 \cdot g_2 \cdot g_3 \cdot m^{02}$$

mit den Bezeichnungen:

f^{25} , f^{02} = Detektor-Eichfaktoren

p_1 , g_1 = Selbstabschirmungs-Korrekturfaktoren

p_2 , g_2 = Kohlenstoff-Korrekturfaktoren

p_3 , g_3 = Randzonen-Inhomogenitätskorrektur

Die Faktoren p_1 , g_1 und p_2 , g_2 berücksichtigen die Abhängigkeit der aus dem Brennelement austretenden Gamma-Strahlung von der Brennstoff- und Kohlenstoffmenge. Die Faktoren p_3 und g_3 berücksichtigen starke Dichteschwankungen des Brennstoffs in der Brennstoff-Randzone; diese lassen sich mit Hilfe einer 122 keV-Gamma-Strahlungs-Transmissionsmessung sehr gut nachweisen (Co-57 Quelle). Bei Messungen an AVR-Brennelementen wurde festgestellt, daß sich daraus Brennstoff-Korrekturen von maximal $\pm 0,5$ % ergeben. Bei den 15 THTR-Brennelementen wurde eine Randzonen-Transmissionsmessung nicht durchgeführt, da kurzfristig eine Umgangsgenehmigung für die Co-57 Quelle nicht beschafft werden konnte. Es ist jedoch nicht zu erwarten, daß die vorliegenden Meßergebnisse der THTR-Brennelemente, die keine Randzonenkorrektur enthalten, mit einem wesentlichen Fehlerbeitrag aus Randzonen-Effekten behaftet sind.

Die gammaspektrometrischen Messungen zur relativen Brenn- und Brutstoffbestimmung wurden an 15 unbestrahlten THTR-Brennelementen durchgeführt. Die Brennelemente enthalten laut Spezifikation im Mittel 0,96 Gramm U-235 und 10,2 Gramm Thorium und werden mit den Ziffern -1- bis -15- bezeichnet. Das Brennelementgewicht liegt zwischen 204,64 Gramm und 205,02 Gramm. In einer ersten Meßreihe wurde die Gamma-Strahlung von U-235 mit einem 56 cm^3 Ge(Li)-Detektor, der mit einer Blei-Blende (Blendenöffnung 25 mm) versehen war, und die Gamma-Strahlung von Thorium mit einem 4" x 3" NaJ(Tl)-Detektor gemessen. Die Meßzeit pro Brennelement betrug 300 sec. Während der gesamten Meßdauer wurde keine Kanaldrift der Impulshöhenspektren festgestellt. Das Ergebnis der gleichzeitigen Brenn- und Brutstoffbestimmung ist in Abb. 2.6/3 dargestellt. U-235 und Thorium sind relativ zum Brennelement Nr. -5- angegeben, das dem Mittelwert aller Brennelemente am nächsten liegt. Die Thorium Meßwerte zeigen im wesentlichen dasselbe Verhalten bezüglich des Mittelwertes wie die U-235 Meßwerte. Die maximale Abweichung zwischen relativem Thorium- und Urangehalt eines Brennelements beträgt 0,6 %.

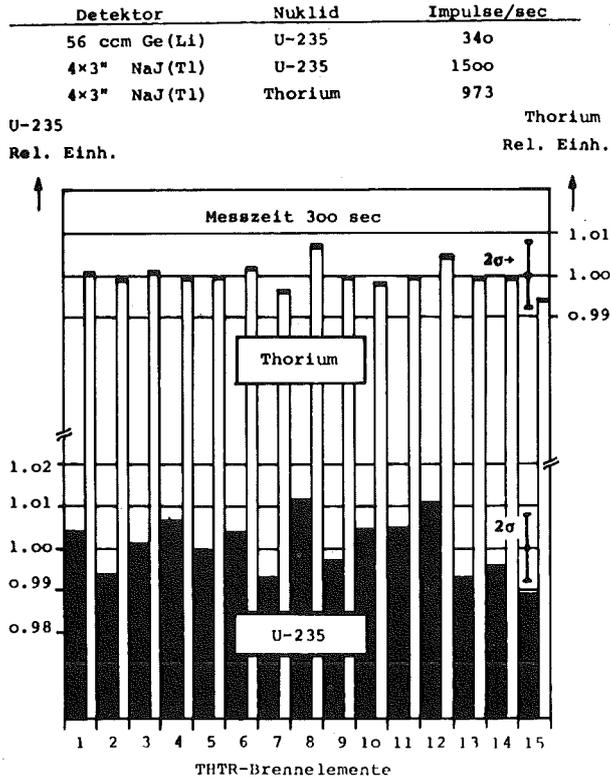


Abb. 2.6/3

Relativbestimmung von U-235 und Thorium in unbestrahlten THTR-Brennelementen mit Hilfe der Gamma-Spektrometrie.

Der relative statistische Fehler bei der U-235-Bestimmung beträgt $\pm 0,43\%$, und bei der Thorium-Bestimmung $\pm 0,24\%$. Der relative Fehler des Mittelwertes des Thorium : U-235-Verhältnisses beläuft sich auf $\pm 0,57\%$. Der eingetragene Meßfehler von $\pm 0,8\%$ bedeutet, daß der wahre Brenn- und Brutstoffgehalt eines Brennelements in dem angegebenen Intervall mit einer statistischen Sicherheit von 95 % liegt.

In einer zweiten Meßreihe wurde eine relative U-235-Bestimmung der 15 THTR-Brennelemente mit einem 4" x 3" NaJ(Tl)-Detektor durchgeführt. Die Nutzimpulse wurden durch Integration über die halbe Linienbreite des 185,7 keV Peaks gewonnen. Die Meßergebnisse sind in Tabelle 2.6/I zusammen mit den Werten, die mit dem Ge(Li)-Detektor erhalten wurden, aufgeführt. Ein Vergleich der Resultate zeigt, daß das schlechtere Auflösungsvermögen des NaJ(Tl)-Detektors bei der relativen U-235-Bestimmung nicht von gravierendem Nachteil ist.

Tabelle 2.6/I. Relativbestimmung von U-235 in 15 THTR-Brennelementen

THTR-Brennelement		Relativer U-235 Gehalt	
Nr.	Gewicht	Ge (Li) - Detektor ± 0,008	NaJ (Tl) - Detektor ± 0,009
1	204,96	1,004	1,003
2	204,64	,994	,999
3	204,99	1,001	1,001
4	204,95	1,007	1,011
5	205,02	1,000	1,000
6	204,97	1,004	1,010
7	204,75	,993	,993
8	204,91	1,012	1,008
9	204,89	,997	,998
10	204,72	1,005	1,002
11	204,97	1,005	1,010
12	204,74	1,011	1,007
13	204,70	,993	,991
14	204,75	,996	,988
15	204,91	,989	,982

2.7 Rechnergesteuerter Betrieb eines Neutronengenerators.

M. Zeller

Institut für Kerntechnik, Technische Universität Hannover

Der rechnergesteuerte Betrieb eines Neutronengenerators stellt eine Teilaufgabe eines zerstörungsfreien Meßverfahrens zur Spaltstoffbestimmung in hochangereicherten Brennelementen mit Hilfe der "verzögerten Neutronentechnik" dar (s.Kap. 2.8). Der hierzu erforderliche Umbau des Generatorsystems und die Prozessinstrumentierung zur Erfassung der erdseitigen und hochspannungsseitigen Analogwerte sowie der binären Meßstellen und Interruptgeber ist in Ref. 2 beschrieben.

Die Anforderungen, die an den rechnergesteuerten Generatorbetrieb gestellt werden, sind

- möglichst genaue Einstellung des gewünschten Targetstromes $I_{T\text{ Soll}}$ bei vorgegebener Beschleunigungs-Spannung $U_{B\text{ Soll}}$
- möglichst Verzicht auf Neutronenproduktion bei der Generator-einstellung, um den Neutronenuntergrund klein zu halten und um das Target zu schonen.

Durch die beiden Forderungen wird das Konzept des rechnergesteuerten Generatorbetriebes bereits festgelegt. Denn die Einstellung des Betriebszustandes ohne Strahlerzeugung zur Erzielung des gewünschten Targetstromes $I_{T\text{ Soll}}$ bei vorgeschriebener Beschleunigungs-Spannung $U_{B\text{ Soll}}$ ist nur mit Hilfe eines exakten Generatormodells möglich, das anhand der im Pulsbetrieb aufgenommenen Generator-Kennlinien gewonnen wird. Ein Extremwert-Regelprogramm kann bei zu starkem Anwachsen der Störeinflüsse zusätzlich gestartet werden, um selbst bei starker Abweichung des Modells vom tatsächlichen Betriebsverhalten des Generators noch die optimale Einstellung zu garantieren.

Das Generatormodell ist sehr einfach aufgebaut, da die Kopplungen der Optimierungsgrößen vernachlässigt werden, die nur einen sehr geringen Einfluß auf die Höhe des zu erreichenden Targetstromes besitzen. Das so vereinfachte Generatormodell ist in Abb. 2.7/1 dargestellt. Die Eingangsgrößen sind

- Sollwert des Targetstromes $I_{T\text{ Soll}}$
- Sollwert der Beschleunigungs-Spannung $U_{B\text{ Soll}}$
- Maximalwert des Targetstromes $I_{T\text{ max}}$, der vom Optimierungsprogramm selbst bestimmt werden muß.

Die Größen des Strahlerzeugungs-Systems

- Druck in der Ionenquelle p_{IQ}
- HF-Senderspannung U_A
- Extraktions-Spannung U_E
- Spulenstrom I_S

bestimmen den extrahierten Ionenstrom I_E , der im wesentlichen durch

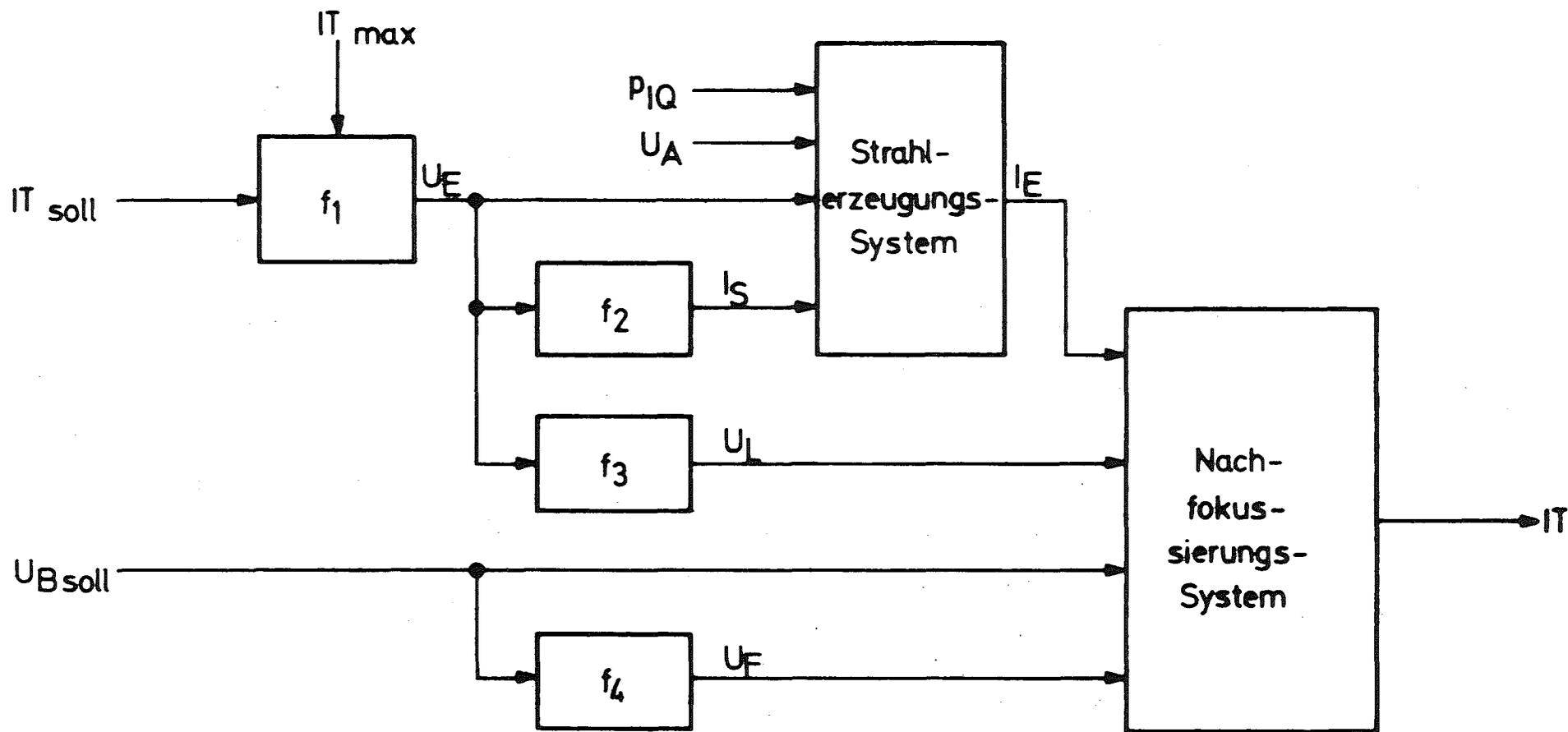


Abb. 2.7/1 Struktur des Generatormodells

- die Stromhöhe
- das Energiespektrum
- den Öffnungswinkel

charakterisiert ist.

Die Abstimmung der Größen des Nachfokussierungs-Systems

- Linsenspannung U_L
- Fokussierspannung U_F

auf

- den extrahierten Ionenstrom I_E
- und
- die Beschleunigungsspannung U_B

ergeben den optimalen Targetstrom.

Im Modell werden vor allem folgende Abhängigkeiten vernachlässigt:

- der optimale Spulenstrom $I_S \text{ opt}$ als Funktion der Beschleunigungs-Spannung U_B
- die optimale Linsenspannung $U_L \text{ opt}$ als Funktion der Beschleunigungs-Spannung U_B
- die optimale Fokussierspannung $U_F \text{ opt}$ als Funktion der Linsenspannung U_L .

Die begrenzte Kapazität des Kernspeichers erfordert die Aufteilung des gesamten Programmsystems zur Generatorsteuerung und nuklearen Datenerfassung und -verarbeitung in passende Segmente (Core-Loads) von je 12K Worten, welche auf dem Plattenspeicher abgelegt sind und bei Bedarf in den Kernspeicher geholt werden. Die Kommunikation zwischen den einzelnen Core-Loads erfolgt über den COMMON-Bereich.

Der Ablauf des Prozesses sei anhand des Blockdiagramms in Abb.2.7/2 erläutert:

Nach der Initialisierung des Programmsystems wird sogleich das Leitprogramm aufgerufen, das im Wartezustand verweilt, bis der Operateur entschieden hat, welches Funktionsprogramm als erstes gestartet werden soll. Entscheidet er sich für das Anfahrprogramm, dann wird die weitere Programmfolge vom Leitprogramm bestimmt, es sei denn, das laufende Programm wird auf Wunsch des Operateurs abgebrochen, oder die weitere Prozessführung ist durch eine plötzliche Änderung im Generatorsystem nicht mehr möglich. In einem solchen Falle geht das Leitprogramm in Wartestellung.

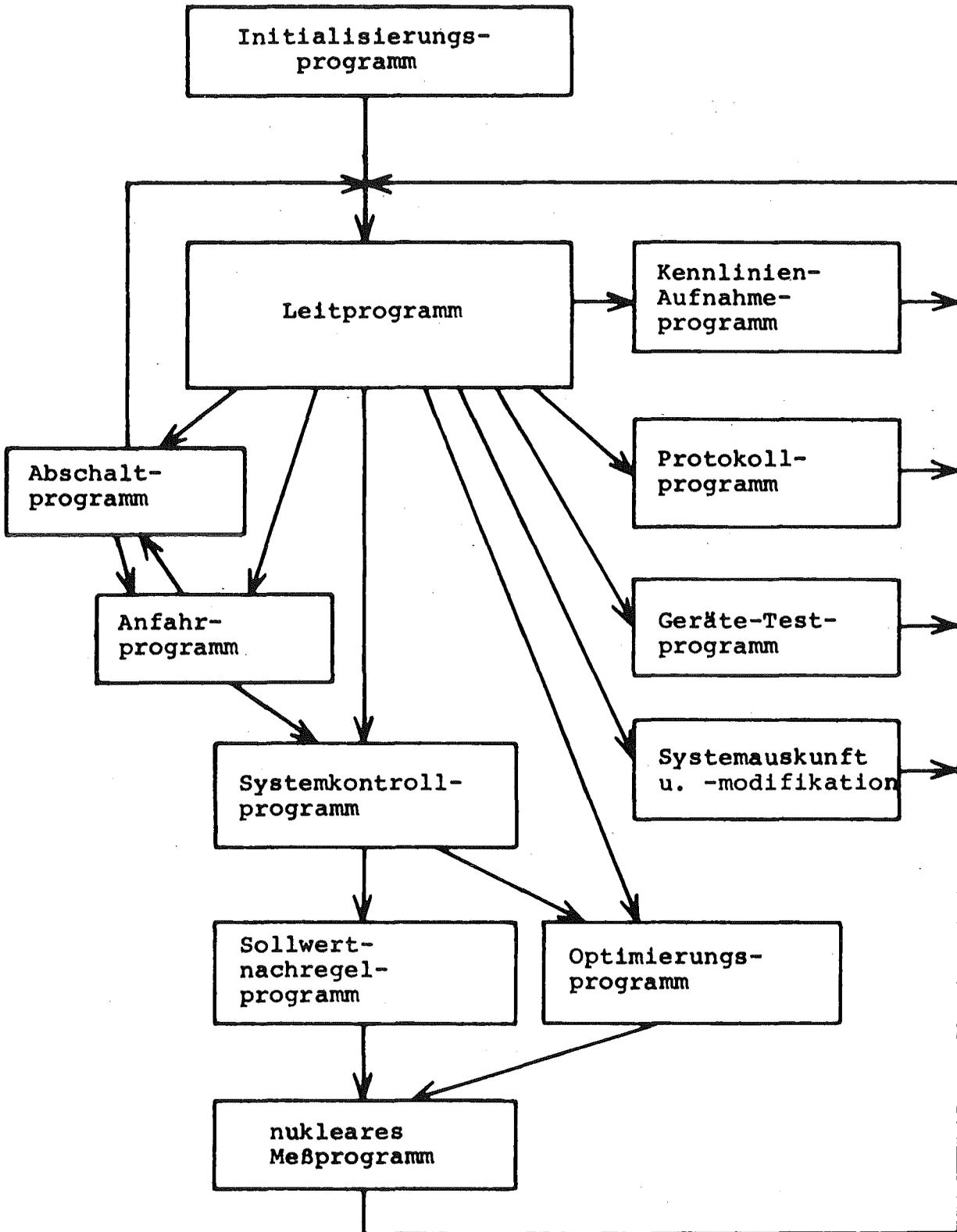


Abb. 2.7/2

Blockschaltbild des Programmsystems

Der erfolgreiche Abschluß des Anfahrprogramms führt zum Start der Systemkontrolle. Bei Mißerfolg wird jedoch sogleich das Abschaltprogramm aufgerufen.

Das Systemkontrollprogramm überprüft die Betriebsbereitschaft der gesamten Anlage. Ist sie betriebsbereit, dann wird der Generator mit Hilfe des Optimierungsprogramms in den optimalen Betriebszustand gebracht. Nach Beendigung des daran anschließenden nuklearen Meßprogramms wird die Güte der Generatoreinstellung anhand der im nuklearen Meßprogramm erzeugten Targetstromwerte geprüft und ins Protokoll eingetragen.

Der weitere ungestörte Prozessablauf stellt eine zyklische Folge von

- Systemkontrolle
- Generatoreinstellung und
- Protokolleintrag

dar. Die Prüfung der Generatoreinstellung dient zur Entscheidung darüber, ob bei der nächsten Generatoreinstellung ein Optimierungslauf erforderlich ist, oder ob ein Nachregeln der Prozessvariablen auf die bei der letzten Optimierung ermittelten Sollwerte ausreichend ist.

Das Eintreffen eines Interrupts führt zum sofortigen Abbruch des gerade laufenden Programms und zum Start des Leitprogramms, welches über die zu treffenden Maßnahmen entscheidet:

- Bei Ausfall der Hauptsicherung oder beim Zurückschalten in den Handbetrieb sind keine Rechner-eingriffe mehr möglich. Das Leitprogramm geht in den Wartezustand.
- Beim Drücken der Programmbeendigungstaste am Steuerpult geht das Leitprogramm ebenfalls in den Wartezustand.
- Bei Auftreten aller gefährlichen Interrupts, die jedoch eine weitere Steuerung des Generators durch den Rechner zulassen, wird sofort das Abschaltprogramm gestartet.

Die Ausgabe des Betriebsprotokolls kann von der Konsole veranlaßt werden. Sie erfolgt jedoch automatisch, wenn der zur Verfügung gestellte Speicherplatz voll ist.

Die Programme für Systemauskunft und -modifikation sowie das Gerätetestprogramm können nur über Konsole gestartet werden. Dasselbe gilt für das Programm zur Aufnahme der Generatorkennlinien.

2.8 Rechnergesteuerte automatische Bestimmung des ^{235}U -Gehaltes in AVR-Kugelelementserien

R. Eberle

Institut für Kerntechnik, Technische Universität Hannover

Am Institut für Kerntechnik der TU Hannover wurde im Rahmen der Spaltstoff-Flußkontrolle eine automatische Apparatur zur Bestimmung des Spaltstoffgehaltes in hochangereicherten Brennelementen entwickelt ^{1,14,15,16}, die nach der Methode der Verzögerten Neutronen-Technik arbeitet. Steuerung und Regelung des dafür eingesetzten 14 MeV-Neutronengenerators, Brennelemente-Transport, Meßablaufsteuerung, Auswertung und Ergebnis-Protokollierung erfolgen unter Programmkontrolle durch einen on-line eingesetzten Digitalrechner. Demonstriert wurde die Leistungsfähigkeit des Verfahrens in einer Serienmessung, vorgenommen an AVR-Brennelement-Kugeln. Da diese Elemente ^{235}U und ^{232}Th im Verhältnis 1:5 enthalten, wurde die Bestrahlungs- und Meßposition ins Zentrum eines $70 \times 70 \times 70 \text{ cm}^3$ Bleikubus verlegt, in dem die mittlere Energie der Bestrahlungsneutronen soweit unter die Spaltschwelle des Thoriums abgesenkt wurde, daß ein Spaltratenverhältnis von 150 ... 180:1, bezogen auf je 1 g ^{235}U und ^{232}Th , erzielt wurde.

Für die Durchführung der Serienmessung wurde eine Brennelemente-Kreislaufeinrichtung eingesetzt, die die zu untersuchenden Brennelement-Kugeln in einer als Magazin dienenden Schlauchspirale enthält. Über ein Rohr, in dem sie sich infolge Schwerkraft bewegen, werden die Kugeln der Ein-/Auslaß-Öffnung an der Unterseite des auf einem Stahlgestell ruhenden Bleikubus zugeführt (siehe Abb. 2.8/1). Die Freigabe eines Elementes aus dem Magazin und die Beförderung im Inneren des Bleikubus zur Bestrahlungs- und Meßposition erfolgt durch pneumatische Sperr- und Hubzylinder, deren Ansteuerung über den Rechner erfolgt. Die Rückführung ins Magazin geschieht zunächst ebenfalls durch Schwerkraft und im letzten Wegabschnitt durch einen kettengetriebenen "Paternoster" zurück in die höher liegende Schlauchspirale. Auf diese Weise kann eine ununterbrochene zyklische Meßreihe durchgeführt werden. Andererseits ist eine Unterbrechung der Meßreihe zur Neu- oder Nacheichung zu beliebigen Zeiten möglich, da das hierfür vorgesehene Referenzelement in einem pneumatischen Schieber an der Unterseite des Bleikubus untergebracht ist, von wo aus es über separate Steuereingriffe in die

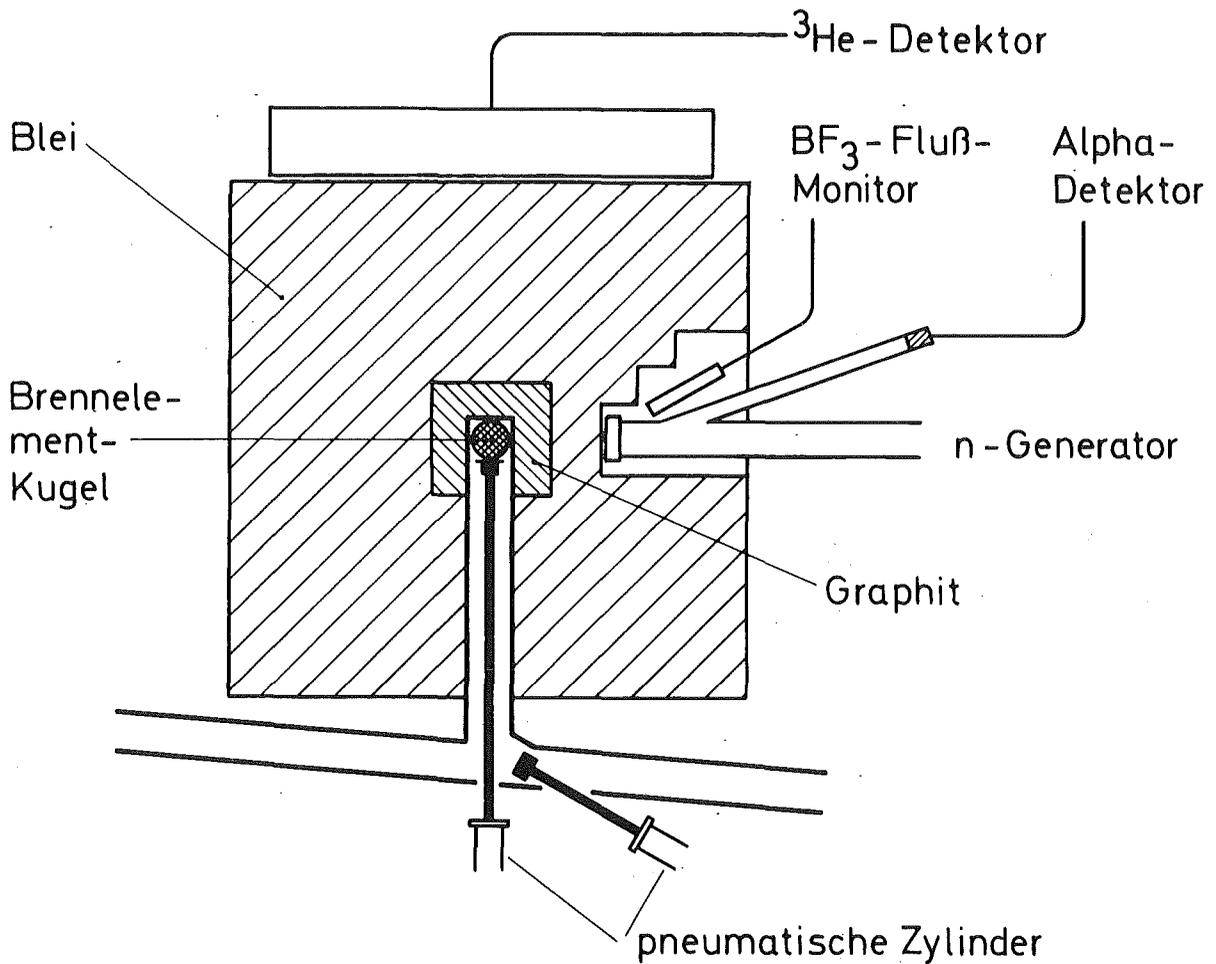


Abb. 2.8/1 Skizze der Bestrahlungsanordnung mit Bleikubus

Meßposition und aus dieser heraus gebracht werden kann, ohne daß es in den Kreislauf der übrigen Elemente gerät.

In dem für diese Anwendung kodierten Programmablauf ist nach jeder Meßsequenz die Möglichkeit zum Eingriff in die Regelung des Neutronengenerators gegeben. Während der eigentlichen Bestrahlungen und Meßwerterfassung ist ein Eingriff nicht gestattet, allerdings kann das laufende Programm in dieser Phase beim Eintreten kritischer Betriebszustände des Generators oder bei wichtigen Komponenten-Ausfällen jederzeit durch die "Interrupt"-Überwachung abgebrochen werden.

Die Meßablauf-Steuerung, die aus Gründen des exakten Zeitablaufes in maschinenorientierter ASSEMBLER-Sprache programmiert wurde, folgt einem gepulsten Bestrahlungsverlauf mit ca. 30 Perioden, wobei die entsprechenden Parameter über die Bedienungstastatur beim Start des Programms eingegeben werden. Die Bestimmung der Korrektur für den dynamischen Untergrund (= des Anteils am Signal im Detektor für die verzögerten Neutronen, der ohne Anwesenheit von Spaltstoff erzeugt wird) und für den Eichfaktor wird in mehreren mit Abklingpausen aufeinanderfolgenden Zyklen durchgeführt (das Programm verlangt mindestens 4); die Brennstoff-Bestimmung erfolgt dann in einer dauernden Wiederholung des eigentlichen Meßverlaufes, wobei automatisch jedesmal ein neues Element in den Bleikubus geladen wird. Dieser selbständige Ablauf wird nur angehalten, wenn die "Interrupt"-Überwachung anspricht oder die Bedienungsperson dem Rechner den Wunsch nach Unterbrechung mitteilt.

Da ein Referenz-Element im eigentlichen Sinn (mit tatsächlich bekanntem Spaltstoffgehalt) nicht zur Verfügung stand, definierte man ein Kugelelement mit ausgesucht homogener Spaltstoff-Verteilung und fehlerfreiem konzentrischen Aufbau (die Prüfung geschah mit Hilfe von Röntgenaufnahmen¹⁷) als Referenz-Element" mit einem nominalen Gehalt von 1 g ^{235}U , und alle anderen Elemente wurden relativ zu diesem gemessen. Als Fehler für diesen "bekannten" Gehalt wurde 1 % (1 sigma) angenommen.

(Anmerkung: Im praktischen Fall wird man im allgemeinen entsprechend verfahren: Man wählt ein Element aus einer Fabrikations-Charge aus, und nach Abschluß aller Messungen bestimmt man die tatsächlichen Daten dieses Bezugs-Elementes in einer chemischen Analyse).

Bei einer Ermittlung von Korrektur- und Eichwert über jeweils 10 Zyklen und einer Gesamt-Meßzeit je unbekanntem Element von 30 sec ergab sich ein aus dem Auswertungs-Algorithmus berechneter statistischer Fehler (80 % Vertrauensbereich) je Einzelmessung von im Mittel $\pm 4,3$ %, also bezogen auf das Referenz-Element von $\pm 0,043$ g ^{235}U . (Der Fehler von 1 % im Referenzgehalt ist dabei mitberücksichtigt). Periodische Wiederholungen der Meßreihen zeigten eine Reproduzierbarkeit der Ergebnisse, die vollständig innerhalb der ermittelten Fehlerbreite lag.

Für die Durchführung eines Langzeittestes wurden 9 Kugelelemente ausgewählt, deren Gehalt an ^{235}U über γ -spektroskopische Messungen ¹⁷ mit einer Genauigkeit von besser 1 % relativ zum Referenz-Element bestimmt worden ist; die Abweichungen vom Sollwert 1 g lagen bei diesen Kugeln zwischen + 0,7 und - 1,4 %. Hinzugenommen wurde noch ein Moderator-Element, das aus einer reinen Graphit-Kugel bestand. Diese insgesamt 10 Kugelelemente enthielten zusammengenommen 8,999 g ^{235}U . Dieser Satz von Kugeln wurde nach einer einmaligen Bestimmung von Korrektur- und Eichwert der Meßapparatur zu Beginn des Testlaufes in einem sechsständigen Experiment 50 Mal ununterbrochen durch die Anlage laufengelassen, repräsentierte also 500 Brennelemente, was einer halben Tagesproduktion in der Fertigung entspricht.

Der Lauf könnte völlig störungsfrei durchgeführt werden; "Drift" war in den Ergebnissen nicht festzustellen.

Die Ergebnisse dieses Tests lassen sich wie folgt zusammenfassen:

1. Typische Zählraten (in Klammern: davon Nulleffekt):

Flußmonitor:	8600/sec (0,5/sec)
^3He -Detektor (gemittelt über einen Zyklus):	
dyn. Untergrund:	12,5/sec (8,7/sec)
mit Brennelement:	130/sec (9,3/sec)

2. Korrekturwert für den dynamischen Untergrund:

Eine Mittelwert-Bildung über 10 Messungen, zwischen denen eine Abklingzeit von 60 sec lag, ergab:
 $(2,16 \pm 0,64) \cdot 10^{-3}$ Untergrund-Impulse je Flußmonitor-Impuls - interpretiert als "verzögerte Neutronen".

3. Eichkonstante für Referenz-Gehalt $(1,000 \pm 0,010)$ g:

Hier wurde wie für 2. gemittelt; Vorgabe-Fehler von $\pm 0,010$ g bedeutet hier eine Fehlerbreite von ± 1 sigma (= 68,3 % Vertrauensbereich).

Ermittelt wurde:

$(6,33 \pm 0,15) \cdot 10^{-2}$ "echte" verzögerte Neutronen-
Impulse je Gramm ^{235}U und je
Flußmonitor-Impuls.

4. Statistische Fehler der Einzelmessung:

Der Algorithmus lieferte Fehler von im Mittel
4,3% ; der maximale Fehler betrug 4,5% . - Ver-
gleicht man die gemessenen Spaltstoffgehalte mit
den dazu gehörenden γ -spektroskopisch ermittelten Wer-
ten, so ergaben sich in Einzelfällen Abweichungen von
bis zu 6 %; die mittlere Abweichung einer Einzelmessung
lag jedoch unter 3 %.

5. Fehler im Gesamt-Durchsatz:

Nach den vorgegebenen Werten sollte der Gesamt-Durchsatz
 $50 \cdot 8,999 \text{ g} = 449,95 \text{ g } ^{235}\text{U}$ gewesen sein; die Bilanz ergab:

$(454,200 \pm 0,927) \text{ g}$ Gesamt-Durchsatz für 450 Brenn-
elemente und 50 Graphit-Kugeln.

Die Abweichung betrug also $+ 0,94 \%$; der im Programm
errechnete statistische Fehler war $\pm 0,20 \%$.

6. "Spaltstoff-Bestimmung" für die Graphit-Kugel:

Der Algorithmus ermittelte aus den Meßwerten für die nicht
spaltstoffhaltige Graphit-Kugel " ^{235}U -Gehalte" wechselnder
Vorzeichen, die in die Bilanz des Gesamt-Durchsatzes mit $0,075 \text{ g}$
 $= 0,017 \%$ eingehen. Die Einzelwerte, deren berechnete Fehler
zwischen $\pm 0,015$ und $\pm 0,016 \text{ g}$ lagen, waren in 48 von allen 50
Fällen "nicht signifikant von Null verschieden", entsprechend
der Definition, daß ein aus statischen Unterlagen ermittelter
"Parameter nicht signifikant von Null verschieden" ist, falls
das Intervall "Parameter ± 20 " den Wert Null enthält".

2.9 Neutronenkoinzidenzmessungen zur Plutoniumbestimmung

K. Böhnel

Zur quantitativen Bestimmung von ^{240}Pu kann seine Eigenschaft, durch Spontanspaltung zu zerfallen, herangezogen werden. Die dabei entstehenden Neutronen werden mit Hilfe von Korrelationstechniken auch in Gegenwart von fremder Untergrundneutronenstrahlung als Signal gemessen, das der Zahl der Spaltungen proportional ist. Dabei wirkt sich die Tatsache aus, daß pro Spaltung teilweise mehr als ein Neutron entsteht. Eine solche Technik ist die Messung von Neutronenkoinzidenzen in Verbindung mit moderierten Detektoren. Die Koinzidenzauflösungszeit wird durch die mittlere Lebensdauer der Neutronen in der Kombination von Probe und Detektor bestimmt. In den vorangegangenen Berichten /1,2/ wurde ein Gerät beschrieben, das auch größere Koinzidenzbreiten (etwa 160 μsec) praktisch totzeitfrei zu messen gestattet. Dabei löst jeder ankommende Detektorimpuls einen Meßzyklus von der Länge der Koinzidenzbreite aus, währenddessen die folgenden Impulse als koinzident betrachtet und registriert werden. Die dabei unvermeidbar auftretenden zufälligen Koinzidenzen werden in einem verzögert ausgelösten Zyklus bestimmt und vom "prompten" Signal subtrahiert.

Die Genauigkeit der Messung hängt einerseits vom statistischen Fehler, andererseits von der Wechselwirkung der Spaltneutronen mit der Matrix ab, die sie auf dem Weg zum Detektor durchqueren müssen. Da die Korrelationstechniken gerade den Umstand ausnützen, daß die Nachweisereignisse nicht voneinander unabhängig sind, sind die üblicherweise angewandten Formeln für Fehler nicht mehr gültig, die auf der Poissonverteilung beruhen. Im folgenden sind zwei Teilergebnisse von Untersuchungen dieses Sachverhalts dargestellt. Das erste betrifft die Zählung von Spaltneutronen, das zweite ein vereinfachtes Experiment zur Koinzidenzmessung. Von den Matrixeffekten wurde die induzierte Spaltung weiter untersucht. Durch sie werden die "Neutronen-

familien" und dadurch das korrelierte Signal vergrößert. Zur Schnellspaltung werden experimentelle Ergebnisse präsentiert, zur Spaltung durch thermische Neutronen wird der Effekt durch theoretische Überlegungen abgeschätzt. Schließlich wird über ein Gerät berichtet, das für Untersuchungen von plutoniumhaltigen Abfalldosen gebaut wurde.

2.9.1 Statistische Fehler bei der Zählung von Spaltneutronen

Betrachten wir die Zählung von Spaltneutronen während eines Zeitintervalls T , das sehr lang im Vergleich zur mittleren Lebensdauer der Neutronen im System sei. Weist man jedes Neutron nach, so wird jede Spaltung im Mittel durch mehrere Impulse repräsentiert. Der Fehler der Messung wird durch den der Poissonverteilung der Spaltereignisse bestimmt, auch wenn diese durch Mehrfachimpulse nachgewiesen werden.

Zur mathematischen Formulierung unterteilen wir die Spaltungen in Klassen, die jeweils eine bestimmte Multiplizität ν der Neutronen erzeugen. Die Ereignisse verschiedener Klassen sind voneinander statistisch unabhängig. Für die Spaltraten s und s_ν gilt

$$s = \sum_{\nu=0}^{\infty} s_\nu \quad \text{und} \quad \text{var } sT = sT \quad \text{und} \quad \text{var } s_\nu T = s_\nu T$$

und $s_\nu = p(\nu)s$ mit der Multiplizitätsverteilung $p(\nu)$

Mit der Empfindlichkeit $\epsilon=1$ ergibt sich die Zählrate n

$$n = \sum_{\nu=0}^{\infty} \nu s_\nu = \sum_{\nu} p(\nu) \nu \cdot s = \bar{\nu} s$$

Für die Varianz der in der Zeit T nachgewiesenen Neutronen N errechnet man daraus

$$\begin{aligned} \text{var } N &= \text{var } nT = \text{var} \sum_{\nu} \nu s_\nu T = \sum_{\nu} \text{var } \nu \cdot s_\nu T = \sum_{\nu} \nu^2 \text{var } s_\nu T \\ &= \sum_{\nu} \nu^2 s_\nu T = sT \sum_{\nu} \nu^2 p(\nu) = sT (\overline{\nu(\nu-1)} + \bar{\nu}) = N \left(1 + \frac{\overline{\nu(\nu-1)}}{\bar{\nu}}\right) \end{aligned}$$

Ist $\epsilon < 1$, so werden die Momente der Verteilung $p(v)$ mit den entsprechenden Potenzen von ϵ multipliziert /z.B. 18/.
Verwendet man noch $\frac{v(v-1)}{v} \approx 0,8$ /19/, so gilt schließlich

$$\frac{\text{var } N}{N} = 1 + \epsilon \frac{v(v-1)}{v} \approx 1 + \epsilon \cdot 0,8 \cdot \bar{v} \quad (2.9.1)$$

Zu dem "Poisson"-Ergebnis $\frac{\text{var } N}{N} = 1$ wird also noch ein von der Multiplizität verursachter Zusatzterm addiert. Dieser verschwindet für "normale" Quellen ($p(1)=1$, "Spaltungen" mit 1 Neutron) und auch für kleine Empfindlichkeiten, da in letzterem Falle von einer Spaltung mit großer Wahrscheinlichkeit höchstens 1 Neutron nachgewiesen wird. Die Voraussage der Gleichung 2.9.1 wurde experimentell mit einer Cf-Quelle geprüft und, wie Abb.2.9/1 zeigt, bestätigt. Bei einer Empfindlichkeit des Detektors von 30% bedeutet dies, daß der nach der "naiven" Formel $\Delta N = \sqrt{N}$ berechnete statistische Fehler erst nach etwa der doppelten Meßzeit erreicht wird. Für ^{240}Pu mit seinem kleineren \bar{v} und auch für kleinere Nachweiswahrscheinlichkeiten ist der Effekt entsprechend kleiner

$$\frac{\Delta N}{N} = \frac{\sigma_N}{N} = \frac{\sqrt{\text{var } N}}{N} = \sqrt{\frac{1 + \epsilon \cdot 0,8 \cdot \bar{v}}{N}}$$

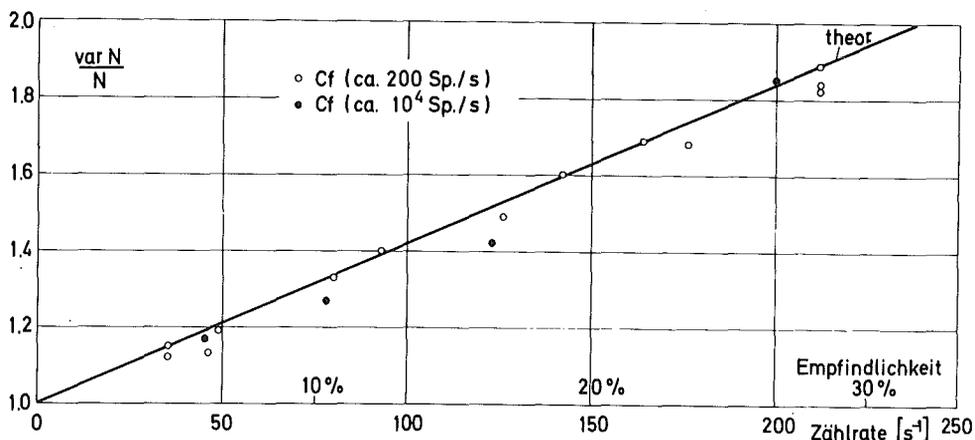


Abb.2.9/1 Relative Varianz der Nachweise von Neutronen aus einer ^{252}Cf -Quelle in Abhängigkeit von der Detektorempfindlichkeit

Für kleine Meßzeiten Δt und den Fall eines moderierten Detektors, in dem die Neutronenflußverteilung dem Grundmode mit der Zeitkonstanten α entspricht ($\phi(t) = \phi_0 \cdot e^{-\alpha t}$), findet man nach umfangreicher Rechnung statt 2.9.1

$$\text{var } n\Delta t = n\Delta t \left[1 + \epsilon \frac{v(v-1)}{v} \left(1 - \frac{1 - e^{-\alpha \Delta t}}{\alpha \Delta t} \right) \right] \quad (2.9.2)$$

2.9.2 Statistischer Fehler von Koinzidenzmessungen in einem Demonstrationsexperiment

Die Koinzidenzmessungen kann man so interpretieren (vgl. dazu die entsprechend aufgebaute Elektronikschaltung auf S.66 in Ref.1), daß die Zahl der in einem kurzen Meßintervall gezählten Impulse von jedem "Triggerimpuls" zum Gesamtsignal addiert wird. Für das unkorrelierte Untergrundsignal C_u gilt

$$C_u = nT \cdot \overline{n\Delta t}$$

Dabei ist $\overline{n\Delta t}$ als der über die nT Messungen gemittelte Wert der "Zählrate in Δt " zu interpretieren. Ist die Meßzeit lang, so kann nT als Konstante aufgefaßt, d.h. $\text{var } nT$ vernachlässigt, werden. Dann gilt

$$\text{var } C_u = (nT)^2 \cdot \text{var } n\Delta t \quad (2.9.3)$$

Wären die nT Messungen voneinander unabhängig, so wäre

$$\text{var } \overline{n\Delta t} = \frac{\text{var } n\Delta t}{nT} \quad (2.9.4)$$

wobei die Gleichung 2.9.2 Anwendung fände.

Nun gibt es aber Impulse, die so dicht aufeinanderfolgen, daß derselbe Impuls mehrmals zum Signal gezählt wird. Dies macht Gl.2.9.4 nicht anwendbar. Der hinter dieser Behauptung stehende Gedanke läßt sich so formulieren: Der Fehler eines Zählergebnisses wird nicht dadurch verkleinert, daß man denselben Zähler mehrmals abliest.

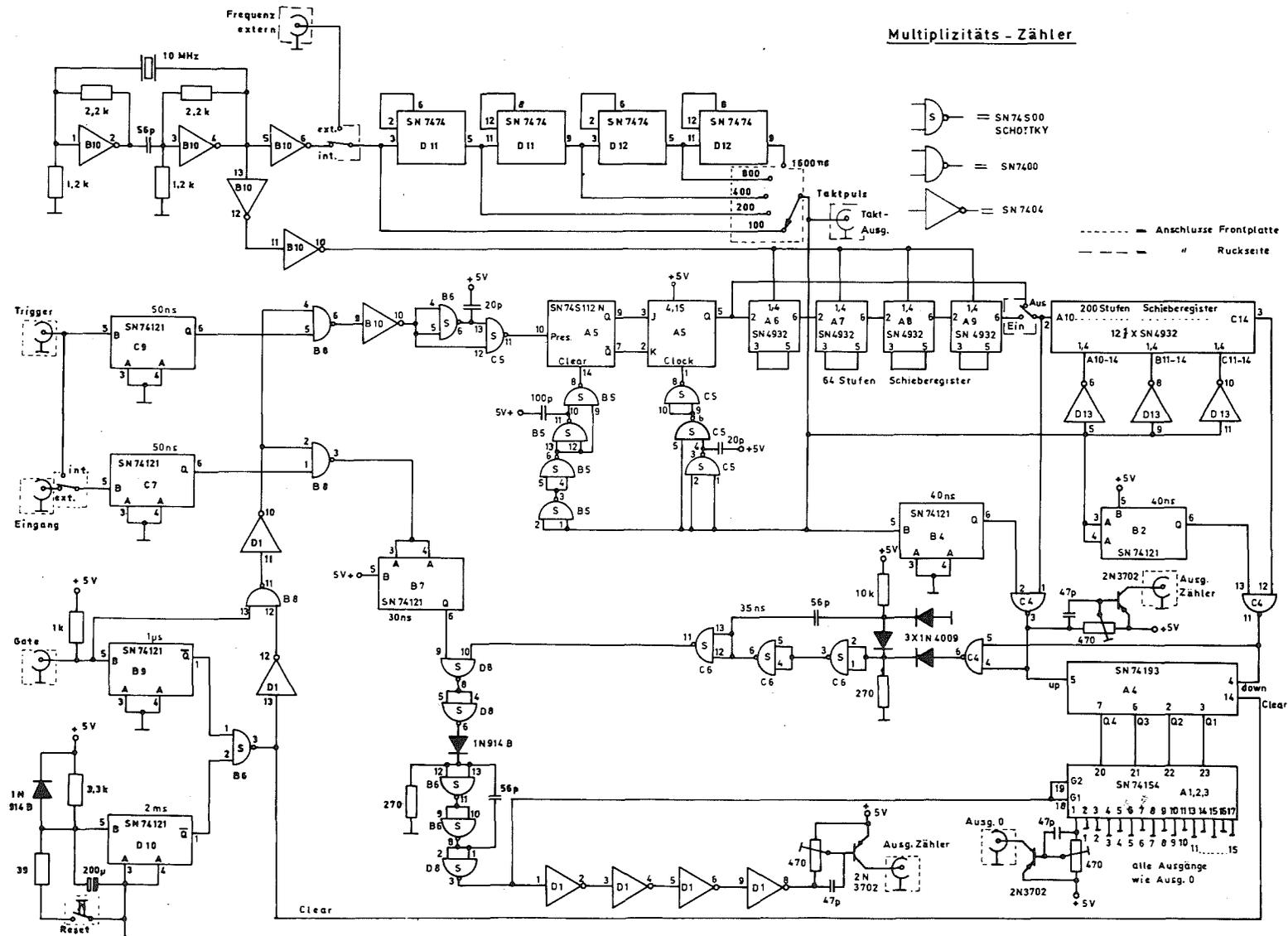


Abb.2.9/2 Schaltung zur Messung der Zahl der Impulse, die sich in einem Schieberegister von 200 Stufen befinden ($n\Delta t$)

Zur Demonstration des Effekts wurde eine Messung durchgeführt, bei der die "Triggerimpulse" mit konstanter Frequenz eingegeben werden und die "Zählimpulse" von einer Cf-Quelle in einem moderierten Detektor kommen. Die Schaltung nach Abb.2.9/2 erlaubt es, das Einzelsignal $n\Delta t$ zu messen und daraus $\overline{n\Delta t}$ zu bestimmen. $\overline{n\Delta t}$ und $\text{var } \overline{n\Delta t}$ kann ebenso angegeben werden, wenn man über mehrere Meßzeiten mittelt. Abb.2.9/3 zeigt das Meßergebnis. Dabei ist das Verhältnis der Varianz des aus M Messungen bestimmten Mittelwertes $\frac{\text{var } \overline{n\Delta t}^{(M)}}{\overline{n\Delta t}}$ zu dem der "naiven" Vorstellung entsprechenden Wert $\frac{\text{var } n\Delta t}{M}$ als Funktion der Trigger-(Meß-)Frequenz $\frac{1}{\tau}$ aufgetragen. Letztere ist in der diesem Problem angepaßten Einheit (Zahl der Trigger pro Δt) angegeben. Für $z > 1$ werden Impulse mehrfach gezählt. Für $z < 1$ gibt es keine doppelt gezählten Impulse, es werden aber Neutronen nachgewiesen, die mit schon

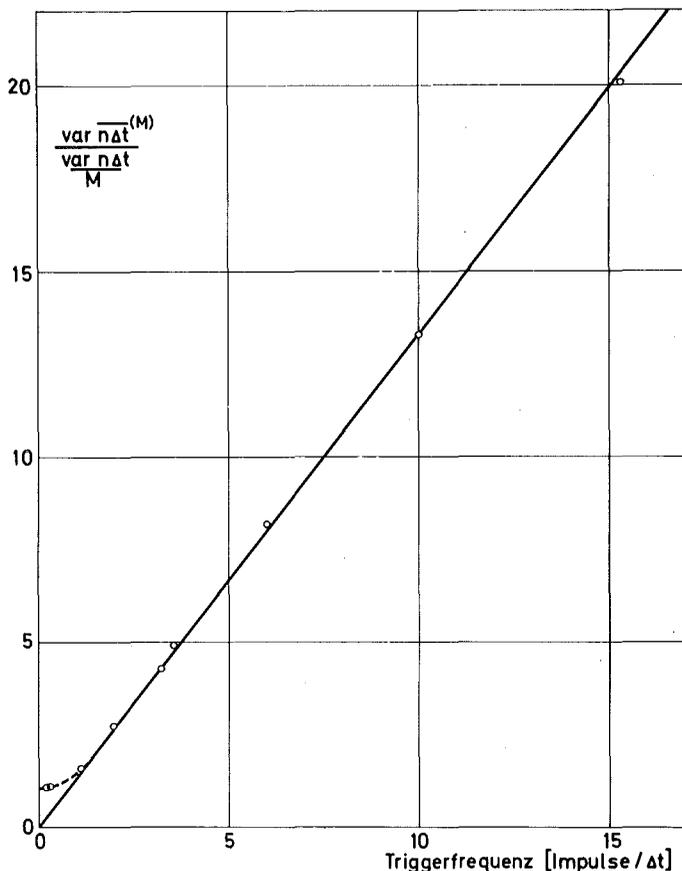


Abb.2.9/3 Varianz der über M Messungen gemittelten Zahl von Impulsen in Δt als Funktion der Frequenz, mit der die Messungen wiederholt werden.

vorher gezählten korreliert sind. Deshalb sind auch hier die Messungen nicht unabhängig. Umfangreiche Rechnungen, deren Darstellung hier zu weit führte, liefern für einen Detektor mit Grundmode $e^{-\alpha t}$ das Ergebnis

$$\text{var } \overline{n\Delta t}^{(M)} = \frac{\text{var } n\Delta t}{M} + \frac{s}{\alpha} \cdot \frac{D}{M}$$

$$\text{mit } D = \epsilon^2 \sqrt{v(v-1)} (1-e^{-\alpha\Delta t})^2 \frac{e^{-\alpha(\tau-\Delta t)}}{1-e^{-\alpha\tau}} \quad \text{für } z = \frac{\Delta t}{\tau} \leq 1$$

$$D = \epsilon \sqrt{v} \Delta t (z-1) + \epsilon^2 \sqrt{v(v-1)} \left[(z-1)\Delta t + (1-e^{-\alpha\Delta t}) \right] \quad \text{für } z=2,3,\dots$$

Dies entspricht der Form der gemessenen Kurve in 2.9/3.

Die Arbeiten zur Analyse der Fehler bei den Koinzidenzmessungen werden fortgesetzt. Schon jetzt kann gesagt werden, daß die Fehler vor allem bei höheren Empfindlichkeiten deutlich größer sind als die Anwendung der Poisson-Statistik voraussagt.

2.9.3 Schnellspaltung

Im letzten Jahresbericht /S. 68 in Ref.2/ wurde gezeigt, daß die Theorie eine Erhöhung der Koinzidenzrate durch Schnellspaltung in den Proben voraussagt, die prozentual größer ist als der Effekt auf die einfache Zählrate. Da die Multiplikation in einer Probe von deren Abmessungen abhängt, wurden bei der experimentellen Überprüfung Stäbe gleicher Länge und Plutoniumzusammensetzung mit verschiedenem Durchmesser verwendet. Die Röhrchen von 7 cm Länge waren mit UO_2/PuO_2 -Kügelchen gefüllt, die bis zu einigen hundert μm Durchmesser hatten.*⁾ Das Spaltmaterial enthielt etwa 20% PuO_2 in Natururanoxid. Der ^{240}Pu -Anteil betrug etwa 16,4%, der ^{238}Pu -Anteil etwa 0,37%.

*⁾ Die Proben wurden dankenswerterweise vom Institut für Transurane (Euratom), Karlsruhe, angefertigt.

Um von der Genauigkeit der Plutoniumgewichte unabhängig zu sein und um den größeren Effekt auf die Koinzidenzrate zu demonstrieren, wird als Ergebnis in Abb.2.9/4 das Verhältnis der Koinzidenzrate zur Zählrate als Funktion des Radius aufgetragen. Die Signale der Proben mit 3 mm und 10 mm Durchmesser unterscheiden sich um etwa 5%.

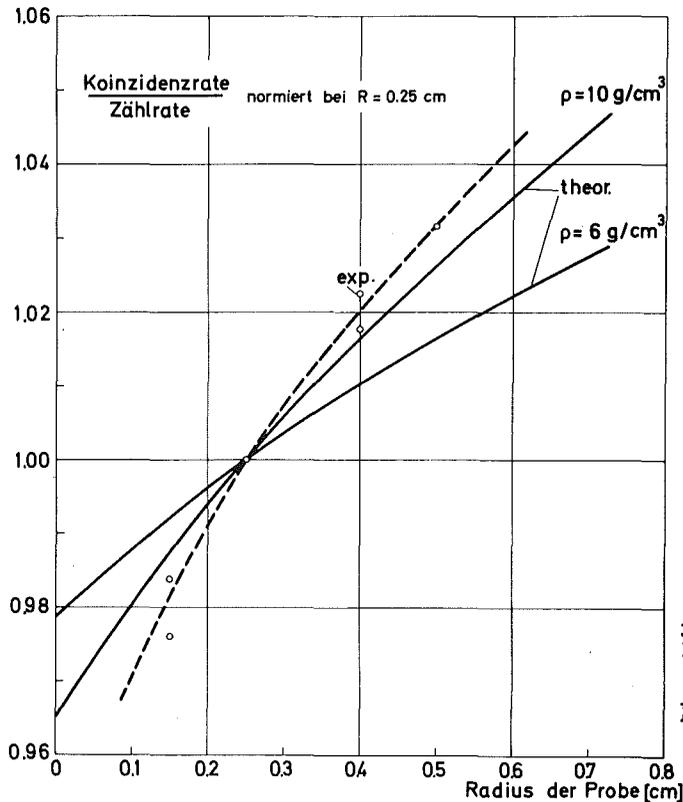


Abb.2.9/4 Normiertes Verhältnis der Koinzidenzrate zur Zählrate in Abhängigkeit vom Probenradius

Um die Effekte für Stäbe allgemein abschätzen zu können, wurde folgendes Modell in Rechnungen verwendet. Die Stäbe werden als Mischung aus ^{238}U - und ^{239}Pu -Oxid angesehen. Mit mehr Aufwand könnten natürlich auch alle Isotope mitgenommen werden. Die Spontanspaltungen werden als über das Volumen gleichmäßig verteilte Quelle gerechnet. In einem Eingruppenbild werden die Einfang- und Spaltquerschnitte sowie die $\bar{\nu}$ -Werte für das Spaltspektrum ermittelt. Streuung wird nicht berücksichtigt, die inelastische Streuung kann jedoch zum Einfangquerschnitt gerechnet werden, da sie Neutronen aus dem für ^{238}U -Spaltung wichtigen Spektralge-

biet entfernt. Durch eine numerische Integration über die von den Neutronen im Stab zurückgelegten Wege werden die Absorption und die Spaltraten für die verschiedenen Isotope berechnet. Die Absorption hat einen Einfluß auf die Nachweiswahrscheinlichkeit. Der Effekt ist jedoch kleiner als der der Schnellspaltung, der aus den genannten Daten nach dem Modell berechnet wird. Für die 7 cm langen Proben sind zwei Ergebnisse in Abb.2.9/4 mit dem Experiment verglichen, wobei Empfindlichkeit und andere Konstanten durch Normierung ausgeklammert werden. Die experimentellen Ergebnisse sind stärker vom Radius abhängig als es das Modell voraussagt. Dies gilt sowohl für die Rechnungen mit der Schmierdichte 6 g/cm^3 als auch für die mit der maximalen Dichte 10 g/cm^3 . Modellrechnungen für Brennstofftabletten von 1 cm Durchmesser und 1 cm Höhe liefern die in Abb.2.9/5 dargestellten Ergebnisse für die Abhängigkeit von der ^{239}Pu -Konzentration. Während die Änderung der Neutronenzählrate unter 1% bleibt, steigt die spezifische Koinzidenzrate um über 4%. Das bedeutet, daß z.B. in Abfallmessungen ein systematischer Fehler entsteht, wenn Proben mit Tabletten im Vergleich zu Standards gemessen werden, die PuO_2 -Pulver enthalten und weniger oder keine Schnellspaltung zeigen.

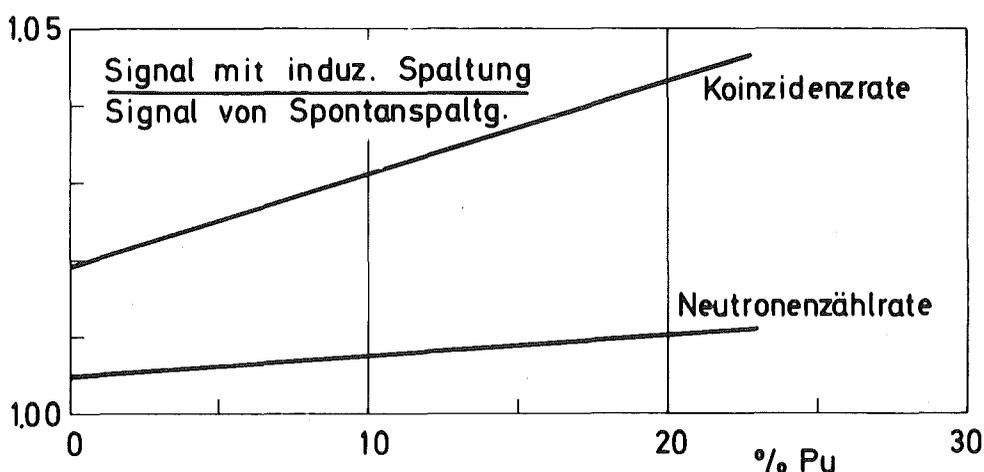


Abb.2.9/5 Gerechneter Einfluß der Schnellspaltung auf Koinzidenz- und Zählrate in Abhängigkeit von der Pu-Konzentration

2.9.4 Multiplikation thermischer Neutronen

Bei der Messung von Plutonium in moderierendem Abfall ist es prinzipiell unmöglich, durch thermische Neutronen induzierte Spaltungen zu verhindern. Man kann ja nicht wie bei Stabmessungen die eigentliche Probe mit Cd umgeben. Faßt man Abfallbehälter und Detektor zu einem System zusammen, in dem das Abklingen eines eingeschossenen Neutronenimpulses durch eine Exponentialfunktion beschrieben werden kann,

$$\phi(t) = \phi_0 e^{-\alpha_0 t},$$

so findet man nach umfangreichen Rechnungen das folgende Ergebnis. Statt des Koinzidenzsignals ohne Multiplikation

$$C_0 = \epsilon^2 \cdot s \cdot \frac{\overline{v(v-1)}}{2} [1 - e^{-\alpha_0 \Delta t}] \quad (s = \text{Spaltrate})$$

ergibt sich das korrelierte Koinzidenzsignal in der Form

$$C = \epsilon^2 \cdot s \cdot \frac{\overline{v(v-1)}}{2} (1 - e^{-\alpha \Delta t}) + \epsilon^2 \cdot s \cdot P_f \cdot (1 - e^{-\alpha \Delta t}) \cdot \left(\overline{\overline{v(v-1)}} + \overline{\overline{v(v-1)}} \right),$$

wenn man Glieder mit höheren Potenzen von P_f vernachlässigt. P_f ist so definiert, daß $P_f \alpha_0 dt$ die Wahrscheinlichkeit für ein Neutron ist, in der Zeit dt eine Spaltung zu induzieren. Weiterhin ist $\alpha = \alpha_0 (1 - P_f \overline{\overline{v}})$. Die doppelten Mittelungsstriche beziehen sich auf die induzierte, die einfachen auf die spontane Spaltung. Die Näherung bedeutet, daß die Multiplikation in der Probe so klein ist, daß nur induzierte Neutronen der ersten Generation betrachtet werden müssen ($k_{\text{eff}} = P_f \cdot \overline{\overline{v}}$). Verwendet man für eine Abschätzung $\frac{\overline{v(v-1)}}{\overline{v}^2} = 0,8$ /19/ und setzt $\alpha \approx \alpha_0$, so folgt

$$\frac{C}{C_0} \approx 1 + \frac{P_f \left(\overline{\overline{v(v-1)}} + \overline{\overline{v(v-1)}} \right)}{\frac{\overline{v(v-1)}}{2}} = 1 + P_f \frac{\overline{\overline{v(v+1)}}}{\overline{v}} = 1 + \overline{\overline{v}} P_f \frac{\overline{\overline{v(v+1)}}}{\overline{v}^2}$$

Für ^{240}Pu ist $\bar{\nu}_{\text{spontan}} = 2,15$, für ^{239}Pu und thermische Spaltung ist $\bar{\nu}_{\text{therm.}} = 2,88$ /20/. Betrachtet man nur induzierte Spaltungen in ^{239}Pu , so erhält man

$$\frac{C}{C_0} = 1 + P_f \cdot 6,75 = 1 + P_f \cdot \bar{\nu} \cdot 3,15$$

Das bedeutet, daß sich das Koinzidenzsignal um den Faktor 3,15 stärker ändert als die einfache Neutronenemission aus der Probe.

2.9.5 Abfallmeßgerät

Koinzidenzmessungen mit moderiertem Detektor werden oft zur Bestimmung von Plutonium in Abfall verwendet. Um dabei auftretende spezielle Probleme zu untersuchen, wurde eine Anlage gebaut, die in der Literatur als "neutron well counter" bekannt ist (z.B. /21/) (Abb.2.9/6a). Ein Hohlzylinder aus Paraffin, in den 16 BF_3 -Zählrohre eingegossen sind, kann Proben bis zu 14 cm Durchmesser aufnehmen. Ihre Höhe ist durch die Zählrohrlänge von 50 cm beschränkt. Da Untersuchungen mit rotierender Probe vorgesehen sind, wurde ein Drehteller eingebaut. In diesem Zusammenhang mußte die Koinzidenzeinheit so modifiziert werden, daß die Meßzeit durch volle Umdrehungen des Drehtellers vorgegeben werden kann. Die elektronische Ausrüstung des Geräts ist wie bei der schon früher beschriebenen Anordnung /1,2/ so ausgelegt, daß jedes Zählrohr einen eigenen Verstärker-Diskriminatorkanal besitzt (Abb.2.9/6b). Dies ist bei den geringen Plutoniummengen in Abfall zwar nicht notwendig, erhöht aber die Flexibilität im Experiment. Mit einer kleinen ^{252}Cf -Quelle wurde für 2-l-Dosen die Abhängigkeit der Zähl- und Koinzidenzrate von der Dichte des wasserstoffhaltigen Füllmaterials gemessen. Diese wurde durch verschiedene Packungen von Zellstoff, Tränken desselben mit Wasser und Füllen mit Paraffin variiert. In Abb.2.9/7 wird das Ergebnis der Messung

gezeigt, und zwar für eine zentrale Quelle. Der Unterschied der Koinzidenzraten für zentrale und periphere Position der Quelle in der Dose beträgt zwischen 5% und 10% für verschiedene Versuchsbedingungen.

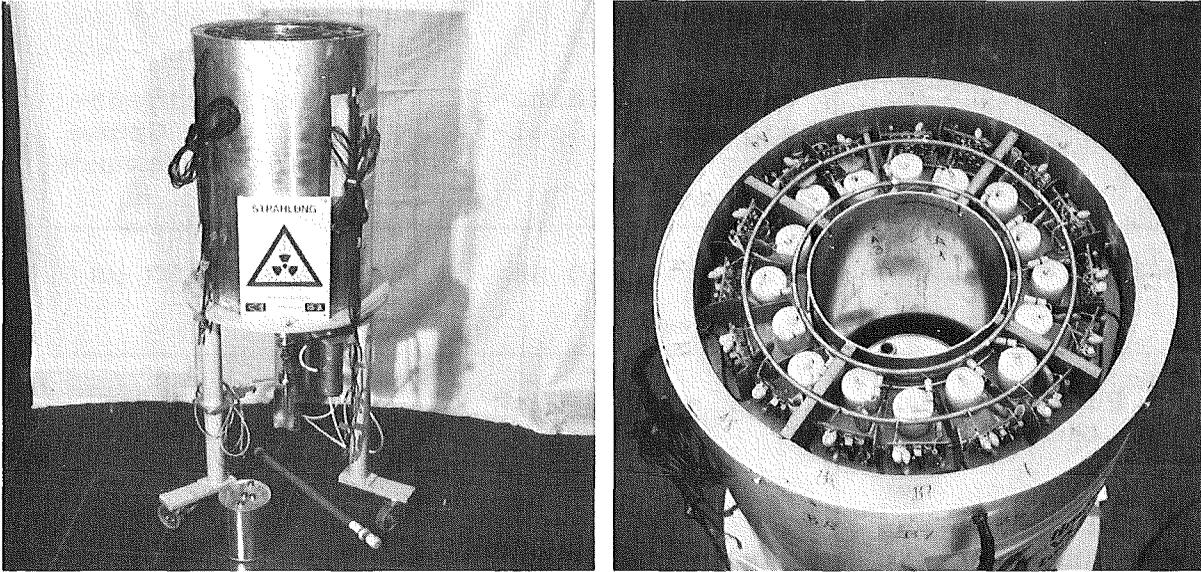


Abb. 2.9/6a

2.9/6b

Abfallmeßgerät (ohne Deckel) in Seitenansicht und Aufsicht

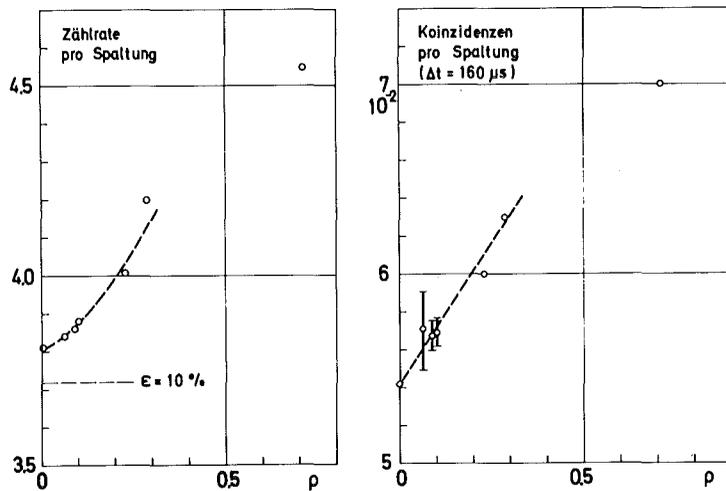


Abb. 2.9/7 Abhängigkeit der Koinzidenz- und Zählrate von der Moderator-dichte (Meßwerte für ^{252}Cf)

In der folgenden Tabelle sind zwei der Ergebnisse auf ^{240}Pu umgerechnet. Dabei wurde $\frac{\sqrt{v(v-1)}Cf}{2} / \frac{\sqrt{v(v-1)}^{240}\text{Pu}}{2} = 5,68/1,87 = 3,04$ verwendet und die Spontanspaltrate von ^{240}Pu mit $417 \text{ s}^{-1} \text{ g}^{-1}$ angesetzt.

Zykluslänge Probe	Nettokoinzidenz- signal pro Spal- tung		Nettokoinzidenz- signal pro Gramm ^{240}Pu und Sekunde	
	80 μs	160 μs	80 μs	160 μs
^{240}Pu im Zentrum der leeren Dose	$1,3 \cdot 10^{-2}$	$1,8 \cdot 10^{-2}$	5,6	7,4
^{240}Pu im Zentrum der mit Paraffin gefüllten Dose	$1,9 \cdot 10^{-2}$	$2,3 \cdot 10^{-2}$	7,8	9,6

Als zu untersuchendes Thema ist vor allem das Problem der Ortsabhängigkeit vorgesehen. Da die Effekte im vorliegenden Fall (erfreulicherweise im Hinblick auf Routinemessungen) klein sind, werden jedoch Schwierigkeiten bei deren grundsätzlicher Untersuchung erwartet.

2.10 Untersuchungen zur Spezifikation einer Meßanlage für Spaltstoff in LWR-Brennelementen mit einer Sb-Be-Quelle

K. Baumung, K. Böhnel

Ziel der Experimente mit der Sb-Be-Quelle ist die Erstellung von Spezifikationen für eine Anlage zur Bestimmung des Spaltstoffgehalts in ganzen Brennelementen. Als besonders schwierig erweisen sich folgende zwei Punkte: die Ortsabhängigkeit der Nachweiswahrscheinlichkeit für Spaltstoff sowie die Reproduzierbarkeit.

2.10.1 Minimalisierung der Ortsabhängigkeit

Die Verwendung von Neutronenreflektoren erhöht die Ausbeute einer Sb-Be-Quelle um über 100%. Mit der in /2/ beschriebenen Konfiguration des Reflektors ist jedoch eine starke radiale Abhängigkeit der Nachweiswahrscheinlichkeit des Spaltstoffs im Brennelement verbunden. Deshalb wurde die Anwendbarkeit

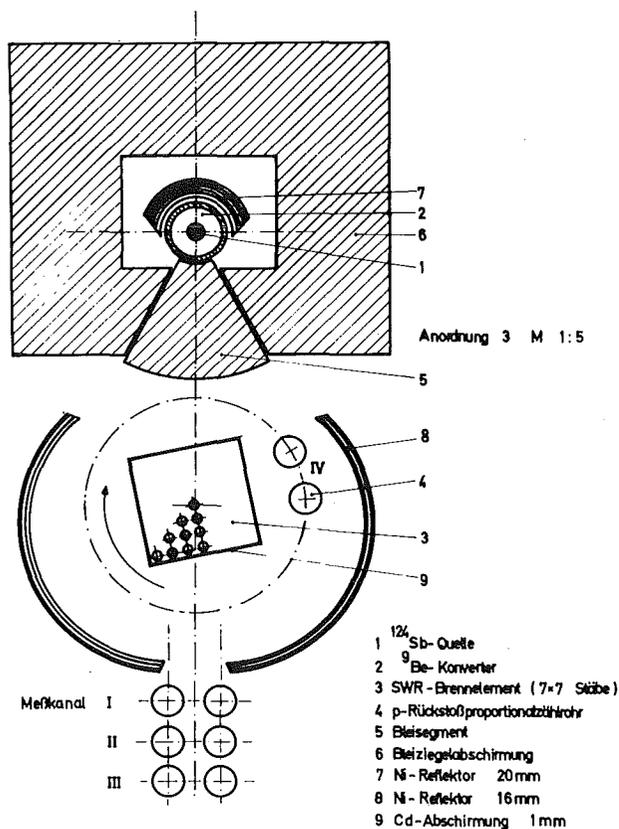


Abb. 2.10/1 Versuchsanordnung

der Rotations-Kollimations-Methode mit Hilfe zweier Reflektoren, die im Quellstrahlungsschatten einen Spalt zur Aufnahme von Detektoren freilassen (vgl. Abb.2.10/1), geprüft. In dieser Geometrie bleibt der Reflektorgewinn bezüglich der Erhöhung der Spaltrate erhalten, die Erhöhung der Zählrate durch Reflexion von Spaltneutronen (über 20%) entfällt. Durch die weitgehende Abschirmung der Zählrohre im Spalt gegen die Quellstrahlung verbessert sich auch das Signal-zu-Untergrundverhältnis gegenüber den Zählrohren innerhalb des Reflektors.

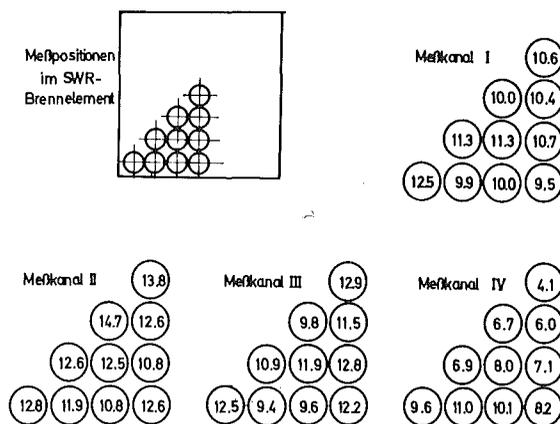


Abb. 2.10/2 Relative Erhöhung der Zählrate durch Einsetzen eines hochangereicherten Brennstabs in verschiedene Gitterpositionen (%)

In Abb.2.10/2 sind die relativen Zählratenerhöhungen, die man durch Einsetzen eines hoch angereicherten Brennstabs in die entsprechenden Gitterpositionen erhält, für die verschiedenen Zählrohrgruppen dargestellt. Es zeigt sich, daß für die Zählrohre hinter dem Spalt nahezu keine Ortsabhängigkeit, bzw. eine leichte Bevorzugung der Brennelementmitte resultiert. Die Detektoren innerhalb des Reflektors dagegen bevorzugen die Randstäbe, wie es sich schon bei den Reflektorstudien ergeben hatte. Diese Bevorzugung der zählrohrnahen Randbereiche des Brennelements geht zum Teil auf die Erhöhung der Empfindlichkeit durch Reflexion der Spaltneutronen zurück. Durch das Fehlen dieses Effekts und durch die Rotations-Kollimation, bei der die Brennelementmitte, wenn auch etwas abgeschirmt, während einer ganzen Umdrehung, die Randbereiche aber im wesentlichen

nur während der Bewegung vor dem Spalt für die Zählrohre sichtbar sind, resultiert ein flacher Verlauf der Nachweiswahrscheinlichkeit über den ganzen Brennelementquerschnitt.

Durch die Abschirmung der seitlichen Teile des Brennelements wird das Signal vom Brennelement relativ zum Signal des zusätzlichen Spaltstoffs reduziert, d.h. die Zählrohre im und hinter dem Spalt (I, II, III) reagieren empfindlicher auf den zusätzlichen Spaltstoff.

Da die Zahl der Zählrohre, die man hinter dem Spalt anordnen kann, begrenzt ist, wird man, wenn kurze Meßzeiten erwünscht sind, auf Zählrohre innerhalb des Reflektors nicht verzichten. Dann läßt sich eine Minimalisierung der Ortsabhängigkeit erreichen, wenn man die Gesamtzählrate Z als Linearkombination der Beiträge z_{ij} des i -ten Gitterplatzes zum j -ten Meßkanal darstellt als

$$Z = \sum_{ij} w_j z_{ij}$$

wobei die Gewichte w_j aus der Bedingung

$$\sum_{i,j} (\sum_j w_j z_{ij} - z)^2 = \min$$

abgeleitet werden (z : mittlere Zählrate pro Stab und Meßkanal). Das Verfahren ist im vorliegenden Fall besonders wirksam, da die Ortsabhängigkeit der z_{ij} für die Zählrohre innerhalb, bzw. außerhalb des Reflektors gegenläufige Tendenzen aufweist:

Es zeigt sich, daß die größte Abweichung der Nachweiswahrscheinlichkeit vom Mittelwert für einen einzelnen Stab (den Eckstab) 10% beträgt. Bezogen auf den gesamten Spaltstoffgehalt des Brennelements bedeutet dies eine Unsicherheit von 0,2%.

2.10.2 Reproduzierbarkeit

Schon bei den ersten Meßreihen an der Sb-Be-Quelle wurde festgestellt, daß die wiederholte Messung einer bestimmten Spaltstoffmenge Abweichungen ergab, die weit außerhalb der statistischen Genauigkeit lagen. Zur Klärung der Ursache dieser Drifteffekte wurden Schwankungen der Diskriminatorschwelle, der Hochspannung sowie Temperatureffekte angenommen. Zur Erfassung der Größen, die möglicherweise die Zählraten beeinflussen, wurde ein 8K-Kleinrechner HP2100A in Verbindung mit einem CAMAC-Übertrahmen und den im Blockschaltbild der Meßelektronik (Abb.2.10/3) angeführten Einschüben verwendet. Im einzelnen wurden folgende Größen laufend registriert:

z_i	Zählraten der vier Meßkanäle
K	Kontrollzählrate für Meßkanal IV (mit stark herabgesetzter Diskriminatorschwelle)
U_D	Diskriminatorschwellen der vier Kanäle
HV	gemeinsame Hochspannung
T_1, T_2	Temperatur des Zählrohrs und des Vorverstärkers vom Meßkanal IV
220 V	Netzspannung
M	Monitorzählrate

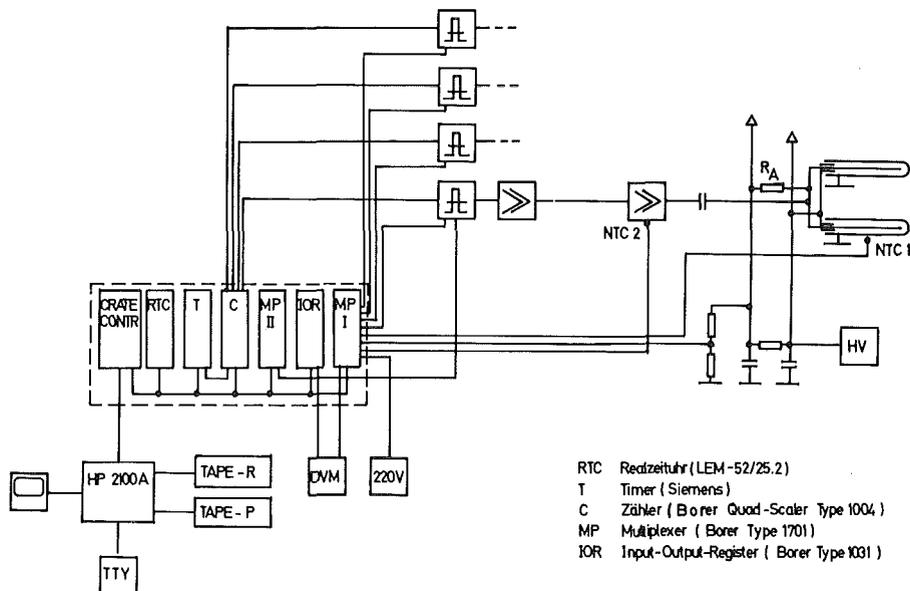


Abb. 2.10/3 Blockschaltbild der Meßelektronik

Für die Steuerung des Timers, der Realzeituhr und des Digitalvoltmeters wurden von H. Massier ASSEMBLER-Untergrundprogramme geschrieben. Die Funktion der einzelnen Moduln sowie des Gesamtsystems wurden auf einem Sichtgerät kontrolliert, das auch zur Datenausgabe verwendet werden kann.

Das Meßprogramm des Rechners wurde in BASIC geschrieben und gestattet die Eingabe der Dauer eines Meßzyklus sowie die Zahl der Meßzyklen. Während eines solchen Meßzyklus wird periodisch alle 20 sec die Messung der Zählraten unterbrochen, um die Analogdaten zu erfassen. Die verschiedenen Meßstellen werden nacheinander über Multiplexer I auf das Digitalvoltmeter geschaltet, im Fall der Temperaturmessungen mit NTC-Widerständen wird jeweils auch der Meßstrom geschaltet. Nach Ablauf eines Meßzyklus (z.B. 100 sec) wird über Multiplexer II für eine wählbare Zeitdauer die Diskriminatorschwelle von Meßkanal IV stark herabgesetzt und die Kontrollzählrate K registriert. Danach werden die verschiedenen Zählraten sowie die Mittelwerte der übrigen Meßgrößen auf Lochstreifen ausgegeben und ein neuer Meßzyklus gestartet. Anfang und Ende der Meßzeit werden mit Datum und Uhrzeit festgehalten.

Bei der Auswertung wurden, um die Drifteffekte über die statistischen Schwankungen der Zählraten herauszuheben, die Kreuzkorrelationsfunktionen verschiedener Größen mit der Temperatur sowie die Autokorrelationsfunktion der Temperatur berechnet. Einige der Funktionen sind in Abb.2.10/4 darge-

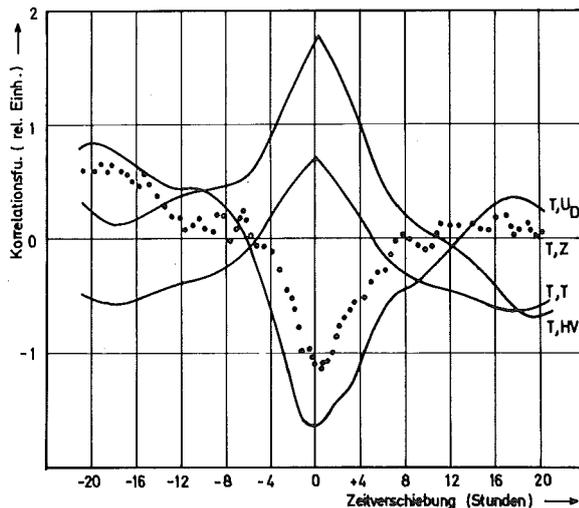


Abb.2.10/4 Temperaturkorrelationsfunktionen

stellt. Man sieht, daß die Meßgrößen den tageszeitlich bedingten Temperaturschwankungen (etwa cos-förmig) mit kleineren oder größeren Phasenverschiebungen folgen, je nachdem, wie gut die einzelnen Geräte gegen die Raumtemperatur isoliert sind. Der Einfluß der Hochspannungs- bzw. Diskriminatorspannungsschwankungen auf die Zählraten wurde durch Aufnahme der Plateaukurven gemessen. Durch die Korrektur der Zählraten bezüglich der Abweichungen dieser beiden Parameter von Sollwerten konnten die temperaturbedingten Schwankungen auf etwa 1/3 reduziert werden. Für die in Abb.2.10/1 angegebene Zählrohrgruppe IV (3 at CH₄, Diskriminatorschwelle 600 keV) und die verwendeten Geräte wurden im einzelnen folgende Einflüsse auf die Zählrate gemessen:

Parameter P	Temperaturgang $\Delta P/P$ pro °C	Einfluß auf die Zählrate $\Delta z/z$ pro °C
Hochspannung	$+2,5 \times 10^{-4}$	+ 0,25%
Diskriminator- schwelle	$- 1 \times 10^{-5}$	+ 0,05%
Verstärkung	$- 7 \times 10^{-4}$	- 0,7%
Zählrohreffekt	-	+ 0,85%

Der Zählrohreffekt beruht auf einer temperaturbedingten selektiven Erhöhung von γ -Impulsen gegenüber Neutronenimpulsen und einer damit verbundenen Änderung des Untergrundes. Es zeigte sich weiter, daß Netzspannungsschwankungen über die Hochspannung Zählratenschwankungen von 1% pro Prozent zur Folge haben. Alle hier angeführten Schwankungen gelten für die Diskriminatorschwelle 600 keV und sind stark von deren Lage im Pulshöhenspektrum abhängig.

Zur Kontrollzählrate (bei stark herabgesetzter Diskriminatorschwelle) tragen im wesentlichen überlagerte Quellneutronenimpulse bei. Die Schwankungen dieses Pile-up sind offensichtlich nicht mit der Temperatur gekoppelt und so stark, daß alle anderen Effekte überdeckt werden: Die Kontrollzählrate ist weder mit der Temperatur noch mit der Nutzzählrate korreliert und kann nicht, wie zunächst erhofft, als einfach zu gewinnender Parameter zur Driftkorrektur herangezogen werden.

Literatur

- 1 G. Bork, ed., Projekt Spaltstoffflußkontrolle - Jahresbericht 1971, KFK 1618 (1972).
- 2 G. Bork, ed., Projekt Spaltstoffflußkontrolle - Jahresbericht 1972, KFK 1852 (1973).
- 3 C. Weitkamp, P. Matussek, H. Ottmar, Nondestructive Nuclear Fuel Assay by Neutron Capture Gamma-Ray Spectrometry, Proceedings of Intern. Symp. on Neutron Capture Gamma-Ray Spectroscopy and Related Topics, September 2-6 1974, Petten, Holland (to be published).
- 4 R.C. Greenwood, C.W. Reich, Phys. Rev. C 4 (1971) 2249.
- 5 Nuclear Data in Science and Technology, Proceedings of the Symposium on Applications of Nuclear Data in Science and Technology, Paris, 12-16 March 1973; IAEA, Wien (1973), 2 Bände.
- 6 C. Weitkamp, A.v. Baeckmann, K. Böhnel, M. Kühle, L. Koch, *ibid.* Bd. I p. 197 (1973).
- 7 C. Weitkamp, Panel of Fission Product Nuclear Data, Bologna, 26-30 November 1973; IAEA, review paper no. 6 (to be published).
- 8 H. Krinninger, E. Ruppert, Atomwirtschaft (1972) 199.
- 9 C. Weitkamp, Einsatz zerstörungsfreier Meßverfahren für die Spaltstoffflußkontrolle in den USA, unveröffentlicher Bericht (1974).
- 10 W. Michaelis, C. Weitkamp, KFK 1480 (1971).
- 11 L. Finsterwalder, persönliche Mitteilung.
- 12 A. Hall, persönliche Mitteilung.
- 13 W. Krappel, Atomenergie 23 (1974) 23.
- 14 R. Eberle et al., Rechnergesteuerte 14 MeV-Neutronengenerator-Anordnung für die Spaltstoff-Flußkontrolle, Reaktortagung, Hamburg (1972), S. 379-382.
- 15 R. Eberle et al., Fissile Material Assay in High Enriched Fuel Elements Using Delayed Neutron, Intern. Meeting, Ispra (Sept. 20-22, 1971).
- 16 R. Eberle et al., Computerized Nondestr. Neutron Interr. Technique for Safeg. Appl., ANS Winter-Meeting, Washington (1972), ANS Trans. 15 (2), pp. 798-799.
- 17 W. Krappel, Zerstörungsfreie Bestimmung von Brenn- und Brutstoff in kugelförmigen Kernreaktor-Brennelementen mit Hilfe der Gamma-Spektroskopie, Dissertation, Hannover (1974).
- 18 H. Nifenecker, Nucl. Instr. Methods 81 (1970) 45.
- 19 B. C. Diven et al., Phys. Rev. 101 (1956) 1012.
- 20 F. Manero, V.A. Konshin, INDC (NDS) - 34/6 (1972).
- 21 C. V. Strain, NRL Memorandum Report 2127 (1970).

Kapitel 3: DIREKTE VERFAHREN

3.0 Einführung

A.v. Baeckmann

3.1 Serviceleistungen

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

3.2 Entwicklung von Analysenverfahren

3.2.1 Automatisierung der massenspektrometrischen
Isotopenverdünnungsanalyse

A. Cricchio, F. Gérin, L. Koch, M. Wilhelmi

3.2.2 Automatisierung der Uran- und Plutonium-
konzentrationsbestimmung durch Röntgenfluoreszenzanalyse

J. Neuber, R. Braun, A.v. Baeckmann

3.2.3 Versuche zur emissionspektrometrischen Isotopen-
bestimmung in Kernbrennstoffen

E. Mainka, H.-G. Müller, IRCh

3.2.4 Verbesserte Methode zur potentiometrischen Uran-
bestimmung

E. Mainka, W. Coerdts

3. Direkte Verfahren

3.0 Einführung

A. von Baeckmann, IRCh, Kernforschungszentrum Karlsruhe

An der Entwicklung direkter Verfahren zur Spaltstoffflußkontrolle und an der Ausführung von Serviceanalysen für das Projekt Spaltstoffflußkontrolle waren im Berichtszeitraum die Analytische Abteilung des Instituts für Radiochemie der Gesellschaft für Kernforschung (A. von Baeckmann) und die Arbeitsgruppe Isotopenanalyse des Europäischen Instituts für Transurane (L. Koch) beteiligt. Die Aufträge zur Automatisierung des Massenspektrometers (Fa. Varian MAT, Bremen) und zur Erstellung einer automatisierten Schleuse für das Massenspektrometer (Fa. NTG Nuklear Technik, Hailer) wurden soweit abgewickelt, daß die Komponenten nach Karlsruhe gebracht werden konnten. Beide Systeme befinden sich z.Zt. im Aufbau bzw. in der Erprobung und konnten bisher noch nicht abgenommen werden.

Durch den Abschluß eines Zusammenarbeitsvertrages mit der Gesellschaft zur Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen m.b.H (GWK) über den Einsatz der Röntgenfluoreszenzanalyse zur Spaltstoffflußkontrolle und zur Betriebsüberwachung in den nächsten Jahren wurde die Betriebserprobung des im IRCh entwickelten automatischen Systems sichergestellt. Die automatisierte Probenvorbereitung dieses Systems wurde weitgehend fertiggestellt, sodaß der Prototyp 1974 getestet werden kann.

Die Untersuchungen zur simultanen quantitativen Bestimmung von U-235- und Pu-239-Spuren in Abfalllösungen durch γ -spektrometrische Analyse der Spaltedelgase nach Neutronenaktivierung wurden abgeschlossen und in einem KFK-Bericht /2/ beschrieben. Die Methode erlaubt die einzelne oder simultane Bestimmung von Mikrogramm-Mengen U-235 und Pu-239 mit einem Fehler von etwa 5%. Sie ist wegen ihrer Einfachheit, relativ guten Genauigkeit, ihrer Störunanfälligkeit und Schnelligkeit auch zur Bestimmung der beiden Nuklide in hochaktiven Abfalllösungen von

Wiederaufbereitungsanlagen geeignet. Durch die Anwesenheit langlebiger Spaltprodukte wird die Analyse nicht beeinträchtigt.

Mit der Übertragung des Verfahrens zur Bestimmung von Uran in wässrigen Lösungen durch γ -Absorptiometrie /3/ auf die Bestimmung von Uran in Uran-Graphit-Brennstoffen und von Plutonium in Lösungen wurde begonnen.

Die Serviceanalysen betrafen im wesentlichen Ergänzungen zum Analysenkontrolllexperiment IDA-72, die Beteiligung am Safeguards Analytical Laboratory Evaluation (SALE) Program der USAEC sowie Analysen zur Kalibrierung von Tankvolumina.

Dieser Bericht schließt unmittelbar an den Jahresbericht 1972 des Projektes Spaltstoffflußkontrolle /1/ Kapitel 3 an, dessen Gliederung und Numerierung soweit wie möglich beibehalten wurde.

Literatur

- /1/ Projekt Spaltstoffflußkontrolle Jahresbericht 1972, KFK 1852 S.89ff (1973)
Projekt Spaltstoffflußkontrolle Jahresbericht 1971, KFK 1618 S.85ff (1972)
- /2/ Abdul-Hakim Hawa, A. von Baeckmann, KFK 1888 (1974)
- /3/ O. Cristallini, E. Gantner, A. von Baeckmann, KFK 1703 (1972)

3.1 Serviceleistungen

A. von Baeckmann, E. Gantner, E. Mainka, H. Ruf
IRCh, Kernforschungszentrum Karlsruhe

1973 wurden für das Projekt Spaltstoffflußkontrolle von der Analytischen Abteilung des IRCh die folgenden Serviceanalysen durchgeführt:

- 4 Aktivierungsanalysen
- 75 massenspektrometrische U- bzw. Pu-Isotopenanalysen
- 30 α -spektrometrische Pu-238-Bestimmungen
- 138 Bestimmungen von U- bzw. Pu-Konzentrationen durch Röntgenfluoreszenzanalyse
- 81 naßchemische Plutoniumbestimmungen
- 56 naßchemische Uranbestimmungen
- 5 naßchemische Zinkbestimmungen

Die massenspektrometrischen und α -spektrometrischen Isotopenbestimmungen sowie die U- und Pu-Konzentrationsbestimmungen durch Röntgenfluoreszenzanalyse bzw. durch Redoxtitration erfolgten hauptsächlich im Rahmen des SALE-Programmes der USAEC und für das IDA 72-Experiment. Die meisten der benutzten Analysenverfahren sind im Jahresbericht 1970 des Projektes Spaltstoffflußkontrolle (KFK 1429) ausführlich beschrieben worden.

3.2 Entwicklung von Analysenverfahren

3.2.1 Automatisierung der massenspektrometrischen Isotopenverdünnungsanalyse /1,2,3/

A. Criccio, F. Gérin, L. Koch, Europäisches Institut für Transurane
M. Wilhelmi, IRCh, Kernforschungszentrum Karlsruhe

3.2.1.1 Das automatisch arbeitende Hochvakuumschleusensystem /1,3/

Von der Herstellerfirma NTG mußten im Berichtszeitraum weitere Änderungen an der Anlage vorgenommen werden:

Die Turbomolekularpumpen wurden gegen solche größerer Pumpleistung ausgetauscht. Alle Öldrehdurchführungen wurden durch Magnetdrehdurchführungen ersetzt. Das Fördersystem mußte modifiziert und die Toleranzen der Führungsbahnen erweitert werden. Die zweiteilig geplanten Probenträger mußten durch einen Schweißpunkt verbunden und dadurch bedingt die Kassetten verändert werden. Zur Verbesserung des Vakuums in der Meßkammer wurde eine Ionengetterpumpe zusätzlich angeflanscht. Die Widerstände der elektrischen Leitung erwiesen sich als zu groß, sodaß Leitungen mit größeren Querschnitten eingebaut werden mußten.

In der zweiten Jahreshälfte wurden Testmessungen zur Vorabnahme der Anlage beim Hersteller durchgeführt. Das geforderte Vakuum konnte wegen ungünstiger Bedingungen in der Fabrikationshalle nicht erreicht werden. Deshalb wurde die Anlage Ende des Jahres nach Karlsruhe ausgeliefert. Unter Mitwirkung von NTG-Firmenpersonal wurde die Anlage hier völlig demontiert, gereinigt, die Einzelteile auf Hochvakuumdichtigkeit geprüft und wieder zusammgebaut. Sobald die Arbeiten abgeschlossen sind, soll die ursprünglich beim Hersteller vorgesehene Abnahme durchgeführt werden.

3.2.1.2 Das automatisch arbeitende Massenspektrometer /1/ S.128-30 /3/ S.91

Im Laufe des Berichtszeitraumes wurde von der Fa. Varian MAT die Softwareentwicklung soweit vorangetrieben, daß Ende des Jahres 1973 Vergleichsmessungen und zur Vorabnahme Messungen mit Uranproben durchgeführt werden konnten. Die Anlage wurde daraufhin an unser Labor überführt. Aufstellung und Inbetriebnahme sowie die Entwicklung des Plutonium- und Neodymprogramms soll

entsprechend unserer Systemanalyse im Laufe des Jahres 1974 mit unserer Unterstützung in Karlsruhe erfolgen.

3.2.1.3 Auswerteprogramm der massenspektrometrischen Isotopenverdünnungsanalyse /4/

Die in /3/ S.91-95 beschriebenen Programme wurden auch im Berichtszeitraum weiterhin routinemäßig eingesetzt.

Um die Anwendung der Isotopenkorrelationstechnik zu erleichtern, werden die Daten sofort in die DATENBANK übernommen. Die Programme wurden entsprechend geändert, sodaß jetzt sowohl die historischen, wie auch die neu hinzukommenden Daten in DATENBANK gespeichert und miteinander verglichen werden. Als Folge der Auflösung der früheren TESTBANK und mit dem Ziel der besseren Flexibilität wurde das Programm CORLTEST durch zwei neue Programme ersetzt: CORLPOLY und TAYLOR. -

CORLPOLY wurde zur Erfassung nichtlinearer Korrelationen ausgearbeitet. Es gestattet Daten innerhalb der vorgegebenen Charakteristiken mit beliebig wählbaren Kriterien aus den historischen Daten auszuwählen und zum Vergleich heranzuziehen. Außerdem wird die Funktionsgleichung der Korrelation, berechnet nach der Methode der kleinsten Fehlerquadrate, bis zu Polynomen dritten Grades bestimmt.

TAYLOR erlaubt, die durch CORLPOLY nicht mehr erfaßbaren Korrelationen so anzupassen, daß sie mathematisch beschrieben werden können.

Seit Ostern 1973 werden alle beschriebenen Programme zusammen benutzt. Insbesondere ist auch jetzt der Übergang von der IDABANK zur Berechnung einer kompletten Analyse mit Hilfe des BURNUP-Programmes möglich.

Zusätzlich wurden 2 weitere Programme ausgearbeitet:

1. Anstelle des provisorischen Programmes COWGT wurde ein neues Programm GOWGT zur Dekodierung und Auswertung der Lochstreifen der automatischen Waage geschrieben /4/.
2. Zur Ausschaltung von Fehlerquellen wurde ein Programm zur Dekodierung und Verarbeitung von Lochstreifen, welche aus einem

Flexowriter gewonnen werden (GOINPUT) entwickelt. Dieser Flexowriter wird benutzt, um die spezifischen Parameter der einzelnen Analysen wie z.B. Reaktortyp, Verdünnungsfaktor, Anreicherungsgrad usw. in IDABANK einzubringen.

Um die Benutzung des zentralen Rechners der GfK (IBM/370/186) zu vereinfachen, wurden die Programme so angepaßt, daß sie über das im TU befindliche Terminal in TSO benutzt werden können.

3.2.1.4 Analysenwaage mit automatischer Datenausgabe

Um die Daten von Wägungen im Handschuhkasten besser zu erfassen und zur Personaleinsparung wurde eine Waage mit automatischer Datenausgabe entwickelt.

Das System setzt sich zusammen aus einer nach unseren Angaben modifizierten elektrischen Analysenwaage (Mettler, Typ H20E spezial), mit Steuergerät und Digitalvoltmeter, einem Interface-system Solatron und einem Teletype mit Streifenlocher.

Die Waage hat einen Wiegebereich von 160 Gramm mit einem Auflösungsvermögen von 10 µg. Davon werden die Ziffern vor dem Komma manuell eingestellt, und das Feingewicht durch elektromagnetische Kompensationsmessung ermittelt. Die Meßergebnisse werden über das Steuergerät digitalisiert, vom Digitalvoltmeter erfaßt und angezeigt.

Das Steuergerät signalisiert mittels einer "Off range"- und einer "Error"-Anzeige Fehleinstellungen von mehr als 0,1 Gramm.

Die "Off range"-Lampe erlischt, sobald die manuelle Einstellung im Bereich von $\pm 0,1$ Gramm genau erfolgt ist. Die "Error"-Lampe dagegen leuchtet auf, solange das eingestellte Gewicht größer ist als das Meßobjekt, und erlischt, sobald bei der tropfenweisen Probenzugabe das Sollgewicht erreicht wird. Diese beiden Warnlampen wurden zusätzlich auch auf die Frontplatte der Waage montiert.

Das Interfacesystem, welches mit zwei Basiseinheiten für je fünf Daten ausgestattet ist, wurde so geschaltet, daß die neun erforderlichen Daten, nämlich "plus" oder "minus" sowie acht Ziffern als eine einzige Zahl mittels eines Ausgangstreiber ausgegeben werden können.

Die vom Digitalvoltmeter angezeigten Werte werden über dieses Interface auf Anfrage, d.h. durch Betätigung eines außerhalb der Box befindlichen Fußhebels mit Hilfe des Teletype ausgedruckt und gelocht.

3.2.1.5 Automat zur Trennung von Uran und Plutonium durch Ionenaustauscher /1/ S. 121-123

Der in /1/ im Rahmen der automatischen chemischen Aufbereitung der Proben geplante Apparat zur Abtrennung des Urans und Plutoniums aus der Brennstofflösung konnte fertiggestellt und in den Routine-Analysen-Betrieb übernommen werden.

Eine genaue Beschreibung des "Automaten zur Trennung von Uran und Plutonium aus Spaltprodukten durch Ionenaustauscher" wird in /5/ gegeben. Wie beschrieben müssen für die gleichzeitige Bestimmung der Isotopenzusammensetzung von Uran und Plutonium mit Hilfe der massenspektrometrischen Isotopenverdünnungsanalyse die Konzentrationen des Urans und Plutoniums in der Probe ähnlich groß sein. Das hierzu angewandte Trennverfahren mittels Anionenaustauscher ist äußerst zeitaufwendig. Der Apparat führt die gesamte Trennung automatisch nach einem vorzugebenden Programm durch.

3.2.1.5.1 Aufbau und Wirkungsweise des Automaten

Der Aufbau der Apparatur ist in den Abbildungen 3.2.1.1 bis 3.2.1.3 wiedergegeben.

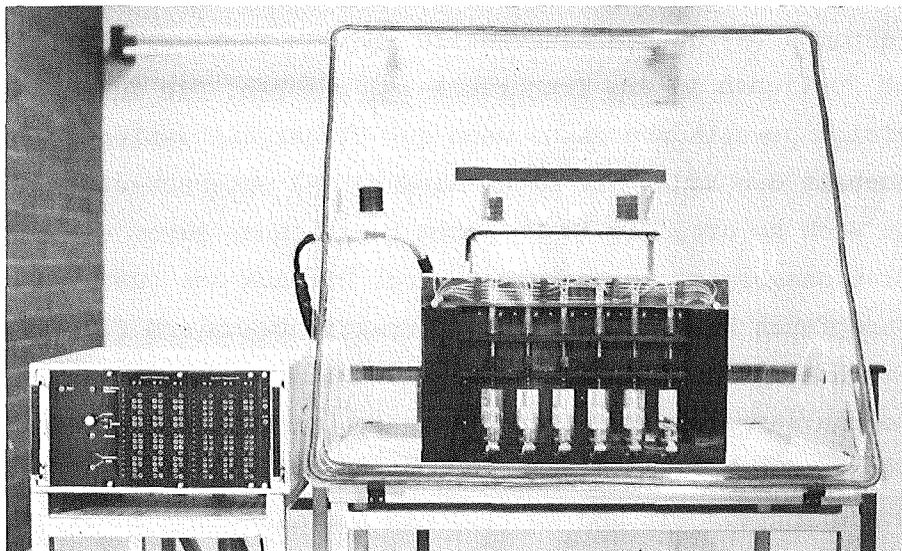


Abb. 3.2.1.1 Automat zur Trennung von Uran und Plutonium am Ionenaustauscher.

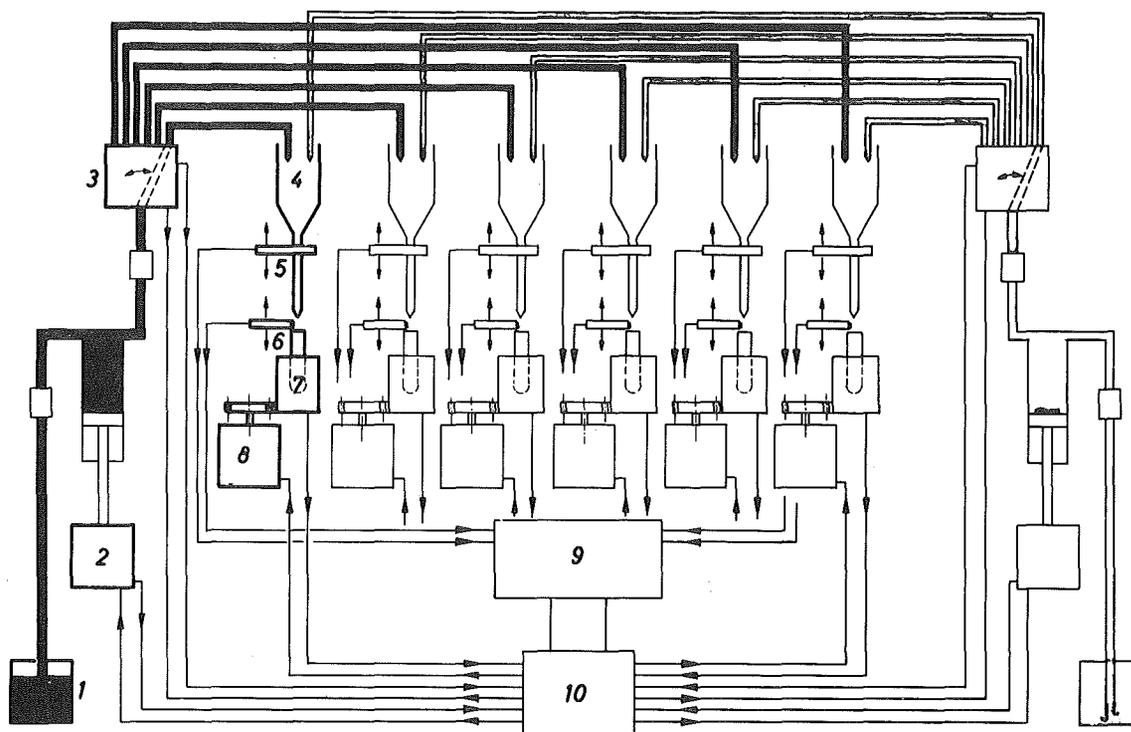


Abb. 3.2.1.2 Schematische Darstellung des Automaten

In sechs Ionenaustauschersäulen können gleichzeitig bis zu sechs unterschiedliche Proben individuell verarbeitet werden. Die Wasch- und danach die Elutionslösung werden aus dem Vorratsgefäß (1) durch eine Dosierpumpe (2) über Einwegventile und ein Sechswegventil (3) in kleinen Portionen in die Trennsäule (4) gegeben. Die Zugabe der Lösung erfolgt jeweils nur dann, wenn der Flüssigkeitsspiegel über dem Austauscherbett der Säule die Lichtschranke (5) unterschreitet und wiederholt sich so oft, wie im Programm vorgesehen, bevor vom Waschen auf den Elutionsvorgang umgeschaltet wird. Die aus der Austauschersäule austropfende Flüssigkeit wird in Fraktionssammlern (7) aufgefangen. Es können von jeder Säule insgesamt bis zu fünf in ihrem Volumen vorprogrammierte Fraktionen getrennt werden. Die Fraktionssammler werden durch einen Antriebsmotor (8) bewegt. In (9) ist die Programmsteuerungseinheit und in (10) die Koordinationseinheit wiedergegeben.

Um die Anlage vor Beginn der Trennung betriebsbereit zu machen, wurde auch "Handbetrieb" vorgesehen.

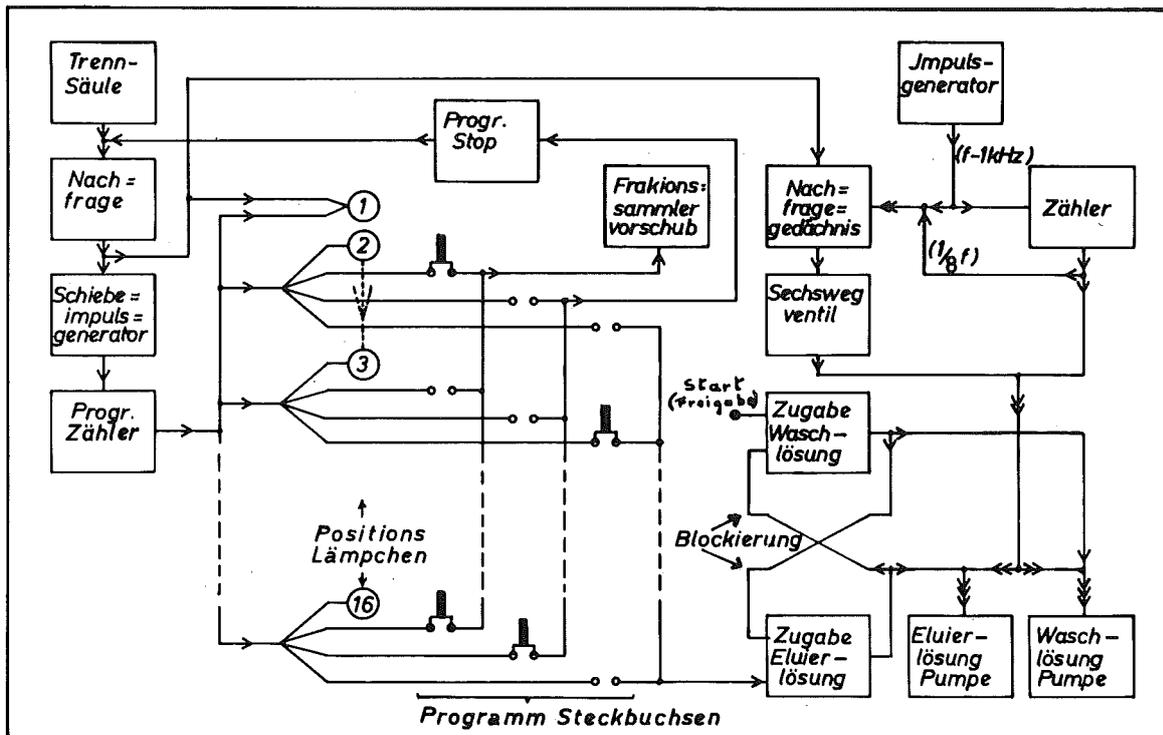


Abb. 3.2.1.3 Blockschaltbild des Automaten

3.2.1.5.2 Elektronische Steuerung und Programmierereinheit

Eine störungsfreie Steuerung wurde durch Verwendung der digitalen Steuerungstechnik erreicht. Es wurden hauptsächlich integrierte Logikbausteine verwendet. Zur Steuerung des Programmablaufes wurde für jede Kolonne eine gedruckte Schaltung (Ka-1) hergestellt, welche mittels "serial in parallel out"-Schieberregister sechzehn Programmpositionen ermöglicht. Auf jeder dieser Positionen kann durch Stecken eines Steckstiftes ein Vorschub der Fraktionssammelgefäße, das Umschalten von Wasch- auf Eluierlösung oder der Programmstop erzielt werden. Alle sechzehn Signalausgänge der Schieberregister sind dazu auf der Frontplatte des Programmeinschubes ausgeführt. Sie werden dort mittels der obengenannten Steckstifte mit den Logikeingängen der Steuerelemente für Vorschub, Umstellung von Wasch- auf Eluierlösung und Programmende verbunden. Damit das so gesteckte Programm abgetastet werden kann, wird bei Betätigung des Druckknopfes "Start" das Niveau "1" in die erste Position des Schieberregisters eingegeben. Jede Flüssigkeitsnachfrage des foto-

elektrischen Niveaumelders erzeugt einen Schiebeimpuls, welcher diese Information "1" auf die nachfolgende Programmposition schiebt. Befindet sich auf der neu erreichten Position ein Programmstecker, so wird die von diesem Stecker vorherbestimmte Funktion ausgeführt. Jede Position wird von einem Lämpchen markiert, das aufleuchtet, wenn der entsprechende Programmpunkt erreicht wird.

Für die Steuerung der Sechswegventile und Pumpen sowie der chronologischen Verarbeitung der eintreffenden Nachfragen wurde eine Koordinationseinheit entwickelt. Sie ist aufgebaut aus zwei gedruckten Schaltungen Ka-2a und Ka-2b. Zwei 8-bit Schieberregister auf Ka-2a, ein s-i/p-o Register als Zähler und ein p-i/s-o Register als Nachfragespeicher sind die hauptsächlich für die Koordination verantwortlichen Bausteine. Ein Impulsgenerator auf Ka-2b erzeugt die benötigten Schiebeimpulse ($f = 1 \text{ kHz}$).

Trifft eine Nachfrage ein, so wird diese im Nachfragespeicher eingelesen sobald die letzte Position des Zählers erreicht wird und bis zum Ausgang des p-i/s-o Registers weitergeschoben. Dieses Ausgangssignal startet beide Sechswegventile und sperrt die Schiebeimpulse für den Zähler und das Nachfragegedächtnis.

Die Stellung des angehaltenen Zählers identifiziert die nachfragende Kolonne. Die zusätzliche Information, ob Wasch- oder Eluierlösung eingefüllt werden soll, wird von der Programmsteuerungskarte abgefragt. Diese zwei Informationen bestimmen somit die Halteposition des Sechswegventiles, die rückgemeldet wird. Hält das Ventil an, wird das Startsignal für die betreffende Dosierpumpe ausgelöst. Die Kolbenpumpe entleert die vorgegebene Lösungsmenge in die anfragende Kolonne und läuft anschließend in die Ausgangsposition zurück. Dabei wird die Schiebeimpulssperre aufgehoben, und die Nachfrage auf der betreffenden Programmkarte gelöscht. Sollte sich dabei herausstellen, daß die Nachfrage nach dem Einfüllvorgang immer noch vorhanden ist, so wird das weitere Nachfüllen dieser Kolonne blockiert. Hiermit wird vermieden, daß z.B. durch eine Störung im fotoelektrischen Niveaumelder die Kolonne ununterbrochen nachgefüllt wird.

3.2.1.5.3 Zur Bedienung der Automatik

Entsprechend dem vorgegebenen Volumen der Wasch- und Eluierlösung, wird die abzugebende Menge an der Dosierpumpe eingestellt. Dabei ist zu berücksichtigen, daß pro Kolonne höchstens fünfzehn Füllungen möglich sind. Die Programmiersteckbuchsen einer ersten vertikalen Reihe (W) bestimmen den Fraktionssammlervorschub. Wird während des Programmablaufs ein in diese Reihe gesteckter Programmierstecker erreicht, so wird, außer der üblichen Kolonnennachfüllung, der Fraktionssammlervorschub vorbewegt. Die jetzt anfallende Fraktion enthält sowohl die gerade stattfindende Nachfüllung, als auch alle bis zum nächsten Vorschub erfolgenden Nachfüllungen. Für jede Kolonne können nicht mehr als vier Vorschübe programmiert werden, d.h. insgesamt fünf Fraktionen gesammelt werden.

Die Programmiersteckbuchsen der zweiten vertikalen Reihe (E) dienen zur Umschaltung von Wasch- auf Eluierlösung und markieren das Programmende. Die Umschaltung ist irreversibel d.h., es wird bis zum Programmende nur noch Eluierlösung eingepumpt.

Beim Erreichen des vom roten Stecker festgelegten Programmendes wird noch einmal Eluierlösung eingespeist und das Nachfragesystem blockiert sich.

3.2.1.6 Automatisches α -Spektrometer

α -Spektren wurden bisher manuell ausgewertet auf der Grundlage eines empirischen Algorithmus, mit dem man zufriedenstellende Ergebnisse erhielt. Der gleiche Algorithmus wurde für das Computerprogramm zur automatischen Auswertung der α -Spektren verwendet /4/. Ein Flowsheet des in Fortran geschriebenen Programmes wird in Abb. 3.2.1.4 gegeben (GOALFA).

Die Meßdaten des α -Spektrometers sowie des 2π -Durchflußzählers mit der Gesamt- α -Aktivität und der Meßzeit werden über einen Lochstreifen ausgegeben und mittels eines Programmes GOALFA auf der IBM 370/168 ausgewertet.

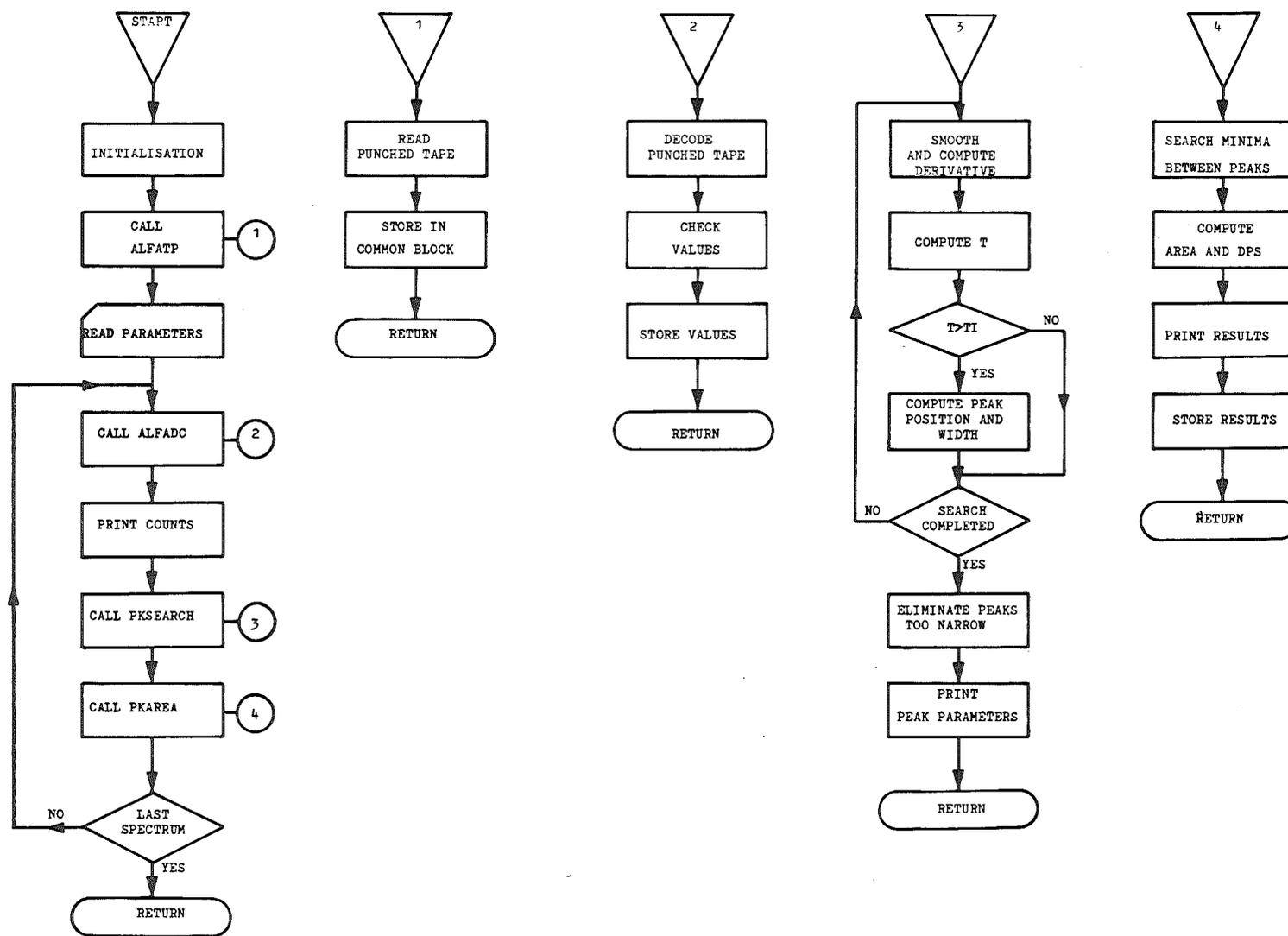


Abb. 3.2.1.4 Flowsheet des Programms GOALFA

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

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

IRCh, Kernforschungszentrum Karlsruhe

3.2.2.1 Einleitung

In vorangegangenen Jahresberichten /1,2/ wurden Sinn und Möglichkeiten der Konzentrationsbestimmung von Uran und Plutonium durch Röntgenfluoreszenzspektrometrie dargelegt und eine mechanisierte Probenvorbereitung beschrieben, welche das automatisierte Meßsystem zu einem vollautomatischen Analysensystem ergänzen soll.

Die Steuerung dieser elektrisch-pneumatisch angetriebenen Mechanik befand sich zu Ende des letzten Berichtsjahres noch im Anfangsstadium der Entwicklung, sodaß nur ein großer Abriss der Steuerungsaufgabe sinnvoll war. Hier soll in diesem Bericht angeknüpft werden.

3.2.2.2 Steuerungsaufgabe

Im neueren technischen Sprachgebrauch werden Geräte zur programmgesteuerten Abwicklung von Aufgaben, die in ihrem Erscheinungsbild manuellen Tätigkeiten sehr ähnlich sehen, oft als sogenannte Handhabungsautomaten gekennzeichnet. Sie führen Greif- und Transportvorgänge programmgesteuert aus und sind mit dem Ziel einer gewissen Anpassungsfähigkeit entwickelt worden. Eine Mechanisierung typischer "Hantierungen" des analytischen Labors führt zwangsläufig in die Nähe dieser modernen Technologie und soll nur mit **einigen** Stichworten nocheinmal verdeutlicht werden:

Pipettieren, Wiegen mit einer Analysenwaage, Dosieren und Mischen wässriger Lösungen (ohne Rührer) und der Wechsel von benutzten Einweg-Gefäßen gegen saubere neue Pipetten und Becher. Daß mit dem gleichen System von Handhabungsorganen zwei etwas unterschiedliche Aufgaben durchzuführen sind, nämlich sowohl Analysen als auch Eichpräparate vorzubereiten, mag die notwendige Flexibilität der Steuerung noch etwas deutlicher machen.

3.2.2.3 Steuerung

Die Steuerung ist in klassischer Relaisstechnik als Schaltfolgesteuerung mit parallel arbeitenden Blöcken ausgeführt. Das Kontaktnetzwerk aus ca. 1600 Kontakten (250 Relais) enthält ca. 300 Dioden in Matrizen zur Programmspeicherung, als Sperrdioden und Gleichrichter für Wechselstromsignale. Es sind 43 Synchron-Getriebemotoren und 12 motorgetriebene Pressluftventile zu steuern. Ein Festwertspeicher (Diodenmatrix mit 744 Spalten und 14 Zeilen) enthält die notwendigen Informationen für ca. 300 Rezepturen der herzustellenden Mischungen; durch Umliegen eines Schalters kann der Informationsgehalt so umcodiert werden, daß 300 weitere Rezepturen möglich sind.

Abbildung 3.2.2.1 zeigt die schematisierten (erlaubten) Wege von leeren und gefüllten Einweg-Behältern im System. Dünne Schraffuren stellen mögliche, aber verbotene Bewegungsbereiche dar. Die Arbeitsbereiche der mechanischen Einheiten sind durch verschiedene Stricharten der erlaubten Wege gegeneinander abgegrenzt. Dünne, strichpunktierte Linien veranschaulichen den Wirkungsbereich der einzelnen, weitgehend autonomen Steuerblöcke. Diese Unterteilung in Blöcke entspricht dem üblichen Bedürfnis, Teile eines Systems getrennt erproben zu können und der Fehlerausbreitung von einem Ort der Steuerung aus Grenzen zu setzen.

Abbildung 3.2.2.2 gibt ein Blockschema wieder.

Ein Steuerungszyklus dauert je nach Aufgabe zwischen 13,5 und 15 min. Jedoch kann bereits vier Minuten vor Ende eines Zyklus der nachfolgende gestartet werden.

3.2.2.4 Ausblick

Mit Ende des Berichtsjahres war die Steuerung weitgehend erstellt und zur Zeit der Abfassung des vorliegenden Berichts waren alle Arbeiten am ganzen System abgeschlossen.

Aufbauend auf den beschriebenen Prototyp wird demnächst mit der Planung einer neuen Anlage begonnen, die gemäß der 1973 abgeschlossenen vertraglichen Vereinbarung mit der Gesellschaft zur Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen m.b.H., Karlsruhe in der WAK installiert werden soll.

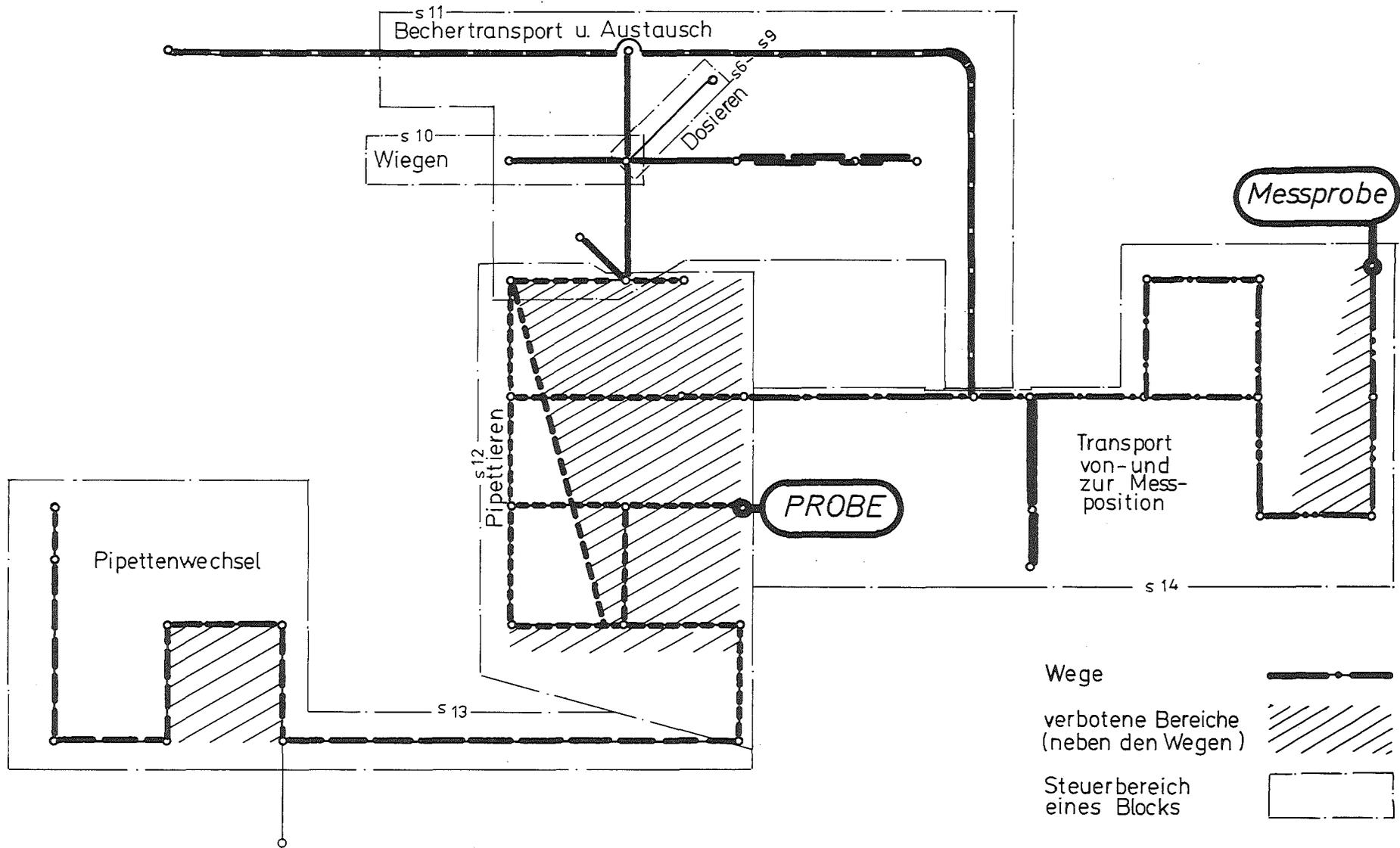


Abb.3.2.2.1 Wege - Netzwerk

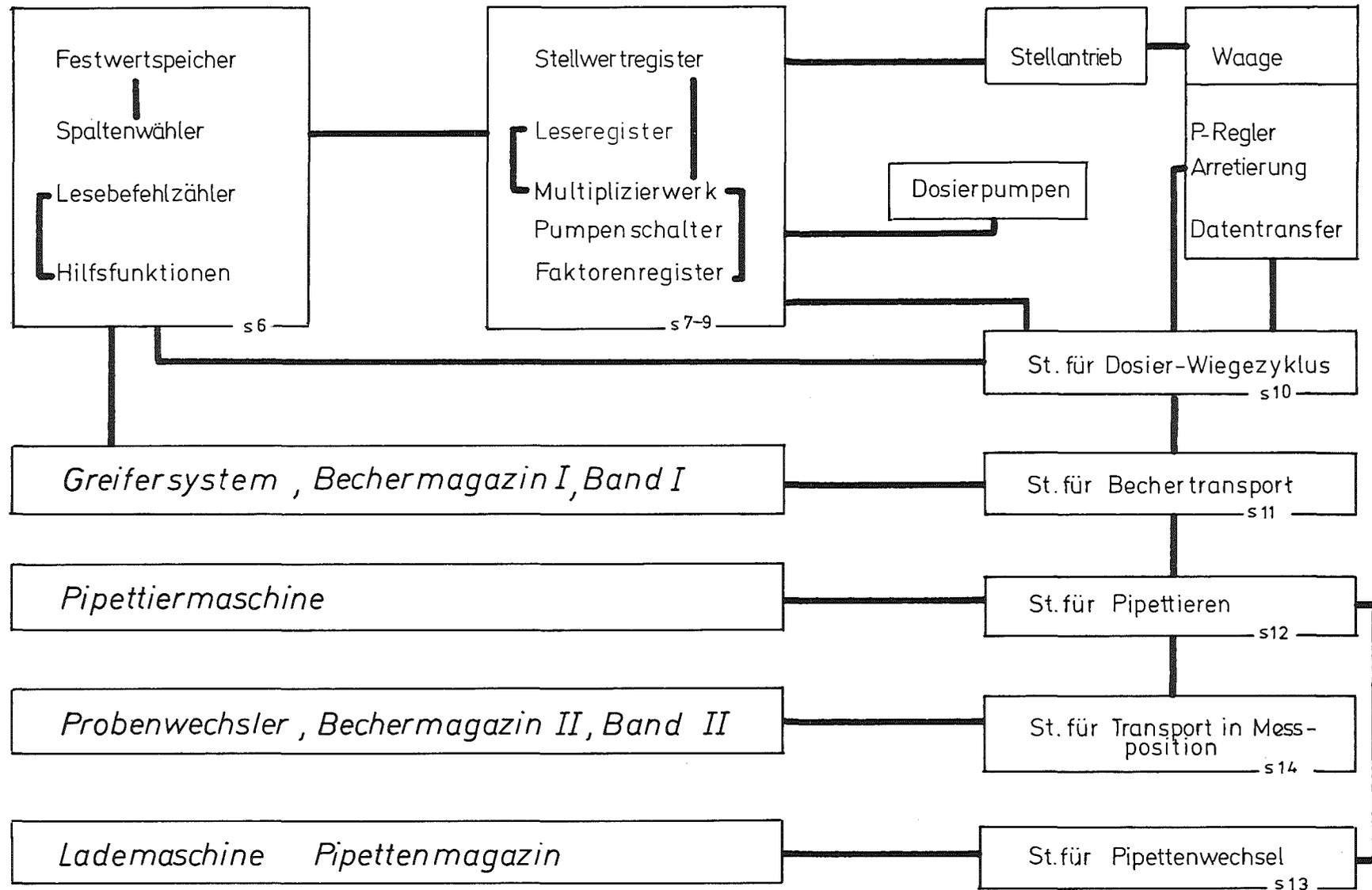


Abb. 3.2.2.2 Blockschema

3.2.3 Versuche zur emissionsspektrometrischen Isotopenbestimmung in Kernbrennstoffen

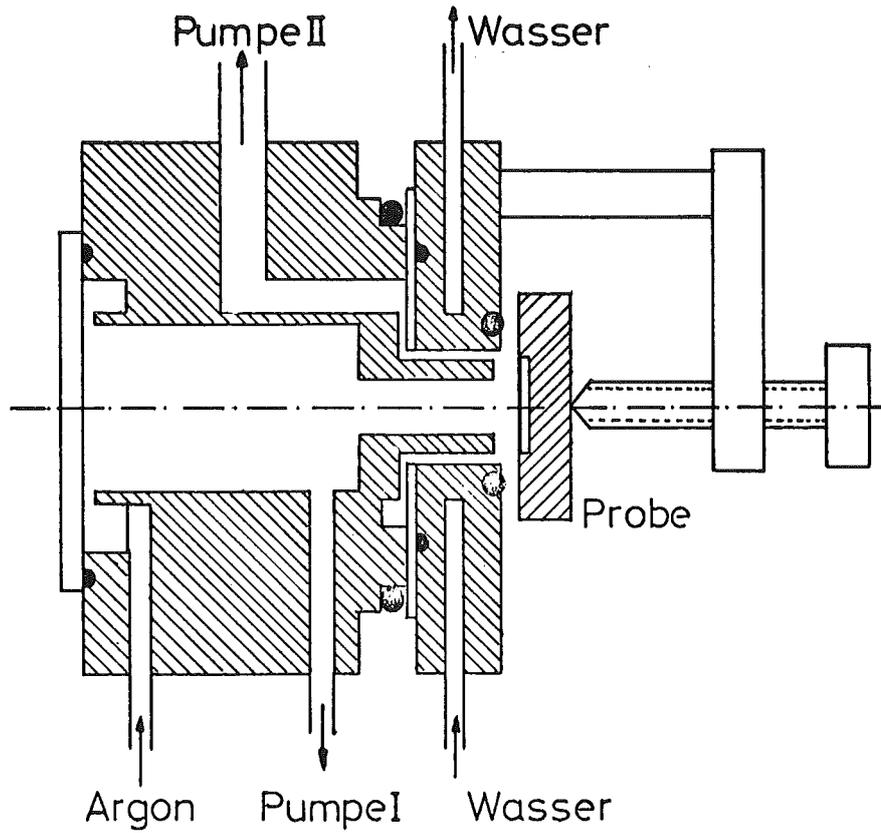
E. Mainka und H.-G. Müller, Institut für Radiochemie
Kernforschungszentrum Karlsruhe

3.2.3.1 Einleitung

Im Jahresbericht 1972 des Projektes Spaltstoffflußkontrolle /1/ wurde vom Einbau der "Grimmschen Lampe" berichtet. Wie eingehende Untersuchungen /2,3/ gezeigt haben, handelt es sich bei dieser Lampe um eine neuartige spektrochemische Lichtquelle, die sich von den üblichen Lichtquellen in mancher Hinsicht unterscheidet. Wegen der relativ leichten Handhabung und der weiten Anpassungsfähigkeit der Arbeitsbedingungen an den Aufgabenbereichen, bot sich die Lampe als Lichtquelle für die emissionsspektroskopische Isotopenanalyse besonders an.

3.2.3.2 Funktionsweise der Lampe

Abb. 3.2.3.1 zeigt die Konstruktion der Lampe. Die als Kathode dienende scheibenförmige Probe wird so nahe an die ringförmig ausgebildete Anode gebracht (0.2 mm), daß die Anode in den Kathodendunkelraum ragt. Es kommt so zu einer behinderten Entladung. Die gesamte Entladung konzentriert sich auf die im Anodenring liegende Probenfläche. Ein leuchtendes, intensives Kathodenglimmlicht bildet sich aus, das von der Anodeninnenwand durch den Anodendunkelraum getrennt ist. Während für die normale Glimmentladung Brennspannungen in der Größenordnung von 100 Volt typisch sind, kann bei der anomalen Entladung die Brennspannung, je nach dem Druck bei dem gearbeitet wird, einige 1000 Volt betragen. Die Kathodenzerstäubung wird so viel intensiver als bei der normalen Entladung. Die Ionen schlagen Atome des Kathodenmaterials heraus. Unter diesen Bedingungen kann eine Glimmlampe besonders gut als Lichtquelle für die Spektralanalyse des Kathodenmaterials benutzt werden. Die Abb. 3.2.3.2 zeigt die Grimmsche Lampe nach Einbau in eine Handschuhbox.



Längsschnitt der Grimm'schen Lampe

Abb. 3.2.3.1: Längsschnitt der Grimmschen Lampe

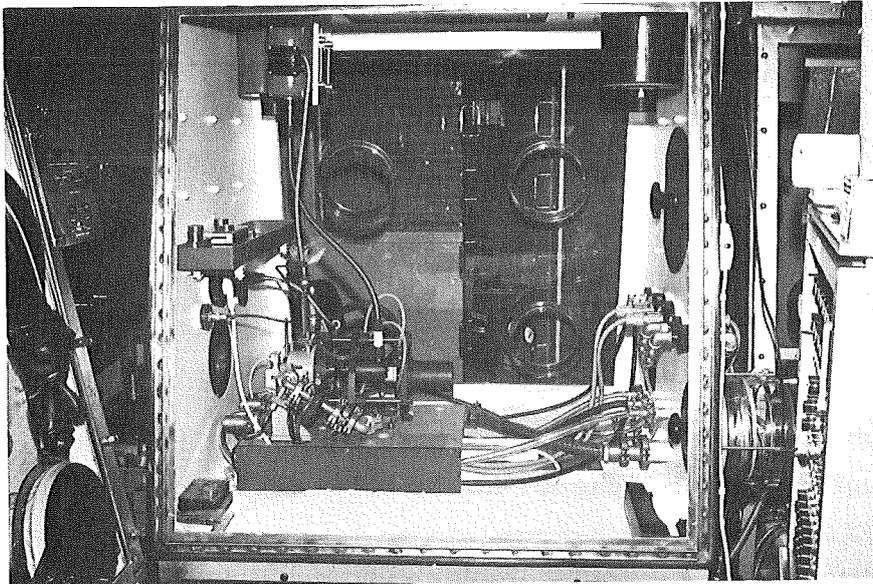


Abb. 3.2.3.2: Grimmsche Lampe nach Einbau in eine Glovebox

Selbstverständlich muß die Kathode oder die als solche fungierende Probe leitfähig sein. Im Fall von oxidischem Kernbrennstoff muß das Material deshalb mit einer leitenden Substanz gemischt werden. Am besten hat sich Kupfer bewährt. Die Teilchengröße der Pulver soll $< 50 \mu$ sein, damit in der Entladung genügend Kornschichten abgetragen werden, sodaß im Abbaugleichgewicht gearbeitet wird. Bei größerem Material erkennt man schon nach der Entladung erhöhte Inseln der Probenfläche, die vor allem dem Oxid zugeordnet werden können.

In Abb. 3.2.3.3 ist der Zusammenhang zwischen Abbaurrate und dem Mischungsverhältnis von Probematerial und Kupfer dargestellt.

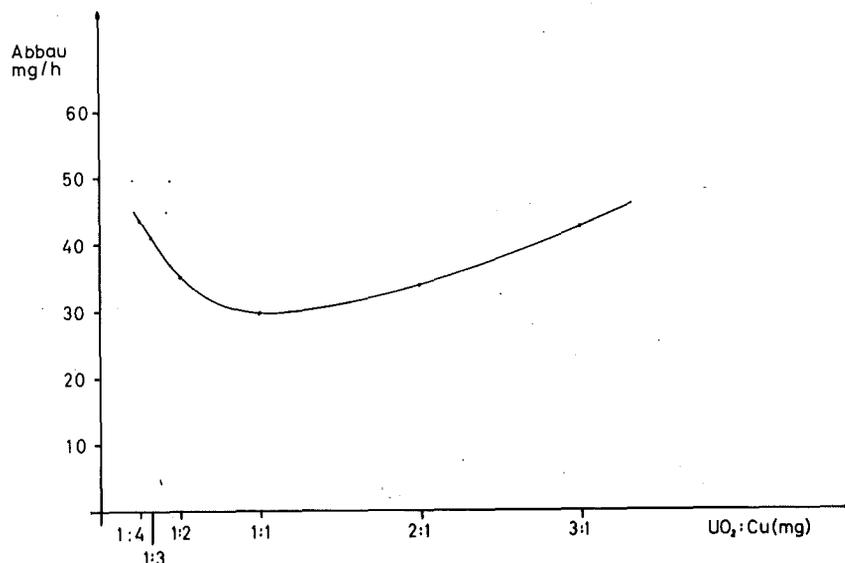


Abb. 3.2.3.3: Abhängigkeit der Abbaurrate vom Mischungsverhältnis

Man sieht, daß bis zu einem Mischungsverhältnis von Probe zu Kupfer wie 1 : 1 die Abbaurrate zunächst ständig abnimmt und dann mit steigender Probemenge wieder langsam ansteigt. Nach dem Minimum macht sich die sinkende Leitfähigkeit der Probe bemerkbar. Die Leistungskurve zeigt ebenfalls diesen Verlauf. Die Anregungsbedingungen für dieses Experiment waren 100 mA und 10.6 mbar. Die Leistung schwankte zwischen 75 und 90 Watt.

Aus verständlichen Gründen soll die benötigte Probenmenge möglichst klein sein. Bei einer Mischung Probe : Kupfer gleich 1 : 1 werden unter den gegebenen Bedingungen 0.5 mg/min abgetragen.

Wichtig für die Richtigkeit der Analyse ist, daß man das Einbrennverhalten kennt. Bei frischen Probenoberflächen schwanken die Strahlungsintensitäten und auch die Abtragungsraten.

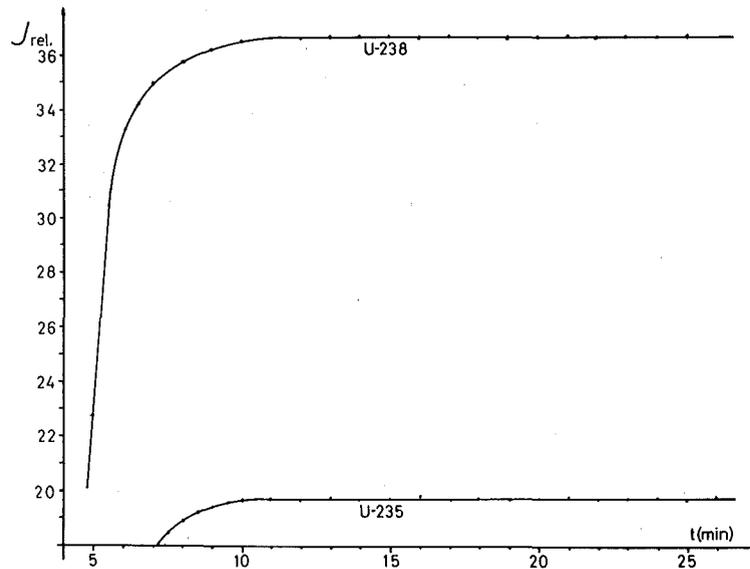


Abb. 3.2.3.4: Intensität der Strahlung in Abhängigkeit von der Zeit

Abb. 3.2.3.4 zeigt den Verlauf der Intensitätskurve über einen längeren Zeitabschnitt. Auch hier wurden als Anregungsbedingungen 100 mA, 10.6 mbar bei einer Leistung von 80 Watt gewählt.

Man erkennt, daß nach etwa 10 Minuten ein stationärer Zustand erreicht ist. Für die Analyse ist dieser Abschnitt am wenigsten stör anfällig. Abbrandzeiten von $\gg 90$ min konnten erreicht werden. Die Stabilität der Intensität über ein solch langen Zeitabschnitt ist ein Vorteil gegenüber der Hohlkathode. Bei dieser überzieht das Kupfer allmählich die Probenoberfläche, wodurch eine weitere Abtragung der Probe verhindert wird und die Intensität absinkt,

wenn über zu lange Zeiten integriert wird. Die Einbrennzeit läßt sich, wie in /3/ beschrieben, verkürzen, wenn anfangs mit höheren Leistungen gearbeitet wird.

Von besonderem Interesse sind für uns die natürlichen Linienhalb-
 wertsbreiten, da diese wie in /4/ bereits aufgezeigt, bei eng
 benachbarten Linien ($\Delta\lambda \leq 25 \text{ m}\text{\AA}$, womit bei Isotopenanalysen
 gerechnet werden muß), eine entscheidende Rolle spielen.

In Tab. 3.2.3.1 sind die von uns gemessenen Linienhalb-
 wertsbreiten für Uran eingetragen. Außerdem sind in der Tabelle
 die Zusammenhänge von Linienprofilauflösung $R_L = \frac{\lambda}{\Delta\lambda}$, dem theo-
 retischen Auflösungsvermögen des Spektralapparates R_0 (mit dem
 Gitter 300 Strich pro mm und einer nutzbaren Gitterbreite von 128 mm)
 und dem reduzierten Auflösungsvermögen $\hat{R} = \frac{R_0}{R_L}$ für die entsprechenden
 Wellenlängen aufgezeigt.

Die hier ermittelten Werte zeigen, daß \hat{R} mit steigender Wellenlänge
 abnimmt. Für die Linienprofilauflösung empfiehlt sich aber, daß mit
 Bedingungen gearbeitet wird, bei denen \hat{R} möglichst > 1 ist. Das be-
 deutet, daß für die Plutoniummessungen zunächst mit dem Wellenlängen-
 system bei 4021 \AA begonnen werden soll.

Mit den verbesserten Arbeitsbedingungen konnte die Genauigkeit der
 Bestimmung von U-235/U-238-Verhältnissen in leicht angereichertem
 Uran (bis 5 % U-235) auf 1 % relative Standardabweichung herab-
 gesetzt werden /5/.

Als nächstes soll nun die Plutoniumisotopenanalyse in der Grimmschen
 Glimmlampe als Anregungsquelle in Angriff genommen werden.

Literatur

- /1/ E. Mainka und H.-G. Müller, KFK 1852 (1972) 107
- /2/ W. Grimm, Spectrochim. Acta 23B (1968) 442
- /3/ M. Dogan, K. Laqua und H. Massmann, Spectrochim. Acta 26B (1971) 631
- /4/ E. Mainka und A. von Baeckmann, KFK 1429 (1970) 163
- /5/ E. Mainka und H.-G. Müller, KFA-Bericht (in Druck, 1974)

Wellenlänge (Å) Uranlinien	Nutzbare Spektralordnung	Linienhalb- werts- breiten (Å)	Linienprofil- auflösung R_L	theoret. Auflösungs- vermögen R_0	Reduziertes Auf- lösungsvermögen \hat{R}
4115	15	0.020	2.0×10^5	5.7×10^5	2.8
4244	15	0.022	1.9×10^5	5.7×10^5	2.4
5027	12	0.020	2.5×10^5	4.6×10^5	1.8

Tabelle 3.2.3.1: Gemessene Linienhalb-
wertsbreiten einiger wichtiger Uranlinien

3.2.4 Verbesserte Methode zur potentiometrischen Uranbestimmung

E. Mainka und W. Coerdts
IRCh, Kernforschungszentrum Karlsruhe

3.2.4.1 Einleitung

Die potentiometrische Bestimmung von Uran /1-3/ wird seit Jahren bei uns unter Verwendung eines Titrierautomaten⁺ im Routinebetrieb durchgeführt. Die festgesetzten Arbeitsbedingungen im phosphorsauren Milieu schalten Störeffekte, wie sie sonst z.B. durch Eisen, Plutonium oder Nitrat gegeben sind, weitgehend aus, sodaß eine Abtrennung nicht erforderlich ist. Dieser nicht zu unterschätzende Vorteil beschränkt andererseits die Breite des Anwendungsbereichs. Die Volumenverhältnisse der Ausgangslösungen und der benötigten Reagenzien dürfen nur in engen Grenzen variiert werden, wenn gute Ergebnisse erzielt werden sollen.

Das Verfahren beruht auf folgendem Prinzip:

Uran wird in phosphorsaurem Milieu durch Fe-II zu U-IV reduziert. Im gleichen Medium wird der Fe-II-Überschuß selektiv von HNO₃ zu Fe-III oxidiert. Diese Reaktion wird durch Mo-VI katalysiert. Nach Zusatz von Vanadin-IV führt man die Oxidation des U-IV zum U-VI mit K₂Cr₂O₇ durch. Auf diese Weise wird der Endpunkt beträchtlich schärfer, sodaß eine potentiometrische Endpunktbestimmung möglich ist.

3.2.4.2 Arbeitsvorschrift

1. Die Probenlösung soll etwa 20 mg U/ml enthalten und etwa 2-3 molar an HNO₃ sein.
2. Man wägt etwa 2 ml dieser Lösung in ein ~80 ml fassendes, hohes Wägegöläschen ein, das mit einem Schliffdeckel verschlossen werden kann. Auf diese Weise lassen sich sehr genaue Einwaagen erreichen.

⁺ Titroprint E 475 der Fa. Metrohm

3. 1 ml einer 1,5 m Lösung von $\text{NH}_2\text{SO}_3\text{H}$ = AMS werden zugegeben.
4. Etwa 8 ml einer Mischung von 85%iger H_3PO_4 und 1 m FeSO_4 im Verhältnis 8 : 1 werden hinzugefügt.
5. Nach etwa 30 sec gibt man 2 ml einer Mischung von 8 m HNO_3 , 5 m AMS und 0.4%ige $\text{NH}_4\text{MO}_7\text{O}_{24}$ im Verhältnis 5 : 1 : 4 zu. Diese Zugabe verursacht eine Dunkelfärbung der Lösung. Man wartet bis die Färbung verschwindet. Dann soll die Lösung 3 min stehen. Während dieser Zeit wird der Überschuß an Fe-II zu Fe-III oxidiert. Auch eventuell vorhandenes V-III wird unter diesen Bedingungen zu V-IV oxidiert /3/.
6. Anschließend wird nun mit ~ 22 ml einer Mischung von 1 m H_2SO_4 und 0.05 m $\text{VOSO}_4 \cdot \text{H}_2\text{O}$ im Verhältnis 10 : 1 verdünnt.

Die Verdünnung vor der Endtitration ist ein wichtiger Analysenschritt, da die Reaktionsgeschwindigkeit zwischen Analysenlösung und Titrant von der H_3PO_4 -Konzentration abhängt. Es muß weiter berücksichtigt werden, daß die U-IV-Stabilität in verdünnter Lösung nur für eine begrenzte Zeit gegeben ist. Davis und Gray /1/ geben eine Zeit von 10 min an. Durch die Erhöhung der HNO_3 -Konzentration ist in unserem Fall die Zeit auf 6 min reduziert. Das bedeutet, daß nach der Verdünnung die Titration innerhalb von ~ 5 min beendet sein muß, wenn man die Fehlergrenze innerhalb 0.1 % halten will.

7. Titriert wird mit einer Standard-Dichromatlösung - 0.01 N (~ 1 g des Primärstandards $\text{K}_2\text{Cr}_2\text{O}_7$ - NBS-NR 136 C bei 120°C 1 Std trocknen, später sorgfältig einwiegen - der Luftauftrieb sollte korrigiert werden - und auf 2 Liter auffüllen).

Die Abweichung zwischen der Einwaage und der $\text{K}_2\text{Cr}_2\text{O}_7$ -Konzentration, die durch Titration gegen U_3O_8 , NBS-NR 950, erhalten wird, soll geringer als 0.05 % sein, wobei der Endpunkt potentiometrisch mit einer Platin- und einer Wolfram-Elektrode bestimmt wird.

Um eine Analysengenauigkeit von besser als 0.1 % zu erhalten, empfiehlt es sich, mindestens 20 mg U mit 0.01 n $\text{K}_2\text{Cr}_2\text{O}_7$ -Lösung zu titrieren. Für unsere halbautomatische Titration bedeutet das, daß die 10 ml Bürette während der Titration nachgefüllt werden muß.

Unsere Untersuchungen haben gezeigt, daß durch diesen Zwischenschritt die Analysengenauigkeit nicht beeinflußt wird. Wichtig ist nur, daß die Zugabe zunächst schnell erfolgt, um die Titration in dem geforderten Zeitabschnitt (6 min) beenden zu können. Sobald die Zugabe zu Potentialdifferenzen > 30 mV je Tropfen führt, muß die Titration langsam weitergeführt werden.

Unter den gegebenen Bedingungen werden optimale Titrationsbedingungen erhalten, wenn man als Volumenschnitt 0,05 ml wählt und 40 sec Reaktionszeit abwartet. Diese Bedingungen können beim Titroprint über entsprechende Funktionsschalter vorgewählt werden: Die Variationsbreite für die Reaktionszeit liegt zwischen 2 sec und 5 min. Die Volumenvorwahl kann in Schritten von 0.05 bis 0.4 ml variiert werden. -

Um zu verhindern, daß hängende Titriermitteltropfen die Dosierung verfälschen, kann man in die Bürettenspitze einen Platindraht einführen, dessen Durchmesser 0.2 mm kleiner ist als die lichte Weite der Bürettenspitze und der in die Lösung eintaucht. Auf diese Weise erreicht man, daß keine Tropfen am Ende des Glasteils gebildet werden, sondern das Titriermittel vollständig abfließt.

Eine weitere Verbesserung brachte der Austausch der Bezugs elektrode. Anstelle der üblichen Kalomel-Elektrode verwenden wir jetzt eine Wolframelektrode. Es ist leicht verständlich, daß eine Metallelektrode einfacher zu handhaben ist und daß deren Potential leichter konstant gehalten werden kann. Ein nicht zu unterschätzender Vorteil ist die ausgezeichnete Reproduzierbarkeit dieser Elektrode. Durch Abätzen der obersten Schicht - ~ 30 sec Eintauchen in HF:HNO₃ (1 : 1) und anschließendes gründliches Spülen - können mit der Wolframelektrode für jede Titration gleiche, reproduzierbare Bedingungen erreicht werden. Gleiche Beobachtungen machte auch S. Wolf mit einer solchen Elektrode bei Titration in nichtwässrigem Medium /4/.

Die Leistungsfähigkeit der Messung soll am Beispiel der Eichung aufgezeigt werden:

Mit dem NBS-Standard NO 960 titrieren wir folgende Werte:

1.1882 mg U/ml K₂Cr₂O₇, 1.1884 mg U/ml K₂Cr₂O₇, 1.1878 mg U/ml K₂Cr₂O₇, 1.1890 mg U/ml K₂Cr₂O₇, 1.1892 mg U/ml K₂Cr₂O₇;

im Mittel 1.1885 ± 0.048 %. Das Atomgewicht des Urans ist 238.0289, sodaß sich eine Normalität von 0.009986 ergab. Aus der Einwaage berechneten wir eine Normalität von 0.009991, das bedeutet eine Abweichung von 0.05 %. Solche Ergebnisse können aber nur erzielt werden, wenn mit großer Sorgfalt mit frisch bereiteten Lösungen gearbeitet wird.

Literatur

- /1/ Davis, W. und Gray, U.: Talanta 11 1203 (1964)
- /2/ Lindner, L., von Baeckmann, A.: KFK 701 (1967)
- /3/ Goldbeck, C.G., Eberle, A.R., Lerner, M.W., Rodden, G.J.:
NBL 252 (1970)
- /4/ Wolf, S.: Chem.-Zeitung/Chem. Apparatur/
Verfahrenstechnik 93, 676 (1969)

Kapitel 4: SPALTSTOFFSCHUTZMASSNAHMEN

W. Scheuerpflug

Kapitel 4: Spaltstoff-Schutzmaßnahmen

In einem Schreiben des BMFT an die GfK wurde angeregt, daß das Projekt bereits im Berichtszeitraum 1973 in beschränktem Umfang F+E.-Arbeiten im Bereich der Spaltstoffschutzmaßnahmen aufnimmt. Das Projekt hat mit der Bestandsaufnahme der vorhandenen Geräte für Spaltstoffschutzmaßnahmen begonnen und auch teilweise Informationen über Spaltstoffschutzsysteme für einige Kernanlagen von zuständigen Stellen erhalten. Eine vorläufige Bewertung der vorhandenen Informationen deutet darauf hin, daß die weiteren Arbeiten nur unter geänderten Bedingungen sinnvoll fortgeführt werden können. Die Ergebnisse und Schlußfolgerungen der ersten Analyse sind im folgenden kurz zusammengefaßt.

1. Der derzeitige Zustand in der BRD bezüglich der Objektschutzmaßnahmen

1.1 In der BRD werden z.Zt. die Spaltstoffschutzmaßnahmen für Kernanlagen unter den Objektschutzmaßnahmen mit berücksichtigt und behandelt.

1.2 Es gibt schätzungsweise auf Bundes- und Länderebene über 140 Stellen in Deutschland, die sich direkt oder indirekt mit Objektschutzmaßnahmen beschäftigen. Die Tätigkeiten können umfangreiche Bereiche umfassen, wie z.B. Prüfung von Geräten und Systemen zu den Objektschutzmaßnahmen, Begutachtung von Sicherheitsberichten einzelner Anlagen, Beratung verschiedener Organisationen und Stellen, Erstellung von Auflagen, Erteilung von Auflagen und Genehmigung für Bau und Betrieb von Kernanlagen und Lagern und Transport von Kernmaterialien, Prüfung von erteilten Auflagen sowie Nachprüfung der vorgeschriebenen Durchführung bei den Anlagenbetreibern.

1.3 Alle empfehlenden Tätigkeiten im Zusammenhang mit dem Objektschutz unterliegen z.Zt. dem Bundesministerium des Inneren. Das Ministerium kann offensichtlich allgemeine Richtlinien zum Objektschutz nach AtG bzw. SSV0 festlegen, jedoch liegen Weisungs- und Auflagekompetenzen ausschließlich bei den zuständigen Länder-Fachministerien (normalerweise Arbeitsministerien).

- 1.4 Nach den bisherigen Informationen existieren nur Objektschutzgrundsätze und sehr allgemein gehaltene Richtlinien zu den Objektschutzmaßnahmen, aber keine einheitlichen Maßstäbe zur Beurteilung solcher Maßnahmen. Infolgedessen existiert ein sehr großes Spektrum von verwendeten Methoden und Systemen, um das gleiche Ziel zu erreichen.
- 1.5 Es existieren bei den verschiedenen Test- und Gutachterstellen Test- und Erfahrungswerte und Analysenergebnisse über Komponenten und Systeme des speziellen Objektschutzes. Diese Informationen sind schwer zugänglich, da sie meist den VS-Vorschriften unterliegen.
2. Analyse der Spaltstoffschutzmaßnahmen im Licht der internationalen und nationalen Verpflichtungen
 - 2.1 Nach AtG §§ 6 und 7 darf eine Genehmigung zum Umgang mit nuklearen Materialien nur dann erteilt werden, wenn u.a. der erforderliche Schutz gegen Störmaßnahmen oder sonstige Einwirkungen Dritter gewährleistet ist. Im Genehmigungsverfahren sind alle Behörden des Bundes, der Länder, der Gemeinden und der sonstigen Gebietskörperschaften zu beteiligen, deren Zuständigkeitsbereich berührt wird. In Zweifelsfällen hat der Bundesminister für Atomkernenergie und Wasserwirtschaft Weisungsbefugnis. Die Formulierung der §§ 6 und 7, Absatz 4, läßt eine sehr breite Interpretation zu bezüglich der Störmaßnahmen und der Einwirkungen Dritter.
 - 2.2 Nach Artikel III des NV-Vertrages verpflichtet sich jeder Nichtkernwaffenstaat, Sicherungsmaßnahmen anzunehmen, die ausschließlich dazu dienen, die Erfüllung seiner Verpflichtungen aus diesem Vertrag nachzuprüfen, damit verhindert wird, daß Kernmaterial von der friedlichen Nutzung abgezweigt und für Kernwaffen oder sonstige Kernsprengkörper verwendet wird. Da das Ziel eines internationalen Überwachungssystems (wie das IAEO- bzw. EURATOM-System) im Rahmen des NV-Vertrages die rechtzeitige Entdeckung (und nicht Verhinderung) einer Abzweigung signifikanter Mengen nuklearer Materialien ist, bleibt die Erstellung, Genehmigung und Durchführung von verhindernden Maßnahmen einem Staat selbst überlassen. Diese Maßnahmen bilden einen Teil der Objektschutzmaßnahmen, die nach dem AtG §§ 6 und 7 erforderlich sind.

3. Schutzmaßnahmen und Gefahrenstrategien

Die für eine Kernanlage vorzunehmenden Schutzmaßnahmen sollen letzten Endes die vermeintlichen Gefahren für die einzelnen sowie für die Allgemeinheit verhindern bzw. so frühzeitig erkennen lassen, daß entsprechende Aktionen zur Beseitigung dieser Gefahren unverzüglich in die Wege geleitet werden können. Umfang, Art und Intensität der Schutzmaßnahmen sind deshalb sehr stark von den Gefahren, zu deren Erkennung und Verhinderung sie eingesetzt werden sollen, abhängig. Es gibt drei Kategorien von Gefahren grundsätzlicher Natur, die im Zusammenhang mit nuklearen Materialien und Kernanlagen im friedlichen Sektor der Kernenergie berücksichtigt werden können, nämlich:

- 3.1 Diebstahl, Abzweigung oder Unterschlagung von nuklearen Materialien zur Herstellung von nuklearen Sprengkörpern bzw. zur Verwendung als radio-toxische Gefahrenquelle für einzelne bzw. für die Allgemeinheit oder für den internationalen Kernmaterialschnuggel.
- 3.2 Sabotageakte in einer Kernanlage, die eine Freisetzung der Radioaktivität innerhalb oder außerhalb der Anlage zur Folge haben.
- 3.3 Nachrichtendienstliche oder wirtschaftliche Spionage nach industrieempfindlichen Informationen.

Die Schutzmaßnahmen zu allen drei Kategorien sind miteinander eng verbunden und können nicht getrennt behandelt werden, wenn die Verwirklichung eines optimalen Schutzsystems für eine Kernanlage angestrebt wird.

4. Schritte zur Verwirklichung optimaler Objektschutzsysteme

Zu dem derzeitigen Verfahren zur Genehmigung und Durchführung von Objektschutzsystemen in einer Kernanlage gehören im allgemeinen alle oder mehrere der folgenden Schritte: a) Erstellung eines Sicherheitsberichtes für eine Anlage oder eine Einrichtung zum Umgang, zur Lagerung oder zum Transport nuklearer Materialien; b) Begutachtung des Sicherheitsberichtes durch eine autorisierte Stelle der zuständigen Genehmigungsbehörde; c) Erteilung von spezifischen Auflagen für die Anlage durch die

Genehmigungsbehörde; d) Erteilung von Genehmigungen nach Prüfung der eingesetzten Objektschutzmaßnahmen und e) Nachprüfung der Funktionsfähigkeit der Maßnahmen in regelmäßigen Abständen durch die zuständige Aufsichtsbehörde.

Da jedoch diese Maßnahmen

- die Wirtschaftlichkeit einer Anlage empfindlich beeinträchtigen können und einer Vereinheitlichung innerhalb der BRD bedürfen,
- selbst von anderen Kernanlagen-spezifischen Bedingungen, Verfahren und Maßnahmen beeinflusst werden,
- einer rapiden technologischen Entwicklung unterworfen sind,
- sich in einem Gesamt-Objektschutzsystem gegenseitig stark beeinflussen,
- von den zugrunde gelegten Gefahrenstrategien geändert werden können,

scheint es unerlässlich, sie einzeln sowie im Zusammenhang mit dem Gesamtobjektschutzsystem, den Gegebenheiten des Materials und der Anlagen sowie anderen Nebenbedingungen, zum Zwecke der Entwicklung eines optimalen und ausgewogenen Schutzsystems, wissenschaftlich und systemtechnisch zu untersuchen. Die Ergebnisse dieser Untersuchungen können fundierte Unterlagen für Auflagen, Begutachtungs- und Nachprüfungstätigkeiten liefern.

Anlässlich einer Sitzung der "Arbeitsgruppe des Länderausschusses für Atomenergie zu den Sicherungsmaßnahmen" im Oktober 1973 in der GfK wurde in einer Vortragsveranstaltung der Stand der Arbeiten und die weitere Vorgehensweise auf dem Gebiet der Spaltstoffschutzmaßnahmen erläutert.

Es wurde darauf hingewiesen, daß ein Gesamtobjektschutzsystem sowohl präventive (vorbeugende) wie auch repressive (verbrechensverfolgende) Maßnahmen umfaßt. Die F+E.-Arbeiten sollen auf den präventiven Bereich beschränkt bleiben, da die repressiven Maßnahmen ausschließlich in die Verantwortungsbereiche der staatlichen Exekutive fallen.

Die Sicherungsphilosophie für den präventiven Schutz unterliegt dem Prinzip der "defensiven Sicherheit", d.h. die Maßnahmen sollen die

angreifenden Täter solange daran hindern, an ihr Ziel zu gelangen, bis die zuständige nationale Exekutive selbst offensive Maßnahmen übernehmen kann. Die Anschlußsicherheitskomponenten (z.B. Meldesystem zwischen einer Anlage und der staatlichen Exekutive), die die präventiven mit den repressiven Maßnahmen verbinden und die im wesentlichen von der polizeigeographischen Lage des Schutzobjektes beeinflusst werden, müssen bei der Optimierung des Schutzsystems mit berücksichtigt werden.

Eine der Grundvoraussetzungen für die Katalogisierung und Bewertung von verschiedenen technischen Sicherungssystemen zum Schutz kerntechnischer Anlagen ist eine umfassende Marktübersicht der auf dem in- und ausländischen Markt erhältlichen Sicherungskomponenten. Hierbei sind neben der Erfassung und Katalogisierung der Geräte die vorhandenen Testergebnisse zu berücksichtigen sowie eigene Tests in Labor und Praxis durchzuführen.

Mittels bewerteter technischer Sicherungskomponenten können dann durch Kombination und Verzahnung mit personellen und administrativen Sicherungsmaßnahmen Modellsicherungssysteme für Schutzobjekte verschiedenen Gefährdungsgrads entwickelt werden. Der unmittelbare Einsatz dieser Modellsysteme in der Praxis ist naturgemäß erst nach Anpassung an die speziellen örtlichen und polizeigeographischen Gegebenheiten des Schutzobjektes möglich.

In der Abschlußdiskussion wurde von seiten der Ausschußmitglieder die Richtigkeit der vom Projekt geplanten Vorgehensweise ausdrücklich unterstrichen sowie die Notwendigkeit einer Zusammenarbeit mit den für den Objektschutz in der BRD zuständigen Behörden bestätigt.

Wie schon im Anfang erwähnt, wurde vom Projekt mit der Erfassung und Katalogisierung technischer Sicherungssysteme begonnen. In einem Industrieauftrag an die Fa. Dornier-System werden diese Arbeiten weitergeführt.

Kapitel 5: EXPERIMENTELLE PRÜFUNG VON ÜBERWACHUNGSMASSNAHMEN

5.1 Durchführung eines integralen Experimentes in einer
 Gas-Ultra-Zentrifugenanreicherungsanlage (GUZ)

D. Nentwich

5.2 Interlaboratoriumstest IDA-72

E. Drosselmeyer

Kapitel 5: Experimentelle Prüfung von Überwachungsmaßnahmen

5.1 Durchführung eines integralen Experimentes in einer Gas-Ultra-Zentrifugenanreicherungsanlage (GUZ)

Die in der Projektdefinitionsphase formulierten Hauptziele* für das integrale Experiment wurden auf zwei Teilexperimente aufgeteilt. In Phase I des integralen Experimentes sollten folgende Ziele bearbeitet werden:

1. Die quantitative Erfassung des versteckten Spaltstoffbestandes.
(hidden inventory).
2. Die Bestimmung des Gas-Inventars mit Hilfe geeigneter Kaskaden-Parameter.
3. Erprobung von Abfallmessungen.
4. Bestimmung der HF-Komponente im Verfahrensgas.
5. Erprobung eines Protokoll- und Bilanzierungssystems.

Die Durchführung der Arbeiten zu den Punkten 1, 2 und 4 erwiesen sich im Laufe des Experimentes als umfangreicher als anfänglich angenommen. Es wurde daraufhin vereinbart, die Punkte 3 und 5 in die später durchzuführende Phase II zu übernehmen. Im Laufe des Jahres 1973 konnten die Arbeiten zur Erfassung des Hidden Inventory während des Trocknungsvorganges der Kaskade, die Bestimmung des Gas-Inventars und die Bestimmung der leichten Komponente im wesentlichen abgeschlossen werden.

Zu 1. Hidden Inventory während des Trocknungsvorganges der Kaskade

Die Bestimmung des Hidden Inventory wurde an den drei Komponenten Ein- und Ausspeisesystem, Kaskadenverrohrung und den Zentrifugeneinheiten der Anlage vorgenommen. Die Vermessung des Ein- und Ausspeisesystems sowie der Kaskadenverrohrung wurde dabei in Almelo vorgenommen, während die Zentrifugeneinheiten in Jülich vermessen worden sind. Neben der Bestimmung der Volumina sowie der Gasraten wurden folgende Werte für das Hidden Inventory gemessen:

*s. KFK 1852, S. 135

Ein- und Ausspeisesystem	~40 Gramm UF_6
Kaskadenverrohrung	~11 Gramm UF_6

jeweils bezogen auf 1 t UTA/a

Die Messungen zur Bestimmung des Hidden Inventory bei Kaskadenbetrieb waren bis Ende 1973 noch nicht vollständig beendet.

Zu 2. Bestimmung des Gas-Inventars

Da die GUZ-Technologie noch den VS-Vorschriften unterliegt, werden einige Teile der GUZ-Anlage den IAEO-Inspektoren nicht zugänglich sein. Deshalb sind theoretische Überlegungen dahingehend angestellt worden, mit welchem Verfahren das Gasinventar von außerhalb dieser Kaskadenhalle her bestimmt werden kann. Zur Eichung dieses dynamischen Verfahrens der Gas-Inventarbestimmung wurde einmalig eine statische Gas-Inventar-Bestimmung durch Ausfrieren des UF_6 durchgeführt.

Das Gas-Inventar läßt sich aufteilen in eine Füllmasse und in eine Restfüllmasse der Zentrifugen, wobei als Restfüllmasse diejenige Masse UF_6 verstanden wird, die verfahrenstechnisch bedingt als Rest in den rotierenden Zentrifugen zurückbleibt, nachdem die Füllmasse ausgefroren wurde. Diese Restfüllmasse kann erst bei Ablauf der Zentrifugen zurückgewonnen und damit ermittelt werden. Die Messungen ergaben als gesamtes ausgefrorenes Gasinventar eine Menge von ca. 140 Gramm UF_6 bezogen auf 1 Tonne UTA/a.

Zur dynamischen Gasinventar-Bestimmung sind folgende zwei Verfahren vorgeschlagen worden:

- a. Momentane Feed-Konzentrationsänderung, deren Abweichung in der Konzentration des Nenn-Feeds bekannt ist. Dabei wird die zeitliche Änderung des Konzentrationsverlaufs festgehalten und daraus die Füllmasse der Anlage errechnet.

- b. Änderung des Feed-Stroms an der Einspeisung durch einen Feed-Sprung.
Die Errechnung der Füllmasse der Anlage erfolgt ähnlich wie bei dem Konzentrationssprung.

Zu 4. Bestimmung der leichten HF-Komponente im Verfahrensgas

Ziel der Bestimmung der leichten Komponente im Verfahrensgas war es, aufgrund der HF-Messung Rückschlüsse auf die UF_6 -Ablagerungen in der Kaskade zu ziehen. Die bisherigen Messungen deuten jedoch darauf hin, daß kein unmittelbarer Zusammenhang zwischen den UF_6 -Ablagerungen und dem gebildeten HF besteht. Zu einer endgültigen Beurteilung müssen noch weitere Messungen durchgeführt werden.

5.2 Interlabtest IDA 72

Der Aufbau, die Zielrichtung und der Teilnehmerkreis dieses Experimentes wurde bereits im Vorjahr (KFK 1852) dargestellt. Im Berichtszeitraum wurden die praktischen Arbeiten und die statistische Auswertung des Experimentes nahezu abgeschlossen. Die Ergebnisse wurden in einer Vielzahl von Berichten niedergelegt, die nach einer gemeinsamen Konferenz der Teilnehmer am Experiment in einem KFK-Bericht zusammengefaßt werden sollen.

a) Hauptteil des Experimentes (Standardexperiment) -

Bestimmung der U- und Pu-Konzentration in flüssigen Lösungen aus dem Eingangstank der Wiederaufarbeitungsanlage

Abb. 1 zeigt ein vereinfachtes Schema des Standardexperimentes - die Verteilung und Messung der reinen Spike- und Probelösungen ist nicht dargestellt. Drei verschiedene Lösungen, "A", "B" und "R", wurden von jedem Labor auf U- und Pu-Konzentration untersucht. Die Proben "A" und "B"

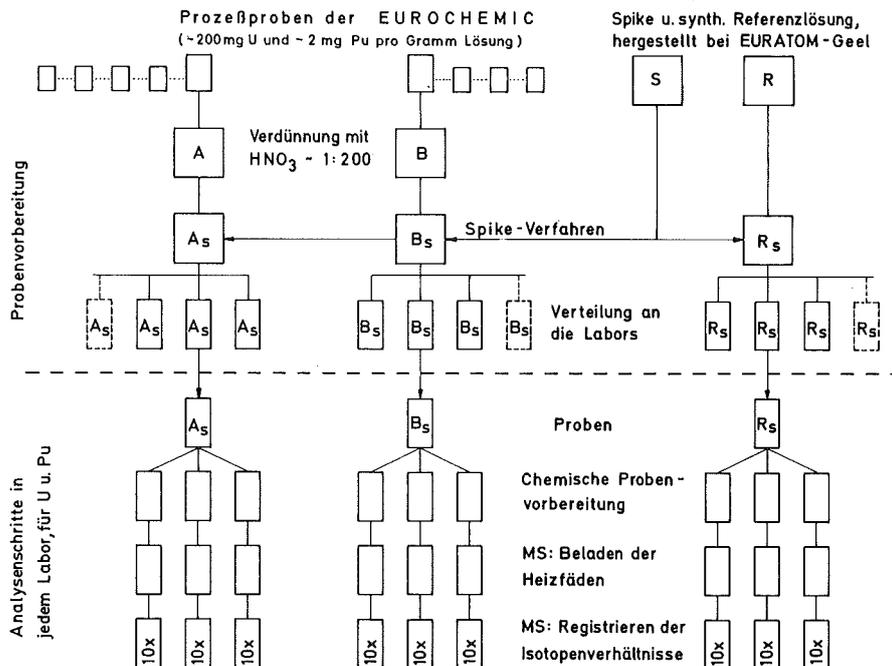


Abb. 1 IDA-72: Vereinfachtes Schema d. Standard Experiments

(Die Verteilung und Messung der reinen Spike- und Probelösungen ist nicht dargestellt.)

wurden durch Verdünnung aus der Lösung bestrahlter Brennelemente am Eingang der Wiederaufarbeitungsanlage EUROCHEMIC, Mol, Belgien erhalten, während die "R"-Probe von dem ZBKM - EURATOM, Geel, Belgien aus Standards synthetisch hergestellt wurde. Allen in diesem Teil des Experimentes untersuchten Probelösungen wurde bereits vor der Verteilung an die Laboratorien die gleiche U-233/Pu-242-Spike-lösung zugegeben. Im Schema ist angegeben, welche Verfahrensschritte mehrfach ausgeführt wurden, um einen Hinweis auf die mit ihnen verbundenen Fehlerkomponenten zu bekommen.

Insgesamt wurden ca. 300 Proben an die Laboratorien verteilt, die ihrerseits ca. 30 000 Einzelmessungen an das Projekt Spaltstoffflußkontrolle übermittelten. Ihre Auswertung wurde mit Hilfe umfangreicher Rechenprogramme vorwiegend unter Einsatz der IBM 370/165 im Kernforschungszentrum durchgeführt.

a.1) Massenspektrometrische Isotopenverhältnisbestimmungen

a.1.1) Sowohl bei Uran- als auch bei Plutoniummessungen ergaben sich die einzelnen betrachteten Fehlerkomponenten bei einem Isotopenverhältnis von 10^{-2} zu etwa 1 %. Bei kleineren Isotopenverhältnissen ($<10^{-3}$) steigen die Fehlerkomponenten stark an.

a.1.2) Es kommt nicht selten bei Labormittelwerten zu Ausreißern, die vom Labor selbst nicht als solche erkannt werden können, weil die Reproduzierbarkeit der Einzelmessungen gut ist. Erst beim Vergleich mit den Mittelwerten anderer Labors werden sie erkannt (s. auch Abb. 2 und 3).

a.2) α -spektrometrische Bestimmung des Isotops Pu-238

Im untersuchten Konzentrationsbereich ($\sim 1,5$ % Pu-238) zeigt sich diese Methode der massenspektrometrischen Bestimmung überlegen.

a.3) Konzentrationsbestimmungen

Abb. 2 zeigt die ermittelten Werte für die U-238-Konzentration der Proben A, B und R.

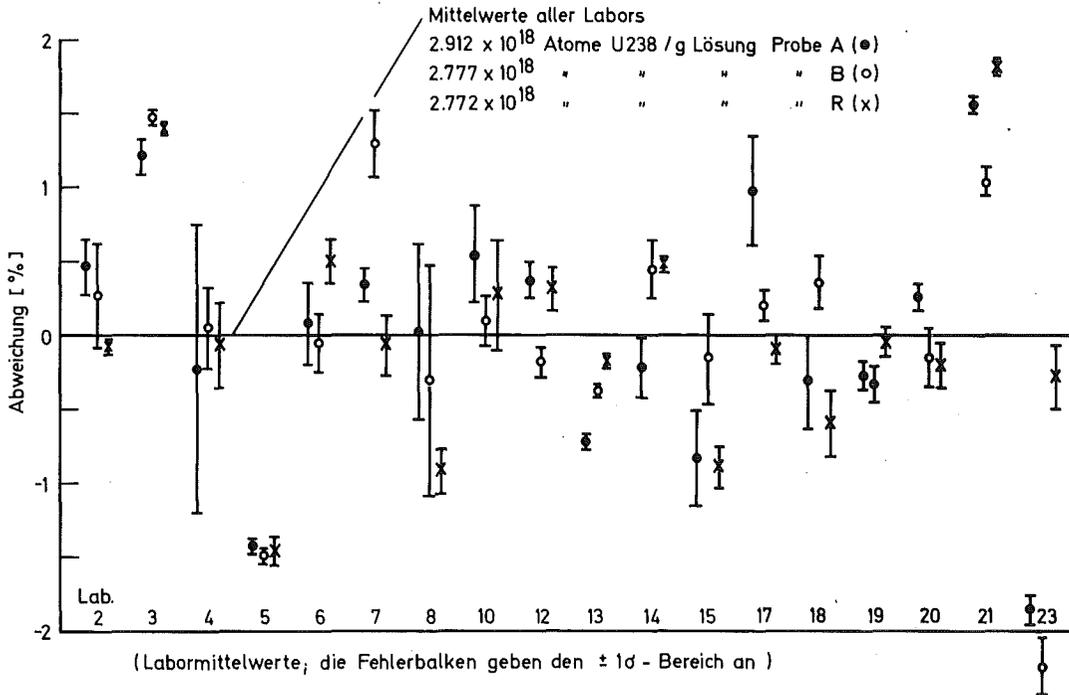


Abb.2 IDA-72: U 238-Konzentration der Proben A, B und R

In Abb. 3 sind die entsprechenden Werte für Plutonium, nämlich die Konzentrationswerte für das Hauptisotop Pu-239 dargestellt.

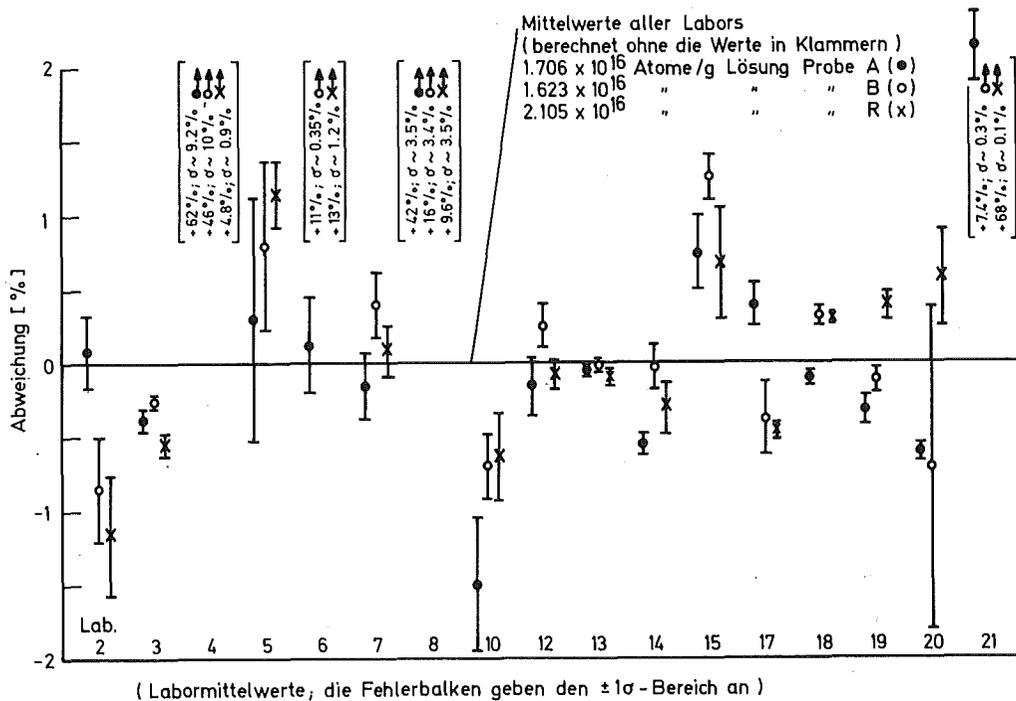


Abb.3 Pu 239 - Konzentration der Proben A, B und R

In beiden Abbildungen sind die Mittelwerte für alle Bestimmungen der Labors für die A, B und R-Proben durch die Null-Linie repräsentiert, für die Ergebnisse der Einzellabors ist die relative Abweichung von diesem Mittelwert (in Prozent) eingetragen.

Es zeigte sich bei der Analyse der Ergebnisse, daß bei Uranbestimmungen die Hauptfehler bei den massenspektrometrischen Messungen auftreten, während bei Plutoniumanalysen die zum Ausgleich der meist unterschiedlichen Valenzen des Spike- und Probenplutoniums notwendigen chemischen Verfahrensschritte in Verbindung mit den für die anschließende massenspektrometrische Messung erforderlichen Abtrennungen der Spaltproduktverunreinigungen und des sehr hohen Urananteils zu ganz erheblichen Meßfehlern führen können. Auch die Gefahr von Kontaminationen mit Material anderer Isotopenzusammensetzung ist bei der Plutoniumanalyse besonders groß.

So mußten bei den Konzentrationsbestimmungen von Plutonium in den verschiedenen Teilen des Experimentes 20 bis 40 % der Labormittelwerte als "Ausreißer" betrachtet werden.

Das Problem der Ausreißer ist für die Spaltstoffflußkontrolle von besonderer Bedeutung, da häufig die Einzelmessungen des betreffenden Labors eine so gute Reproduzierbarkeit zeigen, daß kein Hinweis auf eine Fehlmessung vorliegt. Sie wird erst durch den Vergleich mit den Analysenergebnissen anderer Laboratorien am gleichen Probenmaterial sichtbar. Nach Ausschluß dieser Werte war es durch geeignete Zusammenfassung der Einzelergebnisse möglich, den Gesamtfehler der Isotopenverdünnungsanalyse in Teilkomponenten zu zerlegen, die verschiedenen Verfahrensschritten zugeordnet werden können. Hieraus läßt sich der Gesamtfehler (1σ -Wert) des Ergebnisses einer an einem Labor durchgeführten Doppelanalyse an verdünnter, aktiver Probenlösung (einschließlich Spiken) für Uran zu 0,9 %, für Plutonium zu 1,0 % abschätzen.

b) Teilexperiment "Self Spike"

Synthetische Referenzlösungen (R) aus dem Standardexperiment wurden in 11 Labors mit laboreigener Spikelösung versetzt und dann die U- und Pu-Konzentrationen gemessen. Es zeigten sich z.T. erhebliche Abweichungen

von den entsprechenden Werten des Standardexperimentes, besonders bei der Pu-Bestimmung.

c) Teilexperimente "Dry Spike" und "Alu-Capsule"

In Zusatzexperimenten wurden spezielle Methoden der Probenherstellung (Eindampftechniken) für Aufbewahrung und Transport geprüft, die von der IAEO und dem Europäischen Institut für Transurane entwickelt worden waren und zu erheblichen Vereinfachungen und Verbilligungen führen können.

"Dry-Spike Experiment": Es wurde die gleiche Spike- und aktive Eingangs-lösung wie im Standardexperiment in normalen gläsernen Probefläschchen eingedampft, verschickt und später in 8 Labors wieder aufgelöst und analysiert. Diese Verfahrensweise erlaubt einen sehr vereinfachten Transport und ein längeres Aufheben der Proben. Die Meßergebnisse stimmten mit denen des Standardexperimentes überein, die relativen Standardabweichungen waren sogar kleiner.

"Alu-Capsule Experiment": Spike- und aktive Probelösungen wurden in Aluminiumkapseln eingedampft, verschickt und in 6 Labors wieder quantitativ aufgelöst. Dann wurden die Messungen nach dem Verfahren der Isotopenverdünnungsanalyse durchgeführt. Es ergaben sich die gleichen Resultate wie beim Standardexperiment mit flüssigen Proben. Das Verfahren eignet sich also ebenso wie die "Dry-Spike"-Methode sehr gut für die Spaltstoff-flußkontrolle.

Die Ergebnisse dieser Untersuchungen bestätigen eindeutig die Leistungsfähigkeit dieser Verfahren, deren Vorteile für die praktische Durchführung von Kontrollmaßnahmen ganz erheblich sind.

Sie erlauben nicht nur die nahezu unbegrenzte Aufbewahrung des hochaktiven Probenmaterials für Kontroll- oder Schiedsanalysen, ohne daß die Gefahr einer Änderung in der Zusammensetzung durch autoradiolytische Zersetzung besteht, sondern führen auch zu einer erheblichen Reduktion der Transportkosten, da die zusätzlichen Sicherheitsvorschriften für flüssige radioaktive Stoffe in Wegfall kommen.

d) Teilexperimente "Aging"

Das Alterungsverhalten plutoniumhaltigen, aktiven Probenmaterials wurde in drei verschiedenen Labors untersucht. Als spezielle Parameter, die Einfluß auf das Alterungsverhalten haben können, wurden bei dieser Untersuchung die Pu-Konzentration, die Säuremolarität, die An- bzw. Abwesenheit von Spaltprodukten und die Zeit der Probenaufbewahrung betrachtet. Die teilweise sehr aufwendigen Untersuchungen wurden im Euratom CCR, Ispra, Italien, im IFA, Kjeller, Norwegen und im Los Alamos Scientific Laboratory, USA durchgeführt. Es erwies sich, daß Proben ohne Spaltprodukte praktisch über unbegrenzte Zeit aufgehoben werden können. Für präzise Aussagen über den Einfluß von Konzentration und Säuremolarität reichten leider die erzielten Ergebnisse wegen mangelnder Statistik nicht aus. Es konnte auch nicht eindeutig geklärt werden, ob Alterungseffekte im Kurzzeitbereich (1-5 Tage nach der Probenahme) oder im Langzeitbereich (bis zu 200 Tagen nach der Probenahme) stärker auftreten.

e) Röntgenfluoreszenzmethode

"Röntgenfluoreszenzspektroskopie" wurde als Parallel-Methode zur massenspektrometrischen Isotopenverdünnungsanalyse ebenfalls angewandt, um die U- und Pu-Konzentrationen der aktiven Proben zu bestimmen. Diese Analysen wurden vom IRCh ausgeführt.

Die Ergebnisse sind denen des Standardexperiments vergleichbar. Allerdings ergeben sich für die praktische Anwendung Einschränkungen durch die hohen Kosten, die beim Transport von unverdünntem, hochaktivem Probenmaterial entstehen.

Kapitel 6: ARBEITEN IM ZUSAMMENHANG MIT DER EINFÜHRUNG VON
ÜBERWACHUNGSMASSNAHMEN AN KERNTÉCHNISCHEN ANLAGEN
NACH DEM VERIFIKATIONSABKOMMEN ZUM NV-VERTRAG

- 6.1 Leichtwasserreaktoren
Chr. Brückner
- 6.2 SNR 300
Chr. Brückner
- 6.3 Ausarbeitung von Überwachungsmaßnahmen für
Zentrifugenanlagen
D. Nentwich
- 6.4 Erarbeitung der im Zusammenhang mit den FA stehenden
Hauptproblemen der WAK
D. Nentwich, W. Rust
- 6.5 Durchführung einer Inventur bei Fa. NUKEM
R. Kraemer

Kapitel 6: Arbeiten im Zusammenhang mit der Einführung von Überwachungsmaßnahmen an kerntechnischen Anlagen nach dem Verifikationsabkommen zum NV-Vertrag

Im Jahre 1973 wurden die im Auftrag des BMFT gemeinsam mit Betreibern kerntechnischer Anlagen in Angriff genommenen Arbeiten über Probleme fortgeführt, die bei der Durchführung von Überwachungsmaßnahmen nach dem Verifikationsabkommen zum NV-Vertrag auftreten, mit dem Ziel, eine für den Betrieb der kerntechnischen Anlage optimale Gestaltung der Überwachung zu finden. Die Arbeiten orientierten sich an den von der IAEO und Euratom ausgearbeiteten Anlagespezifischen Anhängen der Ergänzenden Abmachungen zum Verifikationsabkommen für das Kernkraftwerk Stade (KKS) als Muster eines leichtwassergekühlten Leistungsreaktors, die NUKEM als Beispiel einer Brennelement-Fabrikationsanlage und die WAK als Beispiel einer Wiederaufarbeitungsanlage. Für alle drei Anlagen, die eine Art Modellcharakter haben, waren bereits im Vorjahr gemeinsam mit den Betreibern Listen der zu bearbeitenden Problemkreise zusammengestellt worden.

Zusätzlich wurde in diesem Zusammenhang die Erörterung eines Überwachungskonzepts für den SNR 300 mit Euratom gemeinsam mit dem Betreiber dieses Reaktors vorbereitet.

6.1 Leichtwasserreaktoren

Die Analyse der im Anlagespezifischen Anhang für das Kernkraftwerk Stade vorgesehenen Überwachungsmaßnahmen führte zu einer Reihe von Problemen, die weitgehend allgemein für leichtwassergekühlte Leistungsreaktoren typisch sind. Ihre Untersuchung wurde in Zusammenarbeit mit einem bei der Vereinigung Deutscher Elektrizitätswerke - VDEW - ins Leben gerufenen ad-hoc-Arbeitskreis "Spaltstoffüberwachung" durchgeführt, in dem alle Betreiber von Leichtwasser-Leistungsreaktoren in der Bundesrepublik Deutschland vertreten sind.

Die Arbeiten konzentrierten sich im Jahre 1973 auf zwei Themenkreise

- Buchführungs- und Berichterstattungssystem
- Anwendung von Versiegelungs- und Beobachtungsmaßnahmen bei der Überwachung

Dabei war das Ziel, bei konsequenter Anwendung der bereits im Anlage-spezifischen Anhang für das Kernkraftwerk Stade zugrunde gelegten chargenweisen Materialverfolgung, mit Brennelementbündeln als Einheiten, ein Überwachungssystem aufzuzeigen, das gleichermaßen eine für den Reaktorbetreiber einfache wie für die Überwachungsbehörden sichere Kernmaterialüberwachung erlaubt.

Die Anwendung der chargenweisen Materialverfolgung heißt einerseits, daß an den das Kernmaterial enthaltenden Brennelementbündeln Maßnahmen, wie zum Beispiel Versiegelungen oder Beobachtungen in der Weise durchgeführt werden, daß sowohl die Abzweigung von Material aus den Bündeln wie auch die Abzweigung ganzer Bündel innerhalb angemessener Zeit entdeckt würden. Andererseits bedeutet sie konsequenterweise, daß bei der Überwachung an die Stelle der Messung von Massen und ihrer Bilanzierung zur Bestimmung des "nicht nachgewiesenen Materials" (MUF) die Prüfung der Integrität und Identität der Brennelementbündel und ihrer Bilanzierung nach Stückzahl tritt.

Die Vorteile dieses Verfahrens für die Reaktoranlagen liegen auf der Hand. Schon wegen der großen Schwierigkeiten, die bei zerstörungsfreien Messungen von Kernmaterialmengen in Brennelementbündeln auftreten, ist die Anwendung der chargenweisen Materialverfolgung mit Versiegelungs- und Beobachtungsmaßnahmen notwendig und von den Überwachungsbehörden für das Kernkraftwerk Stade auch vorgesehen. Bei seiner konsequenten Anwendung ist die Einbeziehung von Abbrandrechnungen zur Kontrolle des in den Brennelementbündeln im Reaktor erzeugten bzw. verbrauchten Kernmaterials in die Überwachung nicht erforderlich. Das Ziel der Überwachung, eine Abzweigung signifikanter Mengen von Kernmaterial in angemessener Zeit aufzudecken, kann sicher erreicht werden.

6.1.1 Buchführungs- und Berichterstattungssystem

Die Untersuchungen über ein Buchführungs- und Berichterstattungssystem auf der Grundlage der chargenweisen Materialverfolgung konnten im Berichtszeitraum abgeschlossen und die Ergebnisse in einer Studie niedergelegt werden.

Es wird die Protokollierung und Berichterstattung nach Chargen vorgesehen, wobei Brennelementbündel oder vergleichbare Einheiten (z.B. Kassette mit Einzelstäben, die bei einer Bündelreparatur benötigt werden) als Chargen definiert sind.

Die Chargen sind durch ihre Nummern gekennzeichnet. Die Kennzeichnungsnummern werden als einzige in der Reaktoranlage verifizierbare Chargendaten betrachtet. Sie allein erscheinen in den Buchungsprotokollen bei Aufnahmen des realen Bestandes und den Aufstellungen des realen Bestandes, die an die Behörden gemeldet werden. In den Materialbilanzberichten wird die Materialbilanz nach Anzahl von Chargen aufgestellt.

In die Buchungsprotokolle bei Bestandsänderungen und die Bestandsänderungsberichte werden zur Kennzeichnung der Chargen die Kennzeichnungsnummern und zusätzlich, bei allen Arten der Bestandsänderung, die enthaltenen Kernmaterialmassen nach Herstellerangaben eingetragen. Mögliche Bestandsänderungen sind hierbei Eingänge, Ausgänge und störfallbedingte Verluste. Den Protokollen und Berichten über Ausgänge von Chargen werden, als zusätzliche, nicht verifizierbare Vermerke, Angaben über den berechneten Abbrand der Chargen in MWd/to und den entsprechenden Kernmaterialgehalt nach Abbrand beigelegt.

Werden in der Reaktoranlage, zum Beispiel bei Brennelementbündelreparaturen, Chargen aufgelöst und neu geordnet, so sind Angaben hierüber ebenfalls in den Bestandsänderungsprotokollen und Berichten vorgesehen, und zwar in der Weise, daß die Herkunft des Kernmaterials in neudefinierten Chargen nach seiner Masse aus den aufgelösten Chargen erkennbar ist.

Die Kernmaterialmassen sind in den Bestandsänderungsprotokollen und -berichten jeweils getrennt für Uran insgesamt, Uran spaltbar, Thorium, Plutonium insgesamt und Plutonium spaltbar einzutragen. Dabei ist die Eintragung von

Plutonium spaltbar vorläufig vorgesehen, ihr Wegfall wird angestrebt. Ebenfalls vorläufig vorgesehen ist die Angabe der Materialherkunft nach Liefervertrag.

Bestandsänderungsprotokollen und -berichten, in denen störfallbedingte Kernmaterialverluste oder Berichtigungen angegeben sind, müssen Erläuterungen dieser Angaben beigelegt werden.

Das geplante Betriebsprogramm ist den Aufsichtsbehörden rechtzeitig mitzuteilen, so daß sie ihre Inspektionstätigkeiten entsprechend einrichten können.

Bei Verlust oder Zerstörung mindestens eines Brennelementbündels sowie dann, wenn Versiegelungs- und Beobachtungseinrichtungen der Überwachungsbehörden in Abwesenheit von Inspektoren und ohne vorherige Unterrichtung der Behörden außer Funktion gesetzt wurden, sind Sonderberichte zu erstatten.

6.1.2 Anwendung von Versiegelungs- und Beobachtungsmaßnahmen bei der Überwachung

Die Untersuchungen über Überwachungskonzepte mit Anwendung von Versiegelungs- und Beobachtungseinrichtungen konzentrierten sich im Berichtszeitraum auf Überwachungsmodelle für Siedewasserreaktoren. Sie dauern noch an.

Bei den Überlegungen war von der im Anlagenspezifischen Anhang vorgesehenen Anbringung von Siegeln an Brennelementbündeln auszugehen, die, beim Hersteller angebracht, über die gesamte Standzeit in der Reaktoranlage bis zur Anlieferung in der Wiederaufarbeitungsanlage an den Bündeln bleiben. Es konnte gezeigt werden, daß mit solchen Siegeln, unter der Voraussetzung, daß sie sich auch während der Standzeit im Reaktor nicht verändern und an allen möglichen Standorten der Bündel ohne weiteres geprüft werden können, die Durchführung einer einfachen und allen Anforderungen genügende Überwachung möglich wäre (Konzept mit "idealem Siegel"). Jedoch mußte festgestellt werden, daß die von Euratom für Siedewasserreaktoren entwickelten Siegel insofern den vorausgesetzten Bedingungen nicht genügen, als noch nicht mit der erforderlichen Sicherheit das Abbrechen im Reaktorcore und Vagabundieren der Siegel im Kühlkreislauf ausgeschlossen werden kann. Die Verwendung von Siegeln an Bündeln im Core war daher zunächst auszuschließen.

Das erarbeitete Überwachungsmodell für Siedewasserreaktoren sieht vor, daß frische Brennelementbündel beim Hersteller versiegelt und im Verlaufe des Brennstoffwechsels am Reaktor, unmittelbar vor dem Einsetzen der Bündel in das Core, entsiegelt werden. Abgebrannte Bündel werden nach dem Ausladen aus dem Reaktor im Naßlager neuversiegelt ⁺⁾ , diese Siegel bleiben bis zum Antransport in die Wiederaufarbeitungsanlage an den Bündeln. Zur Überwachung können Inspektoren an den versiegelten frischen und abgebrannten Bündeln jederzeit Siegelprüfungen durchführen.

In der Zeit des Reaktorbetriebes werden die unversiegelt im Reaktordruckgefäß stehenden Brennelementbündel indirekt durch ein Siegel an einem der Abdeckriegel über der Reaktorgrube gesichert.

Während der Stillstandszeit, in der das Druckgefäß geöffnet ist, sind Beobachtungsmaßnahmen vorgesehen: Beim Umladen werden die - unversiegelten - Brennelementbündel visuell durch Inspektoren überwacht. Vor dem Umladen, vom Abnehmen der Abdeckriegel an, und nachher, bis zum Auflegen der Riegel, kann die Überwachungsbehörde eine optische Überwachung mit Hilfe einer Kamera über dem Druckgefäß durchführen, die die Unverletztheit der Kernbeladung (gegebenenfalls indirekt durch Abbilden der oberen Kerneinbauten) dokumentiert bzw. bei voll freigelegtem Kern Materialbewegungen aus dem Druckgefäß erfaßt. Die Aufnahmefrequenz der Kamera orientiert sich an der für eine Kernmaterialabzweigung aus dem Kern heraus erforderlichen Zeit, maximal sind etwa 3 Aufnahmen pro Stunde ausreichend.

Bei Brennelementbündelreparaturen ist zwar vorgesehen, daß die Entsiegelungen der zu reparierenden Bündel und Spenderbündel von Inspektoren vorgenommen, die Reparaturarbeiten stichprobenweise visuell von Inspektoren überwacht und die reparierten Bündel sowie ggf. Köcher mit Einzelstäben danach wieder von Inspektoren versiegelt werden, doch hat der Betreiber grundsätzlich das Recht, Entsiegelungen selbst vorzunehmen, wenn er die Überwachungsbehörde rechtzeitig informiert.

⁺⁾ Diese Maßnahme entfiere, wenn festgestellt werden könnte, daß eine Abzweigung bestrahlter Brennelemente nicht möglich ist (Selbstschutz des bestrahlten Kernmaterials). Hierzu sind noch genauere Untersuchungen erforderlich.

Verhandlung der Überwachungskonzepte mit Euratom

Die Ergebnisse der gemeinsamen Studienarbeiten des VDEW-Arbeitskreises "Spaltstoffüberwachung" und des Projektes stehen dem BMFT als Unterlagen für die Verhandlung des Anlagespezifischen Anhangs für das Kernkraftwerk Stade wie auch später folgender Anlagespezifischer Anhänge für andere LWR mit Euratom zur Verfügung. Diese Verhandlungen, die im Berichtszeitraum angelaufen sind, lassen Schwierigkeiten erkennen, die darauf beruhen, daß Euratom bestimmten grundsätzlichen Feststellungen in den Studienarbeiten nicht zuzustimmen bereit ist. Ein wichtiger Gegensatz besteht vor allem bezüglich der Verwendung von Daten aus Abbrandrechnungen bei der Überwachung. Euratom hat sich mit der Aussage der bisher vorgelegten Studienarbeiten nicht einverstanden erklärt, daß diese sogenannten "nuklearen Daten" bei konsequenter Durchführung der chargenweisen Kernmaterialüberwachung mit Versiegelungs- und Beobachtungsmaßnahmen weder geprüft zu werden brauchen, noch als Grundlage für Entscheidungen über Kernmaterialabzweigungen herangezogen werden müssen.

Von Reaktorbetreibern und Projekt sind weitere Anstrengungen erforderlich, um diese Gegensätze Euratoms zu überwinden.

6.2 SNR 300

Auf einer Sitzung im Oktober 1973 wurden mit Vertretern des Betreibers des KKW Kalkar (SBK) die Grundsätze der Kernmaterialüberwachung nach dem Verifikationsabkommen erörtert und das von der Fa. Interatom im Auftrag des Projektes ausgearbeitete Überwachungskonzept eingehend diskutiert. Weitere Gespräche führten zu dem Entschluß, Kontakte mit der Direktion Überwachung der Sicherheit von Euratom zu schaffen, um frühzeitig zu einer Abstimmung über Überwachungsmaßnahmen am SNR 300 mit den Überwachungsbehörden zu gelangen und dabei zu klären, ob und in welcher Weise Forderungen gestellt werden, die auf die Konstruktion einzelner Anlageteile des Reaktors einwirken könnten.

6.3 Ausarbeitung von Überwachungsmaßnahmen für Zentrifugenanlagen

Im Laufe des Jahres 1973 wurde von EURATOM eine Reihe von Vorschlägen zum Kontrollverfahren an der Gasultrazentrifugen-Anlage Almelo vorgelegt, die für den Anlagenbetreiber eine Reihe von Problemen aufwarf. Diese ist nicht zuletzt damit im Zusammenhang zu sehen, daß der Anlagenbetreiber der Kontrollbehörde den Zutritt zu gewissen Anlagenteilen nicht ohne weiteres ermöglichen kann. Das Projekt entschloß sich aus diesem Grunde dazu (einer Empfehlung des BMFT folgend), Unterstützung zur Erarbeitung von alternativen Lösungswegen zu leisten. Die Firmen Dornier und Uranit wurden beauftragt, die aufgetretenen Probleme in einem Problemkatalog zu erfassen und aus den verschiedenen möglichen Lösungswegen ein für den Anlagenbetreiber akzeptables Überwachungssystem vorzuschlagen.

Für die einzelnen Problemkreise wie z.B. MBA-Einteilung, Containmentmaßnahmen, Definition der Chargen, Protokollsystem, usw. wurden verschiedene mögliche Lösungen eingehend auf ihre Durchführbarkeit, ihren Einfluß auf Aufwand des Betreibers, Inspektionshäufigkeit, Genauigkeit der Erfassung des Materials sowie auf ihre Brauchbarkeit zum Schutze besonderer Interessen des Betreibers hin untersucht.

Insbesondere wurden die Auswirkungen der MBA-Einteilung auf das Gesamtsystem eingehend untersucht. Es sind seitens des Betreibers eindeutige Präferenzen für eine mixed MBA geäußert worden, da hiermit für das Berichtswesen ein Minimum an Aufwand notwendig erscheint. Diese Einteilung muß aber auch in Verbindung damit gesehen werden, daß beim Bestehen einer Zutrittsverwehrung für Inspektoren zu einem Teil des Prozeßbereiches die Inspektionsbehörde nur ungenügend über die Materialbewegungen in der Anlage informiert würde. Von daher ist abzusehen, daß der Inspektionsbehörde an der Einrichtung einer zusätzlichen Lager-MBA gelegen sein könnte.

Untersucht wurde auch das Problem der Verbuchung der Tails-Mengen. Seitens des Projektes wurde vorgeschlagen, diese Mengen als "retained tails" auszubuchen, wobei die Inspektionsbehörde die Tails-Behälter zu versiegeln hätte. Durch diese Maßnahme kann ein Anwachsen des Bestandes in der Anlage selbst vermieden werden. Dadurch würde auch die Genauigkeit bei der Inventarbestimmung erhöht.

Aufgestellt wurde auch ein Vorschlag für ein Inventuraufnahmeverfahren. Als Zeitpunkt einer Inventur bietet sich der Moment an, zu dem an der Feed-Station ein Behälter leergefahren wurde und ausgewechselt wird. Abb. 1 zeigt den möglichen Ablauf einer solchen Inventur.

Die gesamte Problematik sowie der Vorschlag für ein Überwachungskonzept werden in einem abschließenden Bericht festgehalten, der gegen Ende April 1974 fertiggestellt sein wird. Während der Arbeiten wurde ein enger Kontakt zu EURATOM gehalten, um von dieser Seite her Anregungen mit einfließen zu lassen.

6.4 Erarbeitung der im Zusammenhang mit den FA stehenden Hauptproblemen der WAK

Nach Analyse des von Euratom vorgelegten und mit der IAE0 abgesprochenen Entwurfs eines anlagenspezifischen Anhangs (Facility Attachment = FA) konnten neun Themenkreise definiert werden, deren Bearbeitung zwecks Aufwandsreduzierung ratsam erschien. Eine Zusammenarbeit in der bisherigen Form von Aufträgen an die Industrie konnte jedoch im Falle der WAK nicht erfolgen, da sich im Laufe der Verhandlungen des Projektes mit der GWK zeigte, daß aufgrund der angespannten Personalsituation bei der Abteilung Massenkontrolle der GWK diese

sich außerstande sah Arbeitsstunden per Vertrag zu verkaufen. Das Projekt war daher damit einverstanden, der GWK Personal zur Verfügung zu stellen, welches unter Leitung und Verantwortung eines mit der Wahrnehmung der Aufgaben betrauten Vertreters der GWK an der Bearbeitung der Probleme teilnimmt. Mit der Zusammenarbeit Projekt/GWK konnte zum 1.9.1973 begonnen werden. Form und Inhalt dieser Zusammenarbeit sind in einer vertraglichen Vereinbarung geregelt.

Analyse der FAs hinsichtlich der MBA-Einteilung

Die Anzahl und insbesondere die Grenzlegung der Materialbilanzzonen (MBA) haben entscheidende Auswirkungen auf den Umfang des Berichtswesens. Für die WAK sind zwei MBAs vorgesehen, die MBA-1 mit den Lagereinrichtungen für abgebrannte Brennelemente, die zur Verbuchung der Absender- Empfänger-differenz dient, sowie eine zweite MBA, die den gesamten Prozeß-Bereich umfaßt, und in welcher der MUF verbucht werden kann.

Über die Grenzen zwischen MBA-1 und MBA-2 konnte zwischen dem Projekt und dem Anlagenbetreiber einerseits und Euratom andererseits noch keine Einigkeit erzielt werden. Das Projekt und der Anlagenbetreiber sind der Meinung, daß die Grenzlegung so zu erfolgen hat, daß lediglich ein saldierter Wert für das eingehende Kernmaterial zu melden ist, ohne daß dieser Wert in die Komponenten Prozeßstrom, rückgeführte Säure und Restmengen in den Hülsen aufgeteilt werden muß. Weitere Verhandlungen zu diesem Problemkreis sind zwischen dem Projekt, Euratom und der IAEO vorgesehen.

Berichtswesen

Im Laufe des Sommers 1973 konnte Euratom einen Entwurf für eine Inventur-änderungsmeldung vorlegen. Dieser Entwurf enthält im wesentlichen diejenigen Informationen über bewegtes Kernmaterial, wie sie in Code 10 der Subsidiary Arrangements bereits festgehalten wurden. Hinzugekommen sind einige Informationen, wie sie nach den Römischen Verträgen erforderlich sind, so z.B. Meldungen nach Herkunft und Vertrag, Anreicherungskategorien, Angaben der spaltbaren Pu-Isotope etc.

Zur Abschätzung des Aufwandes für das Berichtswesen wurden die historischen Daten von 10 Auflösungen einschließlich der anteiligen Waste- und Product-Transfers in entsprechend vorbereitete Berichtsvordrucke eingetragen. Danach ergibt sich für die WAK für ca. 1.600 kg eingehendes Uran ein Aufwand von ca. 580 Zeilen à ca. 80 Einzelwerten. Extrapoliert man davon auf den Nenn-durchsatz der WAK, so wäre ein Aufwand von ca. 14.500 Zeilen zu erwarten. Nicht mit einbezogen sind hierin Korrekturmeldungen sowie Meldungen vorläufiger Werte. Abb. 1 zeigt das Muster eines Bestandsänderungsberichts mit allen Codes, mit denen die eingetragenen Informationen zu kennzeichnen sind. Abb. 2 zeigt den Aufwand, der laut jetzigem FA für die Meldung einer einzelnen Charge erforderlich ist.

Aufgrund dieser Ergebnisse konnte Euratom an Hand eines Vorschlags des Projektes mit der IAE0 vereinbaren, daß mehrere Eingangschargen der WAK zu einem sog. Superbatch zusammengefaßt werden können. Dabei sollten so viele Auflösungen zusammengefaßt werden, wie benötigt werden, um ganzzahlige Vielfache kompletter Brennelemente aufzulösen. Der Eintrag der historischen Berichtsdaten für eine repräsentative Aufarbeitungskampagne der WAK ergab danach einen auf Jahresdurchsatz normierten Berichtsaufwand von ca. 1750 Zeilen, was einer Reduzierung auf ca. 1/8 entspricht.

Problemkreis rückgeführte Säure

Eine Übersicht über die historischen Daten der WAK hat ergeben, daß eine Aussage über die Genauigkeit der Spaltstofferfassung in der rückgeführten Säure nur bedingt möglich ist.

Der Anlagenbetreiber hat inzwischen einen Vorschlag unterbreitet, wie der Eingangsstrom von dem aufkonzentrierten Säure-Rückführungsstrom mit höherem Spaltstoffanteil zu trennen ist. Dieser Vorschlag wird gegenwärtig mit Euratom diskutiert. Sollte Euratom diesen Vorschlag annehmen, so wäre damit ein wichtiges Argument gegen die Meldung saldierter Eingangswerte entkräftet.

Bestandsänderungs - Bericht

6-12

MB A Code	Type of Shipper	Date of Inventory Change	K M or P	Name of the Batch	Material Description	Ele-ment Cod.	Number in the Batch	Entry Type	Total Weight of Element	Weight of Fissile Isotopes	Isotopic Basis	for Shipment Receiver MBA-Code	for D-Procedure Previous Batch Name
-----------	-----------------	--------------------------	----------	-------------------	----------------------	---------------	---------------------	------------	-------------------------	----------------------------	----------------	--------------------------------	-------------------------------------

SAEURE - RUECKFUEHRUNGEN

MB Z2	SD	26C3732		0833	LNCIP		1		0.002	0.002	JM	MBZ1	
MB Z2	SD	25C3732		0834	LNGIP		1		0.4099	1.434	GM	MBZ1	
MB Z2	SD	25C3732		0834	LNOIP		1	C	22.326	17.414	JM	MBZ1	

EINGANGSMESSUNG

MB Z1	SD	07C5732		0832	LNOID		1		164.841	423.641	GM	MBZ2	
MB Z1	SD	07C5732		0832	LNGIP		1	C	637.219	472.116	JM	MBZ2	

D-PROCEDURE, GELOESTE BE

MB Z1	SD	07C5732		0832	LNOID		1	D	51.03	141.2	GN	MBZ2	XX-069
MB Z1	SD	07C5732		0832	LNGIP		1	D	160.6	114.8	JM	MBZ2	XX-069
MB Z1	SD	07C5732		0832	LNOID		1	D	51.065	141.3	GN	MBZ2	XX-070
MB Z1	SD	07C5732		0832	LNGIP		1	C	160.8	114.9	JM	MBZ2	XX-070
MB Z1	SD	07C5732		0832	LNOID		1	D	51.107	141.4	GN	MBZ2	XX-027
MB Z1	SD	07C5732		0832	LNCIP		1	D	160.9	115.0	JM	MBZ2	XX-027
MB Z1	SD	07C5732		0832	LNGIP		0.490		24.847	66.7	GN	MBZ2	XX-086
MB Z1	SD	07C5732		0832	LNGIP		0.490		79.784	56.711	JM	MBZ2	XX-086

SAEURE - RUECKFUEHRUNGEN

MB Z1	SD	07C5732		0832	LNOIP		1	D	0.002	0.002	JM	MBZ2	0833
MB Z1	SD	07C5732		0832	LNOID		1	D	0.4099	1.434	GN	MBZ2	0834
MB Z1	SD	07C5732		0832	LNOIP		1	D	22.326	17.414	JM	MBZ2	0834

HEEL DER VORHERIGEN CHARGE

MB Z1	SD	07C5732		0832	LNOID		1	C	0.3446	0.920	GM	MBZ2	0829
MB Z1	SD	07C5732		0832	LNGIP		1	D	1.351	1.004	JM	MBZ2	0829

HUELSENABFALL

MB Z1	LD	07C5733		0832	AHDND		1		0.594	0.163	GE	MBZX	
MB Z1	LD	07C5733		0832	AHDNP		1	C	1.351	1.337	JF	MBZX	

ISOTOPEN - VEKTOREN

MB Z1	SD	07C5732		0832	LNOID		1	I		0.004	0.257	0.059	99.68
MB Z1	SD	07C5732		0832	LNOIP		1	I	0.153	69.69	24.35	4.40	1.37

ISOTOPIC DATA				
U - 233	U - 234	U - 235	U - 236	U - 238
Pu - 238	Pu - 239	Pu - 240	Pu - 241	Pu - 242

Abb. 2

6.5 NUKEM, Fabrikationsanlage zur Verarbeitung von hochangereichertem Uran

1. Zusammenarbeitsvertrag

Der im Jahresbericht 1972 angekündigte Zusammenarbeitsvertrag über die Erarbeitung von Anlagedaten zum "Anlagen-spez.-Anhang" (Facility Attachment) der Firma NUKEM ist inzwischen unterzeichnet worden. In der Präambel zu diesem Vertrag und in einer Zusatzvereinbarung wurde die Notwendigkeit betont, alle im Rahmen dieses Vertrages durchgeführten Aufgaben und erzielten Ergebnisse der zuständigen Kontrollbehörde EURATOM zur Kenntnis zu bringen und mit ihr abzustimmen.

Gleichzeitig sollen die Ergebnisse und erstellten Unterlagen auch für die neugeplante NUKEM-Anlage anwendbar sein. Die sachliche Zielsetzung des Vertrages wurde bereits in /KFK 1852,S.158/ beschrieben.

2. Erprobung einer realen Bestandsaufnahme im Rahmen des Zusammenarbeitsvertrages

In der Prioritätsliste lag der Programmpunkt 4: Erarbeitung und Erprobung einiger Verfahren zur Bestimmung des realen Spaltstoffbestandes an erster Stelle. Demgemäß wurde im Beisein von EURATOM-Inspektoren eine reale Bestandsaufnahme durchgeführt, deren zeitlicher Ablauf sorgfältig vorbereitet wurde, mit dem Ziel, die Produktionsausfallverluste, die sich bei einer physischen Inventur zwangsläufig ergeben, zu minimieren.

Im einzelnen wurden hierzu folgende Maßnahmen getroffen:

- a) Planung eines Inventurzeitintervalles, das im Rahmen der vorgegebenen Randbedingungen (Häufigkeit und Intensität der Inventuren) minimale Produktionsausfallverluste erwarten läßt. (hier 43. Kal.Woche)
- b) Spaltstoffverarmung in den Prozeßbereichen, in denen das Material in einer nichtmeßbaren Form vorliegt, d.h. z.B. weitgehende Aufarbeitung von Schrotten oder Entleerung der Konversionsanlage, Schmelzöfen usw.

- c) Sammeln von spaltbarem Material in meßbaren Inventurchargen und Transport desselben zu den dafür vorgesehenen Schlüsselmeßpunkten.
- d) Kennzeichnung aller Inventurchargen mit Identifikationskarten (tag) und Aufstellung der Bestandslisten (PIL) und deren Übertragung in dafür vorgesehene Formulare.

i) Produktionsbereiche

Um die Wartezeiten in den 13 Produktionsbereichen so klein wie möglich zu halten, wurden 3 Inventurteams gebildet, die die vom Betrieb aufgestellten Inventarlisten (PIL) mit dem realen Bestand verglichen.

Der Stichzeitpunkt für die Inventur der Produktionsbereiche war Montag 8.00 Uhr. Das Inventar sollte dann bis zur Bestandskontrolle nicht mehr verändert werden. Die Kontrolle begann, wie vorher abgesprochen, in den Bereichen Kerneanlage, THTR-Produktion und MTR-Zwischenlager. Alle Lagerräume wurden bei Beginn der Kontrolle versiegelt, um einen unkontrollierten Transport zwischen Betrieb und Lager auszuschließen. Die Kontrolle der Inventarlisten der Betriebe konnte bis zum Montag abend abgeschlossen werden. Es stellte sich heraus, daß es wegen der Kürze der Zeit nicht möglich war, Proben zu nehmen oder Gewichte zu bestätigen. Diese Maßnahmen mußten daher auf den folgenden Tag verschoben werden.

ii) Lagerbereiche

Die Inventur der Lagerbereiche wurde am Dienstag und Mittwoch durchgeführt. Es war für diese Bereiche nicht möglich, die Inventurlisten vorab zu erstellen, da bis zum Beginn der Inventur laufend Bestandsveränderungen stattfanden. Das Inventar wurde deshalb im Beisein von EURATOM-Inspektoren aufgenommen und gleichzeitig die Richtigkeit der Inventurlisten geprüft. Auch hier wären Probenahmen und/oder Gewichtskontrollen während der Bestandsprüfung zu zeitraubend gewesen und wurden daher im nachhinein vorgenommen.

iii) Probenahme, Messungen

Bereits während der Kontrolle der Inventarlisten wurden stichprobenartig Gewichtskontrollen und grobe Anreicherungskontrollen mit einfachen Strahlungsmessern vorgenommen. Die eigentliche Probenahme für die Verifikation erfolgte nach der Bestandsprüfung durch einen von EURATOM-Inspektoren ausgearbeiteten Stichprobenplan, der sich an der Menge und Anreicherung des Kernmaterials in den einzelnen Chargen orientierte. Einige Chargen waren von dieser Probenahme ausgenommen worden, weil das Material nicht zugänglich gemacht oder nicht mehr als Inventurcharge zum Zeitpunkt der Probenahme identifiziert werden konnte.

Der gewählte Stichprobenumfang geht aus der folgenden Tabelle hervor.

Tab.1 :Stichprobenumfang für hochangereichertes Uran bei der realen Spaltstoffbestandsaufnahme

Materialart	Probenumfang			Probenmenge kg U ($w^{25} \geq 90\%$)
	Anzahl d. untersuchten Chargen	Anzahl d. in diesen Chargen vorhandenen Posten	Anzahl d. in diesen Chargen gemessenen Posten	
Partikel	14	ca. 250	29	1,2
Bildchen (Cermet)	6	168	168	5,00
MTR-/RHF Platten	15	300	300	9,00
Summe	35	718	497	15,2
Gesamtinventar	1285	-	-	1929
relativer Probenumfang %	2,7	-	-	0,79

+) gammaspektrometrisch

Während für die Bildchen und Platten eine 100 %ige Nachmessung der Posten in den ausgewählten Chargen durchgeführt wurde, wurden bei den Partikeln nur ca. 12 % der Posten nachgeprüft. Insgesamt wurden mit dem gewählten Probenumfang weniger als 1 % des Gesamt-Uran-Inventars erfaßt. Dieser Anteil sagt allerdings noch nichts über die statistische Aussage der Stichprobe aus. Das Ziel einer solchen Stichprobe ist die Entdeckung des Anteiles an Inventurchargen, die falsche Angaben (bewußt oder unbewußt) auf ihren Identifikationskarten haben. Zur Anwendung kommt das sog. "attribute sampling"-Stichprobenverfahren.

Mit den Größen:

N = Gesamtzahl der Inventurchargen

n = Stichprobenanzahl

r = Anzahl der Chargen, die falsche Materialangaben haben

$1-\beta$ = Vorgabe für das Vertrauensmaß der Inspektoraussage

gilt unter der Voraussetzung $r \ll N$ folgende Relation:

$$1-\beta = 1-(1-r/N)^n .$$

Mit dem Stichprobenumfang dieser Inventur ergeben sich folgende Zahlenwerte:

Tab. 2: Statistische Auswertung der Stichprobe ($N = 1285$, $n = 35$)

$1-\beta$	0.80	0.90	0.95	0.99
r/N	0.045	0.064	0.082	0.123
r	58	81	105	158

Die Inspektoraussage, die nun mit dieser Stichprobe möglich ist, lautet:

Im Falle, daß in den n gemessenen Chargen keine Charge mit falschen Angaben gefunden wurde, kann man mit $(1-\beta) \cdot 100$ % Vertrauen annehmen, daß in den restlichen Chargen weniger als r Chargen sind, die falsche Angaben haben.

iv) Personalaufwand

Der Personalaufwand, der der Fa. NUKEM anlässlich dieser Inventurerprobung entstand, betrug 144 Manntage. Die Hauptkomponenten waren dabei trotz der intensiven Vorbereitung Wartezeiten der Mitarbeiter in den Produktionsbereichen und Zeiten für die Erstellung, Überprüfung und Komplettierung der Inventurlisten. Diese Zahlen geben Anlaß zu einer gründlichen Überprüfung des Verfahrens.

Ansatzpunkte für eine Aufwandreduktion sind bei EDV-Einsatz sowie bei einigen organisatorischen Maßnahmen bei der Zusammenfassung von Inventurchargen und der vorgeschlagenen Formblätter für die Bestandslisten zu sehen.

Kapitel 7: Internationale Zusammenarbeit

7.1 Zusammenarbeit mit EURATOM/ESARDA

Die ursprüngliche Forschungs-Assoziation EURATOM-GfK wurde im Jahre 1973 um Großbritannien und Dänemark erweitert. Dadurch ist die Assoziation die wichtigste Koordinierungs- und Planungsstelle für die F.+E.-Arbeiten zur Spaltstoffüberwachung im europäischen Raum geworden. Neben EURATOM und GfK sind z.Zt. CEN (Belgien), CNEN (Italien), RCN (Niederlande) Reaktorzentrum (Dänemark) und UKAEA (England) Mitglieder dieser Assoziation. Die Assoziation trägt den Namen ESARDA (European Safeguards Research and Development Assoziation).

7.1.1 Arbeitsausschüsse der ESARDA

Im Januar 1973 wurde in einer Sitzung des Lenkungsausschusses beschlossen, innerhalb der Assoziation 4 Arbeitsausschüsse zu gründen, die feststellen sollen, in welcher Weise die Ergebnisse der F+E.-Arbeiten der Assoziation für die Implementierung der Sicherheitskontrollmaßnahmen durch Euratom und IAE0 eingesetzt werden können. Die 4 Bereiche sind Versiegelungsmaßnahmen, Isotopenkorrelationen, Instrumentenentwicklung und Systemanalyse (z.B. Fehlerfortpflanzung, Stichprobenplan usw.).

Alle vier Ausschüsse, bei deren Arbeiten das Projekt maßgeblich beteiligt war, konnten im Laufe des Jahres die notwendigen Informationen zusammenstellen und einige wichtige Empfehlungen ausarbeiten, die dann während des Informationssymposiums in Rom vor einem breiten Kreis der Beteiligten diskutiert werden sollten. Besonders erwähnenswert ist die Fertigstellung von vorläufigen "Guidelines" durch den Ausschuss 'Systemanalyse' /7-1/. In dieser Arbeit sind diejenigen Begriffe aus den Bereichen der Statistik und Wahrscheinlichkeitstheorie definiert bzw. abgeleitet worden, die für die Überwachungsorganisation bzw. Anlagenbetreiber im Zusammenhang mit der Sicherheitskontrolle von Bedeutung sind. Außerdem sind die wichtigsten und am häufigsten verwendeten mathematischen Methoden für die Bestimmung des Unsicherheitsbereiches einer Spaltmaterialbilanz unter Berücksichtigung von zufälligen und verschiedenen Arten von systematischen Meßfehlern, Erstellung von Stichprobenplan, Berechnung der Entdeckungswahrscheinlichkeiten einer signifikanten Menge usw. zusammengestellt. Die "Guidelines" enthalten eine große Anzahl von praktischen Beispielen mit Betriebsdaten aus verschiedenen

Kernanlagen, in denen die Anwendung dieser Methoden genau gezeigt wird. Die "Guidelines" werden beim Rom-Symposium verteilt.

Erwähnenswert sind auch die Ausschüßarbeiten zu den Meß- und Versiegelungsmethoden und Korrelationstechniken. Das von Euratom entwickelte Siegelssystem wurde in Brennelementen für 2 Leistungsreaktoren in der BRD (Kahl und Gundremmingen) zur Erprobung eingesetzt. An Hand einer Fragebogenaktion bei den Betreibern der Leistungsreaktoren der Gemeinschaft, organisiert und durchgeführt vom Arbeitsausschuß 'Isotopenkorrelation', konnte festgestellt werden, daß ein großer Teil der Betreiber, die geantwortet haben (bis jetzt haben von den 31 der aus 6 Ländern der Gemeinschaft Befragten 11 aus 5 Ländern geantwortet, wovon 9 sich positiv geäußert haben), positiv gegenüber einer Bereitstellung von erforderlichen Informationen zu Isotopenkorrelationen steht, vorausgesetzt, daß einige Bedingungen bei der Verwendung dieser Informationen erfüllt sind. Eine ähnliche Bereitschaft ist auch von seiten der Betreiber der Wiederaufarbeitungsanlagen der Gemeinschaft zu erwarten. Die Vorteile der Verwendung von Korrelationstechniken für Betrieb und Überwachung in kerntechnischen Anlagen werden allen Beteiligten immer deutlicher. Es ist vorgesehen, eine Datenbank für Korrelationen im Forschungszentrum Ispra einzurichten.

Der Ausschuß zu den Meßmethoden hat mit einer Gesamtbestandsaufnahme der angewandten, für die Überwachung relevanten Meßmethoden begonnen und hat dem Lenkungsausschuß empfohlen, einige namhafte in diesem Bereich arbeitende Wissenschaftler der Gemeinschaft zu bitten, in Übersichtsvorträgen den Stand der Entwicklung und Anwendung beim Rom-Symposium vorzutragen und zur Diskussion zu stellen.

7.1.2 Vorbereitung für das Informations-Symposium, Rom

Das endgültige Programm für das Informations-Symposium, das von der ESARDA organisiert wurde, wurde im Laufe des Jahres festgelegt. Danach waren in 3 Sitzungen 9 Übersichtsvorträge vorgesehen, die einen Gesamtüberblick über die Grundsätze und Voraussetzungen zur Überwachung im friedlichen Sektor der Kernenergie über F+E,-Arbeiten und die angewendeten Methoden im Bereich der Überwachung in geschlossener Form geben sollen. In allen Sitzungen wurden außerdem ausführliche Diskussionsmöglichkeiten und Zeit für kurze Beiträge

vorgesehen, so daß die Meinungen aller Beteiligten (Anlagenbetreiber, Forschungszentren, Regierungsstellen, Euratom) über Probleme und wünschenswerte F+E.-Arbeiten erörtert werden konnten.

Bei der Planung und Gestaltung des Symposiums hat das Projekt besonders aktiv mitgewirkt. Neben der Beteiligung bei der Fertigstellung des Hauptprogrammes wurden vom Projekt insgesamt 6 schriftliche wissenschaftliche Beiträge eingereicht. Außerdem wurde das Projekt gebeten, den Vorsitz der Schlußsitzung zu führen, in der die Empfehlungen aus dem Gesamtsymposium diskutiert und ausgearbeitet werden sollen. Das Projekt wird auch die Zusammenfassung der Schlußergebnisse des Symposiums vornehmen.

7.2 Zusammenarbeit mit der IAE0

Die Zusammenarbeit mit der IAE0 läuft nach wie vor in zwei Ebenen, nämlich in der Form von Forschungsaufträgen sowie durch Beteiligung des Projektes in IAE0-Arbeitsausschüssen. Die Arbeiten im Rahmen des IAE0-Auftrages über die Anwendung von entscheidungstheoretischen Modellen zur Überwachung sind unter Systemanalyse beschrieben.

7.2.1 Arbeitspanel über nichtradioaktive Abfälle aus Kernanlagen

Im Juli veranstaltete die IAE0 ein Arbeitspanel über nichtradioaktive Abfälle aus Kernanlagen, an dem auch das Projekt teilnahm. Hauptergebnisse dieses Panels (an Hand der von den beteiligten Staaten bereitgestellten ausführlichen Unterlagen) war die Feststellung, daß die der nuklearen Brennstoffzyklusindustrie-spezifischen freigesetzten nichtradioaktiven Abfälle im Verhältnis zu anderen Sektoren der Industrie sehr klein und deshalb nicht besorgniserregend sind. Jedoch werden häufig (gerade wegen der Anwesenheit von radioaktiven Stoffen) spezifische Verfahren für die Beseitigung von kleinen Mengen an nichtaktiven Abfällen in der Kernindustrie entwickelt, die auch in anderen Zweigen der Industrie eingesetzt werden können.

7.2.2 Arbeitspanel über staatliche Systeme

Das Arbeitspanel in Tokio über "Systems of Accounting for and Control of Nuclear Material", veranstaltet von der IAE0 in Tokio, ging auf eine Anregung Japans zurück. In diesem Panel sollten die Experten aus mehreren

Ländern die IAEO beraten, wie ein Staatssystem zur Buchführung und Kontrolle aussehen könnte. Das Projekt hat bei der Planung und Formulierung der Empfehlungen dieses Panels mitgearbeitet. Aus IAEO-internen Gründen ist die endgültige Fassung der Ergebnisse dieses Panels den Teilnehmern noch nicht zur Stellungnahme bereitgestellt worden.

7.3 Gedankenaustausch mit Vertretern verschiedener Stellen in den USA

Einer Einladung des ehemaligen Direktors der Überwachungsorganisation der USAEC folgend, besuchten vier Mitglieder des Projektes während der Zeit vom 23.8. - 20.9.73 mehrere Einrichtungen in den USA. Der Besuch wurde in zwei Phasen durchgeführt:

Phase I: Diskussionen bzw. Besichtigungen in Zusammenhang mit Spaltstoffschutzmaßnahmen, der Überwachung in Anreicherungsanlagen, Anlagen für Wiederaufarbeitung und Reaktorstationen sowie BNL (Siegel).

Phase II: Diskussionen, Gedankenaustausch und Besuch von Anlagen, Forschungszentren und Herstellungsfirmen in Zusammenhang mit zerstörungsfreien Instrumenten.

Das gesamte Programm wurde von der USAEC mit Unterstützung der ACDA (Arms Control and Disarmament Agency) und in Abstimmung mit der Projektleitung der SpFK ausgearbeitet. Die Diskussionen und Besichtigungen zum Thema Urananreicherung wurden im Zusammenhang mit den regelmäßigen Tripartite-Konsultationen (Deutschland, England, Niederlande mit den USAEC und ACDA) von den beteiligten Regierungsstellen organisiert. Während des gesamten Aufenthaltes der Mitglieder des Projektes in den USA wurden sie von Vertretern der USAEC begleitet, um mögliche Schwierigkeiten aus dem Weg zu räumen. Die Organisation und Unterstützung waren während des ganzen Aufenthaltes beispielhaft.

Die wichtigsten Informationen und Ergebnisse sind in drei verhältnismäßig ausführlichen internen Reiseberichten ⁺) festgehalten. Einige erwähnenswerte Informationen und Ergebnisse sind hier aufbauend auf den genannten Berichten zusammengefaßt.

⁺) Interne Berichte: (1) D. Gupta, Bericht über die USA-Reise: 23.8. - 9.9. 1973. (2) D. Nentwich, Bericht über die USA-Reise: 29.8. - 9.9. 1973. (3) C. Weitkamp, Einsatz zerstörungsfreier Meßverfahren für die Spaltstoffflußkontrolle in den USA; Bericht über eine Reise von K. Böhnelt und dem Autor in der Zeit vom 4. - 8.9.1973

7.3.1 Überwachungssystem, allgemein (Bericht D. Gupta)

- a) Die USAEC und ACDA haben gemeinsam (mit Unterstützung der IAEO) ein Instrumentierungsprogramm für eine Wiederaufarbeitungsanlage unterstützt, dessen Ziel es war, die Bewegung und den Fluß des Spaltstoffes an einigen Schlüsselmeßpunkten zu erfassen und festzustellen. Ein ähnliches Programm wird auch von der ACDA und der Atomenergie-Kommission Kanada für Schwerwasserreaktoren (auch mit der Unterstützung der IAEO) durchgeführt. Fast alle Instrumente sind in den entsprechenden Anlagen eingesetzt, bedürfen jedoch noch der Erprobung unter Betriebsbedingungen.
- b) Die USAEC und ACDA sind an einer gemeinsamen Erprobung von Meß- und Beobachtungsinstrumenten in Urananreicherungsanlagen mit Gasultrazentrifugen mit den Tripartite-Ländern interessiert. Sie haben sich bereiterklärt, bis Ende des Jahres eine ausführliche Liste der infrage kommenden Instrumente mit Angaben über die Eigenschaft, den erforderlichen Raumbedarf, das Betriebspersonal, das Arbeitsprogramm usw. zu erstellen und der Tripartite-Gruppe zukommen zu lassen. Es könnte dann entschieden werden, welche der Instrumente, wann, wo und wie lange erprobt werden sollen.

Während eines Besuches in der Diffusionsanlage, Portsmouth, Columbus, wurde vom Anlagebetreiber mitgeteilt, daß die n- und γ -Messungen zur Bestimmung der U-235-Konzentration in flüssigem UF_6 neben der Massenspektrometrie im Routinebetrieb eingesetzt wurden. Der Betreiber bevorzugt die γ -Messung hauptsächlich aus Gründen der Einfachheit und Kostenersparnis. Die Meßgenauigkeit der γ -Messung (Reproduzierbarkeit) liegt bei etwa 0,6 % relativ (2σ -Wert für 3 %iges U-235). Das γ -Meßsystem, das etwa 6 Monate in Betrieb war, lief ohne nennenswerte Störungen.

7.3.2 Stand der Erprobung und Entwicklung von zerstörungsfreien Instrumenten in den USA (Bericht C. Weitkamp)

- a) Die amerikanischen Entwicklungen sind noch stark von der Gesamtmengenbestimmung im Sinne klassischer Spaltstoffflußkontrolle geprägt, während in der Bundesrepublik stärker versucht wird, betriebliche Aspekte schon in das Konzept mit einzubeziehen. Quantitativ haben die Arbeiten durch den frühen Beginn und die große Personalstärke (die Gruppe in LASL besteht allein aus 28 Leuten!) in den USA ein ungeheures Arsenal an Instrumenten geschaffen, von denen Laborausführungen vorliegen. Außerdem gibt es in

den USA mindestens 3 Herstellerfirmen, die im Prinzip verschiedene Meßsysteme den Kernanlagenbetreibern anbieten. Jedoch haben die Systeme z.Zt., mit Ausnahme eines einzigen Typs (ein hochintegriertes tragbares γ -Ein- oder Zweikanal-Meßgerät, genannt SAM-1 bzw. SAM-2), eine Lieferzeit von 6 bis 12 Monaten, da meist zusätzliche Entwicklungsarbeiten erforderlich sind, um das Meßsystem den spezifischen Bedingungen einer Anlage anzupassen.

- b) Forschungszentren wie LASL und früher BNL liefern gelegentlich die von ihnen entwickelten Meßsysteme unentgeltlich an die Anlagenbetreiber zur Erprobung. Jedoch ist der oberste Grundsatz bei der Finanzierung von Safeguardsmaßnahmen für die USAEC die Vermeidung von Wettbewerbsverzerrungen zwischen den einzelnen Unternehmen. Das bedeutet, daß Maßnahmen, die alle Unternehmen gleichermaßen belasten, als unabwendbare Begleiterscheinung des Betriebs gesehen werden. Die Tatsache, daß diese Belastungen relativ gelassen hingenommen werden, liegt an ihrer vergleichsweise geringen Höhe, die auch in den USA neben den Kosten für Schutzmaßnahmen eine untergeordnete Rolle spielt bzw. spielen wird.
- c) Trotz der bisher verhältnismäßig bescheidenen Umsätze der Hersteller zerstörungsfreier Meßsysteme läßt sich bei ihnen ein Optimismus bezüglich der Anwendung dieser Meßsysteme erkennen. Sie vertrauen zu Recht darauf, daß sich die Meinung auch praktisch durchsetzt, daß die Vorteile zerstörungsfreier Verfahren (z.B. Schnelligkeit der Messung, sofortige Verfügbarkeit der Ergebnisse, Verhinderung von Probenahmefehlern, Wiederholbarkeit der Messungen usw.) ihre Nachteile (etwa geringe Erfahrung, Erfordernis geschulten Personals, teure Eichprobensätze usw.) aufwiegen.
- d) Es wurde festgestellt, daß ein dezidiertes Interesse bei mehreren Forschungsstellen der USA existiert, mit dem Projekt zusammenzuarbeiten, nicht allein durch Austausch von Veröffentlichungen (der bereits existiert) sondern auch durch z.B. Wissenschafmleraustausch und gemeinsame Erprobung der gleichen Methoden usw.

7.3.3 Spaltstoffschutzsysteme (Bericht D. Gupta, D. Nentwich)

- a) Von der Struktur her hat sich der bisher von der USAEC praktizierte Objektschutz aus dem militärischen Bereich heraus entwickelt. Dominierend war hier der massive Einsatz von bewaffnetem Wachpersonal. Jedoch sind in den USA die Personalkosten in der letzten Zeit derart rapid in die Höhe gegangen (z.Z. kostet eine Wachmannstelle, die 24 h besetzt ist, ca. US\$ 60.000,-- p.a.), daß eine Verschiebung immer mehr auf Überwachungsgeräte hin stattfindet.
- b) Die Sicherungsphilosophie und das Gesamtverfahren beim Aufbau des Schutzsystems im friedlichen Sektor der Kernenergie zeigen ausgeprägte pragmatische Züge. Es wird nicht sehr viel über das Gesamtsystem polemisiert. Einige Gefahrenstrategien werden a priori festgesetzt und das System danach aufgebaut. Z.B. wird z.Zt. als die wichtigste Gefahrenstrategie ein Angriff von etwa 10 bewaffneten Personen mit Maschinengewehren auf eine Kernanlage festgelegt. Man ist der Meinung, die Organisation einer größeren Gruppe würde durch Gegenspionage rechtzeitig entdeckt werden können.
- c) Die Vorstellungen der USAEC und des Projektes über die notwendigen Grundelemente des Spaltstoffschutzsystems einer Kernanlage stimmen weitgehend überein. Mehrere Stellen der USAEC zeigten ein positives Interesse an einer Zusammenarbeit mit dem Projekt SpFK bei den SSM. Neben einem regelmäßigen Gedanken- und Informationsaustausch kann sich diese Zusammenarbeit auf die gegenseitige Erprobung von verschiedenen Hardwarekomponenten ausdehnen. Die USAEC hat dem Projekt schon umfangreiches Informationsmaterial über Hardware und Auflagen zur Verfügung gestellt.

Referenzen

/7-1/ W. Zijp, R. Avenhaus, H. Frick, G. Hartmann

"Guidelines for the Evaluation of Data in Nuclear Material
Accountability and Safeguards Statistical Methods and Examples"
ESARDA-1 (March 1974)