

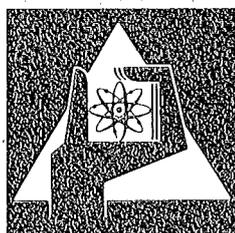
**KERNFORSCHUNGSZENTRUM
KARLSRUHE**

Dezember 1975

KFK 2206

Projekt Spaltstoffflußkontrolle

JAHRESBERICHT 1974



**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 2206

Projekt Spaltstoffflußkontrolle

Jahresbericht 1974

Gesellschaft für Kernforschung mbH., Karlsruhe

Dieser Bericht wurde zusammengestellt

von

G. Bork

und enthält Beiträge von

A.v.Baeckmann⁴, W. Bahm¹, H. Bernhard⁴, W. Beyrich⁶, U. Bicking¹,
K. Böhnel³, G. Bork¹, R. Braun⁴, Chr. Brückner¹, H. Büker⁷, W. Coerdts⁴,
A. Cricchio⁵, H. Deutsch⁴, E. Drosselmeyer¹, H. Frick¹, E. Gantner⁴,
D. Gupta¹, J. Hanif⁴, G. Hartmann¹, L. Koch⁵, W. König⁴, U. Kotte⁷,
E. Mainka⁴, K. Matern⁴, P. Matussek², J. Neuber⁴, H. Ottmar², I. Piper²,
H. Ruf⁴, W. Rust¹, D. Sellinschegg¹, G. Stein⁷, M. Wilhelmi⁴

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

⁵Europäisches Institut für Transurane

⁶delegiert von EURATOM

⁷Kernforschungsanlage Jülich

Annual Report 1974

This report is a description of major activities performed in 1974 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 and some industrial firms.

Zusammenfassung

Der vorliegende Bericht beschreibt die Arbeiten am Projekt Spaltstoffflußkontrolle, die von den an diesem Projekt beteiligten Instituten der Gesellschaft für Kernforschung, Karlsruhe, dem Europäischen Institut für Transurane und einigen Industriefirmen im wesentlichen im Jahre 1974 durchgeführt wurden.

<u>Inhaltsübersicht</u>	<u>Seite</u>
Einführung	1
<u>Kapitel 1: Systemanalytische Arbeiten</u>	1-1
1.1: IAEA-Forschungsauftrag zur Optimierung von Überwachungsmaßnahmen	1-1
1.1.1: Theoretischer Teil	1-1
1.1.2: Optimale Verteilung des Überwachungsaufwandes	1-3
1.2: Weiterentwicklung des n-fachen Inventurmodells	1-4
Literaturverzeichnis zu Kapitel 1	1-6
<u>Kapitel 2: Zerstörungsfreie Methoden</u>	
2.0: Einführung	2-1
2.1: Gammaspektrometrische Anreicherungsmessungen an oxidischem Uran	2-2
2.1.1: Untersuchungen zum Einfluß des Probenalters	2-2
2.1.2: Stabilitätsverhalten eines kommerziellen Anreicherungsmeßgerätes	2-15
2.1.3: In-Line-Messungen der ²³⁵ U-Anreicherung in einer LWR-Brennelement-Fabrikationsanlage	2-23
2.1.4: Anreicherungsmessung am Einzelpellet und am Brennstab	2-33
2.2: Gammadetektionssystem für Personenschleuse	2-37
2.3: Neutronenkoinzidenzmessungen zur Plutoniumbestimmung	2-41
2.3.1: Statistischer Fehler	2-41
2.3.2: Multiplikationseffekte	2-44
2.3.3: Abfallmessungen	2-46
Literaturverzeichnis zu Kapitel 2	2-49

Kapitel 3: Direkte Verfahren

3.0:	Einführung	3-1
3.1:	Serviceleistungen der Analytik des Instituts für Radiochemie	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 Plutoniumkonzentrationsbestimmung durch Röntgenfluoreszenzanalyse	3-7
3.2.3:	Interlaboratoriumstests von Direktverfahren	3-2
3.3:	Bestimmung von Uran in HTR-Brennelementen durch differentielle Gamma-Absorptiometrie	3-36

Literaturverzeichnisse bei den einzelnen Unterkapiteln

Kapitel 4: Spaltstoffschutzmaßnahmen

4.1:	Entwicklung eines Informationssystems	4-1
4.2:	Planung der zukünftigen Arbeiten	4-3

Kapitel 5: Experimentelle Prüfung von Überwachungsmaßnahmen

5.2:	Interlaboratoriumstests	5-1
5.2.1:	Interlaboratoriumstest IDA-72	5-1
5.2.2:	Test der Auswertemethoden für Alphaspektren "ASET-74"	5-2
5.2.3	UF ₆ -Interlaboratoriumstest	5-2

Literaturverzeichnis zu Kapitel 5 5-4

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

6.1:	Leichtwasserreaktoren	6-1
6.2:	Kernkraftwerk Kalkar (SNR 300)	6-5

Kapitel 6:

6.3:	Überwachungsmaßnahmen für Zentrifugenanlagen	6-9
6.4:	WAK	6-16
6.5:	NUKEM	6-18
6.6:	Überwachungsmaßnahmen für Kernforschungszentren und Hochtemperatur-Reaktoranlagen	6-22

Kapitel 7:

7.1:	Rom-Symposium	7-1
7.2:	Zusammenarbeit innerhalb ESARDA	7-3

Jahresbericht 1974
des Projektes Spaltstoffflußkontrolle

Einführung

D. Gupta, EKS

Die in den Jahren 1972/73 begonnenen Tätigkeiten zur Feststellung und Bearbeitung von Problemen bei der Einführung der IAEA/EURATOM-Kontrolle wurden auch 1974 weitergeführt. Diese mit den betroffenen Anlagenbetreibern der BRD gemeinsam durchgeführten Arbeiten haben deutlich werden lassen, daß sowohl die betrieblichen Bedingungen in den kerntechnischen Einrichtungen der BRD als auch die Überwachungsmaßnahmen in mehreren Bereichen sorgfältig miteinander abgestimmt werden müssen. Sonst werden einerseits die betrieblichen und finanziellen Belastungen der Betreiber unnötig hoch und andererseits die Erzeugung von überwachungsrelevanten Informationen und die Durchführung von Überwachungsmaßnahmen erschwert. Außerdem wird es notwendig sein, neue Überwachungskonzepte für großtechnische Anlagen wie z.B. Wiederaufarbeitungs- und Urananreicherungsanlagen, aufbauend auf den Grundzügen des IAEA/EURATOM-Überwachungssystems auszuarbeiten, da diese Anlagen unter gegenüber den jetzigen völlig geänderten Bedingungen betrieben werden.

Diese Feststellung bestimmte den Umfang und die Arbeitsrichtung der Projekt-tätigkeiten im Bereich der Zusammenarbeit mit den Betreibern für kerntechnische Einrichtungen und wird dies auch in absehbarer Zukunft tun.

Die systemanalytischen Arbeiten des Jahres 1974 richteten sich hauptsächlich auf eine Vertiefung der Untersuchungen im Zusammenhang mit der Optimierung des Überwachungsaufwandes in kerntechnischen Anlagen. Die Ergebnisse dieser Untersuchungen haben wieder deutlich gemacht, daß diese Art von Untersuchungen ständig von den Überwachungsorganisationen durchgeführt werden müssen, um von deren Seite unnötige bzw. Fehlinvestitionen an Inspektions- und anderen Arten von Überwachungsaufwand zu vermeiden. Die Methoden für diese Art von komplexer Optimierung wurden teilweise vervollständigt.

Der vom BMFT 1973 eingesetzte "Ad-hoc-Ausschuß: Meßinstrumente für Überwachungsmaßnahmen nach dem NV-Vertrag" beendete im Jahre 1974 weitgehend seine Arbeiten. Der Ausschuß war beauftragt worden, eine Bestandsaufnahme und Analyse der Meßinstrumente anzufertigen, die für eine Überwachung an den strategischen Punkten des Brennstoffzyklus verfügbar waren. Außerdem sollten Unterlagen für ein Beratungsgremium vorbereitet werden, das sich mit der Frage der Normen für die Meßgenauigkeit für die Materialbilanzierung befassen sollte /1-1/.

Eine Bestandsaufnahme der in Europa, USA und Japan - nach Angaben der entsprechenden Stellen - vorhandenen Geräte bzw. der auf dem Weltmarkt käuflichen Geräte zeigte zu diesem Zeitpunkt (Herbst 1974), daß in den USA und Europa praktisch keine Geräte für einen spezifischen Einsatz in einer Anlage der BRD zu kaufen waren. Später änderte sich die Situation geringfügig, jedoch änderte sich nichts an der Tatsache, daß die meisten der vorhandenen Meßsysteme, die für einen bestimmten Meßpunkt in einer Anlage in Betracht gezogen werden können, zuerst den besonderen Gegebenheiten dieser Anlage angepaßt und unter Betriebsbedingungen erprobt werden müssen, ehe sie für diesen Punkt eingesetzt werden können. Außerdem stellte der Ausschuß fest, daß ein echter Markt für Instrumente für die Überwachung nach dem NV-Vertrag nicht existiert, wenn auch in allen wichtigen Forschungszentren der USA, Japans und der Europäischen Gemeinschaft die unterschiedlichsten Methoden erprobt wurden und werden und von einzelnen Herstellern Geräte angeboten werden. Die Überwachungsorganisationen waren noch nicht in der Lage, detaillierte Angaben über Gerätetypen bzw. erforderliche Meßgenauigkeiten zu machen.

Eine Fragebogenaktion, die durchgeführt wurde, um den Bedarf der Betreiber an Meßinstrumenten erkennen zu können, führte zu dem Ergebnis, daß die folgenden Geräte noch nicht vorhanden sind, jedoch auch für betriebliche Zwecke für notwendig erachtet werden:

1. Zerstörungsfreie Messung im Ausgang des Fertigungsbereiches für BE-Stäbe (Stabmeßgeräte sowohl für UO_2 -, als auch für Mischoxidstäbe)
2. Monitor für Legierungs- und für Cermetbildchen aus rezykliertem, hochangereichertem Uran

3. Uran-Personenschleuse

4. Monitor für Eingangsmessungen an UO_2 -Pellets im Transportbehälter

5. Monitor für feste Abfälle (z.B. in 200 Ltr.-Fässern) für Uran und Plutonium

Als in der Erprobungsphase befindliche Geräte und Methoden, deren Weiterentwicklung nötig erscheint, wurden ermittelt:

6. Plutonium-Personenschleuse

7. Hülsenmonitor für Abfälle in Aufbereitungsanlagen

8. Anreicherungsmonitor für Pu-Nitrat-Gefäße

In der praktischen Erprobung befinden sich augenblicklich:

9. Anreicherungsmonitor für UO_2 -Pulverströme

10. Röntgenfluoreszenzspektrometer

Der Ausschuß empfahl, die unter 1-5 genannten Geräte in Zusammenarbeit zwischen dem Projekt SpFK und dem Betreiber schnellstens zu entwickeln. Die Erprobung der unter 6-8 genannten Geräte sollte fortgeführt und möglichst intensiviert werden. Auftretende Probleme sind durch Anpassung der Geräte an die betrieblichen Gegebenheiten zu lösen.

Zu einem späteren Zeitpunkt sollen dann die in dieser Arbeitsphase ausgeklammerten Fragen der Meßgenauigkeiten aufgegriffen werden.

Die Arbeiten des Ausschusses haben sehr deutlich gezeigt, daß nach wie vor die Meßinstrumente für zerstörungsfreie und direkte Methoden für die Verwirklichung des Überwachungssystems eine unabdingbare Voraussetzung sind. Eine sehr intensive Phase der Erprobung und Anpassung der im Prinzip entwickelten Meßsysteme für die spezifischen Gegebenheiten einer Kernanlage ist jedoch erforderlich, ehe sie optimal in kerntechnischen Anlagen eingesetzt werden können. Die Meßsysteme müssen wo möglich neben den Safeguardserfordernissen

auch die betrieblichen Erfordernisse erfüllen. Da der Markt für diese Instrumente in absehbarer Zeit verhältnismäßig klein bleiben wird, ist es nicht zu erwarten, daß eine Herstellerfirma sich für die kommerzielle Herstellung und den Verkauf solcher Instrumente interessieren wird.

Im Bereich der internationalen Zusammenarbeit stand das Jahr 1974 unter dem Zeichen des Informationssymposiums in Rom. Dieses Symposium, dem eine lange Vorbereitungszeit im Rahmen der ESARDA (European Safeguards Research and Development Association) vorausging, war hauptsächlich zu dem Zweck organisiert worden, den Vertretern der EURATOM-Überwachungsorganisation, den Betreibern von Kernanlagen und den Kernforschungszentren, die mit den F+E.-Arbeiten zur Überwachung beschäftigt waren, einen Gedankenaustausch zu ermöglichen.

Die Diskussionsbeiträge zu allen Vorträgen machten deutlich, für wie notwendig dieser Gedankenaustausch von allen Beteiligten erachtet wurde. Es ist vorgesehen, diese Art von Symposien in regelmäßigen Abständen im Rahmen der ESARDA zu veranstalten. Das Projekt war beauftragt worden, eine Zusammenfassung der Empfehlungen und der Schlußdiskussionen des Symposiums auszuarbeiten.

Die "Proceedings" des Symposiums sind inzwischen erschienen /1-2/.

Innerhalb des Projektes erfuhren die Arbeiten zur Kernmaterial- und Anlagensicherung eine Intensivierung in 1974. Ein detailliertes F+E.-Programm, in das die Ergebnisse der früheren Jahre einfließen, wurde in Abstimmung mit den interessierten Stellen erarbeitet. Die erste Phase der Arbeiten zur Hardware-Katalogisierung wurde mit einem Abschlußbericht beendet.

Die Entwicklungen auf der internationalen Ebene im Jahre 1974, die die Kernmaterialüberwachung berührten, werden die zukünftigen Arbeiten des Projektes in mehreren Bereichen mit bestimmen.

EURATOM muß ihre Ausführungsbestimmungen (Verordnungen 7 und 8, in denen die Durchführungsbestimmungen für die Art. 78 und 79 des römischen Vertrages angegeben sind) für die Durchführung der Überwachung nach dem römischen Vertrag den Bedingungen des Verifikationsabkommens nach dem NV-Vertrag anpassen.

Die ersten Entwürfe der neuen Verordnungen 7 und 8 der Kommission der Europäischen Gemeinschaft lassen erkennen, daß einige Bestimmungen zu zusätzlichen Belastungen für die Betreiber der Kernanlagen in der BRD führen können. Da die einzelnen Staaten der EG die Möglichkeit haben, diese vor der endgültigen Festlegung der Verordnungen zu beeinflussen, hat das BMFT das Projekt gebeten, die Bestimmungen sorgfältig zu analysieren und alternative Vorschläge auszuarbeiten. Dies wird voraussichtlich in den Jahren 1975/76 erfolgen. In diesem Zusammenhang ist zu erwähnen, daß in den nächsten 10-15 Jahren ca. 70-75 % des gesamten Kernmaterials, das in den Nichtkernwaffenstaaten der EG fließen wird, allein in der BRD bearbeitet, transportiert, gelagert bzw. verbraucht wird. Dies hat zur Folge, daß in der BRD auch der (im Vergleich zu anderen Nichtkernwaffenstaaten der Gemeinschaft) höchste Inspektions- und andere Überwachungsaufwand der IAEA und EURATOMs zu erwarten ist.

Das Jahr 1974 war auch gekennzeichnet durch eine verstärkte Aufmerksamkeit der Weltöffentlichkeit auf dem Gebiet der Kernmaterial- und Anlagensicherung. In der BRD selbst wurden Vorkehrungen für eine Verschärfung der Sicherheitsauflagen in Kernanlagen getroffen. Außerdem forderten Kernmateriallieferländer wie die USA entsprechend den in den USA vorgeschlagenen Vorschriften zusätzliche Sicherheits- und Bilanzierungsmaßnahmen in denjenigen Anlagen der BRD, in denen dieses Material bearbeitet wird. Die langfristigen Auswirkungen solcher Maßnahmen, falls sie in deutschen Kernanlagen eingeführt werden, sollen auch vom Projekt untersucht werden.

Die Ergebnisse der Projektarbeiten sowie die Entwicklungen im Jahre 1974 zeigen, daß weitere Arbeiten in den folgenden Bereichen während der nächsten Jahre erforderlich sein werden.

1. Gegenseitige Anpassung der betrieblichen Gegebenheiten in bestehenden kerntechnischen Einrichtungen der BRD und der Ausführungsbestimmungen des IAEA/EURATOM-Überwachungssystems bzw. Entwicklung von Durchführungsmethoden in mehreren Bereichen (z.B. Verfahren zur Inventaraufnahme in BE-Herstellungsanlagen, Datenerfassungssysteme für einzelne Kernanlagen des Brennstoffkreislaufs, Messung und Erfassung von Kernmaterialien im Inventar und in verschiedenen Abfallströmen usw.).

2. Erprobung und Anpassung von anlagenspezifischen Meßsystemen, die im Prinzip schon entwickelt worden sind.
3. Entwicklung und Erarbeitung von Überwachungskonzepten für große Wiederaufarbeitung- und Anreicherungsanlagen, SNR und HTR, Kernforschungszentren und für den Gesamtbrennstoffkreislauf der 80er Jahre in der BRD.
4. Analyse der Auswirkungen der Entwicklungen auf internationaler und nationaler Ebene im Bereich der Überwachung auf die BRD und die deutschen Kernanlagen und Bearbeitung von wissenschaftlich-technischen Unterlagen für die Behebung der negativen Einflüsse dieser Entwicklungen.
5. Forschungs- und Entwicklungsarbeiten zur Kernmaterial- und Anlagensicherung.

/1/: Abschlußbericht des Ad-hoc-Ausschusses beim BMFT "Meßinstrumente für Überwachungsmaßnahmen nach dem NV-Vertrag"
unveröffentlicht

/2/: Practical Applications of R+D in the Field of Safeguards.
Proceeding of a Symposium, Sponsored by the European Safeguards
Research and Development Association, Rome, March 7-8, 1974

Kapitel 1:

SYSTEMANALYTISCHE ARBEITEN

- 1.1 IAEA-Forschungsauftrag zur Optimierung von
Überwachungsmaßnahmen
G. Hartmann

1.1.1 Theoretischer Teil

1.1.2 Optimale Verteilung des Überwachungsaufwandes

- 1.2 Weiterentwicklung des n-fachen Inventurmodells
H. Frick

Literaturverzeichnis zu Kapitel 1



Kapitel 1: Systemanalytische Arbeiten

1.1 IAEA-Forschungsauftrag zur Optimierung von Überwachungsaufwand

Auf der Reaktortagung im April 1974 in Berlin wurde eine Kurzfassung /1/ des IAEA-Forschungsauftrages "Optimization of Safeguards Effort" /3/ vorgetragen. Der Bericht wurde überarbeitet und als KFK-Bericht /2/ veröffentlicht. Diese Arbeiten wurden weitergeführt und die optimale Verteilung des Überwachungsaufwandes näher untersucht /4/.

1.1.1 Theoretischer Teil

Es wurde von den in /1/ oder /2/ geschilderten zwei Arten der Materialentwendung ausgegangen. Über die dazu angestellten theoretischen Überlegungen wurde im Jahresbericht 1973 /6/ berichtet (Entwendung mittels Datenverfälschung im Rahmen der Materialbilanz, MUF-Test, und Entwendung ohne Datenverfälschung im Rahmen der Meßunsicherheit, D-Statistik).

Untersucht wurde jetzt die Gesamtentdeckungswahrscheinlichkeit bei einer Kombination der zwei Entwendungsstrategien. Dazu wurde der Referenzzeitraum auf ein Jahr festgelegt und in zwei Inventurperioden eingeteilt. Am Ende des Referenzzeitraumes soll dann der Inspektor in der Lage sein, eine Aussage über die Gesamtentdeckungswahrscheinlichkeit zu machen bei vorgegebener, von ihm fixierter Gesamtfehlalarmwahrscheinlichkeit.

Der Inspektor steht dann vor dem Problem, die vorgegebene Fehlalarmwahrscheinlichkeit α auf die durchgeführten Signifikanztests zu verteilen und zu bestimmen, mit welcher Entdeckungswahrscheinlichkeit er eine fehlende Menge an Material entdeckt hätte.

Die Gesamtfehlalarmwahrscheinlichkeit α (Null-Hypothese H_0) wird durch folgende Formel gegeben.

$$1 - \alpha = \text{prob} \{ \text{MUF} \leq s_1 \wedge D \leq s_2 / H_0 \}$$

Das heißt, der Inspektor wählt eine Signifikanzschranke s_1 für den Materialbilanztest (MUF) und s_2 für die D-Statistik. Die Gesamt-Nichtentdeckungswahrscheinlichkeit β im Falle einer Entwendung (Hypothese H_1) ist dann gegeben durch:

$$\beta = \text{prob} \{ \text{MUF} \leq s_1 \wedge D \leq s_2 / H_1 \}$$

Die Zufallsvariablen MUF und D werden als normal verteilt angenommen. Sie sind jedoch nicht statistisch unabhängig. In /5/ wird gezeigt, daß diese Abhängigkeit nur schwach ist, deswegen können die obigen Formeln approximiert werden durch:

$$\beta = \Phi \left(U(1-\alpha_1) - \frac{M_1}{\sigma_{\text{MUF}}} \right) \cdot \Phi \left(\frac{U(1-\alpha_2) \cdot \sigma_{D/H_0} - M_2}{\sigma_{D/H_1}} \right)$$

$$1 - \alpha = (1 - \alpha_1) \cdot (1 - \alpha_2)$$

$$M = M_1 + M_2$$

Dabei ist Φ die Verteilungsfunktion der Normalverteilung und U ihre Inverse, d.h., $\Phi(U(x)) = x$. M ist die gesamte im Laufe des Referenzzeitraumes entwendete Materialmenge, M_1 der Anteil, der durch die Unsicherheit der Materialbilanz verschleiert wird und M_2 der Anteil, den die Meßunsicherheiten verbergen. α_1 ist die Fehlalarmwahrscheinlichkeit des MUF-Testes und α_2 die der D-Statistik.

Betreiber und Inspektor sind jetzt an optimalen α_1 und α_2 , M_1 und M_2 interessiert. Optimal bedeutet hier:

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

Die optimalen $\alpha_1^0, \alpha_2^0, M_1^0, M_2^0$ wurden mit Hilfe eines Computerprogrammes berechnet, das den Sattelpunkt einer Funktion in den zwei Variablen X und Y bestimmt (Minimum bezüglich X, dann das Maximum bezüglich Y).

1.1.2 Optimale Verteilung des Überwachungsaufwandes

Als Referenzanlage wurde die NFS bei Buffalo, N.Y., gewählt. Die Anlagendaten sind im Jahresbericht 1973 /6/ zu finden; die benötigten Werte sind im folgenden angegeben: Die Varianz des zufälligen Fehlers der Inventarbestimmung beträgt 0.333 Kg^2 , die Varianz des zufälligen Fehlers der Durchflußmessung in 6 Monaten 16.35 Kg^2 . Damit bestimmt sich die Varianz des MUF zu 17.05 Kg^2 .

Zu Beginn der ersten Inventurperiode fixiert der Inspektor die Gesamtfehlalarmwahrscheinlichkeit α , der Betreiber beschließt, die Menge M zu entwenden. Da beide den ungefähren Durchsatz durch die Anlage sowohl wie Batchgrößen und Meßgenauigkeiten kennen, können sie mit Hilfe des Computerprogrammes optimale (α_1^0, α_2^0) und (M_1^0, M_2^0) berechnen.

Nehmen wir zum Beispiel $\alpha = 10 \%$ an, dann ist $\alpha_1^0 = 3.0 \%$ und $\alpha_2^0 = 7.2 \%$. Die optimalen Mengen M_1^0, M_2^0 sowie die Entdeckungswahrscheinlichkeit in Abhängigkeit von M werden in Figur 2 gezeigt. Der Parameter ist der Aufwand für die D-Statistik. Die Signifikanzschranke für die durchzuführenden Tests kann aus Figur 1 bestimmt werden. In unserem Beispiel beträgt die Fehlalarmwahrscheinlichkeit für den Signifikanztest des MUF 3.0% , die Varianz $33,4 \text{ Kg}^2$. Damit bestimmt sich die Signifikanzschranke s_1 zu 11 Kg , d.h., wenn der MUF größer als 11 Kg ist, wird ein Alarm ausgelöst. Bei 3 von 100 Alarmen wird es sich dann um einen Fehlalarm handeln.

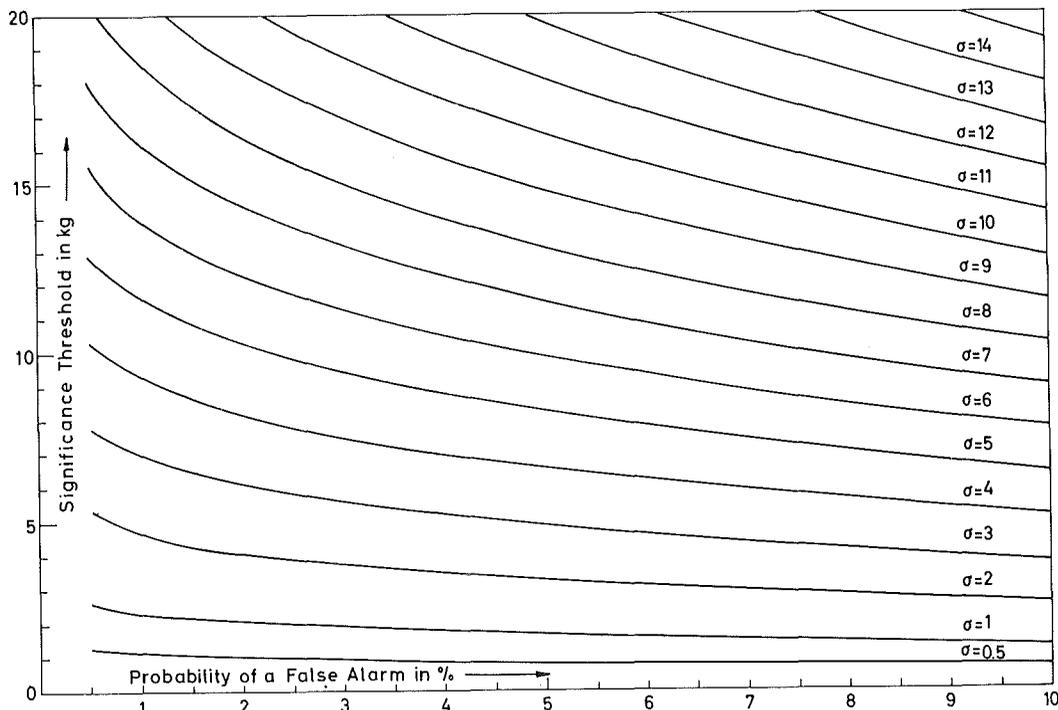


Fig. 1 Significance Threshold s as a Function of the Probability of a False Alarm

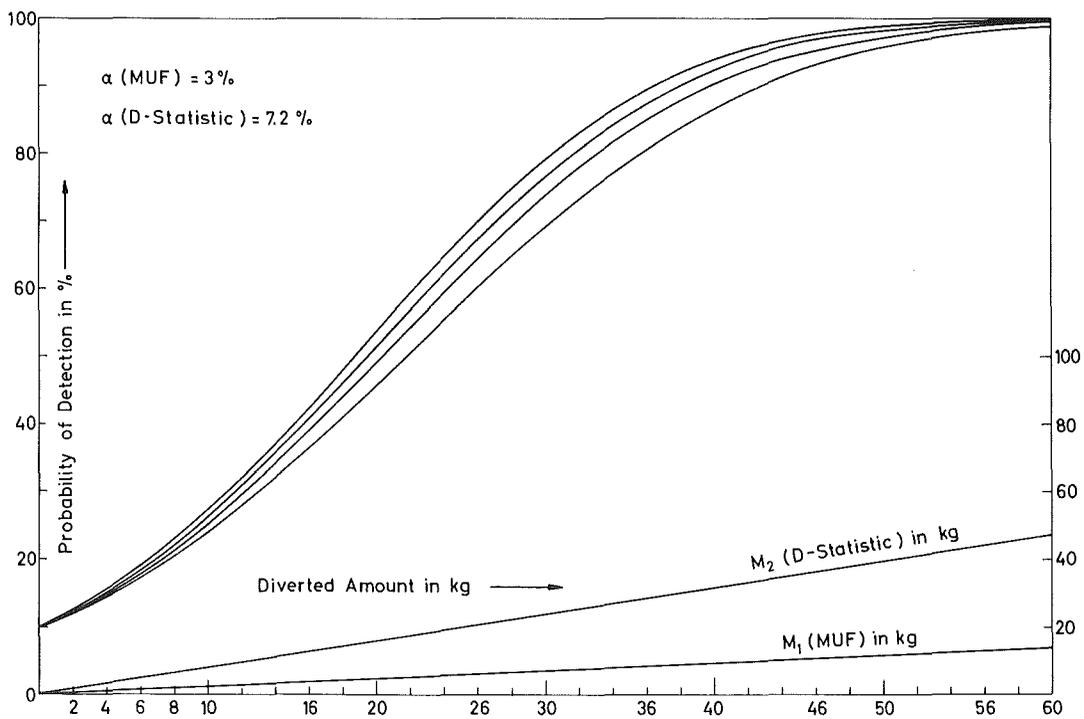


Fig. 2 Probability of Detection, MUF - Test and D-Statistic Combined for a Common Probability of a False Alarm of 10%, Effort for D-Statistic : 100, 20, 10, 5 %

1.2 Weiterentwicklung des n-fachen Inventurmodelles /7/

Mit den Bezeichnungen vom Jahresbericht 73, Kap. 1, Abs. 1.2, hat die garantierte Entdeckungswahrscheinlichkeit des n-fachen Inventurmodells den Wert

$$P^* := 1 - F^* := 1 - \min_{s_1 \in S_1} \max_{s_2 \in S_2} F(s_1, s_2),$$

wobei

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

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

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

Hierbei sind die σ_i Funktionen von Parametern

$$\sigma_{I_r}^2, \sigma_{D_s}^2, \quad r = 0, \dots, n, \quad s = 1, \dots, n$$

Eine Abschätzung von F^* wird erschwert durch das Auftreten der Summen $\sum_{j=1}^n a_{ij} M_j$ in F .

Es gelang, einen einfacheren Ausdruck für F^* anzugeben.

Mit leicht aus den $\sigma_{I_r}^2, \sigma_{D_s}^2$ zu berechnenden Zahlen τ_1, \dots, τ_n

gilt nämlich:

$$F^* = \min_{s_1 \in S_2} \max_{s_2 \in S_2} \prod_{i=1}^n \phi(U(1-\alpha_i) - \frac{M_i}{\tau_i})$$

Aus obiger Darstellung konnten die folgenden Schranken für F^* gewonnen werden

$$\phi^n \left(U \left(\left[1 - \alpha \right]^{\frac{1}{n}} \right) - \frac{M}{\sum_{i=1}^n \tau_i} \right) \leq F^* \leq \phi^n \left(U \left(\left[1 - \alpha \right]^{\frac{1}{n}} \right) - \frac{M}{\left[\sum_{i=1}^n \tau_i^2 \right]^{\frac{1}{2}}} \right)$$

Als weiteres Problem stellte sich die Frage nach der Existenz einer bzgl. der Entdeckungswahrscheinlichkeit optimalen Anzahl n von Zwischeninventuren. Es konnte gezeigt werden, daß eine einfache Inventur stets eine höhere Entdeckungswahrscheinlichkeit liefert als eine n -fache Inventur, $n > 1$.

Wesentlich für diesen Sachverhalt war der Nachweis der folgenden Ungleichung:

$$\phi \left(U(1 - \alpha) - \frac{M}{\left[\sum_{i=1}^n \sigma_i^2 \right]^{\frac{1}{2}}} \right) < F^*$$

für jedes $n > 1$.

Aus obigem folgt jedoch nicht, daß mehrfache Inventuren überflüssig wären.

Bei einer einfachen Inventur ist nämlich die Entdeckungszeit (größtmögliche Zeitspanne zwischen Entwendung und möglicher Entdeckung) die ganze Referenzzeit. Bei einer n -fachen Inventur ist die Entdeckungszeit die längste Zeitspanne zwischen zwei aufeinanderfolgenden Zwischeninventuren; d.h. bei geeigneter Wahl der Zeitpunkte gerade ein n -tel der Referenzzeit.

Literaturverzeichnis

- /1/ R. Avenhaus, D. Gupta
"Optimization of Safeguards Effort"
Contract No. 1209/RB of International Atomic
Energy Agency
- /2/ R. Avenhaus, H. Frick, D. Gupta, G. Hartmann, N. Nakicenovic
"Optimization of Safeguards Effort"
KFK 1109, August 1974
- /3/ H. Frick, G. Hartmann
"Optimierung von Überwachungsaufwand"
Vortrag auf der Reaktortagung 1974 in Berlin
- /4/ G. Hartmann
"Overall Probability of Detection in Connection with
the Optimization of Safeguards Effort"
To appear in Nuclear Technology, 1975
- /5/ R. Avenhaus, N. Nakicenovic
"Material Accountability and its Verification.
An Example for Multivariate Statistical Interference"
To be published as Research Report of the International
Institute for Applied Systems Analysis,
Laxenburg, Austria, 1975
- /6/ Projekt Spaltstoffflußkontrolle
Jahresbericht 1974
KFK 1980, Oktober 1974
- /7/ R. Avenhaus, H. Frick
Game Theoretical Treatment of Material Accountability Problems,
Part I
International Institute for Applied Systems Analysis,
IIASA Research Report RR-74-2 (January 1974)
dto. Part II, IIASA Research Report RR-74-21 (November 1974)

Kapitel 2: ZERSTÖRUNGSFREIE METHODEN

2.0 Einführung

H. Ottmar

2.1 Gammaskpektrometrische Anreicherungs-messungen an oxidischem Uran

P. Matussek, H. Ottmar, I. Piper

2.1.1 Untersuchungen zum Einfluß des Probenalters

2.1.2 Stabilitätsverhalten eines kommerziellen Anreicherungsmeßgerätes

2.1.3 In-Line Messungen in einer LWR-Brennelement-Fabrikationsanlage

2.1.4 Anreicherungs-messung am Einzelpellet und am Brennstab

2.2 Gammadetektionssystem für Personenschleuse

P. Matussek

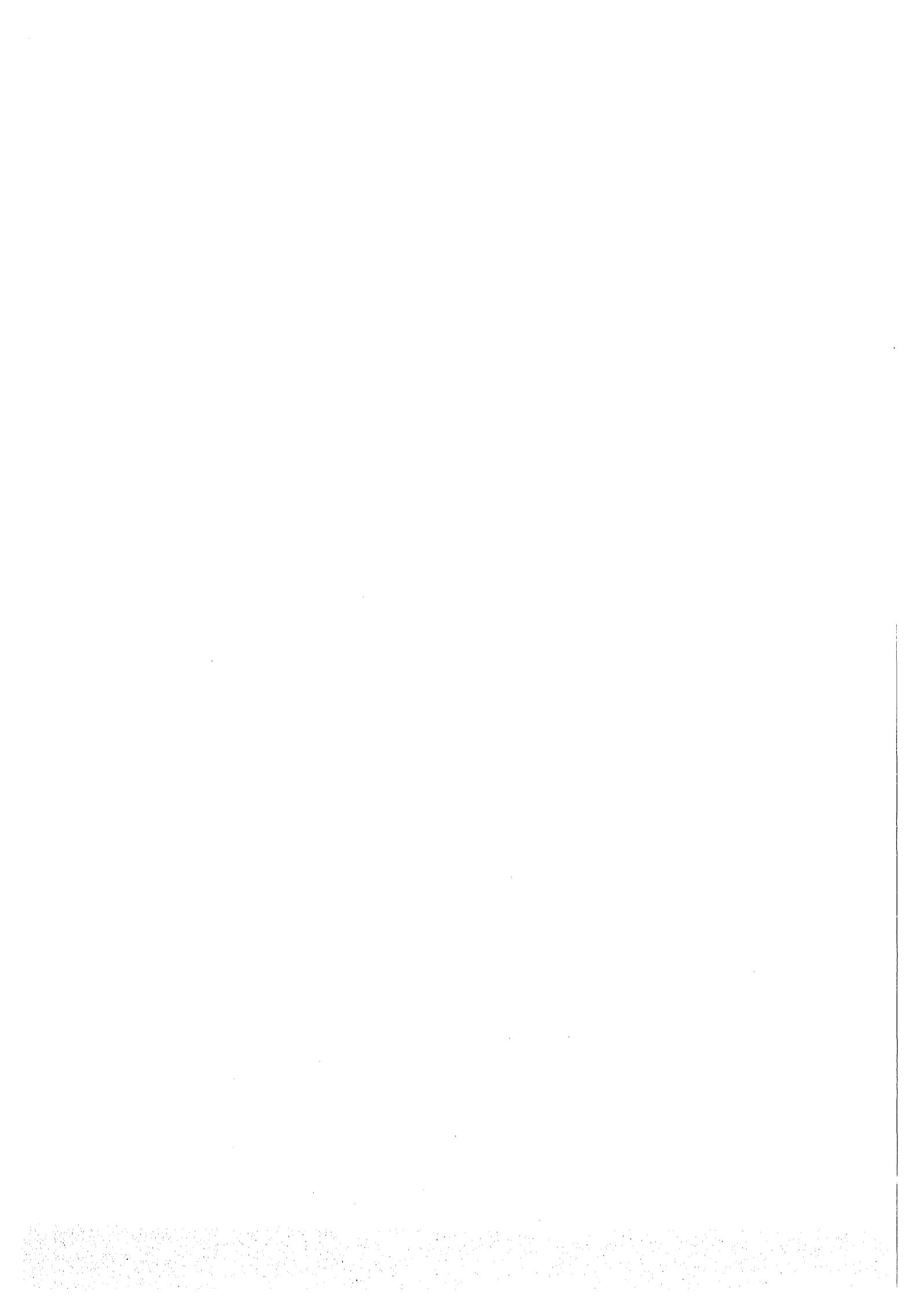
2.3 Neutronenkoinzidenzmessung zur Plutoniumbestimmung

K. Böhmel

2.3.1 Statistischer Fehler

2.3.2 Multiplikationseffekte

2.3.3 Abfallmessungen



2. ZERSTÖRUNGSFREIE METHODEN

2.0 Einführung

H. Ottmar

Die Forschungsarbeiten zur Entwicklung und Erprobung zerstörungsfreier Meßmethoden im Rahmen des Projektes Spaltstoffflußkontrolle wurden im Jahre 1974 ausschließlich in Instituten der Gesellschaft für Kernforschung durchgeführt. Beteiligt an diesen Arbeiten waren das Institut für angewandte Kernphysik (IAK II) und das Institut für Neutronenphysik und Reaktortechnik (INR). Die noch im Vorjahresbericht /1/ dargestellten Aktivitäten des Instituts für Kerntechnik der Technischen Universität Hannover sind abgeschlossen und erscheinen in diesem Bericht nicht mehr.

Eine für den BMFT-Ausschuß "Meßinstrumente für Überwachungsmaßnahmen nach dem NV-Vertrag" erarbeitete Übersicht über den gegenwärtigen Stand des Einsatzes von Instrumenten bzw. Methoden zur Überwachung von Kernbrennstoffen in der nuklearen Industrie der BRD hat die Notwendigkeit für eine Reihe von zerstörungsfreien Messungen an kritischen Schlüsselmeßpunkten aufgezeigt, deren instrumentelle Verwirklichung der Ausschuß in naher Zukunft zu betreiben empfohlen hat.

Die erste in industriellem Maßstab eingesetzte zerstörungsfreie Meßmethode ist die gammaspektrometrische Bestimmung der ^{235}U -Anreicherung, die die Grundlage eines In-Line Meßsystems bildet, welches im Rahmen eines Zusammenarbeitsvertrages mit der Fa. RBU entwickelt und erfolgreich erprobt worden ist. Die Arbeiten zu diesem Vorhaben wurden im IAK durchgeführt. Desweiteren sind hier Arbeiten zur Entwicklung eines Gammadetektionssystems für eine Personenschleuse in Angriff genommen worden.

Die im INR durchgeführten Arbeiten zur Neutronenkoinzidenztechnik werden mit den in diesem Bericht dargestellten Ergebnissen vorläufig als abgeschlossen betrachtet. Weitere Arbeiten hierzu werden nur nach Maßgabe konkreter Anforderungen der in Betracht kommenden Anwender der Methode erfolgen.

2.1 Gammastrahlungsmessungen an oxidischem Uran

P. Matussek, H. Ottmar, I. Piper

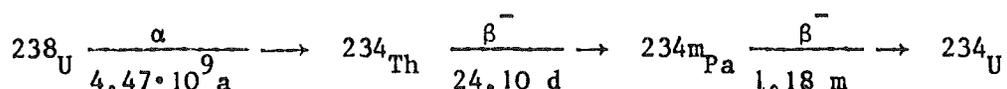
Unter den zerstörungsfreien Meßmethoden zur Bestimmung spaltbaren Materials gehört die gammastrahlungsmessung der ^{235}U -Anreicherung in Urankernbrennstoffen zu jenen Methoden, die im Begriff sind, weitverbreitete Anwendung zu finden. Sie wird nicht nur von den Inspektoren der Überwachungsbehörden praktiziert, vielmehr gewinnt sie in der nuklearen Industrie selbst als Meßmethode an zunehmender Bedeutung. Denn anders als das bislang praktizierte massenspektrometrische Analysenverfahren, das zeitraubende Prozeduren in Form von Probenahme, Probenvorbereitung und nachfolgender Analyse beinhaltet, kann die gammastrahlungsmessung zerstörungsfrei direkt am zu untersuchenden Objekt erfolgen und unmittelbar verfügbare Ergebnisse liefern. Damit werden auch In-Line-Messungen möglich an bestimmten Schlüsselmeßpunkten, an denen eine kontinuierliche Überwachung der Anreicherung erstrebenswert erscheint, z.B. im Hinblick auf eine möglichst aktualisierte Spaltstoffbilanzierung, aber auch für betriebliche Zwecke, z.B. zur Prozeßsteuerung oder zur Qualitätskontrolle.

Im Berichtszeitraum sind zahlreiche Untersuchungen zur gammastrahlungsmessung an oxidischem Uran durchgeführt worden mit dem Ziel, mögliche Fehlerquellen zu identifizieren und durch geeignete Maßnahmen die Meßgenauigkeit weiter zu verbessern. Zur Demonstration der praktischen Anwendbarkeit der Meßmethode ist ein In-Line-Meßsystem in der Prozeßlinie bei der Fa. Reaktorbrennelemente-Union (RBU) in Hanau installiert und erprobt worden. Die erreichten Meßgenauigkeiten qualifizieren die Gammastrahlungsmessung neben der Massenspektrometrie als Standardmethode für ^{235}U -Anreicherungsbestimmungen im LWR-Brennstoff.

2.1.1 Untersuchungen zum Einfluß des Probenalters

Zur gammastrahlungsmessung an oxidischem Uran im frischen, nichtzyklierten UO_2 genügt die Verwendung von einfachen NaJ-Detektoren, deren Auflösungsvermögen ausreicht zur Spektrometrie der 185 keV Eigenstrahlung des ^{235}U . Allerdings muß diese Eigenstrahlung, deren Intensität bei dicken Proben der

Anreicherung proportional ist, gegen einen je nach Probenalter unterschiedlich hohen Untergrund von höherenergetischer Eigenstrahlung aus der Probe diskriminiert werden. Diese Strahlung (765 keV, 1001 keV) rührt in erster Linie von ^{234m}Pa her, welches aus ^{238}U über die Zerfallsreihe



gebildet wird. Da bei den sog. "nassen" $\text{UF}_6\text{-UO}_2$ -Konversionsprozessen Thorium und Protaktinium chemisch von Uran abgetrennt werden, z.B. bei dem von Fa. RBU angewandten Ammonium-Uranyl-Carbonat (AUC)-Prozeß, ist die aus frisch konvertiertem UO_2 emittierte 185 keV Linie relativ frei von Compton-Untergrund. Dieser wächst jedoch, bestimmt durch die Halbwertszeit von ^{234}Th ($T_{1/2} = 24.10 \text{ d}$), mit zunehmendem Alter der Probe rasch an und erreicht ca. 5 Monate nach der Konversion ein maximales, konstantes Niveau. Es ist nun untersucht worden, ob die zur Korrektur dieses Untergrundes allgemein praktizierte Doppelfenster-Methode den je nach Probenalter stark unterschiedlichen Untergrundverhältnissen Rechnung tragen kann, ohne einen mit dem Probenalter verknüpften systematischen Fehler im Analyseergebnis zu verursachen.

Diese Untersuchungen zur Altersabhängigkeit erfolgten an 3 UO_2 -Proben verschiedener Anreicherung, die einen Tag nach der Konversion von der Fa. RBU zur GfK gebracht und hier in einem darauffolgenden Zeitraum von mehr als 2 Monaten wiederholt analysiert worden sind. Das UO_2 -Material (pro Probe ca. 300 gr.) befand sich in identischen zylindrischen Aluminiumkapseln. Die Messungen erfolgten an der planen Bodenfläche dieser Kapseln, deren Wandstärke aus Ultraschallmessungen mit einer Genauigkeit von $\pm 5 \mu$ bekannt war. Die Strahlung gelangte durch einen Bleikollimator (30 mm \emptyset , 40 mm lang) von der Probe zu einem 3" x 3" NaJ-Detektor, der mit 5 cm Blei gegen die Raumuntergrundstrahlung abgeschirmt war. Die Spektrometrie der Gammastrahlung erfolgte mit Hilfe eines Vielkanalanalysators. In den dort akkumulierten Impulshöhenspektren sind verschiedene Energiebereiche digital ausgewählt worden. Die Kanalhalte der in Abb. 2.1/1 angedeuteten

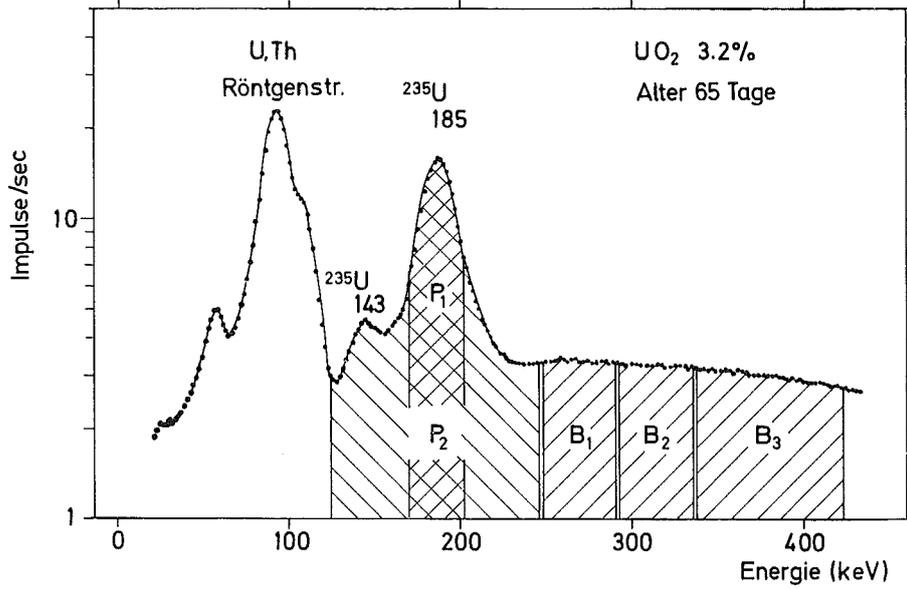


Abb. 2.1/1 Typisches Gammasktrum von niedrig angereichertem Uran. Die schraffierten Bereiche deuten die energetische Lage der ausgewählten Peak- und Untergrundfenster an.

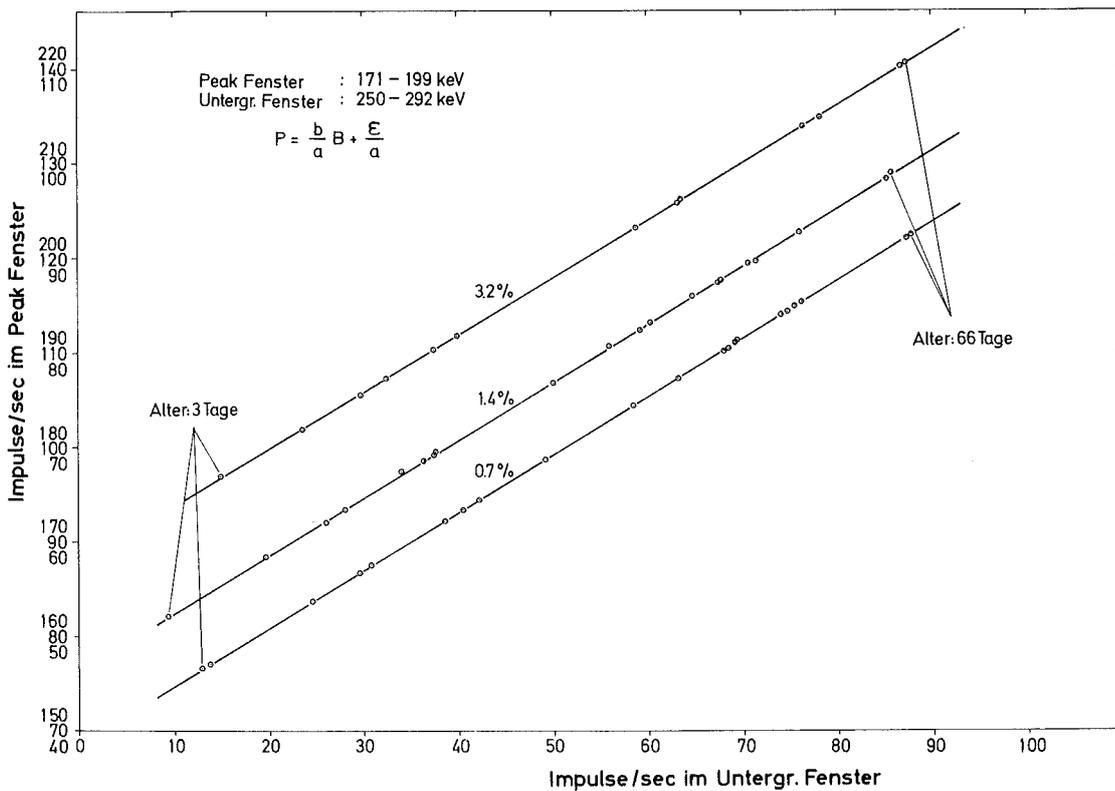


Abb. 2.1/2 Peak- und Untergrundzählraten in den Energiefenstern P_1 und B_1 bei verschiedenem Probenalter für 3 verschiedene Anreicherungen. Die Wertetripel an der Ordinate markieren die verschiedenen Peakzählraten für die 3 Anreicherungen.

Peak- und Untergrundfenster

$$\begin{aligned}
 P_1 &= 171 - 199 \text{ keV} \\
 P_2 &= 124 - 246 \text{ keV} \\
 B_1 &= 250 - 292 \text{ keV} \\
 B_2 &= 294 - 336 \text{ keV} \\
 B_3 &= 338 - 424 \text{ keV}
 \end{aligned}$$

wurden integriert und über eine Teletype ausgegeben. Die Wahl der verschiedenen Energiefenster war dazu vorgesehen, auch einen evtl. Einfluß der Lage und Breite der Energiefenster auf das Analysenergebnis in Abhängigkeit vom Probenalter zu studieren. Die Meßzeit von jeweils 10 000 sec war ausreichend lang bemessen, um den Fehler aus der Zählratenstatistik in der Größenordnung $\lesssim 0.1\%$ zu halten.

Zur Kalibrierung der Meßapparatur mußten die ^{235}U -Anreicherungs-
werte der 3 Proben genau bekannt sein. Die von 3 verschiedenen Laboratorien angefertigten massenspektrometrischen Analysenergebnisse sind in Tabelle 2.1/I zusammengestellt.

Tabelle 2.1/I

Analysenergebnisse von massenspektrometrischen Analysen für die ^{235}U -Anreicherungs-
werte von 3 UO_2 -Proben. Die angegebenen Fehler sind 1 sigma-Werte.

Probe	Massenspektrometrische Analysen			Gammaskpektrometr. Analyse mit Ge(Li)- Detektor
	Labor 1	Labor 2	Labor 3	
1	0.709 \pm 0.007	0.725 \pm 0.006	0.724 \pm 0.006	0.7231 \pm 0.0015
2	1.408 \pm 0.007	1.454 \pm 0.006	1.450 \pm 0.006	1.4572 \pm 0.0020
3	3.160 \pm 0.015	3.185 \pm 0.006	3.185 \pm 0.006	3.185 ⁺⁾

⁺⁾ Normierungswert

Alle 3 von Labor 1 ermittelten Anreicherungs-
werte liegen systematisch niedriger als die
Analysenergebnisse der Laboratorien 2 und 3.
Letztere stimmen dagegen innerhalb der ange-
gebenen Fehlergrenzen sehr gut überein.
Die Mittelwerte aus diesen beiden Analysen
wurden deshalb bei der Auswertung der Meß-
ergebnisse als Eichwerte herangezogen.

In der rechten Spalte von Tabelle 2.1/I sind die Ergebnisse von gamma-spektrometrischen Relativmessungen an den 3 UO_2 -Proben mit einem hochauflösenden Ge(Li)-Detektor angegeben. Die gegenüber NaJ-Spektren unvergleichlich viel günstigeren Peak: Untergrundverhältnisse für die 185 keV Linie gestatten eine sehr genaue Peakflächenbestimmung. Aus diesen Peakflächen lassen sich genaue Anreicherungsverhältnisse ableiten, wenn systematische Fehler, z.B. durch Pile-up oder Totzeit-Effekte, ausgeschlossen werden können. Solche Fehlerquellen waren bei den vorliegenden Messungen angesichts der geringen Zählraten (bedingt durch enge Kollimation und relativ großen Probenabstand) nicht zu erwarten. Dennoch wurden zur Sicherheit die Messungen an allen drei Proben wiederholt, diesmal mit eingeblendeten Gammalinien eines in Detektornähe fest positionierten ^{57}Co Präparates ($E_\gamma = 122,136$ keV) und eines ^{133}Ba Präparates ($E_\gamma = 80, 276, 302, 356, 383$ keV). Trotz der dadurch erhöhten Gesamtzählrate waren die ermittelten Peakflächen dieser eingeblendeten Referenzlinien in den von den 3 UO_2 -Proben aufgenommenen Spektren identisch, so daß Zählratenverluste nachgewiesenermaßen ausgeschlossen werden konnten.

2.1.1.1 Die Eichfläche

Allgemein wird davon ausgegangen, daß die Anreicherung ϵ aus den in einem Peak- und Untergrundfenster gemessenen Zählraten P und B über die einfache Eichgleichung

$$\epsilon = aP - bB$$

bestimmt werden kann. Diese Eichgleichung stellt eine durch die 3 Variablen ϵ , P und B definierte, durch den Ursprung verlaufende Ebene dar. Wählt man beispielsweise in einem kartesischen Koordinatensystem die Anreicherung ϵ als Variable in vertikaler Richtung, dann sollte die Projektion von horizontalen Schnitten mit dieser Eichfläche in die P-B-Ebene eine Schar paralleler Geraden der Form

$$P = \frac{b}{a} B + \frac{\epsilon}{a}$$

ergeben, mit der Anreicherung ϵ als Parameter dieser Geradenschar.

Durch die wiederholten Messungen an den drei Proben verschiedener Anreicherung über einen Zeitraum von ca. 2 Monaten nach der Konversion sind zu jeder Anreicherung ϵ zahlreiche Wertepaare (P,B) ermittelt worden. Diese Daten

gestatten eine Untersuchung darüber, ob die Eichfläche tatsächlich durch eine Ebene dargestellt wird. In Abb. 2.1/2 sind die bei verschiedenem Probenalter aufgenommenen Zählraten im Peakfenster P_1 über den Zählraten im Untergrundfenster B_1 für die 3 Anreicherungen 0.7245, 1.452 und 3.185 % aufgetragen. Durch Kombination der Zählraten aus den beiden Peakfenstern P_1 und P_2 und den 3 Untergrundfenstern B_1 , B_2 , B_3 lassen sich insgesamt 6 solcher Geradentripel bilden. Die sich aus den Least-Squares-Fits ergebenden Steigungen $\frac{b}{a}$ der 3 Geradentripel, die sich aus der Kombination der Zählraten im Peakfenster P_1 mit den Zählraten in den 3 Untergrundfenstern ergeben, sind in Tabelle 2.1/II zusammengestellt. Die entsprechenden Werte, die mit den Zählraten im Peakfenster P_2 gewonnen wurden, finden sich in Tabelle 2.1/III.

Entgegen den Eigenschaften einer ebenen Eichfläche sind die Steigungen der Geraden innerhalb eines zusammengehörenden Geradentripels nicht ganz identisch. Eine plausible physikalische Erklärung für diesen Befund konnte nicht gefunden werden. Möglicherweise handelt es sich hierbei um einen nicht erkannten meßelektronischen Effekt. Im günstigsten Fall, d.h. bei breitem Peakfenster P_2 und nahe benachbartem Untergrundfenster B_1 , weichen die $\frac{b}{a}$ -Werte für die beiden Anreicherungsextrama 0.7 % und 3.2 % nur um 0.15 % voneinander ab (s. Tabelle 2.1/III). Bedenkt man, daß bei der Regression der Eichkonstanten ein Least-Squares-Fit an die Meßwerte von verschiedenen Anreicherungen - also eine Mittelung - durchgeführt wird, so kann dieser Effekt einer nicht gesicherten minimalen Abweichung der Eichfläche von einer Ebene vernachlässigt werden.

Altersunabhängige Anreicherungsmeßergebnisse können mit einer durch den Ursprung verlaufenden Eichfläche der Form $\epsilon = aP - bB$ jedoch nur dann erzielt werden, wenn entweder die Raumuntergrundstrahlung vernachlässigbar ist oder wenn die Form des Raumuntergrundspektrums identisch ist mit der Form des Comptonkontinuums der Gammastrahlung der ^{238}U -Tochterkerne. Im allgemeinen Fall setzt sich nämlich die Zählrate P im Peakfenster und die Zählrate B im Untergrundfenster aus 3 Komponenten zusammen:

$$P = P_{35} + P_{38} + P_R \quad (1)$$

$$B = B_{35} + B_{38} + B_R \quad (2)$$

wobei P_{35} den Anteil der ^{235}U -Strahlung, P_{38} den Anteil der Strahlung der ^{238}U -Tochterkerne und P_R den Anteil der Raumuntergrundstrahlung im Peakfenster

Tabelle 2.1/II

$\frac{b}{a}$ -Werte aus linearer Regression der Wertepaare (P_1^n, B_i^n) an die Gleichung
 $P_1(\epsilon) = \frac{b}{a} B_i(\epsilon) + \frac{\epsilon}{a}$. Probenalter 3-66 Tage, $i = 1, 2, 3$.

Anreicherung ϵ (%) Zahl der Wertepaare	$\frac{b}{a}$ -Werte für Wertepaare		
	(P_1^n, B_1^n)	(P_1^n, B_2^n)	(P_1^n, B_3^n)
0.7245 (n=26)	0.61165 ± 0.0010	0.64999 ± 0.0015	0.35799 ± 0.00085
1.452 (n=23)	0.60873 ± 0.0018	0.64642 ± 0.0022	0.35514 ± 0.0013
3.185 (n=13)	0.60624 ± 0.0018	0.64280 ± 0.0020	0.35194 ± 0.0011
Max. Differenz in $\frac{b}{a}$ -Werten (%)	0.89	1.12	1.72

Tabelle 2.1/III

$\frac{b}{a}$ -Werte aus linearer Regression der Wertepaare (P_2^n, B_i^n) an die Gleichung
 $P_2(\epsilon) = \frac{b}{a} B_i(\epsilon) + \frac{\epsilon}{a}$. Probenalter 3-66 Tage, $i = 1, 2, 3$.

Anreicherung ϵ (%) Zahl der Wertepaare	$\frac{b}{a}$ -Werte für Wertepaare		
	(P_2^n, B_1^n)	(P_2^n, B_2^n)	(P_2^n, B_3^n)
0.7245 (n=26)	2.2305 ± 0.0029	2.3703 ± 0.0042	1.3055 ± 0.0026
1.452 (n=23)	2.2288 ± 0.0032	2.3651 ± 0.0036	1.2994 ± 0.0019
3.185 (n=13)	2.2272 ± 0.0047	2.3632 ± 0.0039	1.2939 ± 0.0020
Max. Differenz in $\frac{b}{a}$ -Werten (%)	0.15	0.30	0.89

repräsentieren. Für die Anteile im Untergrundfenster B gelten die entsprechenden Bezeichnungen. Der Anteil der ^{235}U -Strahlung im Bereich eines Untergrundfensters oberhalb der 185 keV-Linie (B_{35}) ist relativ klein, kann aber bei sehr jungem Probenmaterial nicht ganz vernachlässigt werden. Mit den Nebenbedingungen

$$\begin{aligned} P_{35} &= \alpha \cdot B_{35} \\ P_{38} &= \beta \cdot B_{38} \\ P_R &= \gamma \cdot B_R \end{aligned}$$

erhält man aus den Gleichungen (1) und (2) mit der Abkürzung $\eta = \frac{\alpha}{\alpha - \beta}$ die Bezeichnung

$$P_{35} = \eta P - \eta \beta B + \eta(\beta - \gamma) B_R \quad (3).$$

Da die Anreicherung ϵ der ^{235}U -Strahlung im Peakfenster proportional ist, d.h. $\epsilon = k P_{35}$, hat die Eichgleichung also die allgemeine Form

$$\epsilon = aP - bB + c \quad (4).$$

Sie stellt eine nicht durch den Ursprung verlaufende Ebene dar. Wie man aus Gleichung (3) ersieht, verschwindet das Konstantenglied entweder im Falle verschwindender Raumuntergrundstrahlung B_R oder bei gleicher Spektrumsform von Raumuntergrundstrahlung und Gammastrahlung der ^{238}U -Tochterkerne ($\beta = \gamma$).

Ist diese Bedingung nicht erfüllt, so wird sich mit wachsendem Probenalter, d.h. mit größer werdendem Anteil B_{38} bzw. P_{38} , eine Änderung der Spektrumsform ergeben, sofern die Raumstrahlung als relativ konstant angesehen werden kann. Dies wird in Abb. 2.1/3 veranschaulicht, wo das Verhältnis der Zählraten in den Untergrundfenstern B_1 (250-292 keV) und B_3 (338-424 keV) in Abhängigkeit vom Probenalter aufgetragen ist. Aus dieser Abbildung ist zu entnehmen, daß bei den vorliegenden Messungen die Form des Untergrundspektrums erst bei einem Probenalter von ≥ 20 Tagen konstant bleibt. Bei diesem Probenalter ist die Strahlung der ^{238}U -Tochterkerne so groß geworden, daß der prozentuale Anteil der Raumuntergrundstrahlung im Bereich der ausgewählten Untergrundfenster nicht mehr ins Gewicht fällt.

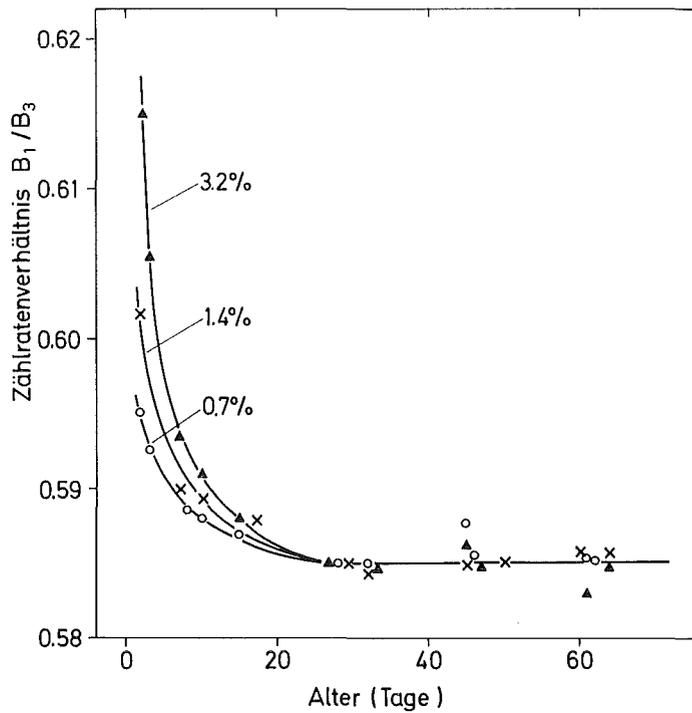


Abb. 2.1/3 Verhältnis der Zählraten in den Untergrundfenstern B_1 (250-292 keV) und B_3 (338-424 keV) in Abhängigkeit vom Probenalter

Zur Demonstration des Einflusses einer solchen Änderung der Spektrumsform auf das Anreicherungsmeßergebnis sind die Anreicherungsgrade aus den gemessenen Zählraten P und B sowohl mit der Eichgleichung $\epsilon = aP - bB$ als auch mit der Eichgleichung $\epsilon = aP - bB + c$ ermittelt worden. Dazu mußten zunächst die Eichkonstanten in Regressionsrechnungen durch Minimalisierung der Größen

$$\sum_{j,n} \frac{(aP_j^n - bB_j^n - e_j)^2}{e_j^2} \quad \text{bzw.} \quad \sum_{j,n} \frac{(aP_j^n - bB_j^n + c - e_j)^2}{e_j^2}$$

berechnet werden, wobei e_j die massenspektrometrisch bestimmten Anreicherungsgrade der Eichproben darstellen. Diese Regressionsrechnungen sind mit den für die 3 Anreicherungsgrade bei verschiedenem Probenalter aufgenommenen Zählraten aus den Energiefenstern (P_1, B_1) und (P_2, B_2) durchgeführt worden. Mit den so bestimmten Konstanten sind dann die Anreicherungen aus den Eichgleichungen berechnet worden.

Die Abweichung der gammaspektrometrischen Anreicherungsgrade vom massenspektrometrischen Eichwert ist in Abb. 2.1/4 für die Regressionsrechnung mit der Eichgleichung $\epsilon = aP - bB$ und den Zählraten P_1 und B_1 in Abhängigkeit vom Probenalter aufgetragen. In den gezeigten Fällen A, B, C sind verschiedene Arten von Meßwerten zur Regression der Eichkonstanten benutzt worden, nämlich für jede

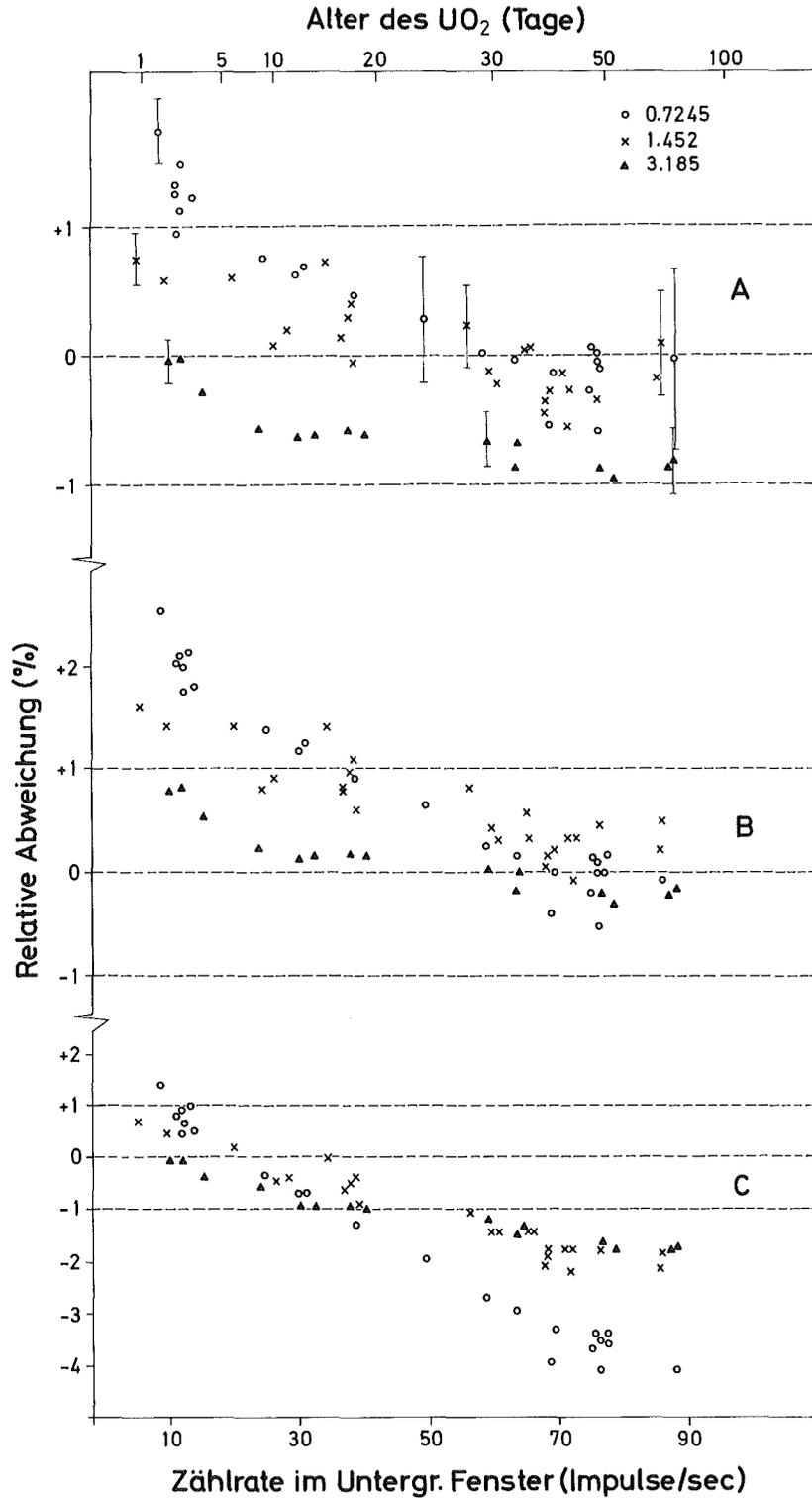


Abb. 2.1/4 Relative Abweichung gammaspektrometrisch bestimmter Anreicherungs-werte vom massenspektrometrischen Analysenwert in Abhängigkeit vom Probenalter. Die Anreicherung ϵ wurde mit den Zählraten in den Energiefenstern P_1 und B_1 aus der Eichgleichung $\epsilon = aP_1 - bB_1$ bestimmt. Zur Bestimmung der Eichkonstanten a, b wurde für jede Anreicherung eine gleiche Anzahl von Meßpunkten aus dem Altersbereich A) 1-66 Tage, B) 45-66 Tage, C) 1-7 Tage verwendet.

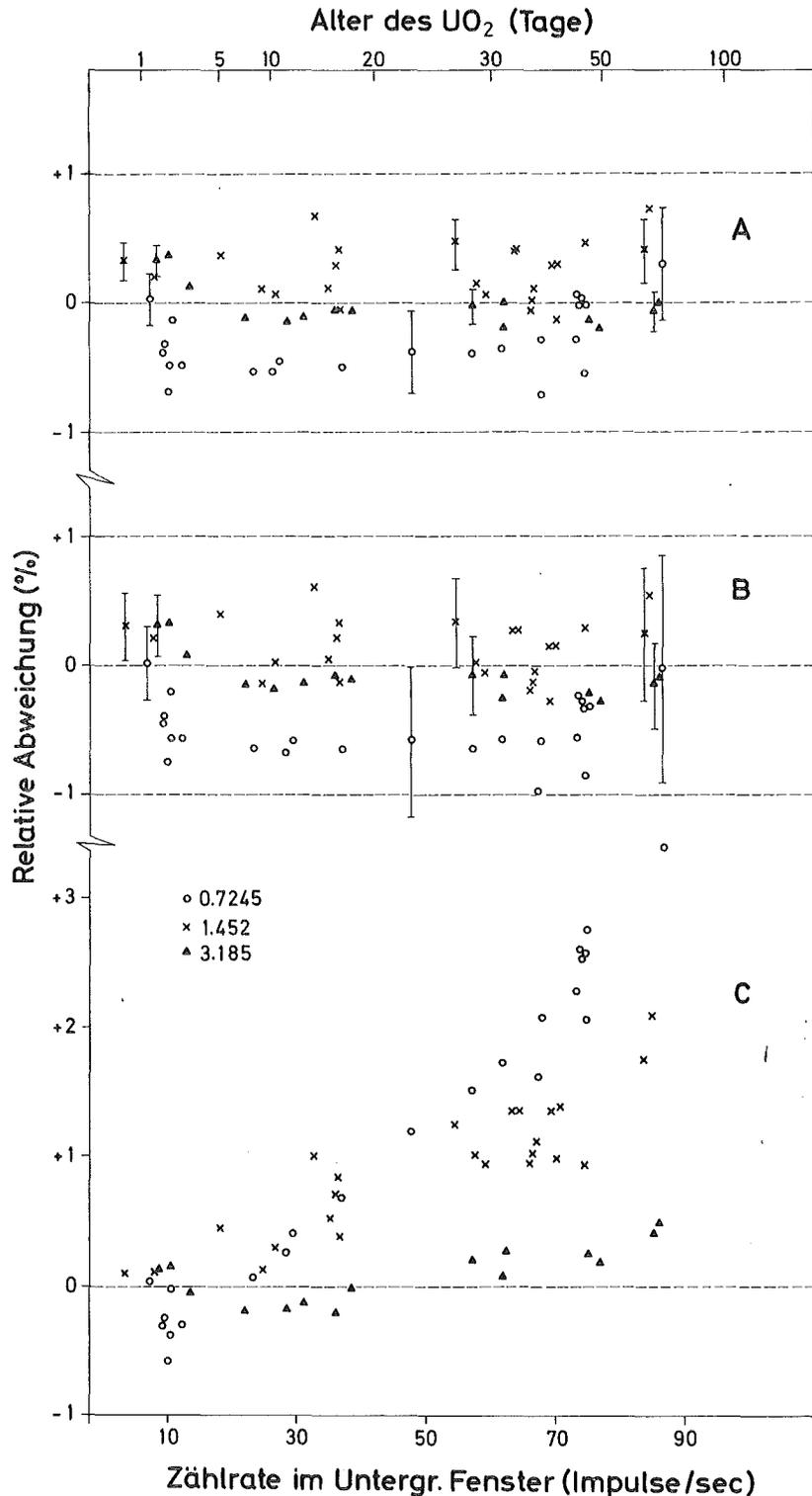


Abb. 2.1/5 Relative Abweichung gamma-spektrometrisch bestimmter Anreicherungs-
 werte ϵ vom massenspektrometrischen Analysenwert in Abhängigkeit
 vom Probenalter. Die Anreicherung ϵ wurde mit den Zählraten in den
 Energiefenstern P_1 und B_1 aus der Eichgleichung $\epsilon = aP_1 - bB_1 + c$
 bestimmt. Zur Bestimmung der Eichkonstanten a, b, c wurde für jede
 Anreicherung eine gleiche Anzahl von Meßpunkten aus dem Alters-
 bereich A) 1-66 Tage, B) 45-66 Tage, C) 1-7 Tage verwendet.

Anreicherung

- A) 15 Meßwerte aus dem Altersbereich 1-66 Tage
- B) 6 Meßwerte aus dem Altersbereich 45-66 Tage
- C) 4 Meßwerte aus dem Altersbereich 1-7 Tage.

Die im Fall A miteingezeichneten Fehlerbalken setzen sich aus Fehlern in den Eichkonstanten und dem statistischen Fehler der Nettopeakfläche zusammen. Der statistische Anteil nimmt wegen des sich verschlechternden Peak:Untergrundverhältnisses mit wachsendem Probenalter zu.

In allen 3 Fällen zeigt sich eine mehr oder weniger deutliche Abhängigkeit der Anreicherungsgrade vom Probenalter. Dieser Effekt ist auf eine Nichtberücksichtigung der Raumuntergrundstrahlung zurückzuführen, deren Spektrumsverlauf bei den vorliegenden Messungen deutlich von der Form des Comptonkontinuums der hochenergetischen Strahlung aus den Proben abwich.

In Abb. 2.1/5 sind die Ergebnisse von Regressionsrechnungen mit den gleichen Meßwerten unter Verwendung der Eichgleichung $\epsilon = aP - bB + c$ dargestellt. Man sieht, daß bei einer Regression mit Meßwerten von Proben jeglichen Probenalters (Fall A) die Anreicherungsgrade unabhängig vom Probenalter werden. Dies gilt auch für den praktisch wichtigen Fall einer Regression mit Meßwerten von alten Proben (Fall B). Allein bei der Regression mit Meßwerten von sehr jungem Probenmaterial (Fall C), bei der die Raumuntergrundstrahlung und die ^{235}U -Strahlung im Bereich des Untergrundfensters besonders empfindlich einget, bleibt die Altersabhängigkeit bestehen. Die in den Fällen A, B offensichtliche systematische Abweichung der Meßwerte für den Anreicherungsgrad 0.7 % vom massenspektrometrischen Sollwert liegt mit großer Wahrscheinlichkeit in einer Abweichung dieses massenspektrometrischen Eichwertes vom wahren Wert. Vergleicht man die aus den Regressionsrechnungen folgenden Mittelwerte der Anreicherungen mit den genaueren Werten aus den Ge(Li)-Messungen, so erscheinen die systematischen Abweichungen geringer. Die Ergebnisse einiger Regressionsrechnungen sind in Tabelle 2.1/IV zusammengestellt. Den Regressionsrechnungen für die NaJ-Messungen sind die massenspektrometrischen Werte als Eichwerte zugrundegelegt.

Tabelle 2.1/IV

Ergebnisse von Anreicherungs-messungen bei verschiedenen Regressionsrechnungen zur Bestimmung der Eichkonstanten in der Eichgleichung $\epsilon = aP - bB + c$.

Massenspektrometrie Ge(Li)-Detektor	Anreicherungs-werte		
	0.7245 \pm 0.006	1.452 \pm 0.006	3.185 \pm 0.006
0.7231 \pm 0.0015	1.4572 \pm 0.0020	3.185 ⁺⁾	
Mittelwerte für alle Meßpunkte im Altersber. 1-66 Tage			
NaJ-Detektor	n = 24	n = 22	n = 15
Regression mit Zählraten aus Energiefenster P ₁ , B ₁ Probenalter 1-66 Tage	$\bar{\epsilon}$ = 0.7224 σ = 0.0021 (0.29 %)	$\bar{\epsilon}$ = 1.4555 σ = 0.0033 (0.23 %)	$\bar{\epsilon}$ = 3.1843 σ = 0.0054 (0.17 %)
Regression mit Zählraten aus Energiefenster P ₁ , B ₁ Probenalter 45-66 Tage	$\bar{\epsilon}$ = 0.7210 σ = 0.0018 (0.25 %)	$\bar{\epsilon}$ = 1.4539 σ = 0.0033 (0.23 %)	$\bar{\epsilon}$ = 3.1826 σ = 0.0059 (0.20 %)
Regression mit Zählraten aus Energiefenster P ₂ , B ₁ Probenalter 1-66 Tage	$\bar{\epsilon}$ = 0.7227 σ = 0.0036 (0.50 %)	$\bar{\epsilon}$ = 1.4567 σ = 0.0035 (0.24 %)	$\bar{\epsilon}$ = 3.1814 σ = 0.0037 (0.12 %)
Regression mit Zählraten aus Energiefenster P ₂ , B ₁ Probenalter 45-66 Tage	$\bar{\epsilon}$ = 0.7215 σ = 0.0037 (0.50 %)	$\bar{\epsilon}$ = 1.4562 σ = 0.0039 (0.27 %)	$\bar{\epsilon}$ = 3.1837 σ = 0.0037 (0.12 %)

⁺⁾ Referenzwert

Generell sei bemerkt, daß die Ergebnisse dieser Untersuchungen zur Altersabhängigkeit nur qualitative Anhaltspunkte liefern können. Eine Verallgemeinerung der beobachteten quantitativen Effekte ist nicht ohne weiteres möglich, weil diese kritisch vom speziellen Meßsystem (z.B. von Kollimator- und Detektorgröße, Abschirmung, Probenmenge etc.) sowie von den spezifischen Strahlungsverhältnissen seiner Umgebung abhängen. So war z.B. die Raumuntergrundstrahlung bei den vorliegenden Messungen zwar in der Spektrumsform verschieden von der Form des Comptonkontinuums der hochenergetischen Probenstrahlung, andererseits war sie jedoch zeitlich konstant. Demgegenüber wird man beispielsweise bei Messungen in einer Brennelementfabrikationsanlage, wo z.T. tonnenweise UO₂-Material lagert, für das Raumuntergrundspektrum eine ähnliche Spektrumsform wie für das Probenspektrum erwarten können, da hier beide Spektren im Energiebereich oberhalb von 200 keV ihre gemeinsame Ursache in der Strahlung des ^{234m}Pa haben werden. In diesem Fall wird selbst bei zeitlichen Schwankungen der Intensität der Raumuntergrundstrahlung die in den vorliegenden Messungen beobachtete Altersabhängigkeit bei Nichtberücksichtigung der Raumuntergrundstrahlung in der Eichgleichung (Abb. 2.1/4) wesentlich geringer ausfallen, wenn nicht gar ganz verschwinden. Unsere Erfahrungen aus Anreicherungs-messungen in den Fabrikationsräumen der Fa. RBU bestätigen diese Vermutung.

2.1.2 Stabilitätsverhalten eines kommerziellen Anreicherungsmeßgerätes

Die Zuverlässigkeit und Genauigkeit gammaspektrometrischer Anreicherungs-messungen hängt kritisch von der Stabilität des verwendeten Meßsystems ab für den Fall, daß nicht jeder eigentlichen Messung eine Eichmessung an Standardproben unmittelbar vorausgeht. Seit einiger Zeit ist nun ein kommerzielles Anreicherungsmeßgerät verfügbar, das inzwischen weite Verbreitung gefunden hat und das insbesondere wegen seiner kompakten und tragbaren Ausführung auch von den internationalen Überwachungsbehörden eingesetzt wird. Dieses von der Fa. Eberline, Santa Fe, USA, unter dem Markennamen SAM2 (Stabilized Assay Meter) angebotene Anreicherungsmeßgerät ist ein hochintegriertes Instrument und umfaßt einen americiumdotierten NaJ-Detektor, ein Hochspannungsgerät, analoge Meßelektronik mit 2 Einkanaldiskriminatoren sowie die digitale Elektronik zur Bestimmung des Anreicherungswertes aus den Diskriminatorzählraten. An drei Geräten dieses Typs, im folgenden mit SAM2/I bis SAM2/III bezeichnet, sind in Zusammenhang mit der Installation eines In-Line Meßsystems zur kontinuierlichen Anreicherungs-messung bei der Fa. RBU in Hanau umfangreiche Untersuchungen über das Stabilitätsverhalten durchgeführt worden.

Um die Größe der Instabilitäten abschätzen zu können, wurde mit den drei Meßsystemen zunächst ein Dauertest unter realistischen Betriebsbedingungen in der Fabrikationshalle der Fa. RBU durchgeführt.

Die Detektoren waren dabei an 20 kg Eimern befestigt, die UO_2 -Pulver mit den Anreicherungsgraden 1,85 % bzw. 3,02 % enthielten. Über mehrere Wochen wurden fortlaufend die Zählraten in zwei Energiefenstern, die den Bereich der 185 keV-Linie und einen Teil des Untergrundes oberhalb dieser Linie ausblendeten, sowie die Temperatur und die relative Luftfeuchtigkeit registriert. Abb. 2.1/6 zeigt einen Teil der mit SAM2/I und SAM2/III erzielten Meßergebnisse. Man erkennt bei beiden Meßanordnungen eine ausgeprägte Temperaturabhängigkeit der Zählrate im 185 keV-Fenster. Bei der Messung mit SAM2/I wurde frisch konvertiertes Material benutzt, daher steigen die Zählraten wegen der heranwachsenden ^{234}Th -Aktivität mit fortschreitender Meßzeit kontinuierlich an. Die Ergebnisse der Messungen mit SAM2/II konnten wegen eines elektronischen Defektes am externen Zähler nicht verwertet werden.

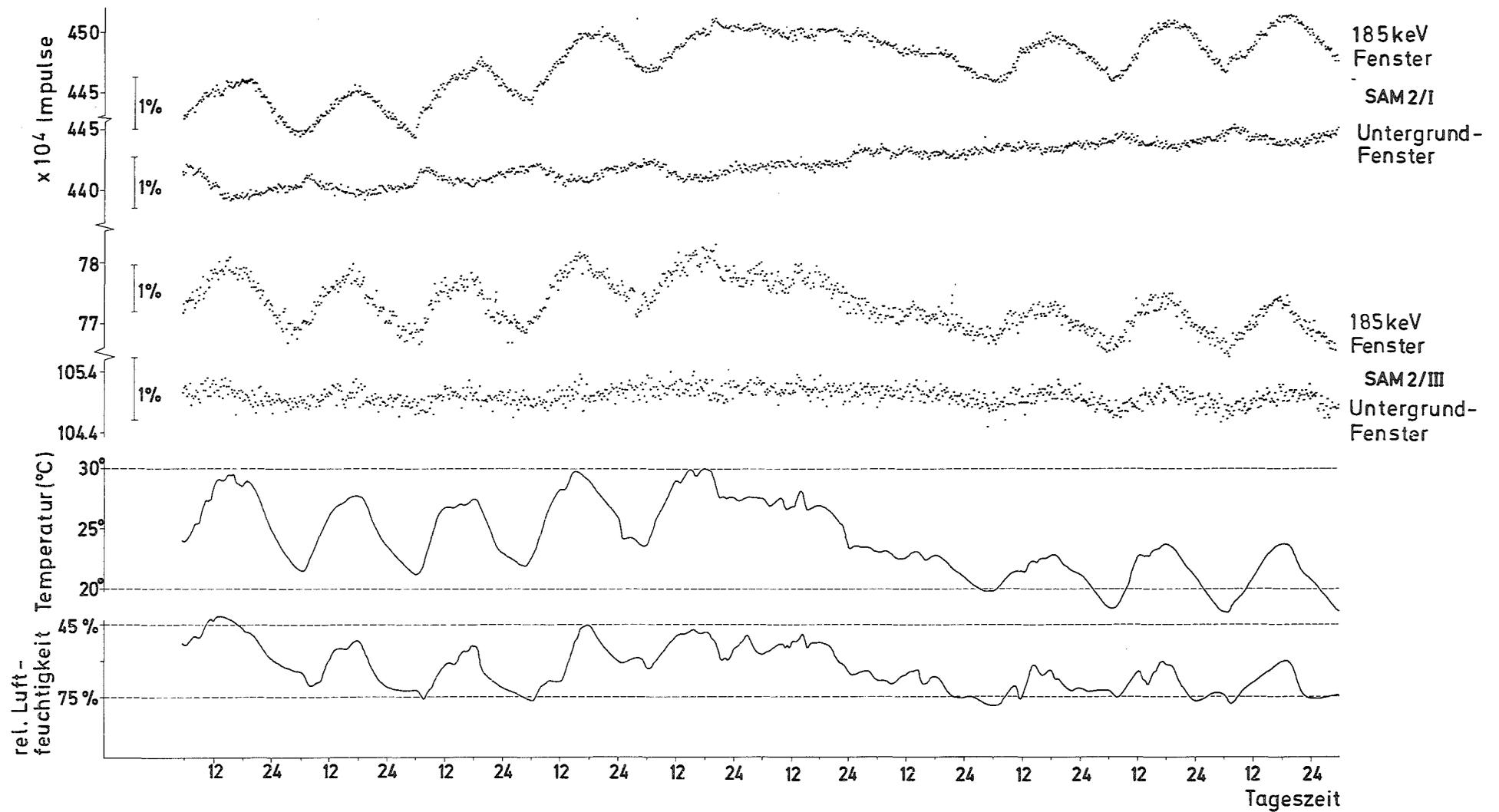


Abb. 2.1/6 Testmessungen mit zwei Anreicherungsmeßgeräten SAM2/I und SAM2/III an UO_2 -Pulver mit den Anreicherungsgraden 1,85 % und 3,02 %.

Die beobachteten Änderungen der Peakzählraten betragen etwa 1,5-2 % bei Temperaturänderungen im Temperaturintervall zwischen 20°C und 30°C. Bei den gegebenen Peak: Untergrundverhältnissen entspricht dies einer Schwankung der Anreicherungsmeßwerte von 3-4 %. Dies liegt deutlich über den angestrebten Meßgenauigkeiten von $\leq 1\%$ für Messungen zur Spaltstoffflußkontrolle. Die Ursachen der beobachteten Instabilität dieses häufig verwendeten Meßsystems sind deshalb in Laboruntersuchungen ausführlich analysiert worden.

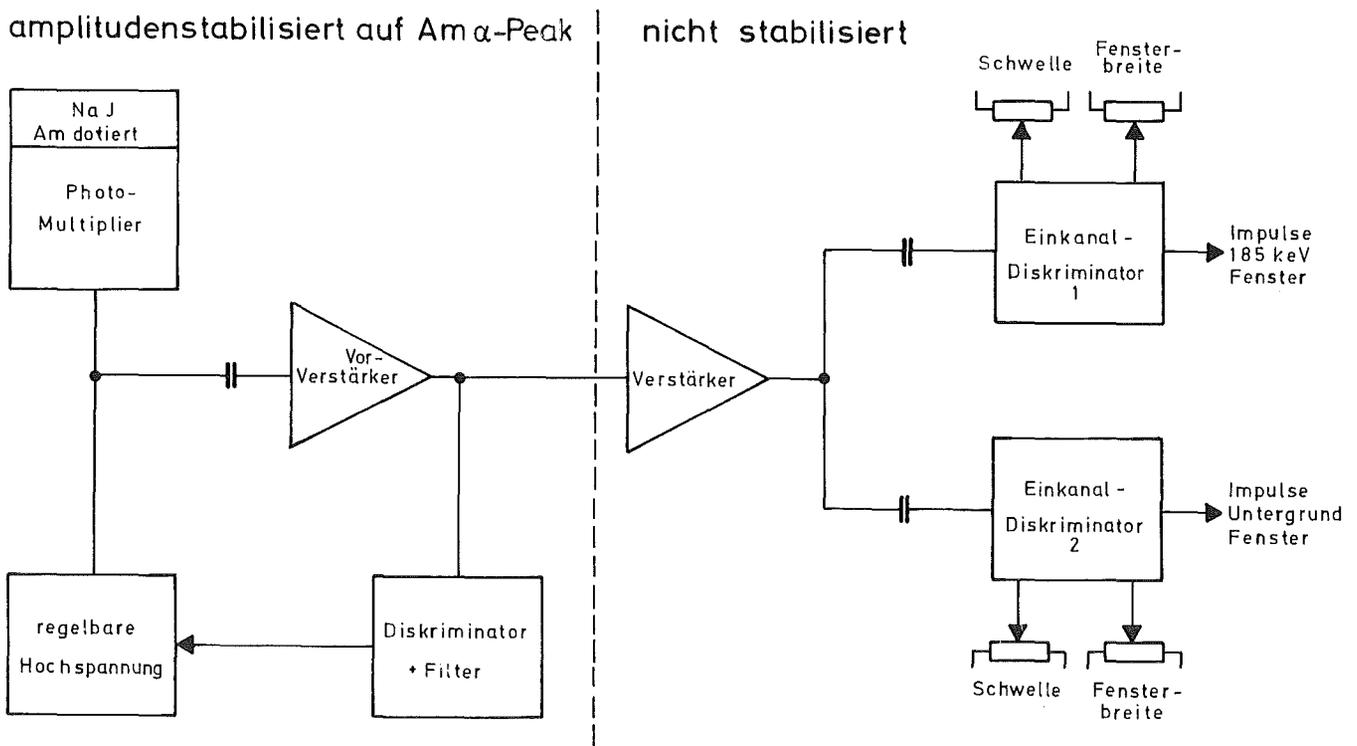


Abb. 2.1/7 Prinzipschaltbild der Analogelektronik des SAM2-Gerätes.

In Abb. 2.1/7 ist ein Prinzipschaltbild des Detektors und des Analogteils der Meßelektronik des SAM2 dargestellt. NaJ-Kristall, Photomultiplier und Vorverstärker werden amplituden-stabilisiert. Als Referenzlinie für die Stabilisierung wird die α -Strahlung einer ^{241}Am -Quelle im NaJ-Detektor mit einem Gammaenergieäquivalent von 3-4 MeV benutzt. Änderungen in der Amplitude des α -Peaks werden in einem Diskriminator nachgewiesen und durch Nachregeln der Hochspannung für den Photomultiplier kompensiert. Die Untersuchungen konzentrierten sich auf prinzipielle Probleme der α -Stabilisierung und auf die nicht stabilisierten Teile der Meßelektronik, d.h. den Verstärker und die Diskriminatoren, nachdem im digitalen Teil des Meßsystems keine Temperaturabhängigkeit festgestellt worden war. Ein möglicher Temperaturgang der Amplitudenstabilisierung wurde experimentell nicht separat untersucht. Er wäre aber in den im Abschnitt 2.1.2.2 beschriebenen integralen Messungen enthalten.

2.1.2.1 α -Stabilisierung

Die α -Stabilisierung eines NaJ-Gammadetektors ist vom Prinzip her nicht unproblematisch, da α - und γ -Strahlung im NaJ eine verschiedene Temperaturabhängigkeit der spektralen Verteilung des erzeugten Lumineszenzlichtes und damit der Impulshöhe zeigen. Nach Untersuchungen von Menefee und Cho /2/ ändert sich die Gammaäquivalenzenergie der α -Linie des ^{241}Am im Temperaturbereich zwischen 0°C und 40°C um -5 %. Das bedeutet bei einem α -stabilisierten NaJ Detektor eine Verschiebung der Amplitude der 185 keV Linie in diesem Temperaturintervall um ebenfalls 5 %. Im Anreicherungsmeßgerät SAM2 wird dieser Effekt durch einen temperaturabhängigen Widerstand im α -Amplitudendiskriminator kompensiert. Diese Kompensationsmethode arbeitet aber nur dann zufriedenstellend, wenn sich der NaJ-Kristall und der Kompensationswiderstand, d.h. die Meßelektronik, stets auf gleicher Temperatur befinden. Unsere Untersuchungen haben gezeigt, daß dies insbesondere bei raschen Temperaturänderungen nicht der Fall ist. Während die Regelelektronik auf Änderungen der Umgebungstemperatur prompt reagierte, stellte sich beim thermisch gut isolierten NaJ-Kristall das thermische Gleichgewicht erst mit einer charakteristischen Halbwertszeit von ca. 2-3 Stunden ein. Dadurch können bei raschen Temperaturänderungen Fehler bis zu einigen Prozent in der Anreicherungsbestimmung auftreten.

Eine bessere, aber aufwendigere Lösung des Problems besteht darin, den NaJ-Kristall auf konstanter Temperatur zu halten (bei temperaturunabhängiger α -Diskriminatorschwelle). Die Temperatur des Kristalls sollte

dabei möglichst hoch liegen, da die gammaäquivalente Amplitudenshift des α -Peaks mit steigender Temperatur abnimmt. Andererseits dürfen aber der Photomultiplier und der optische Kontakt zwischen NaJ und Photomultiplier thermisch nicht zu hoch belastet werden. Als guter Kompromiß wurden experimentell Temperaturen zwischen 40°C und 50°C ermittelt.

Für den Detektorkopf ist deshalb ein Heizthermostat gebaut worden, der die Temperatur des NaJ Kristalls auf 42°C konstant hält. Bei temperaturkonstanter Meßelektronik wurde der so temperaturstabilisierte Detektor Raumtemperaturen zwischen 7°C und 20°C ausgesetzt. Die beobachteten Schwankungen in den Anreicherungsmeßwerten lagen dabei unterhalb 0,1 %. Alle im folgenden beschriebenen Messungen wurden mit dem temperaturstabilisierten NaJ-Detektor durchgeführt.

2.1.2.2 Verstärker und Diskriminatoren

Als besonders temperaturempfindlich erwies sich der nicht amplitudenstabilisierte Teil der Meßelektronik. Zunächst wurde die Stabilität der Schwellen in den Einkanaldiskriminatoren untersucht. Die gewählten Einstellungen der Schwellen entsprachen dabei einem Energiefenster von 130-240 keV. Abb. 2.1/8 zeigt das Prinzipschaltbild eines Einkanaldiskriminators im SAM2-Gerät und die benutzten Meßpunkte. In Tabelle 2.1/V sind die Meßergebnisse bei 2 Temperaturen für den Diskriminator 1 im SAM2/I angegeben. Die Fensterbreiten änderten sich um etwa + 0,3 %, die Fensterschwellen um + 0,4 % bei einer Temperaturänderung von 15°C auf 26°C . Diese Werte sind bedingt durch die Temperaturkoeffizienten der verwendeten Widerstände und der Spannungsstabilisierung.

Eine wesentlich stärkere Temperaturabhängigkeit zeigte der Verstärker des SAM2. Zur quantitativen Bestimmung der Instabilität dieses Elementes sind die Ausgangspunkte des Verstärkers auf einen Vielkanalanalysator gegeben worden. Hier konnte durch eine Spektrumsanalyse die Änderung der Lage und der Halbwertsbreite der 185 KeV Linie in Abhängigkeit von der Umgebungstemperatur untersucht werden. Parallel dazu erfolgte eine Messung der Temperaturabhängigkeit der gesamten Analogelektronik einschließlich der Diskriminatoren. Dazu wurde bei fester Breite des Energiefensters die Schwelle des 185 keV Fensters variiert und das jeweilige Maximum der Zählrate im 185 keV-Peak bestimmt. Die Ergebnisse dieser Messungen sind in Abb. 2.1/9 dargestellt.

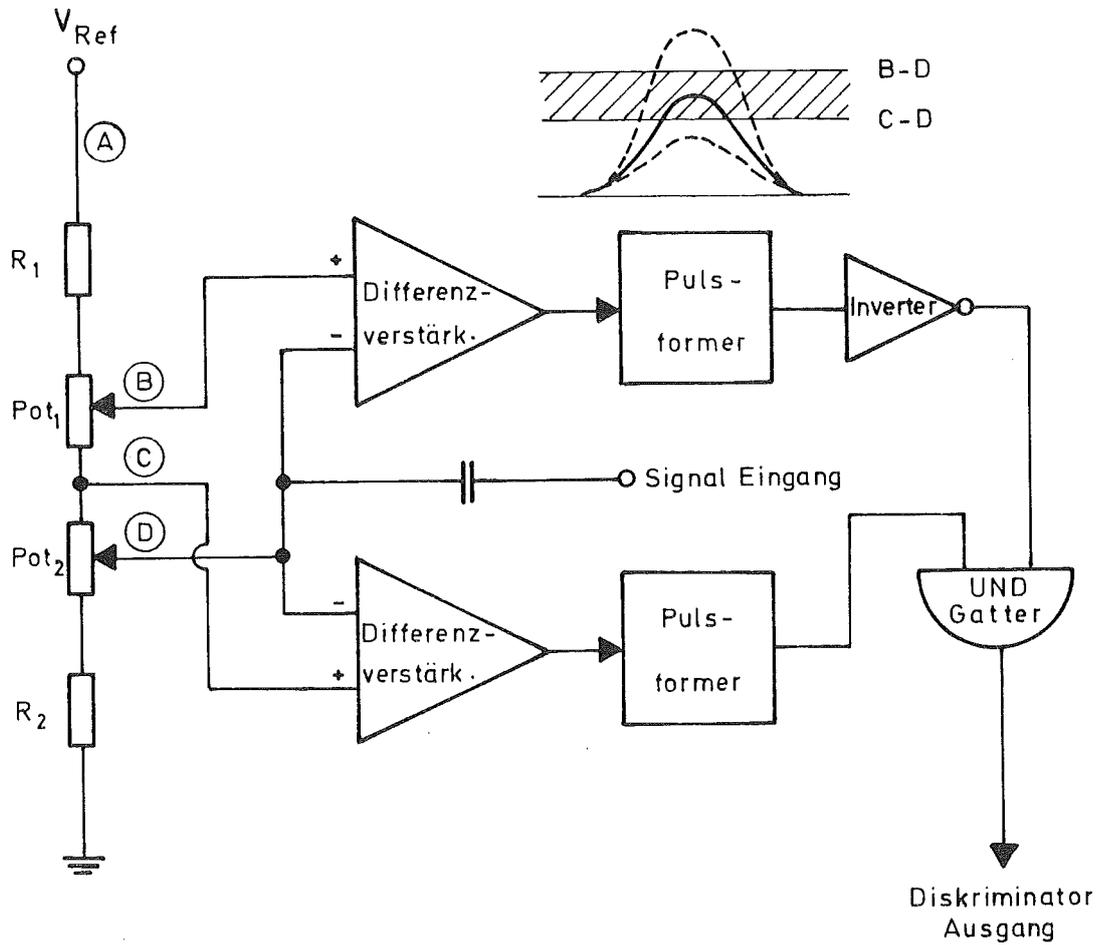


Abb. 2.1/8 Prinzipschaltbild eines Einkanaldiskriminators im SAM2-Gerät

Tabelle 2.1/V

Temperaturabhängigkeit der Fenstereinstellung von Diskriminator 1 im Gerät SAM2/I.

Meßpunkt	Potential [V]		Delta [mV]	Delta [%]
	15°C	26°C		
A	4.9145	4.9095	-5.0	-0.10
B	2.0940	2.0985	+4.5	+0.21
C	1.9040	1.9080	+4.0	+0.21
D	1.4295	1.4320	+2.5	+0.17
B-D	0.6645	0.6665	+2.0	+0.30
C-D	0.4745	0.4760	+1.5	+0.32
Schwelle	0.4745	0.4760	+1.5	+0.32
Fensterbreite	0.1900	0.1905	+0.5	+0.26

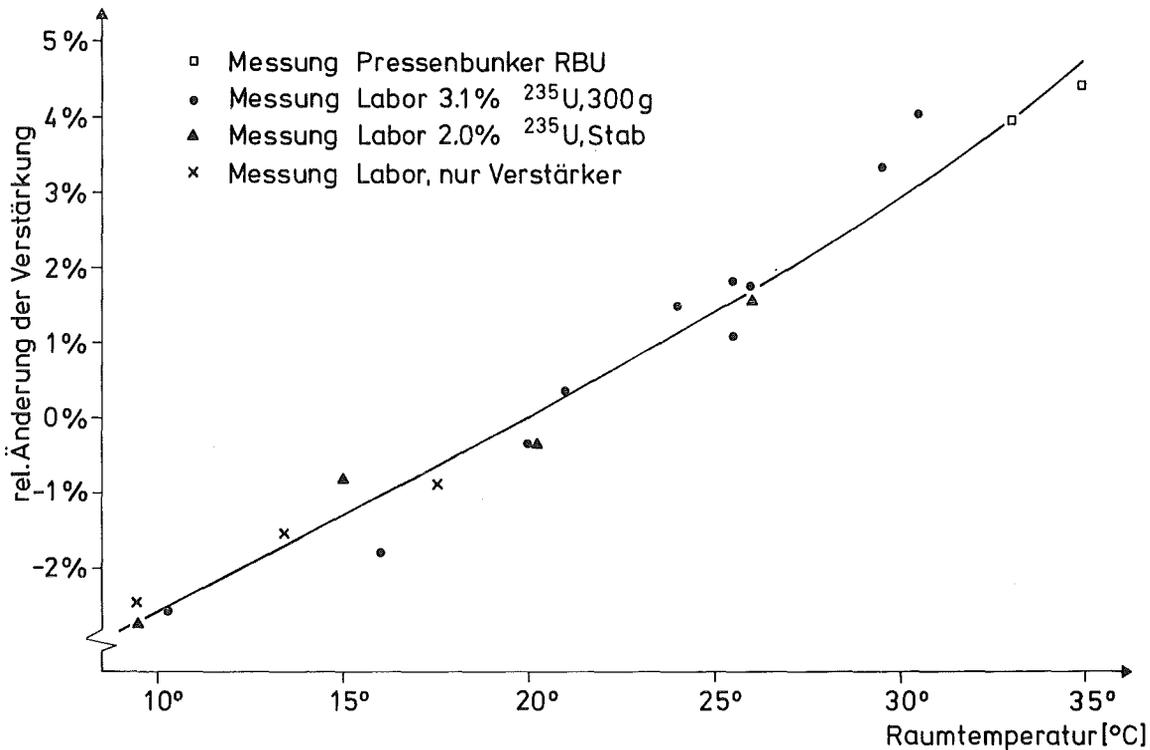


Abb. 2.1/9 Relative Änderung der Gesamtverstärkung für SAM2/II als Funktion der Raumtemperatur (NaJ-Detektor temperaturstabilisiert).

Die temperaturbedingten Instabilitäten des SAM2/II entsprechen einer Verschiebung der 185 KeV Linie um + 7 % sowie einer Verschlechterung der Energieauflösung von ca. + 2 % bei einer Temperaturänderung von 10°C auf 35°C.

Ein allgemein gültiger quantitativer Zusammenhang zwischen Temperaturänderung und Änderung des Anreicherungsmeßwertes kann aus diesen Untersuchungen nicht gewonnen werden, weil hierbei individuelle Parameter wie Lage und Breite der Energiefenster, Auflösungsvermögen des Detektors und die Form des Untergrundspektrums eingehen. Für eines der Meßsysteme sind aber bei einer typischerweise gewählten Einstellung der Diskriminatoren Testmessungen durchgeführt worden. Benutzt wurde SAM2/II in Verbindung mit einem temperaturstabilisierten 2"x1/2" NaJ-Detektor. Als Energiefenster wurden für die 185 KeV Linie ein Energiebereich von 140-215 KeV und für den Untergrund der Energiebereich von 240-380 KeV gewählt. Bei dieser Einstellung ergaben sich die instrumentell bedingten Unsicherheiten bei der Anreicherungsbestimmung einer UO₂ Probe mit 3,1 % Anreicherung in Temperaturintervallen von $\pm 2^\circ\text{C}$ um die Ausgangstemperatur zu $< 0,2\%$. Der Fehler stieg bei Temperaturänderungen um $\pm 5^\circ\text{C}$ auf etwa 1 % und betrug bei $\pm 10^\circ\text{C}$ mehr als 5 %.

Ein Einfluß von Netzspannungsschwankungen auf das Meßergebnis konnte nicht eindeutig festgestellt werden, er ist jedoch sicher $< 0,3\%$ für Netzspannungsänderungen von 200-240 V. Auswirkungen von Netzfrequenzänderungen wurden nicht untersucht, da inzwischen alle von uns benutzten SAM2 Geräte mit einem Quarzzeitgeber ausgerüstet sind.

2.1.2.3 Schlußfolgerungen

1. Die instrumentell bedingten Instabilitäten eines α -stabilisierten SAM2 Anreicherungsmeßgerätes lassen sich unter folgenden Bedingungen auf einem Wert unter $0,2\%$ (bezogen auf die Anreicherung) halten:
 - a) Die Einstellung der Energiefenster wird auf möglichst geringe Temperaturabhängigkeit optimiert.
 - b) NaJ Detektor und Meßelektronik sind stets auf gleicher Temperatur.
 - c) Nach raschem Temperaturwechsel (z.B. beim Transport des Systems) wird eine Wartezeit von 5 Stunden zum Temperatúrausgleich des NaJ Detektors eingehalten.
 - d) Bei Änderung der Umgebungstemperatur um mehr als $\pm 2^{\circ}\text{C}$ wird eine der Verstärkungsänderung angepaßte Neueinstellung des Peakfensters und eine Neueichung mit mindestens 2 verschiedenen Eichstandards durchgeführt.

Die Bedingungen b) und c) entfallen bei einem temperaturstabilisierten NaJ-Kristall.

2. Eine wesentliche Verbesserung des SAM2 bezüglich Temperaturstabilität ist durch einfache Maßnahmen nicht zu erreichen. Sie würde eine Neukonstruktion des Meßsystems voraussetzen.
3. Nachträgliche Korrekturen der Meßergebnisse auf den Einfluß der Temperatur sind prinzipiell möglich, jedoch ist die Gewinnung der Korrekturparameter sehr aufwendig und die Korrekturen bei Temperaturabweichungen von mehr als $\sim \pm 5^{\circ}\text{C}$ von der Eichtemperatur sehr unsicher.
4. Als Alternative zur α -Stabilisierung bietet sich die Stabilisierung auf eine γ -Referenzlinie an. Testversuche mit einem auf der 59 KeV γ -Linie des ^{241}Am stabilisierten Meßsystems sind erfolversprechend verlaufen /3/.
5. Als optimale Lösung der Stabilitätsprobleme erscheint die Verwendung eines digital stabilisierten Analog-digital-Wandlers mit einer γ -Referenzlinie. Messungen dazu sind in Vorbereitung.

2.1.3 In-Line-Messungen der ^{235}U -Anreicherung in einer LWR-Brennelement-Fabrikationsanlage

Der Empfehlung des BMFT-Instrumentenausschusses folgend ist im Jahre 1974 mit der Entwicklung und Erprobung eines In-Line-Meßsystems zur kontinuierlichen Überwachung der ^{235}U -Anreicherung in der Pulverpreßlinie bei der Fa. RBU begonnen worden. Die Hauptaufgabe dieses Vorhabens bestand darin, ein im Prinzip physikalisch erprobtes Verfahren den praktischen Erfordernissen von In-Line-Messungen anzupassen. Dies beinhaltete u.a. die

- Untersuchung möglicher systematischer Fehlerquellen in der Meßmethode aufgrund spezifischer Gegebenheiten vor Ort
- Verwirklichung eines zuverlässigen und langzeitstabilen Meßsystems
- Eliminierung von Störeinflüssen auf das Meßsystem bzw. Realisierung wirksamer Gegenmaßnahmen
- Integration des Meßsystems in den Prozeßablauf und weitgehende Automatisierung des Meßvorganges
- Entwicklung praktikabler Eichprozeduren.

Die Position des Anreicherungsmonitors innerhalb der Prozeßlinie ist in der linken Hälfte der Abb. 2.1/10 schematisch dargestellt. Im unteren Teil eines ca. 2 m hohen Stahlrohres (Durchmesser 27 cm) ist an dessen äußerer Mantelfläche ein NaJ-Detektor als Teil des Meßsystems montiert. Die Anreicherungs-messung erfolgt zerstörungsfrei durch die 0.3 cm starke Wand des Stahlrohres. Dieses Füllrohr (Pressenbunker) direkt oberhalb der Pelletpresse dient als Pufferbehälter für das zu pressende Uranpulver. Das zu analysierende Material besteht zum überwiegenden Teil aus UO_2 -Pulver, dem jedoch aus prozeßtechnischen Gründen aufgearbeiteter Abfall aus dem Pelletproduktionsbereich in Form von U_3O_8 bis zu einem Gewichtsanteil von $\sim 10\%$ beigemischt wird. Die homogene Vermischung des UO_2 und U_3O_8 erfolgt in einem Drehmischer, aus dem der Pressenbunker je nach Bedarf in unregelmäßigen Abständen - meistens jedoch bei Schichtwechsel - in Chargen bis zu 200 kg mit Pulver gespeist wird.

Insgesamt existieren in der Anlage 6 identische Pulverpreßlinien, in denen oft mehrere Anreicherungsgrade parallel verarbeitet werden. Es ist vorgesehen, alle 6 Prozeßlinien mit einem Anreicherungsmonitor auszustatten, so daß das

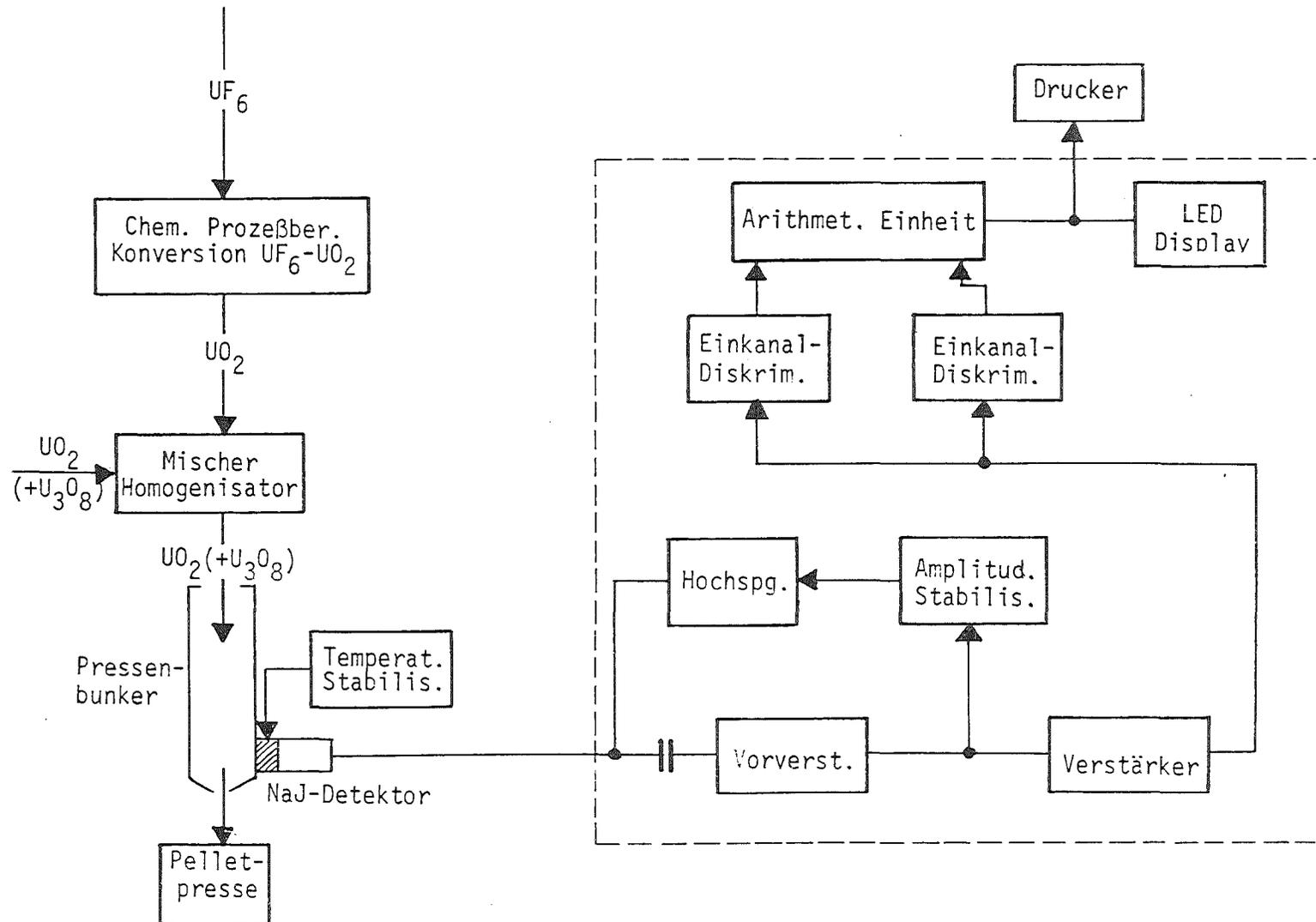


Abb. 2.1/10 Blockschema der Prozeßlinie und der Meßelektronik

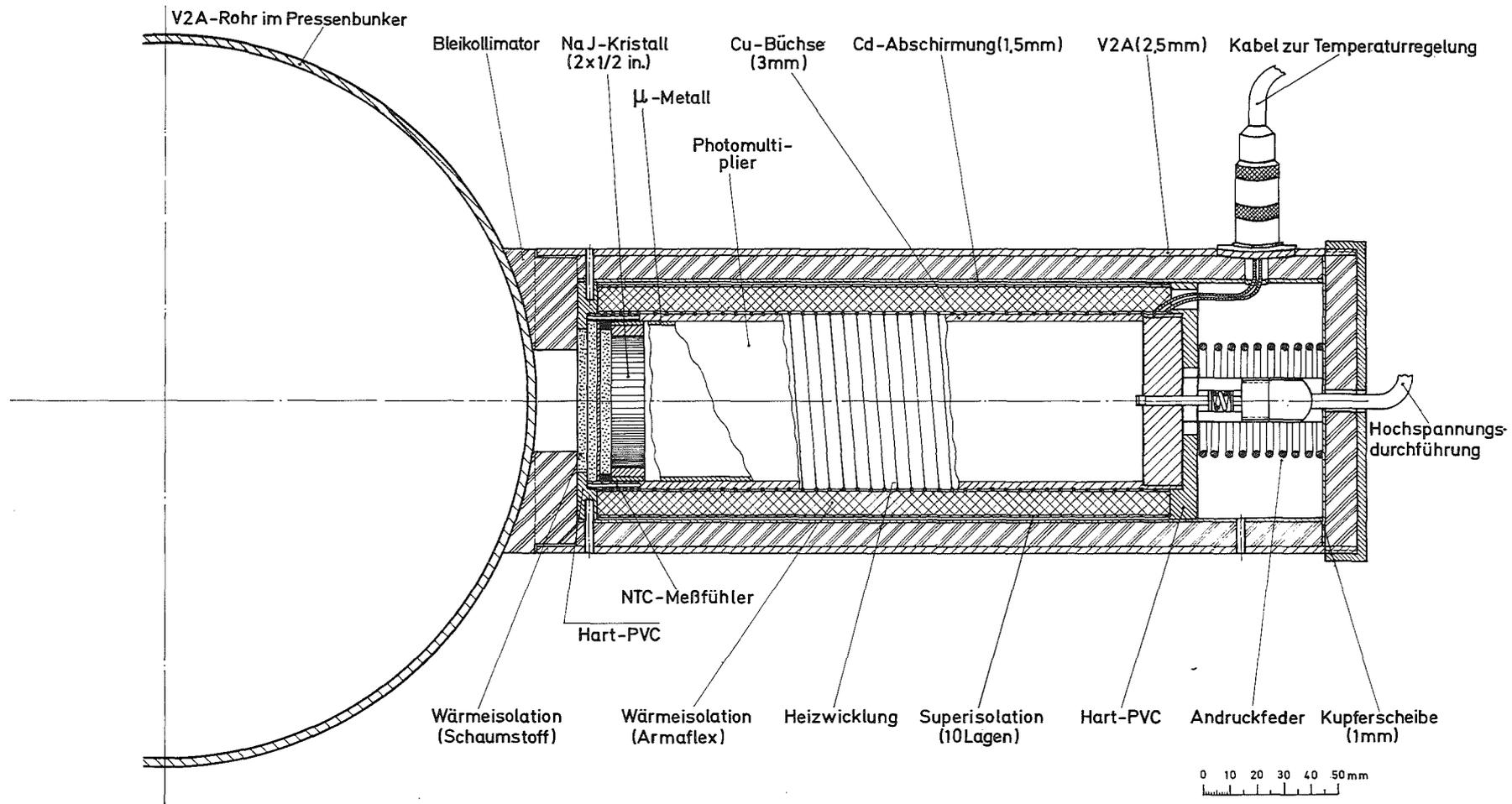


Abb. 2.1/11 Querschnitt durch das Detektorsystem

gesamte Uranpulver, welches dem Fertigungsbereich zugeführt wird, die Anreicherungsmonitore passieren wird. Eine kontinuierliche Überwachung der ^{235}U -Anreicherung an dieser Stelle erscheint auch aus betrieblicher Sicht interessant und wichtig, weil hier die Einhaltung der relativ eng spezifizierten Anreicherungsweite ($\pm 1-2\%$ relativ) der Pellets - und damit indirekt auch der Brennstoffsäulen im Brennstab - sichergestellt werden muß.

2.1.3.1 Testmessungen mit einem alphastabilisierten Meßsystem

Die Erprobung der gammaspektrometrischen Anreicherungsmeßung vor Ort ist zunächst mit einem preiswerten, kommerziell erhältlichen Anreicherungsmeßgerät⁺⁾ durchgeführt worden. Dieses hochintegrierte Instrument enthält alle für eine Anreicherungsmeßung notwendigen Komponenten (im Blockschaltbild in Abb. 2.1/10 sind diese gestrichelt eingerahmt). Das Stabilitätsverhalten dieses Meßgerätes ist im Labor ausführlich untersucht worden.

Der elektronische Teil des Anreicherungsmeßgerätes wird in Verbindung mit einem americiumdotierten NaJ (Tl)-Detektor betrieben. Die dabei praktizierte Methode der Amplitudenstabilisierung auf der Alphareferenzlinie kann wegen des unterschiedlichen Temperaturverhaltens der Lichtausbeute der durch Alpha- und Gammastrahlung induzierten Lumineszenzstrahlung in NaJ bei stark schwankenden Temperaturverhältnissen jedoch nur dann sinnvoll angewandt werden, wenn der NaJ-Kristall auf konstanter Temperatur gehalten wird. Der Detektor wurde deshalb temperaturstabilisiert. Er wird durch Regelung einer an eine Heizdrahtwicklung angelegten Wechselspannung auf einer konstanten Temperatur von ca. 42°C gehalten. Diese Temperatur liegt einerseits etwa 7°C über der am Pressenbunker beobachteten maximalen Temperatur von ca. 35°C , ist andererseits aber noch so niedrig, daß eine merkliche Verschlechterung der Auflösung nicht auftritt. Schwankungen der Umgebungstemperatur werden mit einem Regelfaktor ≥ 35 ausgeregelt. Einen Querschnitt durch das Detektorsystem zeigt Abb. 2.1/11.

Ein typisches Gammasktrum, aufgenommen an der gezeigten Meßposition, findet sich in Abb. 2.1/12. Die schraffierten Bereiche deuten die Lage der Energiefenster an, die den Bereich der 185 keV Photolinie (138-215 keV) und - zur Korrektur des Untergrundes - einen Energiebereich oberhalb der 185 keV Linie

^{+) Stabilized Assay Meter der Fa. Eberline, Santa Fe, USA.}

(240-395 keV) aus dem Gammasktrum ausblenden. Die der Anreicherung proportionale Nettozählrate der 185 keV Strahlung beträgt in der dargestellten Meßanordnung ca. 170 Impulse/sec und % ^{235}U . Variationen in der Stöchiometrie des Pulvers oder Verunreinigungen durch leichte Elemente haben unter den gegebenen Verhältnissen keinen meßbaren Einfluß auf die Intensität der 185 keV Strahlung (≤ 0.05 % relativ). Die Anreicherung ϵ wird aus den in den Diskriminatoren gemessenen Zählraten P und B über die Eichgleichung $\epsilon = aP - bB$ in einer arithmetischen Einheit, in welche die Eichkonstanten a und b eingegeben werden können, ermittelt. Das Anreicherungsmeßergebnis erscheint an einem Display und wird über einen Drucker auf einem Druckstreifen protokolliert.

Zur Bestimmung der Eichkonstanten a und b werden mindestens 2 Proben mit verschiedener Anreicherung benötigt. Da in einer Pulverpreßlinie in der Regel über Wochen oder gar Monate UO_2 -Pulver angenähert gleicher Anreicherung verarbeitet wird, konnte das Meßsystem nicht in der eigentlichen Meßposition geeicht werden. Statt dessen erfolgten die Eichmessungen an einem 1:1 Modell des Pulverrohres, das nacheinander mit insgesamt 6 verschiedenen Eichproben, jeweils bestehend aus ca. 60 - 80 kg UO_2 -Pulver, gefüllt wurde. Die Eichkonstanten folgten dann aus einer Least-Squares-Anpassung der genau bekannten, massenspektrometrisch bestimmten Anreicherungswerte e_i und der gemessenen Zählraten P_i und B_i ($i = 1 \dots 6$) an die Eichgleichung. Die Ergebnisse der Eichmessungen sind in Tabelle 2.1/VI zusammengestellt. Die Standardabweichung von 0.3 % für die relativen Differenzen zwischen massenspektrometrischen und gammaspektrometrischen Anreicherungsdaten gibt einen Hinweis auf die ausgezeichnete interne Konsistenz der beiden Datensätze. Außerdem zeigen die gammaspektrometrischen Meßwerte keine Korrelation mit dem Probenalter und den damit verbundenen sehr unterschiedlichen Untergrundverhältnissen.

In Verbindung mit den Eichmessungen wurde ferner die Frage untersucht, ob die Höhe der Pulversäule über dem Detektorniveau einen Einfluß auf das Anreicherungsresultat zeigt. Ein solcher Einfluß kann anhand der in Tabelle 2.1/VII angegebenen Meßwerte verneint werden.

Nach der Installation des Meßsystems an einer der 6 Pulverpreßlinien erfolgte eine mehrwöchige Erprobungsphase unter realistischen Bedingungen. Die dabei gewonnenen Erfahrungen seien anhand von Abb. 2.1/13 diskutiert:

Tabelle 2.1/VI

Ergebnisse der Eichmessungen mit 6 verschiedenen UO_2 -Proben. Die angegebenen Fehler sind 2σ -Werte.

Probenalter (Tage)	Anreicherung		$\frac{G-M}{G} \times 100$ (%)
	Massenspektr. (M)	Gammaskpektr. (G)	
3	3.107 \pm 0.012	3.093 \pm 0.014	- 0.45
1	1.903 \pm 0.012	1.902 \pm 0.012	- 0.05
6	0.753 \pm 0.012	0.754 \pm 0.016	+ 0.13
37	1.448 \pm 0.012	1.445 \pm 0.020	- 0.21
10	1.963 \pm 0.012	1.969 \pm 0.016	+ 0.31
3	2.882 \pm 0.012	2.890 \pm 0.014	+ 0.28
		Mittel	= + 0.0017
			σ = 0.30

Tabelle 2.1/VII

Gemessene Anreicherungs-werte in Abhängigkeit von der Füllhöhe des UO_2 -Pulvers im Meßrohr. Massenspektrometrisch gemessene Anreicherung 1.963 %.

Füllhöhe des UO_2 -Pulvers über Detektormitte (cm)	Anreicherung (%)
13	1.958
21	1.965
28	1.969
41	1.963
64	1.967

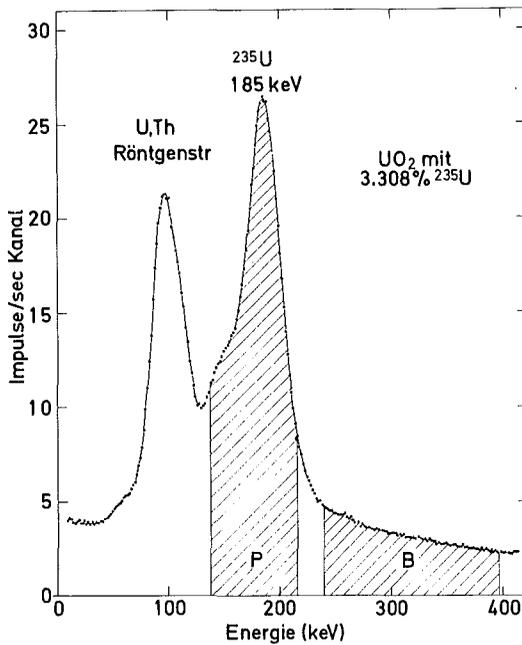


Abb. 2.1/12
 Gammaspektrum von Uranpulver,
 gemessen am Pressenbunker

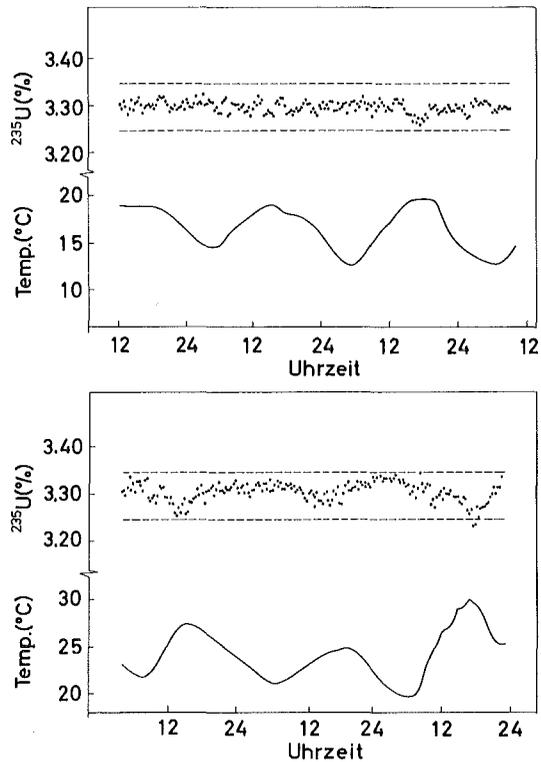


Abb. 2.1/13
 Anreicherungsmeßwerte, gemessen mit
 dem alphastabilisierten Meßsystem bei
 verschiedenen Temperaturverhältnissen

In der oberen Hälfte dieser Abbildung sind die Anreicherungsmeßwerte einer 3-tägigen Meßperiode bei stets gefülltem Pressenbunker aufgezeichnet, darunter die Temperatur am Ort des Meßsystems während dieser Meßzeit. Jeder Meßpunkt entspricht einer Meßzeit von 20 min. Die gestrichelten Linien deuten die betrieblichen Toleranzgrenzen von ± 0.05 Gewichtsprozent ^{235}U für den nominalen Anreicherungsgrad von 3.30 % an. Die gemessene relative Standardabweichung aller 208 Meßpunkte vom Anreicherungsmitelwert 3.295 beträgt 0.36 %. Sie weicht damit nicht wesentlich von der allein aus der Zählstatistik berechneten relativen Standardabweichung von 0.24 % ab.

In der unteren Hälfte von Abb. 2.1/13 sind Meßwerte gezeigt, die 10 Tage später in einer gleich langen Meßperiode, jedoch bei anderen Temperaturverhältnissen aufgenommen wurden. Die Meßwerte zeigen in diesem Temperaturintervall zwischen 20°C und 30°C eine deutliche Korrelation mit der Umgebungstemperatur, obwohl die Lage des Peakfensters bei diesen Messungen auf minimale Empfindlichkeit der Peakzählrate gegenüber Temperaturschwankungen um eine mittlere Temperatur von 25°C optimalisiert war. Die beobachtete prozentuale Änderung der gemessenen

Anreicherungsrate pro °C Temperaturänderung nimmt mit steigender Temperatur stark zu. Bei Temperaturen oberhalb von 30°C, die an der Meßposition wegen der unmittelbaren Nähe der Sinteröfen häufig zu verzeichnen sind, waren zuverlässige Anreicherungsmessungen mit dem verwendeten Spektrometer nicht mehr möglich (die Ursachen hierfür werden in Ref. 4 diskutiert). Eine Verbesserung könnte hier nur durch Klimatisierung der Meßelektronik erreicht werden.

2.1.3.2 Testmessungen mit einem gammastabilisierten Meßsystem

Nach den hinsichtlich der Temperaturstabilität nicht befriedigenden Ergebnissen der Testmessungen mit dem alphastabilisierten Anreicherungsmeßgerät ist eine instrumentelle Alternativlösung verwirklicht worden, die trotz des Verzichts auf eine Temperaturstabilisierung sowohl des Detektors als auch der Meßelektronik ein ausgezeichnetes Stabilitätsverhalten zeigt. Bei diesem Meßsystem wurde zur Amplitudenstabilisierung der Analogimpulse die 59 keV Photolinie einer am Detektor angebrachten ²⁴¹Am-Gammaquelle als Referenzlinie verwendet. Der Vorteil dieser Gammastabilisierung besteht in dem gleichen Temperaturverhalten der Referenzimpulse und der zu spektrometrierenden Impulse. Da die Amplitudenstabilisierung bei dieser Version hinter dem Hauptverstärker erfolgte, konnten Verstärkungsschwankungen von dieser Seite ebenfalls mitausgeregelt werden. Die stabilisierten Analogimpulse wurden zwei Einkanal Diskriminatoren zugeführt, deren Ausgänge mit einem Zähler-Timer System und einer arithmetischen Recheneinheit verbunden waren. Ausgedruckt wurden die Einzelzählraten im Peak- und Untergrundfenster und die daraus berechnete Anreicherung. Hauptverstärker, Amplitudenstabilisierung und Diskriminatoren bestanden aus modularen NIM-Einschüben.

Bei der Installation dieses gammastabilisierten Meßsystems ist nur noch der NaJ-Detektor mit Vorverstärker am Pressenbunker belassen worden, während die übrige Meßelektronik in einen Raum außerhalb des Fabrikationsbereiches verlegt wurde. Detektor und Meßelektronik waren über eine 70 m lange Kabelstrecke miteinander verbunden. Konstante Temperaturverhältnisse waren allerdings auch in dem Meßraum außerhalb des Fabrikationsbereiches nicht gegeben.

Nach den Erfahrungen der ersten Serie von Testmessungen am Pressenbunker erschien es wünschenswert, ein Kenntnis über die Höhe des Pulverfüllstandes zu haben, der sich sehr häufig in der Höhe des Anreicherungsmonitors bewegte. Für eine zuverlässige Anreicherungsmessung mußte aber der Pulverspiegel mindestens 10-15 cm über dem Detektor liegen. Deshalb wurde bei der zweiten Serie von Testmessungen mit dem gammastabilisierten Meßsystem ca. 20 cm über dem Anreicherungsmonitor zusätzlich eine Transmissionsmessung durchgeführt. Gemessen wurde mit einem 3" x 3" NaJ-Detektor und einer ^{22}Na -Quelle die Transmission der 1275 keV Strahlung durch das Pulverrohr. Eine Anreicherungsmessung erfolgte danach immer nur dann, wenn durch die Transmissionsmessung eine Pulverhöhe von mindestens 20 cm über dem Anreicherungsmonitor angezeigt wurde.

In dieser Weise sind in einer 3 wöchigen Erprobungsphase 503 Anreicherungsmessungen am Pressenbunker durchgeführt worden. Jede Einzelmessung dauerte 1000 sec. Die aus den Anreicherungsmeßwerten eines jeden Tages bestimmten Mittelwerte und die zugehörigen 2σ -Werte sind in Tabelle 2.1/VIII zusammengestellt. Die gemessenen 2σ -Werte - sie liegen je nach Probenalter und Anreicherungsgrad zwischen 0.4 - 0.8 % relativ - stimmen innerhalb geringfügiger Abweichungen nach unten und nach oben mit dem aus den Zählraten in den beiden Energiefenstern errechneten statistischen Fehler überein. Diese Tatsache sowie die ausgezeichnete Übereinstimmung der an verschiedenen Tagen für dasselbe Material gemessenen Anreicherungswerte widerspiegeln die Kurz- und Langzeitstabilität des Meßsystems, obwohl dieses während der 3 wöchigen Meßperiode sowohl am Ort des Detektors als auch am Ort der Meßelektronik Schwankungen der Umgebungstemperatur zwischen ca. 25°C und 35°C ausgesetzt war.

Von großer praktischer Bedeutung ist das bei diesen Messungen angewandte Eichverfahren. An Stelle der Eichung mit 2 Proben verschiedener Anreicherung ist eine unter den am Pressenbunker gegebenen Verhältnissen sehr viel leichter realisierbare Eichung mit Proben gleicher Anreicherung, aber verschiedenen Probenalters durchgeführt worden. Dieses Eichverfahren kann praktiziert werden, wenn die Form des Comptonpektrums der $^{234\text{m}}\text{Pa}$ -Strahlung aus der zu analysierenden Probe mit der Form des Raumuntergrundspektrums übereinstimmt. Diese Bedingung ist am Pressenbunker offensichtlich erfüllt. Wie der Vergleich mit den in Tabelle 2.1/VIII angegebenen Laboranalysen zeigt, konnte mit dieser Eichung der Anreicherungsgrad nach dem während der Meßperiode erfolgten Anreicherungsgradwechsel exakt bestätigt werden. Insgesamt stimmen die von dem

Tabelle 2.1/VIII

Ergebnisse von Anreicherungsbestimmungen mit einem gammastabilisierten In-Line Meßsystem. Die angegebenen Fehler sind 2σ -Werte.

Tag	Anzahl der Meßwerte	Mittelwert (Gew.% ²³⁵ U)	Absolutfehler aus Zählstatistik (2σ)	Laboranalyse (Gew.% ²³⁵ U)
1	7	2.499 \pm 0.015	0.016	2.491 \pm 0.028
2	23	2.495 \pm 0.018	0.016	2.504 \pm 0.032
3	27	2.493 \pm 0.015	0.016	2.502 \pm 0.032
4	44	2.495 \pm 0.014	0.016	
Loswechsel				
5	24	2.507 \pm 0.020	0.019	
6	4	2.513 \pm 0.022	0.019	
7	32	2.510 \pm 0.020	0.019	
8	27	2.512 \pm 0.015	0.019	2.510 \pm 0.032
9	9	2.517 \pm 0.016	0.019	2.495 \pm 0.028
Loswechsel				
10	16	3.195 \pm 0.018	0.014	3.194 \pm 0.035
11	5	3.190 \pm 0.011	0.014	3.211 \pm 0.035
12	43	3.193 \pm 0.012	0.014	
13	72	3.193 \pm 0.014	0.014	
14	26	3.193 \pm 0.016	0.014	3.194 \pm 0.035
Loswechsel				
15	33	3.196 \pm 0.011	0.014	3.217 \pm 0.035
16	16	3.190 \pm 0.014	0.014	3.235 \pm 0.035
Loswechsel				
16	7	3.184 \pm 0.008	0.013	
17	43	3.188 \pm 0.014	0.013	3.190 \pm 0.035
18	17	3.187 \pm 0.018	0.014	
19	9	3.185 \pm 0.016	0.014	
20	19	3.185 \pm 0.011	0.014	

In-Line Meßsystem am Pressenbunker gemessenen Anreicherungsweite gut mit den Ergebnissen der vom Anlagenbetreiber im Labor durchgeführten Vergleichsanalysen überein, obgleich letztere eine stärkere Streuung aufweisen. Eine deutliche Abweichung besteht bei den am 15. und 16. Tag durchgeführten Analysen. Möglicherweise ist diese Abweichung mit dem Problem einer repräsentativen Probennahme verknüpft, dem alle Laboranalysen an geringen Probenmengen unterliegen, wenn Inhomogenitäten bezüglich der Anreicherung im Probenmaterial nicht mit Sicherheit ausgeschlossen werden können. Demgegenüber ist die gamma-spektrometrische Anreicherungsmessung an den relativ großen Probenmengen gegen solche Effekte weitgehend unempfindlich. Die Ergebnisse der vorliegenden In-Line Messungen demonstrieren deutlich die Leistungsfähigkeit der Methode.

2.1.4 Anreicherungsmessung am Einzelpellet und am Brennstab

Neben dem losen UO_2 -Pulver bildet der gesinterte UO_2 -Brennstoff in Gestalt von Einzelpellets und fertigen Brennstäben eine weitere wichtige Form des Kernmaterials in Fabrikationsanlagen für LWR-Brennelemente, an dem für Überwachungs-, Bilanzierungs- und Qualitätskontrollzwecke Anreicherungsmessungen auszuführen sind.

Aus geometrischen Gründen empfiehlt sich für Messungen an dieser Form des Brennstoffs die Verwendung eines NaJ-Bohrlochdetektors. Bei der Dimensionierung der Größe des Bohrlochdurchmessers sind dabei zwei Gesichtspunkte zu berücksichtigen: einerseits muß das Bohrloch genügend groß sein, um Abschirmmaterial für Kollimationszwecke aufnehmen zu können, andererseits verschlechtern sich erfahrungsgemäß mit größer werdendem Bohrlochdurchmesser die Lichtsammelleigenschaften des Kristalls und damit die Energieauflösung des Detektors. Letzterem könnte im Prinzip durch die Verwendung von mehreren Photomultipliern begegnet werden; allerdings würde dieses Verfahren wegen der hohen Anforderungen an die Stabilität der Meßelektronik einen hohen Aufwand an Stabilisierungselektronik bedingen.

Als Kompromißlösung ist ein 2.5" \emptyset x 2,5" NaJ-Detektor ausgewählt worden, der senkrecht zur Zylinderachse mit einer durchgehenden Bohrung von 1" Durchmesser versehen war (Abb. 2.1/14). Die mit einem Photomultiplier erzielte Energieauflösung dieses Detektors betrug 7.4 % bei 662 keV und 12 % bei 185 keV. Als Kollimatoren dienten zwei zylindrische Rohre aus

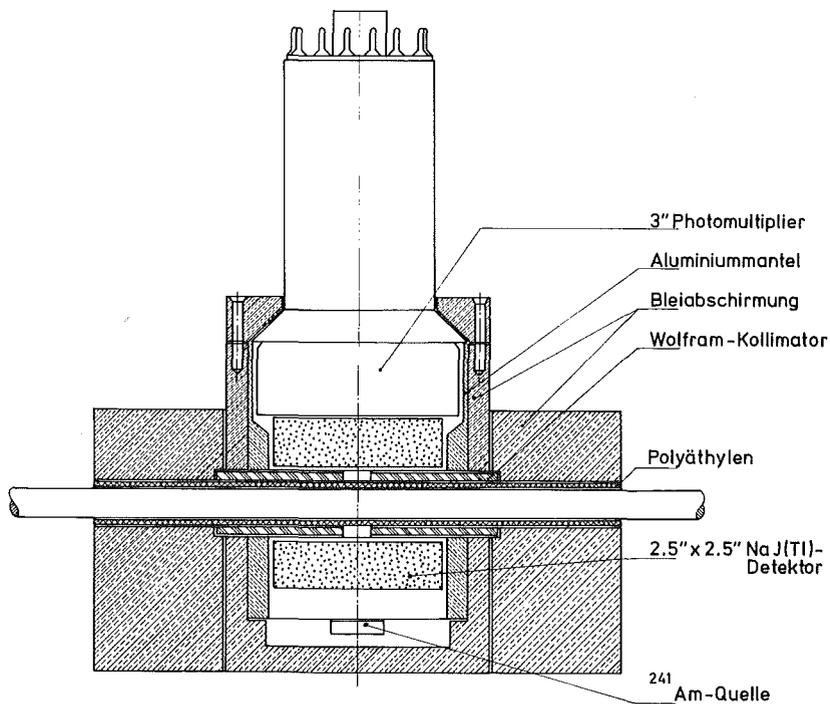


Abb. 2.1/14 Bohrlochdetektor-Anordnung für Anreicherungsmessungen
an Pellets und an Brennstäben.

einer Wolframlegierung ($\rho = 17.3 \text{ g/cm}^3$) mit einer Wandstärke von 5 mm, an deren Stoßstelle in der Detektormitte sich eine Kollimatoröffnung mit variabler Breite bilden ließ. Die Wolframröhren waren innenseitig mit einem dem Pellet- oder Stabdurchmesser angepaßten Polyäthylenrohr ausgekleidet. Zur Amplitudenstabilisierung der Analogelektronik wurde wiederum die 59 keV Gammalinie einer in der Nähe des Kristalls angebrachten ^{241}Am -Quelle verwendet.

Bei Anreicherungsmessungen am Einzelpellet blendet man zweckmäßigerweise mit dem Kollimator ein definiertes Teilstück der Manteloberfläche des Pellets unter Ausschluß der Pelletenden aus. Zur Optimalisierung der Zählrate wählt man die Kollimatorbreite gerade so groß, daß sich Randeffekte von den Pelletenden her noch nicht bemerkbar machen. Damit wird man unabhängig von Parametern wie Pelletlänge und Dishing. Bei Versuchsmessungen

mit DWR-Pellets ($\emptyset = 9.11$ mm, Länge 11.5 mm) ergab sich für die in Abb. 2.1/14 gezeigte Meßanordnung eine optimale Kollimatorbreite von 8 mm. In Tabelle 2.1/IX sind die für einen Anreicherungsgrad von 1.9 % bei verschiedenen Kollimatorbreiten gemessenen Peak: Untergrundverhältnisse (für altes Probenmaterial) und die Nettopeakzählraten für die 185.7 keV Linie sowie die bei einer Meßzeit von 1000 sec erreichbaren statistischen Genauigkeiten in der Anreicherungsbestimmung angegeben. Das Peak: Untergrundverhältnis verschlechtert sich mit kleiner werdender Kollimatorbreite, weil die 5 mm starke Wolframabschirmung zwar die 185.7 keV Strahlung vollständig absorbiert, nicht aber die hochenergetische ^{234m}Pa Strahlung. Wie man aus der rechten Spalte der Tabelle 2.1/IX ersieht, sind bei einer Meßzeit von 1000 sec selbst für altes Probenmaterial statistische Genauigkeiten (1σ) von $\approx 0.2-0.3$ % bei Anreicherungsgraden von 2-3 % erreichbar. Da die gemessene Intensität

Tabelle 2.1/IX

Charakteristische Kenngrößen für Bohrlochdetektoranordnung der Abb. 2.1/14. Probe: DWR-Pellet, \emptyset 9.11 mm, Länge 11.5 mm, Anreicherung 1.9 %, altes UO_2 -Material.

Kollimatorbreite (mm)	Peak: Untergr. Flächenverhältnis für 186 keV Linie	Nettopeakzählrate in 186 keV Linie (Impulse/sec)	Statistischer Fehler (1σ) in Anreich. bestimmung bei 1000 sec Meßzeit (%)
4	1.25	129	0.45
6	1.60	212	0.33
8	1.83	287	0.27
10	1.96	352	0.24

der 186 keV Strahlung bei einer Anordnung wie in Abb. 2.1/14 außer der Anreicherung auch dem Pelletdurchmesser direkt proportional ist, muß diese Größe bei einer Anreicherungsbestimmung bekannt sein. Aus Qualitätskontrollgründen werden in einer Brennelement-Fabrikationsanlage Pelletdurchmesser routinemäßig mit einer relativen Genauigkeit von < 0.05 % bestimmt.

Wird die Anreicherungsmessung am Brennstab durchgeführt, und interessiert nur die mittlere Anreicherung über die Gesamtstablänge (z.B. als Teilinformation für eine Gesamtpaltstoffbestimmung im Brennstab), so kann zur Erhöhung der Zählrate die Kollimatoröffnung breiter gemacht werden. So ergab sich bei Messungen an DWR-Brennstäben (Pelletdurchmesser 9.11 mm) bei einer Kollimatorbreite von 40 mm eine Nettopeakzählrate von ca. 1700 Impulse/sec in der 186 keV Linie bei einer Anreicherung von 2 %. Das Peak: Untergrund-Flächenverhältnis für die 186 keV Linie betrug hier für altes UO_2 -Material 1.3. Nimmt man an, daß die Gesamtproduktion an Brennstäben am Ausgang einer LWR-Brennelement-Fabrikationsanlage einer 100 % Kontrolle unterzogen werden soll, so wird bei dem in naher Zukunft zu erwartenden Durchsatz pro Stab eine Meßzeit von ca. 100 sec zur Verfügung stehen. In dieser Zeit könnte demnach mit der vorhandenen Anordnung bei einem Anreicherungsgrad von 2 % die mittlere Anreicherung des Brennstoffs im einzelnen Stab mit einer statistischen Genauigkeit (1σ) von ca. 0.35 % bestimmt werden. Zur Bestimmung der Gesamtpaltstoffmenge wäre beispielsweise eine Kombination aus Anreicherungsmessung und Wägung denkbar.

Aus wirtschaftlichen Gründen wird versucht, eine als Bilanzierungsgrundlage dienende 100 % Messung der Gesamtpaltstoffmenge mit einer Reihe von Messungen zur Qualitätskontrolle zu verbinden. So steht z.B. eine Überprüfung von Anreicherungsgradverwechslungen im Brennstab zur Diskussion. Danach sollen Einzelpellets, die in ihrer Anreicherung 10 % oder mehr vom Sollwert abweichen, mit einer Nachweiswahrscheinlichkeit von ≥ 50 % detektiert werden. Dabei sollte die Rate der aus Gründen der Zählstatistik fälschlicherweise zurückgewiesenen korrekten Stäbe < 5 % sein. Dies bedeutet bei einer mittleren Anzahl von 300 Pellets/Stab, daß das Anreicherungsmeßergebnis am Einzelpellet mit dem Anreicherungsollwert ϵ mit einer Wahrscheinlichkeit von > 99.98 % im Intervall $\epsilon \pm 0.1 \epsilon$ liegen muß. Das entspricht einem sigma-Bereich von $\pm 3.6 \sigma$. Die für diese Meßgenauigkeit erforderliche Nettopeakzählrate $N(\epsilon)$ im Photopeak der 186 keV Linie errechnet sich somit aus der Beziehung

$$N(\epsilon + 0.1 \epsilon) - N(\epsilon) \approx 3.6 \sigma = 3.6 \sqrt{N(\epsilon)}$$

zu $N(\epsilon) \approx 1150$ Impulse/Pelletmessung.

Bei einer Meßzeit von 100 sec pro Stab, der 300 Einzelpellets enthält, verbleibt pro Pellet eine Meßzeit von 0.3 sec. Danach wäre eine Nettopeakzähl-

rate von ca. 3 800 Impulse/sec in der 186 keV Linie erforderlich, bei einem Peak: Untergrundflächenverhältnis von 1:1 sogar eine Zählrate von ca. 6 500 Impulse/sec. Demgegenüber wurde in der vorliegenden Anordnung bei einer Anreicherung von 2 % und einer Kollimatorbreite von 10 mm eine Nettopeakzählrate von 350 Impulse/sec gemessen. Mithin wären für den Nachweis einer Anreicherungsgradabweichung von 10 % am Einzelpellet unter den gegebenen Randbedingungen ca. 20 Bohrlochdetektoren erforderlich.

2.2 Gammadetektionssystem für Personenschleuse

P. Matussek

Bei der Überwachung von Personen auf mitgeführtes spaltbares Material wird die Eigengammastrahlung des Spaltstoffs zum Nachweis benutzt. Bei Plutonium können zusätzlich die Neutronen aus (α , n)-Prozessen und der Spontanspaltung gemessen werden. Geeignete Detektoren werden dabei entweder in offene Türmonitore oder in telefonzellenähnliche Schleusen eingebaut. Bei den letzteren kann durch ein zeitlich begrenztes Festhalten von Personen in einer definierten Geometrie zwar eine deutlich höhere Nachweiswahrscheinlichkeit erzielt werden, andererseits stellen sie dadurch ein größeres betrieblich-operatives Hindernis dar. Zwei Personenschleusen zum Nachweis von Plutonium sind seit einigen Jahren mit Erfolg bei der Fa. ALKEM im Einsatz; dabei werden die Messungen parallel zu der ohnehin erforderlichen Prüfung auf Kontamination beim Verlassen der Anlage durchgeführt. /5/

Beim Nachweis von hochangereichertem Uran ergeben sich besondere Schwierigkeiten dadurch, daß von ^{235}U praktisch nur die Eigengammastrahlung um 185 keV und die Röntgenfluoreszenzstrahlung bei 100 keV emittiert werden. Wegen der relativ niedrigen Energie dieser Strahlung und der großen Selbstabsorption des Urans trägt nur die Oberfläche des Materials in einer Dicke von ca. 1mm (abhängig von der Dichte und der chemischen Zusammensetzung des Materials) zum Meßeffect bei. Außerdem kann die ^{235}U Strahlung durch Abschirmmaterialien sehr stark abgeschwächt werden. Zur Erhöhung der Nachweiswahrscheinlichkeit wurde daher eine Kombination von einem Gammadetektionssystem mit einem Metall-detektor vorgeschlagen, wobei der Metalldetektor sowohl auf metallisches Uran

als auch auf evtl. verwendetes Abschirmmaterial ansprechen soll. Darüberhinaus muß durch konstruktive Maßnahmen an der Schleuse die Untergrundgammastrahlung möglichst klein gehalten werden. Über die Auswahl, Anordnung und Abschirmung der Gammadetektoren wurden bereits eingehende Untersuchungen durchgeführt. /7,8/

Ein besonderes Problem bildet die zeitliche Inkonstanz der Untergrundstrahlung, bedingt z.B. durch Transport und Lagerung von aktivem Material in der Nähe der Schleuse. Es wurde daher eine Meßelektronik entwickelt, bei der die Alarmschwelle automatisch optimal den wechselnden Untergrundverhältnissen angepaßt wird. Das gesamte Gammadetektionssystem für eine Schleuse ist in einem Prinzipschaltbild in Abb. 2.2.1 dargestellt. Durch den modularen Aufbau ist die Zahl der Detektoren frei wählbar.

Im analogen Teil der Elektronik sind in einem 2/12 NIM Einschub für je 2 Detektoren die Hochspannungsversorgung, abschaltbare α -Stabilisierung, Verstärker und Einkanaldiskriminatoren enthalten. (Die Komponenten sind identisch mit denen des SAM2 Anreicherungsmeßgeräts der Fa. Eberline.) Mit Hilfe der Diskriminatoren läßt sich eine Energieschwelle oder ein Energiefenster für die interessierende Gammastrahlung setzen. Die Einstellung der Diskriminatoren wird so gewählt, daß sich bei vorgegebener Detektoranordnung und Raumuntergrundstrahlung ein optimales Signal/Untergrund-Verhältnis ergibt.

Von den Diskriminatoren gelangen die Detektorsignale über ein ODER-Gatter in den digitalen Modul des Gammamonitor, der ausschließlich mit integrierten TTL Schaltkreisen aufgebaut und in einem 4/12 NIM Einschub untergebracht ist. In diesem Modul werden die notwendigen mathematischen Operationen durchgeführt und die Steuersignale für die Schleuse erzeugt.

Die Diskriminatorsignale werden über einen elektronischen Umschalter jeweils einem Signalzähler oder einem Untergrundzähler zugeführt. Die Bedingung für die Signalmessung ist erfüllt, wenn die Schleuse besetzt d.h. die Bodenkontaktplatte belastet ist und die Schleusentüren geschlossen sind; die Meßzeit ist von 1 bis 99 Sekunden einstellbar. Eine Untergrundmessung erfolgt immer, wenn die Schleuse nicht besetzt ist und die Schleusentüren geschlossen sind. Die

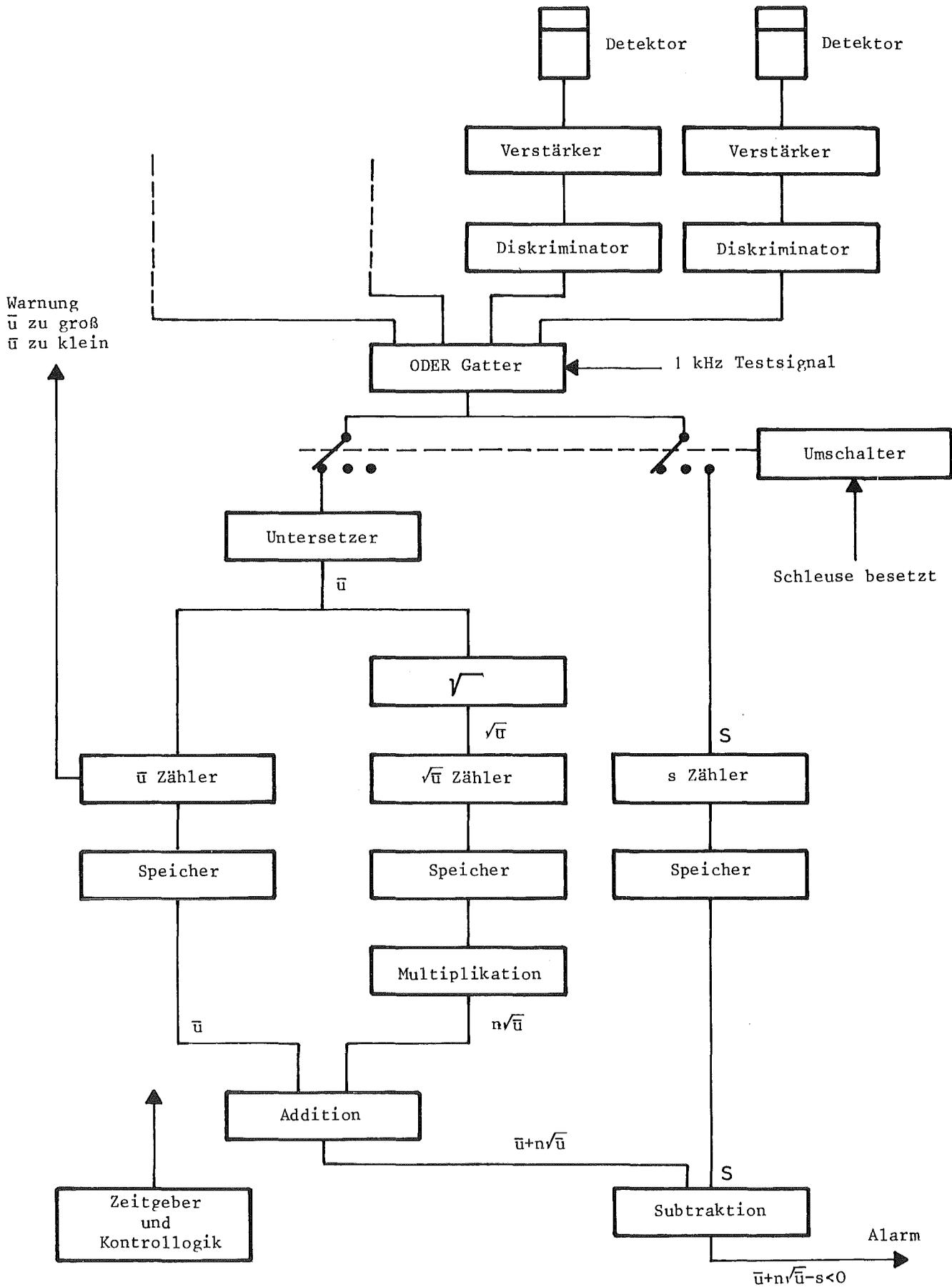


Abb.: 2,2,1

Prinzipschaltbild des Gammadetektionssystems für Personenschleuse

Meßzeit für den Untergrund kann in ganzzahligen Vielfachen der Signalmeßzeit eingestellt werden. Der Mittelwert \bar{u} der Untergrundzählrate wird in einem Puffer solange gespeichert, bis er nach Ablauf einer weiteren Untergrundmeßzeit durch den aktuellen Wert ersetzt wird. Über- oder unterschreitet die Untergrundzählrate fest einstellbare Grenzwerte, so wird die Information nicht in den Speicher übernommen und ein Warnsignal erzeugt.

Parallel zum Untergrundzähler werden die Untergrundimpulse zu einem Quadratwurzelgenerator geführt, in dem der Wert $\sqrt{\bar{u}}$ gebildet und ebenfalls abgespeichert wird. Aus den gespeicherten Größen \bar{u} und $\sqrt{\bar{u}}$ wird in einem Addier- und einem Multiplizierwerk der Alarmpegel $\bar{u} + n \cdot \sqrt{\bar{u}}$ berechnet, der in ganzzahligen Vielfachen $n = 2, \dots, 5$ der Standardabweichung $\sqrt{\bar{u}}$ einstellbar ist. Die Größe n muß so gewählt werden, daß die durch die statistischen Schwankungen der Untergrundzählrate bedingten Fehlalarme sich in betrieblich akzeptablen Grenzen halten; andererseits darf durch einen zu hohen Alarmpegel die Nachweiswahrscheinlichkeit nicht zu stark reduziert werden.

Überschreitet bei besetzter Schleuse die Meßzählrate S den Alarmpegel, so wird ein Alarm ausgelöst. Durch Fernbedienung kann dann das Wachpersonal eine Wiederholungsmessung starten. Wird erneut Alarm ausgelöst, so können die Funktionen des Digitalmoduls der Elektronik durch Tastendruck in einem Testprogramm überprüft werden. Bei wiederholtem Alarm und einwandfreiem Arbeiten der Elektronik können dann weitere Aktionen durch Strahlenschutz oder Wachmannschaft eingeleitet werden.

Die Elektronik des Gammadetektionssystems arbeitete in einem Labordauer-test mit einem 3" x 3" NaJ-Kristall und radioaktiven Gammaquellen fehlerfrei. Tests unter realistischen Betriebsbedingungen in einer Personenschleuse sind in Vorbereitung.

2.3 Neutronenkoinzidenzmessungen zur Plutoniumbestimmung

K. Böhnel

Die Untersuchung der Fehler der quantitativen Plutoniumbestimmung mit der Neutronenkoinzidenzmethode, über die schon in /1,6,8/ berichtet wurde, konnte abgeschlossen werden. Der Abschlußbericht, der die hier entwickelten Geräte zusammen mit den Ergebnissen enthält, liegt in ausführlicher Form vor /9/. An dieser Stelle soll deshalb nur in kurzer Form auf die letzten Resultate der Untersuchungen der Zählstatistik und der Einflüsse der induzierten Spaltung eingegangen werden. Außerdem wird ein Verfahren geschildert, das eine Verringerung der Ortsabhängigkeitseffekte bei Abfallmessungen erreicht. Weitere Arbeiten mit der Neutronenkoinzidenztechnik im Rahmen des Projekts Spaltstoffflußkontrolle erscheinen nur dann sinnvoll, wenn sie in der Zusammenarbeit mit Anwendern zum technischen Einsatz der Methode und ihrer Erprobung in der Praxis führen.

2.3.1 Statistischer Fehler

Die Abweichungen der anzuwendenden Fehlerformeln von den aus der Poissonstatistik abgeleiteten beruhen darauf, daß die einzelnen gemessenen "Koinzidenzen" keine unabhängigen Ereignisse darstellen. Als Maß für die Abweichung kann man die reduzierte Varianz betrachten. Sie gibt u.a. als Faktor an, wieviel man die Meßzeit länger wählen muß, um einen bestimmten Fehler zu erreichen, als man nach Poissonstatistik errechnet.

Für die unkorrelierten (zufälligen) Koinzidenzen C_u kann man für zwei Extreme das Ergebnis formelmäßig angeben. Dabei erhält man für kleine Spaltraten, wobei sich die Neutronenfamilien nicht überlagern, mit der Detektorempfindlichkeit ϵ (Nachweis pro emittiertes Neutron)

$$\frac{\text{var } C_u}{C_u} = 1 + 2\epsilon \frac{\overline{v(v-1)}}{\bar{v}} \gamma + \epsilon^2 \left(\frac{\overline{v(v-1)}}{\bar{v}} \right)^2 \frac{e^{-\alpha\Delta t} - 1 + 3\gamma}{2}$$

Dabei ist

$$\gamma = 1 - \frac{1 - e^{-\alpha \Delta t}}{\alpha \Delta t}$$

α = Abklingkonstante
 Δt = Zykluslänge .

Betrachtet man die 4 Proben aus

- a) Cf-252
- b) reines Pu-240
- c) Pu-240 mit gleichviel (α, n) - wie Spaltneutronen
- d) Pu-240 mit doppelt so vielen (α, n) - wie Spaltneutronen,

so erhält man für $\alpha \Delta t = 1$

$$\begin{aligned} \frac{\text{var } C_u}{C_u} &= 1 + 2,25 \epsilon (1 + 0,98 \epsilon) && \text{(a)} \\ &= 1 + 1,28 \epsilon (1 + 0,56 \epsilon) && \text{(b)} \\ &= 1 + 0,63 \epsilon (1 + 0,28 \epsilon) && \text{(c)} \\ &= 1 + 0,42 \epsilon (1 + 0,18 \epsilon) && \text{(d)} \end{aligned}$$

Für den zweiten Extremfall gehen wir davon aus, daß sich die Familien infolge hoher Spaltrate sehr stark überlagern. Dann gilt

$$\frac{\text{var } C_u}{C_u} = 1 + n \Delta t \left(2 + \epsilon \frac{\overline{v(v-1)}}{\bar{v}} \right)$$

mit der Zählrate n .

Für das korrelierte Signal C_c findet man bei sehr langen Zykluszeiten ($\alpha \Delta t \gg 1$)

$$\frac{\text{var } C_c}{C_c} = 1 + 2\epsilon \frac{\overline{v(v-1)(v-2)}}{\overline{v(v-1)}} + \frac{1}{2} \epsilon^2 \frac{\overline{v(v-1)(v-2)(v-3)}}{\overline{v(v-1)}}$$

Damit gilt unabhängig vom (α, n) -Untergrund

$$\begin{aligned} \frac{\text{var } C_c}{C_c} &= 1 + 4,86 \epsilon + 2,25 \epsilon^2 && \text{für Cf-252} \\ &= 1 + 2,54 \epsilon + 0,56 \epsilon^2 && \text{für Pu-240} \end{aligned}$$

Die Tatsache, daß Spaltungen mit weniger als 3 Neutronen nicht

zur Abweichung der reduzierten Varianz von 1 beitragen, wird dadurch erklärt, daß erst solche mit mehr als 2 Neutronen mehr als eine "Koinzidenz" erzeugen. Für Zykluszeiten, die so kurz sind, daß nicht mehr alle theoretisch möglichen Koinzidenzen gemessen werden, gilt

$$\frac{\text{var } C_c}{C_c} = 1 + \gamma_3 \cdot \hat{\gamma}_3$$

mit den in Abb. 2.3/1 dargestellten Funktionen.

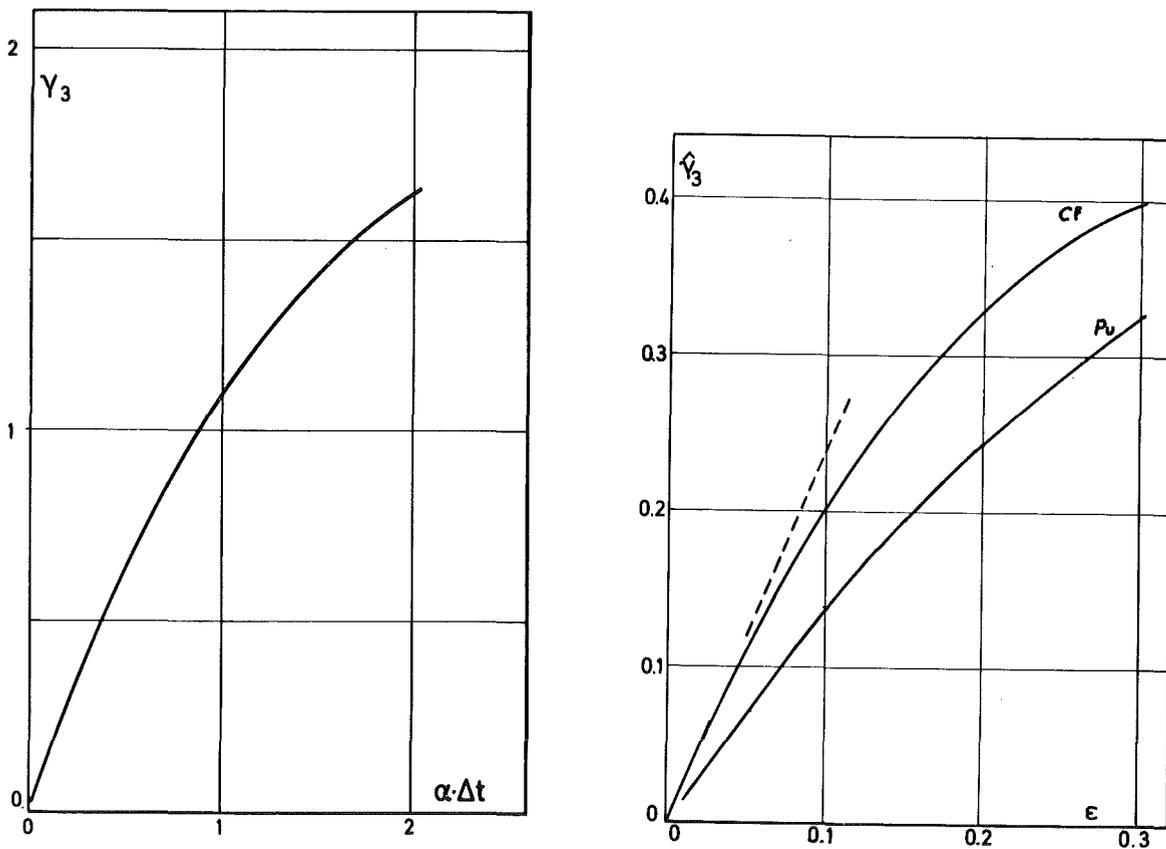


Abb.2.3/1 Funktionen γ_3 und $\hat{\gamma}_3$ zur Berechnung der reduzierten Varianz des korrelierten Signals

Für das Nettosignal C bei gleichlangen Zyklen ergibt sich bei genügend langer Meßzeit

$$\text{var } C = \text{var } C_c + 2 \text{ var } C_u ,$$

wobei ein Term vernachlässigt wurde, der den Fehler dadurch verringert, daß statistische Schwankungen in der Zählrate im prompten wie verzögerten Zyklus teilweise gleich auftreten.

2.3.2 Multiplikationseffekte

Es wurde gezeigt, daß die Multiplikation der (α, n)-Neutronen in der Probe ein Signal erzeugt, das einen wesentlichen Beitrag zum Meßfehler liefert. Durch die Multiplikation ist die Zahl der Spaltungen nicht mehr nur von der Spontanspaltrate, sondern auch von der (α, n)-Quellrate abhängig. Diese wird in großem Maße von der Pu-238-Konzentration $\Delta a(238)$ bestimmt, die konsequenterweise sehr genau bekannt sein muß. Für Plutonium mit etwa 16% Pu-240 ergibt sich für die Änderung Δc des korrelierten Signals c mit einer Pu-238-Änderung

$$\frac{\Delta c}{c} = \left(\frac{1}{7} + 4 \cdot p \right) \Delta a(238) \quad 0 \leq \Delta a \leq 1$$

wobei $\Delta a(238)$ in % angegeben wird und p die Spaltwahrscheinlichkeit ist. Das bedeutet, daß 1% (absolut) Änderung der Pu-238-Konzentration das Koinzidenzsignal um 13% auf Grund der Spontanspaltung und um $4 \cdot p$ auf Grund der (α, n)-Multiplikation ändert.

Umgekehrt kann man zeigen, daß es bei 1% Pu-238 notwendig ist, die Multiplikation bei $p=1\%$ auf 10% (relativ) genau zu kennen, um eine relative Genauigkeit von 0,5% im Signal zu erzielen. Dabei kann diese "Kenntnis" z.B. Übereinstimmung mit dem Standard bedeuten. Diese Ergebnisse zeigen, daß Stabmessungen erhebliche Sorgfalt erfordern.

In der Abb. 2.9/4 in /1/ zeigten sich deutliche Abweichungen

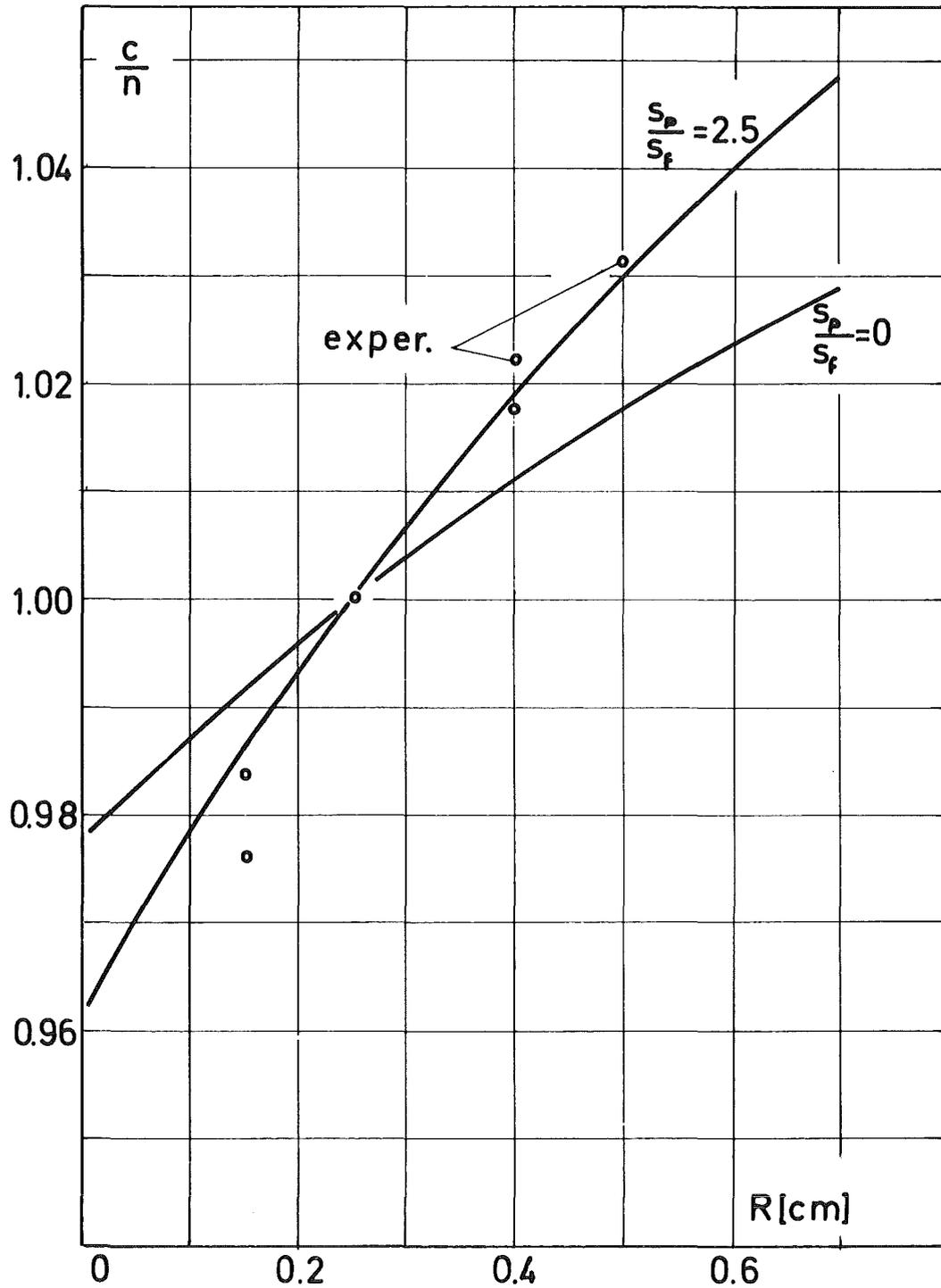


Abb.2.3/2 Einfluß der Schnellspaltung auf das Verhältnis von Koinzidenzrate c zu Zählrate n . Die Kurven sind beim Probenradius $R = 2,5$ mm normiert ($s_p = (\alpha, n)$ -Rate, s_f =Spaltrate)

der Messungen von den Rechnungen bei der experimentellen Untersuchung der Schnellspaltung. Diese Diskrepanzen sind auf die Nichtberücksichtigung der (α, n) -Multiplikation zurückzuführen. Nimmt man diesen Effekt korrekt mit, so ergibt sich eine gute Übereinstimmung von Experiment und Theorie (Abb. 2.3/2).

Die Anwendung von berechneten Korrekturfaktoren auf die Ergebnisse der Stabmessungen brachte keine befriedigenden Verbesserungen. Die Streuung der gemessenen spezifischen Spontanspalt-raten (Koinz./g Pu) um bis zu 4% konnte nicht signifikant verringert werden und muß auf die Qualität der Stäbe zurückgeführt werden.

2.3.3 Abfallmessungen

Zunächst wurde der Effekt der Moderatorordichte auf das Koinzidenz-signal, der in Abb.2.9/7 in /1/ dargestellt wurde, weiter unter-sucht. Das Verhältnis der Koinzidenzrate zum Quadrat der Zähl-rate zeigt (Abb. 2.3/3), daß die Änderung der Neutronenlebensdauer das Signal stark beeinflußt, da die Zyklusdauer konstant gehalten worden war.

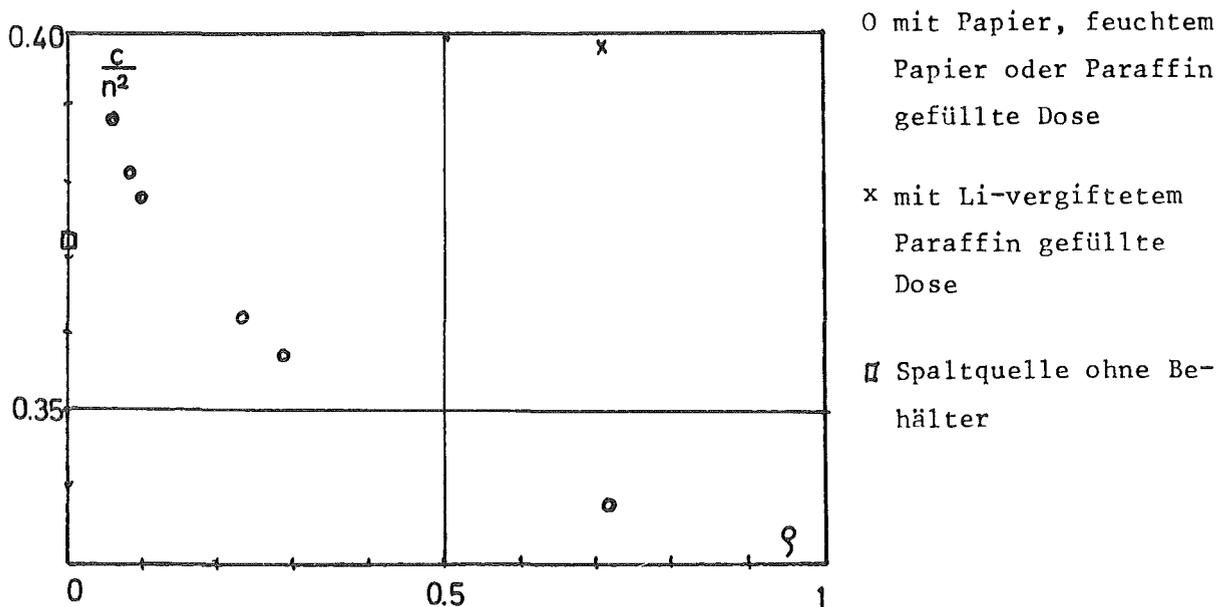


Abb.2.3/3 Verhältnis des korrelierten Signals zum Quadrat der Zählrate als Funktion der Moderatorordichte in der Abfalldose

Dies muß als Hinweis verstanden werden, bei der Verwendung von Standards u.a. auf gleiches Moderations- und Absorptionsverhalten zu achten.

Bei der Messung großer Abfallbehälter äußert sich die Ortsabhängigkeit im allgemeinen in der Weise, daß die Empfindlichkeit des Detektors für in der Mitte des Fasses entstehende Neutronen kleiner ist als für Neutronen aus den Randzonen. Abhilfe kann geschaffen werden, wenn es gelingt, die Außenzonen mit geringerer Empfindlichkeit zu messen als das Zentrum.

Es wird vorgeschlagen, ähnlich wie bei der Rotationskollimation in der γ -Meßtechnik, einen asymmetrischen Detektor und eine rotierende Probe zu verwenden. Dabei soll sich ein Außenbereich während einer Umdrehung sowohl in Bereichen höherer wie auch in solchen niedrigerer Empfindlichkeit bewegen. Dies läßt sich erreichen, indem man die Zählrohre nicht wie üblich gleichmäßig um die Probenhöhle im Detektor verteilt, sondern sie an bestimmten Stellen konzentriert. In den mit der in /1/ beschriebenen Anlage durchgeführten Versuchen mit 2-l-Dosen mußte die Zahl der angeschlossenen Zählrohre verringert werden, da ihre Position nicht verändert werden konnte. Die dadurch bewirkte Verringerung der Empfindlichkeit beeinträchtigte die Versuchsdurchführung erheblich, da keine ausreichende Genauigkeit erzielt wurde. Von den maximal 16 verwendeten Zählrohren wurden zwei Signale abgeleitet, wobei jeweils n_2 Zählrohre zu einer Gruppe zusammengefaßt wurden (s. Einsatz in Abb. 2.3/4). Das Ergebnis der Kreuzkorrelationsmessung ist in Abb. 2.3/4 dargestellt. Trotz der auch wegen der Kleinheit des zu korrigierenden Effekts großen Schwierigkeiten zeigen die Messungen für 3 verschiedene Proben (Cf-252 und $\text{PuO}_2\text{-UO}_2$ -Tabletten in verschiedenen Dosen) die erwartete Tendenz. Bei der Ausmessung größerer Behälter (200-l-Fässer) kann durch diese Technik eine deutliche Verringerung der Ortsabhängigkeitseffekte erzielt werden, die bisher die Hauptunsicherheit in den Ergebnissen ausmachen.

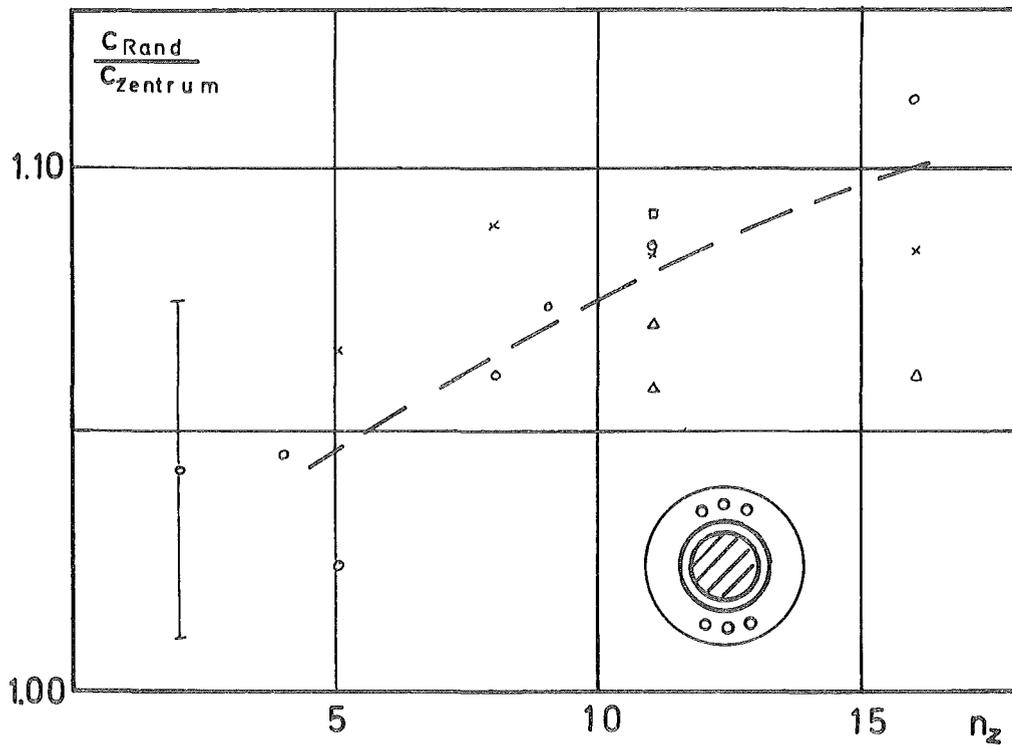


Abb. 2.3/4

Verhältnis der Koinzidenzraten einer Probe am Rand und im Zentrum der Dose als Funktion der Zahl n_z der verwendeten Zählrohre in einer Gruppe (in der Skizze der Anordnung ist $n_z = 3$).

LITERATURVERZEICHNIS ZU KAPITEL 2

- /1/ G. BORK, ed., Projekt Spaltstoffflußkontrolle - Jahresbericht 1973, KFK 1980 (1974).
- /2/ J. MENEFEE, Y. CHO, IEEE Transactions on Nucl. Science, NS-13 (1966) 159.
- /3/ Dieser Bericht, Kapitel 2.1.3.
- /4/ Dieser Bericht, Kapitel 2.1.2 .
- /5/ G. BORK, ed., Projekt Spaltstoffflußkontrolle - Jahresbericht 1970, KFK 1429 (1971) S. 94.
- /6/ G. BORK, ed., Projekt Spaltstoffflußkontrolle - Jahresbericht 1972, KFK 1852 (1973) S. 32.
- /7/ W.H. CHAMBERS et al., Los Alamos Scientific Report LA-5681 (1974).
- /8/ G. BORK, ed., Projekt Spaltstoffflußkontrolle - Jahresbericht 1971, KFK 1618 (1972).
- /9/ K. BÖHNEL, KFK 2203 (1975).

Kapitel 3

- 3.0 Einführung
A. v. Baeckmann

 - 3.1 Serviceleistungen der Analytik des Instituts für Radiochemie
A. v. Baeckmann, E. Gantner, E. Mainka, H. Ruf

 - 3.2 Entwicklung von Analysenverfahren
 - 3.2.1 Automatisierung der massenspektrometrischen Isotopenverdünnungsanalyse
M. Wilhelmi IRCH, L. Koch TU

 - 3.2.2 Automatisierung der Uran- und Plutoniumkonzentrationsbestimmung durch Röntgenfluoreszenzanalyse
J. Neuber, R. Braun, A. v. Baeckmann

 - 3.2.3 Interlaboratoriumtests von Direktverfahren
E. Mainka, H. Bernhard, W. Coerdt, H. Deutsch, W. König, K. Matern

 - 3.3 Bestimmung von Uran in HTR-Brennelementen durch differentielle γ -Absorptiometrie
J. Hanif, A. v. Baeckmann
-

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 automatisierte Schleuse für das Massenspektrometer (Fa. NTG Nuklear Technik, Hailer) wurde abgenommen. Bei der Inbetriebnahme des automatischen Massenspektrometers (Fa. Varian MAT, Bremen) traten zahlreiche Fehler auf, so daß eine Abnahme im Berichtszeitraum nicht möglich war.

Der Prototyp der automatischen Probenvorbereitung der Röntgenfluoreszenzanalyse wurde fertiggestellt und kalt erprobt /2/. In der WAK wurde mit dem Aufbau der Röntgenfluoreszenzanlage begonnen, nachdem vorher der Raum ausgebaut worden war.

Durch die Beteiligung am Safeguards Analytical Laboratory Evaluation Programm der USAEC wurden 1974 erstmals im größeren Umfang Informationen über die Genauigkeit und Richtigkeit von Kernbrennstoffanalysen zugänglich (Kapitel 3.2.3).

Die Untersuchung zur Bestimmung von Uran in HTR-Brennstoffen mittels γ -Absorptimetrie wurden abgeschlossen. Es zeigte sich, daß eine zerstörungsfreie Analyse der Brennelemente nach dieser Methode nicht möglich ist, und daß gute Resultate nur dann erhalten werden, wenn der Brennstoff vor der Messung fein zermahlen wird (Kapitel 3.3).

Dieser Bericht schließt unmittelbar an den Jahresbericht

1973 des Projektes Spaltstoffflußkontrolle /1/ Kapitel 3 an, dessen Gliederung und Numerierung soweit wie möglich beibehalten wurde.

Literatur

- /1/ Projekt Spaltstoffflußkontrolle Jahresbericht 1973,
KFK 1980, S. 3-1 (1974)
Projekt Spaltstoffflußkontrolle Jahresbericht 1972,
KFK 1852, S. 89ff (1973)
Projekt Spaltstoffflußkontrolle Jahresbericht 1971,
KFK 1618, S. 85ff (1972)

- /2/ A.H.E. von Baeckmann, D. Ertel, J. Neuber: Advances
in X-Ray Analysis Vol. 18 page 62-75 Plenum Publishing
Corporation (1975)

3.1 Serviceleistungen der Analytik des Instituts für Radiochemie

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

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

- 806 γ -spektrometrische Messungen
- 68 α -spektrometrische Messungen
- 134 massenspektrometrische Uran- bzw. Plutoniumbestimmungen
- 91 Uran Konzentrationsbestimmungen
- 63 Plutonium Konzentrationsbestimmungen
- 42 Zink Konzentrationsbestimmungen
- 99 röntgenfluoreszenzspektrometrische Uran- bzw. Plutoniumbestimmungen

Die meisten der angewandten Analysenverfahren sind im Jahresbericht 1970 (KFK 1429) ausführlich beschrieben worden. Die massenspektrometrischen Analysen und die Uran- bzw. Plutoniumkonzentrationsbestimmungen erfolgten weitestgehend im Rahmen des SALE Programmes. Die γ -spektrometrischen Messungen wurden zum größten Teil für die Untersuchungen zur Bestimmung von Uran in HTR Brennstoffen durch γ -Absorptiometrie (siehe Kapitel 3.3) ausgeführt.

3.2 Entwicklung von Analysenverfahren

3.2.1 Automatisierung der massenspektrometrischen Isotopenverdünnungsanalyse

M. Wilhelmi IRCH, L. Koch TU

Die in den vorhergehenden Jahresberichten beschriebenen Teile eines Systems zur automatischen Uran-, Plutonium- und Neodym-Isotopen-Verdünnungsanalyse wurden weiter entwickelt:

3.2.1.1 Das automatisch arbeitende Hochvakuum-Schleusensystem
Im Berichtszeitraum wurde das Gerät vollständig überholt und notwendige Änderungen vorgenommen. So wurden neu entwickelte vibrationsärmere Turbo-Molekular-Pumpen eingebaut, im Transportsystem Rutschkupplungen durch Zahnräder ersetzt, die Befestigung der Probenträger gesichert, Dichtungen ausgetauscht etc. Danach wurde das Gerät in Verbindung mit einer Massenspektrometerquelle erprobt. Nach umfangreichen Testläufen konnte die Anlage abgenommen werden. Als nächster Schritt ist vorgesehen die Anlage zu demontieren und mit dem Massenspektrometer zusammenzukoppeln. Mit den Vorarbeiten für diese Kopplung wurde begonnen.

3.2.1.2 Das automatisch arbeitende Massenspektrometer
Bei der Inbetriebnahme des automatischen Massenspektrometers traten zahlreiche Fehler auf, die z.T. im Berichtszeitraum behoben werden konnten:

Hardware:

Ein Spannungskonstanthalter mit besonderen Filtereigenschaften mußte vorgeschaltet werden, der Plattenspeicher wurde ausgetauscht, der Digital-Analog-Converter abgeändert, Kondensatoren gewechselt, der Feldregler angepaßt, Interface-Änderungen im Zusammenhang mit dem Feldregler vorgenommen und ein Lüfter zur Kühlung für den DAC in die Elektronik eingebaut.

Software:

Die Meßprogramme für Uran und Plutonium wurden getestet, einige notwendige Änderungen vorgenommen und zusätzliche Unterprogramme geschrieben, so daß es möglich wurde, beide Elemente vollautomatisch zu messen. Weitere Unterprogramme, wie z.B. Ausreißerkriterien, die Möglichkeit zusätzlicher Fokussierung, größere Flexibilität der Aufheizprogramme etc. werden noch bearbeitet.

Das Neodymprogramm wurde soweit entwickelt, daß es möglich war die Neodymisotope als Metallionen zu messen. Dieses Programm muß noch ausgetestet werden. Auch hier sind Änderungen und Erweiterungen noch notwendig.

3.2.1.3 Auswerteprogramm der massenspektrometrischen Isotopenverdünnungsanalyse

Die Isotopenkorrelationen sind als Kontrollmethode ins "Inspection Manual" der IAEA aufgenommen worden und sollen zur Verifikation von Eingangsanalysen im Reprocessing eingesetzt werden. Voraussetzung dafür sind sogenannte historische Daten = frühere gesicherte Analysendaten. Mit ihnen werden Isotopenkorrelationen aufgestellt und mit neuen Daten verglichen. Hierzu dient die erarbeitete DATABANK /1/, auf welcher aufbauend die IAEA eine erweiterte Zentraldatenbank entwickelt, die dann in die Safeguardsprogramme eingeführt werden soll. Die DATABANK wurde im Rahmen von Nachbestrahlungsuntersuchungen von Brennstoffen mit den neu angefallenen Daten weiter aufgefüllt.

3.2.1.4 Automat zur Trennung von Uran und Plutonium durch Ionenaustauscher

Der Trennautomat wurde für den Routinebetrieb eingesetzt. Da an dem Gerät außer dem IRCH auch das Europäische Institut für Transurane, die Gesellschaft zur Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen und die Kernbrennstoff-Wiederaufarbeitungs-Gesellschaft interessiert sind, soll in Zusammenarbeit mit dem ADI eine verbesserte Anlage gebaut werden. Mit den Vorarbeiten hierzu wurde begonnen.

Literatur

/1/ Projekt Spaltstoffflußkontrolle 1973 KFK 1980
(1974)

3.2.2 Automatisierung der Uran- und Plutoniumkonzentrationsbestimmung durch Röntgenfluoreszenzanalyse.

J. Neuber, R. Braun und A. von Baeckmann
IRCH, Kernforschungszentrum Karlsruhe

3.2.2.1 Einleitung

Seit Abfassung des letztjährigen Berichts wurden die Arbeiten am Prototyp der automatisierten Probenvorbereitung und deren Steuerung abgeschlossen. Um die Jahresmitte 1974 konnte mit der Planung für eine industrieerprobungsfähige Analyseneinheit begonnen werden und mit Beginn 1975 wurde der Prototyp in kompletter Zusammenstellung inaktiv erprobt. (Abb. 1)

Im vorliegenden Bericht soll eine Systembeschreibung der geplanten Einheit gegeben werden. In vorangegangenen Berichten wurde ausführlich beschrieben, in welcher Weise und mit welchem Ziel die einem Wiederaufbereitungsprozeß entnommenen Proben definiert verändert werden, wie das Messverfahren arbeitet und welchen Zwecken die ermittelten Analysenwerte dienen sollen. An dieser Stelle sei deshalb nur erwähnt, daß die Analyseneinheit sich zwanglos in folgender Art gliedern läßt:

Probenvorbereitungsmechanik, Röntgenfluoreszenzspektrometer, Messelektronik, Steuerung, Rechner, sowie Programme für Steuerung und Rechner. Dieser Systematik soll die Systembeschreibung mit möglichst vielen konkreten Daten folgen.

3.2.2.2 Probenvorbereitungsmechanik

Das Verfahrens-Schema dieses Teils der Analyseneinheit ist in Abb. 2 dargestellt. Es zeigt in dick ausgezogenen Linien die charakteristischen Bewegungsbahnen von Baugruppen, die in unmittelbarem Zusammenhang mit der Behandlung der flüssigen Probe stehen und den sinngemäßen Verlauf von Leitungen für Stammlösungen und andere Flüssigkeiten.

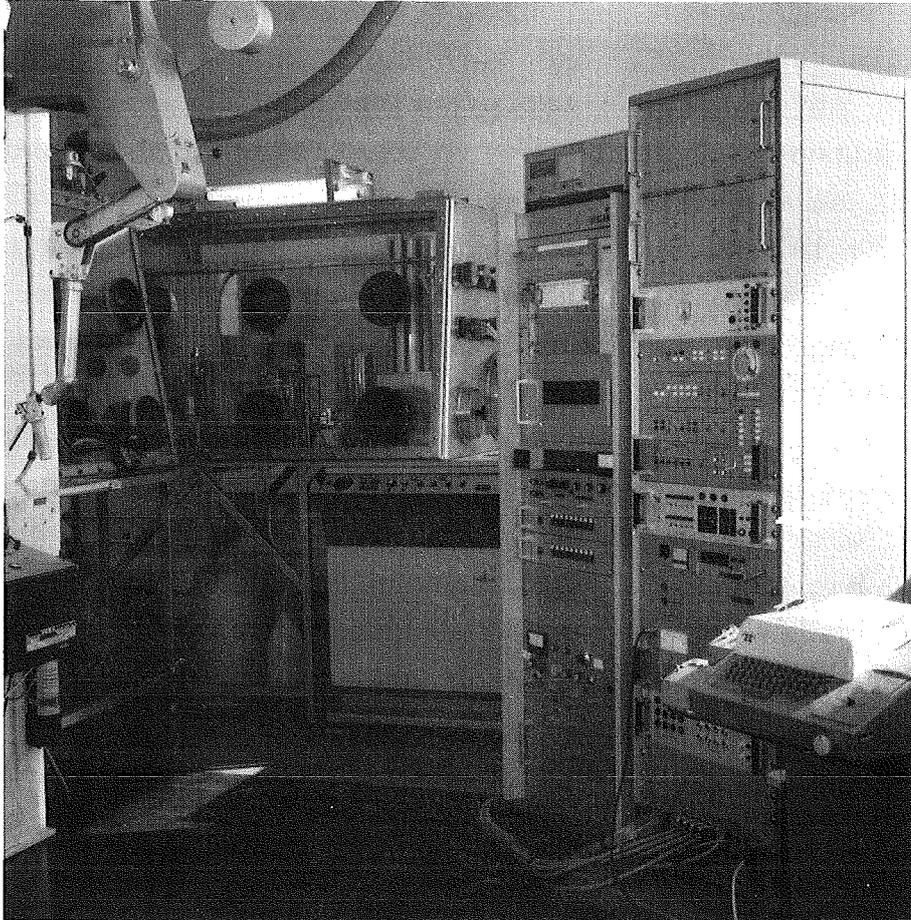


Abb.1 : Prototyp

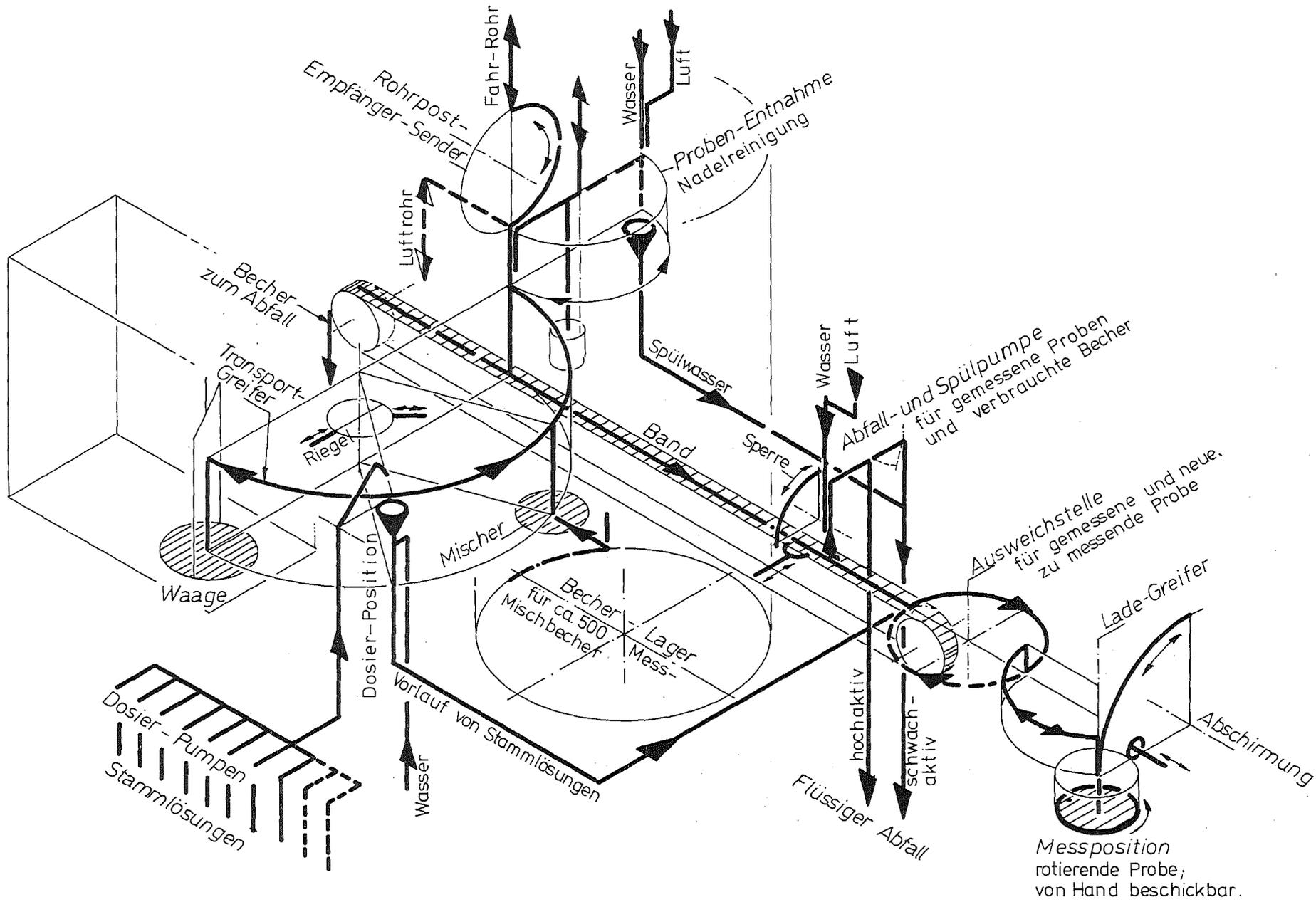


Abb. 2 : Verfahrens-Schema der automatischen Probenvorbereitung

Diese Abbildung kann weder die klare Begrenzung einzelner Geräte, noch eine Reihe von Beschickungs-, Versorgungs- und Entsorgungsvorrichtungen, Abschirmungen, Stellgliedern und Handschuhkästen anschaulich machen. Dargestellt ist das räumliche Netz der wichtigsten Bewegungen zur Abschätzung des Aufwands an Steuerungsmitteln. Es arbeiten folgende Geräte zusammen:

- 1 Rohrpost-Empfänger-Sender
- 1 Transportgreifer im Dosier-Wiege-Bereich
- 1 Transportgreifer zum Beschicken der Messposition
= Lader
- 1 Becherlager für Meß- und Mischbecher (Einweg-Teile)
- 1 Elektronische Analysenwaage
- 10 Dosierpumpen für Stammlösungen von U, Pu und Th
und Verdünnungsmittel
- 1 Förderband
- 1 Ausweichvorrichtung für neue und gemessene Meßprobe
- 1 Probenehmer zur Überführung einer Teilmenge der
Rohrpost-Kapsel-Füllung in einen Meß- und Mischbecher
- 1 Abfallpumpe mit Spülvorrichtung für Becher (gebrauchte
Becher werden gespült verworfen)
- 1 Meßposition mit Abschirmung und Rotationsantrieb
der Meßprobe während der Messung.

Zur Herstellung einer Meßprobe wird der Rohrpostkapsel ca. ein Drittel ihrer Füllung entnommen, eine geeichte Th-Lösung wird zugegeben, und durch schwaches Verdünnen mit Salpetersäure werden hohe Elementkonzentrationen von U und Pu auf unter 100 mg/g abgesenkt. Das Verdünnen dient daneben stets dem Ziel, mit so wenig Probenmenge wie möglich gerade die notwendige Menge Meßlösung zu erhalten. Damit soll aus einer Rohrpostkapsel auch eine zweite Analysenprobe entnehmbar bleiben, bzw. bei mangelhafter Füllung der Kapsel mindestens eine normale Bestimmung ausführbar sein. Nach Zusatz der jeweiligen Mischungskomponente wird gewogen; die so hergestellte Meßprobe wird homogenisiert und in die Meßposition des Spektrometers gebracht. Dort wird für die Elemente U, Pu

und Th die Intensität je einer für das betreffende Element charakteristischen Linie, gewöhnlich die L-alpha-1-Linie, gemessen. Die ermittelten Zählraten werden zusammen mit den Wiegedaten aus der Vorbereitung der Lösung über Eichfunktionen zum Analyseergebnis verrechnet. Die Eichfunktionen werden in sinngemäßer Weise automatisch aus geeichten Stammlösungen der Elemente U, Pu und Th, bzw. aus den Meßdaten von Mischungen solcher Stammlösungen ermittelt.

Im Folgenden werden charakteristische Daten zum Vorbereitungsgang und zu den zugehörigen Geräten aufgeführt.

PROBENANLIEFERUNG

über Rohrpost	22	mm NW
Kapselvolumen (Behälterproben)	3	ml
Kapselvolumen (Rohrleitungsproben)	3,6	ml
Füllungsgrad (Behälterproben)	min.90	%
Füllungsgrad (Rohrleitungsproben)	variierend	
Sollvolumen der Probeentnahme	1,25	ml
Volumentoleranz der Entnahme	+0,3	ml
Gewicht der entnommenen Menge	1,2 - 2,5	g

MESS-und MISCHBECHER

Außenmaße	Ø25 x 32	mm
Material	Luran, PE	
Bodenfläche	3,8	cm ²
Bodendicke	0,6	mm
Leergewicht	4,8	g
Maximale Gewichtsabweichung (99,9%) Klammerwert: Vertrauensbereich	± 4	mg
Kleinstes zulässiges Füllvolumen	3,0	ml
Maximales zulässiges Füllvolumen	8	ml
Schichtdicke der Messlösung (Unendl.Dicke)	8-18	mm
Verdampfungsverlust (Deckelöffnung)	ca. 1	mg/400 sec
Lagervorrat an Bechern	ca. 500	Stück

DOSIERUNG

Membran-Dosierpumpen	10	Stück
Hubvolumen, verstellbar	0,09-1,0	ml
Hubfrequenz	bis 100	1/min
Reproduzierbarkeit des Hubvolums	2	%
Füllvolumen der Pumpe	0,6	ml

ZUSAMMENSETZUNG EINER MESSPROBE

Originalprobe	1,25	ml
Th-Stammlösung	0,4 oder	
	0,8	g
Salpetersäure, 3 - 5-molar	1,6 oder	
	6,0	g
Gewichtsbezogene Verdünnung der Originalprobe	2 - 2,5	-fach
	oder 4,4	-fach
Maximales Gesamtgewicht einer Meßprobe, mit Becher	13,6	g
Konzentration des internen Standards	5 - 6	mg Th/g

EICHLÖSUNGEN

zusammensetzbar aus folgenden Stammlösungen:

Element	Kennung	Konzentration (Soll)	
Uran	U1	202	mg U/g
Uran	U2	18	mg U/g
Uran	U3	1,6	mg U/g
Thorium	Th4	50	mg Th/g
Plutonium	Pu5	51,4	mg Pu/g
Plutonium	Pu6	4,5	mg Pu/g
Plutonium	Pu7	0,4	mg Pu/g
Salpetersäure	0	3 - 5	molar

Die Stufung der Konzentrationen von Uran und Plutonium in den Eichlösungen ist in Abb.8 wiedergegeben. Sie folgt dem Gesetz einer Normzahlenreihe R 10 und wird so realisiert, daß zunächst die Dosierpumpen auf eine Fördermenge von 0,1 g pro Hub justiert werden. Bei der Herstellung von Eichlösungen kann dann die Anzahl der auszuführenden Hübe jeder Pumpe für die Elemente Uran und Plutonium unabhängig voneinander innerhalb des folgenden Rasters gewählt werden: 4, 5, 7, 9, 11, 14, 18, 22, 28 und 35.

Die Thoriumstammlösung wird stets mit 8 Hüben dosiert und die Salpetersäure-Dosierpumpe ergänzt mit ihrer Hubzahl die Summe aller vorangegangenen Hübe auf 80. Auf diese Weise werden Eichpräparate erzielt, in welchen die Elementkonzentrationen in folgenden Grenzen frei wählbar sind:

Uran	0,08 - 90 mg/g
Plutonium	0,02 - 22 mg/g

Mit b e g r e n z t e r Kombinierbarkeit sind im Bereich hoher Konzentrationen noch einige Eichpräparate herstellbar, deren Anwendung die Analyse von Produktlösungen mit nur e i n e m Element ist. In entsprechender Weise sind im Bereich sehr niedriger Konzentration weitere Eichlösungen möglich, bei welchen die Kombinierbarkeit von U und Pu zwar frei wählbar ist, aber eine leicht verminderte Wiegegenauigkeit in Kauf genommen werden muß. Unter Berücksichtigung der genannten Einschränkungen liegen die Grenzen der Eichfunktionen dann bei folgenden Konzentrationswerten:

Uran	0,02 - 180 mg/g
Plutonium	0,005- 46 mg/g

Abfälle der Probenvorbereitung.

Gemessene Lösungen, Analysen- und Eichlösungen, werden aus dem Meß- und Mischbecher abgepumpt und dabei nach dem Grad ihrer Aktivität in zwei verschiedene Abfallbehälter geleitet. Becher und Probenehmer werden gespült und das dabei

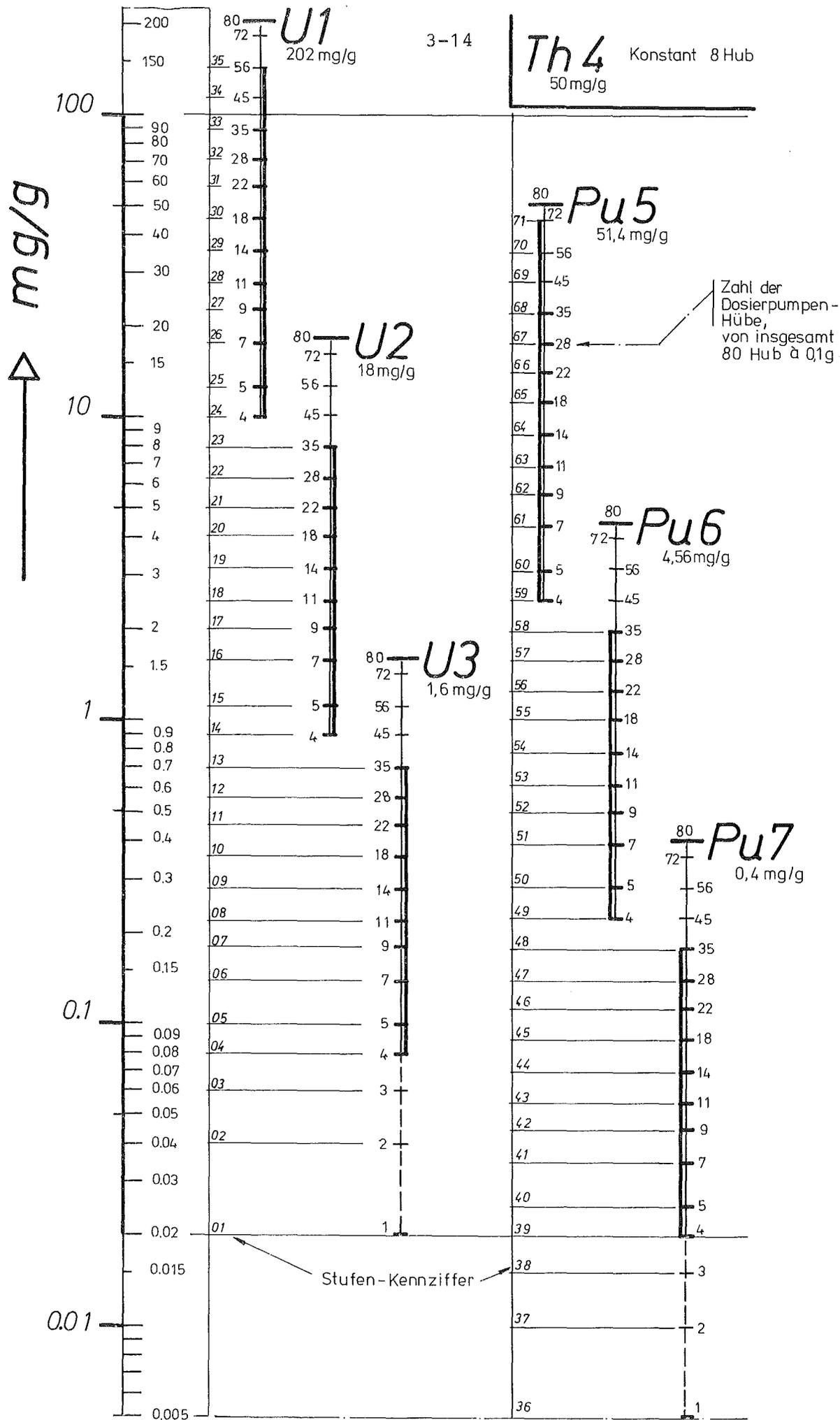


Abb. 8 : Stufung der Uran- und Plutoniumkonzentrationen in Eichlösungen

anfallende Waschwasser gelangt zu den anderen niedrig aktiven flüssigen Abfällen. Die Becher werden über das Transportband in einen dritten Abfallbehälter verworfen. In den Rohrpostkapseln ist noch ein mehr oder weniger großer Rest Probenlösung enthalten; sie müssen über das Fahrrohr in umgekehrter Laufrichtung aus dem System entfernt und an anderer Stelle weiter behandelt werden. Für die im System anfallenden und automatisch verarbeiteten Abfälle gelten folgende Richtwerte:

Messlösung von Analysen	330 ml/100 Analysen
Messlösung von Eichpräparaten	800 ml/100 Lösungen
Spülwasser	1200 ml/100 Messungen
Schüttvolumen der Meß-Mischbecher	2,5 1/100 Stück

Probenwechsel und Meßposition.

Bei voll ausgelastetem System muß während der Meßdauer einer Probe die nachfolgende Meßlösung fertig präpariert werden. Der Probenwechsel gestaltet sich dann als Ausweichvorgang von zwei Proben unmittelbar vor der Meßposition des Spektrometers. Da es wünschenswert ist, das Spektrometer auch unabhängig von der Vorbereitungsmechanik betreiben zu können und sich die Möglichkeit von Messungen anders gestalteter Proben offen zu halten, wird neben dem automatischen Betrieb eine Beschickung der Meßposition mit folgenden Proben von Hand vorgesehen:

Meßbecher \varnothing 25 mm mit Deckel,
 Rohrpostkapseln \varnothing 20 mm, 2 Längen,
 Filterblättchen ca. \varnothing 35 mm;
 alle Probenformen rotieren während der Messung.

Der kontaminationsdichte Abschluß der Meßposition vom Spektrometer geschieht durch eine Be-Scheibe von ca. 0,5 mm Dicke und 40 mm Durchmesser.

Elektronische Analysenwaage.

Typ	Mettler HE10MV
Elektrischer Kompensationsbereich	20 g
Reproduzierbarkeit	\pm 1 mg
Stillstandskontrolle	\pm 1 digit
Grenzwertkontrolle	
Tararechner	
Zyklussteuerung	
Einschwingzeit, bis 1g Tara	1,5 sec
Einschwingzeit, über 10 g Tara	4,5 sec

3.2.2.3 Röntgenfluoreszenz-Spektrometer.

Typ	Siemens MRS-1T
Hochspannungsversorgung	Siemens H 4
Stabilität der Hochspannung, bei 10% Netzschwankung	0,03 %
Kristalle	LiF 100 oder 110
Sollerspalt	0,15 Grad
Kanäle, vorhanden	4 Stück
....., möglich	7 Stück
Meßbedingungen:	
Hochspannung	55 kV
Strom	32 mA
Meßzeit	3 mal 100 sec

3.2.2.4 Steuerung, Rechner und Programme.

Es ist eine frei programmierbare Steuerung vorgesehen, welche den in Abb.3 dargestellten Handlungsablauf abzuwickeln hat (entspricht nicht DIN 66 001). Eine Übersicht der anzusteuernden Aktivitätsträger innerhalb der Probenvorbereitung gibt Abb.4. Einige wichtige Funktionen im Programmablauf sind für eine Steuerung mit vernünftigen Aufwand nicht mehr zu bewältigen. Diese soll der für die Auswertung ohnehin notwendige Rechner übernehmen. Im Wesentlichen sind es der Datenverkehr, Toleranzüberwachung, Plausibilitätskontrolle und Sicherheitsfragen.

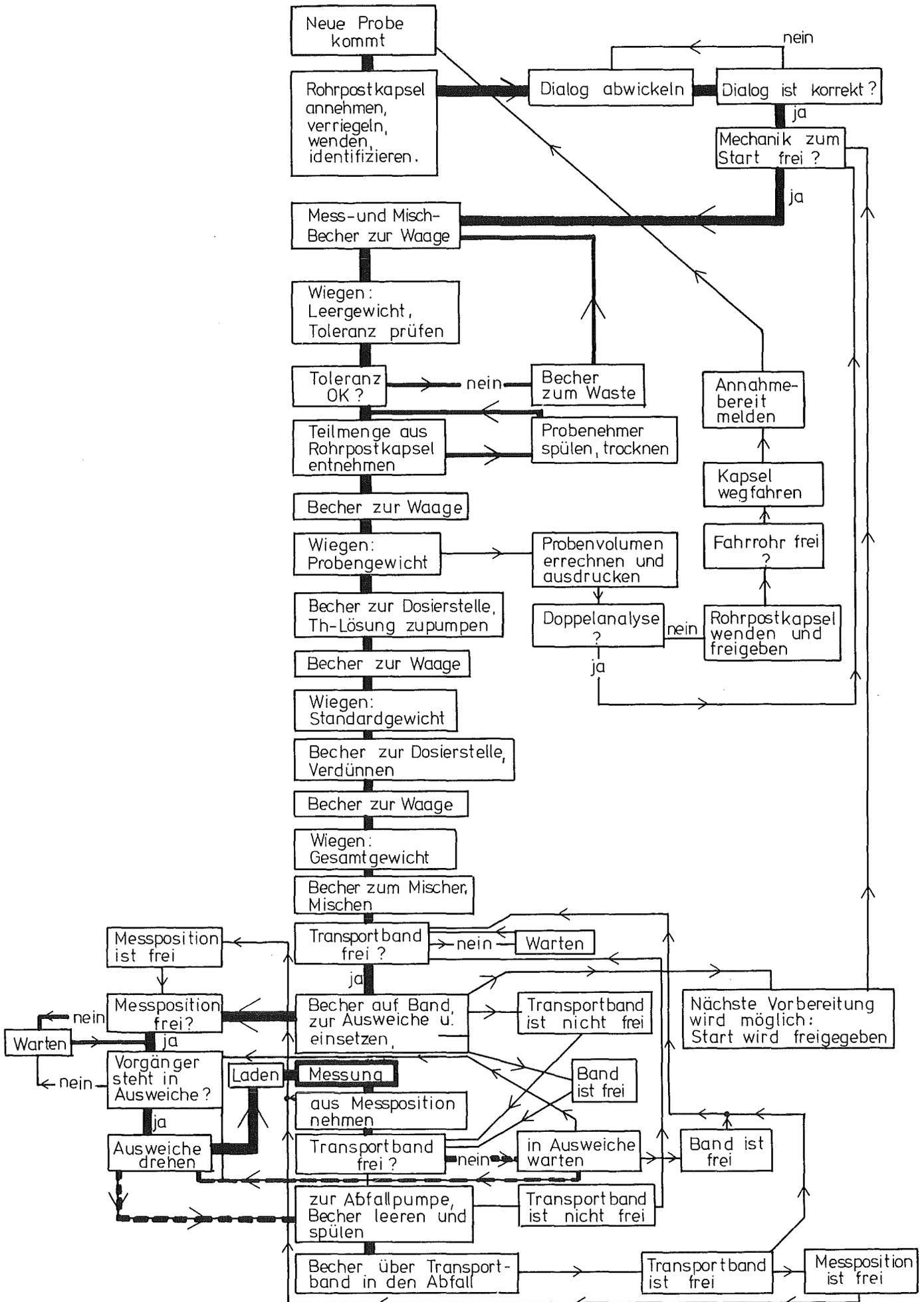


Abb. 3 : Fließschema zum Handlungsablauf der Probenvorbereitung

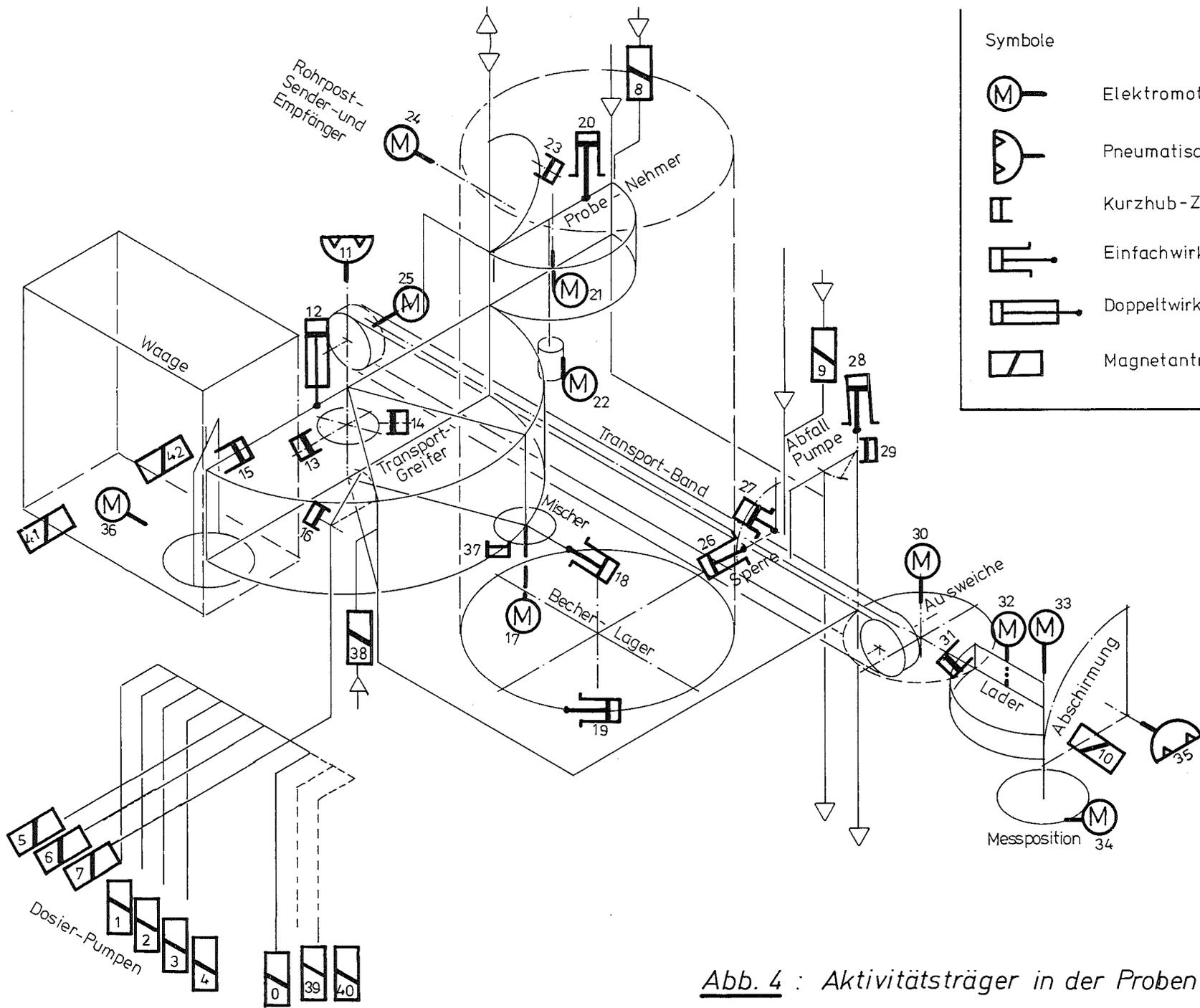


Abb. 4 : Aktivitätsträger in der Probenvorbereitung

Für die Auswertung wird das Verfahren der internen Standardisierung Basis aller Überlegungen sein. Im praktischen Betrieb soll eine reichhaltige Bibliothek an Eichfunktionen aufgebaut werden, auf welche der Operateur im Dialog vor Beginn der Präparation Bezug nimmt. Es soll eine mehrfache Auswertung einer Analyse möglich sein, die es erlaubt, eine im Dialog ungünstig gewählte Eichfunktion durch eine passendere zu ersetzen. In üblicher Weise wird die gesamte Bedienung über die Ein-Ausgabe-Einheit des Rechners abgewickelt und protokolliert. Da über Rechner und Steuerung zurzeit nur Angebote exemplarischer Art vorliegen und keine abgeschlossene Planung, läßt sich über diese Zielsetzung hinaus noch wenig sagen.

Als Anregung zur Gestaltung des Auswerteprogramms können sowohl die auf dem Markt vertriebenen Programme zur Röntgenfluoreszenz, als auch ein in unserem Hause entwickeltes und über das CALAS-System voll betreibbares Rechenprogramm dienen.

3.2.2.5 Zusammenfassung.

Abb.5 zeigt den geplanten Aufbau der Analyseneinheit mit ihren Baugruppen. Einen Überblick hinsichtlich der praktisch realisierbaren Genauigkeit des Analysenverfahrens gibt die Abb.6. Die Daten wurden bei Experimenten mit dem Prototyp unter Verwendung eines Siemens SRS 1 mit zwei Untergrundmeßstellen pro peak gewonnen und erheben schon deshalb nicht den Anspruch auf volle Übertragbarkeit. Besonders im Bereich unter 1 mg Uran pro Gramm, bzw. Plutonium, sind noch Experimente notwendig. Eine bemerkenswerte Ursache experimenteller Schwierigkeiten in diesem Konzentrationsbereich ergibt sich aus der Tatsache, daß es uns sinnvoll erschien, den Prototyp nicht aktiv mit Plutonium zu betreiben. So mußten die für die Praxis sehr wichtigen Analysen von Plutonium neben Uran durch solche von Strontium neben Uran simuliert werden. Wegen der völlig anderen Fluoreszenzausbeute von Sr gegenüber Pu, sie liegt ca. 20-fach höher, sind Experimente bei niederen Konzentrationen naturgemäß erheblich erschwert und müssen kritisch ausgewertet werden.

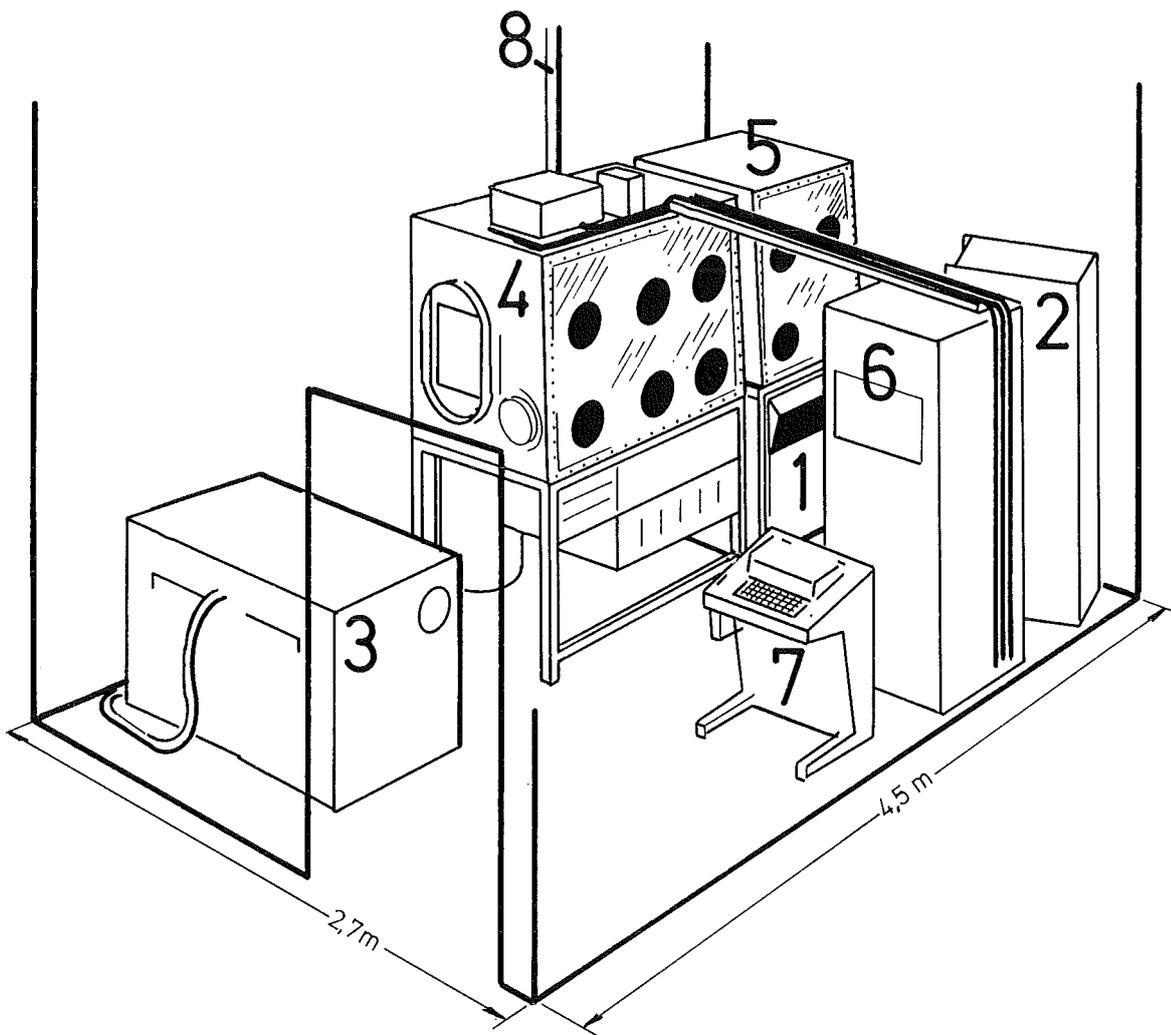
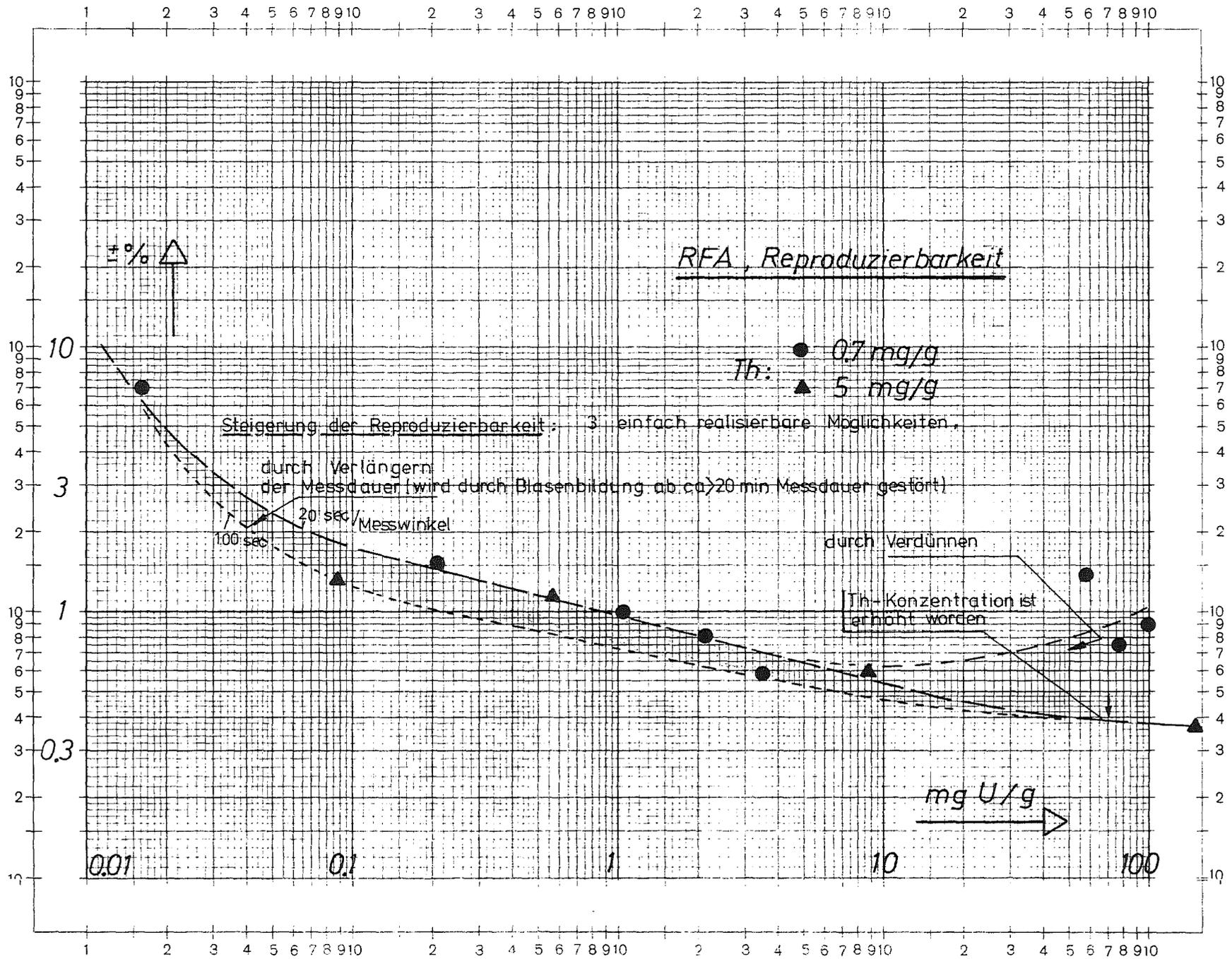


Abb.5 : Räumliche Aufstellung der geplanten Analysen-Einheit

- 1 Röntgenfluoreszenz-Spektrometer
- 2 Messelektronik zum Spektrometer
- 3 Hochspannungsversorgung des Spektrometers
- 4 Handschuhbox mit automatischer Probenvorbereitung
- 5 Messbox mit Probenwechsler des Spektrometers
- 6 Prozess-Rechner und Steuerung der Probenvorbereitung
- 7 Ein-Ausgabe-Blattschreiber
- 8 Rohrpost-Fahrrohr zur Probenanlieferung

Abb. 6 : Reproduzierbarkeit (1σ) von Uran-Analysen



Die in Abb.7 dargestellten Verhältnisse der Analysierbarkeit von Pu neben U stützen sich dementsprechend auf wenige , im Handbetrieb durchgeführte realistische Messungen und sind daher nur als vorläufige Orientierung gedacht.

Die Analysenkapazität des Prototyps von etwa 100 Messungen pro Tag (24 Stunden) kann durch die geplante Einheit weit übertroffen werden.Sie dürfte bei ca.200 Messungen aber eine Grenze erreichen,die mit einem auf präzisen Wägungen beruhenden Probenvorbereitungsverfahren kaum sehr wesentlich zu übertreffen sein dürfte.

3.2.2.6 Ausblick

Die Erfahrungen mit dem Prototyp der automatischen Probenvorbereitung zur Röntgenfluoreszenzanalyse von Kernbrennstofflösungen erlauben zum gegenwärtigen Zeitpunkt die Aussage , daß im gewünschten Konzentrationsbereich auf Uran und Plutonium mit einer Reproduzierbarkeit von $\pm 1\%$ im tiefen Bereich und deutlich unter 1% im größten Teil der Konzentrationsspanne analysiert werden kann.

Die notwendige Analysenkapazität für den Zweck der Spaltstoff-Flußkontrolle ist mit dem Prototyp erreicht worden und kann in Zukunft sicher noch gesteigert werden. Die weitere Tätigkeit wird sich konsequent auf eine Anlage hoher Verfügbarkeit richten , die dann sicher auch für vielfältige Zwecke der Betriebsanalyse nutzbar sein wird.

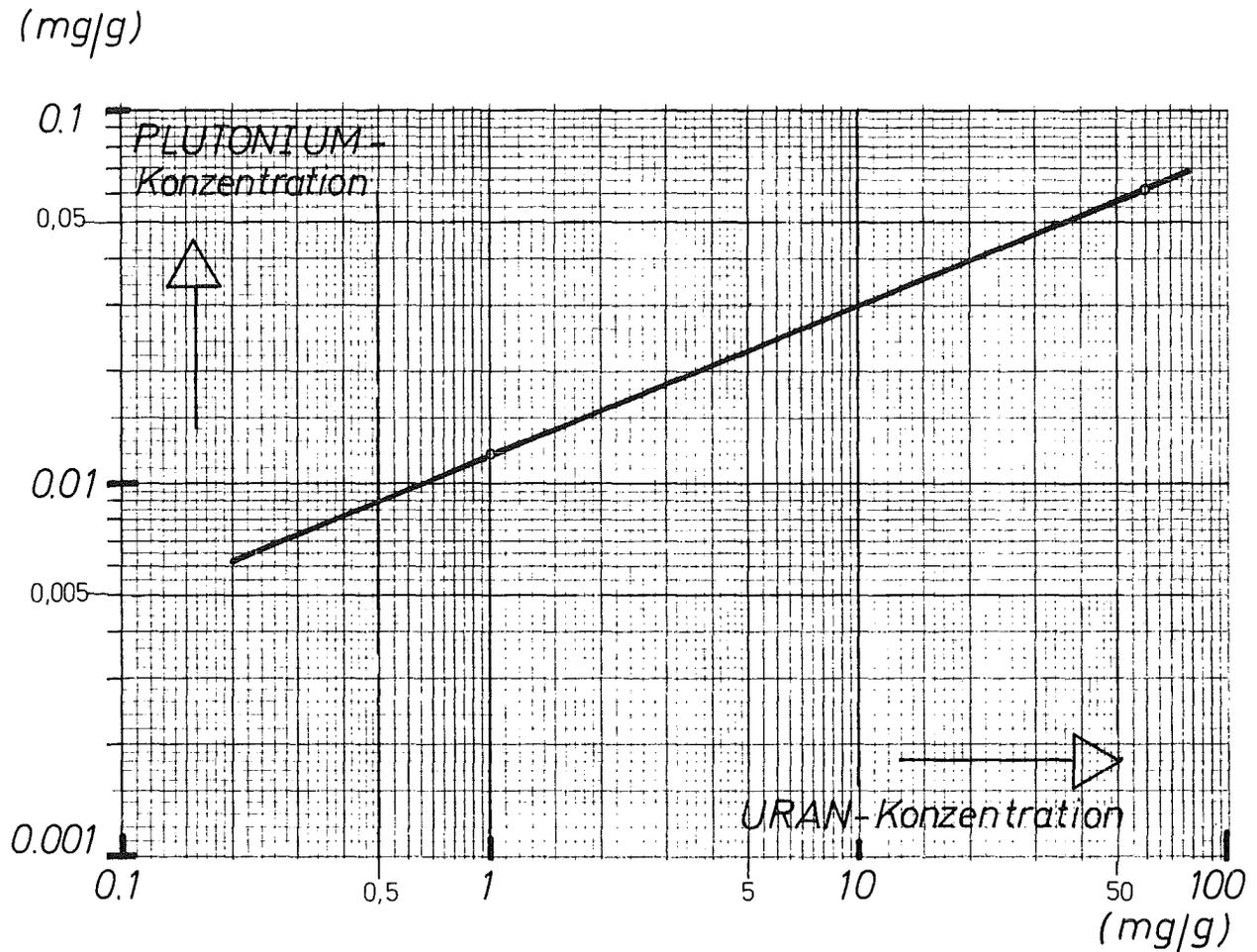


Abb. 7 : Grenze der Analysierbarkeit von Plutonium neben Uran.

Längs der Gerade erreicht die Nettoimpulszahl des Plutoniums ca. 3% des Wertes der zugehörigen Untergrundimpulszahl von ca. 30 000 Imp./100 sec. Die Untergrundmessung liegt mit einer statistischen Sicherheit von 99,7 % innerhalb einer Grenze von $\pm 1,7\%$.

3.2.3. Interlaboratoriumtests von Direktverfahren

E. Mainka

unter Mitarbeit von Bernhard, Coerdts, Deutsch, König und Matern

3.2.3.1. Einleitung

Direkte Analysenverfahren zur Spaltstoffkontrolle sind inzwischen sehr detailliert entwickelt. Die Arbeitsgruppe: Destructive Methods for Safeguards ESARDA (European Safeguards Research and Development Association) stellte anlässlich einer Gruppenbesprechung fest, daß die Ausarbeitung neuer Analysenverfahren nicht notwendig ist. Vielmehr sollten die vorhandenen Arbeitstechniken verbessert und wenn möglich vereinfacht werden.

Die Leistungsfähigkeit der einzelnen Arbeitsmethoden läßt sich am besten durch Interlaboratoriumtests ermitteln. Das Sale-Programm der USAEC, an dem sich auch japanische und europäische Labors beteiligen, befaßt sich mit einem solchen Test.

Unsere Hauptaktivität lag im Berichtsjahr an der Teilnahme an solchen Programmen. Dabei handelte es sich um das Sale- und das Dragon-Programm. Während es sich beim Sale - Test um die Spezifikation von oxidischem Kernbrennstoffmaterial bzw. um entsprechende Nitratlösungen handelt, sind beim Dragon Test die Analysen von "Coated Particles" gefragt.

Das Ziel solcher Tests ist es, neben der Reproduzierbarkeit vor allem die Richtigkeit von Analysenverfahren im Routinebetrieb zu ermitteln. Auch ein Vergleich von verschiedenen Analysenverfahren ist auf diese Weise möglich. Außerdem soll den teilnehmenden Labors die Gelegenheit gegeben werden ihre Arbeitstechniken im internationalen Vergleich zu testen und eventuell weiter zu vervollkommen. Auch über Handhabung, Lagerungsfähigkeit und Transportprobleme werden Aussagen aus den Daten erwartet. Die Analysenproben UO_2 , PuO_2 , $U-NO_3$ und $Pu-NO_3$ sind weitgehend dem Brennstoffzyklus angepaßt, wenn es sich auch bei den SALE-

Proben zunächst um synthetische, reine Präparate und nicht um realistische Proben handelt. Aber auch solche Proben sind hilfreich, und wie es scheint, sind die Probleme der Handhabung im Fall von Nitratlösungen auch noch nicht gelöst. Überlegungen, das Material an Austauschharz zu fixieren, sind im Gespräch.

Die Langzeiterfahrungen, die inzwischen vor allem bei SALE vorliegen, sollen in diesem Bericht diskutiert werden. Den Betrachtungen liegen weitgehend die Daten aus dem "Sale-foreign" Report Dez. 74 (nicht veröffentlicht) zugrunde. Dort wird die relative Standardabweichung zwischen berichteten Werten und Sollwerten (RSD %) als "within LAB Standard DEV". bezeichnet. Die Sollwerte sind von einer Reihe von qualifizierten Labors ermittelt worden. Für jeden Berichtszeitraum wurden solche RSD [%] für jedes Labor berechnet. Da die Analysen im Zweimonatszyklus anfallen, ist über 6 Werte gemittelt worden. Diese Laborstandardabweichungen sind weiter zur Berechnung der mittleren rel. Standardabweichung der entsprechenden Methoden herangezogen worden nach folgender Gleichung:

$$\text{mittlere rel. Standardabweichung} = \frac{\sum \text{RSD} [\%]}{N}$$

N = Anzahl der Labors, die eine spezifische Methode zur Analyse benutzt haben.

In den folgenden Abschnitten sind die das Projekt interessierenden Daten zusammengetragen bzw. neu berechnet worden.

3.2.3.2. UO₂-Analyse

A Konzentrationsbestimmung:

In der Zeit vom Mai 73 bis März 74 - die Monatsverschiebung kam durch Transportschwierigkeiten zustande - sind 28 Urananalysen ausgeführt worden. Während die Reproduzierbarkeit innerhalb der einzelnen Monatsserien bei 0,05 % lag, ergaben sich zwischen den Sollwerten und den Analysenwerten im Mittel eine Abweichung von

-0,070 % und eine STAND.DEV. von 0,35 % für die oxidimetrische Titration.

Die Daten für die Röntgenfluoreszenzanalyse des gleichen Materials waren:

Reproduzierbarkeit = 0,16 %

die Abweichung vom Sollwert lag im Mittel bei -0,051 % und eine Standardabweichung von 0,46 % wurde bei 16 Analysenwerten beobachtet.

Tab. A₁ gibt einen Überblick über die benutzten Analyseverfahren und deren Einsatzhäufigkeit im Berichtszeitraum. Die mittlere rel. Standardabweichung RSD [%] des einzelnen Verfahrens aus den entsprechenden Labordaten ist außerdem angeführt und als weiterer Wert noch die größte RSD [%], die unter diesen Bedingungen bei einem Labor berechnet wurden. Im Mittel haben sich 50 Labors an dieser Analyse beteiligt.

Tab. A₁

Analyseverfahren	Einsatzhäufigkeit	mittlere RSD [%]	Größte beobachtete RSD [%]
Gravimetrie	~ 50 %	0.07	0.18
NBL D. u. G. [2]	~ 25 %	0.15	0.5
Coulom.	~ 8 %	0.16	0.33
RFA	~ 4 %	0.49	0.5
Iso.verd. ANL	~ 2 %	0.3	----
Restl. Verfah. zusammen	~10 %	0.36	1.3

Vom Standpunkt der Kontrolle zeigt sich, daß das gravimetrische Verfahren nicht nur die einfachste Bestimmungsmethode und damit auch die am häufigsten benutzte, sondern auch die genaueste Methode ist. Das ist nicht verwunderlich, aber es sollte noch einmal betont werden. Diese Arbeitstechnik ist nur anwendbar, wenn es sich um sehr reines Analysenmaterial handelt.

Außerdem kann eine so hohe Richtigkeit nur erzielt werden, wenn große Probenmengen, etwa 5 g, eingesetzt werden.

Emissionsspektroskopisch muß sichergestellt sein, daß der Spurengehalt kleiner als 0.25 % ist [3].

Zum vom NBL modifizierten Davis und Gray Analysenverfahren [2] sind folgende Bemerkungen zu machen. Die vom NBL erzielten hohen Richtigkeiten können nur unter ganz bestimmten Bedingungen erzielt werden, die in einem weiteren NBL-Report [4] zusammengetragen worden sind. So soll die zu analysierende Probenmenge ~ 100 mg Uran betragen. Ganz allgemein wurde beobachtet, daß Abweichungen in der Arbeitsweise von der Grundvorschrift bis ± 10 % im allgemeinen nicht kritisch sind, lediglich ein Temperatureinfluß wurde beobachtet.

Versuche haben gezeigt, daß Temperaturen von Reagenzien und Probenmaterial $< 22.5^{\circ}\text{C}$ zu positiven Fehlern Anlaß geben können (+ 0.1 %). Laut Report sind diese Fehler Folgen von langsamen kinetischen Reaktionen und nicht das Ergebnis von volumetrischen Fehlmessungen, die deshalb nicht einfach zu korrigieren sind. Diese Fehler können auch nicht durch einfaches Standardisieren der Titration gegen einen Uranstandard bei gleichen Temperaturen eliminiert werden. Für die Arbeitsweise bedeutet das, daß in unserem Fall mit Temperaturbädern gearbeitet werden muß. Ungewöhnlich ist auch die hohe Anforderung, die an die Kalibration der Standardlösungen gestellt werden. Hier wird eine Übereinstimmung von ± 0.02 % zwischen Dichromattiter durch Einwaage und Titration von U-Standard gefordert. Wir haben eine Übereinstimmung im günstigsten Fall von 0.05 % erreicht. Allerdings haben wir bisher die Urantitration nicht im thermostatisierten Wasserbad, wie gefordert, durchgeführt.

Schlußfolgerungen für die Urankonzentrationsbestimmung

Die Ausführungen zeigen, daß hohe Richtigkeiten eben auch einen besonderen Aufwand fordern. Es wird zu prüfen sein, wie weit im Fall der Spaltstoffkontrolle im Routinebetrieb

ein solches Bemühen noch vertretbar ist. In unserem Labor soll geprüft werden, ob der Einsatz von größeren Probemengen eine weitere Verbesserung der Ergebnisse bringt.

Bisher sind wir, wegen unserer automatischen Büretten (10 ml) und der notwendig einzuhaltenden Analysenzeit, auf etwa 40 mg beschränkt. Zur Zeit wird an der Thermostatisierung des Verfahrens gearbeitet.

B U_{235} -Bestimmung

Entsprechend den Konzentrationsbestimmungen sind bei den gleichen Analysenproben auch massenspektroskopische U_{235} Bestimmungen ausgeführt worden. Insgesamt handelt es sich hier um 16 Analysen für den gleichen Zeitraum. Die Reproduzierbarkeit der einzelnen Monatsserien lag hier bei 0,125 %. Die Abweichung zwischen Soll- und Analysenwert war im Mittel 0,076. Für das Labor ergab sich eine Standardabweichung von 0,364 %.

Tab. B₁ gibt einen Überblick über die benutzten Analyseverfahren mit den dazugehörenden mittleren rel. Standardabweichungen. Auch hier ist die beobachtete größte RSD [%] aufgezeigt. 22 LABORS nahmen am Test teil.

Analyseverfahren	Einsatzhäufigkeit	mittlere RSD [%]	Größte beobachtete RSD [%]
Thermal Ion Mass Spec	~ 70 %	0,32	1,48
Gas-Source Mass Spec	~ 15 %	0,50	1,83
γ -Spec	~ 15 %	0,47	0,65

Die in diesem Test ermittelten Daten sind besser als die entsprechenden im IDA-Experiment.

Abschließend sollte bemerkt werden, daß im SALE-Programm ab 75 dieses Probematerial nicht mehr analysiert wird, da in allen

Fällen eine Richtigkeit besser als 0,5 % erreicht werden konnte, die als Limit gesetzt worden war.

3.2.3.3. Uranyl-Nitrat

A Konzentrationsbestimmung:

Diese Analysen sind ebenfalls mit dem modifizierten Davis und Gray Verfahren [2] durchgeführt worden. Im Berichtszeitraum sind an diesem Material 24 Analysen gemacht worden. Die Reproduzierbarkeit der Monatsserien war geringfügig besser: 0,04 % statt 0,05 %. Die Abweichungen vom Sollwert hingegen waren um den Faktor 2 etwa schlechter, nämlich 0,13 statt 0,07. Auch die Standardabweichung mit 0,61 % lag höher als der vergleichbare Wert im Fall der UO_2 -Analyse, der 0,35 % betrug.

Die entsprechenden Werte für die Röntgenfluoreszenz waren: Reproduzierbarkeit = 0,28 %, Abweichungen vom Sollwert 0,365, und die Standardabweichung betrug 0,654 %.

Wir haben hier auch gravimetrische Analysen ausgeführt, wobei wir ~ 400 mg eingesetzt haben. Da wir pro Monatsserie nur eine Analyse aus Materialmangel ausführen konnten, kann eine Reproduzierbarkeit nicht angegeben werden. Die Abweichungen vom Sollwert waren in diesem Fall 0,176 und die Standardabweichung über den Berichtszeitraum betrug 0,409 %.

Eine Übersicht über die Verfahren mit den beobachteten RSD [%] zeigt Tab. A₁. Dieser Test ist von 30 Labors durchgeführt worden.

Tab. A₁

Analysenverfahren	Einsatzhäufigkeit	mittlere RSD [%]	Größte beobachtete RSD [%]
Gravimetrie	~ 20 %	0.13	0.41
NBL D. u. G. [2]	~ 45 %	0.16	0.66
Andere Redox	~ 25 %	0.26	0.48
alle übrigen Verfah.	~ 10 %	0.37	0.69

Die Schlußfolgerungen im Abschnitt 3.2.4.2. gelten auch hier.

B U_{235} Bestimmung

Im Berichtszeitraum sind 10 massenspektroskopische U_{235} Bestimmungen an diesem Material ausgeführt worden. Es wurden Reproduzierbarkeiten von 0,15 % erreicht. Die Abweichungen zum Sollwert betragen im Mittel 0,11, und die berechnete Standardabweichung war 0,439 %.

Ein Vergleich mit den anderen teilnehmenden Labors zeigt Tab. B₁. 20 Labors waren beteiligt.

Tab. B₁

Analysenverfahren	Einsatzhäufigkeit	mittlere RSD [%]	Größte beobachtete RSD [%]
Therm-Ion Mass Spec	~77 %	0.36	2.88
Gas-Source Mass Spec	~18 %	0.06	0.11
γ -Spec	~ 5 %	0.5	0.5

3.2.3.4. UO_2 -Si-C-Coated Particles-Analyse

A Konzentrationsbestimmung:

Spezielle Probleme gibt es bei der Analyse dieses Materials. Die unterschiedlichen Größen und Schichtdicken von SiC u. C beeinflussen natürlich die Konzentrationsbestimmung. Um eine Vorstellung von diesen Schwankungen zu bekommen, sind die Coated Particles vor der Analyse nach Gewichten sortiert worden, dabei erhielten wir folgendes Ergebnis:

	Gewichte der einzelnen Coated Particle [mg]	U-Konzentration
a)	1 bis 1,1	21,62 %
b)	1,1 bis 1,2	22,72 %
c)	1,2 bis 1,4	23,36 %

Diese Untersuchung zeigt die Schwierigkeit der repräsentativen Probenahme. Durch kräftiges Schütteln tritt unter Umständen Entmischung auf.

Eine weitere Schwierigkeit ist die Schwerlöslichkeit der SiC-Schicht. Die Chlorierung oder auch Schmelzen sind bisher für den Lösungsprozeß eingesetzt worden.

Z.Zt. laufen Untersuchungen, den Aufschluß unter Druck zu erzielen. Bisher haben wir nach Aufbrechen der SiC-Schicht das Uran mit Säure ausgelaugt. Bei dieser Methode ist es wichtig, jedes Particel aufzubrechen, was nicht leicht zu kontrollieren ist, wenn die Particel sehr klein sind. Neben dieser Analysenvorbereitung laufen außerdem Versuche, die Abhängigkeit der Probenmenge auf die Richtigkeit der Ergebnisse zu studieren.

B U_{235} -Bestimmungen:

U_{235} -Bestimmungen sind hier nicht gefragt.

3.2.3.5. PuO_2 -Analyse

A Konzentrationsbestimmung:

Die Teilnehmerzahl an diesem Test war wesentlich geringer als die beim uranhaltigen Material. Nur 10 Labors beteiligten sich hier. 1 g-Proben pro Monatsserie standen uns zur Verfügung. Als Analysenverfahren wird die potentiometrische Titration eingesetzt, mit AgO als Oxidationsmittel und Fe II als Reduktionsmittel.

26 Analysen sind im Berichtszeitraum an PuO_2 SALE-Proben durchgeführt worden. Die Reproduzierbarkeit erreichte einen Wert von 0,04 %, was auch den Uranwerten in etwa entspricht. Die Abweichungen vom Sollwert waren im Mittel 0,34, und eine Standardabweichung für das Labor von 0,41 % wurde beobachtet.

Bei der Röntgenfluoreszenzanalyse erreichten wir Reproduzierbarkeiten von 0,24 %. Die Abweichung vom Sollwert betrug 0,39, und eine Standardabweichung von 0,65 % wurde erzielt. Insgesamt sind 20 Analysen von diesem Material ausgeführt worden. In Tab. A₁ sind die benutzten Analysenverfahren und ihre Einsatzhäufigkeiten zusammengefaßt. Auch hier werden die mittlere RSD [%] und die größte beobachtete RSD [%] aufgezeigt.

Tab. A₁

Analysen- verfahren	Einsatz- häufigkeit	mittlere RSD [%]	Größte be- obachtete RSD [%]
POT. TITR AgO/FE II	~45 %	0.26	0.44
Coulom.	~25 %	0.32	0.55

Alle übrigen Methoden wie z.B. die Röntgenfluoreszenz oder andere oxidimetrische Verfahren sind nur einmal angewandt worden und zeigen sehr unterschiedliche rel. Standardabweichungen (RSD) so daß man sie nicht ohne weiteres vergleichen kann.

B Pu₂₃₉ und Pu₂₄₁-Bestimmung

Für jedes Isotop sind 12 Analysen bearbeitet worden. Die Reproduzierbarkeiten lagen für Pu₂₃₉ bei 0.02 % und bei Pu₂₄₁ bei 0.42 %. Die Abweichungen vom Sollwert betragen im Berichtszeitraum für Pu₂₃₉ = 0,11 bzw. 0.54 für Pu₂₄₁. Die entsprechenden Standardabweichungen sind für Pu₂₃₉ = 0.06 % bzw. 1,11 für Pu₂₄₁.

Den dazugehörenden Laborvergleich zeigt Tab. B₁. Nur 6 Labors beteiligten sich am Test.

Tab. B₃ Pu₂₃₉-Bestimmung

Analysen- verfahren	Einsatz- häufigkeit	mittlere RSD [%]	Größte be- obachtete RSD [%]
Therm. Ion Mass Spec	100 %	0.052	0.13

Pu₂₄₁-Bestimmung

Therm. Ion Mass Spec	100 %	0.89	1.73
-------------------------	-------	------	------

3.2.3.6. Pu-NITRAT-Analyse

A Konzentrationsbestimmung:

10 Labors haben sich an diesem Analysentest beteiligt. Die Analysenmethode in unserem Labor entsprach der des Oxids. Die Reproduzierbarkeit entsprach auch den dort gefundenen Werten d.h. sie war 0,55 %. Die Abweichung vom Sollwert aber war mit 0,38 schon bedeutend höher und die beobachtete Standardabweichung war sogar 1,76 %, wobei 24 Analysen durchgeführt worden sind.

Die entsprechenden Werte für die Röntgenfluoreszenz waren: Reproduzierbarkeit = 0,27 %; Abweichungen vom Sollwert 0,33, und die dazugehörige Standardabweichung betrug 1,30 %.

Den Laborvergleich zeigt Tab. A₁.

Tab. A₁

Analyseverfahren	Einsatzhäufigkeit	mittlere RSD [%]	Größte beobachtete RSD [%]
Pot. Titr. AgO/FE II	~ 33 %	0.63	1.7
Amp. Titr. AgO/FE II	~ 33 %	0.21	0.29
Coulom.	~ 20 %	0.59	1.0

Die hohen Standardabweichungen [RSD %] sind überraschend, zumal die Reproduzierbarkeit der analysierten Werte (Reported Values), wie man sehen kann, denen des Plutoniumoxides vergleichbar sind. Zu sagen wäre, daß bei diesem Test nach der Plutoniumkonzentration der gesamten Ampulle gefragt wird. Wir haben große Mühe, die dickwandigen Glasampullen in der Box aufzubrechen. Um sicher zu gehen, daß keine Pu-Spuren, die eventuell polymerisiert sind und an den Glaswänden zurückbleiben, wird die Ampulle mit HNO₃ ausgekocht. Wie es scheint, ist die quantitative Überführung der entscheidende Schritt, der bisher noch nicht befriedigend gelöst ist.

Schlußfolgerungen für Pu-Konzentrationsbestimmungen:

Auch im Fall der Pu-Bestimmung soll versucht werden mit größeren Probenmengen zu arbeiten, um eine höhere Genauigkeit zu erreichen. Bei dem bisherigen Verfahren wird die Reduktion des Plutoniums mit Fe II vorgenommen. Da die Lösung nicht besonders stabil ist, muß sie täglich neu eingestellt werden. Davis und Townsend [5] beschreiben ein Verfahren, bei dem die Reduktion mit Cu I erfolgt. Der Überschuß an Cu I wird vor dem Plutonium mit $K_2Cr_2O_7$ oxidiert, d.h. man erhält bei der Titration zwei Potentialsprünge, wobei der erste dem Cu Überschuß entspricht und der zweite Sprung dem Plutonium proportional ist. Auch von dieser Verfahrensumstellung erhoffen wir uns eine Verbesserung der Methode.

B Pu_{239} und Pu_{241} Bestimmung

An der massenspektroskopischen Isotopenbestimmung nahmen 6 Labors teil. Unser Labor konnte für Pu_{239} eine Reproduzierbarkeit von 0,025 % und für Pu_{241} eine von 0,54 % erreichen. Die Abweichungen vom Sollwert waren für $Pu_{239} = 0,023$ bzw. 0,170 für Pu_{241} . Die beobachteten Standardabweichungen betragen für $Pu_{239} = 0,057$ % und für $Pu_{241} = 0,79$ %. Den Analysenvergleich zeigt B_1 .

Tab. B_1 Pu_{239}

Analyseverfahren	Einsatzhäufigkeit	mittlere RSD [%]	Größte beobachtete RSD [%]
Therm. Ion Mass Spec	100 %	0.056	0.087
Pu_{241}			
Therm. Ion Mass Spec	100 %	0.50	0.79

Unsere Daten stimmen gut mit diesem Laborvergleich überein.

Literatur

- [1] E. Mainka und W. Coerdt
KFK 1980 (1974) 3-24

- [2] A.R. Eberle, M.W. Lerner, G.G. Goldbeck und C.J. Rodden
NBL 252, July (1970)

- [3] S. Kallman
First Sale Program Meeting Oct. (1973)
Idaho Falls Appendix 5

- [4] L.Z. Bodnar und M.W. Lerner
NBL 272 (1974) 26

3.3 Bestimmung von Uran in HTR-Brennelementen durch differentielle γ -Absorptiometrie

J. Hanif, A. v. Baeckmann

aus dem Englischen übersetzt von E. Gantner

3.3.1 Einleitung

3.3.1.1 Allgemeines

Die Röntgenabsorptionsanalyse ist seit nahezu 50 Jahren bekannt /1/ und seitdem in einer Reihe von Übersichtsartikeln beschrieben worden /2/ bis /9/. Die dazu vergleichbare γ -Absorptionsmessung, die radioaktive Strahlenquellen anstelle von Röntgenröhren verwendet, wurde hingegen erstmals von Davisson und Evans /7/ 1952 untersucht, die γ -Absorptionskoeffizienten bestimmten. Das erste auf dieser Technik beruhende Gerät wurde 1955 von Miller und Connolly /9,10/ beschrieben, die es als "In Line"-Verfahren zur Uran- und Plutoniumbestimmung einsetzten.

Die γ -Absorptiometrie beruht auf dem Prinzip, daß die Schwächung eines kollimierten monoenergetischen γ -Strahls ein Maß für die Masse des durchdrungenen Materials ist. Der Schwächungskoeffizient, der üblicherweise als Massenabsorptionskoeffizient (μ_m) bezeichnet wird, ist eine Funktion der Photonenenergie und der Ordnungszahl der im absorbierenden Material enthaltenen Elemente. Da bei gegebener Energie der Massenabsorptionskoeffizient nur von der Ordnungszahl abhängt, lassen sich mit diesem Verfahren verschiedene Elemente voneinander unterscheiden.

Der Absorptionskoeffizient eines Elements als Funktion der Photonenenergie weist an den Stellen der Anregungspotentiale der K-, L-Schalen usf. Diskontinuitäten auf, die als Absorptionskanten bezeichnet wurden. Die Massenabsorptionskoeffizienten zweier γ -Energien, die unterhalb bzw. oberhalb einer Absorptionskante eines Elements liegen, unterscheiden sich somit voneinander, so daß der

selektive Nachweis dieses Elements möglich ist, wenn die übrigen in der Probe anwesenden Elementen zwischen den beiden γ -Energien keine Absorptionskanten besitzen. Dieses Verfahren wird als Absorptionskantenmethode bezeichnet /2,3,6,9,26,27/.

Die Meßanordnung besteht aus einer Strahlenquelle geeigneter γ -Energien, einer Probenhalterung und einem Detektor. Die Intensitäten der beiden die Absorptionskante einschließenden γ -Energien werden an Blindprobe und Proben gemessen. Entsprechend dem Beer'schen Gesetz der Lichtabsorption wird eine einfache Beziehung zwischen Durchlässigkeit und Elementkonzentration erhalten, in denen die Verhältnisse der Intensitätslogarithmen auftreten.

Üblicherweise wird die Intensitätsschwächung zweier Energien gemessen, die die Absorptionskante dicht einschließen. Dieses Verfahren wird als differentielle γ -Absorptometrie bezeichnet.

Dieses Verfahren eignet sich besonders zur Bestimmung der schwereren Elemente in einer Matrix leichter Elemente, da die Massenabsorptionskoeffizienten mit zunehmender Ordnungszahl stark zunehmen. Wegen der relativ großen Kantensprünge an den K- und L-Kanten lassen sich auch kleine Konzentrationen der schwereren Elemente leicht nachweisen, während bei den leichteren Elementen wegen der fehlenden Kantensprünge in diesem Bereich die Massenabsorptionskoeffizienten für dicht benachbarte Energien ähnlich sind und somit Änderungen der Zusammensetzung oder Konzentration nur geringen Einfluß haben.

3.3.1.2 Vorteile und Nachteile des Verfahrens

Die Vorteile der Absorptionskantenmethode gegenüber konventionellen chemischen Analysenverfahren sind vor allem ihre nichtdestruktive Natur, höhere Selektivität, ausreichende Genauigkeit, einfachere und robustere Instrumentierung, weitgehende Unabhängigkeit von der Matrixzusammensetzung und vom chemischen oder physikalischen Zustand sowie die geringe Strahlenbelastung bei Verwendung radioaktiver

Quellen. Radionuklide bieten außerdem gegenüber Röntgenröhren den Vorteil der geringeren Kosten, der Stabilität von Intensität und Energie und des weitgehend monochromatischen Charakters der Strahlung, die mit den in radiochemischen Labors üblichen Meßverfahren nachgewiesen werden kann.

Nachteile des Verfahrens sind die niedrigere Empfindlichkeit und die geringere Genauigkeit vor allem im Bereich schwacher Konzentrationen, seine mangelnde Eignung zur Bestimmung leichter Elemente, beträchtliche statistische Schwankungen bei niederen Zählraten und Störungen durch

- a) leichte Elemente bei niederen Konzentrationen der zu bestimmenden Elemente
- b) andere Elemente, die zwischen den beiden Quellenergien ebenfalls Absorptionskanten besitzen
- c) Untergrund durch Eigenstrahlung von Proben, die U-235 oder Plutonium enthalten.

Diese Effekte können jedoch durch geeignete Maßnahmen klein gehalten werden. Weitere, die Anwendbarkeit dieses Verfahrens begrenzende Faktoren sind nicht genügend genau bekannte Massenabsorptionskoeffizienten für die einzelnen Elemente sowie die Tatsache, daß nur wenige Radionuklide mit längeren Halbwertszeiten existieren, die γ -Strahlung ausreichender Intensität im Energiebereich der K- bzw. L-Kanten der Elemente emittieren.

Wie aus dieser Diskussion hervorgeht, werden die Nachteile der geringeren Empfindlichkeit und Genauigkeit jedoch durch den Vorteil der Unabhängigkeit vom chemischen Zustand, dem nichtdestruktiven Charakter des Verfahrens sowie seines niederen Preises und einfachen Aufbaus weitgehend ausgeglichen. Dieses Verfahren eignet sich daher besonders für die schnelle Routineanalyse der schweren Elemente, wo keine hohe Genauigkeit gefordert wird. Da es ferngesteuert betrieben und auch zur kontinuierlichen oder diskontinuierlichen Elementanalyse in geschlossenen Behältern oder Leitungen eingesetzt werden kann, ist seine Anwendung vor allem bei hoch-

toxischen oder radioaktiven Materialien, wie sie in einer Wiederaufarbeitungsanlage oder einer Refabrikationsanlage für Kernbrennstoffe vorliegen, von besonderem Vorteil. Die γ -Absorptiometrie hat daher auch bisher in der Bestimmung von Uran und Plutonium ihre hauptsächliche Anwendung gefunden /9,10,11,14/.

3.3.1.3 Geschichtliches

γ - und Röntgenabsorptionsspektrometrie sind sowohl als "In Line"-Verfahren als auch im Labor häufig zur Bestimmung der Konzentration von Uran und Plutonium in Wiederaufarbeitungsanlagen angewandt worden. Die erste Laboranalyse dieser Art wurde 1951 von T. Bartlet /8/ beschrieben. Er verwendete ein Röntgenspektrometer und eine Probenküvette von 19 mm Länge zur Uranbestimmung im Konzentrationsbereich von 0,1-10 g U/l bei einem Analysenfehler von $\pm 0,05$ g U/l. Das erste γ -Absorptiometer zur "In Line"-Bestimmung von Uran und Plutonium in Wiederaufarbeitungsanlagen wurde 1955 von Miller und Connolly /9/ gebaut, die eine luftgefüllte Ionisationskammer als Detektor und Tm-170 als Strahlenquelle verwendeten. Eine Verbesserung brachte die Verwendung einer Am-241-Quelle anstelle von Tm-170 /10/. Von Thurnau /12/ wurde 1957 ein γ -Absorptiometer mit Szintillationszähler als Detektor und verbesserter Gerätestabilität zur kontinuierlichen Urananalyse im Konzentrationsbereich von 300-420 g U/l beschrieben. Whittaker /13/ diskutierte die Theorie der Methode zur kontinuierlichen und diskontinuierlichen Analyse von Uran und Plutonium und entwickelte mit Krypton und Xenon gefüllte Ionisationskammern als Detektoren. Woodman et al. /14/ beschrieben 1958 ein γ -Absorptiometer für die "In Line"-Analyse mit Tm-170 oder Am-241 als Strahlenquelle und einer xenon-gefüllten Ionisationskammer als Detektor. Ein ähnliches Gerät haben Broderick und Whitmer /15/ zur Uranbestimmung sowohl in wäßriger als auch in organischer Phase im Konzentrationsbereich von 1-550 g U/l verwendet, wobei die beobachtete Standardabweichung weniger als 1 % betrug. Whittaker et al. /16/ untersuchten den Einfluß leichter Elemente sowie des Untergrundsignals, das durch die Emission weicher Röntgen- und γ -Strahlung von U-235 oder Plutonium hervorgerufen wird.

Andere Arbeitsgruppen /17-23/ untersuchten verschiedene Parameter wie γ -Quellen, Detektoren, Geometrieeffekte etc., um optimale Analysenbedingungen aufzufinden und weitere mögliche Anwendungen dieses Analysenverfahrens aufzuzeigen. Von F. Brown /24/ wurde ein γ -Absorptiometer beschrieben, das eine Am-241-Quelle verwendet, die sich zwischen zwei zylindrischen, mit Schlitzen versehenen Abschirmungen aus einer Wolframlegierung befindet. Mit diesem System kann die γ -Quelle moduliert werden, so daß die Quellenstrahlung von der aus der Probe herrührenden Störstrahlung unterschieden werden kann. Mit einem 4π -Szintillationszähler konnte bei diesem Verfahren eine 1%ige Konzentrationsänderung des Urans noch nachgewiesen werden.

Die Röntgen-Absorptionskantenmethode ist in einer Reihe von Arbeiten beschrieben und zur Bestimmung mehrerer Elemente in verschiedenen Materialien angewandt worden /6,26-31/. Die entsprechende γ -Absorptionskantenmethode wurde 1968 erstmals von E. Gantner und A. v. Baeckmann /32/ zur Bestimmung des Urans in Lösungen unter Ausnutzung des L III-Absorptionskantensprungs bei 17,16 keV verwendet. Als Strahlenquellen benutzten sie Y-88 und Tc-95^m. Störungen des Verfahrens wurden nur in Gegenwart der Elemente Strontium, Rubidium und Yttrium beobachtet, deren K-Absorptionskanten zwischen 14,2 keV und 17,5 keV liegen (Hauptenergien der Strahlenquellen). Als relative Standardabweichung fanden diese Autoren ca. 2 % für U-Konzentrationen zwischen 24 g U/l und 240 g U/l bzw. 6 % im Bereich 4-30 g U/l. Unter Verwendung der gleichen Technik entwickelten später Christallini, Gantner und v. Baeckmann /33/ eine Methode zur Bestimmung von Uran in wäßrigen Lösungen unter Ausnutzung der K-Absorptionskante von Uran bei 116 keV. Sie untersuchten die Einflüsse von Dichte, Salpetersäure- und Aluminiumnitratkonzentration, wobei im Bereich von 1-20 g U/l keine Beeinflussung gefunden wurde. Als relative Standardabweichung der Einzelmessung wurden 0,71 % über 58 Bestimmungen gefunden. Die Methode wurde von Misaelides, Gantner und v. Baeckmann /34/ auch auf die Bestimmung von Plutonium in wäßrigen Lösungen angewandt.

Diese Arbeit beschreibt die Anwendung der γ -Absorptions-

kantenmethode unter Ausnutzung des K-Kantensprungs zur Bestimmung des Urangehalts im Bereich von 5-60 % in einer Graphitmatrix. Mit dieser Methode wurden die Urangehalte in Hochtemperaturreaktorbrennstoffen vom Typ BiSO und TRISO bestimmt.

3.3.2 Gleichungen

Die Gleichungen für die Bestimmung des Urans in Lösung durch Röntgen- oder γ -Absorptometrie sind in der Literatur vielfach beschrieben worden /2-6,26-34/, wobei stets die Beziehung zwischen dem Intensitätsverhältnis und der Konzentration oder des Gewichtsanteils an Uran in der Lösung benutzt wird. Diese Näherung hat den Vorteil, daß die für die Berechnung des Urangehalts benutzte Gleichung unabhängig von Matrixeffekten ist, während die die Messungen beeinflussenden Parameter die Dichte und die Küvettenlänge sind. Für die hier untersuchten Proben wurden unter Verwendung einer ähnlichen Näherung Gleichungen hergeleitet, die im folgenden diskutiert werden.

Die Gleichungen für die Absorption eines kollimierten monoenergetischen Photonenstrahls in einer Probe liefert nach dem Beer'schen Gesetz den Massenabsorptionskoeffizienten zu

$$\mu = \frac{2,303}{d \cdot t} \cdot \log (I_0/I) \quad \text{mit}$$

d = Dichte des absorbierenden Materials ($\text{g} \cdot \text{cm}^{-3}$)

t = Dicke des absorbierenden Materials (cm)

I_0, I = Intensitäten des eintretenden und des geschwächten Photonenstrahls

Das Produkt aus Dichte und Dicke kann durch die Probenmenge pro Flächeneinheit (W/A) ersetzt werden:

$$\mu = \frac{2,303}{W/A} \cdot \log (I_0/I) \quad (1)$$

Der Massenabsorptionskoeffizient einer aus mehreren Komponenten zusammengesetzten Probe ist gleich der Summe der Produkte aus Massenabsorptionskoeffizient und Gewichtsanteil der vorliegenden Komponenten /3/. Für eine aus Uran und einem Matrixmaterial bestehende Probe ergibt sich somit z.B.

$$\mu = \mu_U \cdot W_U + \mu_M (1-W_U) \quad (2)$$

wobei μ , μ_U und μ_M die Massenabsorptionskoeffizienten von Probe, Uran und Matrix und W_U der Gewichtsanteil des Urans in der Probe bedeuten. Ersetzt man μ in Gleichung (1) durch Gleichung (2), so erhält man

$$\frac{2,303}{W/A} \cdot \log (I_0/I) = \mu_U \cdot W_U + \mu_M (1-W_U) \quad (3)$$

Für die Absorption zweier die K-Absorptionskante des Urans einschließenden Photonenenergien E_1 und E_2 gelten somit die Gleichungen

$$\frac{2,303}{W/A} \cdot \log (I_0/I)_1 = \mu_{U1} \cdot W_U + \mu_{M1} (1-W_U) \quad (4)$$

und

$$\frac{2,303}{W/A} \cdot \log (I_0/I)_2 = \mu_{U2} \cdot W_U + \mu_{M2} (1-W_U) \quad (5)$$

Wenn zwischen den Energien E_1 und E_2 nur Uran einen Absorptionskantensprung aufweist, dann ergibt die Differenz der Absorption bei E_1 und E_2 nach Umordnung die Beziehung

$$\begin{aligned} & \frac{2,303}{W/A} (\log (I_0/I)_2 - \log (I_0/I)_1) \\ &= W_U ((\mu_{U2} - \mu_{U1}) - (\mu_{M2} - \mu_{M1})) + (\mu_{M2} - \mu_{M1}) \end{aligned} \quad (6)$$

Für ein gegebenes System der gleichen Matrixzusammensetzung bei gleichem Wert für W/A und gleichen Photonenenergien E_1 und E_2 sind die Massenabsorptionskoeffizienten konstant und Gleichung (6) läßt sich vereinfacht wie folgt schreiben:

$$\frac{2,303}{W/A} \cdot (\log (I_0/I)_2 - \log (I_0/I)_1) = (k_U - k_M) \cdot W_U + k_M \quad (7)$$

oder

$$\frac{2,303}{W/A} \cdot (\log (I_0/I)_2 - \log (I_0/I)_1) = K \cdot W_U + k_M \quad (8)$$

Gleichung (8) ist eine Geradengleichung mit der Steigung K und dem Ordinatenschnittpunkt k_M , wenn der Absorptionsfaktor

(Klammerausdruck) gegen den Gewichtsanteil des Urans aufgetragen wird. Diese "Eichgerade" kann durch Messung von Standardproben bekannten Urangehalts ermittelt und zur Bestimmung unbekannter Urangehalte verwendet werden, wenn die Matrixkomponenten und die Meßbedingungen die gleichen bleiben.

Der Idealfall ist die Verwendung von zwei γ -Energien E_1 und E_2 in unmittelbarer Nachbarschaft der Absorptionskante so daß $\mu_{M1} \sim \mu_{M2}$ ist. In diesem Fall vereinfacht sich Gleichung (8) zu

$$\frac{2,303}{W/A} \cdot (\log (I_0/I)_2 - \log (I_0/I)_1) = k_U \cdot W_U \quad \text{oder}$$

$$W_U = \frac{2,303}{k_U \cdot W/A} \cdot (\log (I_0/I)_2 - \log (I_0/I)_1) \quad (9)$$

Im allgemeinen sind jedoch in der Praxis die beiden Energien soweit von der Kante entfernt, daß $\mu_{M1} \neq \mu_{M2}$ ist. Eine Abschätzung der Korrektur für diesen Matrixeffekt läßt sich erhalten, wenn angenommen wird, daß alle die Matrix bildenden Elemente A, B, C etc. zwischen E_1 und E_2 keine Absorptionskanten aufweisen und das Verhältnis ihrer Absorptionskoeffizienten bei E_1 und E_2 als konstant betrachtet werden kann:

$$\frac{\mu_{A1}}{\mu_{A2}} = \frac{\mu_{B1}}{\mu_{B2}} = \frac{\mu_{M1}}{\mu_{M2}} = k \quad (10)$$

Der Faktor k ist somit der Korrekturfaktor für den "Matrixeffekt" ($\mu_{M2} - \mu_{M1}$). Wird Gleichung (5) mit k multipliziert und von Gleichung (4) subtrahiert, so erhält man nach Umformung

$$W_U = \frac{2,303}{W/A (k \cdot \mu_{U2} - \mu_{U1})} \cdot (k \cdot \log (I_0/I)_2 - \log (I_0/I)_1) \quad (11)$$

Somit ist der Gewichtsanteil des Urans in der Probe direkt proportional dem Absorptionsfaktor, wenn der Wert von W/A konstantgehalten wird. Ist W/A nicht konstant (z.B. bei der nichtdestruktiven Probenanalyse), dann läßt sich Gleichung (11) in der Form

$$W_U/A = \frac{2,303}{k \cdot \mu_{U2} - \mu_{U1}} \cdot (k \cdot \log (I_O/I)_2 - \log (I_O/I)_1) \quad (12)$$

verwenden, wobei W_U das Gewicht des Urans in der Probe ist. Wird der Absorptionsparameter gegen die Menge Uran pro Flächeneinheit ($= W_U/A$) aufgetragen, ergibt sich gemäß Gleichung (12) eine Gerade durch den Nullpunkt mit der Steigung

$$\alpha = \frac{2,303}{k \cdot \mu_{U2} - \mu_{U1}} = \frac{W_U/A}{k \cdot \log (I_O/I)_2 - \log (I_O/I)_1} \quad (13)$$

Nach Gleichung (12) ist die Bestimmung der Urankonzentration unabhängig von der Matrixzusammensetzung, wenn der Faktor k bekannt ist. Dieser Faktor kann experimentell durch Absorptionsmessung in Abwesenheit von Uran ermittelt werden. In diesem Fall ist

$$k \cdot \log (I_O/I)_2 - \log (I_O/I)_1 = 0 \quad \text{und}$$

$$k = \frac{\log (I_O/I)_1}{\log (I_O/I)_2} \quad (14)$$

In dieser Arbeit werden im folgenden die Gleichungen (8), (13) und (14) benutzt.

3.3.3 Experimentelles

Die Meßanordnung ist in Abbildung 1 schematisch dargestellt. Sie besteht aus der Quellenhalterung A, einem Kollimator B, einer Probenhalterung C und dem Detektor D. Die gesamte Anordnung befindet sich in einer Bleikammer E, in der die Messungen ausgeführt werden. Die Anordnung und das Meßverfahren werden im folgenden beschrieben.

3.3.3.1 Quellen

Die K-Absorptionskante des Urans liegt bei 116 keV. Wünschenswert wären daher für die Absorptionsmessung Photonenenergien, die nur um wenige keV unterhalb bzw. oberhalb dieses Wertes liegen. Derartige günstige Nuklidkombinationen lassen sich jedoch nicht finden. Am geeignetsten erwies sich für unseren Fall noch die Kombination Co-57/Gd-153, die bereits in einer

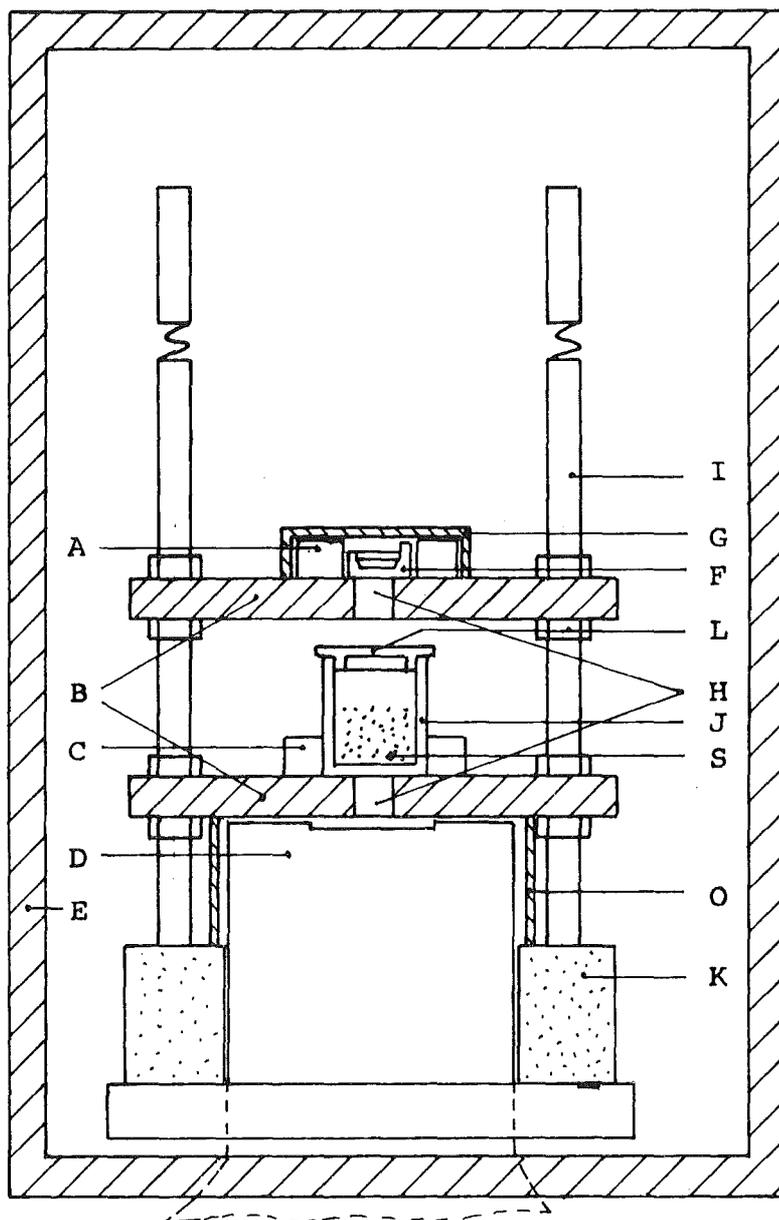


Abbildung 1: Schema der Meßanordnung

A = Quellenhalterung	H = Kollimator
B = Bleikollimator	I = Stahlplativ
C = Probenzellenhalterung	J = Teflon-Probenzelle
D = Ge(Li)-Detektor	K = PVC-Adapter
E = Bleikammer	L = Probenzellendeckel
F = Strahlenquelle	S = Probe
G = Quellenabschirmung	O = Detektorabschirmung

früheren Arbeit /33/ benutzt wurden. Die wichtigsten Daten dieser beiden Quellen sind in der nachfolgenden Tabelle zusammengestellt.

Quelle	Co-57	Gd-153
Halbwertszeit	267 Tage	200 Tage
γ -Energie	122 keV	103 keV
Häufigkeit	92 %	22,5 %
Quellstärke	0,5 mCi	70 μ Ci
Produktionsart	Fe-56(d,n)Co-57	Gd-152(n, γ)Gd-153

Gelöste Aliquote der beiden Nuklide wurden in einer Plexiglaszelle F eingetrocknet und dicht verschlossen. Die γ -Spektren der beiden Quellen sind in den Abbildungen 2 und 3 dargestellt. Die Quellen wurden in die Quellenhalterung eingesetzt und mit einer Bleiabschirmung G überdeckt, die vor allem zur Reduktion des von Streustrahlung verursachten Untergrunds dient.

3.3.3.2 Kollimator

Der Kollimator besteht aus zwei 1 cm dicken kreisförmigen Bleiplatten B mit einer 1 cm-Bohrung in der Mitte. Die beiden Platten werden in 4 cm Abstand voneinander in einer Stahlhalterung gehalten. Auf der oberen Bleiplatte befindet sich die Quellenhalterung aus Kunststoff. Die Oberseite der unteren Bleiplatte besitzt eine ähnliche Halterung zur Aufnahme der Meßküvetten I. Die gesamte Quellen-Kollimator-Anordnung wird über einen PVC-Ring auf dem Ge(Li)-Detektorkopf befestigt.

3.3.3.3 Probenzelle

Die Probenzelle I besteht aus einem 3 cm langen Teflonzylinder (innerer Durchmesser 1 cm) mit einem dichten Teflondeckel L (Abb. 1). Die Absorptionseigenschaften der leeren Zelle für die Strahlung der beiden Strahlenquellen ist vernachlässigbar, so daß geringfügige Unterschiede der Dicke der Boden- bzw. Deckelwandung keinen Einfluß auf das Meßergebnis haben. Diese Zellen wurden für alle pulverisierten Proben und für die Messung der "Coated Particles" benutzt.

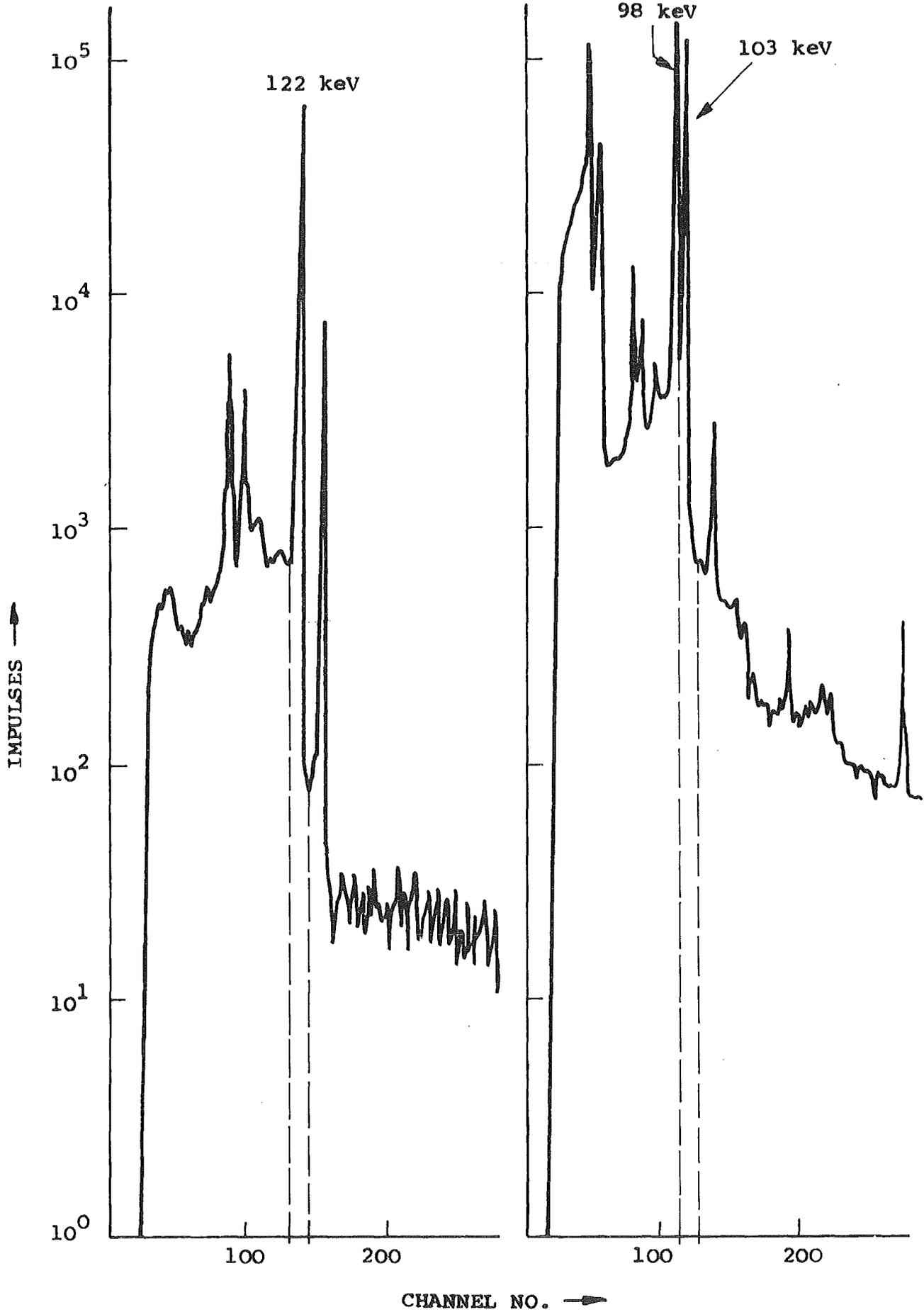


Abbildung 2: γ -Spektrum der Co-57-Quelle

Abbildung 3: γ -Spektrum der Gd-153-Quelle

Für die Probentypen C und D wurden keine Meßzellen benutzt. Stattdessen wurde eine geringfügig modifizierte Probenhalterung (Abb. 1.1) verwendet, die aus einem dünnwandigen drehbaren PVC-Halbzylinder M mit einer 1 cm-Bohrung in der Mitte besteht. Diese speziellen Probenhalterungen wurden horizontal in einen auf der Oberseite der unteren Bleiplatte angebrachten PVC-Rahmen geschoben. Wegen der unterschiedlichen Außendurchmesser der Probentypen C und D wurden zwei solcher Probenhalter benutzt.

3.3.3.4 Detektor

Ein Ge(Li)-Detektor von der Firma Getac Instruments, Mainz wurde für die Messungen verwendet, dessen Energieauflösung etwa 2 keV im 100 keV-Bereich betrug. Zur Impulshöhenanalyse wurde ein 4 K-Analysator der Fa. Wenzel, München benutzt. Der Detektor wurde mit einer 1 cm starken Bleiabschirmung versehen, um den Nachweis von Streustrahlung zu reduzieren.

3.3.3.5 Probenvorbereitung

Die für die Eichmessungen benötigten Standards wurden aus bekannten Mengen an U_3O_8 natürlicher Isotopenzusammensetzung und Graphitpulver hergestellt. Beide Komponenten wurden eingewogen und zur Erzielung einer möglichst homogenen Durchmischung eine halbe Stunde zusammengemahlen. Von jedem Standard wurden 5 g in eine Probenzelle eingewogen. Die Wägegenauigkeit war besser als 0,1 mg. Die Probenoberfläche in den Zellen wurden durch leichtes Klopfen weitgehend geglättet. Zur Untersuchung des Einflusses von Silizium wurden entsprechende synthetische Mischungen aus U_3O_8 und SiO_2 hergestellt.

Die Brennstoffproben wurden sowohl destruktiv als auch nicht-destruktiv untersucht. Für die destruktiven Messungen wurden die Proben in einem Wolframkarbidmörser zu einem feinen homogenen Pulver vermahlen und jeweils 5 g davon in einer Probenzelle eingewogen. Für die nichtdestruktiven Messungen wurden jeweils 5 g der "Coated Particles"-Proben A und B in Probenzellen eingewogen; die zu Hohlzylindern gepreßten "Coated Particles" (Proben C und D) wurden als ganze Proben verwendet.

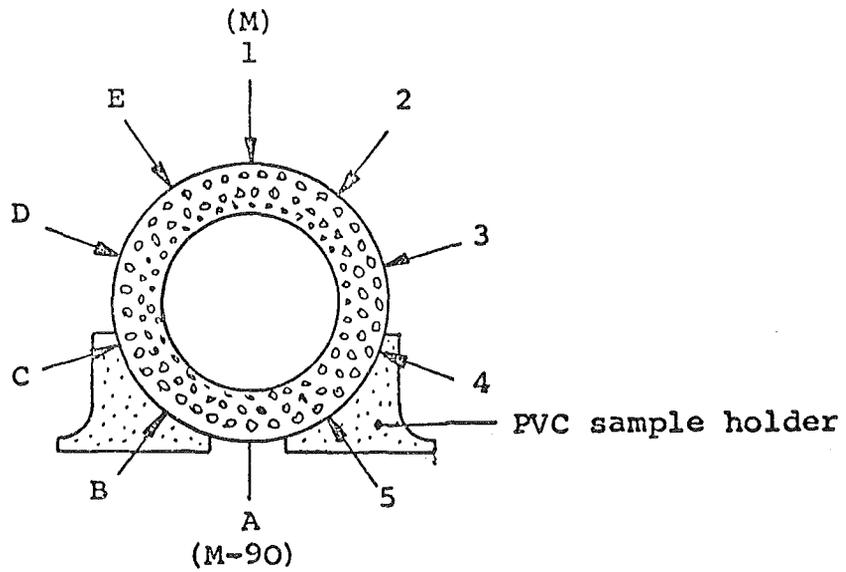


Abbildung 1.2: Meßpositionen für die Probentypen C und D
(Untersuchung der Reproduzierbarkeit)

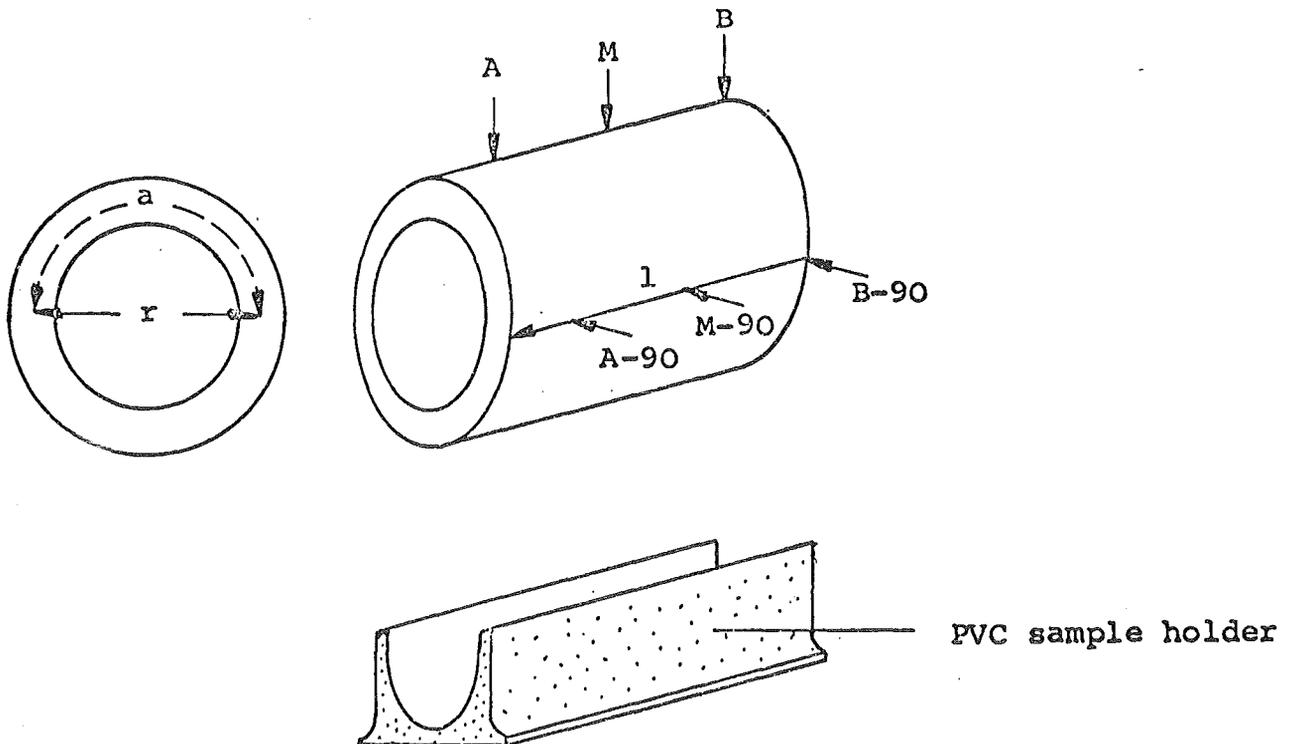


Abbildung 1.1: Meßpositionen für die Probentypen C und D
(Untersuchung der Probenhomogenität)

a = Bogenlänge bei halber Probendicke
 r = Radius bei halber Probendicke
 l = Probenlänge

3.3.3.6 Ausführung der Messungen

Die Intensitäten der 103 keV-Linie (Gd-153) und der 122 keV-Linie (Co-57) wurden zunächst mit einer leeren Meßzelle in der Probenhalterung jeweils 4 min lang zur Bestimmung von I_0 gemessen. Die I-Werte wurden für jede Probe abwechselnd mit jeder Quelle bestimmt. Die γ -Spektren wurden mit dem Wenzel-Analysator registriert und die jeweiligen Peakflächen durch Integration ermittelt, wobei stets der Untergrund subtrahiert wurde. Ein Beispiel für die Messung und Auswertung ist in Anhang I und II zusammengestellt. Für jede Probenserie, die an einem Tag gemessen wurde, wurden die I_0 -Werte sowohl zu Beginn als auch am Ende der Meßserie bestimmt und einige geeignete Standards mitgemessen, um Stabilitätsschwankungen von Detektor oder Analysator zu entdecken.

Die ungemahlten Proben Typ A und B wurden auf die gleiche Weise untersucht wie die gemahlten Proben. Im Fall der Proben Typ C und D wurde wie folgt verfahren: Die Probe wurde horizontal in die Mitte des entsprechenden Probenhalters gelegt (Position M) und der Probenhalter in die Meßposition geschoben. Nach Ausführung der Messungen wurde die Probe entlang ihres Umfangs um 90° gedreht (Position M-90) und die Messungen in dieser Position wiederholt. Um die Fläche der zylindrischen Probe abzuschätzen, wurde angenommen, daß es sich um zwei ebene Scheiben mit der Grundfläche A handelt, die gleich dem Produkt der Probenlänge l und der Bogenlänge a bei der halben Probendicke ist:

$$A = a \cdot l = \pi \cdot r \cdot l \text{ cm}^2 \text{ mit}$$

r = Probenradius bei der halben Probendicke

Eine Probe aus jeder Serie wurde außerdem noch zur Absorptionsmessung an den Randpositionen A und B bzw. in der entsprechenden Position A-90 und B-90 (nach Drehen um die Zylinderachse um 90°) verwendet, wie aus Abb. 1.1 ersichtlich ist, um das Ausmaß der Probeninhomogenität abschätzen zu können. Zur Untersuchung der Reproduzierbarkeit wurden die Absorptionsmessungen zehnmal in der Mittelposition an zehn verschiedenen Stellen über den gesamten Umfang vorgenommen (Abb. 1.2).

3.3.3.7 Verschiedenes

Zum Vergleich der Ergebnisse wurde der Urangehalt in den Proben auch potentiometrisch bestimmt /35,36,37/. Die hierfür benötigten Probenlösungen wurden auf zwei verschiedenen Wegen erhalten:

- a) durch Kochen einer bekannten Menge der pulverisierten Probe in konzentrierter HNO_3 am Rückfluß (6 Std.) und anschließender Filtration
- b) durch Verbrennen des Graphits bei 1000°C und Auflösung des Rückstands in HNO_3

Die Thorium enthaltende Probe wurde auch durch Röntgenfluoreszenzspektrometrie analysiert. An bekannten Mengen der genannten Materialien wurden auch die Massenabsorptionskoeffizienten von Uran, UO_2 , Graphit und SiO_2 bestimmt. Im Falle des Urans wurde hierfür eine 1 mm starke Uranfolie ($W_U/A = 0,187 \text{ g/cm}^2$) verwendet; im Falle des UO_2 wurde eine gepreßte UO_2 -Pille (Dicke 2 mm, Durchmesser 20 mm) in einem Aluminiumring hergestellt. Diese Pille wurde zur Messung an der Unterseite der oberen Kollimatorplatte angebracht. Im Falle von Graphit und SiO_2 wurden Pulver dieser Materialien für die Bestimmung der Massenabsorptionskoeffizienten verwendet. Die Ergebnisse dieser Untersuchungen sind in Tabelle 5 zusammengestellt.

3.3.4 Ergebnisse und Diskussion

3.3.4.1 Bestimmung des Faktors k

Da die Hauptmatrixkomponente der untersuchten HTR-Brennstoffe Graphit ist, wurden die Standards ebenfalls mit Graphit hergestellt. Zur Ermittlung des Matrixeffekts mußte der Faktor k bestimmt werden. Dazu wurden Absorptionsmessungen an einer reinen Graphitprobe ausgeführt und k nach Gleichung (14) berechnet (Tabelle 1). Als Mittelwert wurde $1,048 \pm 0,079$ ($\pm 8 \%$) gefunden. Der anhand der in der Literatur /39/ angegebenen Massenabsorptionskoeffizienten von Graphit berechnete k-Wert beträgt 1,042.

Tabelle 1: Experimentell gefundene Werte von k und μ für Graphit

W = Probengewicht (7 g)

A = Grundfläche der Probenzelle = 3,142 cm²

I₀ = Intensität leere Zelle

I = Intensität Zelle mit Probe

log(I ₀ /I) ₁ 103 KeV	log(I ₀ /I) ₂ 122 KeV	k	μ_{M1} (cm ² g ⁻¹) 103 KeV	μ_{M2} (cm ² g ⁻¹) 122 KeV
0,1209	0,1194	1,012	0,125	0,123
0,1230	0,1214	1,013	0,127	0,125
0,1288	0,1104	1,166	0,133	0,114
0,1236	0,1199	1,031	0,128	0,124
0,1223	0,1205	1,015	0,126	0,125
0,1170	0,1178	0,993	0,121	0,122
0,1817	0,1418	1,227	0,188	0,153
0,1245	0,1252	0,994	0,129	0,129
0,1212	0,1124	1,078	0,125	0,116
0,1222	0,1250	0,978	0,126	0,129
0,1161	0,1143	1,016	0,120	0,118
Mean Value		1,048 ±0,079	0,132 ±0,019	0,125 ±0,010

3.3.4.2 Bestimmung der Steigung α

Die Konstante α in Gleichung (13) wurde anhand von Absorptionsmessungen an Standards ermittelt, die zwischen 5 % und 60 % Uran in Graphit enthielten. Der Absorptionsfaktor

$$k \cdot \log (I_0/I)_2 - \log (I_0/I)_1$$

wurde sowohl gemessen als auch berechnet, die erhaltenen Ergebnisse sind zusammen mit den gefundenen Werten für in Tabelle 2 wiedergegeben. Der experimentell gefundene Mittelwert für α beträgt $0,866 \pm 0,029 \text{ g/cm}^2$ und ist in guter Übereinstimmung mit dem theoretischen Wert von $0,863 \text{ g/cm}^2$, der nach Gleichung (13) unter Verwendung von $k = 1,048$, $\mu_{U1} = 2,11 \text{ cm}^2/\text{g}$ und $\mu_{U2} = 4,56 \text{ cm}^2/\text{g}$ berechnet wurde. Die gefundene Streubreite von 3,3 % für α ist hauptsächlich auf die größeren Fehler (bis zu 8 %) im Konzentrationsbereich unter 15 % Uran zurückzuführen. Die Streubreite bei niederen Konzentrationen entspricht der bei der Bestimmung von k und wird durch die Unsicherheit der Absorptionsmessung bei schwacher Absorption verursacht. Darauf deutet auch die Tatsache hin, daß oberhalb einer Urankonzentration von 15 % die Streubreite auf etwa 1,2 % zurückgeht. Darüberhinaus bewirken ungleichmäßige Oberflächen der Pulverproben ebenfalls zusätzliche Schwankungen, vor allem wenn die Absorption - wie bei kleinen Urankonzentrationen - gering ist. Die α -Werte in Tabelle 2 wurden aus den Absorptionsdaten der einzelnen Standards berechnet, die an verschiedenen Tagen gemessen wurden. Dabei zeigte sich, daß dieser Wert Schwankungen aufwies, die möglicherweise durch Änderungen der Detektorempfindlichkeit und der Quellstärken hervorgerufen wurden. Es erschien daher empfehlenswert, Standards und Proben miteinander zu messen. Mit den so erhaltenen α -Werten ließ sich die Uranbestimmung mit einer Genauigkeit von 1-2 % ausführen.

Mit dem berechneten Wert von α ergibt sich für die Uranmenge in der Probe die Gleichung

$$W_U = 0,866 \cdot A \cdot (k \cdot \log (I_0/I)_2 - \log (I_0/I)_1) \quad (15)$$

Tabelle 2: Bestimmung des α -Wertes

W = Probengewicht: 5 g

A = Grundfläche der Probenzelle: 3,142 cm²

W/A = 1,5915 g/cm²

sample No.	%age of Uranium (%)	Weight of Uranium per unit area W_U/A (g cm ⁻²)	calculated $k \log(I_0/I)_2 - \log(I_0/I)_1$ (X)	measured $k \log(I_0-I)_2 - \log(I_0/I)_1$ (X)	W_U/A $\alpha = \frac{---}{X}$ g cm ⁻²	$\alpha = \frac{\%age}{X}$ (%)
1	4.87	0.0775	0.0898	0.0869	0.8918	56.04
2	7.48	0.1191	0.1380	0.1260	0.9452	59.37
3	10.00	0.1592	0.1845	0.1906	0.8352	52.49
4	12.44	0.1981	0.2296	0.2170	0.9129	57.35
5	14.96	0.2381	0.2759	0.2780	0.8564	53.82
6	17.51	0.2788	0.3231	0.3200	0.8712	54.73
7	19.99	0.3181	0.3686	0.3732	0.8532	53.56
8	22.50	0.3581	0.4150	0.4249	0.8427	52.96
9	24.99	0.3977	0.4609	0.4658	0.8537	53.64
10	27.55	0.4384	0.5081	0.5176	0.8469	53.22
11	30.00	0.4774	0.5538	0.5543	0.8612	54.12
12	35.04	0.5577	0.6463	0.6488	0.8595	54.01
13	40.00	0.6366	0.7378	0.7293	0.8728	54.85
14	44.93	0.7151	0.8287	0.8200	0.8720	54.79
15	49.99	0.7956	0.9220	0.9442	0.8426	52.94
16	54.85	0.8729	1.0117	1.0313	0.8464	53.18
17	59.99	0.9547	1.1064	1.1159	0.8555	53.75
Mean Value					\pm 0.8658 or 3.33 %	\pm 54.40 or 3.23 %

die zur Uranbestimmung sowohl nach der destruktiven als auch der nichtdestruktiven Methode verwendet werden kann. Wird der Urangehalt in Prozent ausgedrückt und die Probenmenge pro Flächeneinheit konstantgehalten, gilt folgende einfache Beziehung:

$$P_U = 54,4 \cdot (k \cdot \log(I_O/I)_2 - \log(I_O/I)_1) \quad (16)$$

mit P_U = prozentualer Gewichtsanteil an Uran

54,4 = spezieller α -Wert (Tabelle 2).

Diese Gleichung ist nur für die Berechnung des Urangehalts in Pulverproben brauchbar, da bei nichtdestruktiven Untersuchungen das Probengewicht pro Flächeneinheit i.a. unterschiedlich ist.

Dagegen kann Gleichung (8) in beiden Fällen angewandt werden. Für diesen Zweck wurden in Tabelle 3 der Gewichtsanteil des Urans in den Standards und die zugehörigen Werte für den Absorptionsfaktor

$$\frac{2,303}{W/A} \cdot (\log(I_O/I)_2 - \log(I_O/I)_1)$$

zusammengestellt und in Abb. 4 graphisch aufgetragen. Der Schnittpunkt liefert den Wert von k_M und die Steigung den Wert von K . Damit ist

$$k_M = \mu_{M2} - \mu_{M1} = -0,012 \text{ cm}^2/\text{g}$$

$$K = k_U - k_M = \frac{0,932}{37,1} \cdot 10^2 = 2,512 \text{ cm}^2/\text{g} \quad \text{und}$$

$$k_U = \mu_{U2} - \mu_{U1} = K + k_M = 2,50 \text{ cm}^2/\text{g}$$

Die mit gemessenen μ -Werten berechneten Werte für K , k_U und k_M betragen 2,457; 2,45 und 0,007 und stimmen somit gut mit denen aus Abb. 4 überein. Diese Eichkurve kann daher zur direkten Ablesung des Gewichtsanteils an Uran in der gemessenen Probe verwendet werden.

3.3.4.3 Proben

Das entwickelte Verfahren wurde zur Bestimmung des Urangehalts in BISO- und TRISO-HTR-Brennstoffproben angewandt.

Tabelle 3: Messung des Absorptionsfaktors

A = Grundfläche der Probenzelle = 3,142 cm²

W = Probengewicht = 5

W/A = 1,5915 g/cm²

Sample No.	Weight fraction of Uranium W_U	Absorption factor $\frac{2.303}{W/A} (\log(I_0/I)_2 - \log(I_0/I)_1)$
1	0.0487	0.111
2	0.0748	0.163
3	0.1000	0.250
4	0.1244	0.286
5	0.1496	0.360
6	0.1751	0.426
7	0.1999	0.497
8	0.2250	0.566
9	0.2499	0.620
10	0.2755	0.693
11	0.3000	0.743
12	0.3504	0.869
13	0.4000	0.973
14	0.4493	1.096
15	0.4999	1.263
16	0.5485	1.380
17	0.5999	1.494

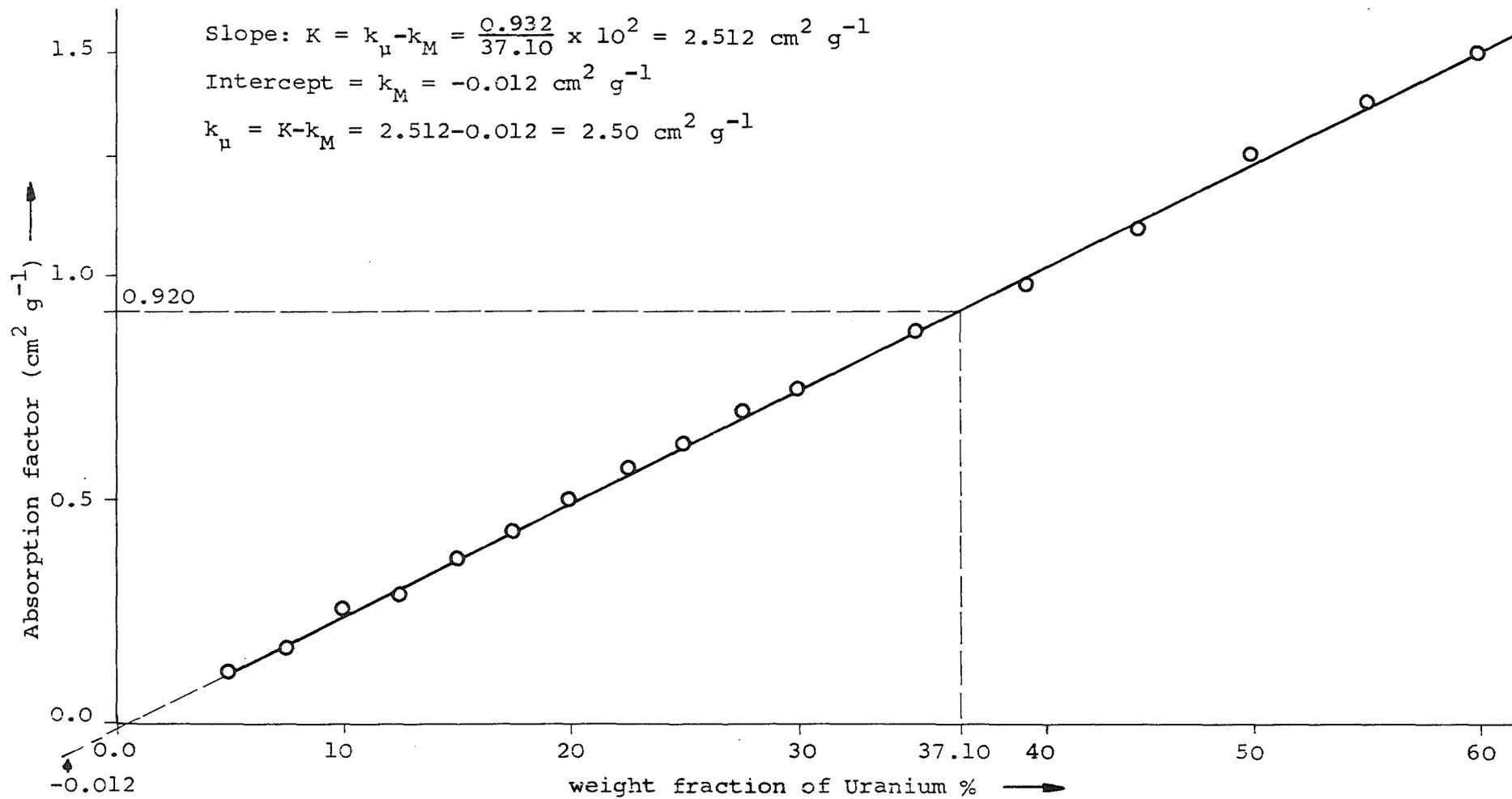


Abbildung 4: Abhängigkeit des Absorptionsfaktors von der Urankonzentration des Standards

Die Ergebnisse sind in Tabelle 4 wiedergegeben. Im Fall der BISO-Proben besteht die Matrix aus Graphit, während der TRISO-Proben auch einen kleinen Anteil an SiC enthalten.

Um den Einfluß des Siliziums zu untersuchen, wurden drei synthetische Mischungen aus U_3O_8 und SiO_2 nach den Standardverfahren gemessen. Für α wurde ein Mittelwert von $0,896 \text{ g/cm}^2$ bzw. $56,32 \%$ (bezogen auf Pu) gefunden, der um etwa 5% tiefer liegt als die entsprechenden Werte für die Graphitmatrix. Für k wurde anhand der gemessenen Massenabsorptionskoeffizienten ein Wert von $1,063$ gefunden ($1,048$ für Graphit). Daraus läßt sich schließen, daß kleine Anteile an SiO_2 in der Matrix nur vernachlässigbar geringe Effekte auf die Matrixkorrektur haben.

In Tabelle 4 sind die gefundenen Uranmengen für diese Proben zusammengestellt und die mit diesem Verfahren gefundenen Werte mit den Ergebnissen der naßchemischen Methode verglichen worden. Danach zeigen beide Verfahren i.a. gute Übereinstimmung. Bei Brennstofftyp A und B lag jeweils nur eine Probe vor, während vom Typ C und D jeweils 4 Proben ähnlicher Zusammensetzung zur Verfügung standen. Von den Typen C und D wurde jeweils nur eine Probe destruktiv analysiert, während in der A- und B-Probe der Urangehalt nach beiden Verfahren bestimmt wurde. Aufgrund von Dichteeffekten und Inhomogenitäten in den Brennstoffproben wurden auf nichtdestruktivem Wege dabei in allen Fällen niedrigere Ergebnisse als bei der destruktiven Analyse erhalten (bis zu Faktor 2 bei Probentypen C und D).

Die Kerne der Proben A und C bestehen aus mit Kohlenstoff verdünntem UO_2 , während sie im Fall der B- und D-Proben aus einer unverdünnten UO_2 - ThO_2 -Mischung bzw. aus reinem UO_2 zusammengesetzt sind. Die Teilchen mit verdünntem Uran im Kern scheinen nur einen geringen Abschirmeffekt aufzuweisen, so daß die Ergebnisse der destruktiven und nichtdestruktiven Methode nur geringfügig differieren. Im Falle der unverdünnten Teilchen scheint der Abschirmeffekt so stark zu werden, daß die Absorption geringer und damit weniger Uran gefunden wird. Werden die Teilchen jedoch zu einer homogenen Mischung vermahlen, so tritt dieser Effekt zurück und die

Tabelle 4: Bestimmung des Urangelhalts in HTR-Brennstoffproben

HTR Fuel Sample	Uranium Percentage (%)			Remarks
	Non-destructive	Destructive	wet chemical	
A	21.62 ±0.93	22.75 ±0.06	22.38 ±0.32	Th = 4.02%
B	6.95 ±0.28	12.04 ±0.24	8.74	
C	5.79 ±0.25	6.66 ±0.05	6.78 ±0.01	
D	12.26 ±0.85	28.66 ±0.14	28.83 ±0.03	

Übereinstimmung zwischen den beiden Analysenverfahren wird besser.

Im Fall der Probe B war die durch γ -Absorptiometrie gefundene Urankonzentration nach dem Zermahlen der Probe um etwa 3 % höher als bei der naßchemischen Methode. Ursache hierfür ist die Anwesenheit von Thorium, dessen K-Absorptionskante zwischen den beiden für die Absorptionsmessungen verwendeten γ -Energien liegt und dadurch einen höheren Urangehalt vortäuscht. Dieses mit Hilfe der Röntgenfluoreszenzspektrometrie analysierte Material enthielt 4,023 % Thorium. Nach der Literatur beträgt das Verhältnis der Massenabsorptionskoeffizienten von Thorium und Uran im interessierenden Energiebereich etwa 0,97. Damit errechnet sich μ_{Th} für $E_{\gamma} = 122 \text{ keV}$ zu $4,44 \text{ cm}^2/\text{g}$. Korrigiert man unter Verwendung von Gleichung (2) mit diesem Wert für den Thoriumgehalt in Probe B, so ergibt sich ein Urangehalt von 8,96 %, der mit dem durch Röntgenfluoreszenzanalyse gefundenen Wert von 8,74 % gut übereinstimmt.

Die Reproduzierbarkeit der Analysenmethoden wurde sowohl für die destruktiven wie die nichtdestruktiven Verfahren untersucht. Dazu wurden im Falle der γ -Absorptiometrie die Messungen mindestens fünfmal nach jeweiligem Schütteln der Probe wiederholt. Die gefundene Reproduzierbarkeit lag bei 2 % (destruktive Methode) bzw. 4 % für die nichtdestruktive Methode. Als Beispiel sind die Werte für Probe A in Tabelle 5 zusammengestellt. Wenn nicht erneut geschüttelt wurde, lag die Reproduzierbarkeit (gleiche Position) stets unterhalb 1 %. Im Falle der gepreßten "Coated Particles" ergab sich eine Reproduzierbarkeit von etwa 4 %, zurückzuführen auf die inhomogene Verteilung des Urans in der Probe. Bei Messungen längs des Probenumfangs (Positionen M und M-90) wurde in allen Fällen eine Reproduzierbarkeit von etwa 4 % gefunden. Dies wird aus den in Tabelle 5 wiedergegebenen Ergebnissen für die Probe D4 verständlich (Ziffern = M-Positionen, Buchstaben = M-90-Positionen). Eine bessere Reproduzierbarkeit ist ferner bei Verwendung stärkerer Strahlenquellen aufgrund der Verbesserung des Linien-Untergrund-Verhältnisses zu erwarten. Dies ist vor allem von Be-

Tabelle 5: Untersuchung der Reproduzierbarkeit der Uranbestimmung
in HTR-Brennstoffproben

HTR Fuel Sample			
Uranium ^A Percentage (%)		Uranium ^{D4} Percentage (%)	
Destructive	Non-destructive	Position	Non-destructive
23.81	19.72	1	12.44) → 12.43
22.82	21.20	A	12.42) → ± 0.01
22.82	20.83	2	12.73) → 12.71
22.80	22.51	B	12.69) → ± 0.02
22.69	21.21	3	12.46) → 12.41
22.16	21.75	C	12.37) → ± 0.05
		4	13.03) → 13.05
		D	13.07) → ± 0.02
		5	10.94) → 10.70
		E	10.46) → ± 0.24
Mean 22.85 value ± 0.53	21.20 ± 0.93		12.26 ± 0.85

deutung, wenn U-235-angereicherte Proben oder radioaktive Verunreinigungen mit γ -Linien im Bereich der Quellenenergien vorliegen. Andererseits ist - bei der Einfachheit dieses nichtdestruktiven Verfahrens - eine Reproduzierbarkeit unter 5 % als gut zu betrachten.

Große, durch Inhomogenitäten bedingte Effekte wurden bei der Analyse der pulverisierten Proben nach der potentiometrischen Methode beobachtet. Für dieses Verfahren wurden ca. 200 mg Probenmaterial benötigt, das zunächst zur Verbrennung des Kohlenstoffs bis 1000°C geglüht, dann mit konzentrierter HNO_3 ausgelaugt und schließlich gegen $\text{K}_2\text{Cr}_2\text{O}_7$ nach Reduktion mit Fe^{2+} -Ionen titriert wird. In elf derartigen Analysen wurde im Fall der pulverisierten D4-Probe eine relative Standardabweichung von 10 % erhalten. Der Effekt wird jedoch deutlich geringer, wenn größere Probenmengen (ca. 5 g) eingesetzt werden. Daraus kann geschlossen werden, daß die Probenin-homogenität auch nach Probenzerkleinerung und Zermahlen erhalten bleibt. Das ist aufgrund des großen Unterschieds der Dichten von Graphit und UO_2 verständlich, worauf z.T. bereits von den Herstellern hingewiesen wird. Die Inhomogenität des Probenmaterials ist somit die Hauptursache für die verhältnismäßig hohe Streuung der Reproduzierbarkeit der Uranbestimmung nach dieser Methode. Diese Schlußfolgerung wird durch die Tatsache unterstützt, daß die Reproduzierbarkeit in der gleichen Meßposition stets bei etwa 1 % liegt; ein Wert, der bei vollständig homogenisierten Proben voraussichtlich erreicht wird. Eine starke Stütze für diese Annahme bilden die Ergebnisse von Cristallini /33/, der bei der Bestimmung des Urans in Lösungen eine Standardabweichung von 0,71 % erhalten hat.

3.3.4.4 Bestimmung der Massenabsorptionskoeffizienten

Die Massenabsorptionskoeffizienten verschiedener Materialien wurden über Gleichung (1) aus den Absorptionsdaten ermittelt. Die gefundenen Werte von μ_M bei 103 keV und 122 keV sind in Tabelle 6 zusammen mit den Literaturwerten (soweit vorhanden) aufgeführt. Der Verlauf der Absorptionskoeffizienten für Uran

Tabelle 6: Bestimmung der Massenabsorptionskoeffizienten für verschiedene Materialien

Material	Measured μ_m at energy							
	103 KeV				122 KeV			
	this work	Reference			this work	Reference		
		33	39	40		33	39	40
Graphite	0.132	-	0.149	0.149	0.125	-	0.143	0.144
Uranium	2.11	1.71 ⁺	2.39	1.92	4.56	4.10	4.32	4.05
UO ₂	2.06	-	-	-	3.94	-	-	-
SiO ₂	0.134	-	-	-	0.126	-	-	-

⁺ μ -Wert für 100 keV (mittlere Energie für die beiden γ -Linien des Gd-153 bei 98 keV und 103 keV)

und Graphit in Abhängigkeit von der γ -Energie nach /39/ ist in Abb. 5 dargestellt. Im Falle des Urans wird gute Übereinstimmung mit den Literaturwerten beobachtet, während für Graphit niedrigere Werte ermittelt wurden.

3.3.4.5 Zusammenfassung

Die Absorptionskantenmethode, die bisher vor allem zur Uranbestimmung in Lösungen angewandt wurde, kann nach den Ergebnissen dieser Arbeit mit Erfolg zur Uranbestimmung in pulverisierten Proben im Konzentrationsbereich zwischen 5 und 60 % Uran eingesetzt werden. Bis 15 % Uran beträgt die relative Standardabweichung etwa 4 %; bei höheren Urangehalten wurden Werte zwischen 1 und 2 % gefunden. Matrixeffekte durch leichte Elemente sind gering und liegen innerhalb des Fehlers des Verfahrens. Unter den gewählten Bedingungen wird die Urananalyse durch Thorium gestört, dessen K-Absorptionskante zwischen den γ -Energien der Quellennuklide Gd-153 und Co-57 liegt. Das Verfahren wurde zur destruktiven und nichtdestruktiven Bestimmung des Urangehalts in HTR-Brennstoffproben eingesetzt. Die Ergebnisse stimmen innerhalb der Fehlergrenze mit den Werten der naßchemischen Analyse überein. Ferner wurden die Massenabsorptionskoeffizienten für verschiedene Materialien bestimmt und dabei gute Übereinstimmung mit der Literatur erhalten.

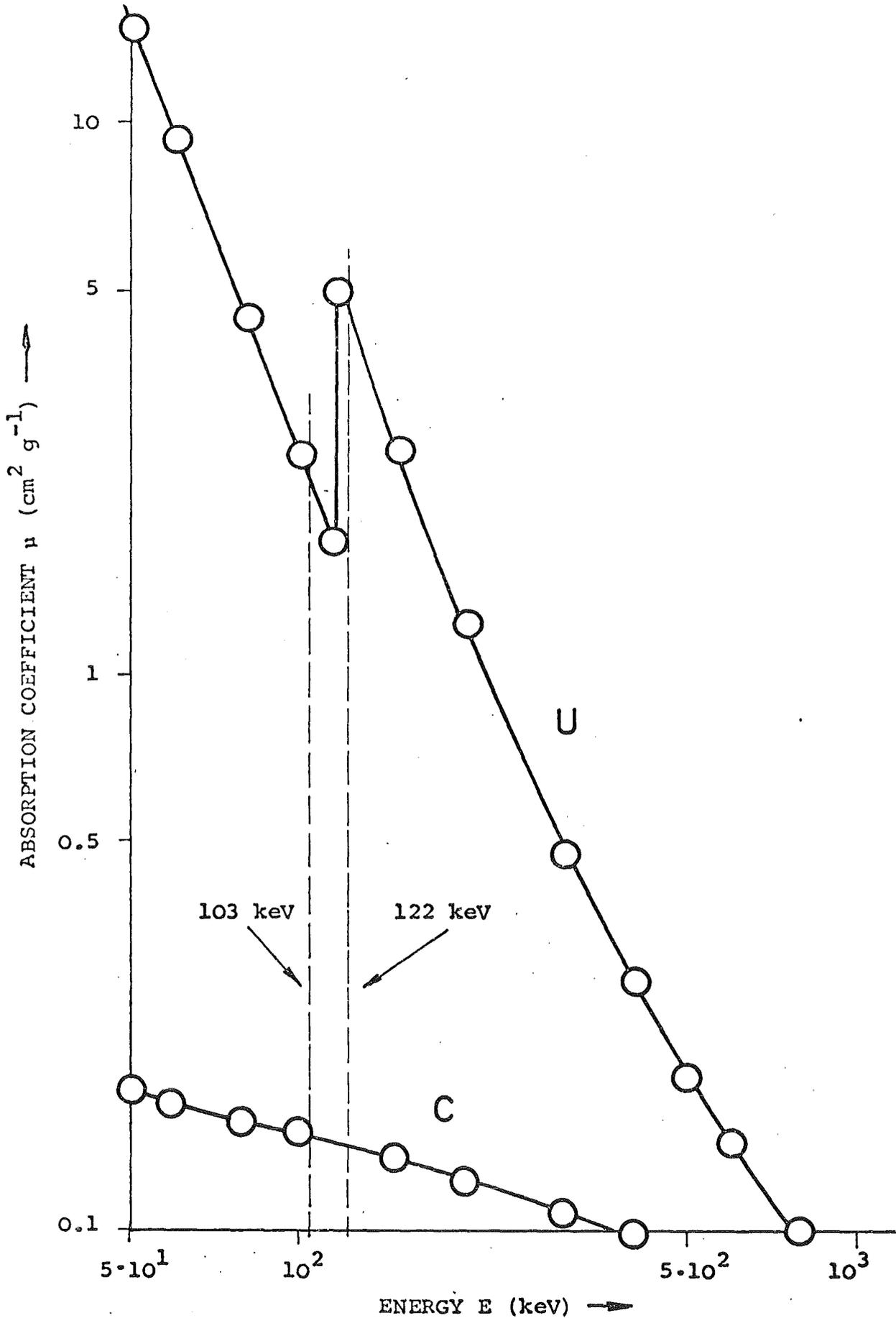


Abbildung 5: Verlauf des Absorptionskoeffizienten μ für Uran und Graphit in Abhängigkeit von der Photonenenergie (nach /39/).

Anhang I

Bestimmung des Korrekturfaktors k

A. Theoretisch

Strahlenquellen	Gd-153	Co-57
γ -Energie	103 keV	122 keV
Absorptionskoeffizient für Graphit	0,149 cm ² /g	0,143 cm ² /g
$k = \mu_{M1}/\mu_{M2}$		1,042

B. Experimentell

Strahlenquellen	Gd-153	Co-57
Intensität leere Kapsel (I_0)	8847 I/min	24060 I/min
Intensität graphitgefüllte Kapsel (I)	6604 I/min	18201 I/min
I_0/I	1,3396	1,3219
$\log (I_0/I)$	0,1270	0,1212
$k = \frac{\log (I_0/I)_1}{\log (I_0/I)_2}$		1,048

Anhang II

Bestimmung des γ -Wertes

A. Theoretisch

Strahlenquellen	Gd-153	Co-57
γ -Energie	103 keV	122 keV
Absorptionskoeffizient für Uran	2,11 cm ² /g	4,56 cm ² /g
Korrekturfaktor k	1,048 cm ² /g	
$k \cdot \mu_{U2} - \mu_{U1}$	2,6688 cm ² /g	
$\alpha = \frac{2,303}{k \cdot \mu_{U2} - \mu_{U1}}$	0,8629 g/cm ²	

B. Experimentell

Urangehalt des Standards	14,962 %	
Gewicht des Standards (W)	5,00 g	
Gewicht des Urans im Standard (W_U)	0,7481g	
Grundfläche der Proben- zelle (A)	3,142 cm ²	
Flächengewicht für Uran (W_U/A)	0,2381 g/cm ²	
Intensität leere Zelle (I_0)	14332 I/min	38206 I/min
Intensität Zelle mit Standard (I)	7741 I/min	11547 I/min
I_0/I	1,7386	3,3087
$\log (I_0/I)$	0,2402	0,4937
$k \cdot \log (I_0/I)_2$	0,5173	
Absorptionsfaktor	0,2771	
α	0,8592 g/cm ²	

Literatur

- /1/ Glocker R., Frohnmeyer W., Ann. Physik 76 (1925)
- /2/ Liebhafsky E.H., Pfeiffer H.G., Winslow E.H., Zemaný P.D., "X-Ray Absorption and Emission in Analytical Chemistry", Wiley, New York, (1960)
- /3/ Bertin E.P., "Principles and Practices of X-Ray Spectrometric Analysis", Plenum Press, London (1970)
- /4/ Liebhafsky E.H., Winslow E.H., Anal. Chem. 34, 282-R (1962)
- /5/ Campbell W.J., Brown J.D., Thatcher J.W., Anal. Chem. 38, 416-R (1966); 40, 364-R (1968)
- /6/ Bertin E.P., Longobuco R.J., Carver R.J., Anal. Chem. 36, 641 (1964)
- /7/ Davisson C.M., Evans R.D., Rev. Mod. Phy. 24, 79 (1952)
- /8/ Bartlet T.W., Anal. Chem. 23, 705 (1951)
- /9/ Miller D.J., Connolly R.W., USAEC Rep. HW-36788 (1955)
- /10/ Miller D.J., USAEC Rep. HW-39971 (1955)
- /11/ V.K. Rao et al., Report BARC-656 (1973)
- /12/ Thurnau D.H., Harold T.H., USAEC Rep. DP-249 (1957)
- /13/ Whittaker A., UKAEA Symposium on Instrumentation in Chemical Analysis, Canenhurst (1958)
- /14/ Woodman F.J., et al., Proc. 2nd UN Intn. Conf. on Peaceful Uses of Atomic Energy 28, 423 (1958)
- /15/ Broderick S.J., Whitmer J.C., Anal. Chem. 33, 1314 (1961)
- /16/ Whittaker A., et al., IAEA SM-68/15 (1964)
- /17/ Seymour F.D., UKAEA Report AERE-EL/R-2269 (1958)
- /18/ Fisher D.J., et al., USAEC Report ORNL-2662 (1958)

- /19/ Connolly R.W., et al., USAEC Report HW-54438 (1958)
- /20/ Dozer B.E., USAEC Rep. HW 60989 (1958)
- /21/ Stuttheit J.S., DPSPU 68-30-9 (1969)
- /22/ Jean Claude E., et al., CEA-N-1287 (1970)
- /23/ Yates P.B., May J.R., AAEC/TM-557 (1970)
- /24/ Brown F., et al., Proc. IAEA Symp. on Safeguard Techniques, Karlsruhe 2, 125 (1970)
- /25/ Bresesti A.M., Bresesti M., ESARDA Symp. on Practical Aspects of R and D in the field of Safeguards, Rome, (1974)
- /26/ Barieau R.W., Anal. Chem. 29, 348 (1957)
- /27/ Dunn H.W., Anal. Chem. 34, 116 (1962)
- /28/ Hakkila E.A., Waterbury G.R., Develop. Anal. Spectr. 2, 297 (1963)
- /29/ odd C., Kaup D.J., Anal. Chem. 36, 2325 (1964)
- /30/ Knapp K.I., et al., Advan. X-Ray. Analysis 7, 318 (1964)
- /31/ Cullen I.J., Anal. Chem. 37, 711 (1965)
- /32/ Gantner E., von Baeckmann A., Radiochemical Conference Sary Smokovec CSR (1968)
- /33/ Cristallini O., Gantner E., von Baeckmann A., KFK-1703 (1972)
- /34/ Misaelides P., Gantner E., von Baeckmann A., Privat communication
- /35/ UKAEA Report DP-360
- /36/ Lindner L., von Baeckmann A., KFK-701 (EUR 3714 d) (1967)
- /37/ Mainka E., Coerdts W., König W., KFK-1618 (1972)
- /38/ Rodden C.J., et al., IAEA SM-133/43 (1970)
- /39/ Siegbahn K., "Beta and Gamma Ray Spectroscopy", North Holland Ci, (1965)

/40/ Allen S.J.M., "Handbook of Chemistry and Physics",
Chemical Rubber Publishing Co. USA

Kapitel 4 SPALTSTOFFSCHUTZMASSNAHMEN

4.1 Entwicklung eines Informationssystems
 G. Bork

4.2 Planung der zukünftigen Arbeiten
 D. Sellinschegg

Kapitel 4: Spaltstoffschutzmaßnahmen

4.1 Entwicklung eines Informationssystems

Es wurde bereits in /1/ ausgeführt, daß eine der Voraussetzungen für die Entwicklung von Schutzsystemen in der Kenntnis der auf dem in- und ausländischen Markt erhältlichen technischen Sicherungssysteme und -komponenten besteht. Deshalb wurde vom Projekt bereits frühzeitig mit der Erfassung und Katalogisierung solcher Einrichtungen begonnen. Die Fa. DORNIER war mit der Fortführung dieser Arbeiten beauftragt worden und hat das Ergebnis ihrer Arbeiten inzwischen vorgelegt.

Ausgehend von einer Sammlung frei erhältlicher technischer Unterlagen wurden die Grundzüge eines Ordnungssystems entwickelt, das mit Hilfe von Haupt- und Nebenkarteien die rasche Beantwortung aller auftretenden Fragen ermöglichen soll. Dabei wurde sehr bald deutlich, daß die Sammlung rein technischer Daten ergänzt werden müßte durch eine Bewertung der Geräte hinsichtlich ihrer Eignung für Objektschutzzwecke und durch eine Sammlung und Katalogisierung von Gesetzen, Vorschriften und relevantem Schrifttum zur Spaltstoffsicherung. Diese drei Bereiche bilden nunmehr die Grundlage für das im folgenden etwas näher zu erläutern- de Informationssystem.

4.1.1 Sammlung technischer Unterlagen

Dieser Arbeitsbereich umfaßt die Teilaufgaben Beschaffung der Unterlagen und Entwicklung eines geeigneten Ordnungssystems mit Arbeits- und Hilfskarteien. Beide Teilaufgaben wurden begonnen, müssen jedoch kontinuierlich weitergeführt werden.

4.1.2 Bewertung der Geräte hinsichtlich ihrer Eignung für Objektschutzzwecke

Ziel der Bemühungen ist es, anhand geeignet auszuwählender, spezifischer Kriterien die Effektivität bestimmter Schutzmaßnahmen, bezogen auf vorgegebene Sicherungsaufgaben, in eine Rangfolge einzuordnen, so daß auch alternative Lösungen miteinander verglichen werden können.

Hierzu müssen Bewertungen in verschiedenen Ebenen nacheinander vorgenommen werden. Auf der untersten Ebene handelt es sich um den Vergleich technischer Komponenten gleicher Art, aber verschiedener Qualität jeweils untereinander.

Die Kriterien werden sich hier im wesentlichen an den technischen Einzeldaten orientieren und die Werteskala wird ein Punktsystem sein können.

Auf der nächst höheren Ebene werden die Kombinationen verschiedener Komponenten, also bereits technische Systeme, zu bewerten sein. Hier können als Kriterien z.B. die Empfindlichkeit, die Ausfallrate, die Fehlalarmrate etc. in Betracht gezogen werden, für die ebenfalls wieder geeignete Wertmaßstäbe zu entwickeln sind.

Die diesbezüglichen Arbeiten befinden sich noch im Anfangsstadium, entsprechende Erfahrungen müssen erst gesammelt werden.

4.1.3 Sammlung und Katalogisierung von Literatur zum Thema Spaltstoffschutz

Diese Sammlung soll umfassen: Allgemeine Literatur, Fachberichte, Gesetze, Internationale Vereinbarungen, Auflagen, Fallbeschreibungen, Richtlinien und ähnliches. Ein Ordnungsschema hierfür wurde ausgearbeitet.

4.1.4 Stichwortkartei für Fachbegriffe aus dem Sicherungswesen

Im Zuge der Beschäftigung mit Problemen des Sicherungswesens stießen die Bearbeiter auf viele Fachbegriffe, deren Bedeutung nicht eindeutig definiert war oder nur schwer geklärt werden konnte. Es wurde deshalb damit begonnen, die wichtigen Begriffe und die Erläuterungen hierzu zusammenzustellen. Auch diese Sammlung wird laufend zu ergänzen sein.

4.2 Planung der zukünftigen Arbeiten

Als Grundlage für die im Kernforschungszentrum Karlsruhe durchzuführenden Arbeiten zur Sicherung von kerntechnischen Einrichtungen gegen Angriffe Dritter wurden Vorstellungen für ein mögliches Arbeitsprogramm entwickelt, in dem einerseits systemanalytische und andererseits praktische Arbeiten vorgesehen sind. Die beiden Arbeitsrichtungen sollen zeitlich parallel, aber aufeinander abgestimmt, verfolgt werden.

Im einzelnen werden folgende Arbeiten vorgeschlagen:

Systemanalytische Arbeiten:

1. Für verschiedene Brennstoffzykluskonzepte soll eine Übersicht über Inventar und Bewegungen von Kernmaterialien zusammengestellt werden.
2. Für die derzeit vorhandenen kerntechnischen Einrichtungen soll ein Modellsicherungssystem ausgearbeitet werden, das die bekannten Regelungen als Grundlage berücksichtigt.
3. Zusammenstellung des von Kernmaterialien in verschiedenen physikalischen und chemischen Zustandsformen ausgehenden Gefahrenspektrums.
4. Abschätzung des Gefahrenspektrums, das von Kernmaterialien in kerntechnischen Einrichtungen ausgeht, unter Berücksichtigung der zum sicheren Betrieb erforderlichen Maßnahmen, jedoch ohne spezielle Objektschutzmaßnahmen.
5. Das Gewicht der einzelnen Einrichtungen für den Gesamtbrennstoffzyklus soll erfaßt und mit den von Kernmaterialien ausgehenden Gefahren zu einem erweiterten Gefahrenspektrum zusammengefaßt werden.
6. Für die bisherigen Einrichtungen soll untersucht werden, inwieweit die Gefahrenspektren durch ein Modellsicherungssystem, das den bekannten Regelungen entspricht, vermindert werden können.
7. In einer Modelluntersuchung soll für die einzelnen Konzepte des Brennstoffzyklus ein Objektschutzsystem ausgearbeitet werden.
8. Aufgrund der Erfahrungen aus der Praxis sollen die Konzepte neu überarbeitet werden.

Praktische Arbeiten:

1. Bestandsaufnahme von im Sicherungswesen gebräuchlichen Komponenten und Maßnahmen.
2. Auswahl geeigneter Sicherungskomponenten und -maßnahmen.
3. Experimente zur Erprobung von speziellen Sicherungskomponenten unter Labor- und Betriebsbedingungen.
4. Überprüfung von Meßverfahren auf ihre Einsetzbarkeit für Sicherungszwecke.
5. Untersuchung und Erprobung von Maßnahmen, die zu einer Reduzierung des von Kernmaterial ausgehenden Gefahrenspektrums führen.

Der Entwurf dieses Arbeitsprogramms ist mit dem BMFT abgestimmt worden.
Eine Abstimmung mit dem BMI soll im Jahr 1975 erreicht werden.

Kapitel 5 : EXPERIMENTELLE PRÜFUNG VON ÜBERWACHUNGSMASSNAHMEN

5.2 Interlaboratoriumstests

5.2.1 Interlaboratoriumstest IDA-72

W. Beyrich, E. Drosselmeyer

5.2.2 Test der Auswertemethoden für Alphaspektren "ASET-74"

W. Beyrich, A. Cricchio

5.2.3 UF_6 - Interlaboratoriumstest

W. Beyrich

Literaturverzeichnis für Kapitel 5

5.2 Interlaboratoriumstests

5.2.1 Interlaboratoriumstest IDA-72

(W. Beyrich und E. Drosselmeyer)

Eine Abschlußkonferenz der Teilnehmer fand am 12. - 15. Februar 1974 in Karlsruhe statt. Durch ca. 40. Analytiker waren nahezu alle 22 Laboratorien vertreten, die an dem Experiment teilgenommen hatten. Die im vorausgegangenen Jahresbericht (KFK 1974) zusammengestellten Auswertungsergebnisse wurden eingehend diskutiert. Neben der quantitativen Abschätzung aller bei der massenspektrometrischen Isotopenverdünnungsanalyse auftretenden Fehlerkomponenten gehören die Erkennung der Ursachen für mögliche Ausreißerwerte und der erfolgreiche Test der Verwendung eingedampfter Proben zu den für die praktische Spaltstoffflußkontrolle wichtigsten Ergebnissen. Die Analytiker der Laboratorien wiesen mit besonderem Nachdruck darauf hin, daß es ihnen die detaillierte Auswertung der Messungen und die umfassende Information ermöglichte, Fehlerquellen ihrer analytischen Verfahren zu erkennen und zu beseitigen. Das Experiment IDA-72 zeigte deutlich, daß durch derartige Vergleichsexperimente nicht nur der gegenwärtige Stand einer analytischen Technik objektiv ermittelt, sondern darüber hinaus auch verbessert werden kann. Die Fortführung derartiger Untersuchungen wurde daher von den Teilnehmern der Abschlußkonferenz dringend empfohlen.

Im Anschluß an die Tagung wurden noch einige vorgeschlagene Ergänzungen der Auswertung vorgenommen und der Abschlußbericht vorbereitet. Er wurde inzwischen fertiggestellt. //

Aufgrund dieser Arbeiten erfolgte eine Vortragseinladung zur "18. Conference of Analytical Chemistry on Nuclear Technology" im Oktober 1974 in Gatlinburg, Tennessee, USA. /2/

5.2.2 Test der Auswertemethoden für Alpha-Spektren "ASET-74"

(W. Beyrich und A. Cricchio)

Die im Rahmen des Experimentes IDA-72 durchgeführten α -spektrometrischen Bestimmungen des Isotops Pu-238 hatten zum Teil sehr unbefriedigende Ergebnisse gezeigt. Es wurde daher auf der Abschlußkonferenz des Experimentes IDA-72 in der Arbeitsgruppe "Alpha-Spektrometrie" vorgeschlagen, die Auswertung identischer Spektren nach den von den einzelnen Laboratorien verwendeten, unterschiedlichen Verfahren zu vergleichen.

Da sich die Schwierigkeiten offenbar aus der Korrektur der Überlagerung des Pu-238 Peaks durch den (Pu-239 + Pu-240) Peak ergeben, wurden am Europäischen Institut für Transurane Proben mit unterschiedlichen Pu-238-Gehalt hergestellt (0.2, 0.8 und 1.5 %) und sowohl durch Verdampfen als auch elektrolytisch auf Probenträger aufgebracht. Hierdurch wurden α -Spektren mit sehr unterschiedlichen Peaküberlagerungen erhalten.

Von jeder Messprobe wurden drei Wiederholungsspektren aufgenommen, vervielfältigt und den insgesamt 10 teilnehmenden Laboratorien zur Auswertung des α -Aktivitätsverhältnisses Pu-238/(Pu-239 + Pu-240) übersandt. Bis Jahresende lag nur ein Teil der Ergebnisse vor.

5.2.3 UF₆-Interlaboratoriumstest

(W. Beyrich)

In Zusammenhang mit der Erarbeitung von Kontrollmaßnahmen für GUZ-Anlagen wurde die Durchführung eines Interlaboratoriumstests

über die massenspektrometrische Bestimmung des Isotopenverhältnisses U-235/U-238 an UF_6 -Proben beschlossen. Die Durchführung dieses Experimentes erfolgt im Rahmen eines Vertrages mit der Firma Dornier System GmbH, Friedrichshafen.

In diesem Experiment sollen drei UF_6 -Proben mit einer ungefähren U-235-Konzentration von 0.3 %, 0.7 % und 3 % - entsprechend den "waste", "feed" und "product" Strömen - gegen jeweils einen durch Beimischung anderen Materials hergestellten "Standard" sehr ähnlicher Zusammensetzung gemessen werden. Der aus unmittelbar aufeinanderfolgenden, abwechselnden Messungen von Probe und Standard (je 6 x) bestehende Versuch soll dabei 6mal in Abständen von 4 bis 6 Wochen wiederholt werden, um auch eventuelle Langzeitänderungen der Meßergebnisse sichtbar zu machen.

Insgesamt 9 Laboratorien aus Deutschland, Großbritannien und den Benelux-Ländern erklärten ihr Interesse an einer Teilnahme. Da zumindest ein Labor mit mehreren Massenspektrometern arbeiten will, können voraussichtlich mindestens 10 unabhängige Datengruppen für die Auswertung erwartet werden.

Auf einem Treffen der Teilnehmer bei der Firma Dornier im Juli 1974 wurden die experimentellen Einzelheiten der Durchführung besprochen. Dabei erklärte sich das ZBKM (Euratom), Geel, Belgien, bereit, an allen Proben und "Standards" Präzisionsbestimmungen der Isotopenzusammensetzung durchzuführen mit dem Ziel, nach Abschluß des Experimentes diese Materialien als Arbeitsstandards definierter Zusammensetzung den interessierten Laboratorien zur Verfügung zu stellen. Die hierdurch notwendig gewordene Vergrößerung des Materialbedarfes führte aus administrativen Gründen zu einer mehrmonatigen Verzögerung bei der Vorbereitung und Verteilung der Proben. Diese wurde jedoch wegen der ganz wesentlichen Steigerung der Bedeutung des Experimentes durch diese Erweiterung in Kauf genommen.

Am Ende des Berichtszeitraumes stand die Verteilung der Proben mit 0.3 % und 0.7 % U 235 unmittelbar bevor.

Referenzen:

/1/ W. Beyrich and E. Drosselmeyer:

"The Interlaboratory Experiment IDA-72 in Mass Spectrometric Isotope Dilution Analysis"
KFK 1905/I und II (1975)

/2/ W. Beyrich and E. Drosselmeyer and A. v. Baeckmann:

"The Role of Interlaboratory Comparison Analysis for Nuclear Safeguards Delineated by the Results of the Experiments JEX-70 and IDA-72"

Vortrag gehalten auf der

"Eighteenth Conference on Analytical Chemistry in Nuclear Technology"

Gatlinburg, Tennessee, USA, October 22-24, 1974

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

- 6.1 Leichtwasserreaktoren
 (Chr. Brückner)

- 6.2 Kernkraftwerk Kalkar (SNR 300)
 (Chr. Brückner)

- 6.3 Überwachungsmaßnahmen für Zentrifugenanlagen
 (W. Bahm)

- 6.4 WAK
 (W. Rust, Chr. Brückner)

- 6.5 NUKEM
 (U. Bicking, Chr. Brückner)

- 6.6 Überwachungsmaßnahmen für Kernforschungszentren
 und Hochtemperatur-Reaktoranlagen
 (H. Bölker, U. Kotte, G. Stein)



Kapitel 6: Arbeiten über Überwachungsmaßnahmen an kerntechnischen Anlagen nach dem Verifikationsabkommen zum NV-Vertrag

Die Arbeiten gehen auf den Auftrag des BMFT zurück, in engem Zusammenwirken mit Betreibern kerntechnischer Anlagen die Probleme zu untersuchen, die bei der Kernmaterialüberwachung in diesen Anlagen auftreten, um so zu einer reibungslosen Einführung der Überwachung nach dem Verifikationsabkommen zum NV-Vertrag beizutragen. Sie wurden im Jahre 1972 begonnen und 1974 fortgesetzt. Ein Teil der Arbeiten kann sich an von der IAEO und EURATOM vorgeschlagenen und in Entwürfen der Anlagespezifischen Anhänge zu den Ergänzenden Abmachungen zum NV-Vertrag niedergelegten Konzepten der Überwachungsdurchführung orientieren: Die Entwürfe wurden für drei Musteranlagen vorgelegt: Das Kernkraftwerk Stade (KKS), die Brennelement-Fabrikationsanlage NUKEM und die Wiederaufarbeitungsanlage WAK. Weitere Arbeiten betrafen die Zentrifugenanlage Almelo und das Kernkraftwerk Kalkar (SNR 300).

6.1 Leichtwasserreaktoren

Bei den gemeinsam mit dem ad-hoc-Arbeitskreis "Spaltstoffüberwachung" der Vereinigung Deutscher Elektrizitätswerke - VDEW - fortgeführten Arbeiten über Fragen der Kernmaterialüberwachung an Leichtwasserreaktoren lag der Schwerpunkt bei der Untersuchung von Überwachungsmodellen mit Anwendung von Versiegelungs- und Beobachtungsmaßnahmen für Druckwasserreaktoren. Es wurden in diesem Zusammenhang Studien erarbeitet:

- ein Überwachungsmodell zur allgemeinen Anwendung an Druckwasserreaktoren
- ein modifiziertes Modell zur Anwendung an der Modellanlage Stade unter Berücksichtigung der dort gegebenen Besonderheiten.

Die auf das KKS bezogene Studie entsprang den Verhandlungen mit EURATOM über den Anlagespezifischen Anhang für diese Anlage. Diese Verhandlungen waren Ende 1974 noch nicht abgeschlossen.

Mit diesen Studien konnte der gemeinsam erarbeitete "Bericht zur Kernmaterialüberwachung in Kernkraftwerken mit Leistungsreaktoren nach dem Verifikationsabkommen zum Nichtverbreitungsvertrag" in seiner ersten Fassung im wesentlichen abgeschlossen werden.

6.1.1 Überwachungsmodell I ("Modell Stade") für einen Druckwasserreaktor

Es wird vorausgesetzt, daß - wie es am KKS der Fall ist - die Brennelementbündel des Druckwasserreaktors am Fußstück demontierbar ausgeführt sind, während das Kopfstück nicht abgetrennt werden kann. Am Kopfstück sollen die Bündel schwerfälschbare Kennzeichen besitzen, z.B. die von EURATOM entwickelten Identifikationsmarken mit Schwermetalleinschlüssen, die durch Ultraschallabtastung zu identifizieren sind. Zur Kennzeichnung der Integrität sollen die frischen Bündel Siegel am Fußstück, z.B. Papiersiegel, Drahtsiegel oder das EURATOM-DWR-Fußstück-Siegel erhalten können. Das betroffene Überwachungsmodell vermeidet, einem Wunsch des betroffenen Betreibers entsprechend, vorläufig Beobachtungsmaßnahmen mit Hilfe von Kameras. Es sind jedoch weitere Überlegungen vorgesehen mit dem Ziel, durch einen vom Betreiber akzeptierbaren Kameraeinsatz zur Reduzierung des Überwachungsaufwandes zu gelangen.

Das erarbeitete Überwachungsmodell sieht vor, daß die frischen Brennelementbündel beim Hersteller mit den Identifikationsmarken versehen und versiegelt werden ¹⁾. In die Reaktoranlage eingeliefert, sind sie im Trockenlager anhand von Bündelnummer und Siegel überprüfbar.

Beim Umsetzen der Bündel in das Naßlager, das der Überwachungsbehörde angezeigt wird, sodaß Inspektoren anwesend sein können, werden die Fußstück-siegel entfernt. Die Inspektoren führen während der Umsetzzeit stichprobenweise visuelle Inspektionen durch mit dem Ziel, die Nichtabzweigung aus unversiegelten Bündeln zu verifizieren ¹⁾. Die Häufigkeit dieser Inspektionen orientiert sich daran, daß für eine Demontage und Remontage eines Bündels rund 2 Tage erforderlich wären.

¹⁾ Die Versiegelungs- und Beobachtungsmaßnahme an dem frischen Kernmaterial entfällt, wenn mit der Überwachungsbehörde eine Einigung darüber erzielt werden kann, daß schwach angereicherter Kernbrennstoff wegen seines geringen strategischen Wertes solchen Maßnahmen nicht unterworfen zu werden braucht und kein anderes Material verwendet wird.

Im geschlossenen Reaktor ist der Brennstoff indirekt überwacht durch

- die Versiegelung des Trennschützes zwischen Naßlager und Reaktorgrube
- die Versiegelung der Traverse für das obere Kerngerüst an einer Aufhängeöse, sodaß die Traverse ohne Siegelverletzung nicht zum Heben des Kerngerüstes verwendet werden kann.

Vor Beginn der Reaktorumladung werden diese Siegel von Inspektoren geprüft und entfernt. Nach der Umladung führen die Inspektoren die Wiederversiegelung durch.

In der Zeit zwischen Entsiegelung und Wiederversiegelung von Schütz und Traverse führen die Inspektoren stichprobenweise eine visuelle Überwachung der Brennstoffumladung durch.

Die ins Naßlager umgesetzten bestrahlten Brennelementbündel können anhand der Identifikationsmarken inspiziert werden. Ihre Integrität wird indirekt durch Versiegelung der Drehvorrichtung im Naßlager sichergestellt, in der Weise, daß ohne Verletzung dieses Siegels eine Drehung der Bündel und damit eine Demontage nicht möglich ist.

Bei Brennelementbündelreparaturen erhalten die Behörden Gelegenheit, vor Beginn die Drehvorrichtung zu entsiegeln; nach der Reparatur können sie sie wieder versiegeln. Während der Reparatur können die Behörden visuelle Inspektionen durchführen.

6.1.2 Überwachungsmodell II ("allgemeines Modell") für einen Druckwasserreaktor

Das Modell geht davon aus, daß die Brennelementbündel des Reaktors am Kopfstück und am Fußstück demontierbar ausgeführt sind. An den Kopfstücken sollen die Bündel mit Siegeln, z.B. einem von EURATOM entwickelten DWR-Kopfstück-Siegel versehen werden, die auch im Naßlager gesetzt, geprüft und gebrochen werden können. Frische Brennelementbündel sollen auch am Fußstück Siegel erhalten, z.B. Papiersiegel, Drahtsiegel oder das EURATOM-DWR-Fußstück-Siegel. Der Einsatz von Kameras zur Durchführung von Beobachtungsmaßnahmen wird vorgesehen.

Das Überwachungsmodell kombiniert Elemente aus den Überwachungsmodellen für einen Siedewasserreaktor (vgl. Jahresbericht 1973 des Projekts Spaltstoffflußkontrolle, KFK 1980, S. 6-4 f.) und einen Druckwasserreaktor "Modell Stade" (vgl. Abs. 6.1.1):

Die frischen Brennelementbündel erhalten Kopfstück- und Fußstücksiegel beim Hersteller²⁾. Nach dem Transport in die Reaktoranlage können sie im Trockenlager mit Hilfe der Siegel überprüft werden.

Vor dem Einbringen der Bündel ins Naßlager werden die Fußstücksiegel entfernt. Der Betreiber informiert die Behörde hierüber rechtzeitig, sodaß deren Inspektoren anwesend sein können. Während des Umsetzens führen die Inspektoren stichprobenweise visuelle Inspektionen durch, um Abzweigungen aus Bündeln rechtzeitig aufdecken zu können²⁾. Die Möglichkeit einer unentdeckten Abzweigung aus Bündeln, die bereits ins Naßlager umgesetzt sind, wird indirekt durch eine Versiegelung der Drehvorrichtung im Naßlager ausgeschlossen.

Vor dem Umsetzen der Bündel aus dem Naßlager in den Reaktor werden die Kopfstücksiegel abgenommen. Auch dabei ist die Überwachungsbehörde rechtzeitig zu informieren, so daß ihre Inspektoren anwesend sein können.

Die Überwachung der Brennelementbündel im geschlossenen Reaktor geschieht indirekt durch Versiegelung eines der Abdeckriegel der Reaktorgrube. Vor einer Brennstoffumladung erhalten die Inspektoren der Überwachungsbehörde aufgrund einer Meldung des Betreibers Gelegenheit, das Siegel zu prüfen und zu brechen.

²⁾ Die Versiegelungs- und Beobachtungsmaßnahmen an dem frischen Kernmaterial entfallen, wenn mit den Überwachungsbehörden Übereinstimmung dahingehend erzielt werden kann, daß an schwach angereichertem Kernmaterial wegen seines geringen strategischen Wertes keine solchen Maßnahmen erforderlich sind, und kein anderes Material verwendet wird. Die Kameraüberwachung während der Umladung braucht dann nur noch auf die Aufdeckung von Abzweigungen bestrahlten Materials in Transportbehältern ausgerichtet zu werden.

Vom Entsiegeln des Abdeckriegels an werden eine oder mehrere Kameras zur optischen Überwachung eingesetzt. Sie müssen die Oberfläche der Abdeckriegel bzw. der wassergefüllten Reaktorgrube und die Wasseroberfläche des Naßlagers erfassen. Ihre Aufgabe ist, Handhabungen von frischen und bestrahlten Brennelementbündeln zu dokumentieren, die eine Abzweigung des Materials bedeuten könnten, zum Beispiel das Herausheben eines Brennelementbündels aus Reaktorgrube oder Naßlager oder das Einbringen und Herausheben eines Abschirmbehälters in bzw. aus dem Naßlager²⁾. Die Aufnahme­frequenz für die Kamera(s) ist in Abhängigkeit von dem für eine Abzweigung notwendigen Zeitaufwand festzulegen.

Nach dem Schließen des Reaktors führen die Inspektoren die Wiederversiegelung des Abdeckriegels durch und nehmen die Kamera(s) außer Betrieb. Alternativ zur Abdeckriegelversiegelung kann die optische Überwachung der Abdeckriegel mit der Kamera fortgeführt werden. Bei der Anpassung der Bildfrequenz an den zeitlichen Abzweigungsaufwand würde dies keine wesentliche Erhöhung der notwendigen Bildanzahl für die Überwachung bedeuten.

Die ins Naßlager umgesetzten bestrahlten Brennelementbündel können nach der Umladung durch die Inspektoren wieder an den Kopfstücken versiegelt werden. Die Möglichkeit ihrer unentdeckbaren Demontage durch Abnahme der Fußstücke wird indirekt durch die Versiegelung der Drehvorrichtung im Naßlager ausgeschlossen. Die Überwachung von Brennelementbündelreparaturen erfolgt, wie für das "Modell Stade" beschrieben (vgl. Abs. 6.1.1).

6.2 Kernkraftwerk Kalkar (SNR 300)

In den Jahren 1970 bis 1972 führte die Firma INTERATOM im Auftrag des Projekts Spaltstoffflußkontrolle Studienarbeiten zur Kernmaterialüberwachung am SNR 300 durch. Es wurden zwei Konzepte entwickelt: ein dynamisches Überwachungskonzept mit Kontrolle der Bewegungen des Kernmaterials und ein statisches Konzept, bei dem der Schwerpunkt auf Inventurkontrollen, die in Zeitabständen erfolgen, lag. Die Diskussion der Ergebnisse dieser Studienarbeiten mit dem Betreiber des SNR 300 einerseits und der Überwachungsbehörde andererseits führte zur

²⁾ siehe Seite 6-4

Ausarbeitung des im folgenden dargestellten Kontrollkonzepts, die gemeinsam vom Hersteller (INB), Betreiber (SBK) und dem Projekt Spaltstoffflußkontrolle und in Kontakt mit der Überwachungsbehörde EURATOM vorgenommen wurde. Das Konzept basiert auf den INTERATOM-Studien, es kombiniert Elemente des dynamischen und des statischen Überwachungsmodells. Es berücksichtigt die Besonderheiten der Auslegung von Reaktoranlage und Komponenten zur Optimierung des Kontrollaufwandes.

6.2.1 Überwachungskonzept für den SNR 300

Bei der Konzipierung der Überwachungsmaßnahmen am schnellen Brutreaktor SNR 300 ist als besonders wichtig in Rechnung zu stellen, daß an ihm unbestrahlte Brennelemente vorhanden sind und gehandhabt werden, die mehrere Kilogramm Plutonium enthalten. Generell läßt sich das in der Reaktoranlage vorhandene Kernmaterial folgendermaßen klassifizieren:

1. Die eben erwähnten frischen Brennelemente, mit mehreren Kilogramm Plutonium, die ein besonderes Ziel der Überwachungsmaßnahmen sein müssen.
2. Bestrahlte Brennelemente, die mehrere Kilogramm Plutonium enthalten, aber wegen ihrer Aktivität nicht freizügig handhabbar sind.
3. Bestrahlte Brutelemente mit einem relativ geringen Plutoniumgehalt, die wegen der Aktivität ebenfalls nicht ohne weiteres gehandhabt werden können.
4. Frische Brutelemente, die nur abgereichertes Uran enthalten.

Es ist eine zweite Besonderheit des Reaktors, daß Brenn- und Brutelemente aus Stabbündeln bestehen, die so in Hüllkästen eingeschlossen sind, daß ohne deren Zerstörung, die die Elemente unbrauchbar machen würde und irreversibel wäre, eine Abzweigung von Kernmaterial aus den Elementen nicht möglich ist. Eine Demontage der Elemente, etwa zum Zweck ihrer Reparatur, ist nicht vorgesehen und in der Reaktoranlage nicht möglich. Die gesamte Kernmaterialhandhabung in der Anlage geschieht als Handhabung ganzer Elemente, die durch Nummern gekennzeichnet sind.

Die dritte Eigenart betrifft die Kernmaterialhandhabung in der Reaktoranlage. Die Elemente könnten nur im Verlauf des Antransports und solange sie im Vorratslager (Trockenlager) untergebracht sind, relativ freizügig gehandhabt werden.

Mit dem anschließenden Umsetzen kommen sie in einen Bereich, in dem sie unter Natrium oder unter Schutzgas stehen und aus dem sie nur mit zeitaufwendigen Manipulationen ausgeschleust werden können. Nicht betriebsmäßiges Ausbringen aus diesem Bereich, also Abzweigungen, sind weitgehend ausgeschlossen. Der Natrium- und Schutzgasbereich stellt so ein fast dichtes natürliches Containment dar. Es ist wichtig festzuhalten, daß die Elemente, sobald sie sich in diesem Bereich befinden, allerdings auch nicht mehr ohne sehr erheblichen Aufwand anhand ihrer Nummer oder anderer Zeichen individuell identifiziert werden können.

Die Kernmaterialhandhabung wird im einzelnen in der folgenden Weise durchgeführt:

Der SNR wird im Normalbetrieb etwa einmal pro Jahr umgeladen. Der Antransport der Kernelemente, das sind neben den Brenn- und Brutelementen noch Absorber- und Reflektorelemente, die ähnlich dimensioniert sind, beginnt im allgemeinen mehrere Monate vor der Umladung. Die Elemente werden in ihren Transportbehältern in das Reaktorgebäude gebracht und ins Vorratslager eingesetzt.

Vor dem Umladen des Reaktors kommen die Elemente ins Natriumlager. Mit dem Hilfszug der Wechselmaschine werden sie in die Übergabestation gebracht, dort unter Inertgas gesetzt und schließlich mit der Wechselmaschine unter Inertgas ins Natriumlager transportiert. Dort stehen sie in Büchsen unter flüssigem Natrium. Bei der Umladung des Reaktors werden sie mit den Büchsen in den Reaktortank transportiert, entnommen und schließlich auf Coreposition gesetzt.

Die abgebrannten Kernelemente gelangen umgekehrt in den Büchsen ins Natriumlager. Von dort können sie nach einer Abklingzeit von mindestens

8 Monaten mit der Wechselmaschine entnommen, unter Schutzgas in der Be- und Entladestation aus den Büchsen gezogen und in Transportbehälter gesetzt werden, in denen sie die Reaktoranlage verlassen. Es ist auch vorgesehen, Kernelemente nicht natriumbenetzt zu lagern und abzutransportieren. Dazu werden sie nach der Abklingzeit in der Waschzelle gewaschen und im Gaslager unter Inertgas ebenfalls zwischengelagert.

Für Vermessung und Kontrolle können frische und bestrahlte Kernelemente nicht natriumbenetzt, aber auch natriumbenetzt, in eine Beobachtungszelle gebracht werden. Sie stehen dort unter Inertgas.

Generell gilt, daß die Kernelemente zwischen Übergabestation, Na-Lager, Gaslager, Reaktor, Waschzelle und Beobachtungszelle nur mit der Wechselmaschine transferiert werden können. Ihre Entnahme aus diesen Standorten, in denen sie immer unter flüssigem Natrium oder unter Schutzgas stehen, mit anderen Handhabungsgeräten als der Wechselmaschine würde die Bereitstellung besonderer Flaschen und einen besonderen Zeitaufwand erfordern.

Das Überwachungskonzept für den SNR 300 verwendet die folgenden Elemente:

- Kennzeichnung der frischen Brennelemente beim Hersteller mit temporären verfälschungssicheren Kennzeichen, die in der Reaktoranlage vor Einsetzen unter Natrium entfernt werden
- Versiegeln von besetzten Positionen des Vorratslagers
- Automatische Aufzeichnung der Handhabung der Kernelemente mit der Wechselmaschine

für frische Brenn- und bestrahlte Brenn- und Brutelemente
mit Registrierung

ihrer Art (qualitative Unterscheidung mittels Eigenstrahlungsmessung)

der Aufnahmeposition

der Absetzposition

des Datums und der Zeit

- Kameraüberwachung des Handhabungsbereiches.

Die frischen Brennelemente werden mit ihren beim Hersteller angebrachten verfälschungssicheren temporären Kennzeichen ins Vorratslager eingesetzt. Sie stehen dort zu Bestandsprüfungen durch Inspektoren anhand der Kennzeichen bereit. Die Inspektoren werden jedoch bei der ersten derartigen Prüfung die Kennzeichen abnehmen und die Lagerpositionen versiegeln, um folgende Inventarkontrollen mit der weniger zeitaufwendigen Prüfung der Positionssiegel vornehmen zu können. Mit dieser Maßnahme wird der Inspektionsaufwand für die Bestandsprüfungen, die entsprechend der strategischen Bedeutung des Kernmaterialgehalts frischer Brennelemente mit relativ hoher Frequenz durchzuführen wären, wesentlich reduziert.

Mit dem Übersetzen der frischen Kernelemente in das Natriumlager, über die Übergabestation, gelangen sie in den Natrium-Schutzgas-Bereich, in dem sie nur unter automatischer Aufzeichnung der Art des Elementes und des Transfers bewegt werden können. Bereits die Bewegung aus der Übergabestation in das Natriumlager wird in dieser Weise erfaßt.

Die Abgabe von Kernelementen aus dem Natrium-Schutzgas-Bereich zum Zweck ihres Abtransports wird ebenfalls erfaßt. Die Aufzeichnungen erlauben den Inspektoren jederzeit eine Bilanzierung nach Stückzahl der im Natrium-Schutzgas-Bereich befindlichen Kernelemente für die drei unterschiedenen Arten und den Vergleich mit Eingang und Ausgang aus den Bereichsgrenzen.

Die Kameraüberwachung des Handhabungsbereiches erlaubt der Überwachungsbehörde, nachträglich zu verifizieren, daß keine Geräte, mit denen eine nichtbetriebsübliche und damit potentiell unerlaubte Entfernung von Kernelementen aus dem Natrium-Schutzgas-Bereich möglich wäre, verwendet wurden.

6.3 Untersuchung zur Problematik der Überwachung von Gas-Ultra-Zentrifugen-Anlagen (GUZ)

Die im Rahmen des "Integralen Experimentes, Phase I" durchgeführten Arbeiten wurden mit dem "Integralen Experiment, Phase II" fortgeführt. Mit der Durchführung der im folgenden beschriebenen Arbeiten wurden die Firmen URANIT und DORNIER beauftragt. Das Projekt war beteiligt an der Problemdefinition, der Festlegung der Arbeitsrichtung und des -umfangs, sowie an der Lösung grundsätzlicher Probleme.

Im einzelnen wurden die folgenden Arbeitspakete behandelt:

6.2.1. Untersuchungen zur Erfassung von Abfallströmen

Das Fließschema der GUZ-Anlage UTA 25 in Almelo/Holland ist in Abb.1 zusammengestellt. Neben den Produktionsströmen treten auch Abfallströme auf. Das darin enthaltene spaltbare Material liegt zwar in einer solchen Verdünnung bzw. Verunreinigung vor, daß es für kerntechnische Zwecke praktisch nicht mehr verwendbar ist, die Erfassung dieses Materials ist jedoch deshalb von Bedeutung, weil es bei einer Inventur, je nach dem, wie genau es erfaßt wird, einen mehr oder weniger großen Beitrag zum MUF (Material Unaccounted For) liefert.

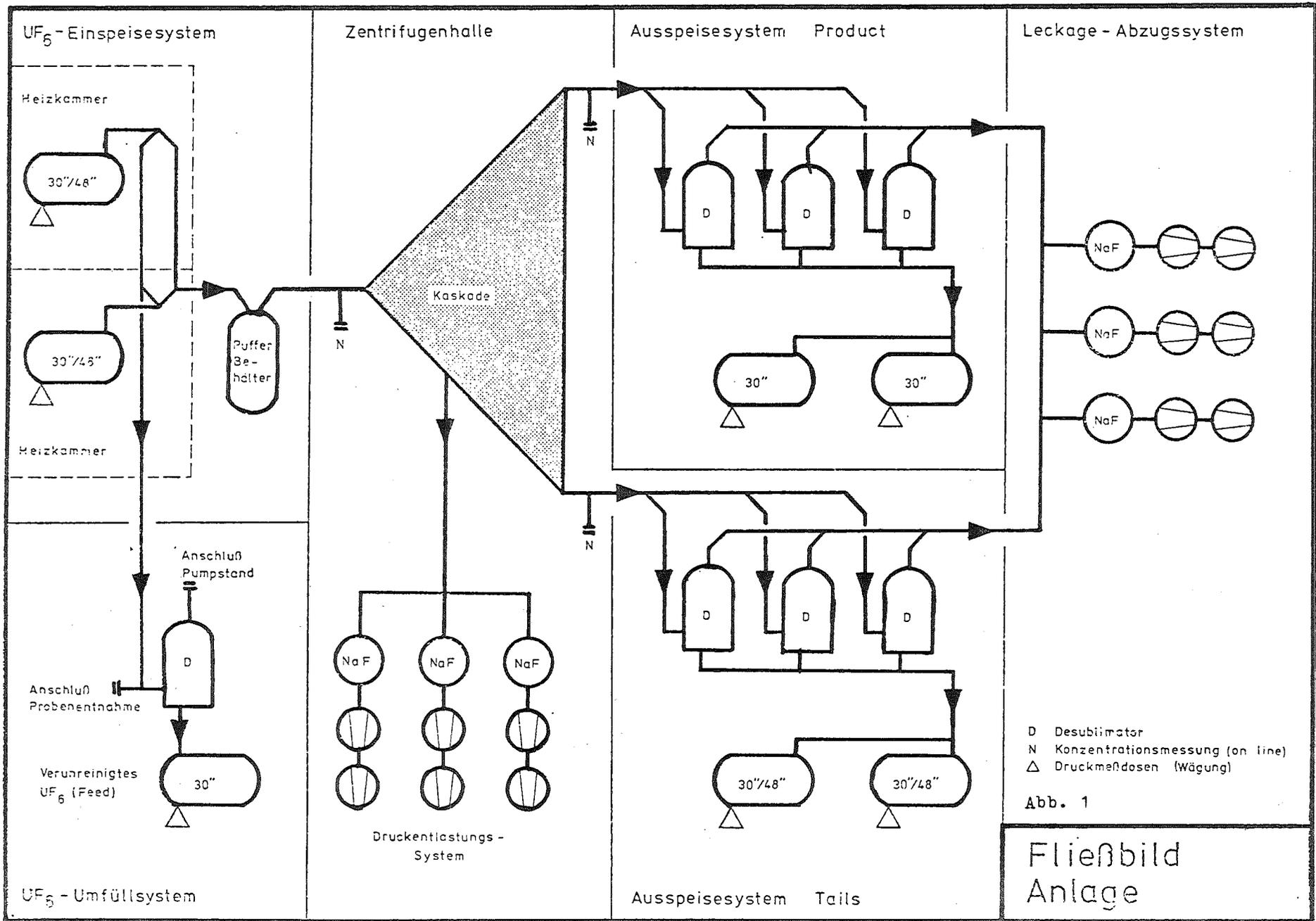
Die im Betrieb der Anlage anfallenden Abfälle werden, gesondert nach Art (flüssig, fest) und Aktivität (>, < Freigrenze) in Behältern gesammelt. Für diese Untersuchungen wurde der Abfall in Teilströme aufgeteilt, und zwar in

- flüssige Abfälle (Aktivität bei Abgabe < Freigrenze),
- flüssige Abfälle (" " " > "),
- flüssige Abfälle (" " " > "),
- Öl-abfälle, Reinigungsmittel (radioaktiv),
- UF₆-kontaminierte, feste Abfälle, und
- NaF-Schutzfalleninhalte (radioaktiv).

Diese Teilströme wurden über einen Zeitraum von 10 Monaten (13.8.73 bis 17.6.74) erfaßt.

Erste Ergebnisse lassen erkennen, daß rund 90 % der gesamten Abfallmenge auf 3 Teilströme entfallen, d.h. man könnte sich darauf beschränken, diese Ströme zu erfassen.

Die verwendeten Meßmethoden und -geräte wurden zusammengestellt und Schätzwerte für die Meßgenauigkeit unter Berücksichtigung möglicher Fehler (z.B. Inhomogenität, Verunreinigungen) angegeben, um für die gemessenen Einzelmengen einen maximalen Fehler angeben zu können.



6-11

Abb. 7

6.6.2. Quantitative Analyse des MUF

Am Beispiel der UTA 25 wurde erstmals für eine GUZ-Anlage eine Analyse des MUF in Angriff genommen. Dazu wurde über den Zeitraum vom 21.5.73 (Betriebsbeginn) bis 15.10.74 das ein- und ausgehende spaltbare Material bilanziert. Inventurzeitpunkt war der 15.10.74. Es wurde eine Aufnahme des realen Bestandes in Lager- und Produktionsbereichen durchgeführt.

Mit diesen Inventurdaten wurde die Größe des MUF bestimmt aus:

$$\text{MUF} = (\text{BI})_{t_i} - (\text{PI})_{t_i}$$

$(\text{BI})_{t_i}$ = Buchinventar zur Zeit t_i

$(\text{PI})_{t_i}$ = realer Bestand zur Zeit t_i

t_i = Inventurzeitpunkt

Die Standardabweichung

$$\sigma(\text{MUF})$$

kann durch Analyse der verwendeten Meßmethoden und Geräte ermittelt werden.

Der Erwartungswert des MUF

$$E(\text{MUF})$$

wird bestimmt durch systematische Meßfehler und Materialverluste, bzw. nicht erfaßte Materialmengen. Beiträge zum Erwartungswert des MUF wurden durch gezielte Messungen, die über den Rahmen einer Inventur hinausgehen, ermittelt.

Ergebnisse dieser Messungen liegen zwar vor, die Detailergebnisse unterliegen jedoch der Geheimhaltung und können deshalb nach den derzeitigen Bestimmungen nicht veröffentlicht werden.

6.3.3 Simulation der U 235/U-234-Isotopenverhältnisse als Funktion der Anreicherung

Das natürliche Uran setzt sich aus den 3 Isotopen U-238 (99,27 %), U-235 (0,719 %) und U-234 (0,005 %) zusammen. Eine An- bzw. Abreicherung an U-235 hat daher auch, und zwar in noch stärkerem Maße, eine An- bzw. Abreicherung an U-234 zur Folge. Die "Minor Isotope Safeguard Technique (MIST)" beruht nun darauf, durch Messung der U-235/U-234 Konzentrationsverhältnisse im Product- und Tailstrom eine Bestätigung der angegebenen Betriebsweise einer Anreicherungskaskade zu ermöglichen.

Im Rahmen der Containment- und Surveillance-Maßnahmen an GUZ-Anlagen kann die MIST besondere Bedeutung erlangen, weil sie unter gewissen Randbedingungen die Möglichkeit bieten könnte, eine in der Anlage erfolgte Höheranreicherung von der Peripherie her festzustellen.

Für eine Kaskade mit Gas-Diffusions-Trennelementen wurde das U-235/U-234 Isotopenverhältnis als Funktion der U-235 Konzentration in den Kaskadenströmen von Blumkin und Von Halle simuliert /1/. Einen Auszug aus den Ergebnissen zeigen die Abb. 2 und 3.

Abb. 2 zeigt das U-235/U-234 Isotopenkonzentrationsverhältnis als Funktion der U-235-Konzentration. Daraus ist zu erkennen, daß das zu einer bestimmten U-235-Konzentration korrespondierende U-235/U-234 Isotopenkonzentrationsverhältnis von der Productkonzentration abhängt. Abb. 3 zeigt die Verhältnisse in Product- und Tailstrom.

/1/ S. Blumkin, E. Von Halle: The Behavior of the Uranium Isotopes in Separation Cascades - Part I: Ideal Cascades. Oak Ridge Gaseous Diffusion Plant, Oak Ridge, Tennessee

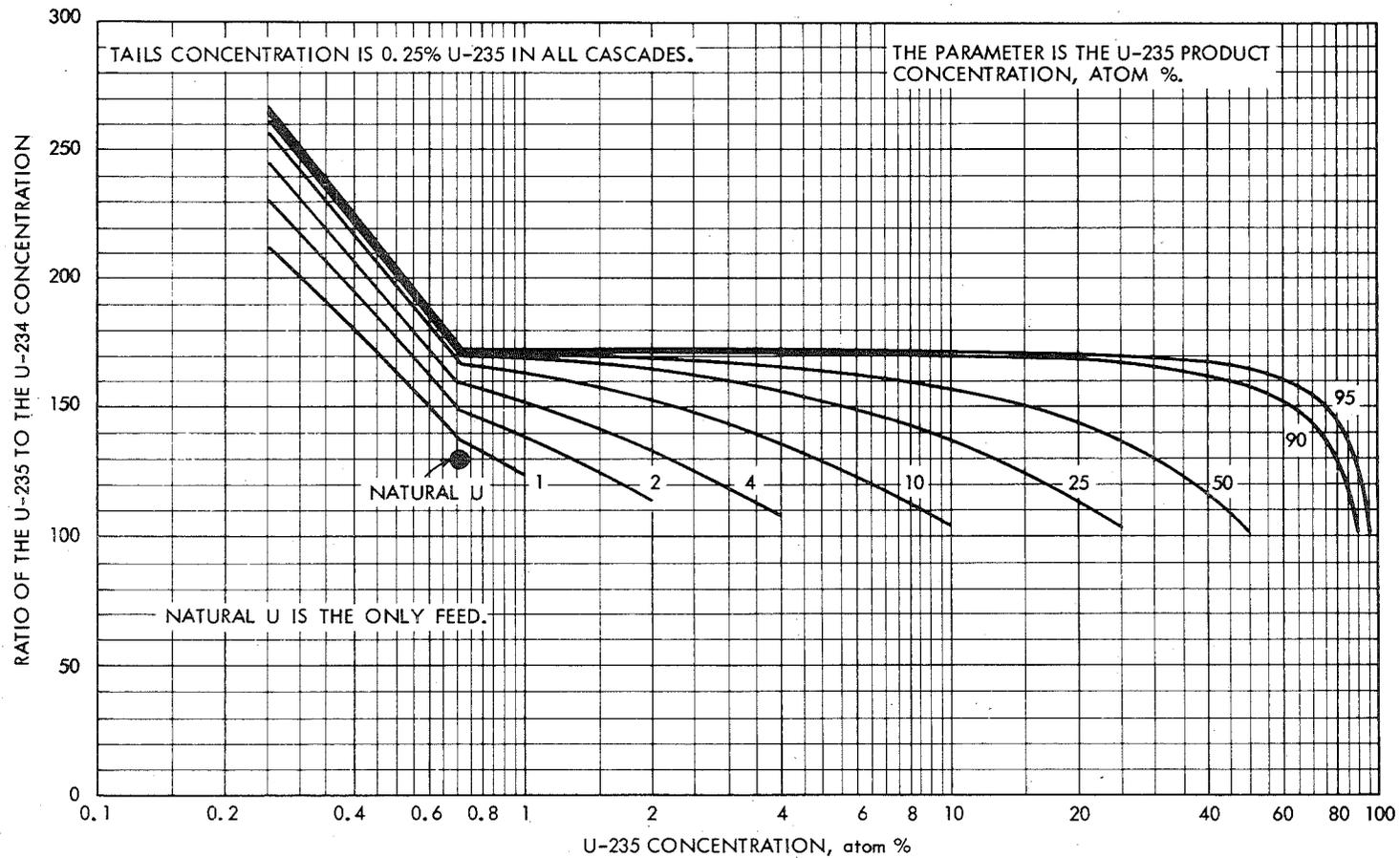


Abb. 2 (aus Ref. 1)

THE U-234 CONCENTRATIONS IN IDEAL CASCADES WITH
DIFFERENT DESIGN PRODUCT CONCENTRATIONS

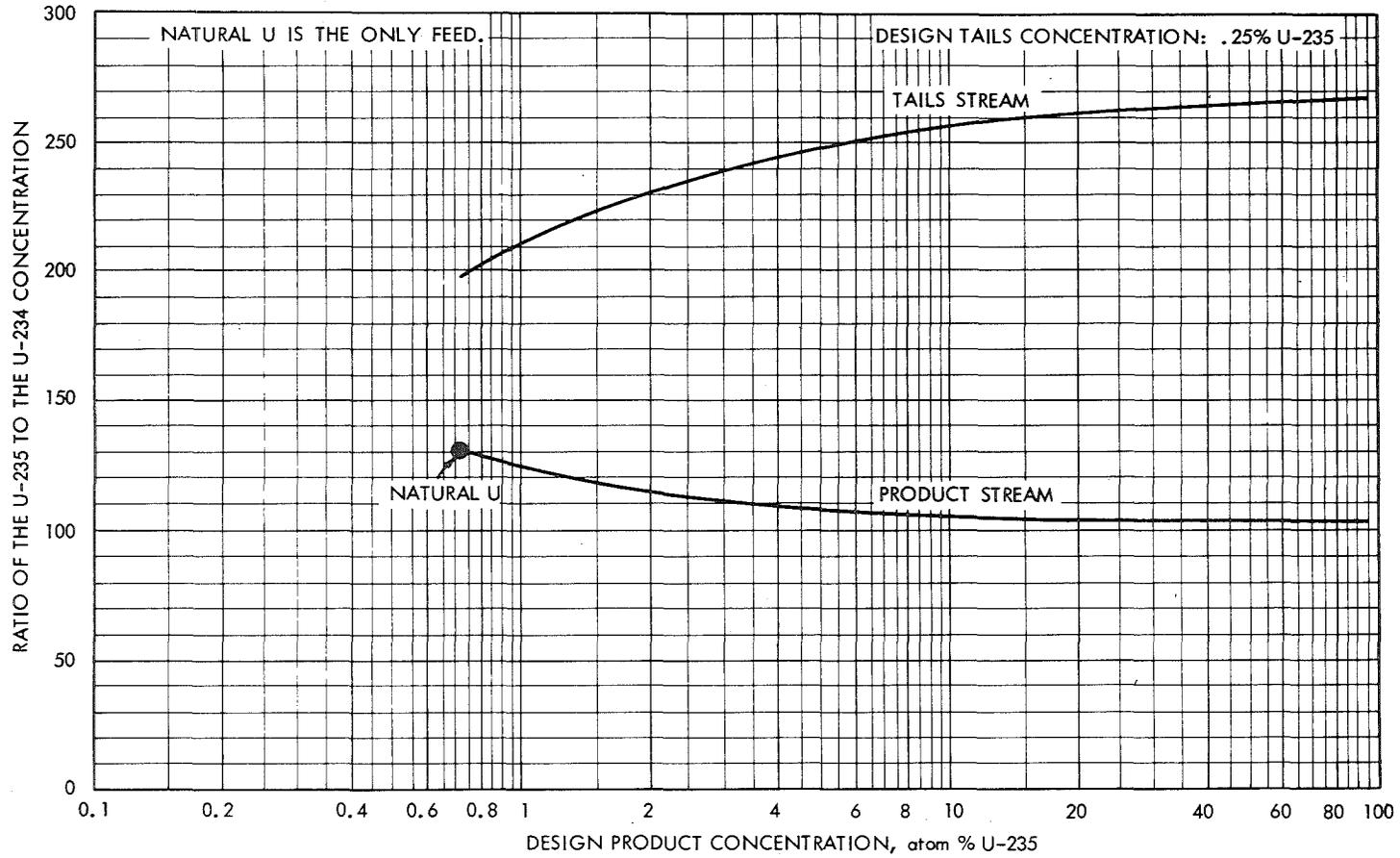


Abb. 3 (aus Ref. 1)
THE U-234 CONTENT OF PRODUCT AND TAILS STREAMS
OF IDEAL CASCADES VERSUS THE DESIGN PRODUCT CONCENTRATION

Mit entsprechenden Überlegungen für ein Modell einer GUZ-Anlage derzeitiger Technologie wurde im Jahr 1974 begonnen. Der wesentliche Unterschied gegenüber Gas-Diffusions-Anlagen besteht darin, daß über das Verhalten der Trennfaktoren α_{234} , α_{235} (Anreicherung) und β_{234} , β_{235} (Abreicherung) als Funktion der U-235 Konzentration bei Anreicherung $>4\%$ derzeit keine Daten vorliegen. Man wird daher zunächst Annahmen treffen müssen, etwa $\alpha, \beta = \text{const.}$, bis experimentell ermittelte Werte vorliegen.

In einem ersten Schritt wurden grundsätzlich mögliche Abzweigungs- und Höheranreicherungsstrategien anhand einer Modellanlage derzeitiger Technologie aufgezeigt.

6.3.4 Verfahren zur dynamischen Gasinventarbestimmung

Es wurde untersucht, ob es möglich ist, das Gasinventar (GI) einer Kaskade von der Peripherie her zu bestimmen, ohne den Betriebsablauf zu unterbrechen. Dabei wurde rechnerisch folgendermaßen vorgegangen:

Durch einen Feedsprung wird eine Störung in den Betriebsablauf gebracht und das Abklingverhalten, das seinerseits vom GI beeinflusst wird, untersucht. Damit kann ein Rückschluß auf das GI gezogen werden.

Alle Arbeiten zu den Punkten 1-4 sind noch nicht abgeschlossen, die Ergebnisse werden bis Mitte 1975 zur Verfügung stehen.

6.4 WAK

Die Bearbeitung der Probleme, die sich bei einer Analyse des von EURATOM und IAE0 ausgearbeiteten Anlagespezifischen Anhangs für die Durchführung der Kernmaterialüberwachung in der WAK ergeben, wurde im Berichtszeitraum fortgesetzt. Die Arbeiten konzentrierten sich hauptsächlich auf die folgenden Themen:

- Einsatz der EDV bei Buchungen und Ausfertigung von Berichten
- Aufnahme und Prüfung des realen Bestands nach den Angaben im Anlagespezifischen Anhang
- Rekalibrierung des Eingangsmessbehälters der WAK
- Behandlung des gemessenen Abfalls im Überwachungskonzept

Über die Berücksichtigung der Arbeitsergebnisse im Anlagespezifischen Anhang wurden mit der Überwachungsbehörde EURATOM mehrere Verhandlungen geführt. Eine revidierte Fassung des ASA steht jedoch noch aus.

6.4.1 Einsatz der EDV bei Buchungen und Ausfertigung von Berichten

Die Chargendaten von 10 Auflösungen von MZFR-Brennelementbündeln wurden im Rahmen einer Untersuchung über die EDV-Anwendung bei Buchungen und Berichten nach den Anforderungen des Verifikationsabkommens auf Lochkarten übertragen und in die Rechenanlagen der GfK eingegeben, so daß Berichte maschinell ausgefertigt werden konnten. Für Form und Format der Berichte wurde Code 10 der Ergänzenden Abmachungen zum Verifikationsabkommen zugrunde gelegt. Die erforderlichen Rechenprogramme wurden angefertigt. Der Versuch lieferte Informationen über die erforderliche Speicherkapazität einer Rechenanlage und die Maschinenzeit, die für Buchungen und Berichte über EDV im Rahmen der Kernmaterialüberwachung bei der WAK bereitgestellt werden müßte.

6.4.2 Aufnahme und Prüfung des realen Bestandes nach den Angaben im Anlagespezifischen Anhang

In einer Studie wurden die bei Aufnahme und Prüfung des realen Bestands vom Betreiber durchzuführenden Arbeiten im einzelnen untersucht und dargestellt, wie sie sich aus den allgemeinen Bestimmungen in den Ergänzenden Abmachungen und den detaillierten Festlegungen im Anlagespezifischen Anhang ergeben. Auf diese Weise konnte eine genaue Übersicht über die technische Durchführung der Inventur und den vom Betreiber dabei zu erbringenden Arbeitsaufwand gewonnen werden. Ein weiteres wesentliches Ergebnis waren Hinweise auf notwendige Änderungen im betriebsinternen Protokollsystem, die der Betreiber zur Optimierung der Inventurdurchführung vornehmen sollte.

6.4.3 Rekalibrierung des Eingangsmesbehälters der WAK

Aus den Forderungen im Anlagespezifischen Anhang zur Qualitätskontrolle ergibt sich die Notwendigkeit von Rekalibrierungen des Eingangsmesbehälters der WAK. Hierzu wurde ein neuartiges Verfahren entwickelt und durchgeführt, nämlich die Rekalibrierung mit D_2O -Tracer. Dieses Verfahren vermeidet die Schwierigkeiten, die durch Bildung von Ablagerungen mit anderen Tracern auftreten können. Untersucht wurde im einzelnen die Homogenität der Mischung durch Messung des D_2O -Gehaltes in Proben bei verschiedenen Füllstandshöhen, bei betriebsmäßig durchgeführter Homogenisierung. Die D_2O -Analyse in den Proben zeigt Konzentrationschwankungen um nur ± 1 %. Die volle Auswertung der Kalibrierung ist noch nicht abgeschlossen.

6.4.4 Behandlung des gemessenen flüssigen Abfalls im Überwachungskonzept

Im vorliegenden Entwurf des Anlagespezifischen Anhangs für die WAK ist vorgesehen, daß über die Einstufung von Kernmateriallösungen als gemessener Abfall und der Beendigung der Überwachungsmaßnahmen an ihm in jedem Fall EURATOM und IAEA entscheiden, und zwar nach Eingang einer Meldung über das vorgesehene Material bei der IAEA. In der Praxis bedeutet dies, daß vor jedem Abtransport von Abfall aus der WAK, nach dem das Material nicht mehr vorweisbar und überprüfbar wäre, eine Freigabe von EURATOM und IAEA abgewartet werden müßte. Bei Mangel an Lagerbehältern könnte daraus eine empfindliche Betriebsstörung folgen. Betreiber und Projekt haben deshalb vorgeschlagen, daß ein Konzentrationswert festgelegt wird, unterhalb dessen Kernmaterial in Lösungen als gemessener Abfall deklariert und die Überwachung an ihm beendet werden kann. Die Kernmaterialkonzentration soll von EURATOM-Inspektoren jeweils geprüft werden. Diesem Verfahren haben Vertreter EURATOMs in Verhandlungen zugestimmt. Eine Zustimmung der IAEA, um die EURATOM sich bemühen müßte, steht noch aus.

6.5 NUKEM

Die vertraglich vereinbarte Zusammenarbeit zwischen NUKEM und PSpFK wurde im Berichtszeitraum fortgesetzt. Der Schwerpunkt lag bei Untersuchungen über die Organisation von Aufnahme und Prüfung des realen Bestands, mit dem Ziel einer weitgehenden Entlastung des Betreibers bei der Durchführung des im Anlagespezifischen Anhang angegebenen Verfahrens.

Ein wichtiges Ergebnis vorangegangener Arbeiten waren Forderungen nach der Verringerung der Betriebsverluste bzw. der Verbesserung ihrer meßtechnischen Erfassung. Entsprechende Arbeiten über die Verbesserung von Materialverfolgung und Materialkontrolle im Prozeß wurden eingeleitet, jedoch 1974 noch nicht abgeschlossen. Das gleiche gilt für Untersuchungen über das Meßsystem bei der NUKEM.

6.5.1 Organisation der Aufnahme und Prüfung des realen Bestands

Der Entwurf des Anlagespezifischen Anhangs für die NUKEM sieht vor, daß für Uran mit einer Anreicherung unter 5 % einmal pro Jahr eine Aufnahme und Prüfung des realen Bestands, für höher angereichertes Uran zwei Inventuren pro Jahr

durchgeführt werden. Zur Vorbereitung und Durchführung einer Bestandsaufnahme hat der Betreiber folgende Arbeiten auszuführen:

- Leeren und Reinigen von Prozeßbereichen, soweit wie möglich, und Transport allen Kernmaterials zu Schlüsselmeßpunkten
- Einteilung und Kennzeichnung der Chargen
- Anfertigung von Bestandslisten

Die Überwachungsbehörden führen die Prüfungen des realen Bestands anhand der Bestandslisten durch.

Aufnahme und Prüfung des realen Bestands sollen normalerweise nur dann erfolgen, wenn in den chemischen und pulvermetallurgischen Produktionsbereichen laufend Kampagnen abgeschlossen und Schrotte aufgearbeitet sind.

Es war die Aufgabe von Betreiber und PSpFK, ein Verfahren für die Durchführung der Inventur nach den gegebenen Forderungen im einzelnen zu entwickeln, das den Betrieb so wenig wie möglich belastet. Insbesondere mußte sichergestellt werden, daß Stillstände in der Anlage weitgehend vermieden bleiben, bzw. aus betrieblichen Gründen erforderliche Stillstände für die Durchführung der Inventur genutzt werden. Das Verfahren wurde bei einer Inventur gemeinsam mit der Überwachungsbehörde praktisch erprobt.

Es konnte dabei davon ausgegangen werden, daß das Kernmaterial in der NUKEM in Chargen gehandhabt wird. Umordnungen des Materials (Zusammenfassung von Chargen, Neubildung von Chargen aus Ausgangschargen) sind möglich. Jede Charge ist mit einer Identifikationskarte versehen, auf der die Materialkennzeichnungs- und Chargendaten eingetragen sind.

Das ausgearbeitete Verfahren unterscheidet - je nach der bei der Inventur angewandten Methode - vier Arten von Anlagebereichen

- chemische Prozeßbereiche
- mechanische Produktionsbereiche
- Lager
- Schrott-Lager und -aufarbeitungsbereiche

Es wird davon ausgegangen, daß die Inventur an einem Montag beginnt. Es kann dann ausgenutzt werden, daß in der Regel aus betrieblichen Gründen an jedem Wochenende die chemischen Prozeßbereiche leergefahren und gereinigt werden. Bei einer angesetzten Inventur werden nun zu Arbeitsbeginn am Montag, gegebenenfalls über das Wochenende, die für die Verarbeitung während des Zeitraums der Inventur benötigte Kernmaterialcharge in diese Bereiche gebracht und unter Verwendung der Daten auf den Identifikationskarten in die Bestandsliste (PIL) aufgenommen. Sie stehen zur Prüfung durch die Inspektoren bereit, nach dieser Prüfung können die chemischen Prozeßbereiche angefahren werden.

Aus den mechanischen Produktionsbereichen werden vor Inventurbeginn die Schrotte ausgeräumt, so daß nur Material in gemessenen Chargen vorliegt. Wie in den chemischen Prozeßbereichen wird vor Aufnahme der Arbeit am Montag so viel an Chargen Ausgangsmaterials eingebracht, wie während des Inventurzeitraums für einen kontinuierlichen Betrieb benötigt wird, und der Bestand in die PIL aufgenommen. Die Bearbeitung kann sogleich beginnen, dabei wird jedoch so vorgegangen, daß nach jedem Produktionsschritt die gefertigten Produkte aus einer Charge mit dem zugehörigen Schrott zusammengehalten werden. Auf diese Weise bleiben die Chargen erhalten, das gesamte Material in den Produktionsbereichen bleibt während des gesamten Inventarzeitraums aufgrund der Chargendaten prüfbar.

Die Lager werden bei Inventurbeginn versiegelt, sodaß Materialentnahme und Materialzugang ohne Kontrolle durch die Inspektoren nicht möglich ist. Vor Inventurbeginn nimmt der Betreiber die im Lager vorhandenen Chargen, deren Daten sämtlich durch Messung festgestellt sind, in die PIL auf.

Schrottlager und Schrottaufarbeitungsbereich sollten soweit als möglich vor Inventurbeginn leergefahren, das heißt die Schrotte aufgearbeitet und die Aufarbeitungsprodukte gemessen und ins Lager gebracht sein. Dies ist jedoch nicht immer der Fall. Die nicht aufgearbeiteten Schrotte liegen dann in Chargen mit Daten vor, die nicht durch Messung, sondern durch Eingang-/Ausgang-Differenzbildung in den Produktionsbereichen erzeugt wurden, aus denen die Schrotte stammen. Der Betreiber nimmt vor Inventurbeginn diese Werte in die PIL auf. Die Kennzeichnung des Materials als nichtaufgearbeitete Schrotte gibt den Inspektoren an, daß die Chargendaten nichtgemessene Werte sind.

Die Prüfung des Bestands durch die Inspektoren der Überwachungsbehörde findet aufgrund der PIL statt. Jede in die Listen eingetragene Kernmaterialcharge wird auf ihre Existenz überprüft und die Übereinstimmung der Materialkennzeichnungs- und Chargendaten auf der Identifikationskarte mit den Eintragungen in der PIL verglichen. Die Inspektoren führen anhand eines von ihnen aufgestellten Stichprobenplanes Messungen an Chargen durch und entnehmen Proben, die zur Analyse bereitgestellt werden. Der Probenumfang richtet sich nach Menge und Anreicherung des zu überprüfenden Kernmaterials.

Für die Durchführung der Prüfung des realen Bestandes werden mehrere Inventurteams gebildet, wobei jedes Team sich aus einem Inspektor der Überwachungsbehörde und einem Betriebsangehörigen zusammensetzt. Die Anlage wird in Inventurteilbereiche unterteilt. Die Unterteilung erfolgt getrennt für HTR- und MTR-Produktionslinie nach Art der Anlagebereiche (chem. Prozeßbereiche, mech. Produktionsbereiche, Lager, Schrottlager und -aufarbeitungsgebiete).

In diesen Teilbereichen wird die Inventur parallel oder nacheinander durchgeführt. Für die zeitliche Abfolge sind dabei Prioritäten maßgebend, die unter dem Gesichtspunkt der geringstmöglichen Betriebsbehinderung den Teilbereichen zuzuordnen sind. Die höchste Priorität kommt den chemischen Prozeßbereichen zu, die vor Abschluß der Prüfungsarbeiten in ihnen nicht angefahren werden können. Zweite Priorität haben mech. Produktionsbereiche, die mit höher Anlastung arbeiten, dritte Priorität die übrigen Bereiche.

Bei der Organisation der Bestandsprüfung ist auch zu beachten, daß der unkontrollierte Materialaustausch zwischen nacheinander geprüften Bereichen unterbunden sein muß. Diese Bedingung wird weitgehend durch die Versiegelung der Lager erfüllt. Die Möglichkeit eines nicht aufdeckbaren Materialaustausches zwischen Produktionsbereichen ist auf in der Fertigungslinie jeweils direkt aufeinanderfolgende Bereiche beschränkt, da nur in ihnen gleichartiges, austauschbares Material vorliegt. Diese Möglichkeit wird dadurch ausgeschlossen, daß die Bestandsprüfung gleichzeitig oder in aufeinanderfolgenden Bereichen zeitlich nacheinander durchgeführt wird, wobei unkontrollierte Kernmaterialtransfers in oder aus einem Bereich während der Prüfung unterbunden sind.

6.6 Überwachungsmaßnahmen für Kernforschungszentren und Hochtemperatur-Reaktoranlagen

Die Arbeiten der Arbeitsgruppe Spaltstoffflußkontrolle der Kernforschungsanlage Jülich, die im Jahre 1974 im Rahmen des Projektes SpFK durchgeführt wurden, befaßten sich überwiegend mit der Problemdefinition und der Konzeption der notwendigen Entwicklungsarbeiten für ein Kontrollsystem für Kernforschungszentren. Das Arbeitsprogramm wurde in seinen wesentlichen Punkten mit dem Projekt abgestimmt und im Rahmen häufiger Konsultationen findet ein Informationsaustausch zwischen der Projektleitung in Karlsruhe und der Arbeitsgruppe in Jülich statt. Im Arbeitsprogramm sind die beiden folgenden Schwerpunkte definiert: Entwicklung eines Kontrollsystems für Kernforschungszentren und eines Überwachungssystems für den Hochtemperaturreaktor.

Die Entwicklung eines Kontrollsystems für Kernforschungszentren beinhaltet die Problematik, daß es in Forschungszentren eine größere Anzahl von Labors und Instituten gibt, die zum Teil nur geringe Mengen nuklearen Materials verwenden bzw. bei denen sich das Material in Versuchsanordnungen befindet, deren Aufbau und Auslegung sich häufiger ändern. Die durchzuführenden Untersuchungen orientieren sich zunächst am konkreten Beispiel der KFA. Später sollen sie auch auf die anderen deutschen Kernforschungszentren ausgedehnt werden.

In Zusammenhang mit den Arbeiten am KFA-Kontrollsystem wurde zunächst eine Übersicht über die in den verschiedenen Instituten und Zentraleinrichtungen genehmigten Umgangsmengen erstellt. Gleichzeitig wurden Überlegungen zu einem Gesamtkonzept der zukünftigen Kernmaterialüberwachung in der KFA angestellt. Voraussetzung für diese Arbeiten bildete die Feststellung des Ist-Zustandes im Umgang mit Kernmaterial. Zu diesem Zweck wurde ein Fragebogen (Questionnaire) für die Mitteilung von Anlagedaten entwickelt, dessen Beantwortung durch die einzelnen Institute und Zentraleinrichtungen die jeweilige Art des Umgangs mit Kernmaterial festzustellen gestattet.

Nach Diskussionen mit dem BMFT und dem Projekt in Karlsruhe wurde das Konzept verfeinert und erweitert. Das Konzept des Kontrollsystems muß in

Übereinstimmung mit den Anforderungen der Überwachungsbehörden IAEA und EURATOM stehen. Demgemäß soll das Kontrollsystem im wesentlichen auf einem Protokoll- und Berichtssystem sowie einem Meßsystem basieren. Um das zu erreichen, wurde die Bearbeitung der folgenden Aufgaben als wesentlich erkannt:

- Ermittlung der Materialflüsse zwischen und innerhalb der einzelnen Institute und Zentraleinrichtungen;
- Festlegung von Materialbilanzzonen und Schlüsselmeßpunkten;
- Festlegung von Meßverfahren;
- Entwicklung eines computergestützten Buchhaltungssystems;
- Probetrieb des Kontrollsystems für einen Teilbereich der KFA;
- Inbetriebnahme des Kontrollsystems für das ganze Forschungszentrum.

Diese Ablaufschritte wurden in Angriff genommen mit der Analyse und Auswertung der bestehenden Kernmaterialüberwachung in der KFA. Nach einer ersten Betrachtung der gegebenen Infrastruktur sowohl hinsichtlich Art und Umfang des Umgangs als auch der Überwachung von Kernmaterial ließen sich Schlüsse zur konkreten Aufteilung der KFA in Materialbilanzzonen und Schlüsselmeßpunkte ziehen. Dabei zeigte es sich, daß eine Aufteilung in 5 Materialbilanzzonen sinnvoll erscheint. Für die beiden Forschungsreaktoren wurde jeweils 1 Materialbilanzzone definiert, desgleichen für die beiden Kritischen Experimente. Alle anderen Stellen in der KFA, die mit Kernmaterial umgehen, wurden in der 5. MBZ zusammengefaßt, wobei jedem Institut ein Schlüsselmeßpunkt zugeordnet wurde. Weiterhin wurde im Berichtszeitraum das Kontrollkonzept hinsichtlich der Meßverfahren und des Buchhaltungssystems weiter detailliert.

Die Arbeiten zur Entwicklung eines Überwachungssystems für den HTR-Brennstoffzyklus wurden zunächst auf die beiden deutschen Hochtemperaturreaktoren AVR und THTR beschränkt. Für diese Reaktoren waren hinsichtlich der notwendigen Sicherungsmaßnahmen als erstes Überlegungen anzustellen, die von den wesentlichen technischen und physikalischen Unterschieden gegenüber den Leichtwasserreaktoren ausgehen. Dabei ist von besonderer Bedeutung, daß diese HTR's vom Typ des Kugelhaufenreaktors sind. Es wird angestrebt, für diese Reaktoren weitgehend Containment- und Surveillance-Maßnahmen einzusetzen und notwendige Messungen auf ein Minimum zu beschränken. Für den AVR ist ein stark vereinfachtes Kontrollsystem vorgesehen, da diese Anlage ihre Funktion als Versuchsreaktor voraussichtlich in absehbarer Zeit erfüllt haben wird und dann stillgelegt werden soll. Der Reaktor wird wahrscheinlich 1979 außer Betrieb gehen.

Kapitel 7 INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT

D. Gupta

7.1 Rom - Symposium

7.2 Zusammenarbeit innerhalb ESARDA

7. Internationale Zusammenarbeit

D. Gupta, EKS

Die internationale Zusammenarbeit des Projektes wird wie in den vergangenen Jahren mit mehreren Organisationen in nationaler und internationaler Ebene fortgeführt. In 1974 lag der Schwerpunkt bei der Intensivierung und Vertiefung der Zusammenarbeit mit der ESARDA (European Safeguards Research and Development Association)⁺.

7.1 Rom-Symposium

Das Symposium über "Practical Application of R+D in the Field of Safeguards" war seit der Gründung der ESARDA ihr wichtigstes gemeinsames Unternehmen. Das Symposium war organisiert worden, um einen fruchtbaren Gedankenaustausch zwischen den Wissenschaftlern, die mit den F+E.-Arbeiten zur Überwachung des Kernmaterials beschäftigt sind, und denen, die die Ergebnisse dieser Arbeiten verwenden sollen, d.h. den Überwachungsorganisationen (EURATOM/IAEO) sowie den Betreibern der kerntechnischen Einrichtungen, zu ermöglichen. Wie schon in der Einführung erwähnt, zeichnete sich das Symposium durch rege Beteiligung und intensiven Gedankenaustausch der drei Gruppen aus. Von den etwa 150 Teilnehmern waren ca. 70 aus den sieben Kernforschungszentren der ESARDA und der USAEC, 45 von verschiedenen Kernanlagen der Gemeinschaft, 20 aus den internationalen Überwachungsorganisationen und 15 von verschiedenen nationalen Organisationen.

In drei Sitzungen wurde mit 9 eingeladenen Beiträgen über die Entwicklung zur IAEA- und EURATOM-Kontrolle, über den gegenwärtigen Stand (1973) der kerntechnischen Industrie mit den bearbeiteten Kernmaterialien in der Europäischen Gemeinschaft und über die Meßmethoden sowie Containment-(räumliche Einschließung) und Surveillance-(Beobachtung)-Techniken berichtet.

⁺ ESARDA ist eine Assoziation der 7 Kernforschungszentren der Gemeinschaft (CEN, Belgien; CNEN, Italien; EURATOM, Ispra, TU; GfK, BRD; RC, Dänemark; RCN, Niederlande; UKAEA, Großbritannien), in der die F+E.-Arbeiten im Bereich der Überwachung koordiniert und teilweise gemeinsam durchgeführt werden.

Die vierte Sitzung war für eine offene Diskussion der in den vorausgegangenen Sitzungen aufgeworfenen Fragen sowie für Empfehlungen für weitere F+E.-Arbeiten vorgesehen. Dieser für wissenschaftliche Symposien ungewöhnliche Aufbau erwies sich als äußerst fruchtbar. In etwa 20 Beiträgen äußerten die Vertreter der drei Gruppen ihre Meinungen bzw. sprachen Empfehlungen aus, die dann auch ausführlich diskutiert wurden. Das Projekt war beauftragt worden, die Leitung der letzten Sitzung zu übernehmen sowie eine Zusammenfassung der Diskussionsbeiträge und Empfehlungen vorzunehmen. Die wichtigsten Empfehlungen lassen sich wie folgt zusammenfassen:

- a) Die während des Symposiums sich ergebenden Diskussionen der Vertreter der Anlagenbetreiber, der Überwachungsorganisationen und der Kernforschungszentren untereinander haben es zum ersten Mal ermöglicht, die Probleme der einzelnen Gruppen richtig zu verstehen und sich gegenseitig zu beraten. Diese Art von Symposien soll deshalb in regelmäßigen Abständen wiederholt werden.
- b) An mehreren Stellen des Brennstoffkreislaufes fehlen Meßsysteme, die auch aus betrieblichen Gründen notwendig wären. In enger Zusammenarbeit mit den betroffenen Anlagenbetreibern sollen diese Meßsysteme entwickelt, erprobt und eingesetzt werden. Die Arbeitsausschüsse für zerstörungsfreie und zerstörende Methoden der ESARDA wurden beauftragt, eine Bestandsaufnahme für solche Meßsysteme vorzunehmen und, wenn erforderlich, gezielte F+E.-Arbeiten gemeinsam durchzuführen. Dem Problem Standards für zerstörungsfreie Methoden soll besondere Aufmerksamkeit geschenkt werden. Besonders wichtig ist auch die Entwicklung geeigneter Meßsysteme für Kernmaterial enthaltende Abfälle aus kerntechnischen Einrichtungen.
- c) Die besondere Bedeutung der Isotopenkorrelationen für den Betrieb und die Überwachung wurde mehrmals hervorgehoben und es wurde empfohlen, eine Datenbank, in der die erforderlichen Daten zu verschiedenen Isotopenkorrelationen gespeichert werden, einzurichten. Die Datenbank soll in Ispra eingerichtet werden.
Inzwischen hat auch die IAEA eine Datenbank für Isotopen-Korrelation eingerichtet.
- d) Der Eingang einer Wiederaufarbeitungsanlage wirft besondere Probleme bei der Überwachung auf. An dieser Stelle verlieren die Brennelemente ihre

Identität und werden chemisch aufgelöst. Eine genaue Messung und Verfolgung des Kernmaterials ist aus mehreren betriebsbedingten Gründen erschwert. In einem Arbeitsausschuß der ESARDA mit Beteiligung der Anlagenbetreiber sollen diese Probleme genau analysiert und mögliche Lösungswege erarbeitet werden.

Es ist zu erwarten, daß in etwa 3-4 Jahren ein ähnliches Symposium von der ESARDA organisiert wird.

7.2 Zusammenarbeit innerhalb ESARDA

In 1974 wurden die F+E.-Arbeiten der 7 Kernforschungszentren innerhalb der ESARDA zur Kernmaterialüberwachung gemeinsam diskutiert und miteinander abgestimmt. Die Schwerpunkte der Arbeiten für die einzelnen Zentren sind in Tabelle 1 zusammengestellt. Eine Schätzung des eingesetzten Aufwandes (in MJ/a) für verschiedene Schwerpunktthemen in diesen Forschungszentren ergab das folgende Bild.

Schwerpunkte	MJ/a	Prozente des Gesamtaufwandes
Zerstörungsfreie Methoden	15	29
Direkte Methoden	12	23
Standards für Meßmethoden	5	10
Versiegelung	8	15
Bearbeitung von Problemen in Kernanlagen	7	13
Korrelationen	<u>5</u>	10
Summe:	52	

Es ist zu erwähnen, daß etwa 62 % des Gesamtaufwandes in den Zentren für die Entwicklung von Meßmethoden und Standards eingesetzt wurde.

TABLE 1. Summary of programs of 1974 submitted to ESARDA Steering Committee meeting 1974-05-16

ITEM	EURATOM		GfK		CEN		CNEN		RCN		UKAEA		DAEC	
	PROJECT	OBJECTIVE	PROJECT	OBJECTIVE	PROJECT	OBJECTIVE	PROJECT	OBJECTIVE	PROJECT	OBJECTIVE	PROJECT	OBJECTIVE	PROJECT	OBJECTIVE
*1 SYSTEMS ANALYSIS 1.1. fuel cycle			Model of fuel cycle	Corre- lations, optimal use of safe- guards budget.							Fuel cycle studies	Identify problems from form- ulation of subsidence arrangements and facility attachments		
1.2.plants	Plant studies	Support to Safeguards Directorate	Integral Experiment Isotope Separation Plant	Hidden Inv., Accuracies, MUF, and Record system optimization			ECE	Optimization material balance verification	Simulation models	Gaining realistic experiences for this models	Report system	Development of NMA computer programs	Physical inventory Report system	Minimized operator workload Experience new ICR
1.3. special topics	Statistical studies	Support to Safeguards Directorate	Facility Attachments.	Support to Industry			ECE	collection of MUF data in MTR processing	Statistical interpretation	Support to ESARDA TWG Error propagation MUF-combination sampling errors	Sampling Inspection strategies isotopic correlations and error preparation	Improved accountancy Optimized inspection and error detection.	Implement- ation	Detect new research needs with respect to inspections
*2 CONTAINMENT AND SUR- VEILLANCE	Sealing and identification	Development and test application of seals in various reactors. Development of equipment	Tests Gamma-Lock	Euratom surveillance camera, sealing system. Development of gamma-lock for U.	Sealing	Implementation in BR II fuel	Sealing	Implementation in MTR-fuel	Sealing	Implementation	Gamma detection	Counting fuel elements on reactor discharge	Verification of MTR fuel by gammas	Spectrum of fuel in transfer flask is identification of irradiation history
*3 INDIRECT METHODS 3.1. Gamma-detection	Gamma-spectrometry	Spent LWR fuel assay Computerized assay of scrap and waste, Tests of detection systems		LEU enrichment in storage		NDA of UO ₂ mixed oxide implementation in plants: products, spent fuels scraps and waste. measurement		Use of NDA for Pu-fuel fabrication plant (Casaccia)		Absorptiometry spent MTR fuel LE-UF ₆ enrichment in plant Mixed oxide determination in fuel (Ge(Li)).	Gamma detection Gamma spectrometry	Absorptiometry of U/Pu in solutions Pu in waste matrix heterogeneity effects UF ₆ and UO ₂ enrichment		U-235 in MTR type fuel internal and external measurement on Pluto & Dido fuel

ITEM	EURATOM		GfK		CEN		CNEN		RCN		UKAEA		DAEC	
	PROJECT	OBJECTIVE	PROJECT	OBJECTIVE	PROJECT	OBJECTIVE	PROJECT	OBJECTIVE	PROJECT	OBJECTIVE	PROJECT	OBJECTIVE	PROJECT	OBJECTIVE
3.2 neutron methods, passive	Spontaneous fission	Assay of fresh u and Pu fuel pins variable dead-time counter (VDT) applied to Pu-detect- tion			Neutron coinci- dence	Scraps and waste measurement	Spon- taneous fission	Euratom V.D.T. counter applied in Casaccia Pu pilot plant			Neutron methods including coinci- dence	Pu in waste, matrix ef- fects, determi- nation of zero energy fast reactor fuel	n:flux inte- gration	Verification of reactor operations
3.3. neutron methods active	Neutron interrog- ation	HEU-detect- tion in heterogeneous material HEU- in HTR fuel Tests of Random driver			Active neutron interrog- ation	Determi- nation of Pu in waste					ISAS	Calibration and prac- tical app- lication of instrument		
*4 DIRECT METHODS	Interlab. comparison	SALE, GAE, IDA-72 AQCS	Interlab. comparison	Evaluation of IDA-72 SALE					Interlab. comparison	IDA-72; SALE New Bruns- wick	Interlab. comparison	PAFEX, IDA-72		
	Develop- ment	UF ₆ -sampling reprocessing input sample conservation Automatized Analysis Transport- able U mass-spec- trometer mass spec- trometry	X-Ray fluor- escence Automation	Application in W.A.K., Testing under radio-active conditions in labora- tory					Coulometry	Development of U/Pu simul- taneously.				
*5 ISOTOPIC CORRELA TIONS	Experiment	Measure- ments Gas and radioactive fission products. Parametric studies, collection of data Evaluation of f.p. nuclear data needs	Systems analysis	Study of correlations in whole fuel cycle	MOL IV	Determi- nation of correlation between U & Pu Determi- nation of correlation between U/Pu and f-p- gamma spectra	ECE	Use of Isotopic correl- ations in MTR fuel reprocessing		<i>Correlations in BWR fuel between U/Pu and gamma spectra</i>				
	Theory						Burn-up evalu- ation	Use of Eu 154/155 ratio						
	Nuclear data													

ITEM	UERATOM		GfK		CEN		ONEN		RCN		UKAEA		DAEC	
	PROJECT	OBJECTIVE	PROJECT	OBJECTIVE	PROJECT	OBJECTIVE	PROJECT	OBJECTIVE	PROJECT	OBJECTIVE	PROJECT	OBJECTIVE	PROJECT	OBJECTIVE
*6 STANDARDS	Standards	Reference fuel for NDT of HTR and mixed oxide fuel	Standards	Basic requirements of primary and secondary standards	Standards	Standards for mixed oxide fuel	Standards	References for NDA of Pu-fuel			Standards	Calibration of ISAS	Thermal Power Integration	Verification of reactor operations
*7 OTHER	Mobile lab. Training Courses	Support to Safeguards Directorate Inspectors, Operators, Officials.					On-line instruments	Improvement of NMA-system			Mobile lab. Flow and liquid depth measurements	Verification of P.I. Taking at various sites Testing of methods which facilitate inspections	↓	↓