

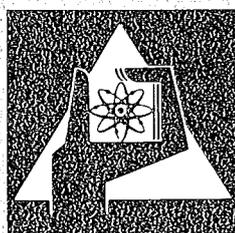
**KERNFORSCHUNGSZENTRUM
KARLSRUHE**

August 1976

KFK 2295

Projekt Spaltstoffflußkontrolle

Jahresbericht 1975



**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 2295

Projekt Spaltstoffflußkontrolle

Jahresbericht 1975

Gesellschaft für Kernforschung m.b.H., Karlsruhe

Annual Report of the Nuclear Safeguards Project 1975

Summary

This report is a description of major activities performed in 1975 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 1975 durchgeführt wurden.

Dieser Bericht wurde zusammengestellt

von

G. Bork

und enthält Beiträge von

R. Avenhaus²⁾, W. Bahm¹⁾, H. Bernhard⁶⁾, W. Beyrich⁸⁾, U. Bicking¹⁾,
K. Böhnel⁴⁾, R. Braun⁶⁾, H. Büker¹²⁾, R. Buttler¹²⁾, Chr. Brückner¹⁾,
W. Coerdts⁶⁾, A. Cricchio⁷⁾, H. Deutsch⁶⁾, H. Engelhardt¹²⁾, H. Frick²⁾,
M. Friedrich⁶⁾, E. Gantner⁶⁾, D. Gupta¹⁾, G. Hartmann²⁾, H.J. Hein⁹⁾,
M.R. Iyer¹³⁾, L. Koch⁷⁾, W. König⁶⁾, U. Kotte¹²⁾, H. Krinninger¹⁰⁾,
E. Mainka⁶⁾, K. Matern⁶⁾, P. Matussek³⁾, I. Michel-Piper³⁾, H.G. Müller⁶⁾,
N. Nakicenovic¹⁴⁾, J. Neuber⁶⁾, S. Onnen⁵⁾, H. Ottmar³⁾, H. Otto¹⁾,
H. Ruf⁶⁾, W. Rust¹⁾, F. Schinzer¹¹⁾, D. Sellinschegg¹⁾, G. Stein¹²⁾,
M. Wilhelmi⁶⁾

In den Beiträgen sind auch Beschreibungen der von den Firmen ALKEM, DORNIER, GWK, INB und NUKEM gemeinsam mit dem Projekt durchgeführten Arbeiten enthalten.

¹ Gesellschaft für Kernforschung, Entwicklungsgruppe Kernmaterialsicherung

² Gesellschaft für Kernforschung, Institut für Angewandte Systemanalyse

³ Gesellschaft für Kernforschung, Institut für Angewandte Kernphysik

⁴ Gesellschaft für Kernforschung, Institut für Neutronenphysik
und Reaktortechnik

⁵ Gesellschaft für Kernforschung, Institut für Datenverarbeitung in der Technik

⁶ Gesellschaft für Kernforschung, Institut für Radiochemie

⁷ Europäisches Institut für Transurane

⁸ delegiert von EURATOM

⁹ Gesellschaft zur Wiederaufarbeitung bestrahlter Kernbrennstoffe

¹⁰ Internationale Natrium-Brutreaktor-Bau-Gesellschaft mbH.

¹¹ Nuklear-Chemie und Metallurgie GmbH.

¹² Kernforschungsanlage Jülich

¹³ delegiert vom Bhabha Atomic Research Centre, Trombay, Indien

¹⁴ Internat. Institute for Applied Systems Analysis, Laxenburg, Österreich

<u>Inhaltsübersicht</u>	<u>Seite</u>
Einführung	1
<u>Kapitel 1: Systemanalytische Arbeiten</u>	1-1
1.1 Materialbilanzierung und Datenverifikation	1-1
1.2 Spieltheoretische Behandlung mehrfacher Inventurprobleme	1-2
1.3 Anwendung des Materialbilanzierungsprinzips auf andere Probleme	1-2
Literaturverzeichnis zu Kapitel 1	1-6
<u>Kapitel 2: Zerstörungsfreie Methoden</u>	
2.0 Einführung	2-1
2.1 In-Line-Messung der ²³⁵ U-Anreicherung in einer LWR-Brennelement Fabrikationsanlage	2-2
2.2 Bestimmung des Gadoliniumgehaltes in LWR-Brennstoff- pellets mit Hilfe der Röntgenfluoreszenzanalyse	2-8
2.3 Messungen zur Plutoniumbestimmung in festen, schwach radioaktiven Abfallstoffen	2-14
2.3.1 Durchführung der Arbeiten	2-15
2.3.2 Neutronenkoinzidenzmessung	2-16
2.3.3 Gammamessungen	2-20
2.3.4 Vergleich von Neutronen- und Gammamessungen	2-26
2.3.5 Schlußbemerkung	2-28
2.4 Gammadetektionssystem für Personenschleuse	2-46
2.4.1 Aufbau und Bedienung des Gammadetektionssystems	2-46
2.4.2 Optimierung der Detektorposition und des Gamma- energie-Fensters	2-50
2.4.3 Messungen zur Nachweiswahrscheinlichkeit von U und Pu	2-52
Literaturverzeichnis zu Kapitel 2	2-57

Kapitel 3: Direkte Verfahren

3.0	Einführung	3-1
3.1	Serviceleistungen und begleitende Arbeiten zur Automatisierung direkter Verfahren	3-2
3.2	Entwicklung von Analysenverfahren	3-3
3.2.1	Automatisierung der massenspektrometrischen Isotopenverdünnungsanalyse	3-3
3.2.2	Automatisierung der Uran- und Plutoniumkonzentrationsbestimmung durch Röntgenfluoreszenzanalyse	3-9
3.2.3	Naß-chemische Arbeiten zur Uran-Plutonium-Konzentrationsbestimmung	3-17

Literaturzitate als Fußnote auf den betreffenden Seiten

Kapitel 4: Kernmaterial- und Anlagensicherung 4-1

Kapitel 5: Experimentelle Prüfung von Überwachungsmaßnahmen

5.1	Interlaboratoriumstests	5-1
5.1.1	Test der Auswertemethoden für Alpha-Spektren "ASET-75"	5-1
5.1.2	UF ₆ -Interlaboratoriumstest	5-5
5.1.3	Studie zu den in der Praxis zu erwartenden Differenzen zwischen den Analysenwerten zweier Laboratorien	5-5

Literaturverzeichnis zu Kapitel 5 5-9

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

	Einleitung	6-1
6.1	Kernmaterialüberwachung an Leichtwasserreaktoren	6-3
6.2	Kernmaterialüberwachung an einem natriumgekühlten Schnellbrutreaktor (Kernkraftwerk Kalkar: SNR 300)	6-12

	<u>Seite</u>	
6.3	Kernmaterialüberwachung in Wiederaufarbeitungsanlagen	6-22
6.4	Kernmaterialüberwachung in einer Fabrikationsanlage für Brennstäbe aus Pu-U-Mischoxid (ALKEM)	6-31
6.5	Kernmaterialüberwachung in einer Fabrikationsanlage für hochangereichertes Uran (NUKEM)	6-41
6.6	Überwachungsmaßnahmen für Kernforschungszentren und Hochtemperatur-Reaktoranlagen	6-53
6.7	Kernmaterialüberwachung im Kernforschungszentrum Karlsruhe	6-56
6.8	Zum Entwurf einer neuen Verordnung der Kommission der Europäischen Gemeinschaften zur Anwendung der Bestimmungen des EURATOM-Vertrages über die Sicherheitsüberwachung	6-62
Literaturverzeichnis zu Kapitel 6		6-70

Kapitel 7: Internationale Zusammenarbeit

7.1	ESARDA-Zusammenarbeit	7-1
7.1.1	Langfristige Aufgabe der ESARDA	7-1
7.1.2	F+E.-Arbeiten der ESARDA	7-3
7.2	IAEO-Zusammenarbeit	7-4
7.2.1	Arbeitsausschüsse und Symposien der IAEO	7-4
7.2.2	Standing Advisory Group on Safeguards Implementation (SAGSI)	7-5
7.3	Zusammenarbeit mit einzelnen Staaten	7-6
Literaturverzeichnis zu Kapitel 7		7-10

Jahresbericht 1975
des Projektes Spaltstoffflußkontrolle

Einführung

D. Gupta

Die Forschungs- und Entwicklungsarbeiten des Projektes SpFK im Jahre 1975 sowie die Entwicklungen der internationalen Kernmaterialüberwachung haben neue Akzente für die zukünftigen Arbeitsrichtungen des Projektes gesetzt.

Im Bereich der systemanalytischen Untersuchungen wurden in diesem Jahr die Verfahren zur Analyse der Materialbilanzierung und der Datenverifikation weiterentwickelt und zu einem vorläufigen Abschluß gebracht. Eine genaue und umfangreiche Untersuchung hatte z.B. gezeigt, daß ein verhältnismäßig vereinfachtes Verfahren für die Feststellung der Effektivität eines Überwachungssystems trotz der sehr komplexen statistischen Abhängigkeiten der Daten verwendet werden kann. Gerade diese Feststellung hat im Hinblick auf das erneute Interesse der Weltöffentlichkeit an der Effektivität der IAEA-Überwachung an Bedeutung gewonnen.

Nachdem die Methodologie der Bilanzierung im Rahmen der Spaltstoffflußkontrolle weitgehend formalisiert wurde, waren auch andere wissenschaftliche Kreise interessiert, diese Methoden für die Erfassung, Verfolgung, bzw. Bilanzierung auch für andere Stoffe einzusetzen. Der Sachverständigen Rat für Umweltfragen war als erster an dieser Verwendung interessiert. Eine weitere Verwendung fand diese Methode bei der Behandlung des Kohlenstoffkreislaufes in der Welt und in dem vorliegenden Bericht wird darauf kurz eingegangen. Der Verband der chemischen Industrie, BRD, hat sich auch für die Verwendung dieser Technologie für die Bilanzierung von chemischen Stoffen interessiert.

Die mathematische Behandlung der Gesamthematik der Bilanzierung und Datenverifikation fand in einer Habilitationsschrift ihren Niederschlag. Das Habilitationsverfahren wurde Mitte 1975 abgeschlossen. Eine weitere Arbeit zur Materialbilanzierung wurde als Dissertationsschrift angenommen.

Bei den zerstörungsfreien und direkten Meßmethoden lagen die Schwerpunkte der Arbeiten bei den praktischen Anwendungen der im Projekt entwickelten bzw. bearbeiteten Meßsysteme. Dabei wurde festgestellt, daß die Erprobungsphase für die zerstörungsfreien Methoden vor uns liegt und noch mehrere Jahre in Anspruch nehmen wird. Außerdem ist in den kerntechnischen Anlagen mit einem steigenden Bedarf an Meßsystemen zu rechnen. Weiterhin wurde festgestellt, daß die meisten der vom Projekt entwickelten Meßsysteme auch für betriebliche Zwecke eingesetzt werden können. Häufig eignen sich diese Meßinstrumente auch für die Überwachung behördlicher oder betrieblicher Auflagen im Zusammenhang mit der Beseitigung radioaktiver Abfälle.

Die Arbeiten zur Erprobung eines Gamma-Detektionssystems für eine Personenschleuse wurden im Jahre 1975 fortgesetzt. Das Gamma-Detektionssystem stellt ein wichtiges Element für die Kompakt-Personenschleuse dar, die für die Sicherung kerntechnischer Anlagen entwickelt wird. Nach Beendigung der Erprobung wird die Personenschleuse zur Überwachung von Personen auf mitgeführtes Uran oder Plutonium in der SNEAK-Anlage der GfK eingesetzt.

Der Interlaboratoriumstest für die Alpha-Spektrometrie und für die massenspektrometrische Bestimmung von gasförmigem UF_6 liefen im Jahre 1975 weiter. Aus der Sicht der Überwachung ist die genaue Kenntnis der dem jeweiligen Entwicklungsstand entsprechenden, im Routinebetrieb erreichbaren analytischen Meßgenauigkeiten Voraussetzung für die Beurteilung der Spaltstoffbilanzen. Dieses Interlaboratoriumstest-Programm, das vom Projekt im Jahre 1971 zum ersten Mal entwickelt und durchgeführt wurde, wird eine langfristige begleitende Tätigkeit des Projektes darstellen.

Aus den Ergebnissen des Interlaboratoriumstests IDA-72 wurde ein empirisches Auswerteverfahren entwickelt, wonach der relative Unterschied in Prozenten zwischen zwei Labormittelwerten (die für die Messung der gleichen Proben mit der gleichen Meßmethode erzielt wurden), der von einem vorgegebenen Prozentsatz der gesamten gemessenen Labormittelwerte überschritten wird, angegeben werden kann. Dieses Verfahren kann bei der Bewertung der Meßdatendifferenzen zwischen Liefer- und Empfänger-Anlagen bzw. zwischen Betreiber- und Kontrollanalysen praktische Bedeutung gewinnen.

Im Rahmen der Arbeiten im Zusammenhang mit der Einführung von Überwachungsmaßnahmen in kerntechnischen Anlagen der BRD wurde 1975 ein breites Spektrum

von Tätigkeiten durchgeführt. Die Schwerpunkte dieser Arbeiten lagen bei der Entwicklung und Erprobung von Verfahren zur Aufnahme und Prüfung von realem Bestand an Kernmaterialien sowie zum dazugehörigen EDV-System im offenen Teil des Brennstoffzyklus, bei der experimentellen Untersuchung der Bedingungen und Einsetzbarkeit von Kamerasystemen in Reaktoren und bei der Entwicklung von Überwachungskonzepten für die fortgeschrittenen Reaktortypen und Kernforschungszentren.

Im Zusammenhang mit den Detailarbeiten zur Einführung internationaler Kernmaterialüberwachung tauchte häufig die Frage auf, ob das ursprüngliche Prinzip der Kernmaterialüberwachung an strategischen Punkten noch erhalten geblieben ist. Nach dem römischen Vertrag haben EURATOM-Inspektoren z.B. sowieso das Recht, Zugang zu jedem Ort und jeder Person zu jeder Zeit für die Wahrnehmung ihrer Pflicht zu verlangen. Dieses Recht wird durch den NV-Vertrag nicht ungültig. Die überwachungsrelevanten Informationen werden häufig nicht an bestimmten Orten erzeugt, sondern verteilen sich wegen der Gegebenheiten in der Anlage (insbesondere bei der Bestandsaufnahme) auf den ganzen Prozeßbereich.

Wie in vielen Fällen läßt sich das Prinzip der strategischen Punkte nicht in "Reinkultur" in die Praxis übertragen. Das realisierte Überwachungssystem funktioniert jedoch nach diesem Prinzip. Dabei kommt es in erster Linie nicht darauf an, wie von seiten des Betreibers die überwachungsrelevanten Informationen bzw. Tätigkeiten erzeugt bzw. vorgenommen werden, sondern wo sie durch die Inspektoren der Überwachungsorganisation verifiziert werden können. Das gesamte überwachungsrelevante Informationssystem, das für die Überwachungsentscheidung von Bedeutung ist, läßt sich an einer begrenzten Anzahl von strategischen Punkten verifizieren. Die Containment- und Surveillance-Maßnahmen werden nach wie vor nur an bestimmten strategischen Punkten in einer Anlage durchgeführt. Die Verifikation von Meßdaten läßt sich in den meisten Fällen auf wenige Punkte beschränken.

Ein Teil der oben erwähnten Arbeiten zur Einführung von Überwachungsmaßnahmen wurde für die Analyse der Ausführungsbestimmungen der Überwachung, die von der Kommission der Europäischen Gemeinschaft als Entwurf angefertigt und den Mitgliedsstaaten der Gemeinschaft zur Diskussion zur Verfügung gestellt wurden, eingesetzt.

Die internationale Entwicklung im Bereich der Kernmaterialüberwachung war u.a. gekennzeichnet durch das deutsch-brasilianische Abkommen über Kooperation im Bereich der Kernenergie, durch die Gründung der "Standing Advisory Group on Safeguards Implementation" (SAGSI) durch den Generaldirektor der IAEA, sowie durch die Festlegung der langfristigen Tätigkeitsbereiche der "European Safeguards Research and Development Association" (ESARDA), in der die F+E.-Arbeiten zur Kernmaterialüberwachung der sieben Kernforschungszentren der Europäischen Gemeinschaft koordiniert werden.

Der deutsch-brasilianische Vertrag hat im wesentlichen dazu beigetragen, die internationale Überwachung von Kernmaterialien noch straffer zu gestalten, wobei auch der Bereich der Anlagen- und "Technologie"-Übertragung in die Überwachung einbezogen wird. Ein Konzept für die Überwachung dieser Bereiche in der Ausführlichkeit, in der es für die Kernmaterialüberwachung ausgearbeitet worden ist, existiert nicht.

Durch die Mitgliedschaft in der SAGSI hat das Projekt die Möglichkeit gewonnen, die Ziele und Ausführungen der Überwachung durch die IAEA unmittelbar mit zu gestalten.

Die Überlegungen, die zur Festlegung der langfristigen Ziele führten, haben gezeigt, daß gerade die ESARDA einen konstruktiven Beitrag zur reibungslosen Einführung der internationalen Kernmaterialüberwachung in kerntechnischen Anlagen der Europäischen Gemeinschaft leisten kann - jedoch nur dann, wenn die einzelnen Mitgliedsstaaten noch gezielter und intensiver ihre F+E.-Arbeiten im Rahmen der ESARDA gemeinsam durchführen.

Die Ergebnisse der Projektarbeiten im Jahre 1975 hatten die folgenden zwei Aspekte ziemlich klar zum Ausdruck gebracht:

1. Die Arbeiten, die im Projekt unmittelbar auf den Problemen der Kernmaterialüberwachung aufgebaut wurden, finden mehr und mehr in anderen nicht überwachungsspezifischen Bereichen ihre Anwendung.
2. Die Aufgaben im Bereich der Kernmaterialüberwachung nehmen in den kommenden Jahren sehr stark zu und können nur durch einen erhöhten Einsatz an Personal und Finanzmitteln seitens der GfK bewältigt werden.

Zu 1) Wie schon im Anfang erwähnt, finden die systemanalytischen Arbeiten ihre Anwendung im Bereich der Umweltbelastung durch Schadstoffe sowie bei den Stoffbilanzen in der chemischen Industrie. Die Meßmethoden werden erfolgreich für die betriebliche Verfolgung von Kernmaterialien sowie für die Überwachung der behördlichen Auflagen eingesetzt. Die Personen-Gamma-Schleuse ist ein wichtiges Element für die Sicherung von kerntechnischen Einrichtungen.

Zu 2) Nach der Vorstellung des Generaldirektors der IAE0 soll SAGSI u.a. die Ziele der IAE0-Überwachung ständig im Licht der technischen Gegebenheiten analysieren und festsetzen. Außerdem sollen technisch effektive und leistungsfähige Systeme für den IAE0 Einsatz empfohlen werden. Da die IAE0 selbst nicht in der Lage ist, F+E.-Arbeiten durchzuführen, hat der Generaldirektor die Mitgliedsstaaten gebeten, diese Arbeiten zu übernehmen. Die USA haben in diesem Zusammenhang ihre massive Unterstützung versichert. Da jedoch die IAE0 ein ausgewogenes Überwachungssystem durchführen soll, in dem auch die Belange der unmittelbar von der Überwachung betroffenen Staaten (wie BRD und Japan) mit berücksichtigt werden sollen, ist es notwendig, daß auch diese Staaten dem Wunsch des Generaldirektors entsprechen. Gerade diese Staaten verfügen über wertvolle Erfahrungen und Kenntnisse in diesem Bereich.

Die prinzipiellen Methoden-Entwicklungen für zerstörungsfreie Meßsysteme innerhalb des Projektes wie auch international kann man als weitgehend abgeschlossen betrachten. Die Erprobung und Verbesserung dieser Systeme sowie deren Anpassung an die spezifischen betrieblichen Bedingungen einer kerntechnischen Anlage erfordern jedoch hohen Aufwand und Zeit. Die Haupt-Erprobung und Einführungsphase der verschiedenen vom Projekt einsetzbaren zerstörungsfreien Meßsysteme liegt noch vor uns. Ähnlich ist es mit den direkten Methoden. Hier kommt noch ein Arbeitsbereich dazu. Mit ständiger Beteiligung an internationalen Methodenvergleichsuntersuchungen (wie SALE, PAFEX usw.) soll die Leistungsfähigkeit der am Projekt beteiligten Laboratorien in internationalem Rahmen verglichen werden.

Im Bereich des Interlaboratoriumstests hat die bisherige Erfahrung gezeigt, daß zuverlässige und verbindliche Daten über erreichbare Genauigkeiten von Meßmethoden nur durch die wiederholte Durchführung von Interlaboratoriumstests, d.h. die Ausführung von Vergleichsanalysen, in möglichst vielen Laboratorien gewonnen werden können. Da diese Daten für die vertraglichen Vereinbarungen zwischen den Anlagenbetreibern und Überwachungsorganisationen zu Rate gezogen werden können, gewinnen sie für die Implementierung der Überwachungsmaßnahmen an Gewicht.

Die Ergebnisse der Arbeiten zur Implementierung von Überwachungsmaßnahmen haben die früheren Vermutungen bestätigt, daß noch erhebliche Arbeiten für die Entwicklung und Erprobung von Überwachungskonzepten für Wiederaufarbeitungs- und Anreicherungsanlagen sowie für fortgeschrittene Reaktortypen geleistet werden müssen. Außerdem verschiebt sich die Bedeutung der einzelnen F+E.-Vorhaben in diesem Bereich. Die Arbeiten zur Bestandsaufnahme, Erstellung von Informationssystemen sowie Erprobung und Einführung von Containment- und Surveillance-Maßnahmen treten mehr in den Vordergrund. Auch die Arbeiten für die Entwicklung von Überwachungssystemen für den nuklearen Brennstoffzyklus als Ganzes bzw. für zusammengesessene Teile des Brennstoffzyklus an einem Ort gewinnen an Bedeutung.

Schließlich zeigen die Ergebnisse des Jahres 1975 eine Verschiebung eines Teils der Projektstätigkeiten von reinen F+E.-Arbeiten zu wissenschaftlich-technisch orientierten gutachterlichen Tätigkeiten. Mehr und mehr entstehen technologische/politische Probleme im Zusammenhang mit der Überwachung von Kernmaterialien, die sich häufig nur aufbauend auf Erfahrung und Kenntnissen des Projektes bearbeiten lassen. Dazu gehören u.a.

- Erarbeitung von Verhandlungsunterlagen, um dem Druck der Kernmateriallieferländer wie USA, verstärkte Überwachungs- und Sicherheitsmaßnahmen in den kerntechnischen Anlagen der BRD vorzusehen, entgegenzuwirken
- Untersuchungen der Auswirkungen der gemeinsam durchgeführten EURATOM/IAEO-Kontrolle in der BRD und Vergleich mit anderen Industriestaaten mit anderen Kontrollverhältnissen

- Analyse der Überwachungsmöglichkeiten von Kernmaterialien, Anlagen und Technologie, die exportiert werden sollen
- Unterstützung der Anlagenbetreiber bei der Auswahl von Meß- oder anderen Techniken für eine Anlage
- verstärkte Mitarbeit bei der IAE0 zwecks rechtzeitiger Berücksichtigung der Gegebenheiten in der BRD

Ende 1975 wurde sowohl dem BMFT wie auch dem Projekt klar, daß die für das Projekt in den nächsten Jahren zur Verfügung stehenden Mittel und das Personal zur Bearbeitung der anstehenden Aufgaben bei weitem nicht ausreichen würden. Deshalb bat das BMFT das Projekt, ein möglichst detailliertes Arbeitsprogramm mit Angaben der Aufgabenbereiche, Zielvorstellungen und des Personalbedarfs nach ausführlichen Diskussionen mit den beteiligten Industrie-, Regierungs- und internationalen Stellen auszuarbeiten.

Ausgehend von diesem detaillierten Arbeitsprogramm kann man die Schwerpunkte der F+E.-Arbeiten des Projektes wie folgt angeben:

1. Systemanalytische Untersuchungen der Ziele nationaler und internationaler Überwachung für Kernmaterialien, Kernanlagen und für Technologie-Übertragung und der Effektivität der Überwachung.
2. Bearbeitung von Überwachungsproblemen in Zusammenhang mit Bestandsaufnahme, Einsatz von Containment- und Surveillance-Maßnahmen, gemeinsam mit EURATOM und den Anlagenbetreibern.
3. Entwicklung und Erprobung von Meßsystemen in Kernanlagen der BRD.
4. Entwicklung und Erprobung von überwachungsrelevanten Informationssystemen in einzelnen kerntechnischen Anlagen sowie für den gesamten Brennstoffzyklus.
5. Entwicklung und Erprobung von Überwachungskonzepten für große Wiederaufarbeitungs- und Anreicherungsanlagen und für fortgeschrittene Reaktortypen und für den Brennstoffzyklus der 80er Jahre.

6. Durchführung von gutachterlichen Tätigkeiten für die Regierung und für die Betreiber der Kernanlagen der BRD.
7. Intensivierung der F+E.-Arbeiten im Rahmen der ESARDA und SAGSI.

Im Jahre 1975 wurden die F+E.-Arbeiten zur Kernmaterial- und Anlagen-sicherung organisatorisch aus dem Projekt herausgenommen. Diese Arbeiten werden deshalb nicht mehr in dem Jahresbericht des Projektes erscheinen.

Kapitel 1: SYSTEMANALYTISCHE ARBEITEN

Seite

1.1	Materialbilanzierung und Datenverifikation R. Avenhaus und N. Nakicenovic	1-1
1.2	Spieltheoretische Behandlung mehrfacher Inventurprobleme H. Frick	1-2
1.3	Anwendung des Materialbilanzierungsprinzips auf andere Probleme R. Avenhaus und G. Hartmann	1-2
	Literaturverzeichnis zu Kapitel 1	1-6

1. Systemanalytische Arbeiten

In diesem Forschungsbereich wurden im wesentlichen die in den vorangegangenen Jahren behandelten Verfahren zur Analyse der Materialbilanzierung und der Datenverifikation weiterentwickelt und zu einem vorläufigen Abschluß gebracht.

Daneben wurde ein Ansatz gemacht, die im Rahmen der Spaltstoffflußkontrolle gewonnenen Erkenntnisse auf diesen Gebieten auf andere Problemstellungen anzuwenden.

1.1 Materialbilanzierung und Datenverifikation

Im August 1974 wurde eine Studie abgeschlossen bei der im Rahmen eines Forschungsvertrages mit der IAEA in Wien an Hand zweier konkreter Beispiele die Fragen der Optimierung eines vorgegebenen Überwachungsaufwandes sowie der Effektivität des IAEA-Safeguards-Systemes analysiert worden waren /1-1/.

Bei dieser Studie war die statistische Abhängigkeit zwischen den Materialbilanzierungstests und den Datenverifikationstests, die sich aus der doppelten Verwendung der vom Anlagenbetreiber gelieferten Daten ergeben, vernachlässigt worden. Die Analyse dieses Problems war der Gegenstand einer größeren Studie, die im Internationalen Institut für Angewandte Systemanalyse (IIASA) in Wien durchgeführt und im Juli 1975 abgeschlossen wurde /1-2/. Es war ein spezielles statistisches Problem aus dem Gebiet der Multivariaten-Statistik numerisch zu lösen; die graphische Darstellung der Lösung ist in Fig. 1-1 wiedergegeben. Die Anwendung auf die Spaltstoffflußkontrolle zeigte, daß in der Tat die erwähnte Korrelation in guter Näherung zu vernachlässigen ist, wodurch eine große Vereinfachung der Bestimmung der Effektivität eines vorgegebenen Überwachungssystems erreicht ist. Eine zusammenfassende Darstellung der Ergebnisse wurde in /1-4/ gegeben, aus der auch die Fig. 1-2 entnommen ist.

Obwohl die Problematik der Datenverifikation in /1-1/ für praktische Zwecke befriedigend behandelt worden war, blieben doch eine Reihe mathematischer Fragen offen. Diese wurden in einer Arbeit behandelt, die als Habilitationsschrift an der Universität Mannheim eingereicht wurde /1-3/.

1.2 Spieltheoretische Behandlung mehrfacher Inventurprobleme

Die Theorie der Materialbilanzierung war seit mehreren Jahren Gegenstand intensiver Untersuchungen; diese Untersuchungen waren von amerikanischer Seite aus angestoßen worden und im Rahmen des Projektes Spaltstoffflußkontrolle mit Hilfe von statistischen und spieltheoretischen Verfahren weitergeführt worden /1-5/.

Auch im Jahr 1975 wurden diese Arbeiten weiter verfolgt, wobei insbesondere die Fragen der Häufigkeit der physikalischen Inventuren sowie der Abhängigkeit der Resultate von den Varianzen der Meßfehler Gegenstand der Untersuchungen waren. Diese Arbeiten wurden auch über das Jahr 1975 hinaus fortgesetzt, sie werden erst gegen Ende 1976 abgeschlossen und in einer Dissertation zusammengefaßt werden.

1.3 Anwendung des Materialbilanzierungsprinzips auf andere Probleme

Es lag nahe, nach der langjährigen Behandlung von Materialbilanzierungsproblemen im Rahmen der Spaltstoffflußkontrolle zu versuchen, die gewonnenen Erfahrungen auf ganz andere Problemstellungen zu übertragen. Zu ersten Ergebnissen hat bei diesem Vorhaben die Behandlung des Kohlenstoff-Kreislaufes der Erde geführt, wobei diese Problemstellung wegen der Sorge, daß der aufgrund der zunehmenden Verbrennung fossiler Kraftstoffe wachsende Kohlendioxid-Gehalt der Erdatmosphäre zu gravierenden Klimaänderungen führen könnte, von besonderer Aktualität ist.

In einer ersten Arbeit /1-6/ wurden sogenannte Boxenmodelle für den Kohlenstoff-Kreislauf (s. Fig. 1-3) mit Hilfe algebraischer Methoden analysiert, wobei insbesondere Gleichgewichtszustände und asymptotische Zustände bei zeitlich begrenzten Störungen behandelt wurden. Diese Arbeiten werden in Zusammenarbeit mit Mitarbeitern des Hahn-Meitner-Institutes in Berlin fortgesetzt, da in diesem Institut experimentelle Arbeiten zu diesem Thema durchgeführt werden und überdies seit längerer Zeit umfangreiches Datenmaterial gesammelt wurde.

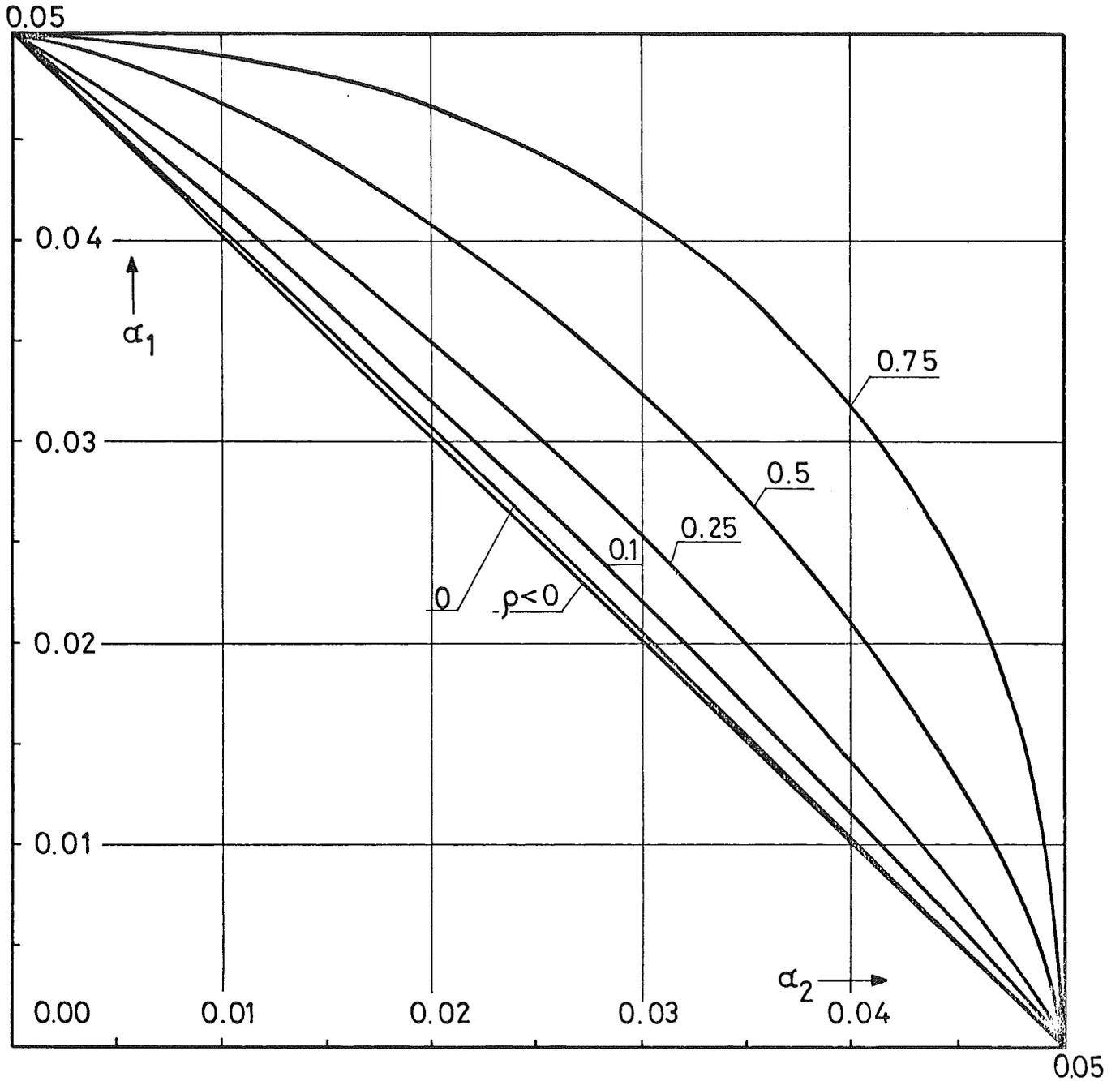


FIG. 1-1: MUTUAL DEPENDENCE OF THE SINGLE TEST FALSE ALARM PROBABILITIES α_1 AND α_2 WITH CORRELATION ρ AS PARAMETER FOR TOTAL FALSE ALARM PROBABILITY $\alpha = 0.05$

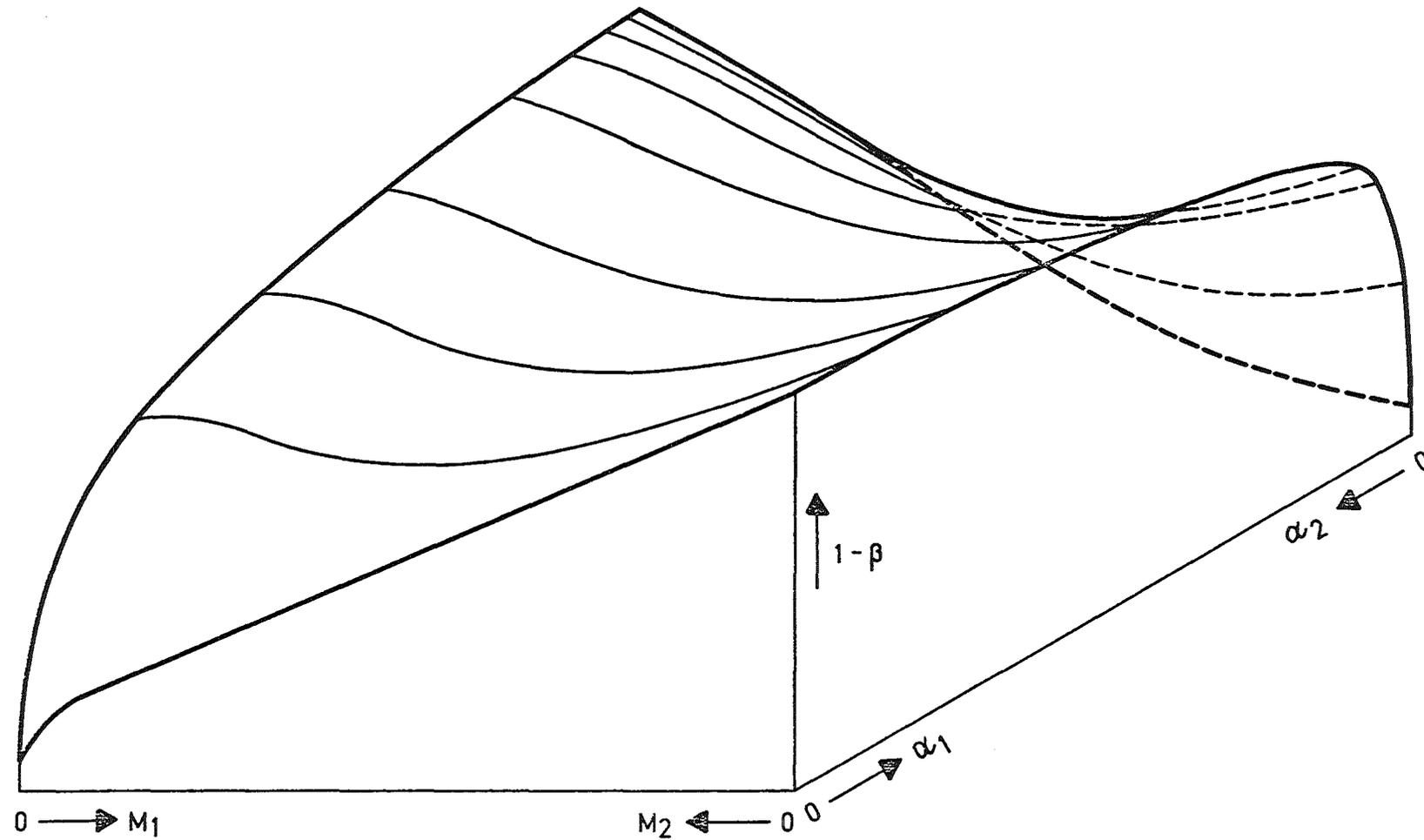


FIG. 1-2 : TOTAL PROBABILITY OF DETECTION $1-\beta$ AS FUNCTION OF AMOUNT M_1 OF MATERIAL DIVERTED AND SINGLE FALSE ALARM PROBABILITY α_1 , WITH $M_1 + M_2 = 10$ [kg], $\alpha = 0.05$ AND $C = 50\%$ OF MAXIMUM EFFORT

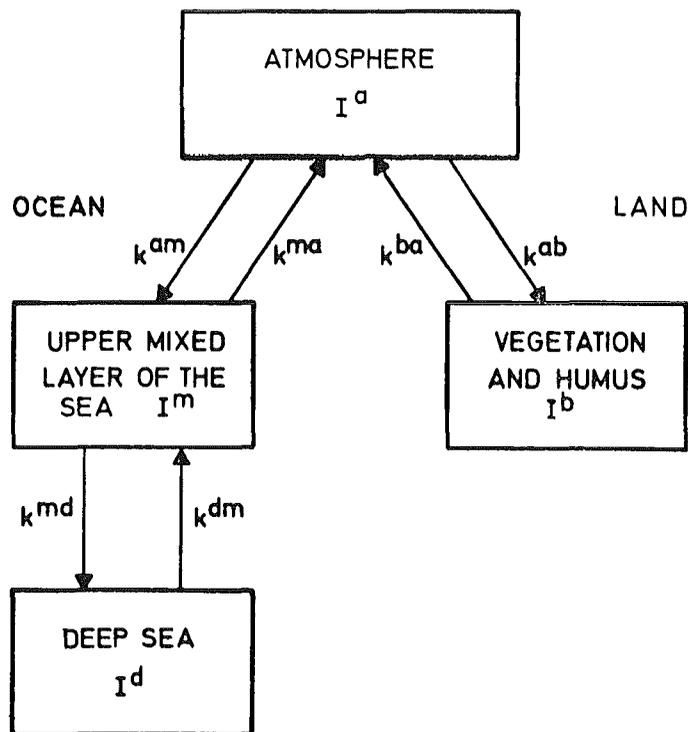


Fig. 1-3: Natural reservoirs of carbon dioxide (based on [8]). I^x is the content of reservoir x , k^{xy} describes the transition from reservoir x to reservoir y .

Literaturverzeichnis zu Kapitel 1

- /1-1/ R. Avenhaus, H. Frick, D. Gupta, G. Hartmann, N. Nakicenovic
"Optimization of Safeguards Effort", KFK 1109, August 1974
- /1-2/ R. Avenhaus, N. Nakicenovic, "Material Accountability and its
Verification: A special Example of Multivariate Statistical
Inference", IIASA Research Report RR-75-25, Laxenburg, Österreich,
Juli 1975
- /1-3/ R. Avenhaus, "Entscheidungstheoretische Analyse von Überwachungs-
problemen in kerntechnischen Anlagen", Habilitationsschrift Universi-
tät Mannheim, Dezember 1974
- /1-4/ R. Avenhaus, "Efficiency of Material Accountability Verification
Procedures - a Case Study", Proceedings of the IAEA International
Symposium on Safeguarding of Nuclear Material, Wien, Oktober 1975
- /1-5/ R. Avenhaus, H. Frick, "Game Theoretical Treatment of Material
Accountability Problems. Part I and Part II". IIASA Research
Reports RR-74-2 und RR-74-21, 1974
- /1-6/ R. Avenhaus, G. Hartmann, "The Carbon Cycle of the Earth -
A Material Balance Approach", IIASA Research Report RR-75-45,
Dezember 1975

Kapitel 2: ZERSTÖRUNGSFREIE METHODEN

	<u>Seite</u>
2.0 Einführung H. Ottmar	2-1
2.1 In-Line-Messung der ²³⁵ U-Anreicherung in einer LWR- Brennelement Fabrikationsanlage H. Ottmar	2-2
2.2 Bestimmung des Gadoliniumgehalts in LWR-Brennstoff- pellets mit Hilfe der Röntgenfluoreszenzanalyse H. Ottmar	2-8
2.3 Messungen zur Plutoniumbestimmung in festen, schwach radioaktiven Abfallstoffen K. Böhnelt, M.R. Iyer, P. Matussek, H. Ottmar	2-14
2.3.1 Durchführung der Arbeiten	2-15
2.3.2 Neutronenkoinzidenzmessung	2-16
2.3.3 Gammamessungen	2-20
2.3.4 Vergleich von Neutronen- und Gammamessungen	2-26
2.3.5 Schlußbemerkung	2-28
2.4 Gammadetektionssystem für Personenschleuse P. Matussek, I. Michel-Piper	2-46
2.4.1 Aufbau und Bedienung des Gammadetektionssystems	2-46
2.4.2 Optimierung der Detektorposition und des Gamma- energie-Fensters	2-50
2.4.3 Messungen zur Nachweiswahrscheinlichkeit von U und Pu	2-52
Literaturverzeichnis zu Kapitel 2	2-57

2. ZERSTÖRUNGSFREIE METHODEN

2.0 Einführung

Die Arbeiten auf dem Gebiet der zerstörungsfreien Meßmethoden zur quantitativen Spaltstoffbestimmung, die 1975 im Rahmen des Projektes Spaltstoffflußkontrolle im Institut für Angewandte Kernphysik (IAK II) sowie im Institut für Neutronenphysik und Reaktortechnik (INR) durchgeführt wurden, konzentrierten sich weniger auf die Neuentwicklung von Methoden als vielmehr auf die praktische Anwendung weitgehend entwickelter Meßverfahren.

In diesem Zusammenhang können die nachstehend dargestellten Arbeiten zur In-Line-Messung der ^{235}U -Anreicherung in einer LWR-Brennelement-Fabrikationsanlage als ein Beispiel dafür angesehen werden, wie die ursprünglich für Zwecke der Spaltstoffflußkontrolle entwickelten Meßverfahren bei ihrer praktischen Anwendung auch für betriebliche Zwecke in der nuklearen Industrie eingesetzt werden können. Der Bericht zu diesem Thema schließt unmittelbar an den Vorjahresbericht |1| an.

Andererseits zeigt das im vorliegenden Jahresbericht dargestellte Beispiel der Plutoniumbestimmung in Abfallstoffen ebenso, daß die entwickelten Meßverfahren auch ein nützliches Instrumentarium zur Überwachung behördlicher oder betrieblicher Auflagen im Zusammenhang mit der Beseitigung radioaktiver Abfälle abgeben. Die Messungen zur Plutoniumbestimmung in festen, schwach radioaktiven Abfallstoffen aus einer Brennelement-Fabrikationsanlage wurden bei der Abteilung Dekontaminationsbetriebe (ADB) der GfK durchgeführt.

Neben den beiden genannten Themen findet sich im vorliegenden Jahresbericht noch ein Kapitel über die Bestimmung des Gadoliniumgehaltes in LWR-Brennstoffpellets. Die Arbeiten hierzu stehen in Zusammenhang mit dem Problem der Spaltstoffbestimmung im gadoliniumvergifteten Brennstoff. Desweiteren wird über die Fertigstellung und Erprobung eines Gammadetektionssystems für eine Personenschleuse berichtet. Die praktische Erprobung erfolgte in einer Schleuse an der SNEAK-Anlage der GfK, wo das System permanent zur Überwachung von Personen auf mitgeführtes Uran oder Plutonium eingesetzt werden wird.

2.1 In-Line-Messung der ²³⁵U-Anreicherung in einer LWR-Brennelement-Fabrikationsanlage

Im Berichtszeitraum sind die Testmessungen mit dem in /1/ beschriebenen Meßsystem zur gammaspektrometrischen In-Line-Messung der ²³⁵U-Anreicherung von UO₂-Pulver in einer Prozeßlinie bei der Fa. RBU fortgesetzt und vorläufig abgeschlossen worden. Wie in /1/ beschrieben, erfolgten die Anreicherungsmessungen an dem UO₂-Pulver direkt innerhalb einer Prozeßlinie an der Stelle, wo das Pulver einer Pelletpresse zugeführt wird.

In einem kontinuierlichen Testrun von ca. 3 Monaten Dauer wurden an dieser Stelle von dem Meßsystem rund 3500 Anreicherungsmeßwerte registriert. Die Ergebnisse und Erfahrungen dieser unter realen Betriebsbedingungen durchgeführten Messungen lassen sich wie folgt zusammenfassen:

1. Das Meßsystem arbeitete zuverlässig und ohne Störungen über die gesamte Zeitspanne der Testperiode. Manuelle Eingriffe in Form eines Schalterumlegens waren nur wenige Male, z.B. nach Netzausfall oder Stromabschaltungen, erforderlich geworden.
2. Negative Auswirkungen der sehr ungünstigen äußeren Meßbedingungen am Pressenbunker (mechanische Erschütterungen, starke Temperaturschwankungen) auf die Meßgenauigkeit wurden nicht festgestellt. Abgesehen von einer erklärbaren Langzeitdrift in der Größenordnung von $\lesssim 0.5$ % sind die aus den zahlreichen Meßwerten berechneten Standardabweichungen konsistent mit den vorhersagbaren Standardabweichungen, die sich aus der Zählstatistik errechnen.
3. Die erreichte Meßgenauigkeit von < 1 % relativ ist voll ausreichend zur Überwachung des Anreicherungsgrades innerhalb der für den LWR-Brennstoff geforderten Spezifikationstoleranzen von 1-2 % relativ.

Zur Verifizierung der absoluten Meßgenauigkeit der von dem In-Line-Meßsystem gelieferten Anreicherungsgrade wurden wiederholt Proben gezogen und nachfolgend im Labor analysiert. Die Laboranalysen erfolgten sowohl massenspektrometrisch

Tab. 2.1/I
Vergleich der Ergebnisse aus In-Line-Messung und Laboranalysen

Tag der Meßperiode	In-Line	Laboranalysen	
	Messung	Mass. Spektr.	Gamma
	Gewichtsprozent $^{235}\text{U} \pm 2 \sigma$		
14	3.209 \pm 0.010	3.196 \pm 0.012	3.217 \pm 0.035
21	3.196 \pm 0.014	3.197 \pm 0.012	3.178 \pm 0.035
29	3.198 \pm 0.011	3.201 \pm 0.012	3.214 \pm 0.035
36	3.169 \pm 0.013	3.176 \pm 0.012	3.178 \pm 0.035
41	3.164 \pm 0.020	3.179 \pm 0.012	3.170 \pm 0.035
43	3.180 \pm 0.020	3.197 \pm 0.012	3.181 \pm 0.035
48	3.177 \pm 0.022	3.190 \pm 0.012	3.187 \pm 0.035
55	3.198 \pm 0.020	3.188 \pm 0.012	3.178 \pm 0.035
59	3.197 \pm 0.017	3.194 \pm 0.012	3.194 \pm 0.035
62	3.195 \pm 0.014	3.190 \pm 0.012	3.187 \pm 0.035
66	3.208 \pm 0.012	3.193 \pm 0.012	3.187 \pm 0.035
69	3.191 \pm 0.013	3.197 \pm 0.012	3.183 \pm 0.035
77	3.193 \pm 0.016	3.190 \pm 0.012	3.207 \pm 0.035
79	2.492 \pm 0.026	2.510 \pm 0.012	2.481 \pm 0.028
80	2.495 \pm 0.020	2.498 \pm 0.012	2.495 \pm 0.028
91	2.487 \pm 0.022	2.496 \pm 0.012	2.488 \pm 0.028

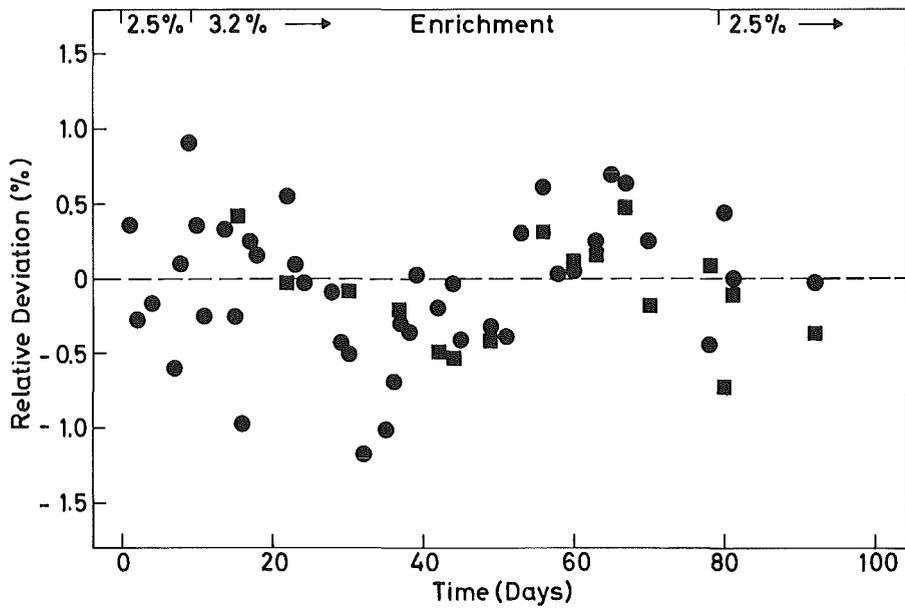


Abb. 2.1/1 Relative Abweichung der Anreicherungsweite aus der In-Line-Messung von Ergebnissen der massenspektr. (Quadrate) und gamma-spektr. (Kreise) Laboranalyse, aufgetragen über dem Tag der Probenahme.

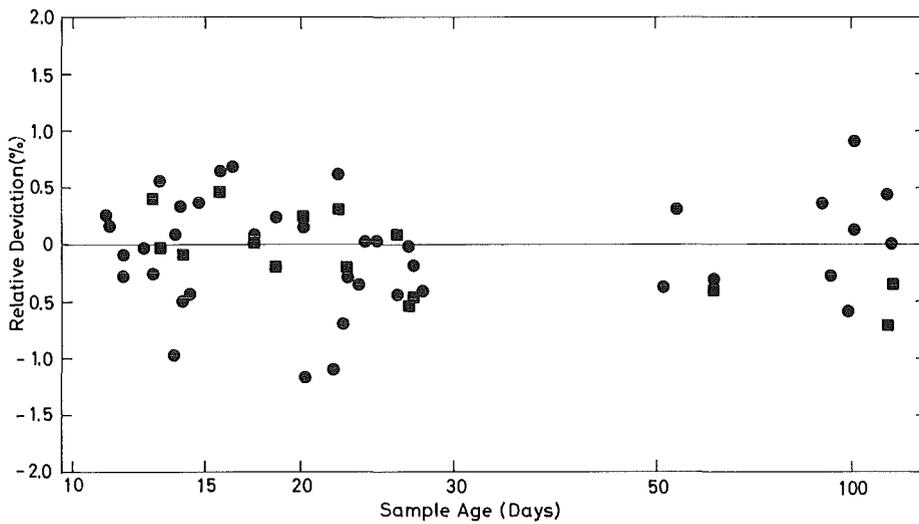


Abb. 2.1/2 Relative Abweichung der Anreicherungsweite aus der In-Line-Messung von Ergebnissen der massenspektr. (Quadrate) und gamma-spektr. (Kreise) Laboranalyse in Abhängigkeit vom Probenalter des UO_2 -Pulvers.

Tab. 2.1/II
Auswertung des Vergleichs von In-Line-Messung
und Laboranalysen

Vergleich	Zahl der Vergleichsanalysen	Mittelwert der relativen Abweichungen (%)	Standard Abweichung der rel. Abweich. (%)
In-Line gegen Mass. Spektr.	16	- 0,083	0,35
In-Line gegen Lab. Gamma	42	- 0,056	0,47
In-Line gegen Labormittelwert	16	- 0,014	0,29
Lab. Gamma gegen Mass. Spektr.	16	+ 0,062	0,48

Tab. 2.1/III

Erreichbare Meßgenauigkeit an der In-Line-Position bei 1000 sec Meßzeit

Probenalter (Tage)	Relative Genauigkeit (1σ) (%)		
	0,7 % ^{235}U	2,0 % ^{235}U	3,5 % ^{235}U
1	0,50	0,23	0,16
10	0,80	0,31	0,20
100	1,35	0,50	0,30

als auch gammaspektrometrisch. Das von der Fa. RBU angewandte Verfahren für die gammaspektrometrische Laboranalyse besteht darin, daß Uranoxidproben zunächst zu U_3O_8 aufoxidiert werden, dann definierte Mengen U_3O_8 -Pulver in Salpetersäure gelöst und anschließend diese Lösungen in einem NaJ-Bohrlochdetektor analysiert werden.

In Tab. 2.1/I sind Anreicherungs-werte aus der In-Line-Messung den Ergebnissen aus den beiden verschiedenen Laboranalysen gegenübergestellt. Die In-Line Meßwerte stellen Mittelwerte aus 10 Einzelmessungen von jeweils 1000 sec Meßzeit dar, die ca. 4 Stunden vor der Probenentnahme erfolgten. Diese Zeitspanne von 4 Stunden entspricht etwa der mittleren Durchgangszeit des UO_2 -Pulvers vom Ort des Detektors am Pressenbunker bis zum Pressenausgang, wo die Proben für die Laboranalyse in Form von Pellets entnommen wurden. Insgesamt wurden 42 gammaspektrometrische und 16 massenspektrometrische Laboranalysen ausgeführt. In Tab. 2.1/I sind nur jene 16 der 42 gammaspektrometrischen Laboranalysen aufgeführt, zu denen auch massenspektrometrische Vergleichsanalysen existieren.

Die relativen Abweichungen der Anreicherungs-werte aus der In-Line-Messung gegen alle Ergebnisse aus den Laboranalysen sind in Abb. 2.1/1 graphisch über der Zeitskala der ca. 3-monatigen Testmessung aufgetragen. Am oberen Bildrand ist der Anreicherungsgrad des während der Testserie verarbeiteten Uranoxidpulvers angedeutet. Zu Beginn der Testperiode war es Pulver mit 2.5 % Anreicherung, danach folgte ca. 2 Monate lang Pulver mit 3.2 % Anreicherung und anschließend wieder Pulver mit 2.5 % Anreicherung.

Die relativen Abweichungen der In-Line-Ergebnisse zu den mit sehr kleinem Fehler angegebenen Massenspektrometerwerten (s. Tab. 2.1/I) liegen bis auf zwei Ausnahmen (-0.53 und -0.72 %) unterhalb von 0.5 %. Insgesamt liegen alle Ergebnisse innerhalb der angegebenen Fehlergrenzen. Eine Auswertung des Vergleichs der verschiedenen Analysenergebnisse ist in Tab. 2.1/II zusammengefaßt. Hier sind für verschiedene Vergleiche die Mittelwerte der relativen Abweichungen ("Bias") sowie deren Standardabweichungen zusammengestellt. Es ergibt sich z.B., daß die Standardabweichung der relativen Abweichungen zwischen In-Line- und Massenspektrometerwerten, d.h. die Standardabweichung der Größen $(^{235}U_{\text{In-Line}} - ^{235}U_{\text{MS}}) / ^{235}U_{\text{In-Line}}$, nur 0.35 % beträgt, während beispielsweise die Laboranalysenergebnisse unter sich eine

Standardabweichung von 0.48 % aufweisen.

Die graphische Darstellung der relativen Abweichungen der In-Line-Meßwerte von den Laboranalysergebnissen deutet eine geringe Langzeitdrift der In-Line-Messung von $\leq \pm 0.5$ % an. Eine Langzeitdrift in dieser Größenordnung überrascht nicht, genügt doch hierfür eine Drift einzelner Komponenten der verwendeten Analogelektronik in der Größenordnung von nur 0.1 - 0.2 %. In der endgültigen instrumentellen Version des In-Line-Meßsystems, die einen Kleinrechner beinhalten wird, ist eine Eliminierung selbst dieser geringfügigen Langzeitdrift zu erwarten.

Bei der Auswertung der Analysergebnisse ist noch einmal die Frage untersucht worden, inwieweit sich die an der In-Line-Position gemessenen Anreicherungs- werte als unabhängig vom Probenalter des Uranoxids erweisen. Dazu sind in Abb. 2.1/2 die relativen Abweichungen der In-Line-Meßergebnisse von den Laboranalysergebnissen in Abhängigkeit vom Probenalter des Uranoxids auf- getragen. Ein durch das Probenalter verursachter systematischer Meßfehler ist anhand dieser Ergebnisse nicht zu erkennen. Dagegen nimmt die bei gleicher Meß- zeit erreichbare Meßgenauigkeit mit zunehmendem Probenalter wegen des sich verschlechternden Peak-zu-Untergrundverhältnisses der 186 keV-Linie (s. z.B. Abb. 2.3/1 in /2/) ab. So ist z.B. der bei gleichem Anreicherungsgrad bis zu einem Faktor 2 unterschiedliche Fehler der in Tab. 2.1/I angegebenen In-Line-Meßwerte auf unterschiedliches Alter des analysierten Probenmaterials zurückzuführen. Die an der In-Line-Position für verschiedenes Probenalter in einer Meßzeit von 1000 sec erreichbaren Meßgenauigkeiten sind in Tab. 2.1/III für verschiedene Anreicherungsgrade zusammengestellt. Dazu ist zu bemerken, daß die ungünstigen Bedingungen an der In-Line-Position, d.h. die Gegenwart großer Uranmengen (100 - 200 kg) sowie die Schwächung der 186 keV-Strahlung des ²³⁵U in der 3 mm dicken Stahlwand des Meßzylinders, ein im Vergleich zu Laborbedingungen inhärent schlechteres Peak-zu-Untergrundverhältnis zur Folge haben. Dieser Umstand wirkt sich insbesondere bei älterem Probenmaterial mit niedriger Anreicherung in der erreichbaren Meßgenauigkeit aus.

Ingesamt sind die während der Testmessungen erzielten Ergebnisse so positiv ausgefallen, daß nunmehr alle Prozeßlinien in der Fabrikationsanlage nach und nach mit einem Anreicherungsmonitor ausgerüstet werden sollen. Zu diesem Zweck ist ein rechnergesteuertes Meßsystem konzipiert worden, mit dessen Einsatz Anfang 1977 zu rechnen ist.

2.2 Bestimmung des Gadoliniumgehaltes in LWR-Brennstoffpellets mit Hilfe der Röntgenfluoreszenzanalyse

Die künstliche Vergiftung eines Teils des Brennstoffs für Siedewasserreaktoren (SWR) mit Gadolinium stellt für die aktiven zerstörungsfreien Meßverfahren zur Spaltstoffbestimmung ein ernsthaftes Problem dar. Diese aktiven Meßverfahren bestimmen die ^{235}U -Anreicherung bzw. den ^{235}U -Gehalt im LWR-Brennstoff durch den Nachweis von Neutronen- und/oder Gammastrahlung aus der induzierten Spaltung von ^{235}U , wobei zur Induzierung der Spaltung meist thermalisierte Neutronen aus einer Neutronenquelle (z.B. ^{252}Cf , PuLi , AmLi) verwendet werden. Wegen des hohen Einfangquerschnitts von Gadolinium für thermische Neutronen können aber die auf diesem Meßprinzip beruhenden Meßgeräte, die mancherorts seit kurzer Zeit zur Spaltstoffbestimmung und zur Qualitätskontrolle an LWR-Brennstäben eingesetzt werden, dieselbe Funktion am Gd-vergifteten Brennstoff nicht ohne weiteres erfüllen. Hinzu kommt, daß beispielsweise bei der Produktion von SWR-Brennstäben aus den Gründen der Qualitätskontrolle neben einer integralen Spaltstoffbestimmung auch der ^{235}U -Anreicherungsgrad und der Gd-Anreicherungsgrad am *einzelnen Pellet* innerhalb bestimmter Toleranzen überwacht werden soll.

Unabhängig davon, ob nun zur ^{235}U -Anreicherungs- und Spaltstoffmessung im vergifteten Brennstoff ein modifiziertes aktives Meßverfahren (z.B. unter Verwendung eines härteren interrogierenden Neutronenspektrums) oder das in /1/ diskutierte Meßverfahren unter Ausnutzung der Gammaeigenstrahlung des ^{235}U angewandt wird, in jedem Fall wird zur Bestimmung der Gd-Anreicherung

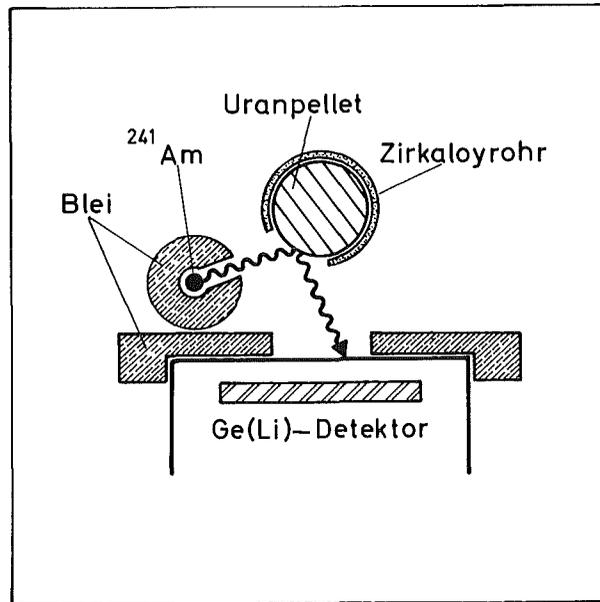


Abb. 2.2/1 Schematischer Querschnitt durch die Meßanordnung zur Bestimmung der Gd-Anreicherung in SWR-Pellets

ein zusätzliches Meßverfahren notwendig. Es ist deshalb untersucht worden, inwieweit die Röntgenfluoreszenzanalyse ein ausreichend schnelles Meßverfahren zur Feststellung der Gd-Anreicherung in UO_2 -Pellets für Siedewasserreaktoren darstellt. Als Proben für diese Untersuchungen standen einige SWR-Pellets mit Gd-Gehalten von 2,3 und 4 % zur Verfügung.

Die K-Absorptionskante in Gadolinium liegt bei 50.24 keV. Als praktische Anregungsquelle zur Induzierung der Gd- K_{α} -Strahlung bietet sich somit ^{241}Am mit seiner 59.54 keV Strahlung an, welches in ausreichenden Quellstärken verfügbar ist. Abb. 2.2/1 zeigt einen Querschnitt durch die benutzte Anordnung von Quelle, Probe und Detektor, die sich angesichts der Zylindergeometrie der Proben nach einigen Vorversuchen als die günstigste erwies. Dabei wurde von vornherein nur eine Messung an der Mantelfläche der Pellets ins Auge gefaßt, weil im Hinblick auf die spätere Anwendung in der Regel nur diese für eine Messung zugänglich ist.

Für die ^{241}Am -Anregungsquelle wurde eine Linienquelle mit einem aktiven Durchmesser von 2 mm und einer Länge von 20 mm gewählt. Sie war in einem Bleiröh-

chen untergebracht, welches mit einem 2 mm breiten Öffnungsschlitz versehen war. Als Halterung für die Pellets diente ein Zirkaloyrohr, in welches eine Aussparung eingefräst war. Da die Pellets, wie aus Tab. 2.2/I ersichtlich ist, zwar alle den gleichen Durchmesser, jedoch verschiedene Längen besaßen, wurde die Aussparung in dem Zirkaloyrohr (6 mm Breite) kleiner gewählt als die Länge des kürzesten Pellets. Dadurch sah die Americiumstrahlung von den Pellets, die in dieser Aussparung angebracht wurden, immer dieselbe Fläche. Als sehr wesentlich für die Messungen erwies sich die Notwendigkeit, alle Strukturmaterialien mit kleiner Ordnungszahl Z aus dem direkten Feld der Gammastrahlung der ^{241}Am -Quelle fernzuhalten.

Tab. 2.2/I
Pelletdaten und Meßgrößen

Mittlerer Durchmesser (mm)	Pelletdaten		Meßgrößen	
	Länge (mm)	Gd ₂ O ₃ Sollwert (Gew. %)	Counts/1000 sec in Gd- K _α -Linie	Gd ₂ O ₃ gemessen (Gew. %)
10.56	10.58	2.0	209 621	2.000 ⁺⁾
10.56	10.61	2.0	213 496	2.03
10.57	8.12	3.0	318 165	3.02
10.57	8.14	3.0	314 812	3.00
10.57	10.52	4.0	404 673	3.83
10.57	10.63	4.0	424 574	4.03

⁺⁾ Normierwert

Die überwiegend inelastische Streuung der primären 60 keV-Strahlung in diesen Materialien hätte den Nachweis der Röntgenstrahlung aus dem Gadolinium erheblich gestört, wenn nicht gar unmöglich gemacht. Aus diesem Grunde sind Materialien

wie Plexiglas oder Polyäthylen denkbar ungeeignet als Probenhalter. Zum Nachweis der induzierten Röntgenstrahlung aus dem Gadolinium stand ein Ge(Li)-Detektor (Durchmesser 38 mm, Dicke 6 mm) mit einer relativ mäßigen Auflösung von 1.9 keV bei 60 keV zur Verfügung.

Parallel zu dem Röntgenfluoreszenzprozeß spielen sich in den für die Röntgenfluoreszenzanalyse ungewöhnlich dicken Proben sowohl kohärente als auch inkohärente Streuprozesse ab, die wesentlich zum gemessenen Röntgenfluoreszenzspektrum beitragen. Einen Überblick über die Verhältnisse in den gemessenen Spektren gibt Abb. 2.2/2. Dargestellt sind die Spektren, wie sie in der Anordnung von Abb. 2.2/1 mit einem gadoliniumfreien Pellet und mit einem Pellet mit 4 % Gd-Anreicherung als Probe gemessen wurden sowie die Differenz der beiden Spektren. Man erkennt deutlich die auf die kohärente Streuung in der Probe zurückzuführende 59.5 keV Photolinie der Am-Strahlung sowie den mit seinem Maximum bei ca. 52 keV liegenden breiten Streupeak aus der ebenfalls in der Probe stattfindenden inkohärenten Streuung (Compton-Streuung). Der Compton-Streupeak überdeckt die 49 keV K_{β} -Linie des Gadoliniums völlig. Dagegen konnte bei der in Abb. 2.2/1 gezeigten seitlichen Anordnung von Quelle und Probe mit einem mittleren Streuwinkel von ca. $100-110^{\circ}$ (dies entspricht einer mittleren Energie der Compton-gestreuten Quanten von ca. 52 keV) der Compton-Streupeak von der K_{α} -Linie des Gadoliniums ($E = 43$ keV) soweit ferngehalten werden, daß die gewünschte Fluoreszenzlinie relativ ungestört analysiert werden konnte.

Die gemessenen Intensitäten der Gd- K_{α} -Röntgenlinie und die daraus abgeleiteten Gd-Anreicherungen sind in Tab. 2.2/I zusammengestellt. Wie aus der Tabelle ersichtlich ist, stimmen die relativ gegeneinander gemessenen Gd-Anreicherungswerte bis auf eine Ausnahme gut mit den angegebenen Sollwerten überein. Dabei ist zu berücksichtigen, daß die Sollwerte nur mit einer Genauigkeit von ± 5 % relativ spezifiziert waren. Es war jedoch nicht vorgesehen, Präzisionsmessungen durchzuführen. Vielmehr sollte die erreichbare Meßgenauigkeit und Meßgeschwindigkeit im Hinblick auf einen möglichen Einsatz des Meßverfahrens zur 100 % Kontrolle der Gd-Anreicherung von SWR-Pellets in einer Brennelementfabrikationsanlage abgeschätzt werden.

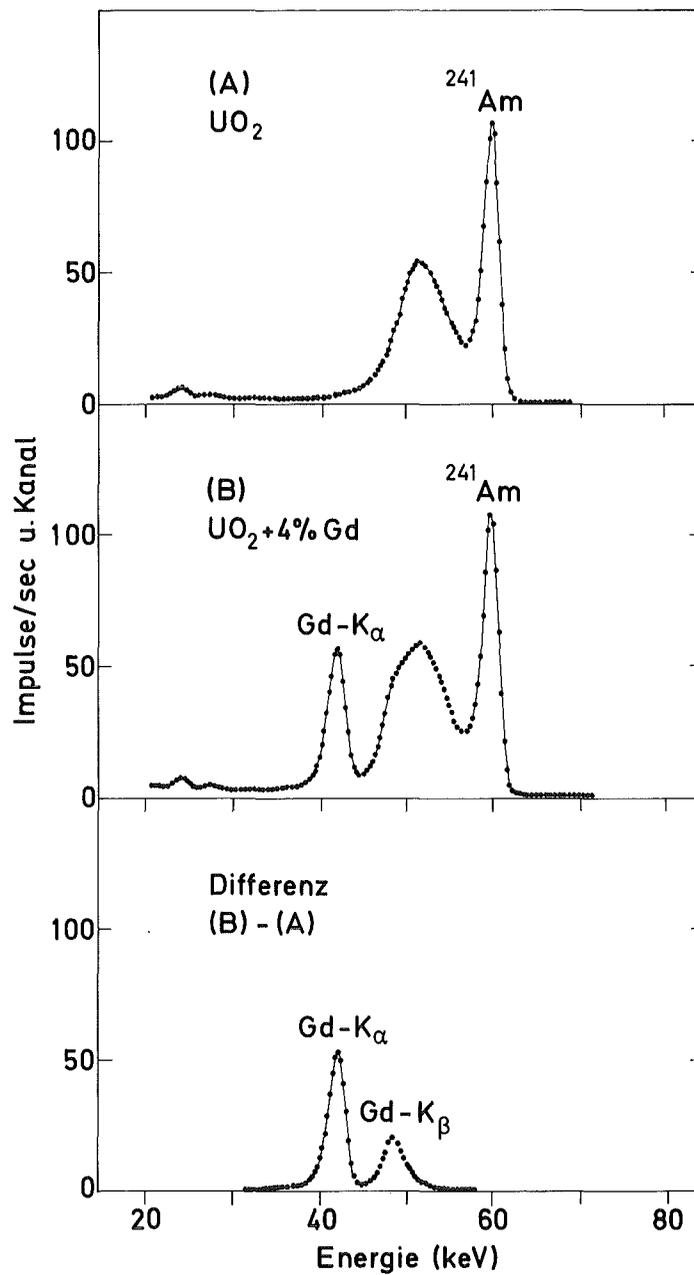


Abb. 2.2/2 Die in der Anordnung von Abb. 2.2/1 gemessenen Spektren von einem reinen UO₂ Pellet (A), von einem UO₂ Pellet mit 4 % Gadoliniumanreicherung (B) sowie die Differenz der Spektren (A) und (B).

Aus den Meßwerten in Tab. 2.2/I kann man ersehen, daß in der gewählten Anordnung ca. 100 Impuls/% Gd und sec in der Gd- K_{α} -Linie registriert wurden. Diese Zählrate kann durch eine symmetrische Anordnung von zwei ^{241}Am -Quellen mit Quellstärken von jeweils 100 mCi leicht um einen Faktor 20 erhöht werden. Damit wäre für den praktisch vorkommenden Gd-Anreicherungsereich zwischen 1 % und 4 % in einer Sekunde eine statistische Meßgenauigkeit von ca. 1 % - 3 % relativ erreichbar. Da die Gd-Anreicherung, anders als die ^{235}U -Anreicherung, nur in prozentual weit auseinanderliegenden Stufen (1,2,3,4%) vorkommt, könnte mithin bei einer Meßgeschwindigkeit von 1 sec/Pellet eine Gd-Anreicherungsverwechslung mit Sicherheit nachgewiesen werden.

Eine besonders für den Einsatz im praktischen Routinebetrieb einer Fabrikationsanlage interessante apparative Vereinfachung könnte darin bestehen, den Germanium-Detektor durch Anwendung der "Balanced-Filter-Technik" durch einfachere NaJ-Detektoren zu ersetzen. Bei dieser Methode werden die Fluoreszenzspektren beispielsweise in zwei symmetrisch zur Probe angeordneten NaJ-Detektoren in Transmission durch zwei verschiedene Filter gemessen, deren K-Kanten energetisch gerade die Energie der zu untersuchenden Röntgenstrahlung einschließen. Geeignete Transmissionsfilter zum Nachweis der K_{α} -Strahlung des Gd ($K_{\alpha 1} = 43.00 \text{ keV}$, $K_{\alpha 2} = 42.31 \text{ keV}$) sind Neodym ($E_K = 43.57 \text{ keV}$) und Praseodym ($E_K = 41.99 \text{ keV}$). Bringt man vor den einen Detektor ein Neodymfilter geeigneter Dicke, vor den anderen Detektor dagegen ein Praseodymfilter, dann wird die Differenz der integralen Zählraten in den beiden Detektoren proportional zur Intensität der K_{α} -Strahlung des Gadoliniums. Versuche in dieser Richtung sind in Vorbereitung.

Es soll noch vermerkt werden, daß die Gd-Anreicherungsmessungen mit der Röntgenfluoreszenzmethode nur an offenen, nicht aber an umschlossenen Pellets möglich sind. Das durchschnittlich ca. 0.9 mm dicke Zirkaloyhüllrohr von SWR-Brennstäben absorbiert ca. 99.6 % der 43 keV Röntgenstrahlung des Gadoliniums, so daß ein Nachweis dieser Strahlung durch das Hüllrohr hindurch praktisch unmöglich wird. Bei Anwendung der Röntgenfluoreszenzmethode müßten demnach die Gd-Anreicherungsmessungen vor dem Einfüllen der Pellets in die Hüllrohre erfolgen.

2.3 Messungen zur Plutoniumbestimmung in festen, schwach radioaktiven Abfallstoffen

Schwach radioaktive Stoffe, die in der Bundesrepublik anfallen, werden im Salzbergwerk ASSE eingelagert. Dazu müssen sie jedoch den von der Gesellschaft für Strahlenforschung (GSF), die ASSE betreibt, festgelegten Einlagerungsbedingungen [3] entsprechen. Darin sind für verschiedene Behältertypen Maximalwerte für die β - γ - und α -Aktivität sowie für den Kernbrennstoffgehalt vorgeschrieben. Die Entsorgung der in verschiedenen Bereichen anfallenden plutoniumhaltigen Abfälle wird über die Abteilung Dekontaminationsbetriebe (ADB) der GfK abgewickelt. Hier werden die in 200- ℓ -Fässern angelieferten Abfälle durch Betonieren oder Bituminieren in die in den Einlagerungsbedingungen festgelegte Form gebracht und anschließend nach ASSE versandt.

Die von den Abfalllieferanten meist als Schätzwerte angegebenen Plutoniumgehalte der bei ADB angelieferten Fässer wurden dort bisher vor dem Konditionieren der Abfallfässer mit einer einfachen Gammameßapparatur überprüft. Ergaben diese Messungen Werte, die über dem für ein einzelnes Faß zulässigen Kernbrennstoffgehalt lagen, so wurde der Inhalt der betreffenden Fässer auf mehrere Fässer aufgeteilt. Auf diese Weise hätte Ende 1975 der Inhalt einer großen Anzahl von 200- ℓ -Fässern mit festen Abfällen aus einer Brennelement-Fabrikationsanlage weiter aufgeteilt werden müssen, weil die bei ADB gemessenen Plutoniummengen über den zulässigen Maximalwerten lagen. Da außerdem die gemessenen Werte z.T. auch deutlich von den angegebenen Schätzwerten abwichen, ist die Abteilung Dekontaminationsbetriebe an die mit zerstörungsfreien Meßmethoden befaßten Mitarbeiter des Projektes Spaltstoffflußkontrolle mit der Bitte herangetreten, eine genauere Ausmessung der fraglichen Fässer vorzunehmen. Dabei sollten als Meßverfahren die sogenannte Neutronenkoinzidenzmethode und die Gammaskopimetrie verwendet werden.

Die Voraussetzungen zur Durchführung der Messungen waren insofern vorhanden, als durch die Arbeiten für das Projekt Spaltstoffflußkontrolle die Methoden bekannt und Laborausführungen der Meßgeräte vorhanden waren. Diese mußten jedoch unter starkem Zeitdruck bei ADB aufgebaut werden, was an einigen Stellen zur Improvisation zwang. Die Anpassung der Geräte und Meßverfahren

an die verschiedenen Probenarten war nicht möglich. Dies bezieht sich sowohl auf die Größe wie die Zusammensetzung der Meßproben. Weiterhin war es nicht möglich, in der Kürze der Zeit genügend viele geeignete Eichstandards zu besorgen, so daß nur ein einziger Standard zur Verfügung stand, der in beiden eingesetzten Apparaturen verwendet werden konnte.

2.3.1 Durchführung der Arbeiten

Die Fässer mit dem zu untersuchenden Material wurden in die große α -Dekontaminationshalle der ADB eingeschleust. Dort wurden sie von Arbeitern der ADB im Vollschutzanzug geöffnet. Die einzelnen Pakete wurden entnommen, gekennzeichnet und - soweit es notwendig und möglich war - in kleinere Einheiten zerlegt, so daß sie in den Meßgeräten ausgemessen werden konnten. Dabei wurden 39 Fässer mit rund 1600 Einzelproben verarbeitet. Mit der Gammaskopimetrie wurden alle Pakete mit Ausnahme jener, die offensichtlich mehrere Kilogramm UO_2 enthielten, ausgemessen. Mit der Neutronenmeßanordnung wurden alle jene Proben erfaßt, die schwere Teile enthielten oder aufgrund der Gammamessung mehr als 0,5 bis 1 g Pu enthalten sollten. Sofern die Zeit es gestattete, wurden auch Proben mit kleinerem Pu-Gehalt gemessen. Randbedingung war allerdings, daß sie in ihren Abmessungen für die Apparatur nicht zu groß waren. In der kontaminierten Halle befand sich der Detektor der Neutronenkoinzidenzapparatur, von dem die Versorgungs- und Signalleitungen in den Kontrollraum geführt wurden. Von der Gammaapparatur befand sich nur die durch eine Bleiabschirmung gebildete Meßkammer im kontaminierten Bereich, da in diesem Fall der Detektor durch ein Fenster "Sichtkontakt" mit der Probe hatte (siehe Abb. 2.3/6). Nach einer Einarbeitung und unter Kontrolle der betreuenden Wissenschaftler wurden die Messungen von Werkstudenten durchgeführt. Diese Operateure hatten durch Fenster Sichtkontakte mit den Arbeitern in der Halle, während des größten Teils der Arbeit zumindest mit einem davon auch Sprechverbindung. Soweit der Inhalt der Proben durch eine Aufschrift oder durch Augenschein näher identifiziert werden konnte, wurde dies im Protokoll festgehalten.

Die Neuartigkeit der Tätigkeit für das Personal brachte Schwierigkeiten mit sich, die im Labor einfach zu umgehen sind. So wurde z.B. zwar gemäß der Anweisung verfahren, den erschütterungsempfindlichen Neutronendetektor und seine Kabel während einer Messung nicht anzustoßen, jedoch wurde zunächst öfter nicht darauf geachtet, daß dazu der Atemschlauch der Vollschutzanzüge in

sicherer Entfernung vom Gerät verlaufen mußte. Die Gammamessungen wurden gelegentlich dadurch gestört, daß aus Platzmangel größere Abfallmengen in der Nähe der Meßzelle gelagert wurden. Da die Bleiabschirmung im α -kontaminierten Bereich den Detektor nicht vollständig gegen die Raumstrahlung aus diesem Bereich abschirmte, führte die große Anzahl der Abfallproben in der Nähe der Meßzelle z.T. zu einer Verfälschung der Meßergebnisse. Es dauerte einige Zeit, bis dieser Fehler vom Bedienungspersonal bemerkt wurde.

Die ausgemessenen Proben wurden unter Beachtung der pro Faß maximal zulässigen Plutoniummenge zu neuen Fässern zusammengestellt. Die zugrundegelegten Werte waren im allgemeinen die der Gammamessung. In einzelnen Fällen wurde, besonders am Anfang der Meßkampagne, der Wert aus der Neutronenmessung genommen, wenn dieser höher lag.

2.3.2 Neutronenkoinzidenzmessung

2.3.2.1 Prinzipielles

Die Neutronenstrahlung der plutoniumhaltigen Proben stammt aus der Spontanspaltung der geradzahligen Plutoniumisotope (Pu-238, Pu-240, Pu-242) und aus (α ,n)-Reaktionen, im wesentlichen an O-18, die sich nach dem α -Zerfall des Pu ereignen. Die Stärke der (α ,n)-Quelle hängt außer von der Pu-Zusammensetzung auch von der chemischen Zusammensetzung (z.B. ob Oxid oder nicht) und von der Verteilung des Materials ab (Größe der Partikel im Verhältnis zur Reichweite der α -Teilchen). Die sogenannte Neutronenkoinzidenzmessung gestattet die Bestimmung der Spontanspaltquelle unabhängig vom (α ,n)-Untergrund. Sie ist eine statistische Analyse des Neutronendetektorsignals und beruht darauf, daß es Spontanspaltungen gibt, bei denen zwei oder mehr Neutronen entstehen. Eine ausführliche Darstellung der Methode mit einer Beschreibung der verwendeten Apparatur ist in | 4 | zu finden.

Die Isotopenzusammensetzung des Plutoniums kann aus der Messung nicht bestimmt werden. Ist sie jedoch bekannt, kann man aus der Stärke der Spontanspaltquelle auf die Gesamtplutoniummenge schließen.

Die Eichung des Geräts erfolgt mit einer oder besser mehreren Standardproben, deren Isotopenzusammensetzung zweckmäßigerweise jener der zu messenden Proben

ähnlich sein wird. Die Gerätekonstanten können von der Meßprobe beeinflusst werden. Beispielsweise verändert eine moderierende Probe die Neutronenlebensdauer des Systems. Deshalb sollte möglichst große Ähnlichkeit zwischen Standard und Probe angestrebt werden.

2.3.2.2 Meßgenauigkeit für Messungen bei ADB

Der relative statistische Meßfehler $\frac{\Delta\rho}{\rho}$ ist näherungsweise gegeben durch (aus Gl. 5.6.9 in [4])

$$\frac{\Delta\rho}{\rho} = \frac{\sqrt{\frac{5}{4} n^2 \cdot \Delta t \cdot T + c \cdot T}}{cT} = \sqrt{\frac{5}{4} \frac{\Delta t}{T} \cdot \left(\frac{n}{c}\right)^2 + \frac{1}{cT}} \quad (1)$$

mit n = Zählrate, c = korrelierte Signalrate, T = Meßzeit, Δt = Zykluszeit. In den meisten Fällen war die Meßzeit $T = 100$ sec, so daß man mit dem gewählten Wert $\Delta t = 80 \mu\text{s}$ erhält:

$$\frac{\Delta\rho}{\rho} = \sqrt{\left(0,1 \cdot \frac{n}{c}\right)^2 + \frac{100}{c} \%} \quad (2)$$

Wie aus Abb. 2.3/1 zu entnehmen ist, liegt $\frac{n}{c}$ für sehr viele Proben im Bereich zwischen 35 und 160. Für eine Koinzidenzrate von $c = 10 \text{ s}^{-1}$, was in etwa der für ein Faß zulässigen Maximalmenge von Plutonium entspricht, ergeben sich somit Fehler von etwa 5 % bis 16 %. In Abb. 2.3/2 sind die gemäß Gl. (2) berechneten Fehler als Funktion der Koinzidenzrate aufgetragen. Die ausgezogenen Kurven entsprechen den oben genannten Grenzen von $\frac{n}{c}$. Man erkennt, daß bei Koinzidenzraten, die kleiner als etwa $0,5 \text{ s}^{-1}$ sind, vielfach der statistische Fehler größer als 30 % wird.

Wie schon bei der Beschreibung der Arbeitsbedingungen angedeutet, traten Störungen auf, wenn der Detektor oder die Kabelverbindung erschüttert wurden. Außerdem wurden zeitweise elektrische Störungen unbekannter Herkunft beobachtet. Dies trat jedoch relativ selten auf, da die Verbindungen des Detektors zu den Verstärkern aus gut abschirmendem Mu-Metall-Kabel bestanden. Alle diese Störungen äußern sich im Auftreten von Schwingungen, die als große Neutronengruppen interpretiert werden. Sie machen sich am stärksten im prompten Zyklus bemerkbar, treten wegen der geringen Triggerrate im verzögerten Zyklus weniger

stark in Erscheinung und erhöhen die Zählrate i.a. nicht sehr stark. Wurden sie während einer Messung als "Springen" der Zähler beobachtet, so wurde die Messung wiederholt. In den Ergebnissen sind Störungen daran zu erkennen, daß hohe Koinzidenzraten bei kleinen Zählraten auftreten. Der umgekehrte Effekt, daß trotz niedriger Koinzidenzraten hohe Zählraten auftreten, kann nicht so erklärt werden. Dazu muß angenommen werden, daß entweder wirklich ein hoher (α, n)-Untergrund vorhanden ist, oder daß infolge hoher γ -Aktivität der Probe die γ -Empfindlichkeit der Zählrohre wirksam sein könnte.

Ein weiterer Fehler entsteht dadurch, daß die Lebensdauer τ der Neutronen im System durch die Proben geändert wird. Mit einem im wesentlichen gleichen System wurde früher diese Änderung gemessen. 500 g Papier in einer 2-l-Dose verursachten bei $\tau \sim 140 \mu\text{s}$ eine Änderung von 5 %. Da das Signal proportional zu $(1 - e^{-\frac{\Delta t}{\tau}})$ ist, ergibt sich durch solche Effekte eine Unsicherheit von etwa 4 %.

Die Abhängigkeit der Empfindlichkeit ϵ von der axialen Probenposition wurde nicht gemessen. Da das Meßvolumen nach oben nicht abgeschlossen ist, kann man sie für die inneren Gebiete des Detektors über die Leckage durch diese Öffnung zu etwa 10 % abschätzen (Zentrum gegenüber einer Position 10 cm darüber). Gegenüber dem Mittelwert eines langgestreckten Standards wird man für Proben bis etwa 25 cm Länge wohl mit 5 % Variation rechnen können. (Das empfindliche Volumen des Detektors war im unteren Teil mit Zellstoff vollgestopft). Dies ergibt Signalunsicherheiten von etwa 10 % (Signal $\sim \epsilon^2$). Messungen mit verschieden positionierter Probe (die Probe war zwischendurch herausgenommen worden) ergaben z.B. für die Probe 577 Werte von $c=16,7$ und $c=19,0$, für die Probe 348 $c=1,93$ und $2,16$.

Bei allen Auswertungen, die die Zählrate verwenden, muß beachtet werden, daß die Untergrundzählrate nicht konstant war. Das liegt u.a. daran, daß der Inhalt der Fässer in der Umgebung des Detektors ausgebreitet und verarbeitet wurde. Der Untergrund scheint aufgrund der im folgenden dargestellten Auswertungen meist um den Wert 50 s^{-1} zu schwanken. Eine Messung über ein Wochenende ergab 47 s^{-1} . Jedoch wurden auch Werte von 24 s^{-1} gemessen.

Aus der letzten Spalte von Tab. 2.3/I kann man den Fehler ersehen, der bei der Plutoniummengenbestimmung aus der gemessenen Koinzidenzzählrate c_0 entsteht, wenn man die Variation der Isotopenzusammensetzung für die verschiedenen Materialchargen vernachlässigt und allen Messungen die Isotopenzusammensetzung des Standards zugrundelegt. Man erkennt, daß man bei Verwendung der Isotopenzusammensetzung des Standards für die verschiedenen Materialchargen Fehler in der Plutoniummengenbestimmung von -7 % bis +26 % macht, wenn keine weitere Korrektur auf den unterschiedlichen Pu-240 Gehalt erfolgt. Nähme man die Zählrate als Maß für den Gehalt an Pu, so würde eine Unsicherheit von Faktoren $\frac{1,83}{1,98}=0,92$ bis $\frac{2,77}{1,98}=1,40$ entstehen, jedoch müßte dazu die Bedingung eingehalten sein, daß es sich bei den Proben um Oxid handelt.

2.3.2.3 Meßergebnisse

Bei der Bestimmung der Plutoniummenge in den einzelnen Proben wurde die Isotopenzusammensetzung, soweit sie bekannt war, berücksichtigt. Für einige Fässer war diese angegeben (s. Tab. 2.3/I). Nach der Beschriftung der in den einzelnen Fässern enthaltenen Proben scheinen diese Angaben jedoch nicht für alle Proben eines Fasses zu gelten, sie könnten aber für deren Mehrzahl repräsentativ sein.

Neben der Isotopenzusammensetzung sind in Tab. 2.3/I für die verschiedenen Materialchargen die pro Gramm Plutonium und Sekunde zu erwartenden Neutronenproduktionsraten n_0 , die Neutronenpaarerzeugungsraten c_0 sowie deren Verhältnis n_0/c_0 angegeben. Zur Berechnung dieser Werte wurden die Nukleardaten aus Tab. 7/I in Ref. [4] benutzt sowie die Annahme gemacht, daß das Plutoniummaterial aus genügend großen Stücken PuO_2 besteht.

Für den Eichstandard mit 1.2 g Pu wurden folgende Werte gemessen:

	Standard + Untergrund	Untergrund	Netto
Neutronenzähl- rate n	84	47	37
Koinzidenzrate c	0.86	0.04	0.82
n/c			45.1

Normiert man die in Tab. 2.3/I angegebenen Werte n_o/c_o auf den für den Eichstandard gemessenen Wert $n/c = 45.1$, so erhält man die in der vorletzten Spalte von Tab. 2.3/I angegebenen Werte. Danach sollten 3 Gruppen von Proben zu unterscheiden sein, nämlich solche mit $n/c \sim 45$, mit $n/c \sim 53$ und $n/c \sim 62$. Macht man die Annahme, daß das Pu als Metall vorliegt (oder daß keine (α, n) -Neutronen entstehen), so ergibt sich $n/c \sim 26$ für alle Proben. In Abb. 2.3/1 würden diese Gruppen auf Geraden liegen. Dies ist offensichtlich nicht der Fall (die Gerade mit der Steigung 45 ist ausgezogen eingezeichnet). Offensichtlich gibt es in vielen Fällen starke zusätzliche unkorrelierte Strahlung. Ist die chemische Zusammensetzung jedoch einheitlich wie z.B. bei einigen Fässern, die Dosen mit Pellets enthalten, erhält man die erwartete Gerade. Dies ist in Abb. 2.3/3 dargestellt, wobei der Untergrund noch nicht abgezogen ist, der von der Uranmatrix stammt. Mit 6 kg UO_2 (nat) aus SNEAK-Plättchen wurde dieser bestimmt. Unter der Annahme, daß die Zusammensetzung die gleiche wie die des Standards ist, ergibt sich der in Abb. 2.3/4 dargestellte Zusammenhang zwischen Masse und Zählrate für die Proben aus Faß 62519. Abb. 2.3/5 zeigt den Zusammenhang für die Proben aus Faß 56687 mit einer deutlich erhöhten (α, n) -Rate.

Die Ergebnisse zwingen dazu, bei Neutronenmessungen für diese Art von Proben die Koinzidenzmessung gegenüber der einfachen Neutronenzählung zu bevorzugen. Letztere ergäbe offenbar in einigen Fällen Abweichungen um den Faktor 5.

2.3.3 Gammamessungen

2.3.3.1 Prinzipielles

Plutonium emittiert eine Vielzahl von Gammalinien, die sich bei Anwendung geeigneter Nachweis- und Analyseverfahren zur quantitativen Plutoniumbestimmung eignen. Die intensivste Gammastrahlung wird von den Isotopen Pu-239 und Pu-241 (bzw. dessen Tochter U-237) emittiert, während die Gammastrahlung von Pu-238 und Pu-240 vernachlässigt werden kann. Bei älteren Plutoniumproben trägt außerdem Am-241, das sich aus dem Zerfall von Pu-241 aufbaut, in einigen Spektralbereichen nicht unwesentlich zur Gesamtintensität bei. Für Plutoniummengen im Abfall sind die Gammalinien des Pu-239 im Energiebereich um 400 keV von größter Bedeutung. Sie besitzen einerseits eine relativ hohe spezifische Aktivität ($\sim 10^4$ Gammas/g sec) und zeigen andererseits aufgrund ihrer Energie von allen

Plutoniumliniennoch das beste Durchdringungsvermögen durch Absorbermaterialien. Dennoch bildet die Selbstabsorption der Gammastrahlung innerhalb der Proben bei vielen Abfallmessungen die größte Fehlerquelle. Auf diesen Effekt kann in vielen Fällen durch eine zusätzliche Transmissionsmessung mit einer externen Quelle mit ausreichender Genauigkeit korrigiert werden. Solche Transmissionsmessungen waren jedoch bei den Abfallmessungen bei ADB wegen der Kürze der zur Verfügung stehenden Zeit leider nicht möglich.

2.3.3.2 Gammaspektrometrische Meßanordnung für die Abfallmessung bei ADB

Für die kurzfristig angesetzte Überprüfung der Abfallproben auf deren Plutoniumgehalt wurden für die gammaspektrometrischen Messungen gerade verfügbare, nicht für diese spezielle Anwendung vorgesehene Hilfsmittel eingesetzt. Eine Skizze der improvisierten Meßanordnung zeigt Abb. 2.3/6.

Zur Festlegung der Position der auszumessenden Abfallbeutel und zur Abschirmung des Gammadetektors gegen die beobachtete intensive Hintergrundstrahlung aus dem α -kontaminierten Bereich ist in diesem α -kontaminierten Bereich hinter einem Doppelfenster, welches den offenen α -Bereich und den Meßraum voneinander trennte, eine Bleiabschirmung aus Harwell-Ziegeln aufgebaut worden. Die einzelnen Abfallbeutel wurden für die Gamma-Messung an die Rückwand dieser Bleiburg gestellt. Von dort gelangte die zu analysierende Gammastrahlung durch das Doppelfenster in einen mit Cadmium und mit Blei abgeschirmten 6" ϕ x 1" dicken NaJ-Detektor. Die Verarbeitung der Detektor-Signale bis hin zur Anzeige des gemessenen Plutoniumgehalts an einem Display erfolgte in einem kommerziell erhältlichen "Stabilized Assay Meter"⁺⁾. Das Gerät enthält die Hochspannungsversorgung für den NaJ-Detektor, Vorverstärker, Hauptverstärker und Amplitudenstabilisierung, zwei Einkanaldiskriminatoren zum Ausblenden von zwei interessierenden Energiebereichen aus einem gemessenen Gammasktrum, einen Vor-Rückwärtszähler, Timer und LED-Display. Außerdem ist das Gerät mit einer arithmetischen Einheit verbunden, mit deren Hilfe die Zählraten in den beiden Einkanaldiskriminatoren unabhängig voneinander zwischen einem Faktor 1-1000 (in Einerschritten wählbar) untersetzt werden können. Damit ist die Möglichkeit gegeben, das Gerät in der Weise zu eichen (die richtige Wahl der Energiebereiche in den beiden Einkanaldiskriminatoren vorausgesetzt), daß die Differenz der geeignet unter-

^{+) Stabilized Assay Meter (SAM-2) der Fa. Eberline, Santa Fe, USA.}

setzten Zählraten in den beiden Einkanaldiskriminatoren direkt die gewünschte Meßgröße, im vorliegenden Fall z.B. Plutoniummenge in Gramm, anzeigt.

Zur Eichung des Gerätes stand nur ein Eichstandard mit einem Plutoniumgehalt von 1.2 g zur Verfügung (Zellstoffwindel mit fein verteiltem Plutonium). Abb. 2.3/7 zeigt das Gammaskpektrum, welches mit diesem Eichstandard in der Meßzelle gemessen worden ist. Für die quantitativen Plutoniumbestimmungen sind in den beiden Einkanaldiskriminatoren des Stabilized Assay Meters die in Abb. 2.3/7 schraffiert angedeuteten Energiebereiche ("Peakfenster" 380 - 470 keV, "Untergrundfenster" 490 - 580 keV) ausgeblendet worden. Die Plutoniummenge wurde aus den Zählraten Z_p im Peakfenster und Z_u im Untergrundfenster ermittelt über die Eichgleichung

$$\text{Pu}(g) = aZ_p - bZ_u.$$

Die Eichkonstanten a , b wurden so gewählt, daß eine Messung der Raumuntergrundstrahlung ohne Eichprobe in der Meßzelle den Plutoniumwert 0 g und eine Messung mit der Eichprobe den angegebenen Plutoniumgehalt von 1.2 g ergab. Die einfache Auswertung gemäß der Eichgleichung erfolgte direkt in dem Stabilized Assay Meter.

Zur Wahl des Peakfensters ist folgendes zu bemerken: anstelle des vollständigen 400-keV-Komplexes wurde zur Analyse nur dessen oberer Teil (380-470 keV) aus dem Spektrum ausgeblendet. Dieser Teil des Spektrums enthält überwiegend Strahlung von Pu-239, wohingegen der gesamte 400 keV-Komplex zu einem beträchtlichen Teil auch Strahlung von Pu-241 und Am-241 beinhaltet. Wegen der hohen spezifischen Aktivität von Pu-241 würde deshalb bei einem Ausblenden des gesamten 400 keV-Peaks die Zählrate in diesem Energiebereich bei gleicher Plutoniummenge je nach dem darin enthaltenen Pu-241-Gehalt ziemlich stark schwanken. Die Folge davon wäre eine beträchtliche Abhängigkeit des Meßergebnisses von der Isotopenhäufigkeit des Pu-241.

In Abb. 2.3/8 ist dargestellt, wie die Verhältnisse im einzelnen aussehen. Aufgetragen sind für verschiedene Isotopenzusammensetzungen der Intensitätsanteil von Pu-241 und Am-241 in dem bei den Abfallmessungen ausgewählten Energiebereich 380 - 470 keV. Zum Vergleich ist der Pu-241 + Am-241-Anteil

im Energiebereich 290 - 470 keV, der den gesamten 400 keV-Komplex einschließt, angegeben.

Die angegebenen Isotopenanalysen für das in den Abfallproben vorhandene Plutonium (siehe Tabelle 2.3/I) zeigten nur eine geringfügige Variation im Pu-239-Gehalt (72.7 bis 78.5 %). Dagegen war für den Pu-241-Gehalt ein Schwankungsbereich zwischen 2.6 % und 6.4 % angegeben. Wäre für die Plutoniumbestimmung die Zählrate im gesamten 400 keV-Komplex (290 - 470 keV) herangezogen worden, so hätte der Fehler im nachgewiesenen Plutoniumgehalt allein aufgrund der unterschiedlichen Pu-241-Gehalte bis zu ca. 40 % betragen. Durch die Wahl des in Abb. 2.3/6 gezeigten Peakfensters (380 - 470 keV) konnte der mit der Variation der Isotopenzusammensetzung verknüpfte Fehler dagegen auf <10 % reduziert werden.

Jeder Abfallbeutel wurde in zwei um 180° gegeneinander gedrehten Positionen jeweils 30 sec lang gemessen. Ergab der Mittelwert aus beiden Messungen einen Plutoniumgehalt von mehr als 1 g, wurde zusätzlich das gesamte Gamma-spektrum der Probe in einem Vielkanalanalysator aufgenommen und danach am Display auf seinen Spektrumsverlauf überprüft. Bei dieser Gelegenheit wurden einige Gammaskpektren beobachtet, die eindeutig nicht auf Plutonium zurückzuführen sind. Zwei Beispiele hierfür finden sich in Abb. 2.3/9. Die Herkunft dieser "Fremdstrahlung" wurde nicht näher identifiziert.

Im Verlauf von ca. 3 Wochen sind insgesamt 1596 Abfallbeutel ausgemessen worden. In dieser Zeit ist die Stabilität der Meßapparatur durch wiederholte Messungen an dem Eichstandard - in der Regel mehrmals täglich - überprüft worden. Insgesamt ließ sich der Plutoniumgehalt des Eichstandards (1.2 g) innerhalb der Meßzeit von 60 sec recht gut reproduzierbar bestimmen.

2.3.3.3 Fehlerabschätzung

Eine genaue Fehlerangabe für die gemessenen Plutoniumwerte ist problematisch, weil eine Korrektur auf Absorptionseffekte in der Probe, die das Meßergebnis wesentlich verfälschen können, bei der verwendeten Meßanordnung in der Eile der Zeit nicht durchgeführt werden konnte. Die Selbstabsorption sollte

indes für die Mehrzahl der Proben nicht sehr gravierend sein, weil diese überwiegend aus leichten Matrixmaterialien bestanden. Die prozentuale Schwächung der 400 keV-Strahlung des Plutoniums in diesen Proben dürfte in den meisten Fällen unter 20 % liegen. Andererseits wurde eine Reihe von Proben ausgemessen, für die aufgrund ihres Gewichtes oder des bezeichneten Inhaltes eine beträchtliche Selbstabsorption der Strahlung in der Probe erwartet werden mußte.

Zur Überprüfung dieses Sachverhaltes wurden an 5 Proben, die zu einem späteren Zeitpunkt noch zur Verfügung standen, Wiederholungsmessungen sowohl mit einem Ge(Li)-Detektor als auch mit einem NaJ-Detektor durchgeführt. Bei diesen Messungen wurde auch eine Korrektur auf Selbstabsorption mit Hilfe einer Transmissionsmessung ausgeführt.

Während bei den Wiederholungsmessungen mit dem NaJ-Detektor die gleichen Energiefenster wie bei den ersten Messungen bei ADB zur Bestimmung des Plutoniumgehaltes verwendet wurden (s. Abb. 2.3/7) ist bei den Messungen mit dem Ge(Li)-Detektor die sehr gut isolierte 414 keV-Linie des Pu-239 zur Analyse herangezogen worden. Der Abstand Probe - Detektor betrug wie bei den ADB-Messungen 60 cm, allerdings wurde bei den NaJ-Messungen anstelle des bei ADB verwendeten 6" x 1" Detektors ein 3" x 3" NaJ-Detektor eingesetzt. Jede der 5 Proben wurde zweimal 1000 sec in zwei um 180° gegeneinander gedrehten Probenpositionen ausgemessen. Die Ergebnisse dieser zunächst auf Selbstabsorption unkorrigierten Wiederholungsmessungen sind in der linken Hälfte von Tab. 2.3/II zusammen mit den Ergebnissen aus den ersten Messungen bei ADB zusammengestellt.

Man sieht, daß alle 3 Messungen für jede Probe angenähert übereinstimmende Plutoniumwerte ergeben. Dabei ist zu bemerken, daß die Meßsysteme bei den Wiederholungsmessungen nicht mit dem 1.2 g Pu-Standard, sondern mit vier verschiedenen, unabhängigen Eichproben (2 NBS-Standards, 2 Pu-Nitrat Standardlösungen) geeicht worden sind. Die Übereinstimmung der Ergebnisse aus den Wiederholungsmessungen mit den ersten Messungen zeigt, daß die frühere, allein auf dem 1.2 g Pu-Standard basierende Eichung für die Meßkampagne bei ADB auch bei größeren Plutoniummengen als zuverlässig anzusehen ist. Anschließend an die Emissionsmessungen wurde an allen 5 Proben eine Transmissionsmessung durchgeführt. Als Transmissionsquelle diente ein SNEAK-Plättchen mit 30 g Pu (90 % Pu-239). Aus der Transmission T, d.h. dem im Falle der NaJ-Messungen im

Energiebereich 380 - 470 keV und bei den Ge(Li)-Messungen für die 414 keV-Linie ermittelten Intensitätsverhältnis $T = [(I_{\text{Probe + Quelle}} - I_{\text{Probe}}) / I_{\text{Quelle}}]$ wurde dann der Korrekturfaktor für die Selbstabsorption berechnet. Dabei wurde für die meist flachen Proben der in Ref. [5] für Stabgeometrie angegebene Korrekturfaktor

$$KF = - \frac{\ln T}{1-T}$$

verwendet.

Die Ergebnisse der in dieser Weise auf Selbstabsorption korrigierten Gammamessungen sind in der rechten Hälfte von Tab. 2.3/II angegeben. Wie man sieht, liegen beispielsweise für die Proben 18 und 32 die korrigierten Werte um einen Faktor 2 bzw. 3 höher als die unkorrigierten Meßwerte. Im allgemeinen liegen die korrigierten Werte aus der Gammastrahlung näher bei den Werten aus der Neutronenmessung, obwohl z.B. für die Proben 18 und 132 weiterhin eine signifikante Differenz zwischen den Ergebnissen der beiden Meßmethoden bestehen bleibt. Es ist nicht auszuschließen, daß der aus einer *einzig*en Transmissionsmessung abgeleitete Korrekturfaktor die Selbstabsorption nicht richtig beschreibt. Dies ist insbesondere dann zu erwarten, wenn die Proben bezüglich ihrer Matrixdichte nicht homogen sind, was äußerlich an den Proben nicht festgestellt werden konnte.

Verglichen mit den Selbstabsorptionseffekten sind die übrigen Fehlergrößen bei den bei ADB durchgeführten Gammamessungen vernachlässigbar. Zu nennen sind hier

- *Zählratenstatistik.* Für den 1.2 g Standard wurden in 1 min. Meßzeit im Peakfenster 6000 Impulse und im Untergrundfenster 1800 Impulse gezählt. Daraus ergibt sich bei einem Plutoniumgehalt von 1.2 g ein Fehler aus der Zählratenstatistik von 2 %.
- *Pu-239 Konzentration.* Der Pu-239 Gehalt der verschiedenen Materialchargen variierte zwischen 72.7 % und 78.5 %. Legt man allen Messungen die Isotopenzusammensetzung des Eichstandards (78.5 % Pu-239) zugrunde, dann ergibt sich aufgrund der Variation in der Pu-239 Konzentration ein maximaler Fehler von 7 % in der Plutoniummengenbestimmung.

- *Pu-241 Konzentration.* Durch geeignete Wahl des Peakfensters konnte der Einfluß der Variation im Pu-241 Gehalt (2.6 % - 6.4 %) auf das Meßergebnis auf <10 % gehalten werden (s. Abb. 2.3/8).
- *Geometrie.* Eine mögliche inhomogene Plutoniumverteilung insbesondere in den größeren Proben wurde durch die beiden Messungen bei zwei um 180° gegeneinander gedrehten Positionen der Proben weitgehend ausgemittelt. Bei 65 % aller Proben differierten die Meßergebnisse in beiden Positionen um weniger als 10 %, bei 25 % aller Proben zwischen 10 % und 20 % und nur bei 10 % aller Proben um mehr als 20 %.

2.3.4 Vergleich von Neutronen- und Gammamessungen

Betrachten wir zunächst jene Messungen, für die sowohl Neutronen- wie Gammamessungen durchgeführt wurden. Dabei sind die Proben mit geringem Plutoniumgehalt unterrepräsentiert, weil viele Proben, für welche die Gammamessung Pu-Gehalte <1 g ergab, mit der Neutronenapparatur aus Zeitgründen nicht gemessen wurden. Andererseits wurden fast alle Proben, die nach der Gammamessung einen hohen Pu-Gehalt haben sollten, auch mit der Neutronenapparatur gemessen. Nur wenige von diesen Proben blieben aus Geometrie Gründen von der Neutronenmessung ausgeschlossen.

Bei dem Vergleich werden allerdings jene Proben nicht berücksichtigt, die mehrere Kilogramm UO_2 enthielten, obwohl diese Proben mit beiden Apparaturen gemessen worden sind. Wegen der hohen Selbstabsorption konnten jedoch aus der Gammamessung von diesen Proben von vornherein keine zuverlässigen Werte erwartet werden.

In Abb. 2.3/10 sind die gemessenen Gammawerte gegen Koinzidenzraten (nicht Massewerte) aufgetragen. Außer der Geraden mit $m_\gamma/c = 1.46$, auf der die Werte gemäß den Daten für den Eichstandard ($m_\gamma/c = 1.2/0.82 = 1.46$) liegen sollten, sind noch die Geraden mit den Steigungen 0.5, 1, sowie 2 eingezeichnet. Man erkennt, daß die Streuung erheblich ist. Für Punkte mit einem zu hohen m_γ/c -Wert könnte eine vom Standard deutlich abweichende Isotopenzusammensetzung verantwortlich sein, während die Punkte mit zu kleinem m_γ/c wahrscheinlich durch beträchtliche Absorptionseffekte bei den Gammamessungen verursacht werden.

Zum Vergleich der Plutoniummengen, die mit der Gamma- und Neutronenmessung gefunden wurden, sind die Proben je nach Plutoniumgehalt in 3 verschiedene Kategorien eingeteilt worden. Die drei Kategorien umfassen Proben mit weniger als 0,2 g Pu, Proben mit 0,2 g bis 2 g Pu und Proben mit mehr als 2 g Pu. Addiert man die Plutoniumgehalte jener Proben, die sowohl mit der Gamma- als auch mit der Neutronen-Meßapparatur gemessen wurden, so erhält man für die verschiedenen Fässer die in Tab. 2.3/III angegebenen Werte. Ebenfalls angegeben ist in dieser Tabelle das Verhältnis von Gamma-wert zu Neutronenwert für die 3 verschiedenen Kategorien. Dabei ist zu bemerken, daß für einige Fässer nur wenige Proben in einer bestimmten Kategorie vorhanden waren, so daß eine schlechte Mittelung erfolgt. Unter "Faß Nr. 99999" ist der Inhalt von ursprünglich 5 verschiedenen Fässern zusammengefaßt. Für die Kategorie von Proben mit weniger als 0,2 g Pu ergibt sich, daß die Gammamessung im Mittel Werte bestimmt, die um einen Faktor 3,24 höher sind als die Werte aus der Neutronenmessung. In der mittleren Kategorie von Proben ist dieser Faktor 1,10. Für die Proben mit mehr als 2 g Pu ergibt die Gammamessung im Mittel Werte, die um den Faktor 0,69 niedriger liegen als die Werte aus der Neutronenmessung. Hierbei ist jedoch zu bemerken, daß in dieser Kategorie auch Proben vorhanden waren, für welche die Gammamessung einen 1,6 - 1,8fach höheren Plutoniumgehalt ergab. Solche Ergebnisse könnten z.B. dadurch erklärt werden, daß bei diesen Proben der Pu-240 Gehalt des Plutoniums deutlich unter dem Wert von 18,3 % des Plutoniums im Eichstandard lag.

Für die Gesamtplutoniumbestimmung in den einzelnen Fässern machen wir die Annahme, die die Neutronenmessung wegen ihrer relativen Unempfindlichkeit gegen die Probenbeschaffenheit insgesamt die verlässlicheren Werte lieferte. Für die mittlere Kategorie von Proben (0,2 bis 2 g) sind die Ergebnisse beider Meßmethoden im Mittel praktisch gleich. Für die Proben mit kleinem Pu-Gehalt sind die Unterschiede in beiden Methoden zwar groß, jedoch ist die Gesamtmenge Plutonium in diesen Proben relativ klein. Für die Kategorie der Proben mit Pu-Gehalten >2 g werden die Ergebnisse aus der Neutronenmessung als die zuverlässigeren angenommen.

In der linken Hälfte von Tab. 2.3/V ist für die angegebenen Fässer die Gesamtmenge Plutonium von jenen Proben angegeben, die sowohl mit der Gamma- als auch mit Neutronenapparatur gemessen wurden. Die Ergebnisse von beiden Messungen sind vergleichend gegenübergestellt. Diese Plutoniummengen stellen nicht die Gesamtmenge an Plutonium in den einzelnen Fässern dar, weil nicht alle Proben aus einem Faß mit beiden Methoden gemessen wurden. Alle in den einzelnen Fässern enthaltenen Proben sind nur mit der Gammaapparatur gemessen worden. Die aus der Gammamessung resultierende Gesamtmenge Plutonium aller Proben eines Fasses ist in der vorletzten Spalte von Tab. 2.3/IV angegeben. Wegen den nicht korrigierten Absorptionseffekten sind diese mit der Gammamethode bestimmten Gesamtmengen sicherlich kleiner als der tatsächliche Plutoniumgehalt. Korrigiert man die gemessenen Gamma-werte gemäß der in Tab. 2.3/III für die verschiedenen Probenkategorien angegebenen mittleren Korrekturfaktoren $\overline{\gamma/n}$, so erhält man die in der letzten Spalte von Tab. 2.3/IV angegebenen extrapolierten Gesamtmengen Plutonium. Diese Werte dürften dem wahren Plutoniumgehalt sehr nahe kommen.

2.3.5 Schlußbemerkung

Die Ergebnisse der beschriebenen Messungen mit der teilweise unbefriedigenden Übereinstimmung zwischen Gamma- und Neutronenmessung entsprechen sicherlich nicht dem gegenwärtigen Stand der Technik auf dem Gebiet der Plutoniumbestimmung in Abfallstoffen. Vielmehr sind bei einer Bewertung der erzielten Ergebnisse die Randbedingungen, unter denen die Messungen durchgeführt wurden, wesentlich mitzuberücksichtigen.

Wie bereits weiter oben diskutiert, stellen die bei der Gammamethode aus Zeitgründen nicht durchgeführten Messungen zur Absorptionskorrektur mit Sicherheit eine ernsthafte Fehlerquelle bei einer Reihe der analysierten Proben dar. Darüberhinaus boten die mangelnde Charakterisierung der Proben und das breite Spektrum der Matrixmaterialien, das von Papier und Zellstoff bis hin zu Dosen mit Kilogrammengen kontaminierten UO_2 -Pulvers oder Pelletschrott reichte sowie die vielfach ungenügende Kenntnis der Isotopenzusammensetzung die denkbar ungünstigsten Voraussetzungen für eine *genaue* quantitative Analyse.

Für zukünftige Messungen werden die Abfallstoffe stärker kategorisiert werden müssen. Dies ist auch in den Einlagerungsbedingungen |3| vorgesehen, wo für verschiedene Abfalltypen unterschiedliche Maximalwerte für die zulässige α -Aktivität spezifiziert werden. Danach wird die in der Nachweiswahrscheinlichkeit empfindlichere Gammamethode zweckmäßigerweise zur Überwachung der als feste, trockene Abfälle kategorisierten Abfallart (Papier, Zellstoff, Plastikmaterial etc. mit max. zulässiger α -Aktivität von 0.05 Ci pro 200-l-Faß) eingesetzt werden, wo Absorptionseffekte in der Matrix gering sein werden und auch leicht zu korrigieren sind. Demgegenüber wird die gegen Matrixeffekte unempfindlichere Neutronenmessung vorteilhafterweise zur Überwachung der als formbeständig charakterisierten Abfälle wie aktivitierte oder kontaminierte Teile, Pelletschrott etc. (max. zulässige α -Aktivität 2 Ci pro 200-l-Faß) verwendet werden.

Verzeichnis der Tabellen zu Abschnitt 2.3

- Tab. 2.3/I Isotopenzusammensetzung und spezifische Neutronendaten für die verschiedenen Materialchargen.
- Tab. 2.3/II Vergleich der Ergebnisse mehrerer Gammamessungen mit und ohne Absorptionskorrektur mit den Ergebnissen aus der Neutronenmessung für 5 Abfallproben. Die angegebenen Werte sind Plutoniummengen in Gramm.
- Tab. 2.3/III Vergleich von Plutoniummengen (Gramm) aus der Gamma- und Neutronenmessung.
- Tab. 2.3/IV Ermittlung des Plutoniumgehalts für jene Fässer, an denen Gamma- und Neutronenmessungen durchgeführt wurden. Mengenangaben in Gramm.

Tab. 2.3/I

Isotopenzusammensetzung und spezifische Neutronendaten für die verschiedenen
Materialchargen

Charge	Pu-238	Pu-239	Pu-240	Pu-241	Pu-242	Neutronen- prod. n_o pro g u. sec	Neutronen- paarpr. c_o pro g u. sec	$\frac{n_o}{c_o}$	$\left(\frac{n_o}{c_o}\right)$ c_o norm	$\frac{c_o}{c_o}$ Stand.
Nr. 1	0.08	72.67	22.80	3.59	0.86	352.2	192.0	1.83	41.7	1.26
Nr. 2	0.12	75.61	20.16	3.46	0.65	328.9	169.3	1.94	44.2	1.11
Nr. 3	0.14	74.00	21.45	3.40	1.01	353.4	185.0	1.91	43.5	1.22
Nr. 4	0.17	76.09	18.88	4.05	0.81	328.3	162.7	2.01	45.8	1.07
Nr. 5	0.49	73.73	17.92	6.26	1.45	398.3	171.5	2.32	52.9	1.13
Nr. 6	0.63	77.86	14.06	6.24	1.21	383.7	140.9	2.72	62.04	0.93
Nr. 7	0.64	77.85	14.07	6.23	1.21	386.0	141.2	2.73	62.2	0.93
Nr. 8	0.68	77.62	14.09	6.39	1.22	395.3	142.4	2.77	63.1	0.94
Standard	0.10	78.50	18.30	2.60	0.50	302.2	152.1	1.98	45.1	1.000

Tab. 2.3/II

Vergleich der Ergebnisse mehrerer Gamma-Messungen mit und ohne Absorptionskorrektur mit den Ergebnissen aus der Neutronenmessung für 5 Proben aus dem Alkem-Abfall. Die angegebenen Werte sind Plutoniummengen in Gramm.

Probe	Gamma-Messungen			Neutronenmessung		
	ohne Absorpt. Korrektur			mit Absorpt. Korrektur		
	6" x 1" NaJ ⁺)	3" x 3" NaJ	37 cm ³ Ge(Li)	3" x 3" NaJ	37 cm ³ Ge(Li)	
18	5.62	8.37	5.71	13.6	11.0	21.2
28	6.45	9.24	6.92	10.4	9.73	8.74
32	11.1	12.0	11.7	35.7	33.3	33.7
132	8.0	7.20	6.60	8.56	9.96	17.0
164	4.65	4.15	3.40	4.90	5.40	6.58
1.2 g Stand.	-	-	1.29	-	1.34	-

⁺) Diese Werte wurden während der Meßkampagne bei ADB gemessen.

Tab. 2.3/III

Vergleich von Plutoniummengen (Gramm) aus der Gamma- und Neutronenmessung

Faß- Nr.	Proben mit m < 0.2 g			Proben mit 0.2 g < m < 2 g			Proben mit m > 2 g		
	n	γ	γ/n	n	γ	γ/n	n	γ	γ/n
56687	0.14	0.19	1.32	10.99	13.87	1.26	12.87	8.46	0.66
56690	0.0	0.0	1.32	1.76	1.39	0.79	11.39	4.18	0.37
56694	0.16	0.67	4.13	0.0	0.0		7.06	4.53	0.64
57942	0.29	1.03	3.55	4.65	5.29	1.14	37.88	15.98	0.42
58963	0.0	0.0		4.89	9.56	1.96	61.29	44.65	0.73
58966	0.0	0.0		7.82	6.69	0.86	0.0	0.0	
58967	0.0	0.0		0.45	0.44	0.99	6.76	5.96	0.88
60347	-0.10	0.17		0.0	0.0		11.53	16.67	1.45
61211	0.0	0.0		6.36	5.94	0.93	9.60	7.49	0.78
61213	0.0	0.0		3.61	3.32	0.92	0.0	0.0	
61742	0.17	0.51	2.97	1.20	1.75	1.46	33.84	14.03	0.41
61750	0.0	0.0		3.15	3.78	1.20	7.17	5.15	0.72
63725	0.0	0.0		1.20	1.09	0.91	7.76	6.70	0.86
64789	0.32	0.79	2.46	5.03	5.50	1.09	58.78	27.00	0.46
65582	0.0	0.0		4.13	4.91	1.19	26.89	21.45	0.80
65586	0.11	0.12	1.06	2.59	1.42	0.55	83.72	31.11	0.37
65587	0.0	0.0		2.72	2.60	0.96	8.97	16.18	1.80
65592	0.23	0.49	2.12	5.22	8.83	1.69	0.0	0.0	
65949	0.23	0.55	2.41	2.56	1.62	0.63	31.30	29.45	0.94
65950	0.19	0.53	2.85	2.21	5.37	2.43	25.97	41.75	1.61
65951	0.17	0.34	2.05	1.30	2.44	1.87	8.19	11.38	1.39
65952	0.0	0.0		0.0	0.0		43.40	19.07	0.44
65955	0.20	0.44	2.19	4.60	3.72	0.81	8.77	5.81	0.66
65970	0.44	0.80	1.83	7.44	8.40	1.13	12.40	16.20	1.31
65977	0.12	0.51	4.29	3.35	3.95	1.18	24.81	21.14	0.85
65979	0.0	0.0		0.0	0.0		33.50	30.07	0.90
65980	0.12	0.78	6.28	9.20	8.70	0.95	40.37	12.90	0.32
65981	0.80	1.77	2.21	4.92	5.77	1.17	16.17	18.03	1.12
99999	3.09	11.94	3.86	30.59	28.09	0.92	246.70	169.91	0.69
Summe	6.68	21.63	$\gamma/n=$ 3.24	131.93	144.50	$\gamma/n=$ 1.10	877.10	605.27	$\gamma/n=$ 0.69

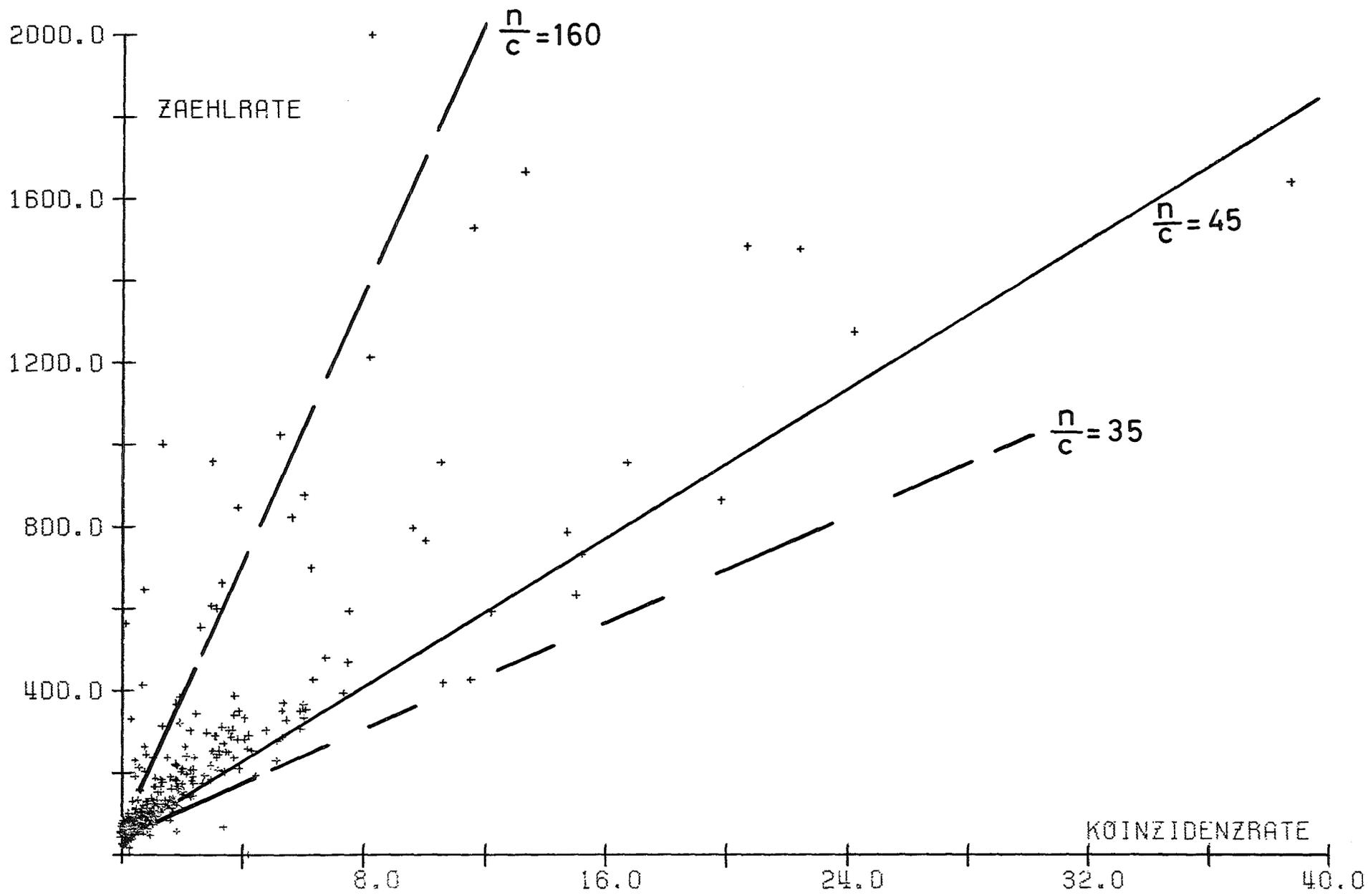
Tab. 2.3/IV

Ermittlung des Plutoniumgehalts für jene Fässer, an denen Gamma- und Neutronenmessungen durchgeführt wurden. Mengenangabe in Gramm.

Faß-Nr.	Pu-Gehalt aller Proben, für die n- und γ -Werte existieren (Teilmenge)			Pu-Gehalt aller Proben (Gesamt- menge aus γ -Mess.)	Extrapolierter Ges.-Pu-Gehalt nach Umrechnung gem. Tab. 2.3/III
	n	γ	n/ γ		
56687	24.00	22.52	0.94	54.30	69.14
56690	13.15	5.57	0.42	9.45	10.72
56694	7.23	5.20	0.72	28.70	39.62
57942	42.83	22.30	0.52	27.67	32.00
58963	66.18	54.21	0.82	62.58	85.94
58966	7.82	6.69	0.86	14.11	11.45
58967	7.21	6.40	0.89	12.92	13.70
60347	11.43	16.84	1.47	41.18	57.28
61211	15.96	13.43	0.84	19.39	19.77
61213	3.61	3.32	0.92	9.35	9.40
61742	35.21	16.29	0.46	18.23	23.27
61750	10.32	8.93	0.87	20.43	19.33
63725	8.97	7.79	0.87	11.81	13.63
64789	64.13	33.29	0.52	44.70	51.36
65582	31.02	26.36	0.85	33.58	41.80
65586	85.57	32.64	0.38	35.46	45.32
65587	11.69	18.78	1.61	22.30	28.08
65592	6.22	9.32	1.50	12.48	11.39
65949	34.09	31.62	0.93	31.78	44.54
65950	36.84	47.65	1.29	56.37	79.42
65951	9.66	14.16	1.47	15.85	20.95
65952	43.40	19.07	0.44	26.35	37.19
65955	15.51	9.97	0.64	15.30	16.56
65970	20.27	25.40	1.25	30.02	34.76
65977	28.28	25.61	0.91	48.49	62.81
65979	33.50	30.07	0.90	33.62	46.94
65980	49.69	22.38	0.45	27.69	32.46
65981	25.02	25.57	1.02	28.24	33.77
99999	280.38	209.94	0.75	260.45	345.07

Verzeichnis der Abbildungen zu Abschnitt 2.3

- Abb. 2.3/1 Neutronenzählrate und Koinzidenzrate für alle Proben mit Ausnahme der schweren UO_2 -Dosen.
- Abb. 2.3/2 Der aus prompter und verzögerter Koinzidenzrate berechnete statistische Fehler des Nettokoinzidenzsignals als Funktion eben dieses Signals.
- Abb. 2.3/3 Messungen am Faß 62519.
- Abb. 2.3/4 Messungen am Faß 62519.
- Abb. 2.3/5 Messungen am Faß 56687.
- Abb. 2.3/6 Gammaskopmetrische Meßanordnung für die Abfallmessungen bei ADB.
- Abb. 2.3/7 Gammaskopmetrisches Eichstandard (1.2 g Pu), gemessen in der Anordnung von Abb. 2.3/6. Der angegebene Isotopenvektor bezieht sich auf den Eichstandard.
- Abb. 2.3/8 Prozentualer Anteil von Gammastrahlung aus Pu-241 und Am-241 im Energiebereich 380 - 470 keV (Meßfenster für Messungen bei ADB) und 290 - 470 keV (gesamter '400 keV Komplex') bei verschiedenen Isotopenzusammensetzungen des Plutoniums.
- Abb. 2.3/9 Vergleich eines Gammaskopmetrischen Spektres von Plutonium (a) mit Spektren von 2 Abfallproben (b,c), die im Dez. 75 bei ADB gemessen wurden.
- Abb. 2.3/10 Vergleich der Meßwerte aus Gammamessung und Neutronenkoinzidenzmessung.



2-36

Abb. 2.3/1 Neutronenzählrate und Koinzidenzrate für alle Proben mit Ausnahme der schweren UO_2 -Dosen

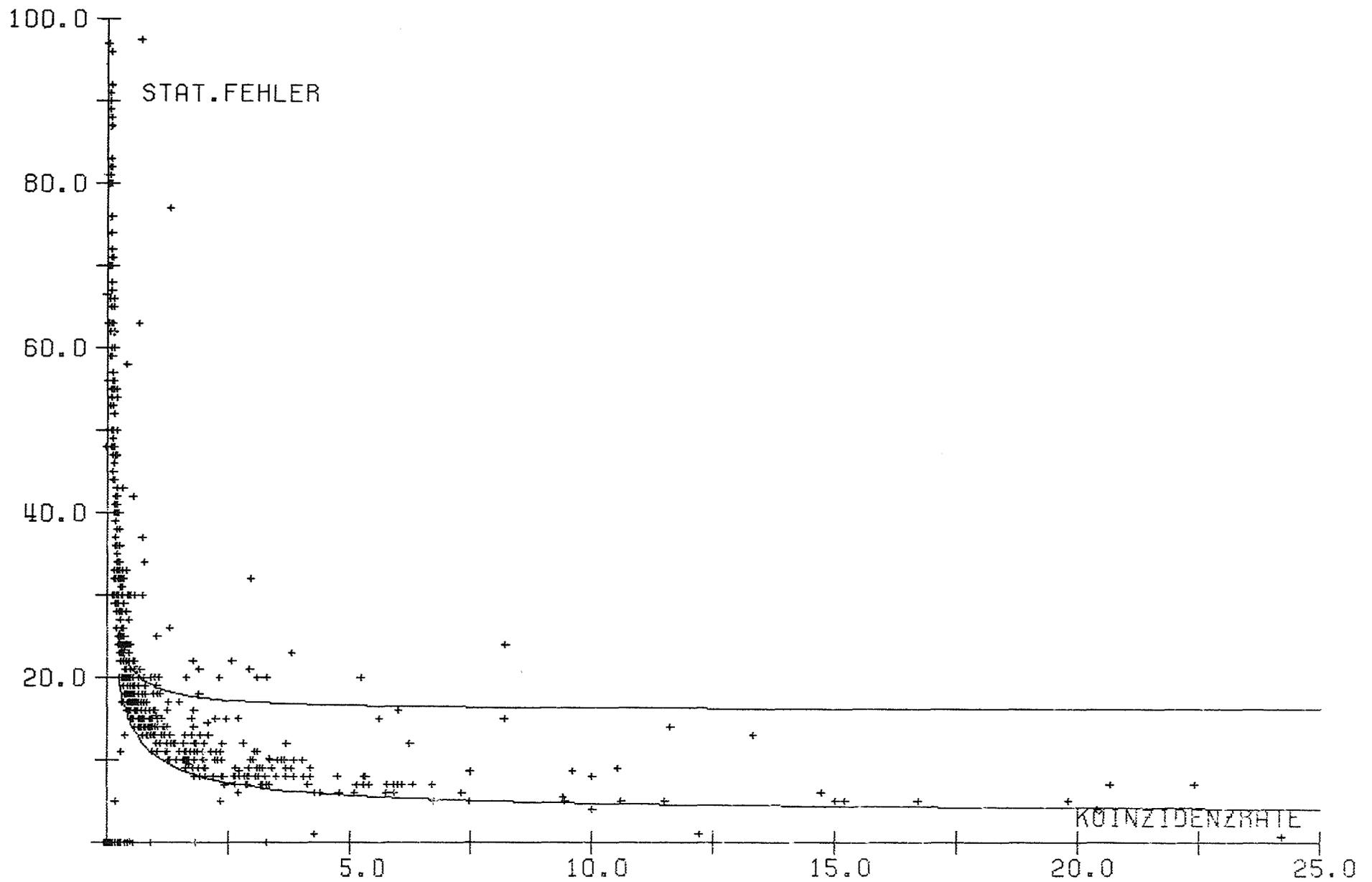


Abb. 2.3/2 Der aus prompter und verzögerter Koinzidenzrate berechnete statistische Fehler des Nettokoinzidenzsignals als Funktion eben dieses Signals

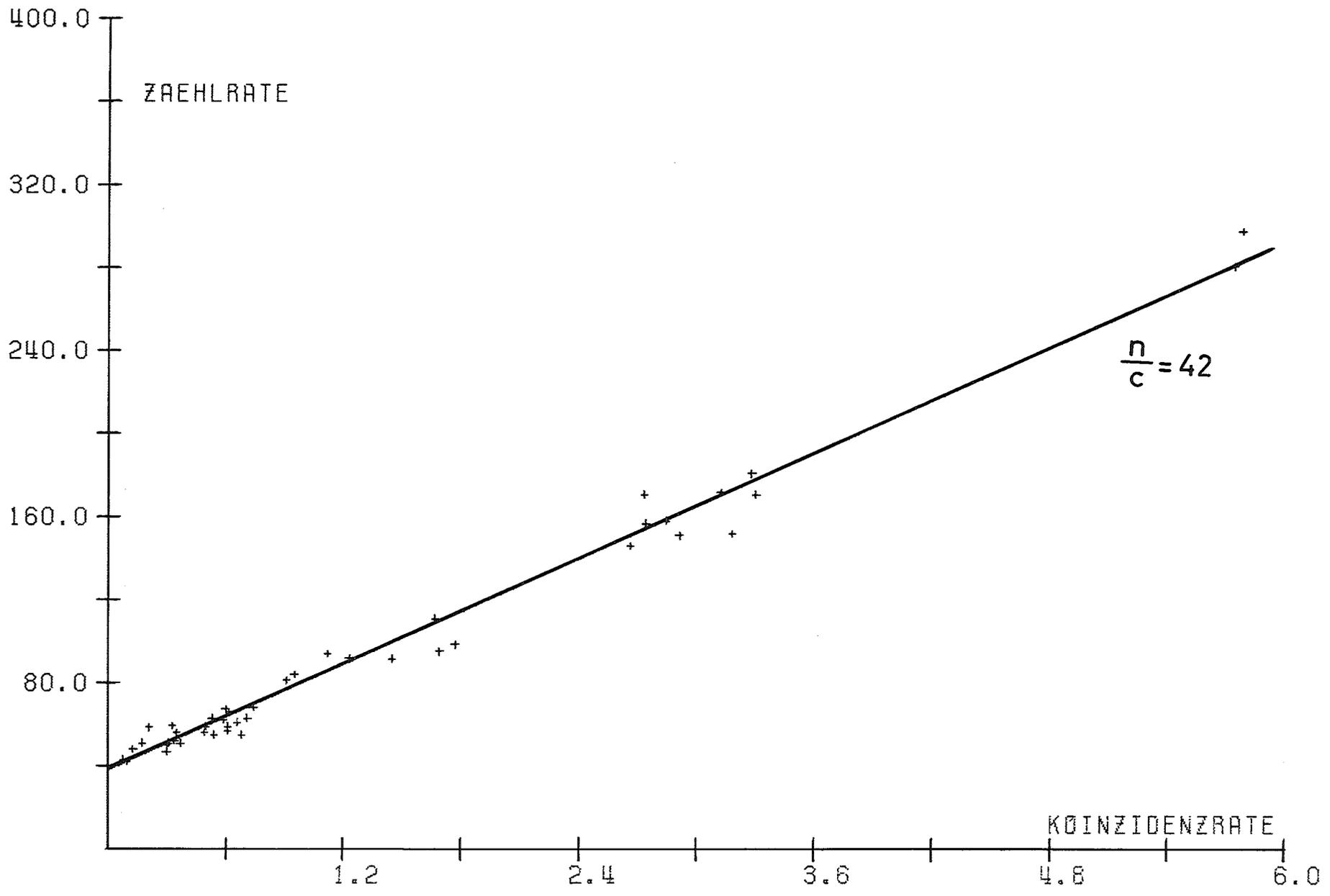


Abb.2.3/3 Messungen am Faß 62519

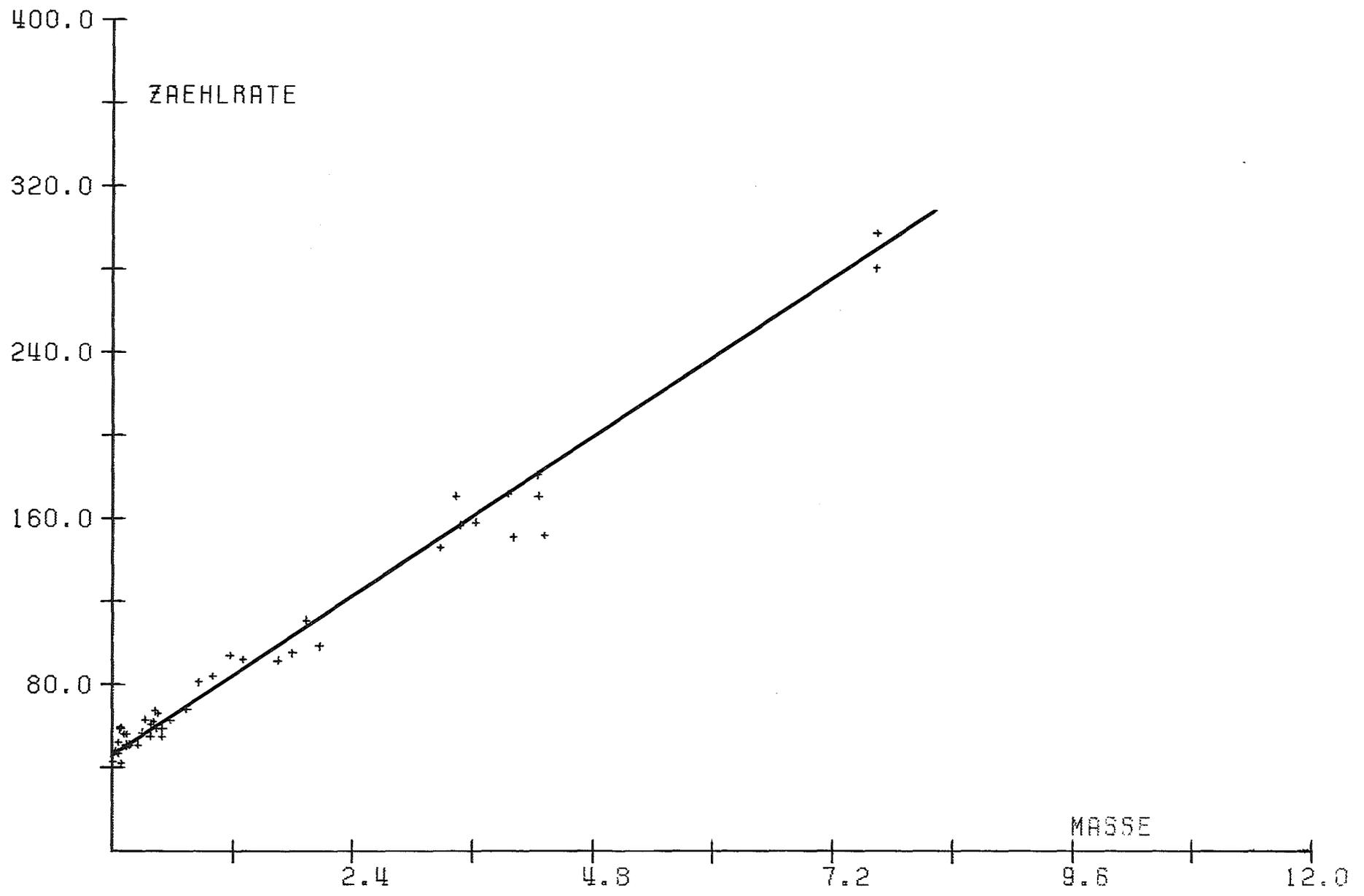


Abb. 2.3/4 Messungen am Faß 62519

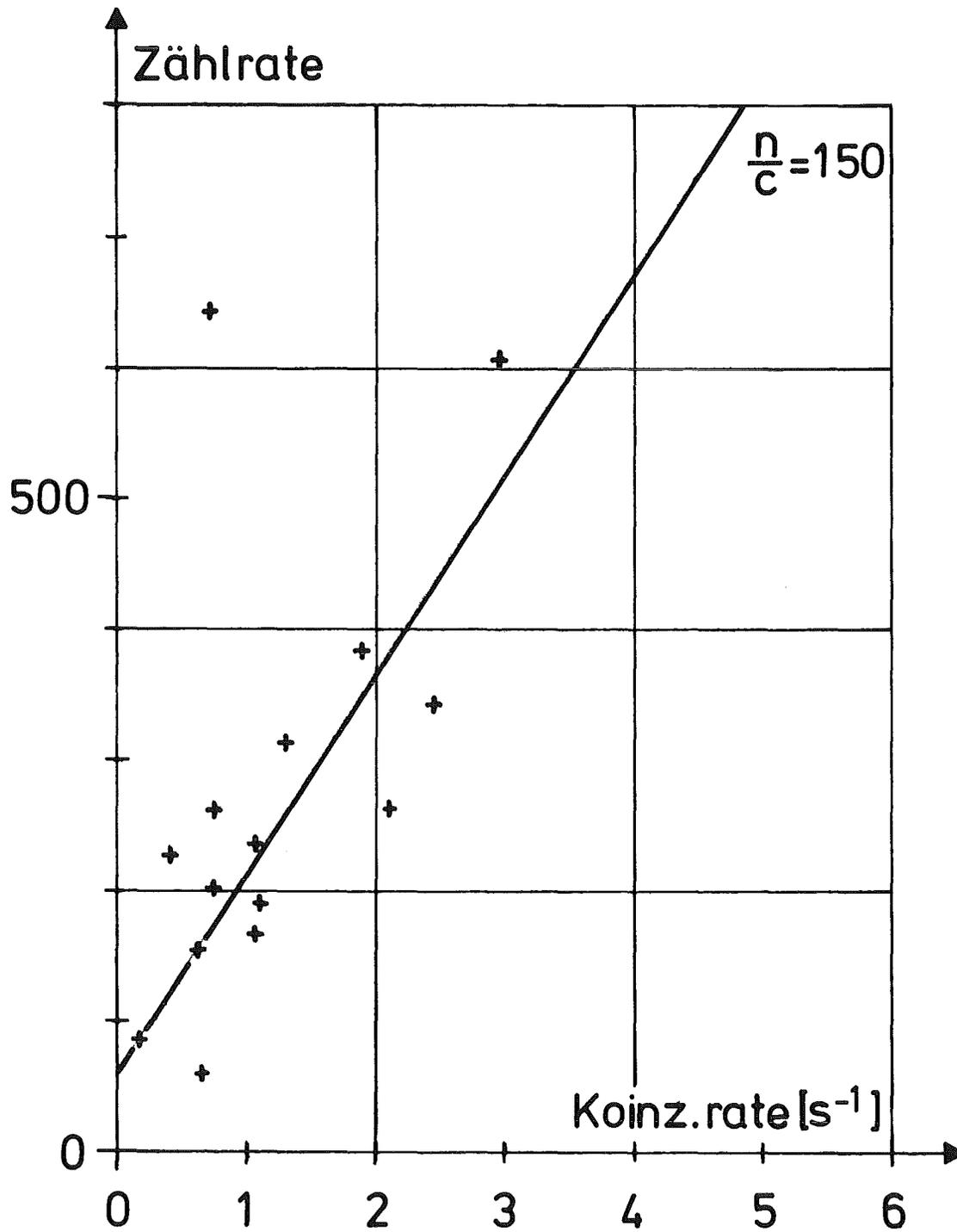


Abb. 2.3/5 Messungen am Faß 56687

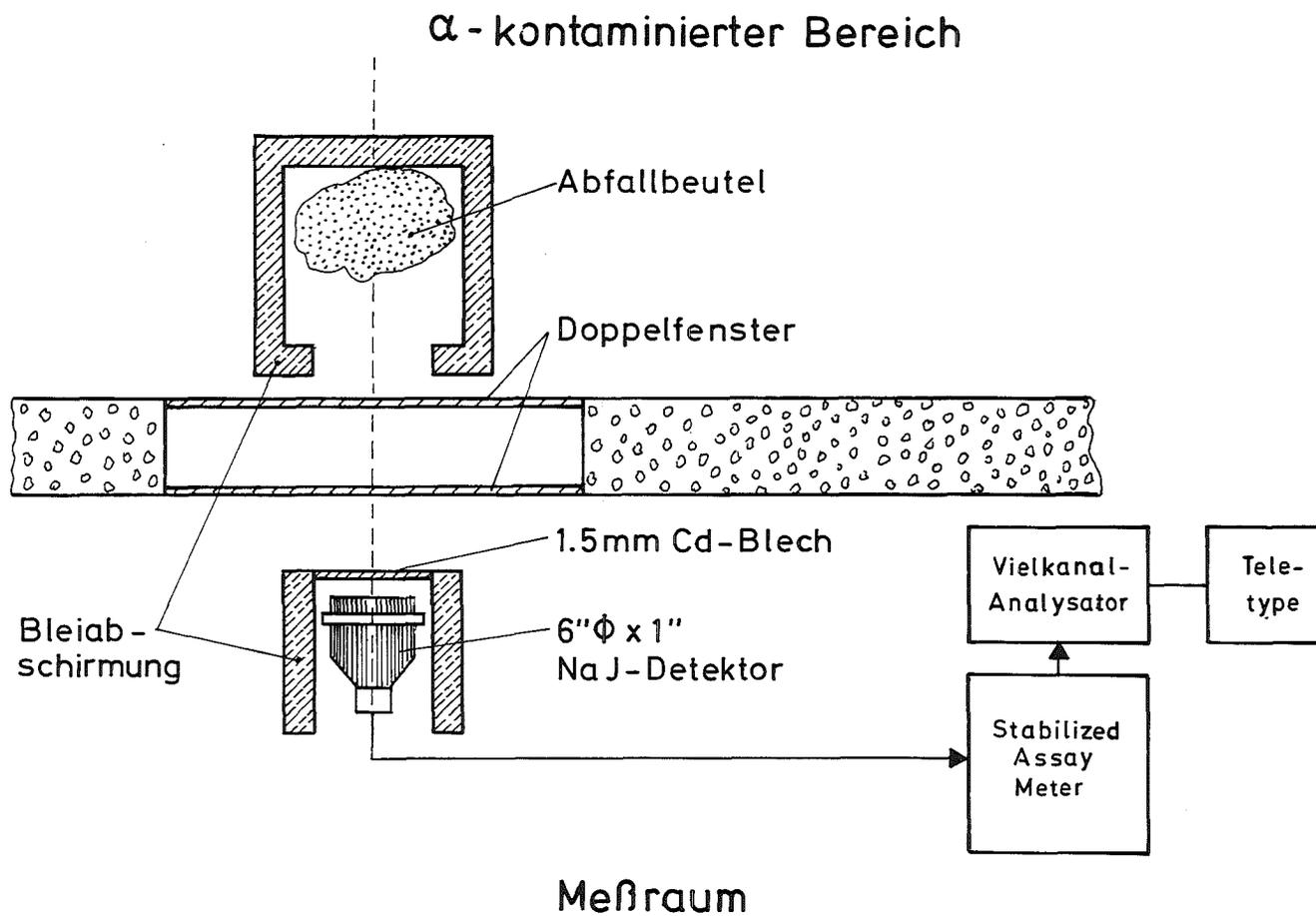


Abb. 2.3/6 Gammaskopmetrische Meßanordnung für die Abfallmessungen bei ADB

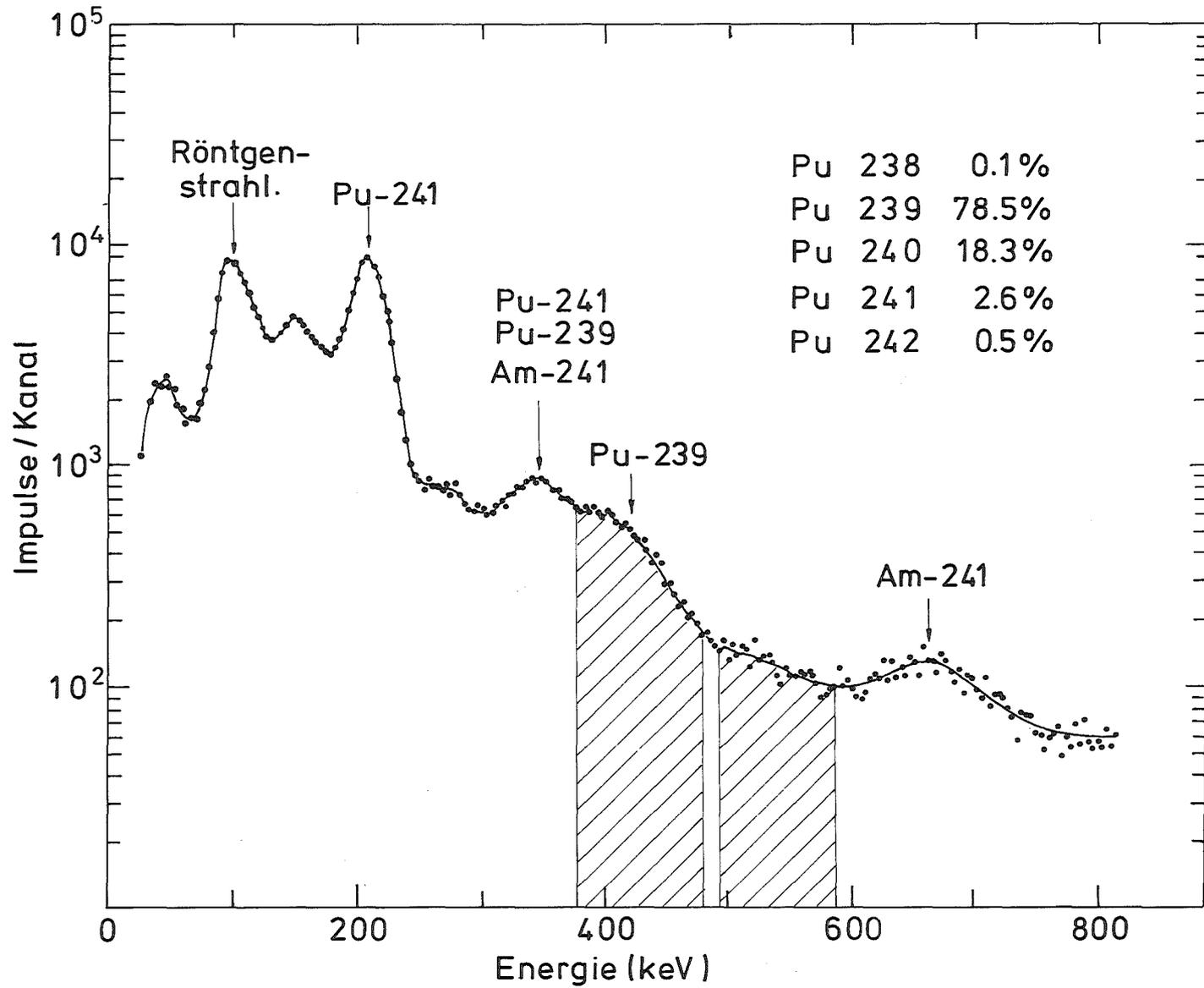


Abb. 2.3/7 Gammaspektrum des Eichstandards (1.2 g Pu), gemessen in der Anordnung von Abb. 2.3/6.
 Der angegebene Isotopenvektor bezieht sich auf den Eichstandard.

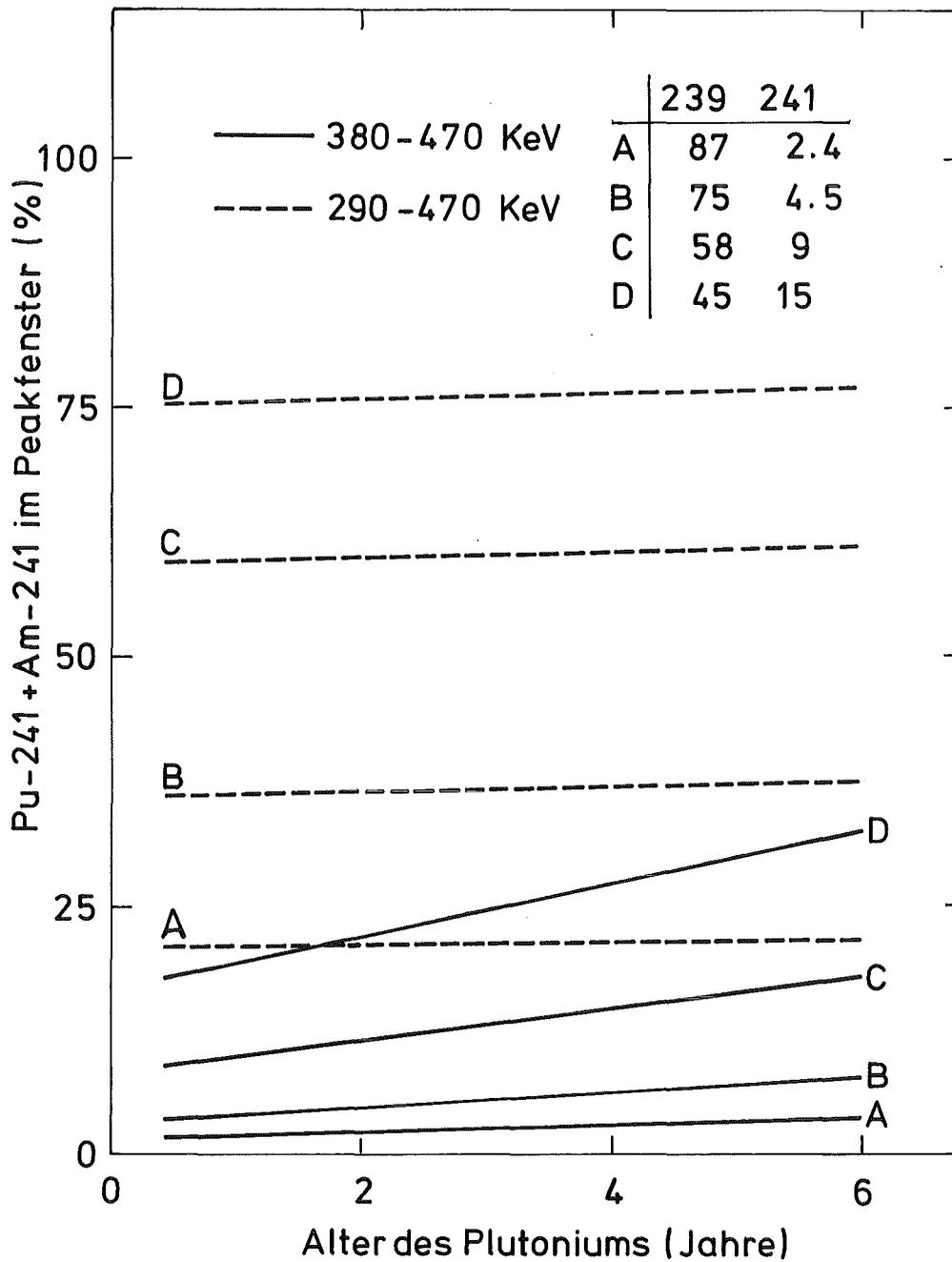
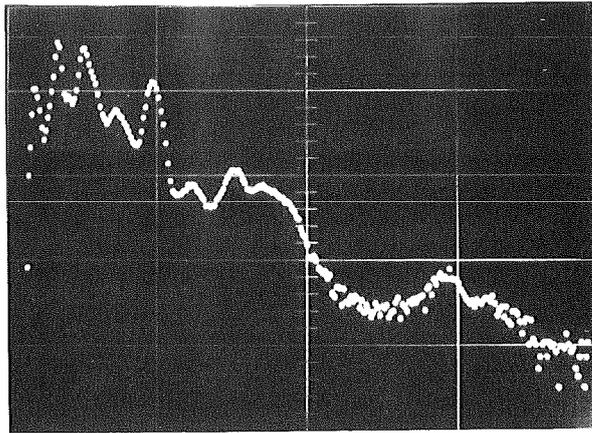
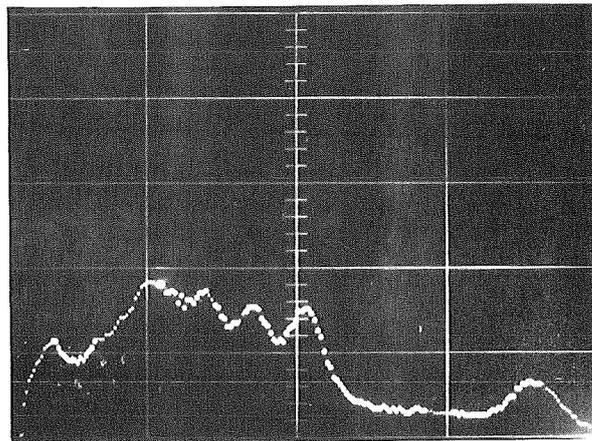


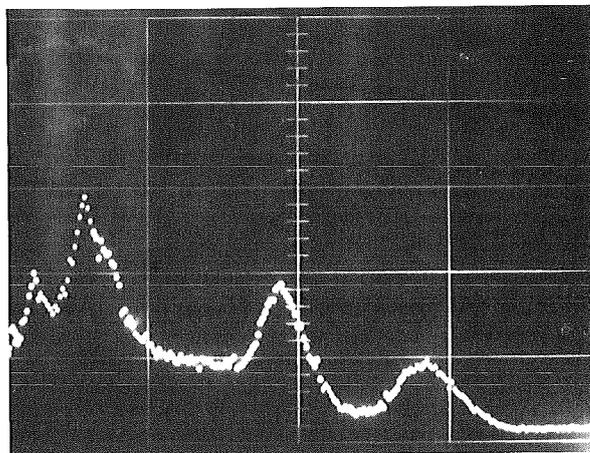
Abb. 2.3/8 Prozentualer Anteil von Gammastrahlung aus Pu-241 und Am-241 im Energiebereich 380-470 keV (Meßfenster für Messungen bei ADB) und 290 - 470 keV (gesamter '400 keV Komplex') bei verschiedenen Isotopenzusammensetzungen des Plutoniums.



a) Plutonium-
spektrum

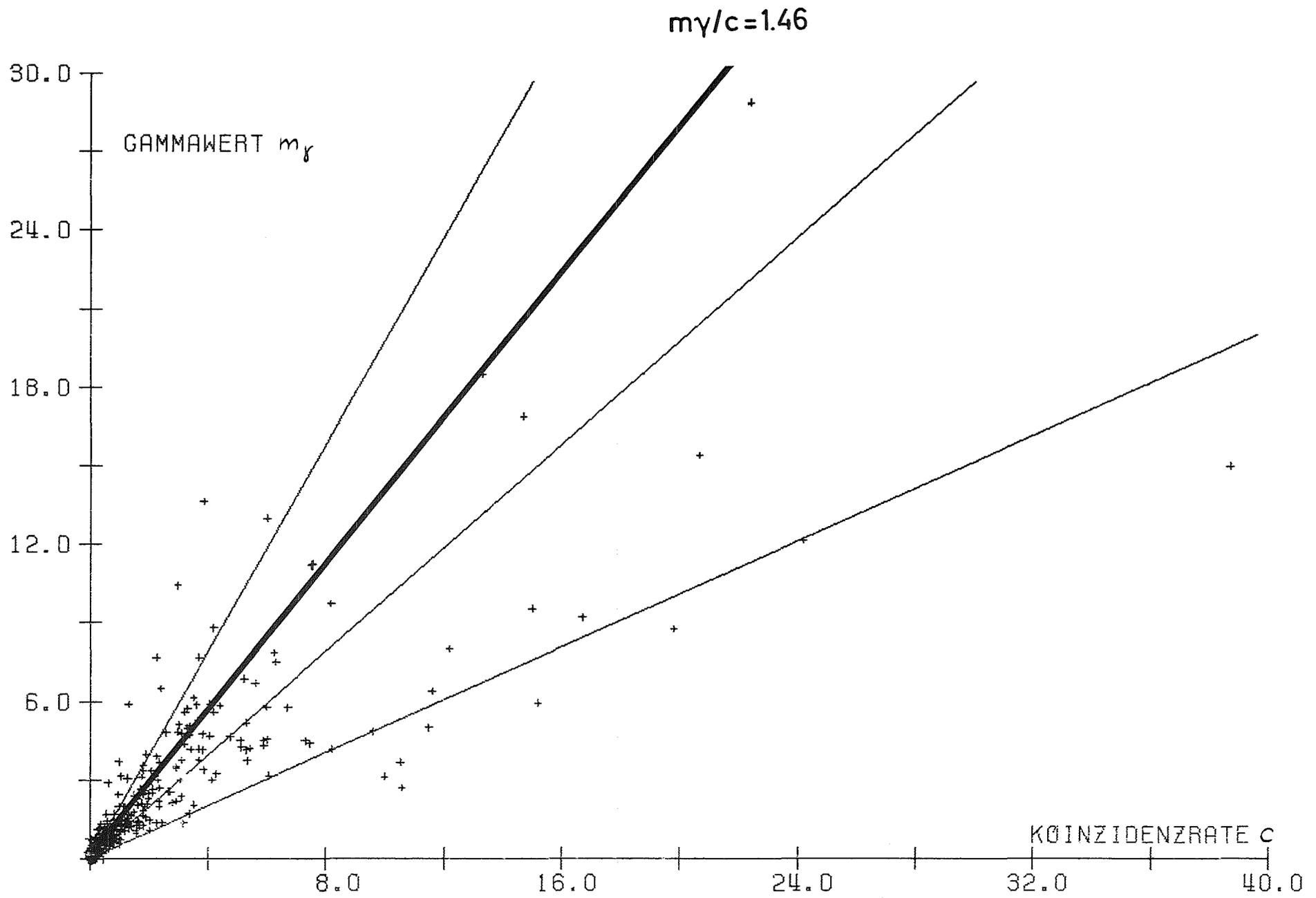


b) Abfallprobe
Nr. 830



c) Abfallprobe
Nr. 1363

Abb. 2.3/9 Vergleich eines Gammaskpektrums von Plutonium (a) mit Spektren von 2 Abfallproben (b,c), die im Dez. 75 bei ADB gemessen wurden.



2-45

Abb. 2.3/10 Vergleich der Meßwerte aus Gammaskpektrometrie und Neutronenkoinzidenzmessung

2.4 Gammadetektionssystem für Personenschleuse

Der im IAK entwickelte Gammamonitor dient zur Überwachung von Personen auf beabsichtigt oder unbeabsichtigt mitgeführtes U oder Pu. Das Meßprinzip beruht auf dem Nachweis der Gammaeigenstrahlung des Spaltstoffs. Als Detektoren wurden beim Prototyp 2 großflächige NaJ(Tl)-Detektoren verwendet, die in eine telefonzellenähnliche Meßzelle mit 2 Schwingtüren eingebaut wurden. Wenn U oder Pu in dieser Schleuse nachgewiesen werden, wird ein optischer und akustischer Alarm ausgelöst und die auszumessende Person bleibt in der Schleuse eingeschlossen. Die Untergrundstrahlung wird kontinuierlich gemessen, während die Schleuse nicht besetzt ist. Die Alarmschwelle wird in einer zentralen Rechen- und Kontrolleinheit automatisch optimal den verschiedenen Untergrundzählraten angepaßt. Wirkungsweise und prinzipieller Aufbau des Meßsystems sind in Ref. [2] beschrieben. Die Entwicklung des Gammadetektionssystems und der Bedienungseinheit konnten im Berichtszeitraum abgeschlossen werden. Das System wurde in die Personenschleuse der SNEAK-Anlage der GfK eingebaut und erprobt. Es soll in Zukunft als Teil des Sicherungssystems der SNEAK routinemäßig zur Personenüberwachung auf mitgeführtes U und Pu eingesetzt werden.

2.4.1 Aufbau und Bedienung des Gammadetektionssystems

Das Gammadetektionssystem besteht aus vier Komponenten

- zwei 6" x 2" NaJ(Tl)-Detektoren, ²⁴¹Am dotiert
- Verstärker-Diskriminator mit Hochspannungsversorgung und Stabilisierung
- Zentrale Kontrolleinheit
- Bedienungseinheit für Wachpersonal

Der Verstärker-Diskriminator und die zentrale Kontrolleinheit sind in Abb. 2.4/1 dargestellt. Sie sind als NIM-Einschübe für einen normalen NIM-Überrahmen ausgeführt und benötigen zum Betrieb nur + 6 V, was den Anschluß an eine Batterie zur Netzausfallsicherung sehr vereinfacht.

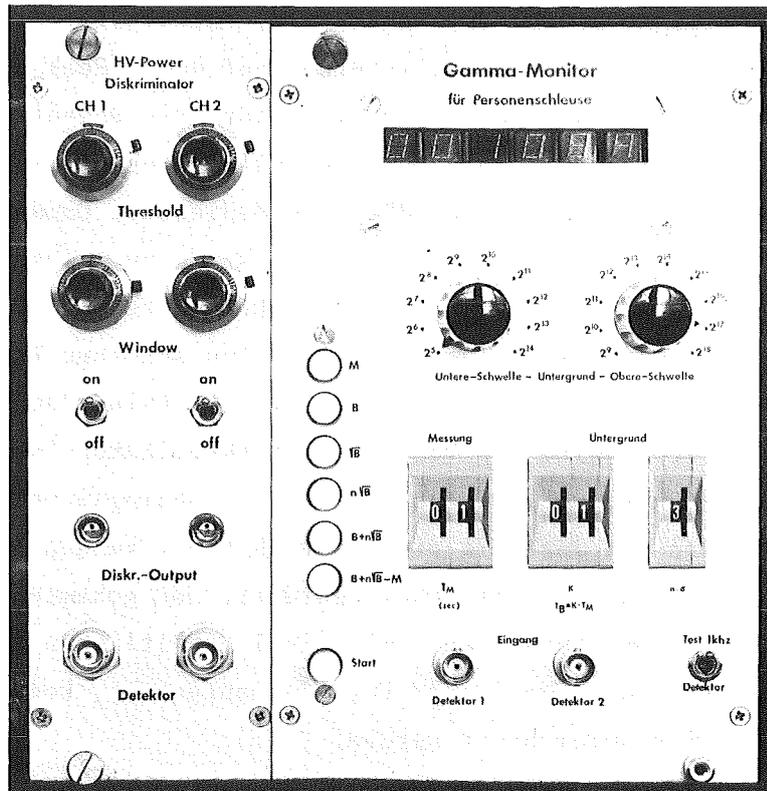


Abb. 2.4/1 Zentrale Kontrolleinheit (rechts) und Verstärker-Diskriminator (links) für die Personenschleuse.

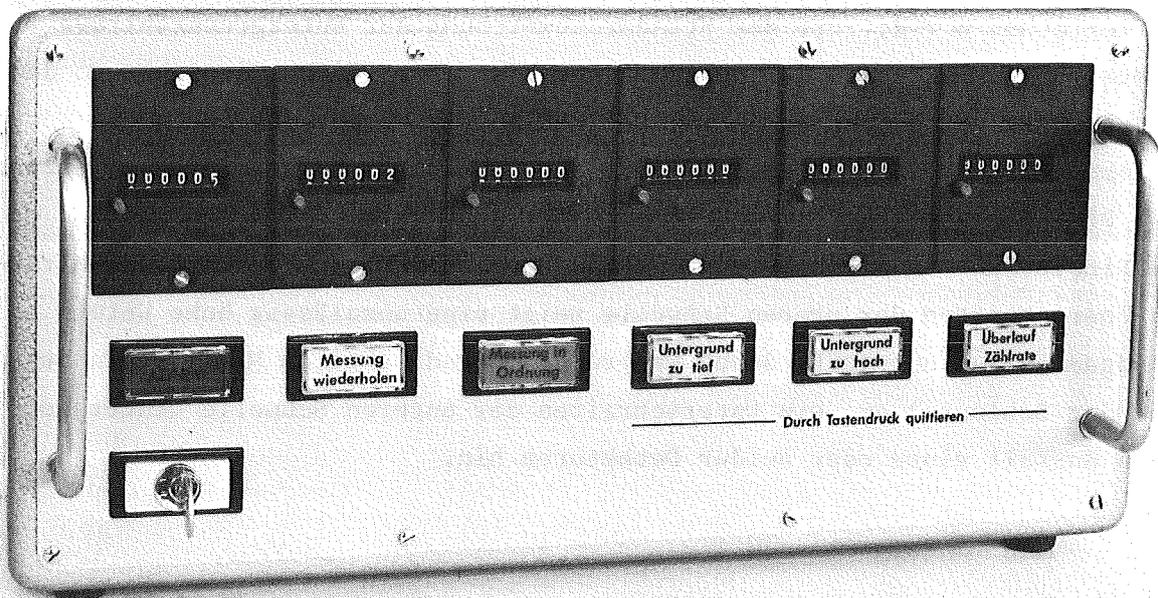


Abb. 2.4/2 Bedienungseinheit für die Personenschleuse

Der Verstärker-Diskriminatormodul (links im Bild) enthält für 2 Detektoren die Hochspannungsversorgung, die Stabilisierung auf den α -Peak des ^{241}Am , den Verstärker und den Einkanaldiskriminator. Die Potentiometer auf der Frontplatte des Moduls dienen zur Einstellung des optimalen Energiebereichs des Diskriminators für die interessierende Gammastrahlung (siehe Abschnitt 4.2.2). Zu Testzwecken sind die analogen Ausgangsimpulse der Verstärker auf 2 BNC-Buchsen herausgeführt. Detektoren und Verstärker können so in einfacher Weise mit einem Oszillografen auf ihre Funktionstüchtigkeit überprüft werden. Die digitalen Ausgangsimpulse der Diskriminatoren wurden auf der Frontseite der Verstärker-Diskriminatoreinheit auf LEMO-Buchsen herausgeführt, um Verwechslung mit den Analogsignalen auszuschließen, und werden von dort mit einem kurzen Kabel zu den BNC-Eingangsbuchsen der zentralen Kontrolleinheit geführt. Der gesamte Verstärker-Diskriminator ist aus Komponenten des kommerziell erhältlichen Anreicherungsmeßgeräts SAM 2 der Fa. Eberline (Santa Fe, USA) aufgebaut, wodurch Service und Reparatur wesentlich erleichtert werden.

In der zentralen Kontrolleinheit (Abb. 2.4/1 rechts) wird die Meßdatenverarbeitung durchgeführt, und es werden die Steuersignale für die Schleuse und die Bedienungseinheit erzeugt. Das Prinzipschaltbild ist in Ref. [2] angegeben. Mit Digitalschaltern auf der Frontplatte des Einschubs läßt sich die Zeit für die Ausmessung von Personen in der Schleuse, T_M , von 1-99 sec einstellen, die Meßzeit für den Untergrund, T_B , kann in ganzzahligen Vielfachen von T_M gewählt werden, und die Alarmschwelle ist in Vielfachen $n = 2, \dots, 5$ der Standardabweichung der Untergrundzählrate einstellbar. Mit diesen 3 Schaltergruppen ist es möglich, die Schleuse den betrieblichen Erfordernissen hinsichtlich Personendurchsatz durch die Schleuse, Meßempfindlichkeit und zulässiger Fehlalarmrate weitgehend anzupassen. Die zentrale Kontrolleinheit enthält darüberhinaus 2 Drehschalter zum Einstellen einer oberen und unteren Schwelle für die Untergrundzählrate. Ein Überschreiten der oberen Schwelle zeigt eine unzulässig hohe Untergrundgammastrahlung (z.B. durch Lagerung von radioaktivem Material in der Nähe der Schleuse) an, ein Unterschreiten der unteren Schwelle deutet auf einen Ausfall eines oder beider Detektoren hin.

Bei der Entwicklung der zentralen Kontrolleinheit wurde besonderer Wert auf einfache Wartung und einfache Fehlerdiagnose gelegt. So wurden ausnahmslos leicht auswechselbare Europasteckkarten und TTL-Bausteine in Stecksockeln verwendet. Als Testmöglichkeit für die Funktionsfähigkeit der Kontrolleinheit wurde ein Schalter vorgesehen, mit dem statt der Detektorimpulse 1 kHz Testimpulse auf die Eingänge gegeben werden können. Die einzelnen Elemente der arithmetischen Einheit und die Zähler und Register können so in einfacher Weise auf ihre Funktionstüchtigkeit geprüft werden. Durch 6 Drucktasten werden die Einzelergebnisse für Messung M, Untergrundmessung B, sowie \sqrt{B} , $n \cdot \sqrt{B}$, $B + n \cdot \sqrt{B}$ und $B + n \cdot \sqrt{B} - M$ auf einer 6-stelligen LED-Anzeige dargestellt. Die Funktionen der Schleuse werden dabei von einem batteriebetriebenen Testmodul simuliert. Die Bedienungselemente der zentralen Kontrolleinheit und des Verstärker-Diskriminators sind durch eine Plexiglasscheibe abgedeckt; sie sind nur dem Wartungspersonal zugänglich.

Die Bedienungseinheit (Abb. 2.4/2) enthält die zum Betrieb der Schleuse notwendigen Anzeige- und Drucktasten. Die Verbindung zum zentralen Kontrollmodul wird durch potentialfreie Verbindungskabel (Reed-Relais) hergestellt, so daß die Schleuse auch aus größerer Entfernung bedient werden kann (z.B. von der Pfortnerloge aus). Wenn bei besetzter Schleuse die Gammaaktivität im eingestellten Energiebereich die Alarmschwelle $B + n \cdot \sqrt{B}$ übersteigt, wird in der Bedienungseinheit ein optisches Signal (Leuchttaste in Abb. 4.2/2 links) und ein akustisches Signal (Sirene) ausgelöst; die Schleusentüren bleiben geschlossen. Durch Drücken der Taste "Messung wiederholen" kann der Alarm gelöscht und eine neue Messung eingeleitet werden. Wird bei der Wiederholungsmessung keine erhöhte Gammastrahlung festgestellt, so läuft der Schleusenvorgang normal ab: die äußere Schleusentür wird geöffnet. Bei erneutem Auftreten eines Alarms kann das optische und akustische Signal nur durch Betätigen einer abschließbaren Taste gelöscht werden (Abb. 2.4/2 links unten).

Die Bedienungseinheit enthält des weiteren eine optische Anzeige für Ausschleusvorgänge ohne Alarm (Aufblinken der Anzeige "Messung in Ordnung") sowie Leuchttasten für die irregulären Zustände "Untergrund zu tief", "Untergrund zu hoch" und "Überlauf Zählrate". Die letzteren müssen vom Wachpersonal durch Tastendruck quittiert werden. Alle auftretenden Zustände der Schleuse und die Zahl der Schleusenvorgänge werden von mechanischen Zählern

registriert; damit wird eine zuverlässige Protokollführung erleichtert.

2.4.2 Optimierung der Detektorposition und des Gammaenergie-Fensters

Zur optimalen Positionierung der 2 großflächigen NaJ-Detektoren in der Schleuse wurden Rechnungen durchgeführt, die Ergebnisse sind für einige Detektor-konfigurationen in Abb. 2.4/3 dargestellt. Sie zeigt die Peak-Ansprehwahrscheinlichkeit für die 185 keV ^{235}U Gammastrahlung in der Mittelebene der Schleuse bei verschiedenen Detektoranordnungen. Wünschenswert ist eine möglichst hohe Ansprechwahrscheinlichkeit im gesamten Schleusenvolumen, die mit zwei NaJ-Detektoren aber nur näherungsweise zu realisieren ist. Von den möglichen 2-Detektoranordnungen wurde für die SNEAK-Schleuse die am günstigsten erscheinende Anordnung e) gewählt: Hierbei ist besonders im Bereich des Körpers einer Person, die auf der Trittplatte in der Schleusenmitte steht, eine gleichmäßig hohe Nachweiswahrscheinlichkeit für mitgeführtes spaltbares Material gegeben; in den Schleusenecken ist die Ansprechwahrscheinlichkeit um einen Faktor 3-8 geringer. Ein gleichmäßigerer und besserer Nachweis von Spaltmaterial ließe sich leicht durch zusätzliche Detektoren erreichen; das Gammadetektionssystem kann ohne Modifikationen für weitere Detektoren ausgebaut werden.

Zweck eines Gammamonitors zur Personenüberwachung ist ein möglichst schnelles und sicheres Ansprechen des Meßsystems auf eine möglichst kleine Menge spaltbaren Materials. Die untere Nachweisgrenze wird dabei durch die Intensität der Untergrundgammastrahlung bestimmt. Auf eine gute Abschirmung des Schleuseninnenraumes muß daher bei der Konstruktion besonderer Wert gelegt werden. Sind Schleuse und Detektoren vorgegeben, so kann die Nachweisempfindlichkeit durch geeignete Wahl des Gammaenergiefensters im Einkanaldiskriminator optimiert werden |6|: Sind die Nettozählrate S einer Menge spaltbaren Materials und die Untergrundzählrate UG vorgegeben, und wird als Nachweiskriterium angenommen, daß die während der Meßzeit t registrierten Impulse des Nettosignals mindestens gleich der n-fachen Standardabweichung der gezählten Untergrundimpulse sind, so gilt:

$$S \cdot t \geq n \cdot \sqrt{UG \cdot t} \quad \text{oder} \quad t \geq \frac{n^2}{(S^2/UG)}$$

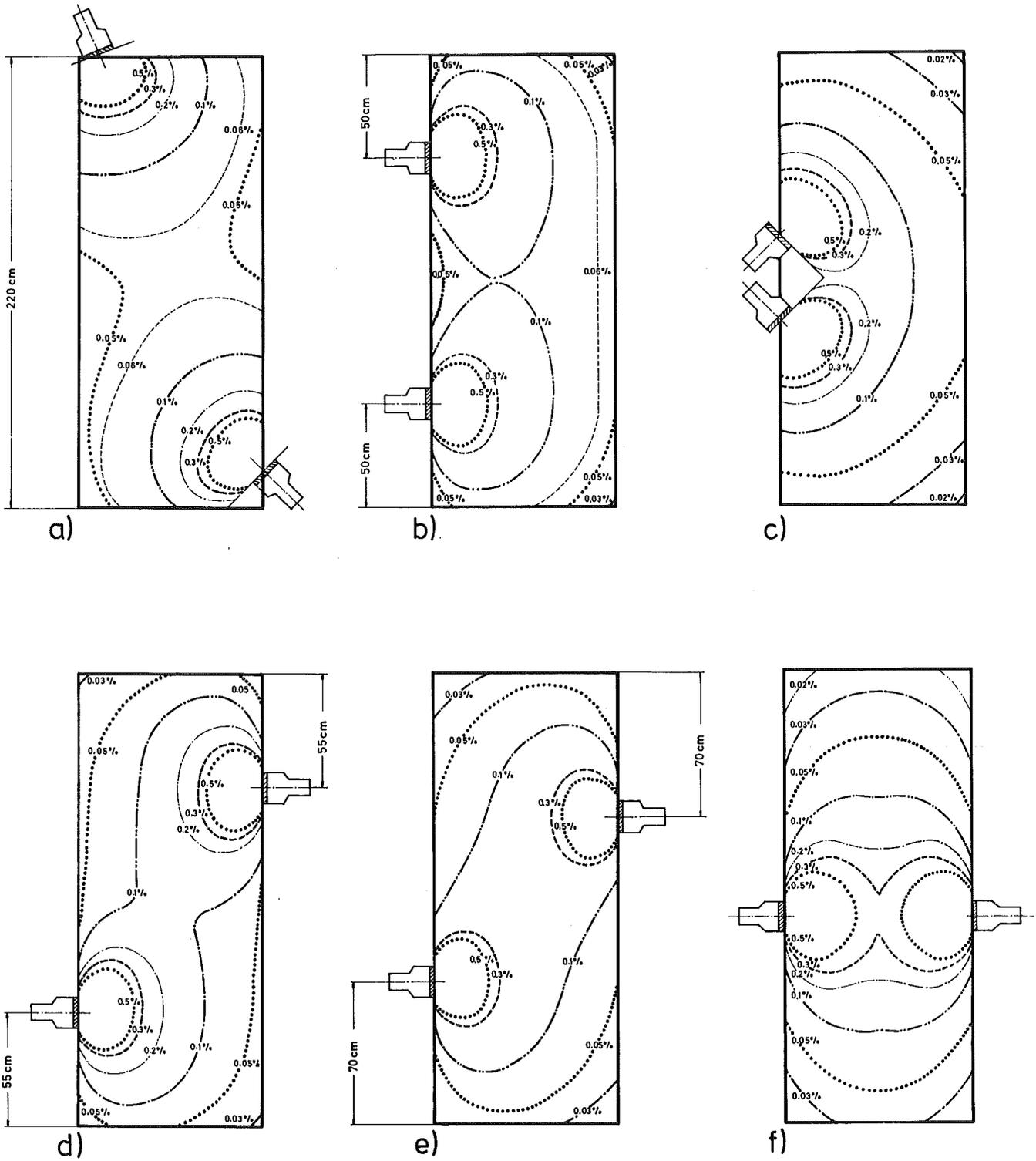


Abb. 2.4/3 Peak-Ansprechwahrscheinlichkeit für den Nachweis der 185 keV- γ -Strahlung von ^{235}U bei verschiedenen Anordnungen zweier 6" x 2"-NaJ(Tl)-Detektoren in der Mittelebene der SNEAK-Personenschleuse.

d.h. die minimal zum Nachweis notwendige Meßzeit ist umso kürzer, je größer das Verhältnis S^2/UG ist; ist die Meßzeit t vorgegeben, so liegt die untere Nachweisgrenze umso niedriger, je größer S^2/UG ist. Das Energiefenster des Einkanaldiskriminators sollte daher möglichst so gewählt werden, daß das Verhältnis S^2/UG in diesem Fenster maximal wird.

Mit einem Vielkanalanalysator wurden die Gammaskpektren der Untergrundstrahlung und verschiedener abgeschirmter und nicht abgeschirmter U- und Pu-Quellen aufgenommen; das Verhältnis S^2/UG wurde für verschiedene Energiefenster berechnet. In Abb. 2.4/4 sind die Ergebnisse für unabgeschirmtes, hochangereichertes U und für Pu mit 2 mm Bleiabschirmung dargestellt. Es zeigte sich, daß die optimale Einstellung des Einkanaldiskriminators empfindlich vom nachzuweisenden Material (U oder Pu) und der verwendeten Abschirmung abhängt: Das optimale Energiefenster schließt bei unabgeschirmtem ^{235}U die 185 keV Gammastrahlung und die Röntgenstrahlung bei 100 keV ein, bei abgeschirmtem ^{235}U gibt ein Fenster, das nur den 185 keV-Peak ausblendet, bessere Ergebnisse; bei unabgeschirmtem Pu liefert der 59 keV-Peak den weitaus größten Beitrag, während bei stark abgeschirmtem Pu praktisch nur die Gammastrahlung des 400 keV Komplexes nachgewiesen wird. Als Kompromiß wurde für die SNEAK-Schleuse ein Energiefenster von ca. 55-500 keV gewählt; die Empfindlichkeit für Pu ist bei dieser Einstellung etwas größer als für ^{235}U .

2.4.3 Messungen zur Nachweiswahrscheinlichkeit von U und Pu

Zur Ermittlung der Nachweisempfindlichkeit der Schleuse wurden Messungen mit verschiedenen U- und Pu-Proben und verschiedenen Abschirmungen durchgeführt. Es wurde eine Meßzeit von 4 sec gewählt, die für den späteren Routinebetrieb der Schleuse angemessen erscheint. Ein Teil der Meßergebnisse ist in den Tabellen 2.4/I und 2.4/II wiedergegeben.

In Tab. 4.2/I sind die kleinsten mit 90 % Wahrscheinlichkeit nachweisbaren Mengen U und Pu angegeben, jeweils für am Körper mitgeführtes Material und für Material in der äußersten Schleusenecke. Die Proben waren in diesem Fall schwach gepreßtes PuO_2 bzw. U_3O_8 in Zylindergeometrie mit 3 mm Messingabschirmung. Die Alarmschwelle war auf eine Fehlalarmrate von 0,1 % eingestellt, d.h. um 3σ über der mittleren Untergrundzählrate. Zum Vergleich

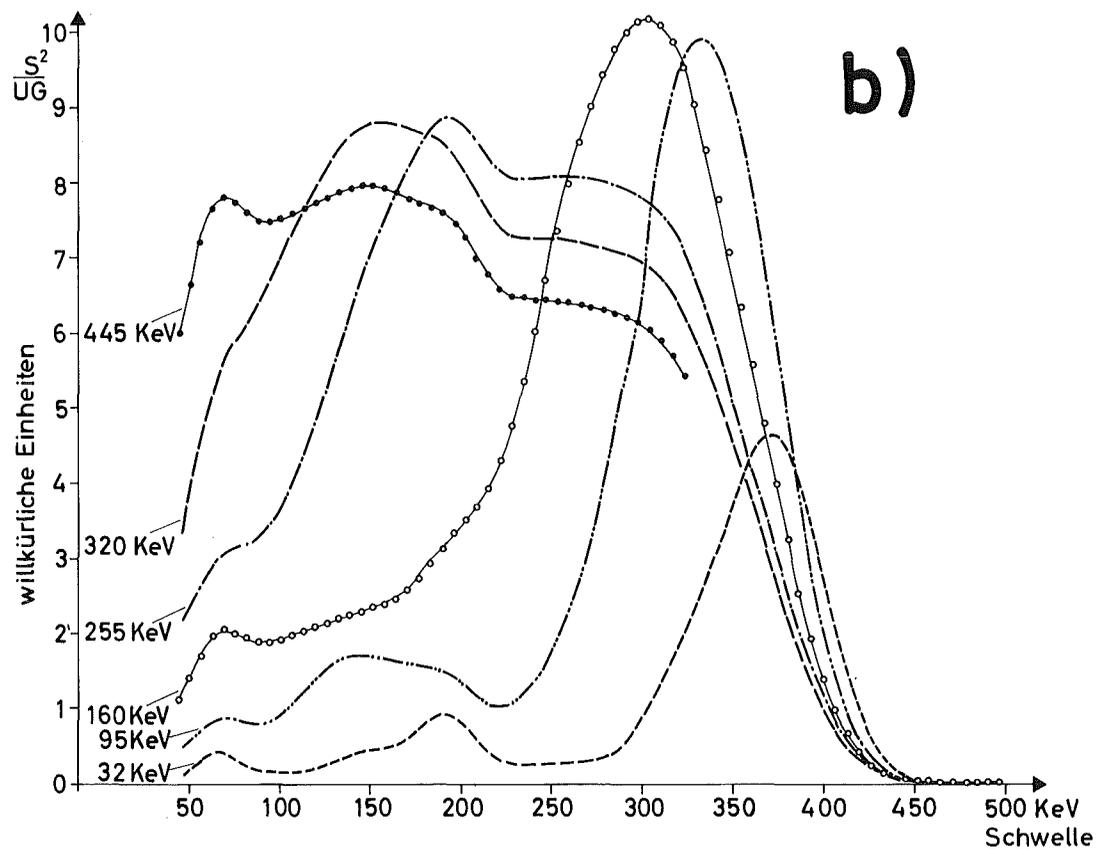
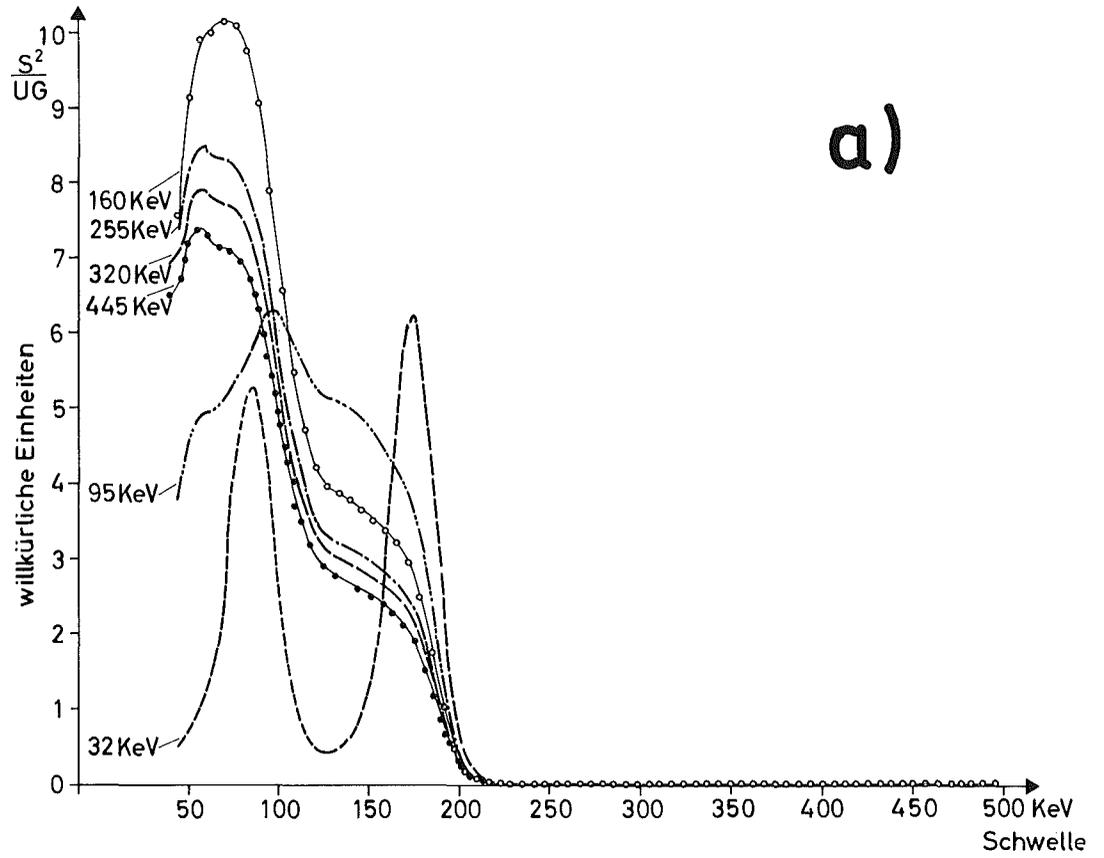


Abb. 2.4/4 S^2/UG (S = Nettozählrate der Quelle, UG = Untergrundzählrate) als Funktion der unteren Schwelle des Einkanaldiskriminators mit verschiedenen Fensterbreiten als Parameter.
 a) für ungeschirmtes ^{235}U ; b) für ^{239}Pu mit 2 mm Bleiabschirmung

sind die im USAEC Regulatory Guide No. 5.7 empfohlenen Werte für Doorway-Monitore und die mit einem kommerziellen Doorway-Monitor |7| gemessenen Werte angegeben. Die Meßbedingungen waren bis auf die Meßzeit identisch.

Von besonderem Interesse war die Nachweiswahrscheinlichkeit für in der SNEAK-Anlage verwendetes spaltbares Material. Es wurden daher Messungen an SNEAK-Plättchen mit und ohne Bleiabschirmung durchgeführt. Die Ergebnisse sind in Tab. 2.4/II dargestellt. Die Meßzeit betrug 4 sec. Bis auf stark abgeschirmtes (2 mm Blei) Natururan und abgereichertes Uran wurden Nachweiswahrscheinlichkeiten > 99 % gemessen, auch für Plättchen mit 2 mm Bleiabschirmung in der äußersten Schleusenecke.

Die Entwicklung und Erprobung des Gammadetektionssystems wurde vorläufig abgeschlossen. Die Betriebserfahrungen im Dauerbetrieb werden zeigen, ob Änderungen der eingestellten Parameter (Meßzeit und Alarmschwelle) und der Bedienungselemente für das Wachpersonal notwendig werden.

	USAEC Regulatory Guide No.5.7	Rad-Tec Doorway monitor ¹⁾ (Material am Körper mitgeführt)	SNEAK-Schleuse ²⁾ (Material am Körper mitgeführt)	SNEAK-Schleuse ²⁾ (Material in der äußersten Schleuse- senecke)
hochangereichertes Uran 90 % ²³⁵ U	3 g	~0,9 g ³⁾	0,3 g	1,5 g
Plutonium 90 % ²³⁹ Pu	0,5 g	<0,15 g ³⁾	0,005 g ³⁾	0,045 g

1) Typ: Doorway monitor; Meßzeit 0,4 sec; Detektoren: 2 84" lange Flüssigszintillatoren

2) Typ: Schleuse; Meßzeit 4 sec; Detektoren: 2 6" x 2" NaJ (Tl)

3) Extrapolierte Werte

Tab.2.4/I Untere Grenzen für Materialmengen, die mit 90 % Nachweiswahrscheinlichkeit bei einer Fehlalarmrate <0,1 % (d.h. Alarmschwelle = Untergrund + 3σ) entdeckt werden. Material mit 3 mm Messing abgeschirmt.

	Material am Körper mitgeführt			Material in der äußersten Schleusenecke
	ohne Abschirmung	mit 1 mm Blei	mit 2 mm Blei	mit 2 mm Blei
^{235}U abgereichert 1/3 Plättchen ^{235}U : 0,22 g	92 %	25 %	<2 %	<0,5 %
^{235}U natürlich 1 Plättchen ^{235}U : 1,06 g	~100 % ¹⁾	~100 %	>99,99 %	>65 %
^{235}U 20 % 1 Plättchen ^{235}U : 24,8 g	~100 %	~100 %	~100 %	>99 %
^{235}U 35 % 1 Plättchen ^{235}U : 51,8 g	~100 %	~100 %	~100 %	~100 %
^{235}U 93 % 1/2 Plättchen ^{235}U : 64,8 g	~100 %	~100 %	~100 %	~100 %
^{239}Pu 1,5 g ^{239}Pu	100 %	100 %	100 %	100 %

1) ~ 100 % bedeutet eine Nachweiswahrscheinlichkeit >99,999 %.

Gesamturangehalt: 1/3 Plättchen ~ 50 g

1/2 Plättchen ~ 75 g

1 Plättchen ~ 150 g

Tab. 2.4/II Nachweiswahrscheinlichkeit für SNEAK-Material in der SNEAK-Personenschleuse (Meßzeit 4 Sekunden).

Literaturverzeichnis zu Kapitel 2

- |1| G. BORK, ed., Projekt Spaltstoffflußkontrolle - Jahresbericht 1974, KFK 2206 (1975).
- |2| G. BORK, ed., Projekt Spaltstoffflußkontrolle - Jahresbericht 1973, KFK 1980 (1974).
- |3| Gesellschaft für Strahlen- und Umweltforschung mbH, München, Entwurf für Bedingungen für die Lagerung von schwach radioaktiven Abfallstoffen im Salzbergwerk Asse, Stand Mai 1975. (unveröffentlicht)
- |4| K. BÖHNEL, KFK 2203 (1975).
- |5| T.D. REILLY, J.L. PARKER, Los Alamos Scientific Report LA-5794-M (1975).
- |6| W.H. CHAMBERS et al., Los Alamos Scientific Report LA-5681 (1974).
- |7| H.J. WEBER, M. SOHA, Nuclear Materials Management Vol. III, No. 3 (1974) 384.

Kapitel 3: DIREKTE VERFAHREN

	<u>Seite</u>
3.0. Einführung E. Mainka	3-1
3.1. Serviceleistungen und begleitende Arbeiten zur Automatisierung direkter Verfahren E. Gantner, E. Mainka und H. Ruf unter Mitarbeit von H. Bernhard, W. Coerdts, H. Deutsch, M. Friedrich, W. König und K. Matern	3-2
3.2. Entwicklung von Analysenverfahren	3-3
3.2.1. Automatisierung der massenspektrometrischen Isotopen- verdünnungsanalyse M. Wilhelmi, L. Koch	3-3
3.2.2. Automatisierung der Uran- und Plutoniumkonzentrations- bestimmung durch Röntgenfluoreszenzanalyse J. Neuber, R. Braun, K. Matern	3-9
3.2.3. Naß-chemische Arbeiten zur Uran-Plutonium-Konzentrations- bestimmung E. Mainka, W. Coerdts, W. König und H.G. Müller	3-17

Literaturzitate als Fußnoten auf den betreffenden Seiten.

3. Direkte Verfahren

3.0. Einführung

An der Entwicklung und Erprobung direkter Verfahren im Rahmen des Projektes Spaltstoffflußkontrolle waren im Jahr 1975 die Arbeitsgruppe Massenspektrometrie des Europäischen Instituts für Transurane (TU) und die analytische Gruppe des Instituts für Radiochemie (IRCH) der Gesellschaft für Kernforschung beteiligt.

Die im TU durchgeführten Arbeiten zur Automatisierung der massenspektrometrischen Isotopenverdünnungsanalyse sind soweit gediehen, daß ein Prototyp erstellt und die Testphase angelaufen ist. Der aktuelle Stand wird in diesem Bericht dargestellt (Kapitel 3.2.1.).

Die erste Ausbaustufe zur Erstellung einer automatischen Röntgenfluoreszenzanalyse in der WAK, die im IRCH bearbeitet wird, ist abgeschlossen. Im Berichtszeitraum konnte das Spektrometer inaktiv erprobt werden (vergl. Kapitel 3.2.2.).

Im Kapitel 3.3. werden die naß-chemischen Entwicklungsarbeiten für das Projekt dargestellt.

Es müssen aber auch die vielen Analysen erwähnt werden, die als begleitende Arbeiten zur Automatisierung der Röntgenfluoreszenz notwendig waren. Einen breiten Rahmen nahmen auch die Testserien für das 1974 erworbene, rechnergestützte und somit teilautomatisierte Massenspektrometer ein. Im Verlauf der Versuche ergab sich die Notwendigkeit, Teile der hard- und software zu verbessern bzw. auszutauschen; z.B. die fehlerhafte Untergrundkorrektur des Rechnerprogramms, die bei Isotopen mit geringer Konzentration zu großen Fehlern führte.

Zum Training des Labors haben wir auch 1975 am SALE-Programm teilgenommen (vergl. 3.1.).

Der Bericht schließt unmittelbar an den Jahresbericht 1974 des Projektes Spaltstoffflußkontrolle /1/ Kapitel 3 an.

/1/ Projekt Spaltstoffflußkontrolle Jahresbericht 1974, KFK 2206, S. 3-1 (1975)

3.1. Serviceleistungen und begleitende Arbeiten zur Automatisierung
direkter Verfahren

Im Berichtszeitraum wurden für das Projekt Spaltstoffflußkontrolle folgende
Analysen ausgeführt:

- 32 α -spektroskopische Messungen
- 93 massenspektroskopische Uran- und Plutoniumbestimmungen
- 60 Urankonzentrationsbestimmungen
- 65 Plutoniumkonzentrationsbestimmungen
- 175 röntgenfluoreszenzspektrometrische Uran- bzw. Plutoniumbestimmungen.

Die angewandten Analysenverfahren sind im Jahresbericht 1970 (KFK 1429) ausführlich beschrieben.

3.2. Entwicklung von Analysenverfahren

3.2.1. Automatisierung der massenspektrometrischen Isotopenverdünnungsanalyse

Zusammenfassung

Zu Beginn des Berichtszeitraumes konnte nunmehr das Gesamtsystem, bestehend aus den Teilen automatisches Massenspektrometer und automatisches Hochvakuumschleusensystem aneinander gekoppelt werden. Im Anschluß daran wurde die Anlage erprobt und bei auftretenden Störungen die Fehler gesucht. Die Ursachen einiger, den Betrieb stark störender Mängel in der elektrischen Verdrahtung, im Vakuum sowie beim Transport in der Schleuse wurden beseitigt. Verbesserungen bzw. Erweiterungen des Software-Programmes wurden ausgearbeitet.

Noch vor der Kopplung wurden mit dem automatischen Massenspektrometer allein insgesamt 140 Routineanalysen durchgeführt, nach der Kopplung konnten mit dem kombinierten System bis Ende 1975 bereits wieder ca. 180 Proben für die SpFK und für Nachbestrahlungsuntersuchungen gemessen werden. Dabei konnten die Vorteile des kombinierten Systems wie höherer Durchsatz, bessere Genauigkeit und größerer Datenschutz, schon deutlich beobachtet werden /1/.

Stand der Arbeiten

Die Anlage konnte zunächst überraschend problemlos sogar im Dauerbetrieb (d.h. in Tag- und Nachtschichten) durchgeföhren werden. Einige Mängel zeigten sich jedoch bald.

Schleuse

Das Signal von in der Schleuse vorausgeheizten Proben war außerordentlich schwach. Anders als in der Massenspektrometerquelle stieg der Oxidpeak im Verhältnis zum Metallpeak stark an. Als Ursache wurde eine Verwechslung in der Verdrahtung gefunden. Die Stromzuführungen für die I-Bänder waren mit denen der V-Bänder vertauscht, so daß das Probenmaterial durch die zu hohe V-Bändchentemperatur schon während des Vorausheizens abdampfte. Außerdem wurde in einer Versuchsreihe ermittelt, daß das Verhältnis Metall-Oxidionenstrom verbessert werden kann:

1. Durch Erhöhung der Ionisierungstemperatur des I-Bandes.
Hierfür wird das I-Band so hoch aufgeheizt, daß sich das Signal des Rhenium-Ionenstroms von sonst üblich 50mV Schreiberausschlag bis auf 700mV erhöht.
2. Durch Erhöhung der Temperatur des Verdampferbandes nach dem Aufbringen der Proben auf dunkle Rotglut.

Teile des Vespelkopfes an der Hubstange waren abgenutzt und dadurch die Führung beim Hochtransportieren der Schlitten mangelhaft, sodaß der als Schwalbenschwanz ausgeführte Sitz des Schlittens auf der Hubstange abbrach. Die fehlerhaften Teile wurden zunächst aus V 2A und danach, wegen der besseren Gleiteigenschaften, aus Bronze neu gefertigt.

Beim Transport der Kassetten kam es wiederholt zu Störungen in der 2. und 3. Kammer. Der Transport lief bis dahin völlig schmierungsfrei. Probeweise wurde die Kette in Kammer 2 mit MoS₂, die in den Kammern 1 und 3 mit Hochvakuumöl DC 705 HV geschmiert.

Nachteilige Effekte wurden bisher nicht bemerkt, der Transport läuft seither reibungsloser.

Nach dem Herunterfahren aus der Quelle wurden manche Schlitten nicht weitertransportiert. Mögliche Ursachen, wie Fehljustierung des Mikroschalters, Unebenheiten am Schlitten etc. wurden geprüft und geändert bzw. Teile ausgetauscht. Die Schlitten mußten teilweise neu gefertigt werden (z.B. wurde die Grundplatte nicht geteilt) und die Aufnahme für die Probenhalterung geändert. Die Wellen der Drehdurchführungen in Kammer 2 mußten gewechselt werden.

Unzuverlässigkeit der elektrischen Kontakte in der 1. Kammer wurde durch Nachbiegen beseitigt.

Massenspektrometer

Während der Probemessungen schaltete der Rechner zunehmend häufig ab und zwar synchron mit der ansteigenden Raumtemperatur, bedingt durch die sommerliche Hitze, für die die Klimaanlage nicht ausreichte. Später fiel die automatische Steuerung des Massenspektrometers gänzlich aus, hervorgerufen durch Defekte im Rechner. Diese Störungen wurden nach Tests von Platte und Netzgerät durch den Austausch des Rechners behoben. In der Zwischenzeit konnte der Austauschrechner zurückgegeben und der eigene Rechner wieder eingebaut werden. Jedoch traten nach dem Wiedereinbau des eigenen Rechners einige Fehler wie Springen auf falsche Massen, Klappern der Teletype u.ä. erneut auf und konnten noch nicht ausgemerzt werden.

Am Schrittmotor für die Schirmblende war die Verkabelung im Spannungsteiler vertauscht. Dadurch auftretende Induktionsspitzen wurden übertragen und führten zum Programmabbruch immer dann, wenn ein Datentransfer von der Platte zum Kernspeicher erfolgte. Der Fehler, der auch zu Magnetstrominstabilitäten führte, wurde behoben.

Ein Digital-Analog Converter mußte ausgetauscht werden.

Während der Messungen zeigte sich, daß der Bereich der Grobfokussierung nicht ausreicht, um den Peak in jedem Falle automatisch zu erfassen. Eine Meßreihe an standardisierten Probenträgern sollte klären, ob durch diese Probenträger, wie von der Herstellfirma angegeben, der Einbau einer Erweiterung des Grobfokussierungsbereiches in der Automatisierung vermieden werden kann. Während dieser Messungen wurde jede dieser Proben mehrmals manuell nachfokussiert, jedoch bei einigen Messungen nur bei Umschaltung der Grobstufen eine größere Ionenstromerhöhung erzielt. Im automatischen Ablauf ist diese Möglichkeit nicht vorgesehen. Es wurde als einfachste Lösung vorgeschlagen, den von den Schrittmotoren durchfahrenen Widerstandsbereich zu erweitern.

Software

Das Software-Programm mußte in einigen Teilen geändert bzw. erweitert werden.

Das Initialisierungsprogramm für die Schleuse wurde erweitert, das Programm zur Fokussierung der Linsen- und Z-Ablenkung geändert und die Kontrolle der relativen Größen des Pu-239-Signals zur Feststellung des 238-Anteils vor und nach der Uranmessung neu entwickelt.

Von der Herstellerfirma wurde zwar zwischenzeitlich für die Auswertung ein Unterprogramm zur Berücksichtigung der Ausreißerkriterien geliefert, doch werden Störungen am Referenzpeak, d.h. bei der Messung des Hauptisotopes, nicht berücksichtigt. Dieser Mangel muß noch behoben werden.

Routinebetrieb

Während des Berichtszeitraumes wurden mit dem Massenspektrometer allein 103 Uran-, 25 Plutonium-, 12 gemischte Uran-/Plutoniumproben gemessen. Nach der Kopplung des automatischen Massenspektrometers mit der automatischen Hochvakuumschleuse konnten bereits wieder folgende Routineanalysen durchgeführt werden:

63 Uran-, 80 Plutonium-, 28 gemischte Uran/Plutonium- und 3 Neodymproben. Alle für die Euratom-Spaltstoffflußkontrolle anfallenden Analysen wurden auf diesem Gerät gemessen. Zusätzlich war Kapazität vorhanden, um Nachbestrahlungsanalysen an Kernbrennstoffen durchzuführen, die u.a. Abbrandbestimmungen nach der Nd-148 Methode einschlossen.

Trotz der oben beschriebenen Mängel zeichnen sich schon jetzt deutlich Vorteile gegenüber dem manuell betriebenen Massenspektrometer ab:

Die Möglichkeit auch außerhalb der Arbeitszeit zu messen gewährleistet bei höherer Verfügbarkeit des Gerätes einen größeren Probendurchsatz.

Sorgfältige Probenvorbereitung sowie der besser objektivierbare Betrieb des Geräts erhöhen die Analysengenauigkeit.

Die on-line-Datenverarbeitung, die im Jahre 1976 weiter ausgebaut wird, ermöglicht eine schnellere Verfügbarkeit der Ergebnisse und erhöht die Verfälschungssicherheit der Daten, da sie den unmittelbaren Zugriff der Bearbeiter ausschließt.

Geplante Arbeiten

Außer den bereits erwähnten Arbeiten sind, besonders in der Software, noch einige Erweiterungen bzw. Änderungen geplant. So sollte z.B. die Meßzeit auf den Peakspitzen abhängig gemacht werden von der Größe des Signals, um bei geringerem Ionenstrom bessere Statistik und damit höhere Genauigkeit der Messungen zu erzielen. An dieser komplexen Anlage ist die Lokalisierung von Fehlerquellen besonders zeitraubend. So konnte u.a. trotz intensiver und langer Bemühungen die Ursache der Störung im Macro "RUN", durch den das Programm am Ende mancher Messungen mit der Fehlermeldung **LIT OVFL**, aussteigt, noch nicht gefunden werden.

3.2.1.2. Automat zur Trennung von Uran und Plutonium an Ionenaustauscher

Die Vorarbeiten für einen zweiten, verbesserten Trennautomaten wurden abgeschlossen, die erforderlichen Materialien und Bauteile beschafft und getestet. Das Gerät wird vom A D I gebaut. Eine der insgesamt sechs parallel laufenden Säulen konnte bereits fertiggestellt und erprobt werden. Die Gesamtanlage soll in der ersten Hälfte des Jahres 1976 betriebsbereit sein.

/1/ L. Koch et al.

International Symposium on Safeguarding of Nuclear Materials,
Vienna, October 20-24, 1975,

IAEA-SM-201/2

3.2.2. Automatisierung der Uran- und Plutoniumkonzentrationsbestimmung durch Röntgenfluoreszenzanalyse.

3.2.2.1. Einleitung

Für den letzten Berichtszeitraum wurde eine Systembeschreibung der geplanten Analyseneinheit gegeben, wie sie sich aus den Erfahrungen bei der Entwicklung des Prototyps der automatischen Probenvorbereitung ergab, ohne die erweiterte Zielsetzung für den Einsatz in der WAK schon umfassend berücksichtigen zu können. Dazu war noch ein ins Detail gehender Informationsaustausch mit der WAK nötig. Darüberhinaus mußten U-Pu-Lösungen entsprechend den später zu erwartenden analytischen Verhältnissen gemessen und unter Bezug auf die mit dem Prototyp ausgeführten Meßserien ausgewertet werden.

3.2.2.2. Anpassung an die Bedingungen in der WAK

Die ursprüngliche Zielsetzung entsprach den Vorstellungen von Spaltstoffflußkontrolle des Jahres 1970 und war, wie dies für eine Prototypentwicklung verständlich sein dürfte, auf die Verhältnisse unseres analytischen Labors zugeschnitten. So konnten unter bekannten Bedingungen Erfahrungen gesammelt und unsere Möglichkeiten demonstriert werden.

Heute müssen ganz wesentlich mehr Voraussetzungen verschiedenster Art in die Planung einbezogen werden. Die Berücksichtigung technischer, personeller und rechtlicher Gegebenheiten, mehr noch als nur betriebsanalytische Fragen, bedingen auf weite Strecken Neuentwicklungen mit erheblichem Arbeitsaufwand.

Die jetzt viel mehr ins Detail gehende Zielvorstellung ist nicht alleiniges Resultat verlangten industriemäßigen Einsatzes, sondern besonders auch Ergebnis der Erfahrungen mit dem Prototyp. Die Verwendung für die Betriebsanalyse bedingt durch einen gut verdoppelten Probendurchsatz und eine beachtliche Auswertung der analytischen Aufgabe die volle Ausnützung der meßtechnischen Möglichkeiten (Abb. 1) und das Bestreben nach technischer Vereinfachung und hoher Verfügbarkeit.

Einer speziellen Problematik wurde während der Erprobung des Prototyps und bei nachfolgenden, konventionell durchgeführten Meßreihen besondere Beachtung gewidmet. Die relativ hohe Analysenkapazität und der damit verbundene und erstrebte kurze zeitliche Abstand zwischen Probenahme und Ergebnis verlangt eine treffsichere Zuordnung von Probe und Eichfunktion. Da die Anlage ihre Eichpräparate zudem selbst herstellen, messen und auswerten muß, geht die dafür notwendige Zeit für Analysen verloren und das Bestreben nach Reduzierung dieses Eichaufwands äußert sich folgerichtig besonders nachdrücklich. Man muß sich bemühen, Eichkurven zu erstellen, deren Gültigkeitsbereich extrem weit ist gemessen an den Näherungsgeraden, die üblicherweise benützt werden (Abb. 2). Auf die sich abzeichnenden Lösungsmöglichkeiten hin wird diese Frage 1976 weiter verfolgt werden.

Im Bemühen, besonders auch im Interesse der Spaltstoffflußkontrolle, den industriemäßigen Umständen erfolgreich gerecht zu werden, wurde mit allen Beteiligten ein prinzipielles weiteres Vorgehen abgestimmt. Es wird nachfolgend aufgeführt.

3.2.2.3. Prinzipielles Vorgehen

A) Bei der Probenahme

Der WAK-Probenflasche (= Rohrpostkapsel) wird ohne Öffnen des Verschlusses, nur durch Durchstechen des Gummistopfens, eine möglichst

kleine Teilmenge ihrer Füllung entnommen. Die Kapsel soll sich nur für die unbedingt zur Probeentnahme erforderliche Zeit im Bereich der Vorbereitungsmechanik aufhalten.

B) Bei der Präparation

Die Art der Präparation soll ein Minimum an Varianten haben. Sie soll zu einer möglichst geringen Menge Meßprobe führen, in welcher das Originalprobenmaterial nur schwach verdünnt und mit einem konstanten Th-Gehalt vorliegen soll.

C) Bei der Vermeidung der Querkontamination

Die Präparation wird in Einweg-Meßküvetten vorgenommen, wodurch hier die Querkontamination ausgeschlossen wird.

Bei der Probeentnahme erfordert die absolute Verhütung der Querkontamination einen Aufwand, der beim Prototyp ca. 50 % des Gesamtaufwands ausmacht. Die damit verbundene Störanfälligkeit ist aus heutiger Sicht nicht mehr vertretbar. Deshalb wird nunmehr ein Verfahren entwickelt, welches die Querkontamination bei der Probeentnahme auf ein tolerierbares Maß, im Sinn der SpFK begrenzt.

D) Bei der Messung

Das Prinzip ist eine Simultananalyse auf U und Pu unter Verwendung von Th als sog. interner Standard. Daneben soll Gd in Proben ohne zu berücksichtigenden Gehalt an U und Pu innerhalb einer eng begrenzten Konzentrationsspanne (um 3 mg/g) gemessen werden. Die Anlage muß Messungen im reinen Handbetrieb und unter Verwendung anderer Probenformen ermöglichen. Im automatischen Betrieb beträgt die Meßdauer ca. 300-400 sec. Sie bestimmt den Arbeitstakt.

E) Bei der Gestaltung der Bedienung

Es ist Dialogbetrieb vorzusehen (Abb. 3,4). Es soll möglich sein, ca. 15 Messungen im Voraus zu programmieren, so daß eine unbeaufsichtigte Arbeitsweise der Anlage über 1,5 Stunden erreicht wird. Die Möglichkeiten zu Fehlentscheidungen des Operateurs müssen weitgehend eingeschränkt werden.

F) Bei automatischem Dauerbetrieb

Die Anlage steuert die Behandlung von 3 Proben gleichzeitig. Sie bewahrt primäre Meßdaten zeitlich limitiert, so daß der Operateur, z.B. nach kurzer Beurteilung auf Wunsch ausgedruckter Zwischenergebnisse die Auswertung verändert veranlassen kann. Dies Eingreifen wird dem Operateur jedoch nur ermöglicht, wenn das Analysenergebnis in Diskrepanz zur verwandten Eichfunktion steht. Eine wiederholte Präparation oder Messung ist bei dieser Betriebsart nicht möglich.

G) Automatischer Einzelbetrieb

Die Anlage bearbeitet nur eine Probe und ermöglicht die wiederholte Präparation, Messung und Auswertung. Diese Betriebsart ist besonders langsam und soll wichtigen Sonderfällen und dem Testbetrieb vorbehalten bleiben.

H) Bei Wartung und Ausfall

Es werden Sonderfunktionen vorgesehen, welche Wartung und nachfolgende Wiederinbetriebnahme erleichtern. Ein partiell automatischer Betrieb, z.B. zur zweckentfremdeten Anwendung von Bestandteilen der Probenvorbereitungsautomatik, wird grundsätzlich nicht ermöglicht.

I) Bei der Erstellung

In überlappender Arbeitsweise werden Gruppen mechanischer Komponenten zunächst im IRCH detailliert entworfen, über RBT an eine Fremdfirma zur Erstellung der Herstellungsunterlagen vergeben, nach denen dann im IRCH ein Funktionsmodell erstellt wird. In Abstimmung mit der WAK werden Zeichnungen und Modell verbessert und vervollständigt. Dann wird das endgültige Gerät gebaut (HW oder Institutswerkstatt) und im IRCH einem Dauertest unterzogen. Montage und Wartung unter realistischen Bedingungen werden erprobt und zusammen mit den Ergebnissen der Dauererprobung für ein Manual dokumentiert. Hard- und software für Steuerung und Auswertung werden im IRCH für eine Ausschreibung und Vergabe an eine Fremdfirma ausführlich vorbereitet.

3.2.2.4. Ausblick

Im Jahr 1975 wurde ein ca. 125 Seiten umfassendes technisches Konzept erarbeitet und im März 1976 den aktiv Beteiligten übergeben. Es wurde mittlerweile sowohl mit der WAK, als auch mit ADI und IDT diskutiert. Die Konstruktionstätigkeit über RBT ist angelaufen. Die Beschaffung der aufwendigen Elektronik wird durch einen von der Fachrichtung her prädestinierten Mitarbeiter des IRCH abgewickelt, der unserer Gruppe für den Zeitraum dieser Tätigkeit zugeteilt wurde. Wir erwarten, daß das Vorhaben dadurch planmäßig fortschreitet.

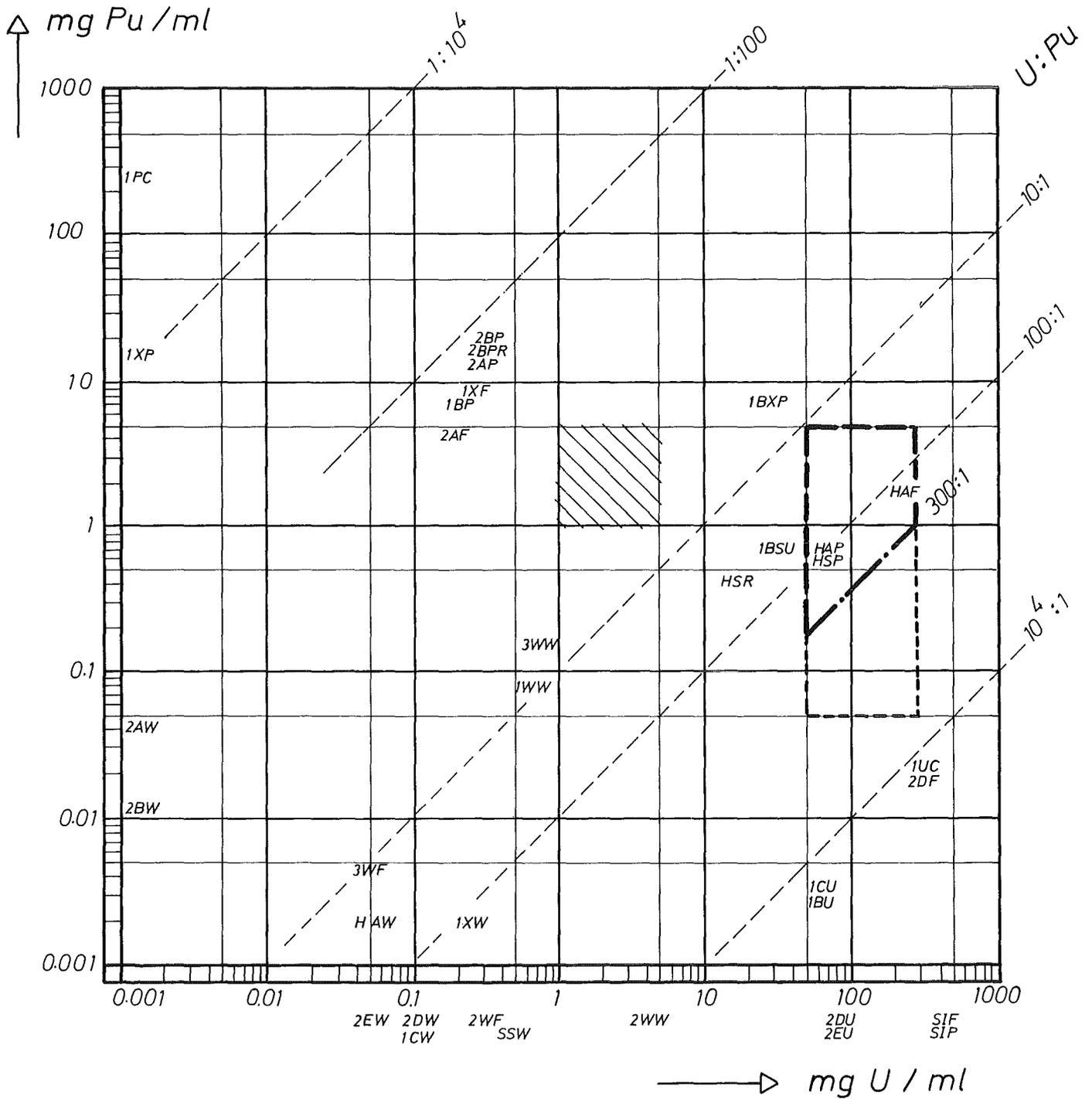
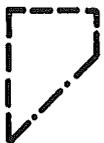
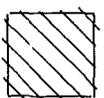


Abb.: 1 , Konzentrationsfeld mit zu analysierenden Probentypen = analytische Aufgabe.



Zielfeld nach den Vorstellungen von 1970, nach unten begrenzt durch U:Pu = 300 : 1 .



Bereich der maximalen Reproduzierbarkeit des Meßverfahrens. (Die Koordinaten 0,001 stellen etwa die Nachweisgrenzen dar)

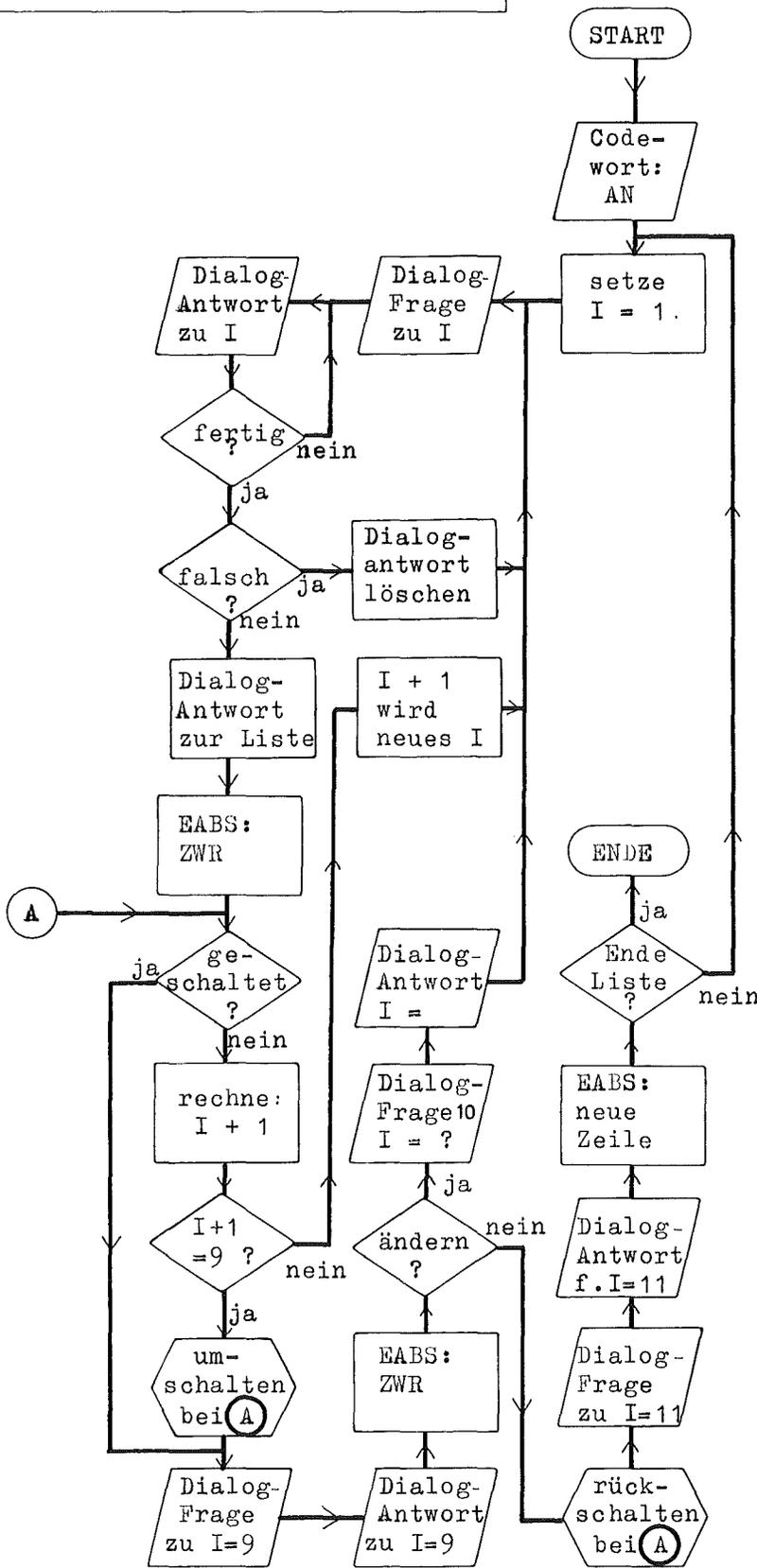


Geraden konstanten U:Pu-Verhältnisses. Entscheidendes Kriterium, neben den Konzentrationswerten, der Analysierbarkeit.

HAF 1BSU

Probentypen, eingetragen entsprechend Standardwerten.

Beispiel eines Dialog-Protokolls:
auf dem rechten Randstreifen



Laufzahl I	Dialog Frage	Dialog Antwort
I=1	NO=	J/N
I=2	PL=	01-15
I=3	ID=
I=4	WE=	001
I=5	ZW=	J/N
I=6	OK=	J/N
I=7	TT=	1,2,4
I=8	MS=	J/N
I=9	AE=	J/N
I=10	AI=	1-8
I=11	EL=	J/N

Bedeutung der Fragen:

- NO: Normale Verdünnung
- PL: Platz-Nr. im Proben Puffer
- ID: Identitätscode
- WE: Werkstoff-Gr. -Nr.
- ZW: Zwischenergebnisse ausdrucken
- OK: Handlungszwischenhalt bis Ergebnis quittiert
- TT: Meßdauer, z.B. 1x100
- MS: Massenspekt. Probe
- AE: Ändern innerhalb der letzten 8 Antworten
- AI: Laufzahl der zu korrigierenden Antwort
- EL: Ende der Liste?

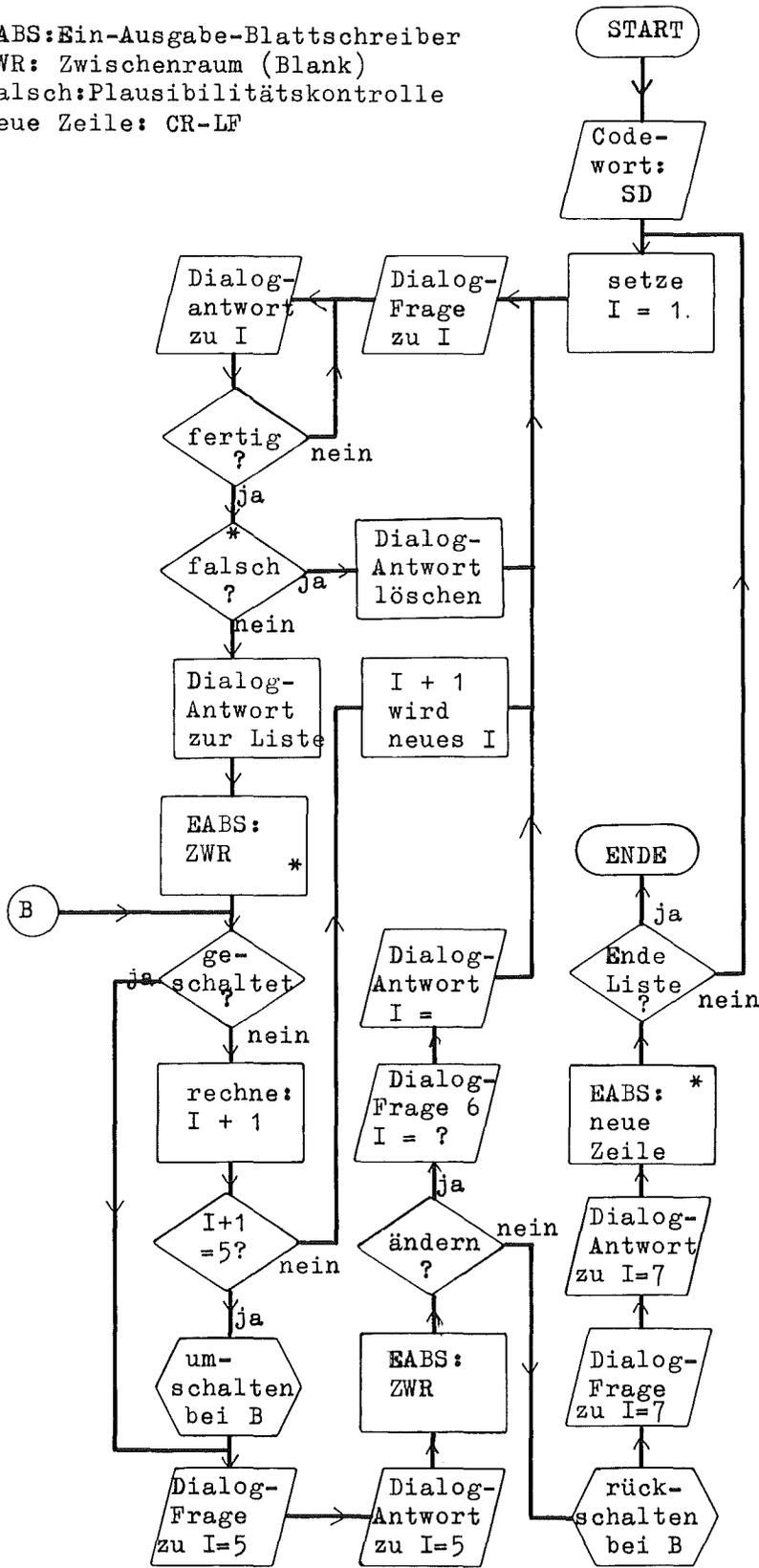
** AN; NO=J; PL=08; ID=00000; WE=124; ZW=N; OK=N; TT=1; MS=N; AE=N; EL=J; min. Platzbedarf: 75 Zeichen .

Abb.:
2

Entwurf zu einem Programmablaufplan für einen Codewort-Dialog-Verkehr zur Erstellung einer Parameterliste 15 aufeinander folgender Analysen.

Beispiel eines Dialog-Protokolls: auf dem rechten Randstreifen.

*EABS: Ein-Ausgabe-Blattschreiber
 ZWR: Zwischenraum (Blank)
 falsch: Plausibilitätskontrolle
 neue Zeile: CR-LF



Laufzahl I	Dialog Frage	Dialog-Antwort
I=1	RE=	001
I=2	WE=	001
I=3	ZW=	J/N
I=4	TT=	1,2,4
I=5	AE=	J/N
I=6	AI=	1-4
I=7	EL=	J/N

Bedeutung der Fragen:

RE: Adresse eines Datenblocks, die Rezepturanweisungen zur Herstellung einer Eichpräparatreihe enthaltend. Messung und Auswertung dieser Präparatreihe ergibt die Koeff. einer Eichkurve, die unter der Adresse "WE" (in der Datei zu den Werkstoffgruppen) gespeichert werden.

WE: Werkstoff-Gr.-Nr. (Adresse einer Eichkurve)

ZW: Zwischenergebnisse ausdrucken

TT: Meßdauer

AE: Änderung innerhalb der letzten 4 Antworten

AI: Laufzahl der zu korrigierenden Antwort

EL: Ende der Liste?

** SD; RE=001; WE=001; ZW=J; TT=1; AE=N; EI=J; min. Platzbedarf: 47 Zeichen.

Abb. 3 Entwurf zu einem Programmablaufplan für einen Codewort-Dialog-Verkehr zur Erstellung einer Parameterliste einer Eichpräparate-Reihe.

3.2.3. Naß-chemische Arbeiten zur Uran-Plutonium Konzentrationsbestimmung

3.2.3.1. Einleitung

Im Berichtszeitraum sind deutlich Verschiebungen in der Art des zu analysierenden Probenmaterials zu beobachten. Wie schon im vorhergehenden Jahresbericht (1) angedeutet, ist der Anteil an schwer löslichen Proben im Wachsen begriffen. In der Hauptsache handelt es sich um hochgeglühtes Oxid, daß am Rückflußkühler unter den üblichen Bedingungen selbst nach 24 Stunden noch nicht vollständig gelöst ist. Aber auch "coated particles", sowie Prozeßrückstände aus den verschiedensten Anlagen und calcinierte Asche - sogenanntes scrap-material - gehören zu dieser Probenkategorie. Ein Teil unser Aktivitäten galt dem Bemühen, für diese Probenart aus dem Kernbrennstoffkreislauf ein einfaches Aufschlußverfahren zu erarbeiten.

Da die über das Aufschlußverfahren eingebrachten oder die in diesem Material vorhandenen Fremdionen z.T. das anschließende Analysenverfahren störend beeinflussen, haben wir außerdem eine neue Plutonium-Konzentrationsbestimmung (2) eingeführt.

3.2.3.2. Das Aufschlußverfahren

In den letzten Jahren ist ein Aufschlußverfahren bekannt geworden, daß an Stelle von Salzschnmelzen bevorzugt mit Säuren arbeitet. Je nach Probenart werden HNO_3 , HCl , HF , H_2SO_4 , HClO_4 aber auch H_2O_2

(1) E. Mainka et al. KFK 2206

(2) Davies, W; and Townsend, M; TRG Report 2463 (1974)

eingesetzt. Auch Säuregemische haben sich beim Aufschluß schwer löslicher Materialien bewährt. Das Aufschlußgefäß besteht aus einem Teflon-Tiegel, der in einen Edelstahlbehälter eingepaßt ist. Mit Hilfe des verschraubbaren Stahldeckels mit Teflon-dichtung wird ein gasdichtes System erhalten. Verschiedenste Gefäßtypen sind auf dem Markt erhältlich. Wir benutzen für unsere Zwecke vor allem zwei Formen. Das eine Gefäß hat ein Fassungsvermögen von 23 ml. Der zulässige Druck ist 84 atm, die Temperatur soll 180°C nicht überschreiten. Der Deckel sowie der Boden des Stahlgefäßes sind aus Sicherheitsgründen mit einer Ventilöffnung von 1 mm \emptyset versehen.

Das Fassungsvermögen des zweiten Gefäßes beträgt 25 ml. Der zulässige Druck sowie die entsprechende Maximaltemperatur sind gegenüber der ersten Ausführung beträchtlich höher. Sie betragen 340 atm bzw. 285°C. Das Sicherheitsrisiko bei dem zweiten großen Gefäß ist durch eine Berstplatte im Stahlgehäuse relativ gering. Abbildung 1 und 2 (s.S. 3-19) zeigen die Gefäße, die wir verwenden.

Während Aufschlüsse in geschlossenen Systemen schon länger auch in der Kernbrennstoffanalyse bekannt sind (3), macht erst der relativ einfach zu handhabende verschraubbare "Tefloncontainer" den Einsatz eines solchen Verfahrens im Routinebetrieb möglich.

Gegenüber den vorher verwendeten Glasapparaturen (vergl. 3) bietet das Teflongefäß außerdem die Möglichkeit, auch mit Flußsäure zu arbeiten. Für den Aufschluß schwer löslicher Rückstände ist das ein nicht zu unterschätzender Vorteil. Zunächst sind auf diese Weise Silikate aufgeschlossen worden (4). Aber auch so schwerlösliches

(3) Metz, C.F; Waterbury, G.R; LASL 3554 (1966)

(4) Bernas, B; Anal. Chem. 40, 1682 (1968)

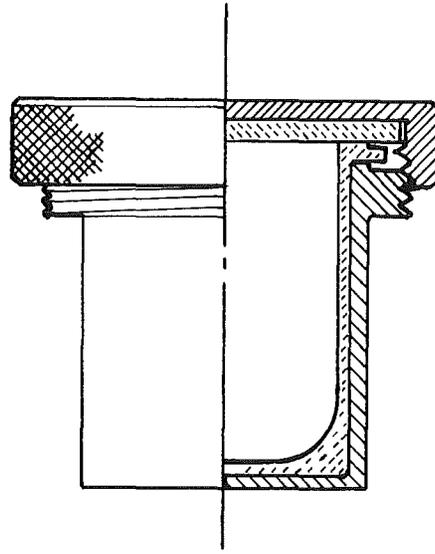


Abb.: 1

UNI-SEAL Gefäß

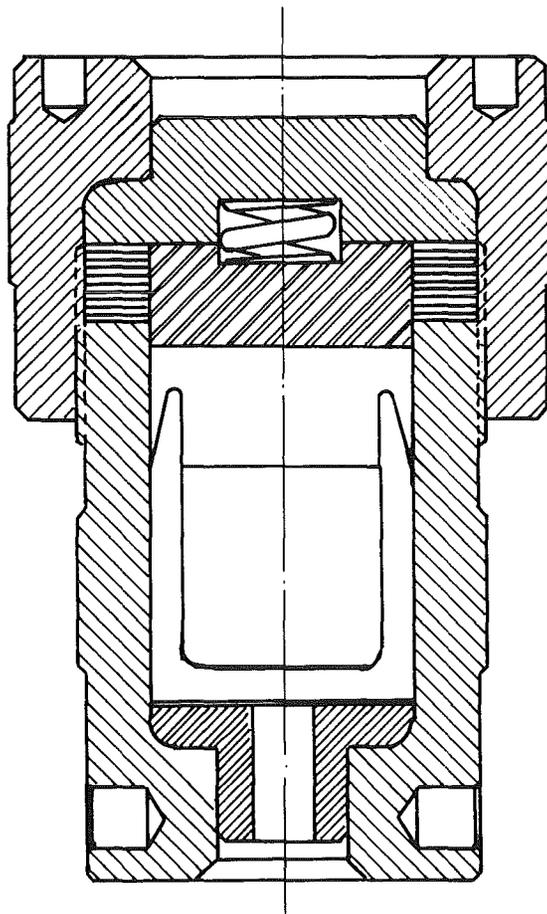


Abb.: 2

Parr-Bombe

Material wie z.B. SiN (5) konnte mit der Methode quantitativ in Lösung gebracht werden. Wir selbst benutzen einen solchen Aufschluß für unsere Atomabsorptionsanalytik mit gutem Erfolg. Es lag daher nahe, daß wir versuchten, auch schwerlösliches Kernbrennstoffmaterial auf diese Weise zu zersetzen.

3.2.3.2.1. Der Aufschluß von (UC-SiC-C) Dragon-Material

Zwei Aufschlußverfahren werden bisher bevorzugt für dieses Material eingesetzt. Zum einen werden die "particles" mechanisch aufgeschlagen. Voraussetzung ist, daß wirklich jedes "particle" zerschlagen wird, was bei kleinen Kügelchen $< 1 \text{ mm } \emptyset$ nicht ganz einfach ist. Das Uran wird dann mit Säure in Lösung gebracht. Der Volumenfehler, der durch das unlösliche SiC entsteht ist vernachlässigbar (6). Auch bei dem Aufschluß mit einer $\text{Na}_2\text{CO}_3\text{-Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$ -Schmelze bleiben unlösliche Rückstände (7). Es sind weitere Versuche unternommen worden, durch Hochtemperaturchlorierung einen vollständigen Aufschluß zu erzielen. Unter diesen Bedingungen wird Uran als Tetrachlorid abdestilliert (8,9). Der hierfür notwendige apparative Aufwand ist erheblich, so daß wir mit den beschriebenen Tefloncontainern versuchen, dem Problem beizukommen.

In Tabelle 1 sind unsere Versuchsergebnisse zusammengefaßt.

Bei allen Versuchen hat sich ein hoher Flußsäuregehalt als besonders effektiv erwiesen. Unter Umständen aufgetretene Metallfluoridniederschläge, wie sie z.B. bei calcinierten Ascherückständen auftraten, konnten durch Zugabe von H_3BO_3 wieder in Lösung gebracht werden. In den meisten Fällen hat es sich um Ca- bzw. Mg-Rückstände gehandelt, wie aus den Emissionsspektren hervorging. Ähnliche Beobachtungen

(5) Parker, A; Healy, G; Analyst 95, 204 (1970)

(6) Smith, D.L.G; Sidall, R.E; Chapman, H; IAEA/SM 149/55 (1971)

(7) (8) Hues, A.D; Henicksman, A.L. and Ashley, W.H; LA 5429 (1974)

(9) Faltag, G; Serantin, H. and Knotik, K; IAEA/SM 149/56 (1971)

Tabelle 1

Probematerial	Probenmenge (g)	Aufschlußgefäß	Aufschlußmittel (ml)	Aufschlußtemperatur (°C)	Aufschlußzeit (h)	Ergebnis
U-calzinierte Asche	1	hl	3 (HCl:HNO ₃) (3:1) 4 HF (40 %ig) 5 H ₂ O ₂ (30 %ig)	150	5	vollst. Aufschluß
UC-SiC-C	0,1	hl	1 HNO ₃ konz. 1 HF (40 %ig) 5 H ₂ O ₂ (30 %ig)	150	5	vollst. Aufschluß
UC-SiC-C	0,3	hl	1 HNO ₃ konz. 1 HF (40 %ig) 5 H ₂ O ₂ (30 %ig)	250	8	vollst. Aufschluß
UC-SiC-C	0,5	gr	1 HNO ₃ konz. 1 HF (40 %ig) 5 H ₂ O ₂ (30 %ig)	250	8	Berstplatte verformte sich Probe entwich
UC-SiC-C ⁺	0,5	gr	3 HCl konz. 3 HF (40 %ig)	250	6	unvollst. Aufschluß
UC-SiC-C ⁺	0,5	gr	3 (HCl:HNO ₃ =3:1) 4 HF (40 %ig) 5 H ₂ O ₂ (30 %ig)	250	6	

+) Die Proben sind zuerst bei 1000⁰ gegläht worden um den Pyrokohlenstoff zu oxidieren

hatte Ross (10) gemacht. Durch Zugabe von Borsäure werden die Metallfluoride in lösliche Fluorborate überführt.

Wir konnten bei ersten Versuchen mit Plutoniumasche ein ähnliches Verhalten beobachten. Die Verhältnisse an diesem Material sollen eingehend untersucht werden. Zu einem späteren Zeitpunkt soll auch darüber berichtet werden.

Die photometrische Bestimmung von Uran unter den Aufschlußbedingungen mit einem Tefloncontainer ist im Zusammenhang mit Mineralanalysen bereits erprobt (11).

3.2.3.3. Die potentiometrische Plutonium Konzentrationsbestimmung mit Cu Cl als Reduktionsmittel

3.2.3.3.1. Einleitung

Das Verfahren wurde von Davis und Townsend (2) beschrieben. Die Analyse ist auch in Gegenwart von einer großen Anzahl von Fremdionen möglich. Es wurde zur Plutoniumkonzentrationsbestimmung für bestrahltes Material entwickelt.

3.2.3.3.2. Analysenprinzip

Mit einem Überschuß von Cu Cl werden Pu IV und VI in Gegenwart von HCl, AlCl₃ und NH₂SO₃H zu Pu III reduziert. Die Mischung wird mit einer standardisierten K₂Cr₂O₇-Lösung potentiometrisch titriert. Nachdem der erste Endpunkt erreicht ist, der anzeigt, daß der Überschuß an CuI vollständig oxidiert wurde, gibt man Phosphorsäure und Schwefelsäure zu und setzt danach die Titration fort. Der

(10) Ross, I.T.H.; Spectrovision 21, 2 (1969)

(11) Paklans, P; Anal. Chim. Acta. 69, 211 (1974)

zweite Endpunkt zeigt an, daß alles Plutonium nun im IV-wertigen Zustand vorliegt.

Die Plutoniumkonzentration berechnet sich aus dem Verbrauch des $K_2Cr_2O_7$ zwischen ersten und zweiten Endpunkt.

Die für dieses Verfahren zulässigen Fremdstoffgehalte sind in Tabelle 2 angegeben +).

Tabelle 2: Tolerierte Fremdstoffgehalte in 5 ml Lösung (Jedes Element ist für sich allein getestet worden, der Plutoniumgehalt beträgt 30 mg)

Element	Menge (mg)	Element	Menge (mg)	Element	Menge (mg)
Al	300	Ag I	20	F	100
Cu	40	Se	3	I	0,01
Fe	20	Tc	0,01	Nitrate	1500
Hg I	0,05	Tl	3	Oxalate	0,5
Hg II	350	U VI	200	PO_4^{\prime}	20
Mo	100	V	6	SO_4^{\prime}	100
Pd	7	Acetat	1000	$NH_2^{\prime}SO_3^{\prime}$	750
Rh	6	Be	2	H_2O_2	15
Ru	5	Cl	500		

Die Aussagekraft dieser Tabelle ist, da sie von Einzelgehalten ausgeht, nicht besonders hoch einzuschätzen, sie zeigt aber eindeutig, daß die einzelnen Fremdionen beträchtlich über vorhandenen Plutoniumkonzentration liegen können.

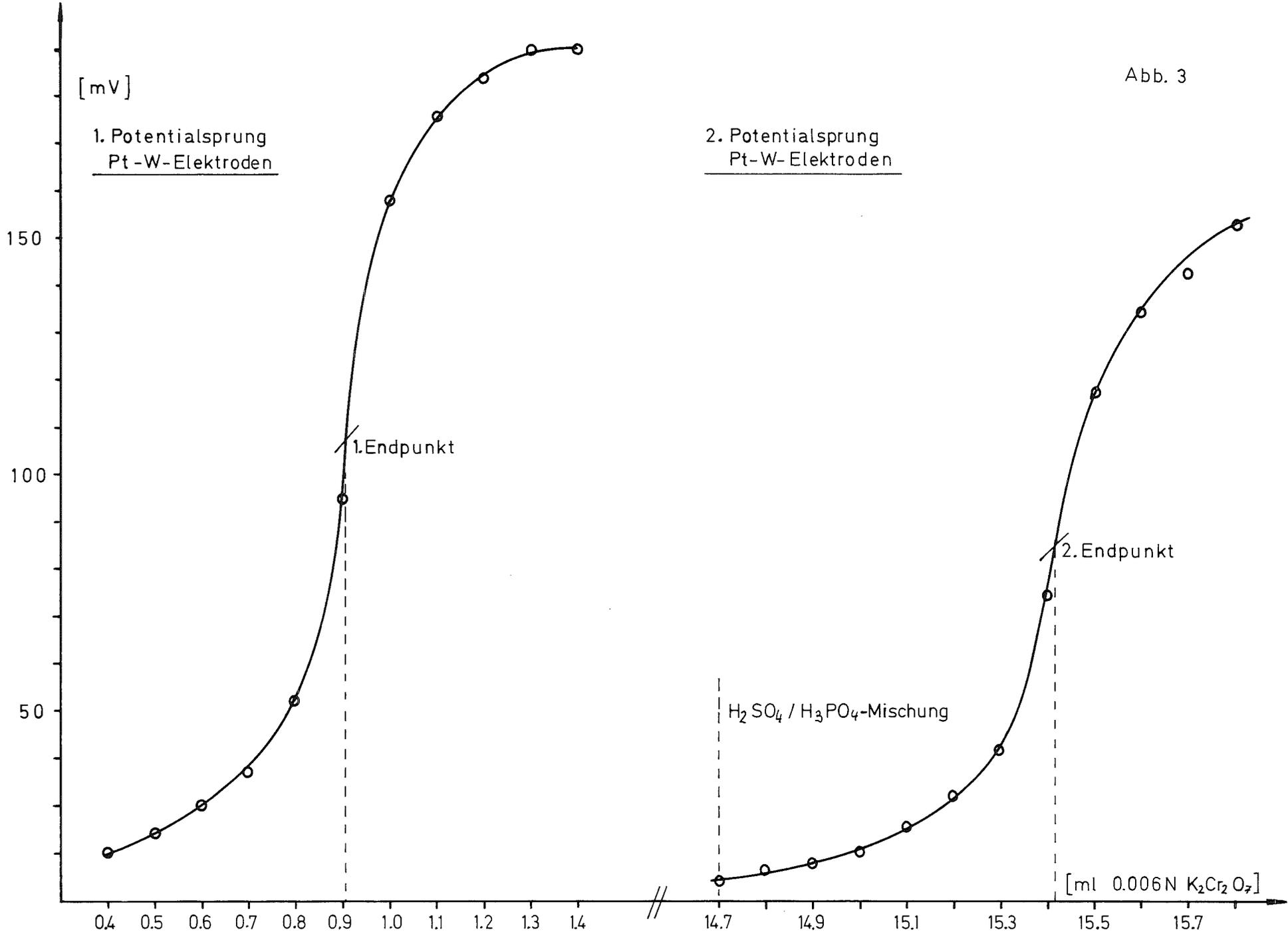
+) die Werte sind der Arbeit (2) entnommen

3.2.3.3.4. Die Potentialmessungen

Die in der Literatur (2) berichteten Potentiale beziehen sich auf das Elektrodensystem Platin/Kalomelelektrode. Da wir beabsichtigen, diese Verfahren nach dem vorher beschriebenen Aufschlußverfahren, d.h. bei relativ hohem HF-Gehalt einzusetzen, haben wir das Elektrodensystem Pt/W mit Erfolg getestet, wodurch sich selbstverständlich Potentialverschiebungen ergeben. Abbildung 3 (s.S. 3-25) zeigt die entsprechenden Potentialkurven.

Erste Versuche, plutoniumhaltige Abfälle nach dem hier beschriebenen Verfahren durchzuführen, verliefen erfolgversprechend.

Abb. 3



Kapitel 4: KERNMATERIAL- UND ANLAGENSICHERUNG

4-1

D. Sellinschegg

4. Kernmaterial- und Anlagensicherung

Im Jahr 1975 wurde das F+E.-Programm für die Kernmaterial- und Anlagensicherung einer Anregung des BMFT und BMI folgend neu ausgearbeitet. Die folgenden Themen wurden in das Arbeitsprogramm aufgenommen:

1. Analyse der Bedrohung durch illegale Akte
2. Überlegungen zur Dichtigkeit von Containments
3. Erprobung von Überwachungselementen
4. Entwicklung von Modellsicherungssystemen für einzelne kerntechnische Einrichtungen
5. Studie zur Sicherung des Brennstoffzyklus

Im Zuge einer Reorganisation wurde dieses Forschungsvorhaben ab 1975 aus dem Projekt herausgenommen. Deshalb werden die Forschungs- und Entwicklungsarbeiten zu diesem Thema nicht mehr im Jahresbericht des Projektes erscheinen.

Kapitel 5: EXPERIMENTELLE PRÜFUNG VON ÜBERWACHUNGSMASSNAHMEN

	<u>Seite</u>
5.1 Interlaboratoriumstests	5-1
5.1.1 Test der Auswertemethoden für Alpha-Spektren "ASET-75" W. Beyrich und A. Cricchio	5-1
5.1.2 UF ₆ -Interlaboratoriumstest W. Beyrich	5-5
5.1.3 Studie zu den in der Praxis zu erwartenden Differenzen zwischen den Analysenwerten zweier Laboratorien W. Beyrich	5-5
Literatur zu Kapitel 5	5-9

5.1 Interlaboratoriumstests

5.1.1 Test der Auswertemethoden für Alpha-Spektren "ASET-75"

Wie bereits im vorausgegangenen Jahresbericht /1/ ausgeführt wurde, sollte in diesem Experiment der Einfluß unterschiedlicher Korrekturverfahren für die Peaküberlagerung im α -Spektrum des Plutonium auf die Bestimmung des Aktivitätsverhältnisses $\text{Pu } 238/(\text{Pu } 239+\text{Pu } 240)$ untersucht werden. Hierzu wurden am Europäischen Institut für Transurane Plutoniumlösungen mit unterschiedlichem Pu 238-Gehalt (0.2, 0.8 und 1.5 %) sowohl durch Verdampfen als auch elektrolytisch auf Probenträger aufgebracht, von denen α -Spektren verschieden starker Peaküberlagerung gewonnen werden konnten.

Von jeder der 6 Meßproben wurden drei Wiederholungsspektren aufgenommen, vervielfältigt und den am Test beteiligten 10 Laboratorien¹⁾ zur Auswertung zugestellt. Als Beispiel sind in den Abbildungen 1 und 2 ein Spektrum geringer bzw. hoher Auflösung graphisch²⁾ wiedergegeben.

Durch Auswertung der drei zur gleichen Meßprobe gehörenden Wiederholungsspektren erhielt jedes Labor pro Meßprobe drei Werte für das α -Aktivitätsverhältnis $\text{Pu } 238/(\text{Pu } 239+ \text{Pu } 240)$, aus denen jeweils der Mittelwert und seine relative Standardabweichung berechnet wurden. In den Abbildungen 3 und 4 sind die prozentualen Abweichungen dieser "Labormittelwerte" vom Gesamtmittelwert aller Bestimmungen für den Fall geringer Auflösung (vgl. Abb. 1) und hoher Auflösung (vgl. Abb. 2) dargestellt.

¹⁾ ALKEM, Hanau, BRD; BARC, Bombay, Indien; CBNM (EURATOM), Geel, Belgien; CCR (EURATOM), Ispra, Italien; GfK, Karlsruhe, BRD; GWK, Leopoldshafen, BRD; LASL, Los Alamos, USA; NBL, New Brunswick, USA; Tokai Works, Tokaimura, Japan; TU (EURATOM), Karlsruhe, BRD.

²⁾ Für die Auswertung verwendeten die Laboratorien den digitalen Ausdruck dieser Spektren.



Abb. 1: Plutonium-Spektrum geringer Auflösung (1.5 % Pu-238; Eindampftechnik)



Abb. 2: Plutonium-Spektrum hoher Auflösung (0.2 % Pu-238; Elektrodeposition)

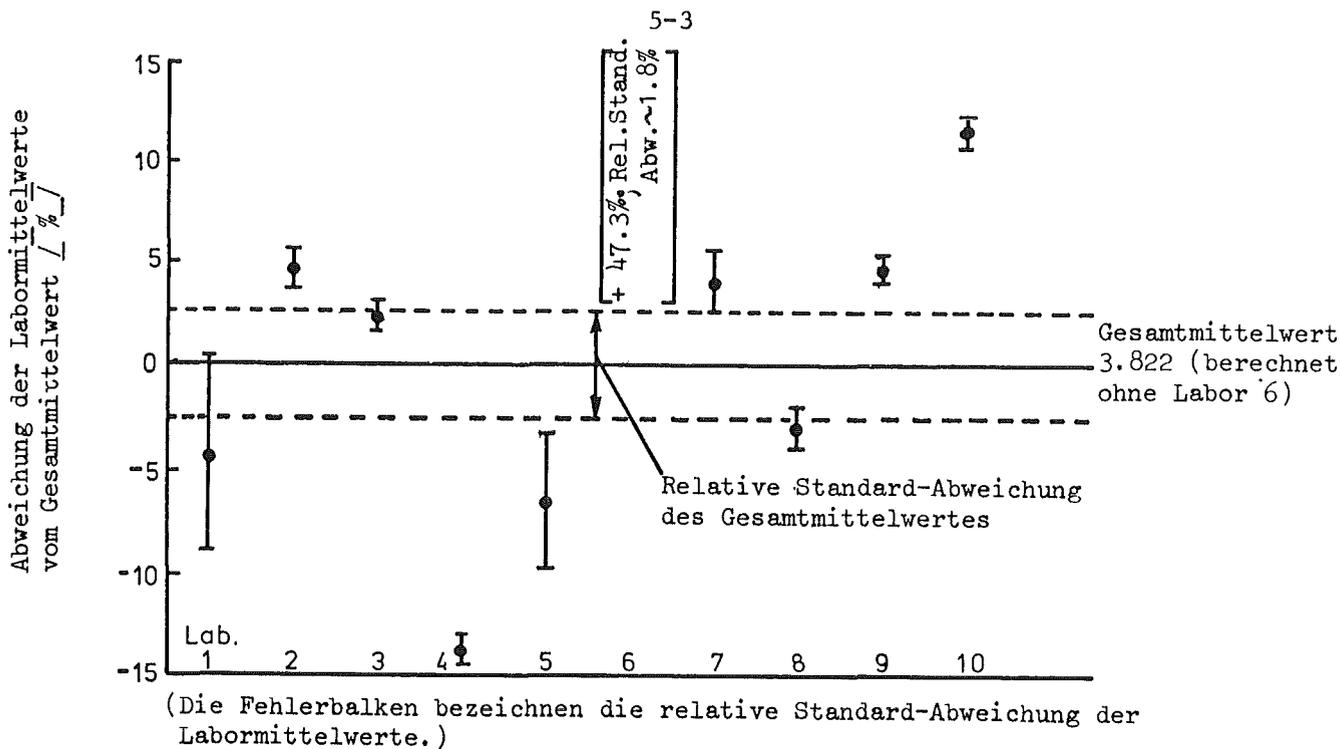


Abb. 3: Bestimmung der α -Aktivitätsverhältnisse Pu 238/(Pu 239+Pu 240) an einem Spektrum geringer Auflösung (1.5 % Pu 238; Eindampftechnik)

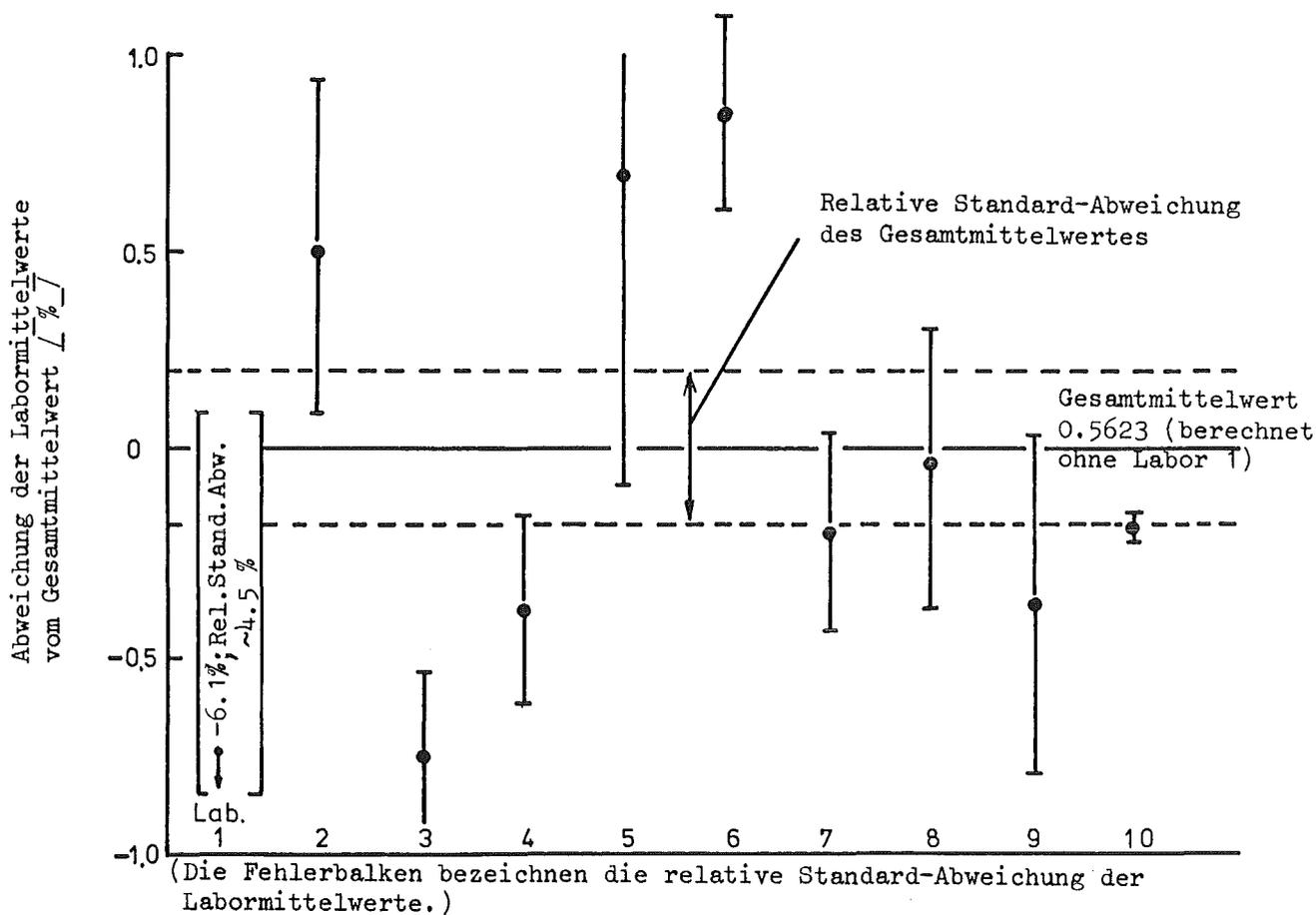


Abb. 4: Bestimmung der α -Aktivitätsverhältnisse Pu 238/(Pu 239+Pu 240) an einem Spektrum hoher Auflösung (0.2 % Pu 238; Elektrodeposition)

Die erheblich größere Streuung der Meßwerte bei schlechter Auflösung (d.h. großer Korrektur der Peaküberlagerung) wird beim Vergleich der Ordinatenmaßstäbe beider Abbildungen deutlich sichtbar. Darüberhinaus zeigt sich, daß durch Anwendung unzureichender Korrekturverfahren Werte erzeugt werden können, die von der Gruppe der übrigen Labormittelwerte signifikant abweichen (Lab. 6 in Abb. 3 und Lab. 1 in Abb. 4).

Die Gesamtheit der Ergebnisse des Experimentes können wie folgt zusammengefaßt werden:

- Der vermutete starke Einfluß der Peaküberlagerung auf die Bestimmung des $\text{Pu } 238 / (\text{Pu } 239 + \text{Pu } 240)$ α -Aktivitätsverhältnisses wurde deutlich bestätigt und kann bei Anwendung unzulänglicher Korrekturverfahren zu erheblichen Fehlern führen.
- Entsprechend ihrem unterschiedlichen Aufwand bei der Korrektur der Peaküberlagerung können drei Gruppen von Auswertemethoden unterschieden werden:
 - i) Die "einfachen" Verfahren, die nahezu keine Korrektur für die Peaküberlagerung enthalten. Ihre Anwendung ist nicht zu empfehlen, da sie bei Pu-238 Häufigkeiten von ca. 1 % und darüber selbst dann zu großen Fehlern führen können, wenn durch Verwendung sehr sorgfältig hergestellter Meßproben die Peaküberlagerung gering gehalten wird.
 - ii) Die "normalen" Auswertemethoden, die einfache Korrekturverfahren für die Peaküberlagerung einschließen, führen im untersuchten Pu-238 Konzentrationsbereich (bis 1,5 %) zu zufriedenstellenden Ergebnissen, wenn durch die Anwendung geeigneter Verfahren bei der Herstellung der Meßproben die Erzielung optimaler Auflösung gewährleistet ist.
 - iii) Auswerteverfahren, die nichtlineare Korrekturen nach der Methode der kleinsten Abweichungsquadrate umfassen, liefern die zuverlässigsten Ergebnisse. Wegen ihres großen Aufwandes sind sie

jedoch nur zu empfehlen, wenn die Auswertung vollständig über Computer erfolgt.

Zwischen den aufgrund der Probenherstellung erwarteten und im Test gefundenen α -Aktivitätsverhältnissen wurden signifikante Unterschiede gefunden, die mit zunehmendem Pu-238 Gehalt ansteigen. Ihre Erklärung ist aus den in diesem Experiment gewonnenen Daten nicht möglich, sondern erfordert umfassendere Untersuchungen, die für 1976 vorgesehen sind (Experiment "AS-76").

Der Abschlußbericht über das Experiment "ASET-74" wurde inzwischen fertiggestellt /2/.

5.1.2 UF₆-Interlaboratoriumstest

Bezüglich der Zielsetzung und Planung dieses Experimentes, das im Rahmen eines Vertrags mit der Firma Dornier-System GmbH., Friedrichshafen, durchgeführt wurde, wird auf den Jahresbericht 1974 verwiesen /1/.

Im Berichtszeitraum wurden in den Laboratorien der Teilnehmer die Messungen durchgeführt und bis Jahresende abgeschlossen. Ihre Auswertung und die Erstellung eines Abschlußberichtes sind für das erste Halbjahr 1976 vorgesehen.

5.1.3 Studie zu den in der Praxis zu erwartenden Differenzen zwischen den Analysenwerten zweier Laboratorien

Genaue Kenntnis der bei Routinemessungen zu erwartenden Differenzen in den Analysenergebnissen zweier Laboratorien ist für die praktische Durchführung von Kontrollmaßnahmen von grundlegender Bedeutung ("Shipper-Receiver"-Differenzen, Abweichungen der Kontrollanalysen von den vom Anlagenbetreiber deklarierten Werten etc.).

Um ein anschauliches Bild über die gegenwärtige Situation zu erhalten, wurden für alle möglichen Kombinationen von zwei Laboratorien, die an dem Vergleichsexperiment IDA-72 /4/ teilgenommen hatten, die relativen

Differenzen ihrer Analysenergebnisse berechnet und hieraus eine empirische Verteilungskurve hergeleitet.

Abbildung 5 zeigt als Beispiel das Ergebnis dieses Auswerteverfahrens für die massenspektrometrische Bestimmung der U-235-Häufigkeit von ca. 2 % in der verdünnten, aktiven Eingangslösung einer Wiederaufarbeitungsanlage.

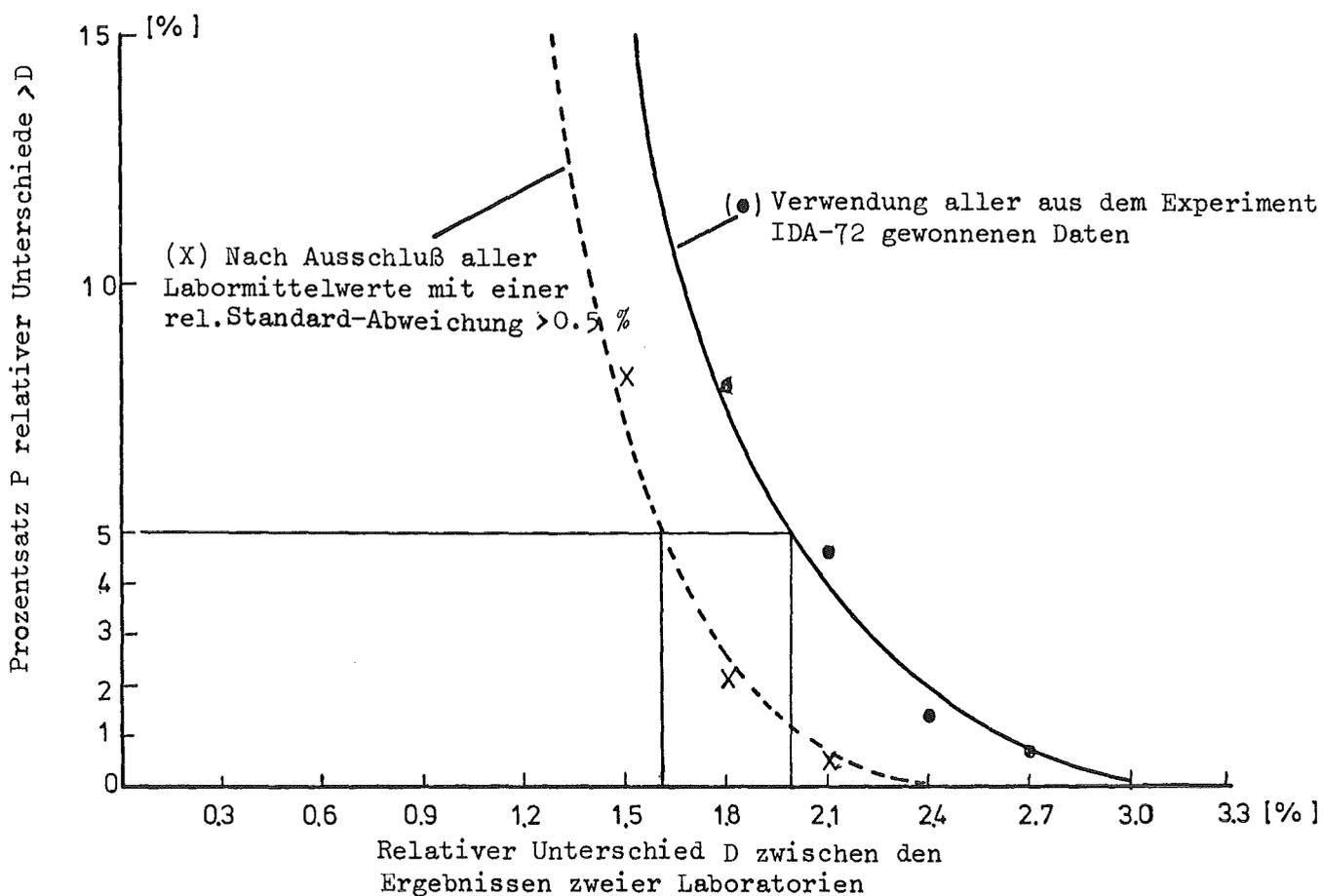


Abb. 5: Massenspektrometrische Häufigkeitsbestimmungen von ca. 2 % U-235; Verteilung der relativen Unterschiede zwischen den Labormittelwerten

Die durchgezogene Kurve wurde bei Berücksichtigung aller Analysendifferenzen erhalten, die aus den Messungen der beteiligten Laboratorien berechnet werden konnten¹⁾. Danach ist in der Praxis bei diesem Analystyp in ca. 5 % aller Fälle mit dem Auftreten relativer Differenzen von 2 % oder mehr zwischen den Ergebnissen zweier Laboratorien zu rechnen, bzw. 95 % der zu erwartenden Differenzen sind kleiner als 2 %.

Weiterhin wurde untersucht, ob eine signifikante Verbesserung der Situation durch Einführung eines vom Meßlabor selbst anwendbaren Kriteriums auf der Basis der Reproduzierbarkeit seiner Messungen erzielt werden kann. Da im Experiment IDA-72 das Analysenergebnis jedes Labors als Mittelwert aus drei Einzelmessungen gewonnen wurde, sind die zugehörigen Standardabweichungen bekannt, sodaß der Einfluß der Anwendung eines derartigen Kriteriums unmittelbar überprüft werden konnte. Im oben diskutierten Fall wurde eine optimale Verteilung der Differenzen nach Ausschluß aller Analysenergebnisse gefunden, die eine relative Standardabweichung von mehr als ± 0.5 % haben (ca. 22 %). Die entsprechende Kurve ist in Abb. 5 gestrichelt eingezeichnet und zeigt deutlich die durch Anwendung dieses Kriteriums erreichbare Verbesserung.

Entsprechende Auswertungen wurden für weitere im Experiment IDA-72 durchgeführte Analystypen durchgeführt. Die Ergebnisse sind in Tabelle 1 zusammengestellt.

Über diese Untersuchungen wurde anlässlich des "International Symposium on the Safeguarding of Nuclear Materials" der IAEA (Wien, Oktober 1975) vorgetragen /4/. Sowohl die IAEA als auch die Luxemburger Kontrollbehörde der EURATOM brachten ihr Interesse an einer engeren Zusammenarbeit mit dem Projekt SpFK zur Fortführung derartiger Studien zum Ausdruck.

¹⁾ Insgesamt analysierten 18 Laboratorien zwei Proben, die beide ca. 2 % U-235 enthielten. Pro Probe lagen somit 18 Analysenergebnisse verschiedener Laboratorien vor, aus denen unter Berücksichtigung aller möglichen Kombinationen $2 \times 153 = 306$ relative Differenzen berechnet werden konnten.

Tabelle 1: Zusammenstellung der Ergebnisse

Analytische Bestimmung	Experimentelle Bedingungen	Ausgeschlossene Labormittelwerte	Anzahl der Differenzwerte, auf der die Auswertung basiert	Relativer Unterschied $D \sqrt{\frac{\%}{\%}}$ zwischen zwei Labormittelwerten, der in P Prozent der Fälle überschritten wird		
				P = 10 %	P = 5 %	P = 2 %
U-235 Häufigkeit; MS	~2 %; verdünnte aktive Lösung	keine 22 % mit rel. Stand.Abw.>0.5 %	306	1.7	2.0	2.4
			169	1.4	1.6	1.8 ₅
U-235 Häufigkeit; MS	~0.7 %; inaktive synthetische Lösung	keine 11 % mit rel. Stand.Abw.>0.4 %	153	2.0 ₅	2.5	2.9
			120	1.8 ₅	2.2 ₅	2.6
Pu-239 Häufigkeit; MS	~72 %; verdünnte aktive Lösung	keine 10 % mit rel. Stand.Abw.>0.08 %	210	0.4 ₀	0.4 ₈	0.6 ₀
			171	0.4 ₀	0.4 ₈	0.6 ₀
Pu-241 Häufigkeit; MS	~9.2 % verdünnte aktive Lösung	keine 17 % mit rel. Stand.Abw.>0.4 %	210	1.3	1.6 ₅	2.1
			150	0.9	1.0 ₅	1.2 ₅
Uran-Konzentration; IVD	~1 mg/g Lösung, inaktive synthetische Lösung	keine 20 % mit rel. Stand.Abw.>0.4 %	45	2.0	2.5	2.8
			28	1.1	1.3	1.4
Plutonium-Konzentration; IVD	~10 µg/g Lösung, inaktive synthetische Lösung	keine 40 % mit rel. Stand.Abw.>0.4 %	45	Rel. Unterschied D > 3 % für P = 67 % der Fälle		
			15	Rel. Unterschied D > 3 % für P = 33 % der Fälle		

M S = Massenspektrometrische Bestimmung; IVD = Massenspektrometrische Isotopenverdünnungsanalyse

Referenzen

- /1/ G. Bork, ed. Projekt Spaltstoffflußkontrolle - Jahresbericht 1974,
KFK 2206 (1975)
- /2/ W. Beyrich und A. Cricchio
"The ASET-74 Intercomparison Experiment on the Evaluation of
Alpha Spectra of Plutonium", KFK 2265/EUR 5208e (1976)
- /3/ W. Beyrich und E. Drosselmeyer
"The Interlaboratory Experiment IDA-72 on Mass Spectrometric
Isotope Dilution Analysis", KFK 1905/EUR 5204e (1975)
- /4/ W. Beyrich
"Consideration Concerning the Problem of Analytical Interlaboratory
Differences in Practical Safeguards",
Proceedings of the International Symposium on the Safeguarding of
Nuclear Materials der IAEA, Wien, Oktober 1975 (1976)

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

	<u>Seite</u>
Einleitung D. Gupta	6-1
6.1 Kernmaterialüberwachung an Leichtwasserreaktoren Chr. Brückner, U. Bicking, H. Otto	6-3
6.2 Kernmaterialüberwachung an einem natriumgekühlten Schnellbrutreaktor (Kernkraftwerk Kalkar: SNR 300) H. Krinninger, Chr. Brückner	6-12
6.3 Kernmaterialüberwachung in Wiederaufarbeitungsanlagen H.J. Hein, W. Rust	6-22
6.4 Kernmaterialüberwachung in einer Fabrikationsanlage für Brennstäbe aus Pu-U-Mischoxid (ALKEM) Chr. Brückner, W. Bahm, G. Hartmann	6-31
6.5 Kernmaterialüberwachung in einer Fabrikationsanlage für hochangereichertes Uran (NUKEM) U. Bicking, S. Onnen, F. Schinzer, Chr. Brückner	6-41
6.6 Überwachungsmaßnahmen für Kernforschungszentren und Hochtemperatur-Reaktoranlagen H. Búker, R. Buttler, H. Engelhardt, U. Kotte, G. Stein	6-53
6.7 Kernmaterialüberwachung im Kernforschungszentrum Karlsruhe W. Rust, Chr. Brückner, U. Bicking, H. Otto	6-56
6.8 Zum Entwurf einer neuen Verordnung der Kommission der Europäischen Gemeinschaften zur Anwendung der Bestimmungen des Euratom-Vertrages über die Sicherheitsüberwachung (Kernmaterialüberwachung) Chr. Brückner, U. Bicking, H. Otto, W. Rust	6-62
Literaturverzeichnis zu Kapitel 6	6-70

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

Einleitung

Die Aufgaben im Zusammenhang mit den Überwachungsmaßnahmen nach dem NV-Vertrag in kerntechnischen Anlagen der BRD erforderten eine Vielfalt von Tätigkeiten im Jahr 1975. Ein großer Teil der Aufgaben entstand bei der detaillierten Bearbeitung von Problemen, die sich unmittelbar aus den Anlagenspezifischen Anhängen für die drei Musteranlagen der BRD (Kernkraftwerk Stade, NUKEM, WAK) bzw. für ähnliche Anlagen (z.B. ALKEM) ergaben. Ein weiterer Teil der Aufgaben bestand darin, ausgehend von dem Verifikationsabkommen Überwachungskonzepte für fortgeschrittene Reaktortypen (SNR, HTR) und für Kernforschungszentren (KFA, Jülich, GfK, Karlsruhe) zu erarbeiten. Ein letzter Teil dieser Aufgaben bestand in der Analyse der Ausführungsbestimmungen (modifizierte Verordnungen 7 und 8 für die EURATOM-Überwachung) der Überwachung, die von der Kommission der Europäischen Gemeinschaft als Entwurf angefertigt und den Mitgliedsstaaten der Gemeinschaft zur Diskussion zur Verfügung gestellt wurde. Die vom Projekt ausgearbeiteten Alternativvorschläge dienten als Diskussionsgrundlage sowohl für die Bundesregierung wie auch für die betroffenen Anlagenbetreiber. Alle diese Arbeiten dienen dem Projektziel, unter Berücksichtigung der internationalen Verpflichtungen und der Realisierungsmöglichkeiten die Kernmaterialüberwachung so effektiv wie möglich gestalten zu helfen.

Im Bereich der Reaktoren lagen die Schwerpunkte der Arbeiten für die Leichtwasserreaktoren bei der Einführung von apparativen Beobachtungsmaßnahmen, für den SNR in der Festlegung der Spezifikationen für einzelne Meß- und andere Überwachungstechniken und für den HTR bei der Entwicklung des Überwachungskonzeptes. In Kapitel 6.1 wird das erste Kameraexperiment in dem Kernkraftwerk Stade unter Angabe der Randbedingungen diskutiert. In Kapitel 6.2 bzw. 6.7 sind die Spezifikationen der Instrumente für die Kernmaterialüberwachung im SNR bzw. das Überwachungskonzept für den HTR beschrieben.

Für die Wiederaufarbeitungsanlage WAK wurde u.a. die Möglichkeit der Rekalibrierung des Eingangsmößtanks mittels D_2O -Tracer untersucht. Diese

Methode erlaubt im Prinzip den Inspektoren, die Kalibrierdaten des Eingangsmessbalkens zu verifizieren. Der D_2O -Versuch wird in Kapitel 6.3 ausführlich beschrieben.

Bei den Brennelement-Herstellungsanlagen ALKEM und NUKEM ging es in erster Linie um die Entwicklung eines Konzeptes für die Aufnahme und Prüfung des realen Bestandes (ALKEM) bzw. Erprobung dieses Konzeptes mit EDV-Einsatz und Schätzung des Aufwandes (NUKEM). Kapitel 6.4 beschreibt u.a. das Konzept für die ALKEM. In Kapitel 6.5 sind die Arbeiten für die NUKEM zu den Meßsystemen, Erstellung von Primärdaten, Ermittlung von Verlustströmen sowie zum EDV-System und Aufwand für die Bestandsaufnahme beschrieben.

In Kapitel 6.6 sind die Arbeiten, die die SpFK-Gruppe, KFA Jülich, im Auftrage des Projektes durchgeführt hat, zusammengefaßt. Sie beinhalten zwei Bereiche, a) Entwicklung von Überwachungskonzepten für Kernforschungszentren anhand des Beispiels KFA Jülich und b) Entwicklung eines Überwachungskonzeptes für HTR. Die Arbeiten für die Zusammenstellung der Informationen und Daten, die vom Projekt für das Kernforschungszentrum Karlsruhe im Rahmen der Entwicklung eines Überwachungskonzeptes durchgeführt worden sind, sind in Kapitel 6.7 zusammengestellt. Kapitel 6.8 gibt einen Überblick über die Arbeiten des Projektes zum Entwurf der neuen Verordnung der Kommission der Europäischen Gemeinschaft, in der die Modalität der EURATOM-Überwachung in kerntechnischen Einrichtungen der Gemeinschaft geregelt wird.

6.1 Kernmaterialüberwachung an Leichtwasserreaktoren

6.1.1 Vorbemerkungen

Die Untersuchungen zur Kernmaterialüberwachung an Leichtwasserreaktoren, die das Projekt Spaltstoffflußkontrolle im Jahre 1975 durchführte, konzentrierten sich auf Arbeiten über die Anwendung von Surveillance-Maßnahmen mit Hilfe von Kameras. Gemeinsam mit EURATOM wurde am Kernkraftwerk Stade ein Demonstrations-Experiment durchgeführt, bei dem das Projekt ein eigenes Kamerasystem einsetzte. Das Ziel der Arbeiten war, entsprechend einem vom KKS in einer Stellungnahme geäußerten Wunsch, die Durchführbarkeit der Kameraüberwachung allgemein aufzuzeigen und die Erfüllbarkeit von Bedingungen in der Praxis zu klären, die auf der einen Seite vom Reaktorbetreiber (z.B. Vermeiden einer Personen- und Betriebskontrolle!) und andererseits von den Erfordernissen der Kernmaterialüberwachung her beim Kameraeinsatz gestellt werden. Ein zweites Experiment, an dem sich das Projekt beteiligte, lief mit EURATOM und dem Arbeitskreis "Spaltstoffüberwachung" der Vereinigung Deutscher Elektrizitätswerke am KKW Gundremmingen (KRB).

6.1.2 Über den Einsatz von Kameras für Surveillance-Maßnahmen in Leichtwasserreaktor-Anlagen

6.1.2.1 Einleitung

Sind bei einem nach Chargen gegliederten Bestand von Kernmaterial beziehungsweise nach einem chargenweise erfolgenden Kernmaterialfluß alle Kernmaterialchargen so in Containments eingeschlossen, daß ohne Wegnahme ganzer Chargen oder Verletzung der Integrität von Containments sich kein Kernmaterial abzweigen läßt, so kann die Kernmaterialüberwachung als Überwachung der Chargen als Einheiten und die Kernmaterialbilanzierung als Bilanzierung der Chargen nach ihrer Anzahl durchgeführt werden. An die Stelle wiederholter Messungen der Kernmaterialmassen tritt die Einschließung der Chargen in die Containments und die wiederholte Prüfung der Identität und Integrität der Containments oder, alternativ, die apparative Beobachtung (Surveillance) der Chargen. Dieses Verfahren ist besonders an Reaktoren anwendbar, an denen

Brennelementbündel oder vergleichbare Einheiten die Chargen bilden. Als Containments können die Bündel selbst, aber auch Transportbehälter oder das Reaktordruckgefäß verstanden werden, wobei zur Sicherstellung der Integrität und Identität Siegel dienen. Die zur Siegelanwendung alternative Beobachtung kann sich in Reaktoranlagen ebenfalls auf Brennelementbündel oder vergleichbare Einheiten, den Druckbehälter oder die Transportbehälter beziehen.

Versiegelungsverfahren können gegenwärtig aus Gründen, die im letzten Jahresbericht des Projektes Spaltstoffflußkontrolle dargestellt sind // nur zeitabschnittsweise oder nur an bestimmten Chargen angewandt werden, zum Beispiel an frischen Brennelementbündeln bis zu deren Einsetzen ins Core und an Transportbehältern. Darüber hinaus lassen sich die ins Core eingesetzten Bündel durch (indirektes) Versiegeln des Druckgefäßes sichern.

Verbleibende Lücken der Überwachung führen zu der Frage, inwieweit und unter welchen Bedingungen Surveillance-Maßnahmen zu ihrer Abdeckung eingesetzt werden können. Surveillance kann auch die direkte Beobachtung durch Personen (Inspektoren) bedeuten, doch soll im folgenden allein auf die wichtigere Variante, die Anwendung apparativer Beobachtungsverfahren, wie die mit Kameras, näher eingegangen werden.

6.1.2.2 Das Ziel apparativer Surveillance-Maßnahmen

Der Einsatz von apparativen Surveillance-Maßnahmen hat zum Ziel, Aufzeichnungen zu gewinnen, aus denen mit Hilfe eines vorgegebenen Entscheidungsmusters erkannt werden kann, ob Vorgänge abgelaufen oder Zustände eingetreten sind, die den Verdacht auf irreguläre Handlungen erzeugen können. Das Entscheidungsmuster, das als Ergebnis einer Analyse aller möglichen Handlungen und Situationen in der zu überwachenden kerntechnischen Anlage aufzustellen ist, hat dementsprechend die Handlungen und Situationen zu definieren, die Verdacht begründen könnten. Die Analyse und die Aufstellung des Entscheidungsmusters bilden den wesentlichen Kern eines Surveillance-Einsatzes.

Wo für die verdächtigen Handlungen und Situationen sich eine endliche Zeitdauer ergibt, ist anzunehmen, daß Momentbeobachtungen in Zeitabständen bestimmter Länge ausreichend sind. Unter Ausschöpfung der Bestimmungen des Verifikationsabkommens, das auch die Abschreckung vor Abzweigung als Ziel der Überwachungsmaßnahmen nennt, kann darüber hinaus eine stochastische Folge von Momentbeobachtungen vorgesehen werden, die die abzweigungsverdächtigen Situationen zu weniger als 100 % abdeckt.

6.1.2.3 Randbedingungen für den Einsatz von Kameras als apparativen Beobachtungseinrichtungen

Die Untersuchungen über apparative Beobachtungseinrichtungen beziehen sich hier zunächst auf Kameras. Damit deren Einsatz problemlos erfolgen kann, sollen, neben der selbstverständlichen Forderung nach Nichtbeeinträchtigung eines wirtschaftlichen Reaktorbetriebs (s.a. Artikel 5c des Verifikationsabkommens), folgende Randbedingungen erfüllt sein:

- Bedingungen für den safeguardsrelevanten Einsatz:

Die Kameraaufzeichnungen sollen auf safeguardsrelevante Ereignisse beschränkt werden. Zu diesem Zweck soll das Beobachtungsfeld so eingeschränkt sein, daß nur Bildmaterial über den Bereich vorliegt, über den safeguardsrelevante Informationen erforderlich sind.

- Verantwortung für Geräte und Gerätebetrieb:

Die Verantwortung für ordnungsgemäße Installation und ordnungsgemäßen Betrieb der Geräte unter allen betriebsmäßig auftretenden Arbeitsbedingungen in der Reaktoranlage soll bei den Überwachungsbehörden liegen. Der Anlagenbetreiber darf bei Störungen in den Geräten nicht in den Verdacht der Kernmaterialabzweigung kommen bzw. durch zusätzliche Überwachungsmaßnahmen belastet werden.

- Bedingungen für Auswertung und Würdigung der Aufzeichnungen:

Die Auswertung soll allein mit der beschriebenen Zielrichtung durchgeführt werden, gegebenenfalls safeguardsrelevante irreguläre Zustände oder Vorgänge aufzudecken. Sie soll mit der Anfertigung eines Protokolls endgültig abgeschlossen sein.

6.1.3.2 Durchführung

Für das Kamera-Experiment am KKS steht dem Projekt ein vom amerikanischen National Bureau of Standards (NB) speziell für Überwachungszwecke entwickeltes und von der US Arms Control and Disarmament Agency (ACDA) zur Verfügung gestelltes Surveillance-Gerät zur Verfügung. Gleiche Geräte sind auch von der IAEO zum Einsatz an Reaktoren und anderen kerntechnischen Anlagen vorgesehen. Das Gerät besteht aus

- einer 16 mm-Filmkamera (Bolex H 16) mit Einzelbildschaltung und Elektromotor als Antrieb, Objektiv Brennweite 10 mm, 1:1,6
- einem elektronischen Steuerungsteil mit
Zeitgenerator für Bildauslösung mit fest wählbarer Frequenz und
Datumanzeige,
Belichtungssteuerung,
Bewegungsdetektor- und Helligkeitsdetektor-Auswertung zur (wahlweisen) Bildauslösung
- einem Bewegungsdetektor (umgebaute Kleinbildkamera - Praktika -) mit 108 Bildpunkten, aus denen 1 bis 10 zur Bildauslösung bei Bewegung (Helligkeitsänderung an den Punkten) ausgewählt werden können
- einem Helligkeitsdetektor zur Bildauslösung bei integralen Helligkeitsänderungen
- einer Datumanzeige zur Einblendung ins Bild
- einem versiegelbaren Schutzkasten

Als Filmmaterial dienen Farbfilme des Typs Kodachrome EF mit der Empfindlichkeit 22 DIN (3200⁰k). Die Entwicklung der Filme erfolgt normal.

Das Experiment erfolgt bei insgesamt drei verschiedenen Aufstellungsorten der Kamera. Die Auswahl der Aufstellungsorte geht dabei von der Aufgabenstellung des Experiments, das heißt der Ausrichtung der Surveillance-Maßnahme auf bestrahlte Brennstoffbündel aus: Bei allen drei Aufstellungsorten sind die Arbeitsfläche vor der Materialschleuse, auf der Transportbehälter bei Abtransportvorgängen aufgenommen bzw. abgesetzt werden müssen, das innere Tor der Schleuse selbst und die Abstellposition für Transportbehälter im Naßlager (teilweise) im Blickfeld der Kamera.

- Aufstellungsort 1: Bühne auf Niveau (ca.) 32 m in der Reaktorhalle,
gegenüber der Materialschleuse
- Aufstellungsort 2: Flurabsatz auf Niveau + 28,50 außerhalb Splitterschutz,
gegenüber der Materialschleuse
- Aufstellungsort 3: Treppenabsatz auf Niveau (ca.) 24 m,
oberhalb und neben der Materialschleuse

(siehe Abbildung 6.1.1).

Bei dem Experiment sind vier Schritte zu unterscheiden:

Vorexperiment vom 4. November bis 6. November 1975

Versuche an allen drei Aufstellungsorten zur Belichtungseinstellung,
vorläufige Tests der Aufstellungsorte, Erprobung des Bewegungsdetektors,
Aufnahme zur vorläufigen Analyse eines Brennstoff-Abtransports.

1. Phase vom 4. Dezember bis 30. Dezember 1975

Kamerabetrieb am Aufstellungsort 2 mit konstanter Aufnahmefrequenz
von 1 pro 10 min.

2. Phase vom 30. Dezember 1975 bis 28. Januar 1976

Kamerabetrieb am Aufstellungsort 3 mit konstanter Aufnahmefrequenz
von 1 pro 10 min.

3. Phase vom 23. April bis 26. Mai 1976

Kamerabetrieb am Aufstellungsort 3 mit zwei vom Bewegungsdetektor
umgeschalteten Frequenzen: 1 pro 1 Std. bei Ruhe, 1 pro 8 min. bei
Bewegung

Vorversuch und Phasen 1 und 2 erfolgen bei Normalbetrieb des KKS, während
dessen mehrere Abtransporte von bestrahlten Brennelementbündeln durchgeführt
werden. Phase 3 fällt mit der Brennstoffumladung zusammen.

6.1.3.3 Ergebnisse des Experiments

Ergebnisse des Experiments können aus dem Vorversuch und den Phasen 1 und 2
angegeben werden. Die Auswertung des in Phase 3 aufgenommenen Films ist
noch nicht durchgeführt.

Bildqualität: Die bei normaler Beleuchtung in der Reaktorhalle aufgenommenen Filme zeigen für alle Aufstellungsorte eine gute Qualität in Bildschärfe, Kontrasten und Farbwiedergabe.

Signifikanz der erfaßten Vorgänge: Es erweist sich als ausreichend, wie geschehen, die Vorgänge im Arbeitsbereich vor der Materialschleuse durch die Kameraüberwachung zu erfassen, um Abtransporte bestrahlten Kernmaterials erkennen zu können. Andere Möglichkeiten des Abtransportes - auch bei Unterstellung illegaler Handlungen - bestehen nicht. Die mit den Filmaufnahmen erfaßten Abtransporte bestrahlter Brennelementbündel sind eindeutig als solche erkennbar. Darüber hinaus können keine Situationen oder Vorgänge gefunden werden, die sich als Brennstoffabtransporte fehlinterpretieren lassen.

Bildfrequenz zur Erfassung safeguardsrelevanter Vorgänge: Die im Arbeitsbereich vor der Materialschleuse erforderlichen Manipulationen nehmen betriebsmäßig 2 x 50 bis 60 Minuten in Anspruch (Antransport und Manipulationen beim Einsetzen der Transporteinrichtung ins Naßlager und Abtransport). Bei Unterstellung einer illegalen Handlung kann angenommen werden, daß sich diese Zeitspanne nicht weiter als bis 2 x 25 bis 30 Minuten reduzieren läßt. Für eine sichere und vollständige Erfassung sowohl ein- wie ausgebrachter Transporteinrichtungen für bestrahlten Brennstoff ist demnach eine Mindest-Bildaufnahmefrequenz von 3 pro Stunde voll ausreichend. Die Filmauswertung bestätigt, daß mit einer solchen Frequenz sowohl beim Ein- wie auch beim Ausbringen von Transportbehältern der genannte Vorgang mit mindestens einem Bild erfaßt würde.

Erfassung der safeguardsrelevanten Vorgänge aus den verschiedenen Aufstellungspositionen der Kamera: Bei Aufstellungsort 1 kann mit der Lademaschine das gesamte interessierende Blickfeld verdeckt werden, ohne daß gleichzeitig das Ausheben eines Transportbehälters aus dem Naßlager unmöglich wäre. Er scheidet deshalb aus. Bei Aufstellungsort 2 ist das gewünschte Blickfeld nur dann von der Lademaschine verdeckt, wenn deren Position gleichzeitig ein Ausheben von Behältern aus dem Naßlager unmöglich macht. Vom Aufstellungsort 3 aus ist die Arbeitsfläche vor der Schleuse besonders gut im Bild. Die Lademaschine kann das Blickfeld nicht verdecken.

Schutz der Kamera an den verschiedenen Aufstellungsorten: Am Aufstellungsort 1 ist die Kamera durch Manipulationen mit Werkzeugen gefährdet, die betriebsmäßig dort gehandhabt werden. Auch deshalb scheidet er aus. Der Aufstellungsort 2 ist besonders gut geschützt. Am Aufstellungsort 3 muß eine mögliche Schädigung von Kamera und Film durch Strahlung bei bestimmten Betriebssituationen (Ausbau von Umwälzpumpen in der Nähe des Aufstellungsortes) bedacht werden.

Erfassung nicht safeguardsrelevanter Vorgänge: Von den Aufstellungsorten 1 und 2 aus werden alle Arbeiten im Bereich des Naßlagers miterfaßt. (Dabei ist im übrigen die Anzahl der in einem Behälter eingesetzten Brennelementbündel nicht mit Sicherheit erkennbar.) Ein Anschluß der Miterfassung durch Wahl einer geeigneten Schärfentiefe ist nicht möglich. Das heißt, bei vom Betreiber geforderten Ausschluß der zusätzlichen Informationen als nicht safeguardsrelevant kann der Aufstellungsort 2 nicht gewählt werden.

Vom Aufstellungsort 3 aus werden die im Sinne der getroffenen Annahmen nicht safeguardsrelevanten Vorgänge mit der beim Experiment verwendeten Optik ebenfalls miterfaßt. Hier erscheint allerdings eine Änderung - Beschränkung der Schärfentiefe auf den kameranahen Bereich, in dem die Kranmanipulationen mit Behältern ablaufen - möglich, sodaß die Bedingung des Ausschlusses dieser Information weitgehend erfüllt werden könnte.

Einsatz des Bewegungsdetektors: Da sich im gesamten Blickfeld oft Personen bewegen, führt die Bildauslösung durch den Bewegungsdetektor zu einer unnötig hohen Bildfrequenz. Sein Einsatz erscheint nicht sinnvoll, es sei denn, in modifizierter Form zur Veränderung der Bildfrequenz zwischen zwei fest vorgewählten Werten.

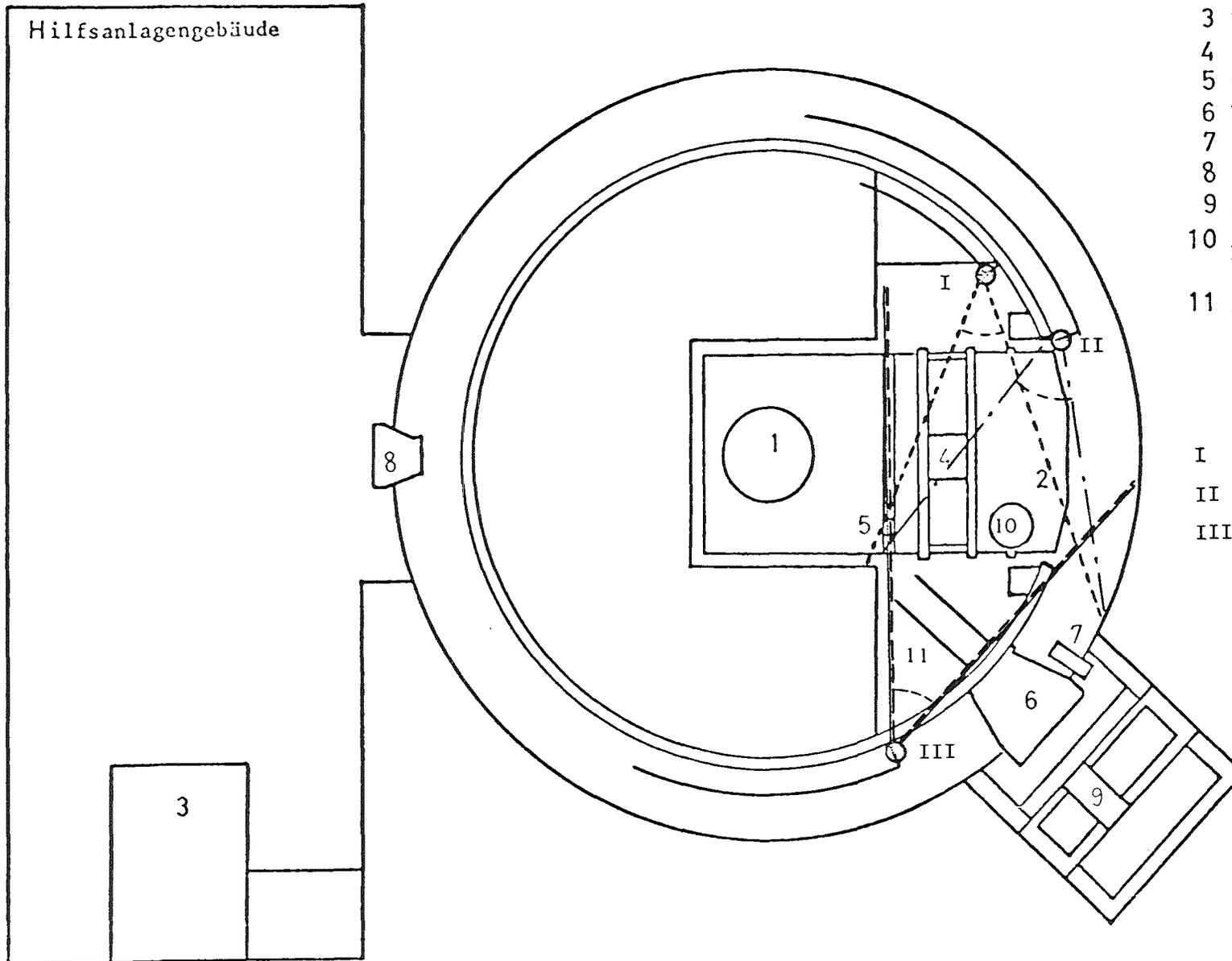
Zusammenfassend kann zu den Ergebnissen, insbesondere im Hinblick auf die Erfüllung der in Abschnitt 6.1.2.3 aufgeführten Randbedingungen für den Kameraeinsatz, folgendes gesagt werden: Eine Beeinträchtigung des sicheren und wirtschaftlichen Reaktorbetriebs einschließlich der Behinderung von

Betriebsabläufen ist, auf jeden Fall bei den Aufstellungsorten 2 und 3, ausgeschlossen. Beim Aufstellungsort 2 besteht die Möglichkeit, die Überwachung weitgehend auf die safeguardsrelevanten Zielsetzungen zu beschränken. Die Verantwortung für Geräte und Gerätebetrieb ist anderweitig zu regeln. In diesem Punkt ergibt das Experiment lediglich, daß außergewöhnliche Betriebszustände (Beleuchtungsausfall, Beschädigung der Kamera usw.), die Sonderregelungen zum Zuge kommen lassen würden, während der Dauer des Experimentes nicht aufgetreten sind. - Die Möglichkeit von Bestrahlungen an Aufstellungsort 3 ist jedoch zu beachten. Die Auswertung und Würdigung der Filme schließlich wurde im Berichtszeitraum noch nicht abschließend untersucht. Jedenfalls aber kann gesagt werden, daß die Aufstellung von Entscheidungskriterien für die Filmauswertung zum Auffinden illegaler Handlungen mit bestrahltem Kernbrennstoff nach den Ergebnissen des Experiments möglich ist.

Nach der Aufgabenstellung des Experiments sind Aussagen über die Notwendigkeit der Kameraüberwachung im Rahmen des Überwachungskonzepts für das KKS nicht zu machen.

Abb. 6.1.1

Bildfelder der Kamera an den verschiedenen Aufstellungsorten



- 1 Reaktorcore
- 2 Abklingbecken
- 3 Trockenlager
- 4 Lademaschine
- 5 Trennschütz
- 6 Materialschleuse
- 7 Notschleuse
- 8 Personenschleuse
- 9 Ausschleusbrücke mit Laufkran
- 10 Absetzposition für Transportbehälter
- 11 Arbeitsfeld für Manipulationen an Transportbehälter

- I Kameraposition 1
- II Kameraposition 2
- III Kameraposition 3

6.2 Kernmaterialüberwachung an einem natriumgekühlten Schnellbrutreaktor (Kernkraftwerk Kalkar: SNR 300)

6.2.1 Vorbemerkung

Im Jahr 1974 war in gemeinsamer Arbeit vom Betreiber des Kernkraftwerks Kalkar (Schnell-Brüter-Kernkraftwerksgesellschaft mbH. - SBK -) dem Hersteller (Internationale Natrium-Brutreaktor-Bau Gesellschaft mbH. - INB -) und dem Projekt Spaltstoffflußkontrolle ein Konzept für die Kernmaterialüberwachung des SNR 300 (Kernkraftwerk Kalkar) ausgearbeitet worden /2-4/ . Es gelang, in Diskussionen mit der Überwachungsbehörde EURATOM deren grundsätzliches Einverständnis mit dem Konzept zu erlangen. Der Schwerpunkt der Arbeiten des Jahres 1975 lag darin, die nach dem Konzept erforderliche Instrumentierung zu entwerfen und ihre Spezifikationen im einzelnen festzulegen. Diese Arbeiten wurden von INB durchgeführt, die folgende Darstellung stützt sich auf deren Berichte /5/ .

6.2.2 Die Instrumentierung für die Kernmaterialüberwachung des SNR 300

6.2.2.1 Einleitung

Die Instrumentierung besteht aus drei Hauptsystemen

- den Aktivitätsmeßsystemen an den Wechselflaschen der Wechselmaschine und der Wechselvorrichtung (EXHM I und EXHM II)
- dem Positionsanzeigesystem am XY-Koordinaten-Fahrwerk, mit dem beide Wechseleinrichtungen verfahren werden
- dem Meßdaten-Verarbeitungssystem.

Die Instrumentierung hat die Aufgabe

- Handhabungsoperationen mit Brenn- und Brutelementen, die besonderes spaltbares Material enthalten, im Handhabungsbereich zu identifizieren und zu registrieren, sofern die Handhabung unter Natrium oder Schutzgas erfolgt

- dabei qualitativ zu unterscheiden zwischen
 - frischen Brennelementen
 - bestrahlten Brennelementen
 - bestrahlten Brutelementen
- Meßdaten zu verarbeiten, so daß mit den Ergebnissen die geforderte Element-Identifikation erhalten wird
- auf Abruf die Bestände für den Handhabungsbereich geordnet nach qualitativ unterschiedenen Elementtypen auszugeben
- zusätzliche Listen über die Handhabungen und ggf. über Fehler der Aufzeichnungen zu liefern.

Die Instrumentierung muß betriebssicher und voll automatisch arbeiten, sie wird unabhängig von der Betriebsinstrumentierung ausgelegt. Abb. 6.2.1 zeigt das Blockschaltbild der Instrumentierung.

6.2.2.2 Aktivitätsmeßsystem

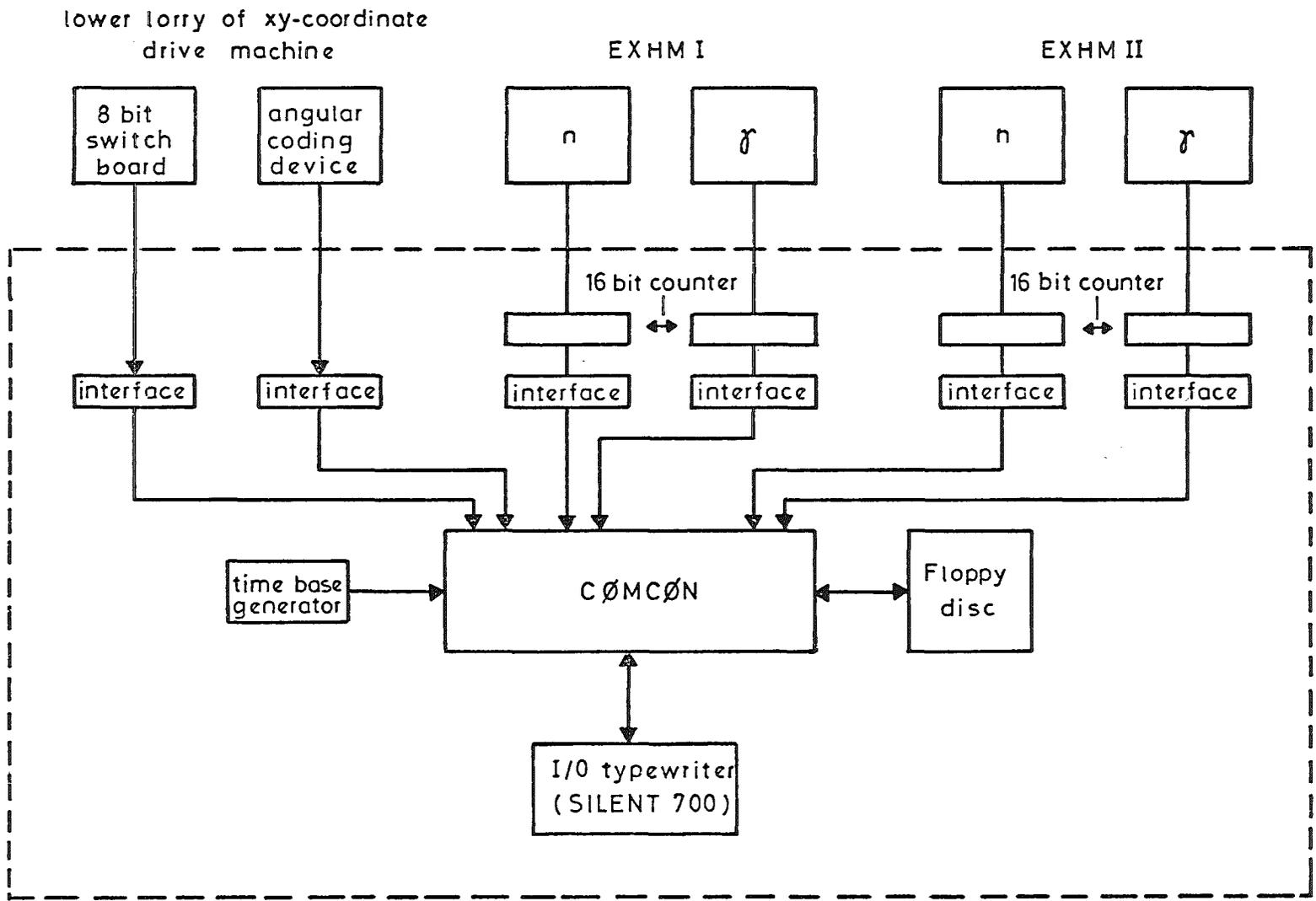
Das Aktivitätsmeßsystem an den Wechselflaschen der Wechselmaschine und der Wechselvorrichtung besteht aus

- einem Neutronenmeßsystem und
- einem Gammameßsystem.

Die Neutronen- und Gammadetektoren sind außerhalb der Wechselflaschen in der Mitte der Brennstoffsäule eines in Endposition befindlichen Kernelements angeordnet. Diese Anordnung ist am unempfindlichsten bezüglich Abweichungen in den Endpositionen der Kernelemente. Eine Übersicht über den mechanischen Aufbau gibt. Abb. 6.2.2.

Die Aufgabe bei der Messung ist, die von den gehandhabten Elementen emittierte Neutronen- bzw. Gammadosis aufzunehmen, aus denen die Identifikation der Kernelemente erhalten werden kann.

Abb. 6.2.1: Blockschalbild der Safeguards-Instrumentierung



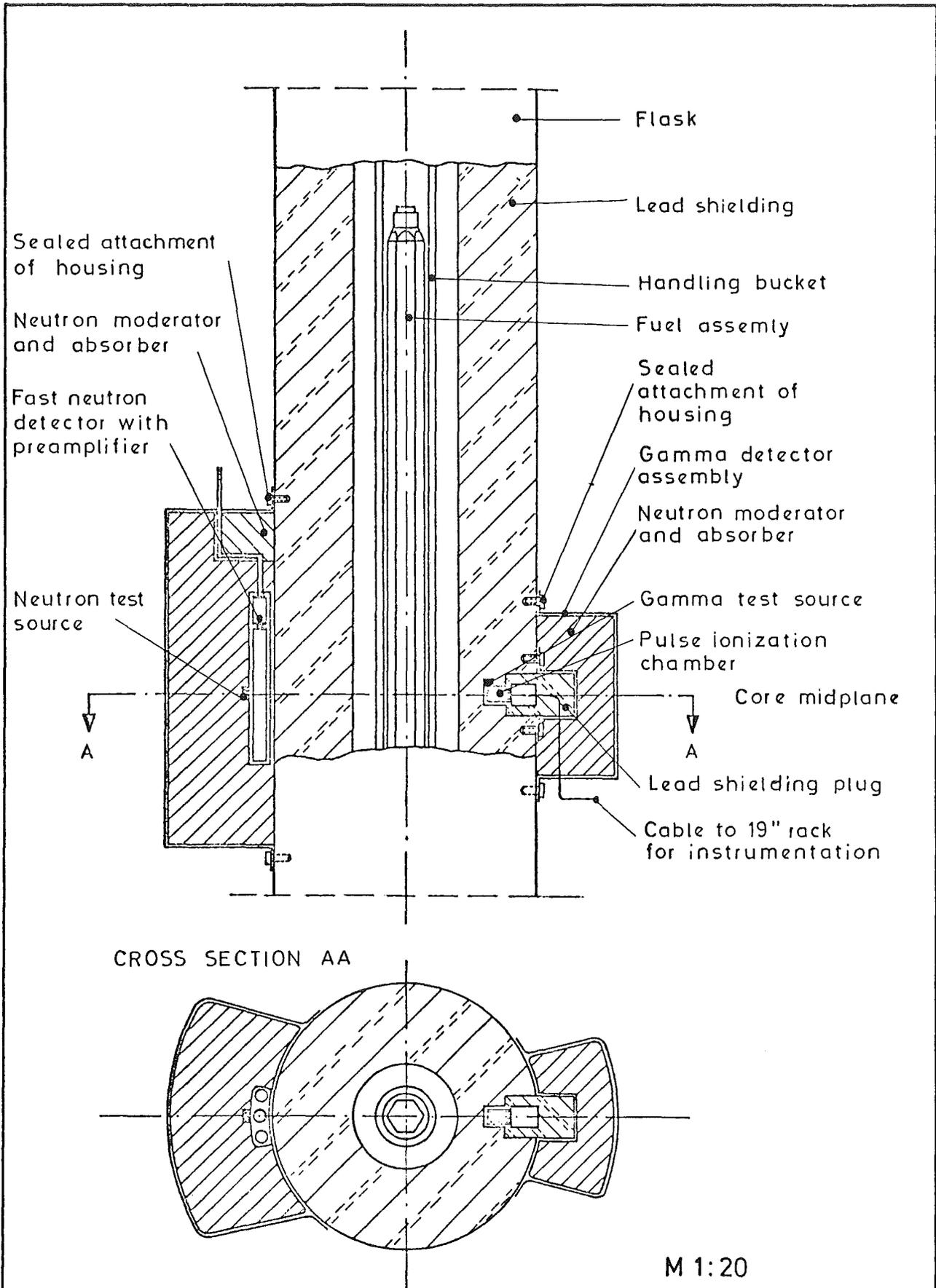


Abb. 6.2.2: Schema des mechanischen Aufbaus des Aktivitätsmeßsystems für die Wechselflaschen

Die zu erwartenden Neutronen- und Gammadosisleistungen für bestrahlte und unbestrahlte Brenn- sowie für bestrahlte Brutelemente sind in Abb. 6.2.3 zusammengestellt. Die voll ausgezogenen Linien in der Abbildung geben den Bereich an, in dem jeweils in Abhängigkeit von der Bestrahlungsgeschichte die Strahlungsraten bei Brenn- und Brutelementen des Erstkernes Mark Ia liegen können. Mit den unterbrochenen Linien werden die verschiedenen Unsicherheiten in der rechnerischen Ermittlung der Dosisleistungen angegeben.

Das Neutronenmeßsystem basiert auf der passiven Neutronenmeßtechnik. Die von den Kernelementen emittierten schnellen Neutronen werden mit noch auszuwählendem Neutronendetektor gemessen. An die Detektoren werden folgende Anforderungen gestellt:

Bereich der zu messenden Neutronenrate:	$2 \cdot 10^5$ bis 10^8 ns^{-1}
Bereich der Neutronenenergie:	100 keV bis 4 MeV
Gammadosisrate am Detektorort	
Betriebswert	10 mrem/h
Auslegungswert	50 mrem/h
Temperatur am Detektorort	
Betriebswert	bis 50°C
Auslegungswert	120°C

Eine kleine (α, n)-Testquelle wird für die ständige Kontrolle der Funktionsfähigkeit des Detektorsystems benützt.

Eine Abschirmung, zusammengesetzt aus Neutronen moderierenden und absorbierenden Materialien schützt die Detektoren gegen Verfälschung der Detektorsignale durch äußere Quellen.

Die Elektronik des Neutronenmeßsystems ist in Abb. 6.2.4 dargestellt. Die Verwendung von drei parallelen Meßkanälen gewährleistet die Betriebssicherheit des Systems.

Die Gammamessung geschieht als Messung der Gammadosen ohne Energiediskriminierung.

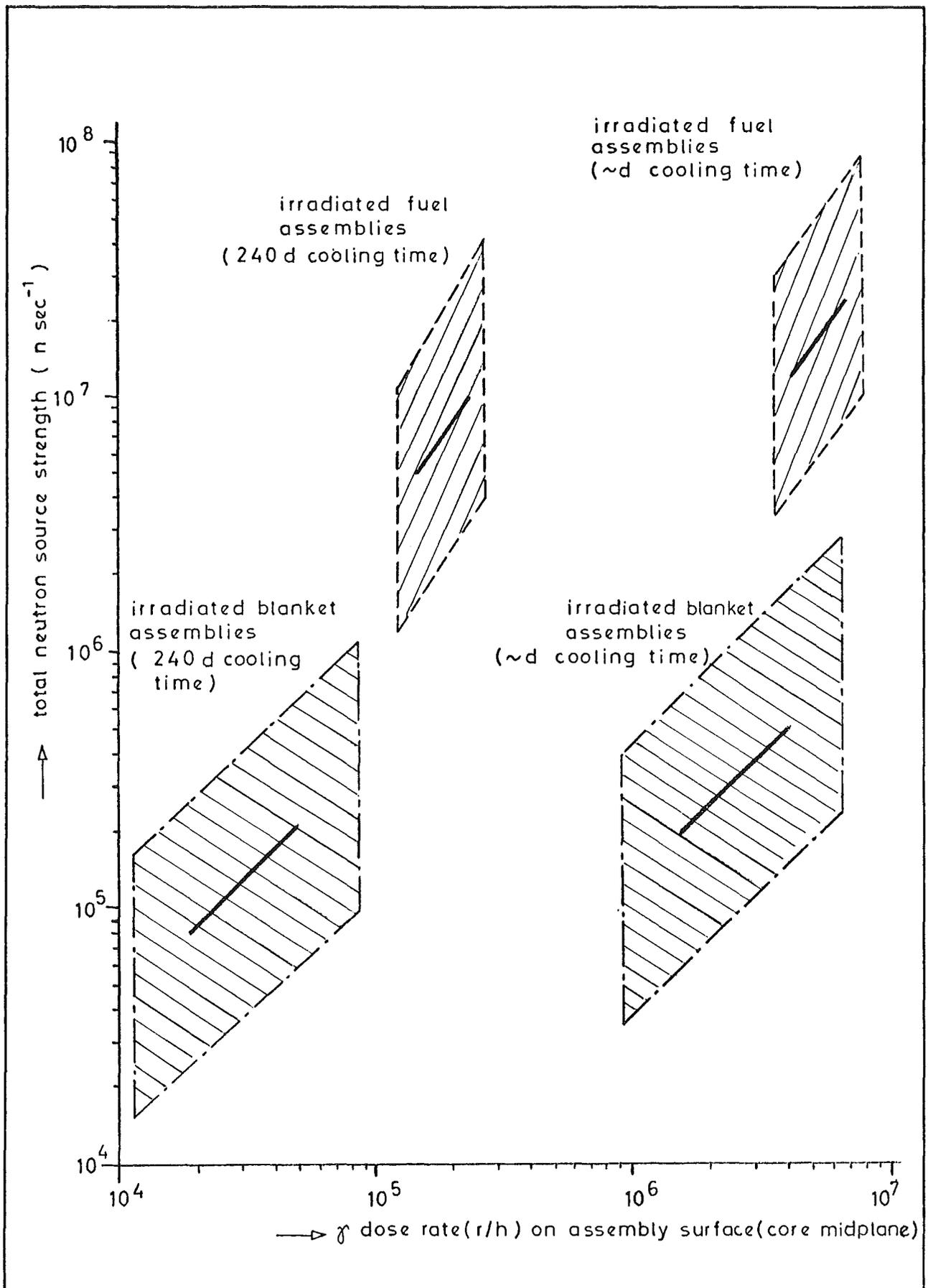
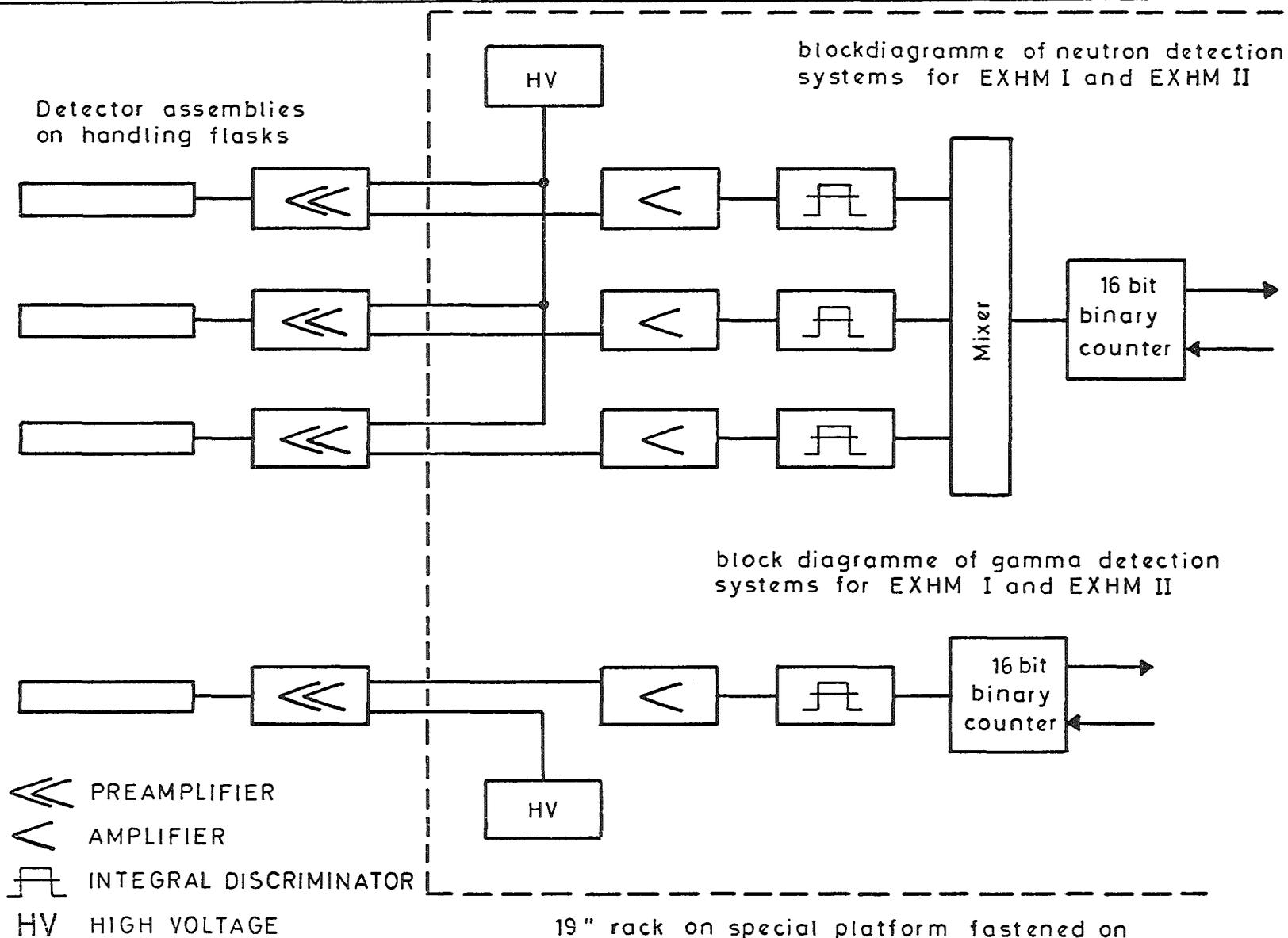


Abb. 6.2.3: Neutronenquellstärken und Gammadosisraten an bestrahlten Brenn- und Brutelementen

Abb. 6.2.4: Aufbau der Elektronik des Aktivitätsmeßsystems



Die Anforderungen an die Gamma-Detektoren sind:

Bereiche der zu messenden Gammadosis an der Elementoberfläche	bis zu 10^7 r/h
(Auslegungswert, entspricht Schichtdicke einer Bleiabschirmung zwischen Detektor und Elementoberfläche von 10 cm)	bis zu 10^4 r/h
geometrische Auflösung	einige cm
Gamma-Energie	bis zu 3 MeV
Temperatur am Detektorort	
Betriebswert	bis zu 100°C
Auslegungswert	150°C

Eine kleine Test-Gammaquelle wird für die ständige Kontrolle der Funktionsfähigkeit des Gammadetektorsystems verwendet.

Eine Bleiabschirmung schützt die Detektoranordnung gegen Verfälschungen der Detektorsignale durch äußere Quellen.

Das Blockdiagramm der Gamma-Meßelektronik zeigt Abb. 6.2.4.

6.2.2.3 Positionsanzeigesystem

Handhabungsoperationen mit dem XY-Koordinatenfahrwerk, auf dem die Wechselflaschen montiert sind, können an folgenden Positionen im Handhabungstrakt erfolgen:

- Übergabeposition
- natriumgekühlter Lagertank
- Reaktortank
- Beobachtungszelle
- Na-Waschzelle
- gasgekühlter Lagertank
- Transportbehälter-Lade- und Entladeposition

Für die Identifizierung von Transfers zwischen diesen Handhabungspositionen wird jede Position mit positionsspezifischen Sensoren ausgerüstet. Wegen der geometrischen Anordnung der Positionen im Handhabungsbereich ist die Positionierung der Sensoren längs des Weges des Unterwagens des Koordinationsfahrwerkes ausreichend. Um die Verfälschungssicherheit der Positionsanzeige zu erhöhen, werden jedoch zwei verschiedene Meßtechniken angewandt: Die Identifikation der Handhabungspositionen erfolgt mit binärcodierten berührungslosen Schaltern (geschaltet durch Kapazitätsänderungen), und durch eine Winkelkodierungs-Einrichtung zur Verfolgung der Bewegungen des XY-Koordinatenfahrwerks.

Das Schaltersystem (8 bit-Schaltersystem) ist am unteren Ende der Rahmenkonstruktion des Unterwagens des Koordinatenfahrwerks befestigt, Um eine Handhabungsposition für beide Bewegungsrichtungen des Unterwagens zu identifizieren, sind zwei Sensorgruppen erforderlich. Die Sensorgruppen enthalten die Erreger für die Schalter entsprechend dem Positionscode. Eine bestimmte Sensorposition ist immer mit diesen Erregern ausgerüstet, so daß die Ankunft der Wechseleinrichtung (Wechselflasche) an einer Handhabungsposition dem Meßdatenverarbeitungssystem eingegeben wird.

Das Gehäuse, in dem das Schaltersystem untergebracht ist, kann von der Überwachungsbehörde versiegelt werden.

Die zusätzliche optische Winkelkodiereinrichtung ist an einer Achse befestigt, die sich während einer jeden Bewegung des Unterwagens des Koordinatenfahrwerks dreht. Während jedes Transfers wird eine Folge von Impulsen erzeugt, die erstens anzeigt, daß eine Bewegung stattfindet und zweitens die zurückgelegte Distanz zu bestimmen gestattet. Ein zweites Signal wird zur Anzeige der Bewegungsrichtung erzeugt.

6.2.2.4 Meßdaten-Verarbeitungssystem

Das Blockdiagramm des Systems zeigt Abb. 6.2.1. Es besteht aus

- CØMCØM-Rechner
- FLOPPY DISC Magnetplattenspeicher
- time base generator
- I/O-Schreiber SILENT 700
- sechs Prozeß-Interfaces für den Datentransfer vom Meßsystem und Positionsanzeigesystem zum Rechner

Das Datenverarbeitungssystem ist gemeinsam mit den übrigen Teilen der Instrumentierung im 19"-Rack auf dem Oberwagen des Koordinatenfahrwerks installiert. Das Rack kann versiegelt werden.

Die Software für das System enthält folgende Programme:

Datierungsprogramm: Das Programm erzeugt Datum und Zeit zur Kennzeichnung der aufgenommenen Informationen.

Handhabungspositionen-Identifizierungs-Programm: Das Programm bezeichnet die Handhabungspositionen aus den Informationen des Schaltersystems und des Winkelkodierungssystems. Die absoluten Positionsinformationen des Schaltersystems werden dabei mit den relativen, die Positionsänderungen kennzeichnenden Informationen des Winkelkodierungssystems verglichen. Bei Diskrepanzen erfolgt Fehlermeldung.

Kernelement-Klassifikations-Programm: Dieses Programm

- bestimmt aus den Daten des Aktivitätsmeßsystems
Neutronenzählrate
Gamma-Dosis-Rate
die Klasse des gehandhabten Kernelements
- bilanziert die Kernelemente nach Klassen für jede Handhabungsposition
- führt Konsistenz-Prüfungen für die Positionen durch, an denen Kernelemente von der Wechselmaschine und der Wechselvorrichtung aufgenommen werden können.

Es können abgerufen und ausgedruckt werden

- Inventarlisten für jede Handhabungsposition und für den gesamten Handhabungsbereich, in Anzahl der Kernelemente geordnet nach den Kernelementklassen
- Listen der in der zurückliegenden Zeit vorgenommenen Transfers im Handhabungsbereich, gekennzeichnet mit Datum, Zeit, Dauer des Transfers, abgebende und empfangende Handhabungsposition.

6.3 Kernmaterialüberwachung in Wiederaufarbeitungsanlagen

6.3.1 Allgemeine Entwicklung

In Fortführung der Arbeiten im Zusammenhang mit der Einführung von Überwachungsmaßnahmen an kerntechnischen Anlagen nach dem Verifikationsabkommen (VA) wurden die Erörterung und Bearbeitung von Problemen aus dem Anlagespezifischen Anhang der Ergänzenden Abmachungen zum VA für die Referenzanlage GWK/WAK fortgesetzt.

Die Aufgaben und Ziele des Ende des Jahres 1975 auslaufenden Zusammenarbeitsvertrages konnten größtenteils bearbeitet, zum Teil abgeschlossen, zum Teil jedoch aus verschiedenen Gründen nicht beendet werden. Diese Gründe sind

- Verzögerungen bei der Ausarbeitung der endgültigen Fassung des Anlagespezifischen Anhangs für die WAK aufgrund einer Reihe noch offenen Probleme
- das Fehlen von Ausführungsbestimmungen für die Durchführung von Sicherungsmaßnahmen in Form von an das Verifikationsabkommen angepaßten Verordnungen der KEG
- die allgemeine Verzögerung des Termins für das Inkrafttreten des Verifikationsabkommens.

Die Grundlagen für die einzelnen Themenkreise sind jedoch erarbeitet und stehen so für Verhandlungspositionen zur Verfügung.

Auf Wunsch von GWK/WAK wurde in einer brieflichen Vereinbarung eine Verlängerung der Geltungsdauer der vertraglichen Abmachungen bis Ende 1977 abgeschlossen.

Im Rahmen des Forschungsvorhabens Wiederaufarbeitung wurde der PWA-Bericht Nr. 24/75 verfaßt, in dem die Forderungen für die Kernmaterialüberwachung an einer Wiederaufarbeitungsanlage dargestellt und erläutert werden, wie sie sich aus dem Verifikationsabkommen zum Kernwaffensperrvertrag, den

Ergänzenden Abmachungen zum Verifikationsabkommen und den in einem Entwurf des Anlagespezifischen Anhangs für die GWK/WAK von EURATOM und der IAE0 ausgearbeiteten technischen Einzelheiten der Überwachung ergeben.

6.3.2 Rekalibrierung des Eingangsmießbehälters der WAK /6/

6.3.2.1 Einleitung

Wie bereits im Jahresbericht 1974 (KFK 2206) kurz umrissen, wurde im Rahmen des Zusammenarbeitsvertrages des Projektes mit der GWK eine Rekalibrierung des Eingangsmießbehälters mittels D_2O -Tracer erprobt. Nach Vorliegen der seitens GWK ausgewerteten Kalibrierdaten ergibt sich, daß dieser erste Versuch, der parallel zu einer normalen Rekalibrierung mit Einwägen von Wasser durchgeführt wurde, keine definitive Aussage zur Qualität der über Tracer erzielten Ergebnisse erlaubt.

6.3.2.2 Versuchsbeschreibung

Eine Kopplung der Tracertechnik mit einer normalen Rekalibrierung erschien zweckmäßig, weil der Füllstand des Behälters zur Zeit der Probenahme mit dem aus der präzisen Rekalibrierung verglichen werden konnte.

Während des Einwägens von Wasser wurde bei 215 kg Füllstand die Rekalibrierung zwecks Zugabe des Tracers, 5,5 kg D_2O unterbrochen. Geplante Probenahmen bei 330 kg und 410 kg Füllstand gelangen wegen einer Sieb-Verstopfung in der Probenahmeleitung nicht. Im weiteren Verlauf wurden Proben bei den Füllständen 440 kg, 645 kg und 845 kg gezogen.

6.3.2.3 Analytische Auswertung

6.3.2.3.1 Materialdaten

Das Schwerwasser aus Beständen des FR2 hatte bei einem Tritiumgehalt von 0,018 $\mu\text{Ci/ml}$ eine Konzentration von

$$99,73 \text{ Mol-\%} = 99,757 \text{ Gew.-\% D}_2\text{O}$$

$$0,27 \text{ Mol-\%} = 0,243 \text{ Gew.-\% H}_2\text{O}$$

Das verwendete vollentsalzte (VE) Wasser wurde mit dem Anteil D_2O des natürlichen Wassers in Rechnung gestellt: 1/7000 Gew.-%. Wird dieser Anteil nicht berücksichtigt, so ist der resultierende Fehler minimal; aus 100 kg Wasser ergäbe sich bei 20°C ein um 1,4 ml größeres Volumen.

6.3.2.3.2 Bestimmungen der Dichte

Die gezogenen Wasserproben wurden vor der massenspektrometrischen Analyse Dichtebestimmungen unterzogen

- a) pyknometrisch (GWK)
- b) nach der Biegeschwinger-Methode (GWK und TU)

Wertung: Die Dichtebestimmungen beider Methoden waren überfordert und ließen keine Rückschlüsse auf die D_2O -Konzentration und damit auf den Behälter-Füllstand zu, da

- a) mit einer pyknometrischen Bestimmung nicht die erforderliche Genauigkeit zu erreichen war,
- b) mit der Biegeschwinger-Methode nur die richtige Tendenz und in etwa die annähernde Größenlage erreichbar war (GWK) bzw. sich die Lage der Proben zueinander zwar als recht gut erwies, jedoch in der falschen Größenlage (TU).

6.3.2.3.3 Massenspektrometrische Bestimmung der $\text{D}_2\text{O}/\text{H}_2\text{O}$ -Isotopenzusammensetzung

Die Ergebnisse sind in der Tabelle 1 dargestellt.

Tabelle 1: Ergebnisse der massenspektrometrischen Bestimmung

Probe	Kalibrierung Liter	Wert aus $\text{D}_2\text{O}/\text{H}_2\text{O}$, korr. f. theor. Heel			
		Liter	Diff.	% Diff.	% v. Endw.
1	440,4	448,6	+ 8,2	+1,86	+0,94
2	646,5	646,7	+ 0,2	+0,04	+0,03
3	847,1	865,6	+18,5	+2,18	+2,12

Die Messungen wurden folgendermaßen durchgeführt /7/:

Als Schritt 1 erfolgte die Herstellung von 6 synthetischen D_2O/H_2O -Eichproben D 225 etc. durch Mischung von D_2O (99.7747 ± 0.0010 mol %) und Leichtwasser und zwar in der Weise, daß sie bezüglich ihrer D_2 -Konzentration die 3 unbekanntenen Proben 1, 2 und 3 umschließen. Die Ergebnisse zeigt Tabelle 2.

Tabelle 2: Ergebnisse der D_2 -Konzentrations-Messungen

Probe	D_2 -Konzentration (Gew.-%)
D 233	0.6120
Probe 3	0.6465
D 227	0.7340
D 232	0.8390
Probe 2	0.8600
D 226	0.9520
D 231	1.1670
Probe 1	1.2320
D 225	1.3930

In einem zweiten Schritt wurden die HD/H_2 -Ratios der unbekanntenen Proben und der sie umschließenden Eichproben mit dem Massenspektrometer, Fabrikat "Atlas Werke" Type MS 86, ausgerüstet mit 2 festen Collectoren für die Aufnahme von Ionen der Masse 2 bzw. 3, durchgeführt.

Die Unsicherheiten bei der massenspektrometrischen Bestimmung waren:

- Wägungen: ± 0.02 %
- Probenmaterial: D_2O Standard : 99.7747 ± 0.0010 mol %
 H_2O (natürlich) : 99.9850 ± 0.0030 mol %
- Massenspektrometrie: HD/H_2 Ratio: $< \pm 0.05$ %
- Probenvorbereitung und System-Eichung:
 - bei mehr als 1 % D_2O : $\leq \pm 1$ %
 - bei 0.5 bis 1 % D_2O : $\leq \pm 1.5$ %
- Totale Unsicherheit:

Summe aller genannten Unsicherheiten

- Geforderte Genauigkeit: ± 1 %.

Die benötigte Probenmenge pro Spektrometerladung betrug 5 ml.

Wertung: Die massenspektrometrische Bestimmung lag zwar nahe den rechnerischen Werten, der Gang der Abweichung erscheint jedoch widersprüchlich.

6.3.2.4 Berechnungen

Daten und Rechenergebnisse sind in den Tabellen 3 bis 6 dargestellt.

6.3.2.5 Schlußfolgerung

Die Verifikation von Kalibrierdaten mittels D_2O -Tracer in Wasser ist grundsätzlich anwendbar, jedoch müßten

- der D_2O -Anteil erhöht werden (höhere Meßgenauigkeit bei niedriger D_2O -Konzentration)
- die Probenahmen bei mindestens fünf Füllstandshöhen erfolgen
- mehrere Proben bei einer Füllstandshöhe gezogen werden (Reproduzierbarkeit)

Ob sich jedoch D_2O als Tracer im Eingangsmessbehälter unter Betriebsbedingungen für eine Volumenverifikation eignet, ist aus verschiedenen Gründen ungeklärt und müßte im einzelnen untersucht werden. Das Problem Volumenverifikation mittels Tracertechnik wird im Rahmen der weiteren Zusammenarbeit mit der GWK/WAK weiterverfolgt.

Tabelle 3:

Berechnung des %-Gehaltes Schwerwasser aus den anteiligen Einwaagen Wasser der Kalibrierung

Entnahme- punkt für	kg-Summe Einwaage	kg D ₂ O	kg H ₂ O	kg D ₂ O aus H ₂ O	kg D ₂ O aus D ₂ O	kg-Summe D ₂ O	kg H ₂ O aus D ₂ O	kg H ₂ O aus H ₂ O	kg-Summe H ₂ O	Gew.-% D ₂ O
Probe 1	439,6300	5,4930	434,1370	0,0620	5,4796	5,5416	0,0134	434,0750	434,0884	,26051
Probe 2	645,0980	5,4930	639,6050							
Entnahme 1	0,0290	0,0004	0,0286							
	645,0690	5,4926	639,5764	0,0914	5,4793	5,5707	0,0133	639,4850	639,4983	0,86358
Probe 3	845,1525	5,4930	839,6595							
Entnahme 1	0,0290	0,0004	0,0286							
Entnahme 2	0,0260	0,0002	0,0258							
	845,0975	5,4924	839,6051	0,1199	5,4791	5,5990	0,0133	839,4852	839,4985	0,66253

Aus den kg-Summen für D₂O und H₂O errechnet sich
mit den Dichten und dem Faktor für Luftauftriebskorrektur

(1,001293) der jeweilige Volumenstand:

Probepunkt 1 440,4403 Liter 20°C
 Probepunkt 2 646,5066
 Probepunkt 3 847,1459

Tabelle 4:

Auswertung der massenspektrometrischen Analyse, Errechnung der korrespondierenden Literzahlen

Meß- pkt.	Toleranz Analyse	Gew.-% D ₂ O Analyse	kg D ₂ O aus D ₂ O	kg D ₂ O aus H ₂ O	kg-Summe D ₂ O	kg H ₂ O aus %-Relation	Liter aus kg-Summen	Toleranz Ergebnis
1		1,232000	5,4796	0,0628	5,5424	444,3277	450,1297	
1	+1,000 %	1,244320	5,4796	0,0621	5,5417	439,8180	445,6114	-1,004 %
1	-1,000 %	1,219680	5,4796	0,0634	5,5430	448,9205	454,7312	+1,022 %
2		0,860000	5,4793	0,0902	5,5695	642,0468	648,2237	
2	+1,000 %	0,868600	5,4793	0,0893	5,5686	635,5320	641,6965	-1,007 %
2	-1,000 %	0,851400	5,4793	0,0912	5,5705	648,7048	654,8944	+1,029 %
3		0,646500	5,4791	0,1203	5,5994	860,5104	867,1015	
3	+1,500 %	0,6561975	5,4791	0,1185	5,5976	847,4383	854,0046	-1,510 %
3	-1,500 %	0,6368025	5,4791	0,1221	5,6012	873,9808	880,5974	+1,556 %

Tabelle 5:

Vergleich der Literzahlen aus Analytik gegen Liter aus Kalibrierung

Meß- pkt.	Toleranz Analyse	Liter gemäß Analyse ⁺	Liter gemäß Kalibration	Differenz gegen Kalibrierung ⁺⁺		
				Liter	%	% vom Endwert
1		448,6437	440,4403	+ 8,2034	+1,863	+0,942
1	+1,000 %	444,1254	440,4403	+ 3,6851	+0,837	+0,423
1	-1,000 %	453,2452	440,4403	+12,8049	+2,907	+1,470
2		646,7377	646,5066	+ 0,2311	+0,036	+0,027
2	+1,000 %	640,2105	646,5066	- 6,2961	-0,974	-0,723
2	-1,000 %	653,4084	646,5066	+ 6,9018	+1,068	+0,792
3		865,6155	847,1459	+18,4696	+2,180	+2,121
3	+1,500 %	852,5186	847,1459	+ 5,3727	+0,634	+0,617
3	-1,500 %	879,1114	847,1459	+31,9655	+3,773	+3,670

⁺ Die massenspektrometrische Analyse bezieht sich auf die Gesamtfüllung des Behälters einschließlich der Menge unterhalb des diptube. Zum Vergleich mit den Kalibrierungsdaten wurden die Werte der vorherigen Tabelle um den theoretischen heel (1,486 Liter) gekürzt.

⁺⁺ Oberster möglicher Füllstand des Behälters

Tabelle 6:

Abschätzung des max. Fehlers aus D₂O-Verdunstungsverlusten mit Rührluft

Vor den (geplanten) 5 Probenahmen wurde der Behälter jeweils 30 Minuten mit 2 m³/h Luft gerührt. Unter der Annahme, daß die Rührluft trocken eintritt und 100 % befeuchtet abgezogen wird, ergäbe sich aus Luftverbrauch 1 m³ bei 20°C Wassertemperatur mit 17,5 Torr Dampfdruck ein Verlust von 2,31 % des Luftgewichtes 1,29 kg, also von 0,030 kg Wasser. Dies führt zu abweichenden Relationen D₂O/H₂O bei der Literberechnung über Analyse.

Füllstand Liter	Probe	Gew.-% D ₂ O	Verlust g D ₂ O	kum. Verlust g D ₂ O	kg-Summe D ₂ O	kg H ₂ O aus %-Relation	Liter aus kg-Summen	gerechnete Liter-Diff.	Fehler in %
330		1,660	0,50	0,50					
412		1,330	0,40	0,90					
440	1	1,232	0,37	1,27	5,54113	444,2259	450,0266	-0,103	-0,023
647	2	0,860	0,26	1,53	5,56797	641,8704	648,0456	-0,178	-0,027
866	3	0,6465	0,19	1,72	5,59768	860,2461	866,8351	-0,266	-0,031

Gegenüber der Analytik ist diese Fehlerquelle zu vernachlässigen.

6.4 Kernmaterialüberwachung in einer Fabrikationsanlage für Brennstäbe aus Pu-U-Mischoxid (ALKEM)

6.4.1 Allgemeine Vorbemerkungen

Bereits seit geraumer Zeit führt das Projekt Spaltstoffflußkontrolle mit der Firma ALKEM Entwicklungsarbeiten für die Spaltstoffflußkontrolle in deren Fertigungsanlagen durch. Die Zielrichtung dieser Arbeiten wurde im Jahre 1975 ganz wesentlich durch die bevorstehende Einführung der Kontrollen nach dem Verifikationsabkommen durch EURATOM und IAEO bestimmt. Es galt, die von den Überwachungsbehörden für ähnliche Anlagen ausgearbeiteten und in "Anlage-spezifischen Anhängen" niedergelegten Detailkonzepte für die Überwachung zu analysieren und die Anwendbarkeit dieser Konzepte auf die ALKEM zu studieren beziehungsweise mit der Entwicklung von Alternativvorstellungen zu beginnen.

ALKEM und Projekt arbeiteten für diese Tätigkeiten ein detailliertes Arbeitsprogramm aus, das sowohl die Aufgaben der ALKEM, wie auch die Forschungs- und Entwicklungsprogramme des Projekts auf diesem Gebiet bis Ende 1977 präzisiert. Das Programm sieht vor:

in einer ersten Phase

- Komplettierung der design informations
- Prüfung und Verhandlung eines von den Überwachungsbehörden vorgelegten Entwurfs eines Anlagespezifischen Anhangs für die ALKEM aufgrund der gegenwärtig gegebenen betriebstechnischen Verhältnisse

in einer zweiten Phase

- Zusammenstellung der aus dem Überwachungsvorhaben der Behörden sich ergebenden Probleme
- Entwicklung von Alternativkonzepten für die technische Durchführung der Überwachung, insbesondere für Aufnahme und Prüfung des realen Bestands, gegebenenfalls unter veränderten betrieblichen Gegebenheiten (Einführung der EDV für die Materialverfolgung)

in einer dritten Phase

- Verwirklichung und Erprobung der Alternativkonzepte
- Verhandlungen zur Anpassung des Anlagespezifischen Anhangs
- Ausarbeitung eines Handbuchs für die Spaltstoffflußkontrolle in der ALKEM

Als vorbereitende Arbeit fertigte das Projekt eine Modellstudie über Aufnahme und Prüfung des realen Bestands in einer Fabrikationsanlage für Pu-U-Mischoxid-Brennstäbe an. Über diese Studie, die im folgenden dargestellt ist, wurde auf dem "International Symposium on the Safeguarding of Nuclear Materials" der IAEA im Oktober 1975 in Wien vorge-
tragen /8/.

6.4.2 Bestandsaufnahme und Bestandsprüfung in einer Fabrikationsanlage für Pu-U-Mischoxid-Brennstäbe mit Einsatz eines rechnergestützten Datenerfassungs- und -meldesystems

6.4.2.1 Einleitung

Es wird in Form einer Modellüberlegung ein Konzept für die Aufnahme und die Prüfung des realen Bestands in einer Fabrikationsanlage für Brennstäbe aus Pu-U-Mischoxid dargestellt.

Die Überlegungen gehen davon aus, daß Bestandsaufnahme und -prüfung während einer Kampagne durchgeführt werden. Es ist das Ziel, festzustellen, in welcher Weise und in welchem Umfang Eingriffe in den laufenden Betrieb, vor allem Stilllegungen, vermieden werden können.

Den Untersuchungen wird das Modell einer Fabrikationsanlage zugrunde gelegt, in der die Produktion in einer geschlossenen Linie erfolgt, so daß ein Zugriff zum Kernmaterial nur durch an bestimmten Orten durchführbare Ausschleusungsvorgänge möglich ist.

Die angenommene Modellanlage besteht aus vier Bereichen, und zwar

- Produktionsbereich
- Schrottaufarbeitung
- Analytik
- Lager

Abb. 6.4.1 gibt eine Übersicht über die Anlage und den Materialfluß.

Der Produktionsbereich gliedert sich in vier Teilbereiche: Eingangsbereich, Mischbereich, Pelletfertigung und Stabfertigung.

Flow sheet of a Model Fabrication plant for $\text{PuO}_2 / \text{UO}_2$ - fuel pins.

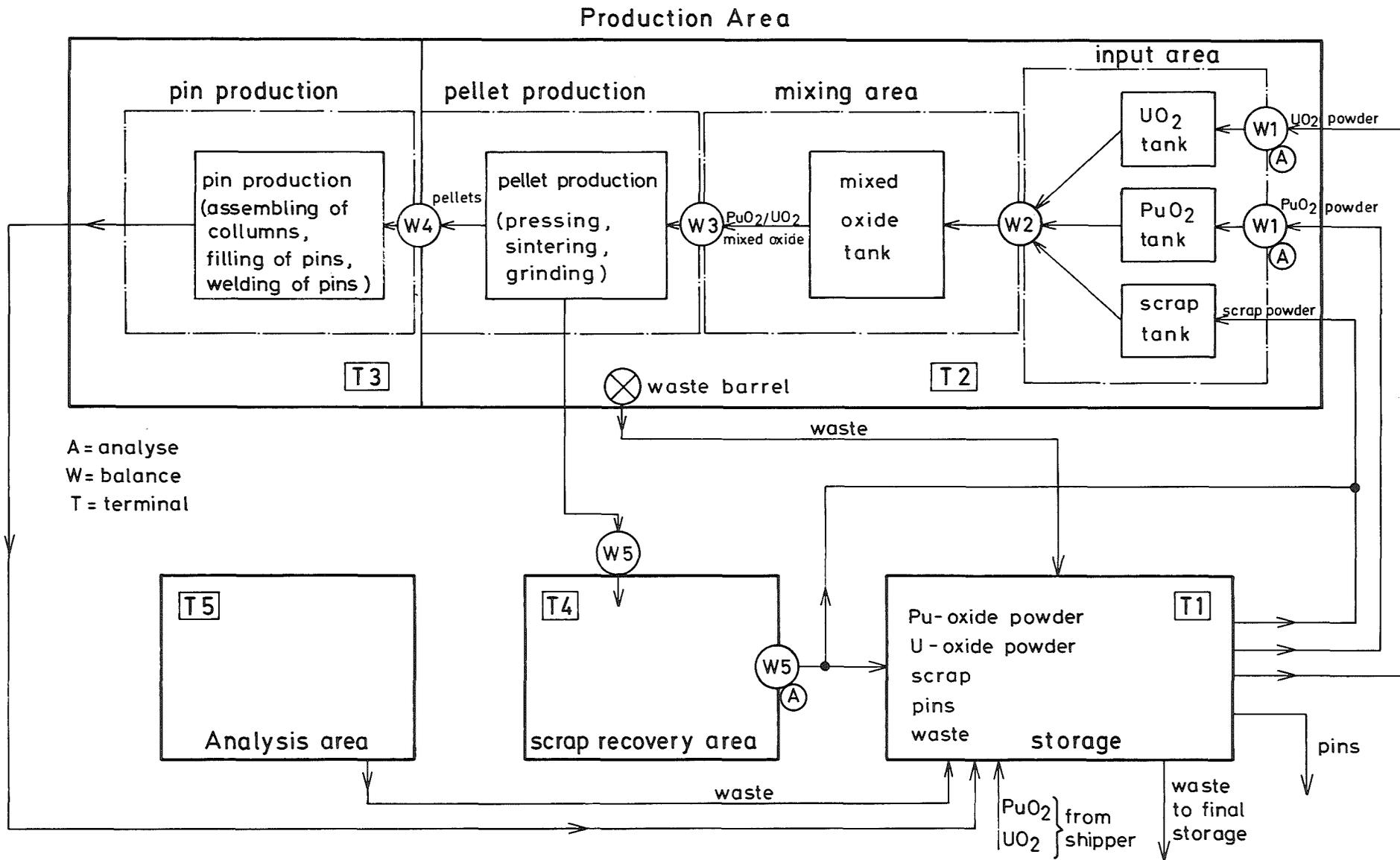


Abb. 6.4.1 Fließschema der angenommenen Modellanlage

6.4.2.2 Erfassung des Materialflusses

Es wird davon ausgegangen, daß Kernmaterialbewegungen zwischen den Anlagenbereichen bzw. Teilbereichen mit Hilfe eines zentralen Datenerfassungs- und -meldesystems erfaßt werden, sodaß sich Informationen über den Kernmaterial-Buchbestand der Gesamtanlage wie auch die Verteilung über die Bereiche und Teilbereiche jederzeit abrufen lassen. Die Eingabe der Daten soll so weit wie möglich on-line mit Hilfe der zwischen den Bereichen bzw. Teilbereichen vorhandenen Meßgeräte erfolgen. Dies sind die Waagen vor dem Eingangsbereich der Produktionslinie (W1), zwischen dem Eingangsbereich und dem Mischbereich (W2), zwischen dem Mischbereich und der Pelletfertigung (W3), zwischen der Pelletfertigung und der Stabfertigung (W4) und in der Schrottaufarbeitung (W5). Darüber hinaus sollen Daten an Terminals von Hand eingegeben werden können. Es wird vorausgesetzt, daß solche Terminals im Lager (T1), in den Eingangs-, Misch- und Pelletfertigungsbereichen der Produktionslinie (T2), in der Stabfertigung (T3), in der Schrottaufarbeitung (T4) und in der Analytik (T5) vorhanden sind.

Der Materialfluß durch die Anlage wird allein durch Oxid-Wägungen direkt erfaßt. Um die Umrechnung auf Pu, U und U-235 jeweils auf einfachem Wege zu erreichen, wird vorgesehen, Materialmengen bestimmter Zusammensetzung, sofern sie nicht schon als Chargen definiert und mit Chargennummern versehen sind, durch Identifikationsnummern zu kennzeichnen. Unter diesen Nummern werden die in der Analytik an Proben gemessenen Pu- und U-Konzentrationswerte sowie der Anreicherungsgrad in das EDV-System eingegeben. Bei allen Oxidwägungen wird andererseits durch Eingabe der Nummer für die automatische Umrechnung auf die Pu-, U- und U-235-Werte gesorgt.

Bezüglich der Abrufbarkeit von Buchbeständen und Bestandsverteilungen aus dem EDV-System muß eine Einschränkung beachtet werden: Die Berechnung der Kernmaterialmassen mit Hilfe von Daten, die erst durch Analyse gewonnen werden müssen, und der für die Analysen erforderliche Zeitaufwand bedingt Verzögerungen. Die Informationen über die Buchbestände können also nur dann abgerufen werden, wenn alle notwendigen Analysen abgeschlossen und ihre Ergebnisse eingegeben sind. Allerdings besteht immer die Möglichkeit, vorläufige Buchbestandsangaben nach Eingabe vorläufiger Werte für die Materialzusammensetzungen zu erhalten.

6.4.2.3 Aufnahme und Prüfung des realen Bestandes

Die Bestandsaufnahme und Anfertigung der Bestandsliste - beides durch den Betreiber - sollen soweit als möglich bei laufendem normalen Betrieb durchgeführt werden. Nach dem vorgelegten Konzept erfolgen sie synchron in den vier Teilbereichen der Produktionslinie. In allen Teilbereichen beginnen sie zum Zeitpunkt t_1 und enden zum Zeitpunkt t_2 . Ihr Ergebnis ist die Bestandsaufstellung (PIL) bezogen auf t_2 .

Die Bestandsprüfung wird von der Safeguardsbehörde durchgeführt. Nach dem vorgelegten Konzept erfolgt sie in wesentlichen Teilen der Produktionslinie in der Weise, daß die Behörden an der Bestandsaufnahme teilnehmen und die Richtigkeit der einzelnen Schritte der Aufnahme und der Auflistung des realen Bestands prüfen.

6.4.2.3.1 Produktionslinie

Für die Durchführung der Inventur in der Produktionslinie wird vorausgesetzt, daß

- während der Inventur kein Kernmaterial in den Eingangsbereich eingebracht werden kann
- im Mischbereich sich nur so viel Material befindet, wie bis zum Zeitpunkt t_2 in der Pelletfertigung verarbeitet werden kann.

Diese Voraussetzungen lassen sich durch organisatorische Maßnahmen erfüllen.

Zur Bestandsaufnahme und -prüfung im Eingangsbereich wird im Zeitpunkt t_1 die Verbindung zwischen Eingangsbereich und Mischbereich geschlossen und der Buchbestand $BI_E(t_1)$ im Eingangsbereich aus dem Datenverarbeitungs- und -meldesystem abgerufen. Der Betreiber räumt dann die UO_2 -, PuO_2 - und Schrottpulver-Vorratsbehälter aus und bestimmt ihren realen Bestand an Kernmaterial, $RI_E(t_1)$ durch Wägung der Oxide auf W_1 und Umrechnung mit den ihm bekannten Konzentrationsfaktoren. Nach der Wägung werden die Oxide wieder in die Behälter eingegeben. Der reale Bestand zur Referenzzeit t_2 ist gleich dem zur Zeit t_1

$$RI_E(t_2) = RI_E(t_1)$$

Zur Prüfung sind Inspektoren anwesend. Sie eichen die Waage W1, überwachen die Wägung der aus den Pulver-Vorratsbehältern ausgeräumten Oxide und ziehen Proben, die zum Transfer in die Analytik nach dem Zeitpunkt t_2 bereitgestellt werden.

Zur Bestandsaufnahme im Mischbereich wird der Buchbestand $BI_M(t_1)$ zur Zeit t_1 durch Rechnerausdruck ermittelt. Die Verbindung zum Eingangsbereich ist gesperrt, so daß kein Material zugeführt werden kann. Im normalen Betrieb wird nunmehr dieser Bereich über W3 leergefahren, wobei die Leerung spätestens beim Zeitpunkt t_2 erreicht sein muß. Der reale Bestand im Mischbereich zur Zeit t_2 ist dann null:

$$RI_M(t_2) = 0.$$

Eine Überprüfung durch Inspektoren ist nicht erforderlich. Nach t_2 wird die Verbindung zum Eingangsbereich wieder geöffnet.

In der Pelletfertigung versiegeln die Inspektoren im Zeitpunkt t_1 alle Boxenverschlüsse. Die Waage W3 wird geeicht. Der Buchbestand zur Zeit t_1 , $BI(t_1)$, wird durch Computerausdruck ermittelt. Gleichzeitig markiert der Betreiber im Beisein von Inspektoren den ersten Grünling, für den nach diesem Zeitpunkt Material aus W3 entnommen wird. Die Fertigung läuft dann normal weiter, wobei jedoch der bei der Fertigung und Bearbeitung der Grünlinge und Pellets bis zur Marke angefallene Schrott mit dem Produktstrom zur Schleifmaschine transportiert und dann dort mit dem Schleifschrott ausgeräumt wird. (Es wird vorausgesetzt, daß Schrott nur zwischen Presse und Schleifmaschine anfällt.) Das Ausräumen erfordert eine Betriebsunterbrechung. Der Schrott wird ins

Schrottlager gebracht und gemessen, der Transfer entsprechend gebucht. Aller bei und nach Durchgang des markierten Pellets anfallende Schrott verbleibt in der Pelletfertigung.

Die Inventur in der Pelletfertigung ist beendet, wenn das markierte Pellet die Waage W4 erreicht hat und als letztes dort gewogen wurde. Dies muß spätestens im Zeitpunkt t_2 geschehen sein; bei früherer Ankunft des Pellets ist der Produktstrom bis t_2 zu stoppen. Der reale Bestand in der Pelletfertigung zur Zeit t_2 , $RI_P(t_2)$, ist dann gleich dem im Zeitraum von t_1 bis t_2 in die Pelletfertigung transferierten Kernmaterial:

$$RI_P(t_2) = BI_M(t_1) - BI_M(t_2)$$

Die Inspektoren führen mit dem Betreiber die Pelletkennzeichnung durch. Sie überwachen dann bis zur Zeit t_2 die Wägungen am W3 mit dem Ziel, die Richtigkeit der Buchbestandsdifferenz zu verifizieren, die den realen Bestand in der Pelletfertigung zum Zeitpunkt t_2 angibt. Von den gepreßten Grünlingen werden Proben gezogen und zum Transfer in die Analytik nach dem Zeitpunkt t_2 bereitgestellt. Zu überwachen ist ferner der Schrottdurchlauf und die Ausräumung an der Schleifmaschine, wozu die Siegel an den betreffenden Boxzugängen zu brechen und die Wiederversiegelung durchzuführen ist.

In der Stabfertigung werden - auf der Säulenlegemaschine - fertige Pellets auf Paletten zu Säulen gelegt, deren Masse durch Wägung auf W4 bestimmt wird und die, ohne daß sich diese Daten ändern können, in Cannings geschoben, eingeschlossen und in den fertigen Stäben schließlich ins Lager gebracht werden. Schrott fällt nicht an, Kernmaterialverluste treten betriebsmäßig nicht auf. Für den Betreiber ist der reale Bestand in der Stabfertigung immer gleich dem Buchbestand, der vom Rechner jederzeit abgerufen werden kann. Der reale Bestand in der Stabfertigung zur Zeit t_2 ist deshalb gleich dem vom Rechner ausgegebenen Buchbestand zur gleichen Zeit:

$$PI_S(t_2) = BI_S(t_2)$$

Bei der Bestandsprüfung sind zwei nach der Prüfbarkeit verschiedene Materialkategorien zu unterscheiden

- zu Säulen gelegte Pellets und Stäbe im Fertigungsprozeß
- fertige Stäbe.

Die Prüfung der Säulen und Stäbe in der Fertigung geschieht durch Kontrolle des Materialeinlaufs in die Stabfertigung über die Waage W_4 . Zum Zeitpunkt t_1 werden die Verschlüsse der Boxen in der Stabfertigung versiegelt, die Waage W_4 geeicht und die erste Palette, die danach über W_4 läuft, markiert. Diese Palette bzw. der aus ihr gefüllte Stab soll am Ende der Inventur t_2 den Fertigungsprozeß passiert haben. Die Inspektoren überwachen die Wägungen an W_4 und verifizieren damit die Oxidmengen, die von diesem Stab an bis zum Zeitpunkt t_2 den realen Bestand der Stabfertigung bilden. Zur Kontrolle der Materialzusammensetzungen können Paletten bereitgestellt und Proben gezogen werden, die nach t_2 in die Analytik gebracht werden.

Die Prüfung der fertigen Stäbe, die, vor dem aus der markierten Palette gefüllten Stab gefertigt, den restlichen Teil des Bestandes in der Stabfertigung zur Zeit t_2 bilden, geschieht an als Proben ausgewählten Stücken durch zerstörungsfreie Verfahren.

6.4.2.3.2 Lager, Schrottaufarbeitung und Analytik

Bestandsaufnahme und Anfertigung der Bestandsliste müssen im Lager, in der Schrottaufarbeitung und der Analytik parallel zur Inventur in der übrigen Anlage durchgeführt werden, also ebenfalls mit dem Ziel der Bestandsaufstellung für den Bezugszeitpunkt t_2 . Es erscheint vertretbar, für Schrottaufarbeitung und Lager zu fordern, daß sie zum Zeitpunkt t_1 leergefahren sind. Die dazu erforderlichen Arbeiten sind ohnehin betriebsmäßig von Zeit zu Zeit notwendig.

In diesem Fall ist der reale Bestand in der Schrottaufarbeitung zur Zeit t_2 gleich der zwischen t_1 und t_2 eingebrachten Materialmenge, also gleich der Differenz der Buchbestände $BI_S(t_2)$ und $BI_S(t_1)$ in diesem Bereich

$$RI_S(t_2) = BI_S(t_2) - BI_S(t_1).$$

$BI_S(t_1)$ ist dementsprechend gleich dem nicht gemessenen Kernmaterialverlust in der Schrottaufarbeitung.

Der reale Bestand in der Analytik zur Zeit t_2 , $RI_A(t_2)$ ist null

$$RI_A(t_2) = 0.$$

Der reale Bestand im Lager ist gleich dem vom Rechner ausgegebenen Buchbestand, da Kernmaterial nur in Chargen mit gemessenem Kernmaterialgehalt eingebracht und immer mit den gleichen Massendaten wieder entnommen wird.

$$RI_L(t_2) = BI_L(t_2).$$

Die Bestandsliste wird für das Lager aus dem Rechner nach Chargen gegliedert aufgestellt. Die Chargen sind mit Nummern gekennzeichnet.

Die Bestandsprüfung in Schrottaufarbeitung, Analytik und Lager wird von den Inspektoren in konventioneller Weise anhand der Bestandslisten durchgeführt, beginnend zur Zeit t_2 : Die Inspektoren prüfen die Existenz der in den Listen verzeichneten Chargen und messen an Stichproben Masse und Zusammensetzung nach. Für das Lager ist anzustreben, daß möglichst viele der eingelagerten Chargen vor der Bestandsaufnahme und -prüfung durch die ständig in der Anlage stationierten Inspektoren versiegelt werden, so daß die Prüfungen im Rahmen der Inventur sich auf die weniger zeitaufwendigen Kontrollen der Identität und Integrität der Siegel beschränken können. Von den Möglichkeiten einer Zusammenfassung mehrerer Chargen bei der Versiegelung ist zweckmäßigerweise Gebrauch zu machen. Während der Bestandsprüfung sind prinzipiell Eingänge in und Ausgänge aus dem Lager möglich, jedoch nur, nachdem die Inspektoren Gelegenheit hatten, die zu transferierenden Chargen zu prüfen.

6.4.2.4 Abschätzung des Zeitaufwandes für Bestandsaufnahme und -prüfung

Der zeitliche Aufwand für die Bestandsaufnahme, das heißt der notwendige Abstand zwischen den Zeitpunkten t_1 und t_2 richtet sich nach den

erforderlichen Zeiten in den einzelnen Teilbereichen. Für sie können hier nur Abschätzungen angegeben werden:

- Im Eingangsbereich für Leeren der Pulverbehälter, Wägungen und Wiedereinfüllen der Oxide: 18 Stunden
- Im Mischbereich soll sich der erforderliche Aufwand voraussetzungsgemäß nach der zur Verfügung stehenden Zeit richten: $\leq (t_2 - t_1)$
- In der Pelletfertigung für die Durchlaufzeit des gekennzeichneten Pellets, die im wesentlichen durch die Durchlaufzeit im Sinterofen bestimmt ist (36 Stunden), und für das Ausräumen des Schrotts (12 Stunden): 48 Stunden
- In der Stabfertigung: -
- In der Schrottaufarbeitung für Wiegen des Schrottes: 1 Stunde
- In der Analytik: -
- Im Lager: -

Daraus folgt wegen der simultanen Durchführung, daß für die Bestandsaufnahme und Anfertigung der Inventarliste in der Anlage, $(t_2 - t_1)$, ca. 48 Stunden erforderlich sind. Im Mischoxid-Behälter darf dabei nur so viel Material sein, wie in dieser Zeit in der Pelletfertigung zu Grünlingen verpreßt werden kann.

Die Kopplung der Bestandsprüfung in den Produktionsbereichen mit den Arbeiten zur Bestandsaufnahme bedingt ebenfalls ihre Dauer von t_1 bis t_2 , das heißt über 48 Stunden. Für die simultane Durchführung in den Bereichen Eingang, Pelletfertigung und Stabfertigung sind im Prinzip drei Teams von Inspektoren erforderlich. Dabei ist vorausgesetzt, daß die Durchlaufzeit in der Stabfertigung maximal 48 Stunden beträgt. Die Bestandsprüfung in Lager, Schrottaufarbeitung und Analytik, einschließlich der Probenanalysen, schließen sich an die Prüfungen in der Produktion zeitmäßig an. Der Zeitaufwand ist hier vor allem vom Umfang der Arbeiten im Lager bestimmt, für die keine generellen Angaben möglich sind, die sich aber jedenfalls, wie beschrieben, ohne Behinderung des fortlaufenden Betriebes durchführen lassen.

6.5 Kernmaterialüberwachung in einer Fabrikationsanlage für hochangereichertes Uran (NUKEM)

6.5.1 Allgemeines über die Arbeiten

Die im Zusammenarbeitsvertrag zwischen NUKEM und PSpFK definierten Arbeiten wurden im Berichtszeitraum fortgeführt und die Ziele im wesentlichen erreicht. Die Aufgabenstellung zu dem Zusammenarbeitsvertrag wurde nach Abstimmung mit EURATOM zwischen der NUKEM und der GfK (PSpFK) auf der Grundlage der Anlagenspezifischen Anhänge definiert.

Im Verlauf der Arbeiten wurde im Einvernehmen mit der NUKEM beschlossen, die Darstellungen und Ergebnisse der Zusammenarbeit in die Form eines Handbuches für die Spaltstoffflußkontrolle in der NUKEM zu bringen. Das Handbuch soll als Orientierungs- und Entscheidungshilfe in der täglichen Praxis zur Verfügung stehen.

Im folgenden werden die Arbeitsschwerpunkte des Zusammenarbeitsvertrages aufgeführt und die erreichten Ergebnisse dargestellt.

6.5.2 Definition der Primärdaten für die Schlüsselmeßpunkte für Bestandsänderungen und Aufnahmen des realen Bestandes

Die Definition der Primärdaten für die Schlüsselmeßpunkte für Bestandsänderungen und die Schlüsselmeßpunkte für Aufnahmen des realen Bestandes werden materialspezifisch vorgenommen.

Im folgenden sind als ein Beispiel die Primärdaten und ihre Erzeugung am Schlüsselmeßpunkt (Aufnahme des realen Bestandes) "Kerneanlage" (siehe Abb. 1, HTR-Linie) für die dort betriebsmäßig vorhandenen Materialformen angegeben.

Materialform U_3O_8 (Eingangsmaterial in der Kerneanlage)

- a) Masse U_3O_8 : Nettowägung
- b) U-Faktor (Verhältnis U/U_3O_8) : Urananalyse an Proben
- c) Anreicherung : Isotopenanalyse an Proben wie b)

Daraus werden die Chargendaten bestimmt.

- d) Masse U = Masse U_3O_8 x U-Faktor
- e) Masse U_5 = Masse U x Anreicherung

Materialform Th-Nitrat (Eingangsmaterial in der Kerneanlage)

- a) Masse Th-Nitrat : Nettowägung
- b) Th-Faktor : Probenahme und Analyse

Daraus Bestimmung der Chargendaten.

- c) Masse Th = Masse, Th-Nitrat x Th-Faktor

Materialform Uranyl Nitrat (nach Prozeßschritt U_3O_8 Uranyl Nitrat)

- a) Masse U-Nitrat : Nettowägung
- b) U-Faktor : Urananalyse an Probe

Daraus Bestimmung der Chargendaten.

- c) Masse U = Masse U-Nitrat x U-Faktor
- d) Masse U_5 = Masse U x Anreicherung (aus U_3O_8)

Materialform U/Th-Nitrat (nach Mischung von Uran- und Thorium-Nitrat)

U/Th-Verhältnis : durch Einwaage

Materialform (U/Th)O₂ (Ausgangsmaterial in der Kerneanlage)

- a) Masse (U/Th)O₂ : Nettowägung
- b) U-Faktor und Th-Faktor : Gleichzeitige Analyse an Probe
- c) U₅-Faktor : Isotopenanalyse an Probe

Daraus Bestimmung der Chargendaten.

- d) Masse U = Masse (U/Th)O₂ x U-Faktor
- e) Masse U₅ = Masse U x Anreicherung
- f) Masse Th = Masse (U/Th)O₂ x Th-Faktor

6.5.3 Meßsystem zur Bestimmung der Primärdaten, Eichung, Abschätzung systematischer und statistischer Fehler

Das für die Bestimmung der Primärdaten in der Anlage erforderliche Meßsystem ist in Abb. 1 eingetragen.

Die angewandten Meßmethoden sind

- zerstörende Meßmethoden (chemische Analysen und Massenspektrometrie)
- zerstörungsfreie Meßmethoden (Kernstrahlenmeßtechnik)
 - a) 185 keV-Eigenstrahlungsmessung
 - b) γ -Absorptionsmessung
- Wägungen und Zählungen

Zur Nacheichung der Meßeinrichtungen werden je nach Prüfaufgabe zugeordnete Eichstandards verwendet. Die aus bisher ermittelten Daten hervorgegangenen Meßfehler sind in der folgenden Tabelle zusammengestellt.

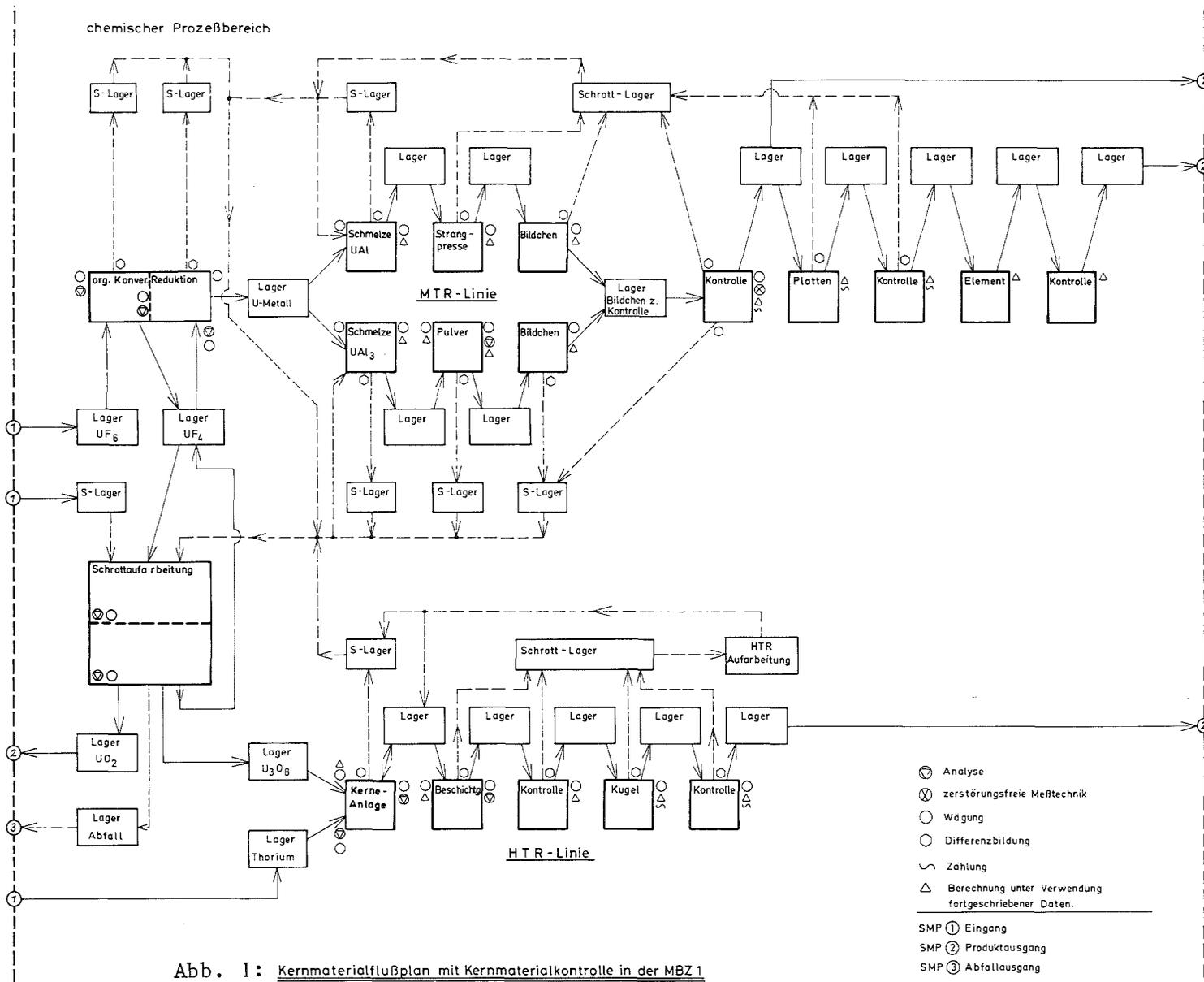


Abb. 1: Kernmaterialflußplan mit Kernmaterialkontrolle in der MBZ 1

Tabelle 1

zerstörungsfreie Meßmethoden	zufälliger Fehler %	system. Fehler %
185 keV Eigenstrahlungsmessung	0,15	0,15
γ -Absorptionsmessung	0,25	0,25
zerstörende Meßmethoden		
chemische Analyse zur Uranbestimmung an		
UO ₂ -Pulver	0,01	0,05
UO ₂ -Partikeln	0,01	0,05
UAl-Legierung	0,2-0,3	0,1
(U/Th)O ₂ -Partikeln	0,08	0,1
chemische Analyse zur gleichzeitigen Bestimmung von U und Th an (U/Th)O ₂ -Partikeln	0,1	0,1
Massenspektrometrie zur Isotopenbestimmung UO ₂ , U ₃ O ₈ , UF ₆ , UF ₄	0,015-0,03	0,011-0,017
Wägungen	0,1	

6.5.3 Ermittlung von bisher in der Materialbilanz nicht berücksichtigten Verlustströmen

Bei einer Analyse von Verlustströmen sind, da die Größe eines Verluststromes von dem angewendeten Produktionsverfahren abhängt, folgende Bereiche getrennt zu untersuchen (siehe auch Abb. 1).

- Chemischer Prozeßbereich mit Konversion, Reduktion und Schrottaufarbeitung,
- MTR-Linie mit pulvermetallurgischem Produktionsbereich, Legierungsbildchenfertigung und Platten- und Elementherstellung,
- HTR-Linie mit Kerneanlage, Beschichtung und Kugelherstellung.

6.5.3.1 Konversion und Reduktion im chemischen Prozeßbereich

Die Ermittlung von Verlustströmen für die genannten Teilbereiche beruht auf Auswertung historischer Daten. (Untersuchungen an Hand von Referenzkampagnen wurden nicht durchgeführt, da das bisherige chemische Umsetzverfahren von UF₆ in U-Metall für die MTR-Linie oder U₃O₈ für die HTR-Linie aufgegeben wird.)

6.5.3.2 Schrottaufarbeitung

Die Untersuchung des Verluststromes in der Schrottaufarbeitung erfolgt anhand einer Aufarbeitungskampagne an RHF-Platten (Hochflußreaktor-Brennelementplatten) mit genau bekannten Kernmaterialinhalten. Die Gesamtmenge des aufgearbeiteten Materials beträgt 28,4 kg Uran mit 93 % Anreicherung.

Im ersten Aufarbeitungsschritt wird die Aluminiumhülle der UAL-Platten abbeizt, um den Al-Anteil beim kompletten Auflösen der Platten zu verringern.

Beim nächsten Schritt werden die Platten mit NaOH aufgelöst; dabei geht das Al in Lösung, das U verbleibt zum größten Teil ungelöst als U_3O_8 zurück und wird abfiltriert. Das noch stark mit Al verunreinigte U_3O_8 wird mit 2 mol. Salpetersäure gelöst, die erhaltene Uranylнитratlösung mit Hilfe einer Tributylphosphat-Extraktion gereinigt und das Uran aus der reinen Lösung mit Ammoniak als Ammoniumdiuranat ausgefällt. Das ADU wird in UO_2 überführt, homogenisiert und das für die anschließende Reduktion zu U-Metall benötigte UF_4 durch Fluorierung des UO_2 hergestellt. Die bei der Reduktion anfallende Schlacke wird getrennt von anderen Schrotten wieder aufgearbeitet.

6.5.3.3 MTR-Produktionslinie

Bei einer Verluststromuntersuchung in der MTR-Linie kann von folgenden Gegebenheiten ausgegangen werden.

In mechanischen Formgebungsverfahren (Walzen, Stanzen) werden die UAl-Legierungsbildchen (Ausgangsprodukt: UAl-Legierungsbarren) hergestellt. Die bei den Fertigungsschritten anfallenden Kernmaterialrückstände können zum überwiegenden Teil in der Schmelze dem Produktionsstrom direkt wieder zugegeben werden. Ein geringer Anteil der Kernmaterialrückstände muß in der Schrottaufarbeitung chemisch aufbereitet werden.

Für die Platten- und Elementfertigung gilt, daß aus verfahrenstechnischen Gründen keine Verluste an Kernmaterial auftreten. In diesem Produktionsbereich werden die Zwischenprodukte UAl oder UAlx Bildchen mittels

einer "picture-frame"-Technik mit einer Aluminiumhülle versehen und über die Platten- und Elementfertigung zu Brennelementen bestimmter Spezifikation assembliert. Der Kernmaterialinhalt der Zwischen- und Endprodukte wird also nicht mehr geändert, d.h. der Kernmaterialinhalt und die Anreicherung bleiben erhalten.

Im pulvermetallurgischen Teilbereich der Bildchenherstellung wird anhand einer BR-2 Referenzkampagne der Kernmaterialfluß verfolgt und die erhaltenen Analyseergebnisse ausgewertet und abschließend eine Materialbilanz erstellt.

6.5.3.4 HTR-Linie

Die Fertigungslinie zur Herstellung von HTR-Brennelementen (Kugel- und Blockelemente) ist nach neuesten Techniken ausgelegt und Verlustströme sind als gering anzunehmen. Die Untersuchung von Kernmaterialverlustströmen in dieser Fertigungslinie beschränken sich auf die Auswertung historischer Daten aus Materialbilanzen einer THTR-Jahresproduktion.

6.5.3.5 Zusammenfassung

Bei der Schlußbetrachtung der Verlustströme in der Fabrikationsanlage ist festzustellen, daß die aufsummierten Verlustströme in den einzelnen untersuchten Betriebsbereichen wesentlich geringer sind als der ermittelte Gesamtverluststrom. Dieser Sachverhalt ist jedoch einfach erklärbar: Die bei der Bearbeitung des Kernmaterials zum spezifikationsgerechten Endprodukt anfallenden Schrotte und die in der Kontrolle aussortierten nicht spezifikationsgerechten Zwischenprodukte werden in der Schrottaufarbeitung aufgearbeitet und dem Produktionsstrom wieder zugeführt.

Die Differenz der aufsummierten Verlustströme zum Gesamtverluststrom bezogen auf das Endprodukt in einer Produktionslinie, d.h. die absolute Größe des Verluststromes in der Schrottaufarbeitung, ist zum einen abhängig von der Ausbeute an Kernmaterial bei den chemisch-aufzuarbeitenden Schrotten und zum anderen von den Spezifikationsanforderungen an das Endprodukt.

6.5.4 Entwicklung eines EDV-Systems zur Erfassung von Kernmaterialdaten und Ausfertigung von Bestandsänderungs- und Bestandsmeldungen

An das für die NUKEM in einer ersten Aufbaustufe entwickelte und implementierte EDV-System ist die Aufgabe gestellt, eine off-line Erfassung aller Materialbewegungen mit den für die Kernmaterialüberwachung relevanten Daten zwischen den Schlüsselmeßpunkten für Bestandsaufnahmen der Anlage zu ermöglichen, so daß jederzeit und sofort Bestandslisten für die Schlüsselmeßpunkte abgerufen werden können.

Die EDV-System-Entwicklung geht von den betrieblichen Gegebenheiten aus: Das Kernmaterial durchläuft die Fabrikationsanlage immer so, daß es vom Lager zu einem Fertigungsschritt oder von einem Fertigungsschritt zum Lager gebracht wird, und zwar in Chargen bestimmter Größe. Der Kernmaterialgehalt der Chargen wird beim Ausgangsprodukt aus Lieferdaten übernommen bzw. vor dem ersten Fertigungsschritt bestimmt, sonst jedoch jeweils nach einem Fertigungsschritt neu festgelegt. Die Meßpunkte sind im Fließbild für die Anlage (Abb. 1) eingetragen. Die Eingabe der Material- und Transferdaten in das EDV-System kann deshalb bei jedem Transfer an einem einzigen, im Lagerbereich aufgestellten Terminal erfolgen. Bei jedem Transport einer Charge aus dem Lagerbereich heraus oder in ihn hinein werden eingegeben:

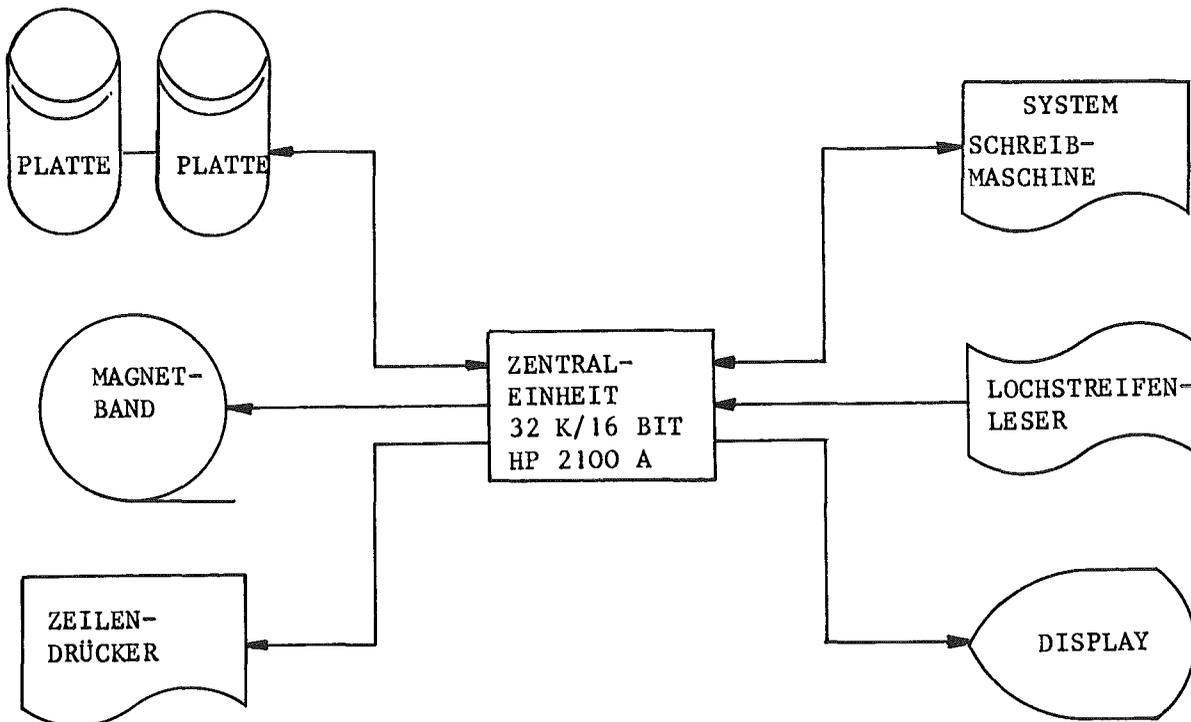
1. Datum
2. Kontonummer des Absender
3. Kontonummer des Empfängers
4. Lagerposition, aus der versendet oder in die empfangen wird
5. Auftragsnummer für die Charge
6. Nummer der begleitenden Identifikationskarte
7. Anzahl der Posten in der Charge
8. Materialart (nach der chemischen Zusammensetzung)
9. Gesamtmasse des Materials
10. Uran-Faktor (Urangehalt des Materials)
11. Masse des Urans
12. Anreicherung (U-235-Gehalt des Urans)
13. Masse des U-235
14. Thorium-Faktor (Thoriumgehalt des Materials)
15. Masse des Thoriums

Das DV-System prüft die Daten (z.B. auf Zulässigkeit des Transfer: entweder als Absender oder als Empfänger muß die Kontrollnummer des Lagerbereiches eingetragen sein), ergänzt bestimmte Daten, die in der Eingabe fehlen dürfen (z.B. Anreicherung aus U-Masse und U-235-Masse) und speichert die Informationen.

Für den Systembediener enthält das System Fehlermeldungen im Klartext, so daß sich die Möglichkeit ergibt, eingegebene Daten zu korrigieren.

Ein Protokoll-Ausgabe-Programm ermöglicht die sofortige Ausgabe der Bestandslisten, in denen der gesamte momentane Kernmaterialbestand der Anlage angegeben ist, aufgeschlüsselt in Lagerbereiche und die beim Materialtransfer zwischen Durchgängen durch das Lager liegenden Fertigungsteilbereiche. Die Ausgabe kann geordnet nach Kontonummern, geordnet nach Auftragsnummern oder - für das Lager - geordnet nach Lagerpositionen erfolgen. Im Dialogverkehr lassen sich die gewünschten Protokolle abrufen. Als Beispiel ist in Abb. 2 eine Bestands-Teilliste für "Lager Teil 3, Box D" dargestellt, in der der Bestand in der Reihenfolge der Faßnummern angegeben ist.

Für die Datenverarbeitung wird der bereits bei der NUKEM vorhandene HP-Rechner verwendet, der folgendermaßen aufgebaut ist:



HEUTE 28.11.75
 ANLAGENTEIL: SLAG EINSCH.SCH.
 KONTO-NUMMER: 246

SMP	BAS	AUFTRAG	POSITION	STCK	U KG	U5 KG	TH KG
D	M	PET 93	2E 7	1	.429	.399	.000
D	M	PET 93	2E 7	1	.484	.450	.000
D	M	PET 93	2E 7	1	.036	.033	.000
D	M	PET 93	2E 7	1	.137	.127	.000
SUMME		PET 93		4	1.086	1.010	.000

SMP	BAS	AUFTRAG	POSITION	STCK	U KG	U5 KG	TH KG
D	M	KNK 93	2B 8	1	.376	.350	.000
D	M	KNK 93	2B 8	1	.039	.036	.000
D	M	KNK 93	2B 7	1	.136	.126	.000
D	M	KNK 93	2B 7	1	.447	.416	.000
D	M	KNK 93	2B 7	1	.431	.401	.000
D	M	KNK 93	2B 7	1	.289	.269	.000
D	M	KNK 93	2B 8	1	.038	.035	.000
D	M	KNK 93	2B 8	1	.168	.156	.000
SUMME		KNK 93		8	1.924	1.789	.000

SMP	BAS	AUFTRAG	POSITION	STCK	U KG	U5 KG	TH KG
D	M	MTR 90	3S45	1	.008	.007	.000
SUMME		MTR 90		1	.008	.007	.000

Abb. 2: Auszug aus einer Liste des realen Bestandes

Der vollständige Abschluß der Arbeiten steht noch aus, bis die endgültigen Forderungen der Überwachungsbehörde hinsichtlich Inhalt und Format der zu liefernden Meldungen bekannt sind, die gegenwärtig noch im Zusammenhang mit der Nachfolge-Verordnung für die EURATOM-Verordnungen 7 und 8 verhandelt werden.

6.5.5 Aufwand für Aufnahme und Prüfung des realen Bestandes

Mit Hilfe des bereits im Jahresbericht 1974 beschriebenen Organisationskonzeptes für Aufnahme und Prüfung des realen Bestands /1/ und des in Kapitel 6.5.4 behandelten EDV-Systems konnte der Inventuraufwand in der NUKEM wesentlich reduziert werden.

Die Tabelle 6.5.3 zeigt diese Entwicklung mit den Daten für den Aufwand in Manntagen, der bei den Inventuren 1973, 1974, 1975 und 1976 auftrat.

Die Reduzierung des Zeitaufwandes im Produktionsbereich geht bis jetzt im wesentlichen auf die Anwendung des Organisationskonzeptes zurück. Das Konzept wurde 1974 in Ansätzen, ab 1975 voll angewendet. Es bringt mit der Verringerung der inventurbedingten Wartezeit in der Produktion, verbunden mit der Verringerung des Kernmaterialinventars in diesem Bereich eine Aufwandsparnis von rund 50 % bzw., wie die Tabelle aufweist, eine Erniedrigung des Zeitaufwandes von 94 Manntagen (Inventur 1973) auf 49 Manntage (1976).

Die Übernahme der Ausfertigung von Inventarlisten, die bis jetzt noch vom Betriebspersonal von Hand erfolgt, durch die Materialkontrolle mit Hilfe der EDV-Anlage wäre eine weitere Aufwandsreduzierung zu erwarten.

In der Materialbuchhaltung führt die Anwendung der EDV zu einer wesentlichen Aufwandsreduzierung. Der Aufwand für die Ausfertigung der Inventurlisten, die 1973 und 1974 noch voll von Hand erfolgte, entfällt in den Lagerbereichen, das heißt, wird dort von der DV-Anlage übernommen. Der Einsatz der EDV verringert ferner den Zeitaufwand für das Koordinieren und Abstimmen der Inventurlisten mit den Überwachungsbehörden um 91 % (1976 gegenüber 1973). Auch die transparente Darstellung der Listen mit der auftragsspezifischen Zuordnung der Chargen reduziert den Arbeitsaufwand für Überprüfung des Bestandes und Bilanzierung um 92 %. Wie die Tabelle deutlich ausweist, wurde das EDV-System erstmals teilweise 1975, 1976 erweitert eingesetzt.

Tabelle 6.5.3: Darstellung des Zeitaufwandes für Aufnahme und Prüfung des realen Bestandes in Manntagen im Zusammenhang mit dem Organisationskonzept und der EDV

	1973		1974		1975		1976		Reduktion	
	Produktion (MT)	Mengen- kontrolle (MT)	Produktion (MT)	Mengen- kontrolle (MT)	Produktion (MT)	Mengen- kontrolle (MT)	Produktion (MT)	Mengen- kontrolle (MT)	Produktion %	Mengen- kontrolle %
Erstellen d. Inventur- listen	30	9	26	9	18	2	15	0	50	100
Wartezeiten d. Produk- tionsbereiche	60	-	50	-	32	-	30	-	50	-
Kontrolle d. Produk- tionsbereiche	4	4	4	4	3	3	3	3	25	25
Koordination u. Abstim- mung d. Inventurlisten	-	11	-	5	-	2	-	1	-	91
Probenahmen/Messungen	1	2	1	2	1	2	1	2	-	-
Überprüfung und Kom- plettieren der PTL's u. Erstellen der MBR	-	25	-	25	-	10	-	2	-	92
	95	51	81	45	54	19	49	8	48	84
Summe Manntage	146		126		73		57		61	
			Ansatz z. Organisa- tionskonzept erpr obt; ohne EDV		Anwendung d. Organi- sationskonzeptes; EDV nicht voll aus- gebaut		Volle Anwendung d. Org.konzeptes mit Einsatz d. EDV		Reduktion d. Zeit- aufwandes in % 1973 - 1976	

6.6 Überwachungsmaßnahmen für Kernforschungszentren und Hochtemperatur-Reaktoranlagen

Die Arbeiten der Arbeitsgruppe Spaltstoffflußkontrolle der Kernforschungsanlage Jülich, die im Jahre 1975 durchgeführt wurden, befaßten sich in Fortführung des vorgegebenen Arbeitsprogrammes schwerpunktmäßig mit der Entwicklung eines Kontrollsystems für Kernforschungszentren und eines Überwachungssystems für den Hochtemperaturreaktor.

Die Arbeiten zur Gestaltung des Kontrollsystems für Kernforschungszentren umfassen im wesentlichen die Festlegung eines Gesamtkonzepts, die Entwicklung eines computergestützten Buchhaltungssystems für das zu überwachende Kernmaterial sowie die Entwicklung und Erprobung geeigneter zerstörungsfreier Meßverfahren zur Bestimmung von Kernmaterialdaten.

Nachdem bereits Konzepte für die Kernmaterialüberwachung in Anlagen des nuklearen Brennstoffzyklus an anderen Stellen entwickelt worden waren, stellte sich die Aufgabe, ein ähnliches Kontrollkonzept auch für Forschungszentren zu entwerfen. Als Besonderheit weist der 1975 entwickelte Konzeptentwurf auf, daß neben den Kontrollmaßnahmen der internationalen Kontrollorganisationen IAEA und EURATOM in besonderem Maße den Anforderungen des Betreibers an die Kernmaterialüberwachung in einem Kernforschungszentrum Rechnung getragen wird. Das Kontrollkonzept zielt daher darauf ab, jederzeit eine ausreichende Transparenz der räumlichen und mengenmäßigen Verteilung des nuklearen Materials herzustellen.

Der Entwurf, der auch einen Leitfaden zur Mitteilung der technischen Anlagendaten umfaßt, wurde mit Vertretern von EURATOM, der IAEA, dem BMFT und der GfK eingehend diskutiert. Das vorgesehene Kontrollsystem basiert auf Untersuchungen in der KFA, die im Rahmen eines Forschungsauftrages der IAEA durchgeführt wurden. Über das Konzept des Kontrollsystems wurde auf einem Symposium der IAEA im Oktober 1975 in Wien vorgetragen.

Das Kontrollsystem für Forschungszentren soll im wesentlichen auf einem Protokoll- und Berichtssystem sowie einem System zur zerstörungsfreien Messung von Kernmaterialdaten basieren. Zur Führung von Protokollen und zur Erstellung von Berichten ist ein computergestütztes Buchhaltungssystem vorgesehen. Durch den Computereinsatz werden die Erfassung und die Auswertung von Kernmaterial-

daten erleichtert.

Die Arbeiten umfaßten 1975 die Darstellung der Anforderungen von IAEA und EURATOM an die Buchhaltung, die Aufnahme des Ist-Zustandes der zentralen Buchhaltung der KFA sowie einiger ausgewählter Institute und schließlich den Beginn der Erstellung von Spezifikationen für das Soll-Konzept der Buchhaltung. Einzelheiten des Konzepts ergaben sich aus Diskussionen in einem dazu eingerichteten KFA-Arbeitskreis.

Als Zusammenfassung wurde eine Rahmenkonzeption erarbeitet, die die Schwerpunkte des vorgesehenen Buchhaltungssystems aufzeigt. Gleichzeitig wurde mit Überlegungen begonnen, ein beispielhaftes Konzept für die institutsinterne Buchhaltung zu entwickeln und dieses in einem Institut der KFA zu implementieren.

Im Hinblick auf die in der KFA vorhandenen typischen Kernmaterialien wurden entsprechende Entwicklungs- und Erprobungsarbeiten für ein geeignetes Meßsystem zur zerstörungsfreien Bestimmung von Kernmaterial in Zusammenarbeit mit anderen KFA-Instituten (IRE, ICT, ZBB, ZST) im Arbeitskreis SpFK "Meßtechnik" durchgeführt.

Folgende Meßverfahren werden z.Z. entwickelt oder stehen zur Analyse von Kernmaterial bereits zur Verfügung:

- gammaspektrometrische Bestimmung des U-235 und des Th-232 Gehaltes in Brennstoffproben und in unbestrahlten HTR-Brennelementstäben und -kugeln;
- Bestimmung des Gehaltes an fertilem und fissilem Kernmaterial mit einer Cf-252 Neutronenquelle und einer Vierdetektoranordnung;
- Bestimmung des fissilen Anteils in abgebrannten Brennelementen mit einer Sb-Be Neutronenquelle und BF₃-Neutronenzählrohren;
- Bestimmung des Anteils an U-235 und U-233 mittels der verzögerten Neutronentechnik.

Nach Anschaffung geeigneter Eichstandards sind erste Vergleichsmessungen mit den verschiedenen Meßsystemen durchgeführt worden. Ziel der Untersuchungen ist es, eine für die in der KFA vorhandenen Kernmaterialkategorien und

-Konfigurationen optimale Meßgerätekombination zu entwickeln.

Das Kontrollsystem für ein Forschungszentrum wird zunächst für die KFA entwickelt. In seiner Konzeption ermöglicht es jedoch die Übertragung auch auf andere deutsche Kernforschungszentren. Diese Anwendung ist für die zweite Stufe der Arbeiten vorgesehen.

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, da für diese Reaktoren bereits Kontrollsysteme entwickelt wurden. Dabei ist von besonderer Bedeutung, daß diese HTR's vom Typ des Kugelhaufenreaktors sind, in dem die Brennstoffkugeln kontinuierlich - unter Last - zugegeben und abgezogen werden. Eine periodische Aufnahme des physikalischen Inventars ist bei diesem Reaktortyp nicht möglich. Andere geeignete Sicherungsmaßnahmen sind zu entwickeln. Es wird angestrebt, die Materialbilanzierung durch automatisches Zählen der Brennelementkugeln am Coreeingang bzw. -ausgang durch entsprechende Zählgeräte durchzuführen und diese Maßnahme durch eine weitgehende Anwendung von Containment- und Surveillance-Maßnahmen zu unterstützen.

Für den AVR ist ein 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.

Neben den Arbeiten zum Kontrollsystem für Kugelhaufen-Reaktoranlagen wurde damit begonnen, Sicherungsmaßnahmen für Wiederaufarbeitungsanlagen für HTR-Brennelemente zu entwerfen. Diese Anlagen unterscheiden sich von den Wiederaufarbeitungsanlagen für LWR-Brennelemente im wesentlichen im "Head-End-Prozeß".

6.7 Kernmaterialüberwachung im Kernforschungszentrum Karlsruhe

6.7.1 Übersicht über die Arbeiten

Im Rahmen der Entwicklung eines Überwachungssystems für Kernforschungszentren wurden für das KFZK folgende Arbeiten durchgeführt:

- Entwicklung eines Fragenkatalogs für die Mitteilung von Anlagedaten der Institute und Einrichtungen des KFZK
- Zusammenstellung einer Übersicht über Art und genehmigte Umgangsmengen bzw. betriebsüblich verwendete Mengen an Kernmaterial aufgrund von Betriebsgenehmigungen für die Institute und Einrichtungen des KFZK
- Ermittlung der internen Kernmaterial-Bewegungen zwischen den einzelnen Instituten und Einrichtungen des KFZK
- Erarbeitung eines ersten Entwurfs der "design informations" für das KFZK
- Planung eines rechnergestützten Systems zur Erfassung und Meldung von Daten über Kernmaterialbewegungen und -bestände im IMF III.

6.7.2 Zusammenstellung von Anlagedaten für das Kernforschungszentrum Karlsruhe als Entwurf

Nach einem Fragenkatalog, der entsprechend den in den Ergänzenden Abmachungen gegebenen Vorbildern auf die Besonderheiten von Forschungszentren zugeschnitten entwickelt wurde, arbeitete das Projekt Spaltstoffflußkontrolle einen ausführlichen Entwurf der Anlagedaten-Zusammenstellung (design informations) für das Kernforschungszentrum Karlsruhe aus. Dieser kann, erforderlichenfalls nach interner Abstimmung, den Überwachungsbehörden bei Bedarf übergeben werden.

Als einen Teil des Arbeitsergebnisses zeigt die Tabelle 6.7.1 die Übersicht über die genehmigten Umgangsmengen an Kernmaterial in kg eff für die Einrichtungen des Kernforschungszentrums nach dem Stand vom August 1974 (Punkt 9 des design information questionnaire).

6.7.3 Anforderungen an ein rechnergestütztes Datenerfassungs- und Meldesystem am IMF III

Die Bereitstellung von Informationen über Kernmaterialbewegungen und Bestände in Buchungsprotokollen und Betriebsprotokollen sowie Meldungen über Bestandsänderungen und Bestände vom Betreiber an die Überwachungsbehörde bilden neben den Inspektionstätigkeiten der Behörde einen wesentlichen Teil der Kernmaterialüberwachung. Es ist einleuchtend, daß der Einsatz der EDV für die Sammlung und Verarbeitung der erforderlichen Daten und die Bereitstellung der Protokolle und Meldungen besonders in komplexen Anlagen mit der Vielfalt an Materialbeständen und an Bestandsänderungen wie im Kernforschungszentrum Karlsruhe wesentliche Vorteile sowohl für den Betreiber wie auch wegen der verbesserten Transparenz und Aktualität der Informationen für die Behörde bringt.

Die Einführung eines rechnergestützten Datenerfassungs- und Meldesystems für die Kernmaterialüberwachung im Kernforschungszentrum Karlsruhe soll zunächst an einigen wenigen ausgewählten Instituten und Einrichtungen erfolgen. In einem ersten Schritt sind die Anforderungen an ein solches System für ein einzelnes Institut festzuhalten, und zwar für das IMF III, das ein starkes Interesse an einem EDV-System auch aus Gründen betrieblicher Sicherheit bekundet, andererseits als Plutonium-verarbeitende Einrichtung von besonderer Bedeutung für die Kernmaterialüberwachung ist.

Das IMF III besitzt die Umgangsgenehmigung für rund 36 kg eff an Kernmaterial. Umgegangen wird im wesentlichen mit Plutonium-Verbindungen und mit Uranverbindungen unterschiedlicher Anreicherung. Das Institut umfaßt

zwei Betriebsteile mit je 1 kg eff genehmigter Umgangsmengen		
einen Betriebsteil mit 230 g eff genehmigter Umgangsmengen		
ein Lager	mit ca. 30 kg eff	" "

Tabelle 6.7.1: Genehmigte Umgangsmengen

	Uran [kg eff]	Plutonium [kg eff]	Thorium [kg eff]	Gesamt [kg eff]
RBT/FR2	6,600	1,275	0,003	7,878 ¹⁾
/SNEAK	368,542	444,061	-	812,603 ¹⁾
/STARK	3,032	0,450	-	3,845 ¹⁾²⁾
	0,363			
/Z	5,200			5,200
INR	1,912	1,000	-	2,912
/SUAK	(32,200)	(100,000)	-	(132,200) ³⁾
IRB	0,002	-	-	0,002
IRE	0,200	-	-	0,200
IKVT	0,115	-	-	0,115
IMF I	1,698	0,010	0,001	1,709
IMF III	3,610	2,500	-	36,110
	30,000		-	
IHCh	13,850	5,000	-	18,850
IRCh	0,404	6,400	-	6,804
ADB	19,150	10,000	-	29,150 ⁴⁾
IAK	0,700	0,200	-	0,900
/Zykl.	0,013	0,001	-	0,014
EMK/FK	0,700	0,200	-	0,900
SKT/SUR-100	0,151	-	-	0,151
/SUA	0,100	-	-	0,100
ASS	0,010	0,001	-	0,011
Med	0,050	0,000	-	0,050
Summe:				927,504

1) Unter Zugrundelegung des tatsächlichen Bestandes im August 1974, sofern der Umgang aufgrund einer Betriebsgenehmigung ohne Mengenlimitierung erfolgt.

2) Die Menge kann sich erhöhen, jedoch nur bei gleichbleibender Summe mit SNEAK.

3) Die Menge ist in der für SNEAK angegebenen Menge enthalten.

4) Das Material, mit dem in der ADB umgegangen wird, ist Kernmaterial-Abfall, der nach Art. 35 des Verifikationsabkommens von der Überwachung freizustellen ist.

Die drei Betriebsteile weisen etwa 50 unterschiedliche, voneinander abgetrennte Betriebspositionen (Boxen oder Boxengruppen) auf, in denen Mengen von 1 bis 100 g Kernmaterial vorhanden sein können, das Lager hat 18 Positionen mit einer maximalen Kapazität von 2 kg pro Position.

An das rechnergestützte Datenerfassungs- und Meldesystem ist generell die Aufgabe gestellt, jederzeit auf Abruf Bestandslisten, Gesamt- und Teilbestände nach bestimmten Ordnungsprinzipien berechnen und ausdrucken zu können. Unter dem Gesichtspunkt der Spaltstoffflußkontrolle ist die dabei zu erreichende Aufgliederung von der noch vorzunehmenden Definition von Chargen für die Aufnahme und Prüfung des realen Bestands abhängig. Aus Gründen der Betriebskontrolle wünscht das IMF III darüber hinaus die Möglichkeit, Bestandslisten nach den oben genannten Betriebspositionen (Boxen oder Boxengruppen) gegliedert zu erhalten. Diese Aufgaben werden mit der Erfassung aller Materialtransfers in, zwischen und aus den Betriebspositionen heraus und der Bereitstellung verschiedener Rechenprogramme für die Bestandsberechnungen nach verschiedenen Ordnungsprinzipien gelöst.

Um Sicherheitsforderungen zu genügen, wird der Aufbau eines eigenen Rechners vorgesehen. Die Dateneingabe soll entsprechend den räumlichen Gegebenheiten im IMF III an drei Terminals erfolgen, denen die folgenden Betriebspositionen zugeordnet sind

Terminal 1:	18 Lagerpositionen (Lager im Gebäude 573)
	13 Boxenpositionen (gr. Labor im Gebäude 573)
	1 Position (kl. Labor im Gebäude 573)
Terminal 2:	6 Boxenpositionen (gr. Labor im Gebäude 574 Süd)
	2 Positionen (kl. Labors im Gebäude 574 Süd)
Terminal 3:	6 Boxenpositionen (gr. Labor im Gebäude 574 Nord)
	3 Positionen (kl. Labors im Gebäude 574 Nord)

Insgesamt werden demnach 49 Positionen für die Erfassung von Transfers unterschieden. Die drei Terminals sollen mit Bildschirm und hard-copy-Einrichtung ausgerüstet sein. Zusätzlich soll ein Terminal im Bürotrakt des IMF III aufgestellt werden, das u.a. der zentralen Aufzeichnung aller an den Terminals 1 bis 3 eingegebenen Daten, zwecks Datensicherung, dient. Das DV-System ist gegen unberechtigte Zugriffe zu schützen.

Es ist mit größenordnungsmäßig 200 Transfers pro Monat zu rechnen. Bei jedem Transfer ist an einem Terminal vom Absender - bei Eingang von außen vom Empfänger - einzugeben

1. Datum
2. versendende Position (bei Eingang von außen Kennzeichnung des Absenders)
3. empfangende Position (bei Ausgang nach außen Kennzeichnung des Empfängers)
4. Fortsetzungszeichen bei mehrzeiliger Eingabe (Transfer von Material mit mehreren Komponenten bezüglich Zusammensetzung, Herkunft usw.)
5. Herkunft¹⁾
6. Verwendungszweck²⁾
7. Versuchs-Nummer
8. Verbindung
9. Masse der Verbindung
10. U- bzw. Pu-Faktor
11. Anreicherung (bei U)
12. Herkunft der Daten (Kennzeichnung der Messung, Angabe einer Fortschreibung von Lieferdaten usw.)

Die Eingabe wird am Terminal und am Zentralterminal ausgedruckt und ergänzt durch die von der Maschine errechneten Angaben:

13. Element
14. Masse des Elements
15. Masse des spaltbaren Isotops (bei U)

Ferner werden errechnet und ausgedruckt

der Bestand nach Transfer an der versendenden Position
 der Bestand nach Transfer an der empfangenden Position

aufgelistet mit den Angaben

1. wie oben 1.
2. Position
3. bis 14. wie oben 4. bis 15.

in Summenzeilen dazu

1) als "besondere Kontrollverpflichtung" nach dem Entwurf der neuen Verordnung der KEG zu erwarten
 2) nach dem Entwurf der neuen Verordnung der KEG zu erwarten

Element (Pu, U)

Masse des Elements

Masse des spaltbaren Isotops (U-235, bei U)

Die Transfermeldung und die Endbestandsmeldung soll für beide Bereiche am Eingabeterminal auf zwei Zetteln ausgedruckt werden, die als Boxklebezettel an der versendenden und der empfangenden Position verwendet werden können.

Bei diesem Verfahren muß das DV-System die jeweiligen Endbestände speichern, das sind bei rund

50 Bereichen

20 Materialposten pro Bereich

50 Worten pro Materialposten

50 000 Worte an erforderlicher Speicherkapazität. Speicherkapazität für Datenspeicherung bei der Eingabe-/Ausgabeprozedur und für Programme kommt hinzu.

Am Zentralterminal soll jederzeit abgerufen werden können

der Bestand geordnet nach Positionsnummern

geordnet nach Räumen

geordnet nach Herkunft ("besonderen Kontrollverpflichtungen")

geordnet nach Versuchsnummern

für das Gesamtlabor

gegebenenfalls geordnet nach Teilbereichen

Safeguardsrelevant sind dabei abhängig von der Chargendefinition die beiden letztgenannten Angaben, gegebenenfalls die erstgenannte Bestandsliste.

6.8 Zum Entwurf einer neuen Verordnung der Kommission der Europäischen Gemeinschaften zur Anwendung der Bestimmungen des Euratom-Vertrages über die Sicherheitsüberwachung (Kernmaterialüberwachung)

6.8.1 Einleitung

Der Abschluß des Verifikationsabkommens zum NV-Vertrag hat zu bestimmten Änderungen in den Verpflichtungen geführt, die Euratom bei der Kernmaterialüberwachung obliegen. Die Kommission der Europäischen Gemeinschaften sah sich deshalb veranlaßt, zur Anpassung an diesen Sachverhalt die Verordnungen 7 und 8, die die Kernmaterialbuchführung und die Berichterstattung der Anlagenbetreiber an Euratom regeln, durch eine neue Verordnung zu ersetzen. Ein erster Entwurf hierzu wurde Ende 1974 vorgelegt. Das Projekt Spaltstoffflußkontrolle arbeitete Stellungnahmen hierzu aus, die dem BMFT sowie der VDEW und dem Deutschen Atomforum zugingen, die sie als Diskussionsunterlagen und zur Erarbeitung eigener Stellungnahmen verwendeten. Darüberhinaus arbeitete das Projekt in einem mit Vertretern der kerntechnischen Industrie gebildeten Arbeitskreis Alternativvorschläge für die Meldeformulare aus, die als Anhänge dem Verordnungsentwurf beigelegt sind.

6.8.2 Zu Problemen des Verordnungsentwurfs

Die Prüfung des Verordnungsentwurfs führt zu folgenden Punkten, denen kritisch nachzugehen ist:

1. Parallele Aufnahme von Verpflichtungen aus der (alten) Verordnung 8 (V) und aus dem Verifikationsabkommen (VA) mit Ergänzenden Abmachungen (EA).
2. Beibehalten von Verpflichtungen, die nach dem Inkrafttreten des Verifikationsabkommens in Fortfall kommen sollten.
3. Nichtberücksichtigung von Erleichterungen, die nach dem Verifikationsabkommen möglich sind.
4. Neuaufnahme von Verpflichtungen
5. Nichtberücksichtigung von Möglichkeiten, fortgeschrittene Verfahren bei Kernmaterialbuchführung und -berichterstattung einzuführen.

Das deutlichste Beispiel für die parallele Einführung von Verpflichtungen bieten die Vorschriften für die Aufgliederung des Materials in Buchführung, Berichten und zur Bilanzierung. Nach den Artikeln 7, 10 bis 12, 26 und 28 des Verordnungsentwurfes vom 30. Oktober 1974 ist das Material getrennt zu führen

- nach Chargen (entsprechend Verifikationsabkommen)
- nach den Elementen Uran, Plutonium, Thorium

dabei bei abgereichertem Uran und Natururan getrennt nach beiden Kategorien, ohne Angabe von U-235 (entsprechend der alten Verordnung 8 und den Erg. Abmachungen zum VA), bei angereichertem Uran mit Angabe des U-233 und / oder U-235 getrennt nach Anreicherungsgraden (alte Verordnung 8)

- nach besonderen Überwachungsverpflichtungen (das heißt nach Vertragsnummern, wenn die Verträge dies vorsehen (alte Verordnung 8))

Allein die Forderung nach getrennter Führung und Meldung des angereicherten Materials nach Chargen einerseits und Anreicherungsgraden andererseits bedeutet eine Multiplikation der Aufwände.

Nach dem Verifikationsabkommen gehören Erze nicht zum Kernmaterial. Der Verordnungsentwurf hingegen schließt, wie in der (alten) Verordnung 8, die Erze ins Kernmaterial ein und sieht dementsprechende Verpflichtungen vor. - Während im Verlaufe der Verifikationsvertragsverhandlungen eine Abschaffung der Verpflichtungen zur Buchführung, Meldung und Bilanzierung von Kernmaterial getrennt nach Lieferverträgen in Aussicht gestellt worden war, sind diese Verpflichtungen im Verordnungsentwurf wieder enthalten (Artikel 26 "besondere Kontrollverpflichtungen").

Das Verifikationsabkommen bietet als Erleichterung für die Kernmaterialüberwachung die Möglichkeiten, die Überwachungsmaßnahmen an Kernmaterial zu beenden, wenn es "verbraucht oder so verdünnt worden ist, daß es für eine nukleare Tätigkeit ... nicht mehr verwendbar ist oder praktisch nicht rückgewinnbar geworden ist". Ferner kann nach dem Verifikationsabkommen Kernmaterial unter bestimmten Bedingungen (Gramm-Mengen als Sensor in Instru-

menten; bei nicht nuklearen Tätigkeiten verwendet und nicht rückgewinnbar Pu mit über 80 % Pu-238) von den Überwachungsmaßnahmen befreit werden. Der Verordnungsentwurf vom 30. Oktober 1974 sieht diese Möglichkeiten nicht vor.

Neu in den Verordnungsentwurf aufgenommen sind eine Reihe von Regelungen, so in Artikel 14 die Verpflichtung für die Betreiber von Leistungsreaktoren zur Mitteilung über "die Mengen der verbrauchten und erzeugten Ausgangsstoffe und besonderer spaltbarer Stoffe" "für die endgültig entladenen bestrahlten Brennelemente" (d.h. auch vor deren Abtransport).

Bezüglich der Möglichkeiten schließlich, fortgeschrittene Verfahren bei der Buchführung und Berichterstattung im Rahmen der Kernmaterialüberwachung einzuführen, ist auf das von Reaktorbetreibern und Projektsplattstoffflußkontrolle der KEG vorgelegte Konzept zu verweisen, das für Brennelementbündel, die eindeutig gekennzeichnet sind, deren Kernmaterialgehalt aus vorangegangenen Berichten (Bestandsänderungsberichte beim Transfer vom Hersteller zur Reaktoranlage) bekannt ist und die in den Reaktoranlagen nur als Einheiten verfolgt und überwacht werden können, das Führen in den Büchern und Melden allein mit den Identifikationsangaben und die Bilanzierung nach Stückzahl vorsieht. Die Möglichkeit zur Durchführung dieses Konzeptes ist im Verordnungsentwurf nicht vorgesehen.

6.8.3 Alternative Formblattentwürfe für Meldungen über Kernmaterial

Den gemeinsam mit Vertretern der kerntechnischen Industrie ausgearbeiteten Entwürfen für die Formblätter für Bestandsänderungsberichte (Abb.6.8.1), Materialbilanzberichte (Abb.6.8.2) und Aufstellungen des realen Bestands (Abb.6.8.3) liegen folgende Prinzipien zugrunde:

1. Es werden nur die Materialkategorien Uran (mit Angabe des Gehalts an U-233 und U-235), Plutonium und Thorium unterschieden, während der Euratomentwurf abgereichertes Uran, Natururan (beide ohne Angaben über den U-235-Gehalt) und bei angereichertem Uran eine eigene Kategorie für jeden Anreicherungsgrad vorsieht. Die Reduktion auf die "Einheits-

kategorie" Uran ist mit Verifikationsabkommen und Ergänzenden Abmachungen vereinbar, im übrigen auch für die Meldungen an die IAEO zugelassen: Abgereichertes Uran und Natururan sowie der Anreicherungsgrad bei angereichertem Uran können für jede Charge durch Gegenüberstellung der U- und U-233/U-235-Werte erhalten werden, wenn immer die Behörde dies wünscht.

2. Bei Plutonium werden im Gegensatz zum Euratom-Entwurf nur Angaben über das Element, nicht jedoch die Isotope Pu-239/Pu-241 verlangt. Damit ist der Tatsache Rechnung getragen, daß die Masse von Pu ohne Abhängigkeit vom Pu-239/Pu-241-Gehalt immer der Masse in kg eff entspricht
3. Die Reduzierung der Angaben, wie in 1. und 2. beschrieben, erlaubt, Eintragungen für eine Charge in den Meldungen immer auf einer Zeile unterzubringen, während der Euratom-Entwurf bei Chargen, die Material aus verschiedenen Kategorien enthalten, mehrzeilige Eintragungen erfordert und damit auch die Möglichkeit einer spaltenweisen Übersicht über Material einer Kategorie ausschließt.
4. Die Unterscheidung von Materialien bei der Material- und Chargenbeschreibung ist gegenüber dem Euratom-Entwurf beschränkt worden. Diese Verringerung bedeutet vor allem eine Bereinigung der Materialkennzeichnungsangaben. Mehrdeutigkeiten werden vermieden.
5. Für die Bestandsänderungs- und Materialbilanzberichte ist die Auflistung der zu berücksichtigenden Bestandsänderungen auf die beschränkt, die aus der Sicht der Betreiber relevant sind. Gegenüber dem Euratom-Entwurf sind Bestandsänderungen infolge einer Beendigung der Überwachung. Damit ist eine Regelung des Verifikationsabkommens wiederhergestellt, die für die Behandlung von Abfall bedeutsam sein kann.
6. In den Aufstellungen des realen Bestandes können für diejenigen mit Nummern gekennzeichneten Chargen für die die Werte des Kernmaterialgehalts aus früheren Bestandsänderungsberichten bekannt sind, die Massenangaben fortgelassen werden. Trifft dies für alle Chargen zu, so ist lediglich die Anzahl der Chargen in der Aufsummierung des Bestands anzugeben; im zugehörigen Materialbilanzbericht kann dann nach Anzahl

von Chargen bilanziert werden.

Dieses Fortlassen von Massenangaben in Aufstellungen des realen Bestands bis hin zur Bilanzierung nach Chargenanzahl bedeutet, da dies an die Bedingung einer vorherigen Verknüpfung von Chargenkennzeichen und Chargenmassen in Bestandsänderungsberichten geknüpft ist, keine Ausschließung der Möglichkeit einer Massenprüfung und -bilanzierung bei Euratom aufgrund der dort gespeicherten Daten und widerspricht insofern nicht den Bestimmungen des Verifikationsabkommens. Die Regelung für die Meldung von nuklearer Produktion und nuklearem Verlust für Reaktoranlagen, die auf dem Grundsatz aufbaut, daß solche Daten dort gemeldet werden sollen, wo sie durch Messungen am abgebrannten Material tatsächlich erzeugt werden, unterstützen in diesem Rahmen die Möglichkeiten der Bilanzierung nach Chargenanzahl, ohne daß auch hier, bezogen auf den Gesamtbrennstoffkreislauf, Euratom Daten vorliegen würden. Sie bedeutet hingegen eine wesentliche Erleichterung für die Betreiber.

7. In der Praxis kann es vorkommen, daß ein Betreiber bei der betriebsinternen Bestandsaufnahme auch noch andere Angaben, z.B. Primärdaten, auflisten möchte, die für die für die Behörde vorgesehene Bestandsliste zwar nicht erforderlich sind, deren Aufnahme in einem Arbeitsgang jedoch Doppelarbeiten vermeiden hilft oder aber die Bestandsprüfung selbst erleichtert. Diese Fälle sind aus Produktions- und Wiederaufarbeitungsanlagen bekannt. Es werden aus diesem Grund anlagenspezifische Bestandslisten-Formulare zugelassen, die außer dem für die Behördenmeldung erforderlichen "Kernteil" der Aufstellung des realen Bestandes noch Spalten für zusätzliche Angaben enthalten.

Die Alternativvorschläge wurden in die Verhandlung über die Anhänge eingebracht.

Literaturverzeichnis zu Kapitel 6

- /1/ Projekt Spaltstoffflußkontrolle, Jahresbericht 1974,
KFK 2206, Dez. 1975
- /2/ Chr. Brückner, Van der Hulst, H. Krinninger: Proposal for a
Safeguards System for the KKW Kalkar.
(unveröffentlicht)
- /3/ Chr. Brückner: Arbeiten im Zusammenhang mit der Einführung von
Überwachungsmaßnahmen an kerntechnischen Anlagen nach dem Veri-
fikationsabkommen zum NV-Vertrag: Kernkraftwerk Kalkar (SNR 300),
im Jahresbericht 1974 des Projektes Spaltstoffflußkontrolle,
KFK 2206, Dez. 1975, S. 6-5
- /4/ H. Krinninger, Chr. Brückner, P. Van der Hulst: Preliminary
Concept of a Safeguards System for the LMBR-Prototyp SNR 300
(KKW Kalkar), International Symposium on the Safeguarding of
Nuclear Materials, Wien 20-24 October 1975, (IAEA-SM-201/50)
- /5/ Frame Specification for the Design of the Instrumentation for
the Kalkar Nuclear Safeguards System
(SBK-Bericht, unveröffentlicht)
- /6/ H.J. Hein
Versuchsergebnisse einer Tankkalibrierung mittels Tracertechnik.
interner GWK-Bericht (1975) unveröffentlicht
- /7/ Zentralbüro für Kernmessungen, Geel, Belgien
Beschreibung des Meßablaufs zur Analyse D₂-haltiger Kalibrier-
wasserproben.
(1975) unveröffentlicht
- /8/ Chr. Brückner, W. Bahm, G. Hartmann: Use of a Computerized Information
System for Inventory Taking and Checking at a Nuclear Fuel Fabrication
Plant with Closed Production Lines, International Symposium on the
Safeguarding of Nuclear Materials, Wien 20-24 October 1975,
(IAEA-SM-201/48)

Kapitel 7: INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT

D. Gupta

	<u>Seite</u>
7.1 ESARDA-Zusammenarbeit	7-1
7.1.1 Langfristige Aufgabe der ESARDA	7-1
7.1.2 F+E.-Arbeiten der ESARDA	7-3
7.2 IAEO-Zusammenarbeit	7-4
7.2.1 Arbeitsausschüsse und Symposien der IAEO	7-4
7.2.2 Standing Advisory Group on Safeguards Implementation (SAGSI)	7-5
7.3 Zusammenarbeit mit einzelnen Staaten	7-6
 Literaturverzeichnis zu Kapitel 7	 7-10

7. Internationale Zusammenarbeit

Die internationale Zusammenarbeit des Projektes wird wie in den vergangenen Jahren mit mehreren Organisationen in nationaler und internationaler Ebene fortgeführt. 1975 lagen die Schwerpunkte dieser Arbeiten bei den internationalen Organisationen ESARDA und IAE0 und bei den Ländern Japan und Indien.

7.1 ESARDA-Zusammenarbeit

7.1.1 Langfristige Aufgabe der ESARDA

Die von einzelnen Mitgliedern durchgeführten F+E.-Arbeiten wurden im Rahmen der ESARDA⁺ im Jahre 1975 stärker intensiviert. Das Projekt arbeitete gemeinsam mit der UKAEA und EURATOM ein Grundsatzpapier aus, in dem die langfristigen gemeinsamen Aufgaben der ESARDA umrissen und die Möglichkeiten ihrer Durchführung aufgezeigt wurden. Der Lenkungsausschuß der ESARDA stimmte diesem Papier zu und empfahl, dieses als Grundlage für die Gestaltung der zukünftigen gemeinsamen Arbeiten zu verwenden. In diesem Papier sind vier Richtlinien vorgeschlagen worden.

- a) Im Rahmen der ESARDA-Arbeitsausschüsse gezielte Entwicklungs- und Erprobungsarbeiten in Form von ESARDA-Teilprojekten mit festgelegten Zielen und festgelegtem Mittelaufwand durchzuführen, mit dem Ziel, die Ergebnisse dieser Arbeiten in operativen Überwachungsmaßnahmen der EURATOM bzw. IAEA verwendbar zu machen.
- b) Eine progressive Kommunikations- und Informationspolitik der ESARDA zu gestalten, mit der die Überwachungsbehörden, die an

⁺) 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.

Safeguards R+D-Arbeiten beteiligten Forschungszentren, sowie die Kernanlagenbetreiber der Gemeinschaft näher zusammengebracht werden und gegenseitiges Verständnis für die Probleme und die Lösungswege herbeigeführt werden kann. Außerdem sollen direkte Kontakte mit anderen Stellen, die ähnliche Aufgaben wahrnehmen (Japan, IAEA, US ERDA usw.), hergestellt werden.

- c) ESARDA ist nicht geeignet, an der Implementierung der Überwachungsverpflichtungen der einzelnen Staaten direkt beteiligt zu sein. Diese Tätigkeiten müssen der Überwachungsbehörde und den einzelnen Staaten vorbehalten bleiben. Technisch wissenschaftliche Probleme jedoch, die bei dieser Implementierung entstehen und allgemeinen Charakter haben, können und sollen von der ESARDA aufgegriffen und als langfristige Aufgabe weitergeführt werden. Besonders im Hinblick auf die möglichen geänderten Überwachungskonzepte, die für den Brennstoffzyklus der 80er Jahre eingesetzt werden müßten, haben diese Arbeiten große Bedeutung.
- d) ESARDA kann gegebenenfalls in einigen Bereichen der F+E.-Arbeiten zur Kernmaterial- und Anlagensicherung tätig werden.

Ausgehend von diesen Richtlinien wurden

- die Zielvorstellungen der drei Arbeitsausschüsse der ESARDA neu formuliert und die Bearbeitungswege für die einzelnen Teilprojekte in diesen Ausschüssen ausgearbeitet.
- beschlossen, vierteljährlich ein Informationsbulletin der ESARDA herauszugeben. Inhalt und Form des Bulletins wurden festgelegt.
- Kontakte mit der IAEO, INMM USA usw. hergestellt.

In dem Arbeitsausschuß für "zerstörungsfreie Methoden" wurde mit der Bestandsaufnahme der z.Zt. im Einsatz bzw. in der Entwicklung befindlichen überwachungsrelevanten Meßsysteme begonnen. Als Teilprojekt ist eine Vergleichsuntersuchung der n-Koinzidenz-Meßmethode für Pu-Bestimmung

vorgesehen. Drei ähnliche Systeme sind in der GfK, Ispra und UKAEA, Harwell in kerntechnischen Einrichtungen im Routine-Betrieb eingesetzt. Die Ergebnisse dieser Untersuchung sollen als Grundlage für die Erarbeitung von Spezifikationen für dieses Meßsystem dienen. Sie sollen dann für den Einsatz dieses Systems sowohl von EURATOM wie auch von den Anlagenbetreibern verwendet werden können. Mit den Ergebnissen dieser Untersuchungen ist Ende 1976 zu rechnen.

In dem Arbeitsausschuß für "Isotopenkorrelationen und Eingangsanalyse der Wiederaufarbeitung" wird als Teilprojekt die Prüfung von Isotopenkorrelationstechniken in einer Wiederaufarbeitungskampagne der WAK aufgenommen. In diesem Zusammenhang wurde in Ispra mit Unterstützung der TU, Karlsruhe, Ispra und RCN, Petten eine funktionsfähige Datenbank für Isotopenkorrelationen aufgebaut. Eine ähnliche Datenbank wurde auch in der IAEA (u. a. mit Unterstützung von Ispra und dem TU) zusammengestellt. Die Ergebnisse des Teilprojektes dieses Ausschusses werden Ende 76 erwartet.

Bei dem dritten Arbeitsausschuß für "Direkte Methoden" ist mit einer Bestandsaufnahme der verwendbaren Meßmethoden zum Zwecke der Bilanzierung bzw. Verifizierung begonnen worden. Als Teilprojekt ist eine Bewertung einer Meßmethode mit Hilfe von Interlaboratoriumstests vorgesehen. Da dieser Ausschuß zeitlich spät eingesetzt wurde, ist mit dem Beginn des Projektes erst Ende 1976 zu rechnen.

Das erste Informationsbulletin der ESARDA wird Mitte 1976 erwartet. Die Verantwortung für Gesamtgestaltung und Druck liegt bei der Kommission der Europäischen Gemeinschaft. Das Bulletin beinhaltet einige überwachungsrelevante Informationen der KEG und Informationen über die Arbeiten der ESARDA. Ein vom Lenkungsausschuß eingesetzter Redaktionsausschuß prüft die von den ESARDA-Mitgliedern eingereichten Beiträge.

7.1.2 F+E.-Arbeiten der ESARDA

Wie in den früheren Jahren wurden in der ESARDA die einzelnen F+E.-Beiträge der Mitglieder miteinander verglichen und koordiniert. Die Hauptbeiträge

sind in der Tabelle 7-I zusammengestellt. Aus den einzelnen Vorhaben der Mitglieder ist der allgemeine Trend für die stark anwendungsorientierten F+E.-Arbeiten zu erkennen. Bei den systemanalytischen Arbeiten handelt es sich um die Bearbeitung von Problemen, die aus den Anlagenspezifischen Anhängen entstehen (DEAC, CEN, EURATOM, GfK, RCN, UKAEA). Für die zerstörungsfreien Meßmethoden liegen die Schwerpunkte bei der Erprobung spezifisch entwickelter Systeme unter Betriebsbedingungen (DEAC, CEN, CNEN, EURATOM, GfK, RCN, UKAEA). Ähnlich sehen die Arbeiten zu den Containment- und Surveillance-Maßnahmen aus.

7.2 IAEO-Zusammenarbeit

Neben der üblichen Zusammenarbeit mit der IAEO auf zwei Ebenen (Teilnahme in IAEO-Arbeits- und -Beraterausschüssen und -Symposien einerseits und Forschungsaufträgen andererseits) begann 1975 eine vertiefte Zusammenarbeit zwischen der IAEO und dem Projekt über die "Standing Advisory Group on Safeguards Implementation (SAGSI)".

7.2.1 Arbeitsausschüsse und Symposien der IAEO

Das Projekt nahm an mehreren Arbeitsausschüssen der IAEO als Teilnehmer bzw. Berater teil. Erwähnenswert ist das "International Symposium on the Safeguarding of Nuclear Materials", das von der IAEO im Oktober 1975 in Wien veranstaltet wurde. Das Projekt war mit 9 wissenschaftlichen Beiträgen in diesem Symposium vertreten. Die Beiträge sind in Ref. 7-1 bis 7-9 nochmals geschlossen zusammengestellt.

Erwähnenswert ist auch eine Sitzung einer Beratergruppe der IAEO, die im Mai 1975 in Brünn/Tschechoslowakei stattfand und sich mit den Merkmalen und Verpflichtungen eines nationalen Überwachungssystems beschäftigte. Die im Projekt entwickelten Vorstellungen eines nationalen Systems wurden in den Empfehlungen an die IAEO von dieser Gruppe weitgehend berücksichtigt.

Die SpFK-Gruppe, KFA-Jülich, führt die F+E.-Arbeiten zur Konzeptentwicklung für Kernforschungszentren im Rahmen eines Forschungsvertrages der IAEO durch.

7.2.2 Standing Advisory Group on Safeguards Implementation (SAGSI)

In der Februar-Sitzung des Gouverneursrats der IAEA gab Generaldirektor Eklund bekannt, daß er eine ständige Gruppe zur Beratung der IAEA über die Durchführung ihrer Überwachungstätigkeiten einsetzen würde. Die Mitglieder dieser Gruppe sollen als Experten mit Zustimmung der betroffenen Regierungen von ihm für die Arbeit in dieser Gruppe berufen werden. Der Gouverneursrat schlug 10 Länder als Mitglieder dieser Gruppe vor. Diese 10 Länder mit dem derzeitigen Stand der Mitglieder der Gruppe sind in Tabelle 7-II zusammengestellt.

In der konstituierenden Sitzung im Dezember 1975 umriß Herr Eklund nochmals die Aufgabenbereiche der Gruppe:

- a) Ständige Bewertung und Bestimmung der technischen Ziele der IAEA-Überwachung um sicherzustellen, daß sie hinsichtlich der technischen Entwicklung stets ihre Gültigkeit besitzen.
- b) Bewertung der Effektivität und Leistungsfähigkeit der spezifischen operativen Überwachungsmaßnahmen, um diese technischen Ziele zu erreichen.
- c) Die IAEA beim Einsatz von Überwachungstechniken zu beraten, so daß diese dem internationalen Standard entsprechen.
- d) Wo erforderlich, Vorschläge für Bereiche, in denen weitere F+E.-arbeiten notwendig sein können, zu unterbreiten.

Die Gruppe kann Probleme, die von dem Gouverneursrat der IAEA, bzw. dem Director General oder auch von den einzelnen Mitgliedern vorgeschlagen werden, bearbeiten.

In der ersten Sitzung bat der Director General die Gruppe, Empfehlungen für signifikante Mengen von niedrig angereichertem Uran (d.h. Mengen, die aus der Sicht der Überwachung von Bedeutung sind) sowie Form und Inhalt der Berichte über Überwachungstätigkeiten der IAEA an den Gouverneursrat auszuarbeiten.

7.3 Zusammenarbeit mit einzelnen Staaten

Im Rahmen der internationalen Veranstaltungen der Japan Atomic Industrial Forum Inc. war das Projekt eingeladen worden, einen Übersichtsvortrag über die Isotopenkorrelationstechnik und ihre Anwendung zu halten /7-10/. Im Zusammenhang mit dieser Veranstaltung wurde das F+E.-Programm zur Kernmaterialüberwachung in Japan mit Vertretern des Kernforschungszentrums Tokai Mura und des Nuclear Material Control Centers diskutiert. Das F+E.-Programm wurde 1971 initiiert. Bei der Gestaltung des damaligen Programms in Japan war auch das Projekt beteiligt. Die einzelnen Grundelemente des nationalen Überwachungssystems sind im Aufbau. Ein zentrales Informationssystem für die Meldeberichte an die IAEO aus einzelnen Anlagen in Japan funktioniert schon. Mehrere zerstörungsfreie Methoden (u.a. ein Pu-Bestimmungsgerät in Brennstäben, ein Pu-Meßsystem für feste Abfälle usw.) befinden sich in kerntechnischen Anlagen in routinemäßigem Einsatz.

Es existiert ein großes Interesse in den beteiligten Kreisen in Japan, mit dem Projekt zusammenzuarbeiten.

Im Rahmen des deutsch-indischen Zusammenarbeitsabkommens wurde das Projekt gebeten, einige F+E.-Schwerpunkte im Bereich der Kernmaterialüberwachung gemeinsam mit den Vertretern des Bhabha Atomic Research Centers, Bombay, zu präzisieren. Dies geschah im November 1975. Im Zusammenhang mit dem Schwerpunktprogramm arbeitet ein Wissenschaftler von BARC im Projekt (im Institut für Angewandte Kernphysik) bei der Erarbeitung von Spezifikationen für ein Meßsystem für die Pu-Bestimmung im Abfall. Es ist vorgesehen, so ein spezifiziertes System in einer indischen Anlage einzusetzen.

Tabelle 7-I: Summary of programs of 1975 submitted to ESARDA Steering Committee meeting 1975-04-10.

item	EURATOM		GFK		CEN		CNEN		RCN		UKAEA		DAEC	
	project	objective	project	objective	project	objective	project	objective	project	objective	project	objective	project	objective
System Analysis fuel cycle	Safeguards	Support to safeguards directorate in implementation of the agreement.	Fuel cycle model.	Extension to n(>2) inventories p/a; Optimum inspection strategy for timely detection; Calculation of detection probability.							Statistics and data analyses.	Improvement of accountancy, optimization of inspection, detection of errors.		
Plants	Systems for nuclear plants.	Identification of the problems.	Facility attachments.	Studies to support plant operator.					Facility attachments.	Support to plant operators.			Implementation observation.	Definition new research.
Special topics			Fundamental systems analyses.	Quantitative assessment of containment and surveillance; Decision theory for sequential models.	Real time accountability.	Implementation in various plants.					Computerization of nuclear material accountancy.	Development and improvement of NMA. Physical inventory taking.	Report forms.	Evaluation of experience with ICR form developed by Risö. Minimization of operator workload.
Containment and surveillance	Seals for reactor fuel. Instrumentation development. Seal identification.	Application in CAMEX and GKSS, Irradiation in BWR, Development for PWR and FBR. In situ test of apparatus for seal identification. Automatic data processing.	Uranium lock. Surveillance.	Installation and tests of metal detector; Construction of total system. Tests of equipment at reactors.	Seals for reactor fuel.	Application in BR-II.	Seals for reactor fuel.	Application CNEN.	Containment and surveillance at enrichment plants.	Collaboration in field tests of US equipment in the Almelo plants.	Gamma detection.	Counting irradiated fuel elements upon discharge.	Neutron flux measurements; Thermal power measurement.	Verification of reactor operation.
Indirect methods Gamma detection	Gamma techniques.	Assay of various fuel elements; Assay of irradiated fuel.	U enrichment. Pu content. Pu isotopes.	UO ₂ enrichment of pellets in fuel fabrication. Pu in mixed oxide fuel pin. Improvement of spectrometry and data treatment.	Mixed oxide.	Experiment to determine UO ₂ /PuO ₂ in Eurochemic.	Gamma absorptiometry.	Concentration measurements of material flows.	Gamma spectrometry.	Further development of a method for isotopic composition determination without standard.	Gamma spectrometry. Gamma absorptiometry.	Improvement measurement of waste a.o. fuel materials Pu concentration under plant conditions.	Gamma spectrometry.	Verification of fresh MTR fuel; Verification of irradiated fuel.

item	EURATOM		GFK		CEN		CNEN		RCN		UKAEA		DAEC	
	project	objective	project	objective	project	objective	project	objective	project	objective	project	objective	project	objective
Neutron detection	Sb/Be system	Optimization for bulk and scrap					Pu monitor	Detection of Pu in waste.			Calibration of ISAS. Neutron methods.	Fuel and intermediate. Improvement and application		
Applicat of NDT	Combination of NDT. Development	Passive Pu-assay. Automation of NDT.	Integral experiment at isotopic enrichment plant.	Review of safeguards measurements and containment.	U enrichment.	Pellet verification; Verification of fuel bundels			Gamma spectrometry.	Analyses of various kinds of materials.	Mobile laboratory	Deployment of equipment at other sites; Physical inventory verification.		
<u>Direct methods</u>	Interlab. experiments. Reference materials. Sampling and conservation. Development mass spectrometry.	SALE, GAE, PAFEX. Preparation and characterization. In-plant techniques. Automation.	Interlab. experiments. Automatic x-ray fluorescence.	SALE, DRAGON IAEA, ESARDA. Test in WAK calibration and error determination.	Sample collection for mass spectrometry.	500 samples from fuel cycle for independent analyses (ACDA).			Interlab. experiments Mol-IV U/Pu determination Isotopic dilution	SALE, PAFEX Analyses of samples. Development of high precision titration. Simple method for U and Pu separation from irradiated fuel.		PAFEX		
<u>Isotopic correlation</u>	Experimental Theoretical Data bank	Studies of various kinds of fuels. Parametric studies; Evaluation of nuclear data. Collection of data; Development of software			Mol IV	Evaluation and compilation of results. Collection of data.	Data collection and reprocessing	Study of data from reprocessing of Th plants.	Mol IV contribution.	Elaboration of gamma spectra from fission products.				
<u>Standards</u>	Reference samples	Preparation of : HTR pebbles Al/U platelets UO ₂ /PuO ₂ pins									Standards	Calibration of instruments.		
<u>Other</u>	Training courses	General 2 week course; Training of inspectors.	Physical protection	Design of global concept; Subdivision of plants in categories; Development of essentially requirement for different categories.			Plant instrumentation.	Development and testing in reprocessing: Rotondella Eurex; TDR Hull monitor.			Plant Measurements	Flow detection and liquid depth measurements.		

Tabelle 7-II: Mitglieder der Standing Advisory Group on
Safeguards Implementation

(Stand Dezember 1975)

<u>Land</u>	<u>Mitglied</u>	<u>Zugehörigkeit</u>
Bundesrepublik Deutschland	D. Gupta	Kernforschungszentrum Karlsruhe
Deutsche Demokra- tische Republik	W. Röhnsch	Staatliches Amt für Atomsicherheit und Strahlenschutz
Frankreich	H. Guillet	Commissariat à l'énergie atomique Centre d'études nucléaires de Cadarache
Indien	M. Ramaniah	Bhabha Atomic Research Centre
Japan	R. Imai	Japan Atomic Power Company
Kanada	J. Jennekens	Licencing Directorate Atomic Energy Control Board
Mexiko	C. Castillo-Cruz	Division de Seguridad de Plantas Nucleares del Instituto Nacional de Energia Nuclear
UK	F. Brown	Department of Energy Atomic Energy Division
UdSSR	E. Levshin	Permanent Mission of the USSR to the IAEA
USA	C. Bennett	Battelle Human Affairs Research Centers
Sekretär der Standing Advisory Group	R. Rometsch	IAEA, Wien

Literaturverzeichnis zu Kapitel 7

- /7-1/ L. Koch, et al
Improvements and experience in the analysis of reprocessing samples. Intern. Symposium on Safeguarding of Nuclear Materials, Vienna, October 20-24, 1975, IAEA-SM-201/2
- /7-2/ H. Ottmar, et al
On the use of gamma-ray spectrometry for in-line measurements of ²³⁵U enrichment in a nuclear fuel fabrication plant.
IAEA-SM/201/46 (October 1975)
- /7-3/ C. Brückner, et al
Use of computerized information system for inventory taking and checking at a nuclear fuel fabrication plant with closed production lines.
IAEA-SM/201/48 (October 1975)
- /7-4/ W. Bahm, et al
Risk classification for nuclear facilities in connection with the illegal use of nuclear materials.
IAEA-SM/201/49 (October 1975)
- /7-5/ H. Krinninger, et al
Preliminary concept of a safeguards system for the LMBR-prototype SNR 300 (KKW Kalkar).
IAEA-SM/201/50 (October 1975)
- /7-6/ U. Kotte, et al
Conceptual design of a system for nuclear material control in a research centre according to the IAEA safeguards requirements.
IAEA-SM/201/51 (October 1975)
- /7-7/ R. Avenhaus
Efficiency of material accountability verification procedures - a case study.
IAEA-SM/201/77 (October 1975)
- /7-8/ S. Onnen
A computer system for accounting and control of nuclear material.
IAEA-SM/201/107 (October 1975)
- /7-9/ W. Beyrich
Considerations concerning the problem of analytical interlaboratory differences in practical safeguards.
IAEA-SM/201/109 (October 1975)
- /7-10/ D. Gupta
Isotopic correlation for accounting and control of nuclear materials in a fuel cycle. A review paper.
12th Japan Conference on Radioisotopes, November 1975, Tokyo, Japan