



KfK 2408
EUR 5752 d
Dezember 1977

Anwendung der Isotopenkorrelationstechnik in der Spaltstoffflußkontrolle

R. Berg, W. Fuhse, D. Gupta, L. Koch, H. W. Wiese
Projekt Spaltstoffflußkontrolle

Kernforschungszentrum Karlsruhe

Als Manuskript vervielfältigt
Für diesen Bericht behalten wir uns alle Rechte vor

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE GMBH

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

KfK 2408
EUR 5752d

Projekt Spaltstoffflußkontrolle

Anwendung der Isotopenkorrelationstechnik
in der Spaltstoffflußkontrolle

R. Berg¹⁾, W. Fuhse²⁾, D. Gupta⁴⁾, L. Koch³⁾, H.W. Wiese⁴⁾

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH., Karlsruhe

-
- 1) Gesellschaft zur Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen mbH.
2) Dornier System GmbH
3) Europäisches Institut für Transurane
4) Kernforschungszentrum Karlsruhe

Vorwort:

Im Oktober 1976 wurde im Kernforschungszentrum Karlsruhe ein Seminar über die Isotopenkorrelationstechnik und ihre Anwendung in der Spaltstoffflußkontrolle veranstaltet mit dem Ziel, den Stand der Arbeiten zu diesem Thema im Rahmen des Projektes Spaltstoffflußkontrolle darzustellen und eine Diskussion insbesondere mit den Überwachungsbehörden anzuregen.

Der vorliegende Bericht wurde von W. Bahm zusammengestellt und enthält die überarbeiteten Beiträge zu diesem Seminar.

zum Druck eingereicht: 3.8.1978

Inhaltsverzeichnis

	Seite
1. Zusammenfassung	1
2. Einführung D. Gupta	2
3. Anwendungsmöglichkeiten der Isotopen- korrelation in Anreicherungskaskaden zum Zweck der Spaltstoffflußkontrolle W. Fuhse	8
4. Anwendung der Isotopenkorrelationstechnik bei der Wiederaufarbeitung R. Berg	27
5. Theoretische Untersuchungen zur Isotopen- korrelationstechnik, eine Übersicht über bisherige theoretische Arbeiten H.W. Wiese	43
6. Isotopenkorrelationstechnik in der Spalt- stoffflußkontrolle L. Koch	59

Zusammenfassung

Im Zusammenhang mit der Kernmaterialüberwachung gewinnen die Isotopenkorrelationstechniken zunehmend an Bedeutung. Die F+E-Arbeiten zu theoretischen und experimentellen Untersuchungen werden im Projekt Spaltstoffflußkontrolle intensiviert. Im vorliegenden Bericht ist in vier Beiträgen der derzeitige Stand dieser Methode zusammenfassend dargestellt. Im letzten Beitrag wird auf die noch durchzuführenden F+E-Arbeiten hingewiesen.

APPLICATION OF ISOTOPIC CORRELATION TECHNIQUE TO SAFEGUARDS

Summary

The methods of isotopic correlations are gaining increasing importance in connection with nuclear safeguards. The R+D activities in this area, in the framework of the Safeguards Project, have been intensified. In this report, four papers summarize the present state of the art of these methods. The last paper indicates the areas in which further R+D work would be required.

Einführung
zum
Seminar über Isotopenkorrelationstechniken

D. Gupta
Projekt Spaltstoffflußkontrolle
Kernforschungszentrum Karlsruhe

Meine Damen und Herren!

Zum heutigen Seminar über Isotopenkorrelationstechniken möchten wir Sie herzlich willkommen heißen. Wir freuen uns, daß neben Vertretern der Kernindustrie in der Bundesrepublik Deutschland auch Vertreter von Euratom und IAEO an diesem Seminar teilnehmen.

Im Zusammenhang mit der Kernmaterialüberwachung gewinnen die Isotopenkorrelationstechniken zunehmend an Bedeutung. Die F+E.-Arbeiten zur Isotopenkorrelation werden in den nächsten Jahren im Projekt Spaltstoffflußkontrolle intensiviert. In diesem Seminar werden die bisher durchgeführten Arbeiten zur Isotopenkorrelation sowie ihre Anwendungsmöglichkeiten in 4 Kurzvorträgen dargestellt. Aus der anschließenden Diskussion hoffen wir, wertvolle Anregungen zu F+E.-Arbeiten in diesem Bereich zu gewinnen.

Im Zusammenhang mit der Kernmaterialüberwachung versteht man unter dem Begriff "Isotopenkorrelation" eine "funktionelle eindeutige Abhängigkeit einiger Isotope in einer Kernanlage von einigen Prozeßparametern bzw. von anderen Isotopen in der gleichen Anlage."

In einem kommerziellen nuklearen Brennstoffzyklus für Leichtwasser-Reaktortypen entstehen Isotopenkorrelationen an zwei Stellen (Abb. 1), nämlich in einer Urananreicherungsanlage und in einem Reaktor. Z.B. ist das Verhältnis der U-235- und U-234-Konzentration im Produkt- bzw. Abfallstrom einer

Urananreicherungskaskade nach dem Gasdiffusions-Verfahren eine eindeutige Funktion der Kaskaden-Schaltung (Abb. 2). Diese Abhängigkeit könnte man sowohl für die betriebliche Steuerung der Kaskade als auch für die Überwachung der Kaskade verwenden. In den USA sind die Arbeiten zur Isotopenkorrelation in Urananreicherungsanlagen unter dem Namen MIST (Minor Isotope Safeguards Techniques) bekannt geworden. Herr Dr. Fuhse von der Firma Dornier-System wird über diese Arbeiten sowie über andere Arbeiten, die gemeinsam von der Firma Dornier-System und dem Projekt Spaltstoffflußkontrolle der GfK durchgeführt wurden, berichten.

Die zweite Gruppe von Isotopenkorrelationen, die am ehesten einen breiten Anwendungsbereich versprechen, entsteht in Reaktoren. Verschiedene Typen von Korrelationen sind festgestellt worden. Zwei typische Beispiele sind in den Abb. 3 und 4 gezeigt. Diese Art von Korrelationen wurde für bestrahlte Brennelemente beobachtet, die nach der Entladung aus dem Reaktor in der Eingangslösung der Wiederaufarbeitungsanlage erstmals einer direkten Analyse zugänglich werden. Diese Korrelationen werden häufig routinemäßig für verschiedene Zwecke in einer Wiederaufarbeitungsanlage verwendet. Darüber berichtet Herr Dr. Berg, Gesellschaft für Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen mbH, in seinem Vortrag.

Die bisher festgestellten Isotopenkorrelationen in dem Teilbereich Herstellung-Reaktor-Wiederaufarbeitung eines Brennstoffzyklus sind aus der Erfahrung phänomenologisch im Laufe der Jahre herausgearbeitet worden. Man ist jedoch bemüht, dies theoretisch zu begründen. Herr Dr. Wiese aus dem Institut für Neutronenphysik und Reaktortechnik der GfK gibt in seinem Referat einen Überblick über die bisher durchgeführten Arbeiten zur theoretischen Untersuchung der Existenz dieser Korrelationen. Er wird auch auf die möglichen Forschungs- und Entwicklungsarbeiten, die im Institut für Neutronenphysik und Reaktortechnik durchgeführt werden können, eingehen.

Im letzten Referat des heutigen Seminars gibt Herr Dr. Koch, Transurane-Institut, Euratom, in Karlsruhe einen Überblick über die Anwendungsmöglichkeiten sowie über die Vorteile der Isotopenkorrelationstechnik für betriebliche Zwecke und zum Zwecke der Kernmaterialüberwachung. Herr Dr. Koch erläutert auch die erforderlichen Forschungs- und Entwicklungsarbeiten, die noch durchzuführen sind, um die Isotopenkorrelationstechniken in der Praxis anwenden zu können.

Es ist vielleicht erwähnenswert, daß die Isotopenkorrelationstechniken die Grundmaßnahme der Überwachung, nämlich Kernmaterialbuchführung, nicht ersetzen können. Sie sind in erster Linie als ergänzende Maßnahmen zu den schon vorhandenen drei Hauptmaßnahmen (Buchführung, räumliche Eingrenzung und Beobachtung) der Überwachung anzusehen.

Die hier gezeigten Abbildungen sind Ref. /1/ entnommen.

Referenzen

/1/ D. Gupta

Isotopic Correlation for Accounting and Control of Nuclear Materials In a Fuel Cycle. - A Review Paper -

KFK 2400 (September 1976)

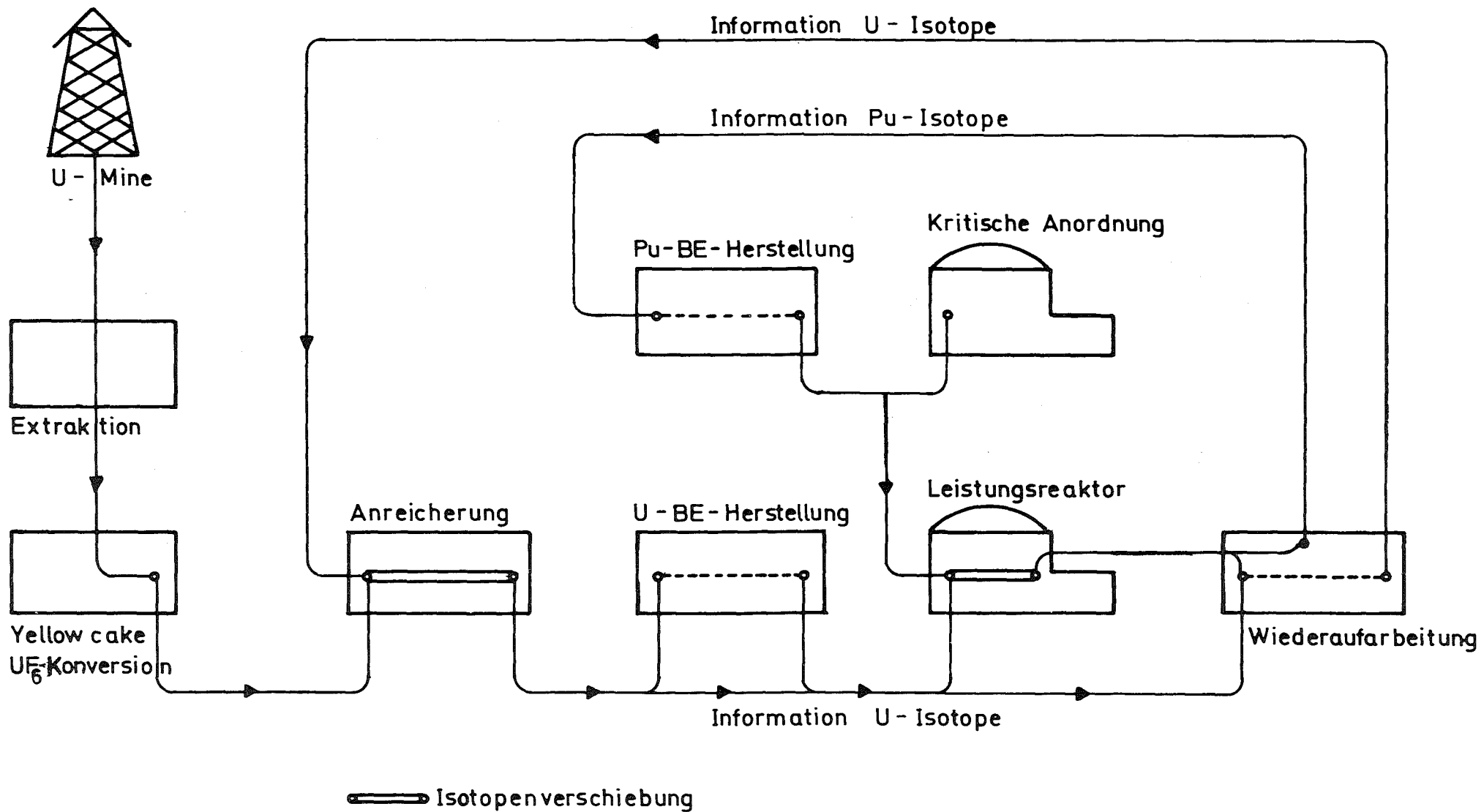


Abb.1. Informationsfluss für U/Pu - Isotope im nuklearen Brennstoffzyklus

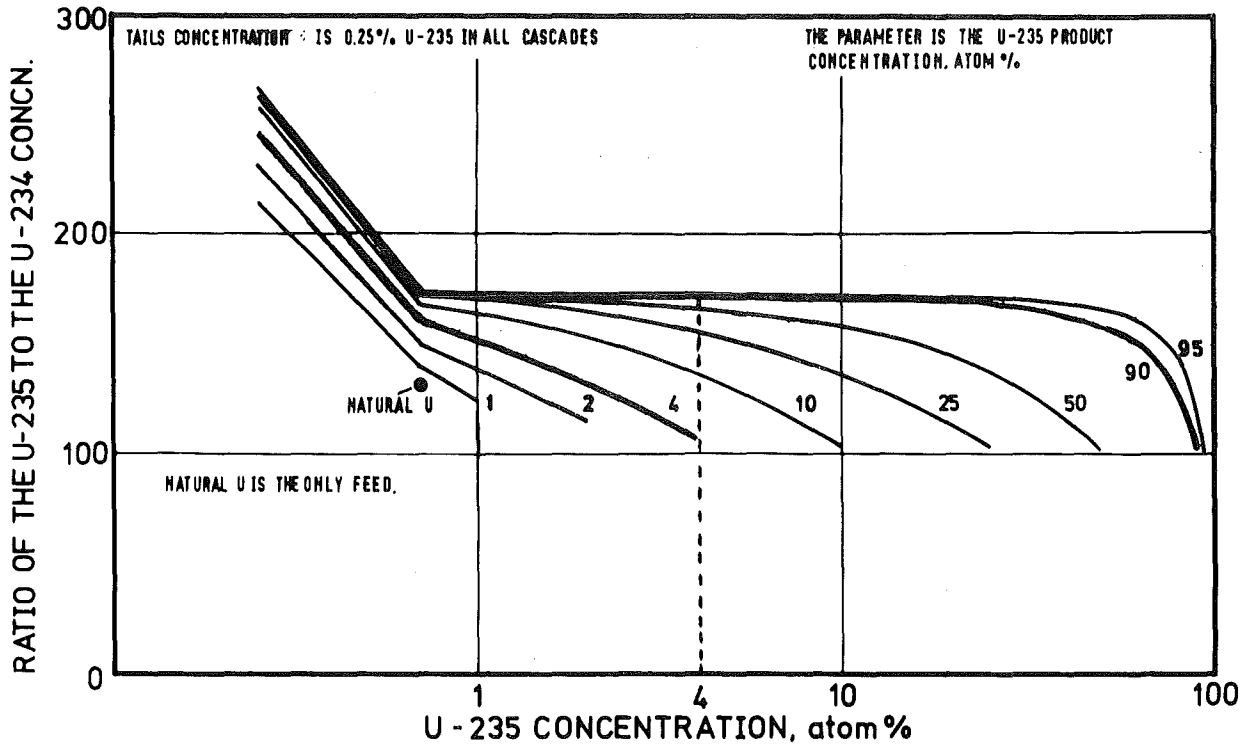


Abb. 2a THE U-234 CONCENTRATION IN IDEAL CASCADES WITH DIFFERENT DESIGN PRODUCT CONCENTRATIONS

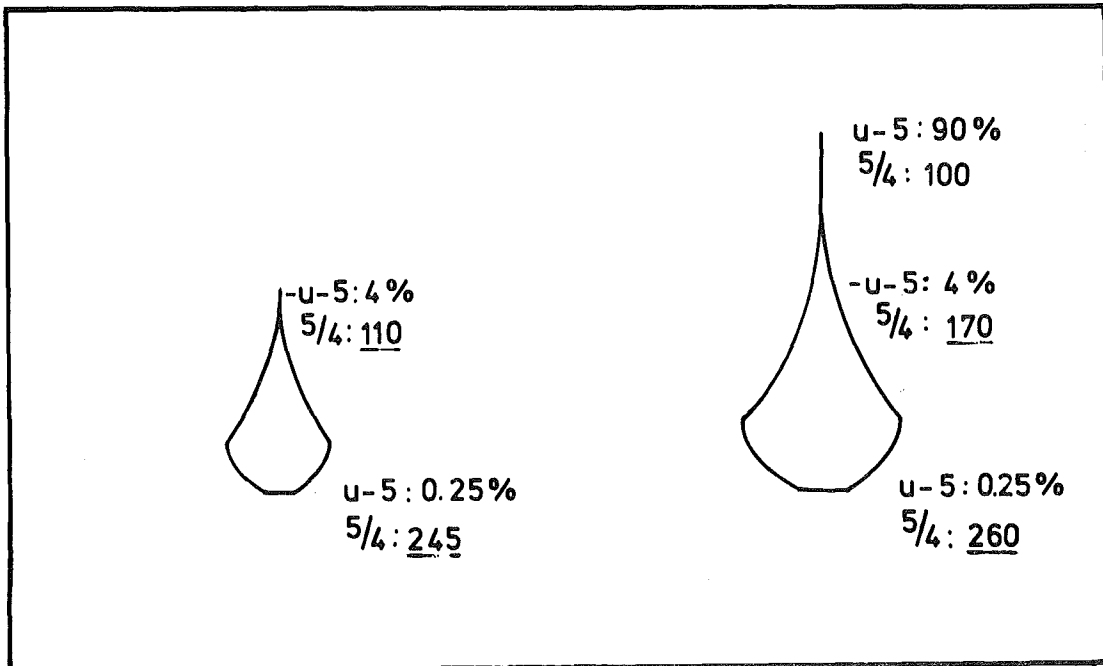


Abb. 2b CONC. RATIOS U-235/U-234 FOR DIFFERENT IDEAL CASCADES (DIFFN. PLANT)

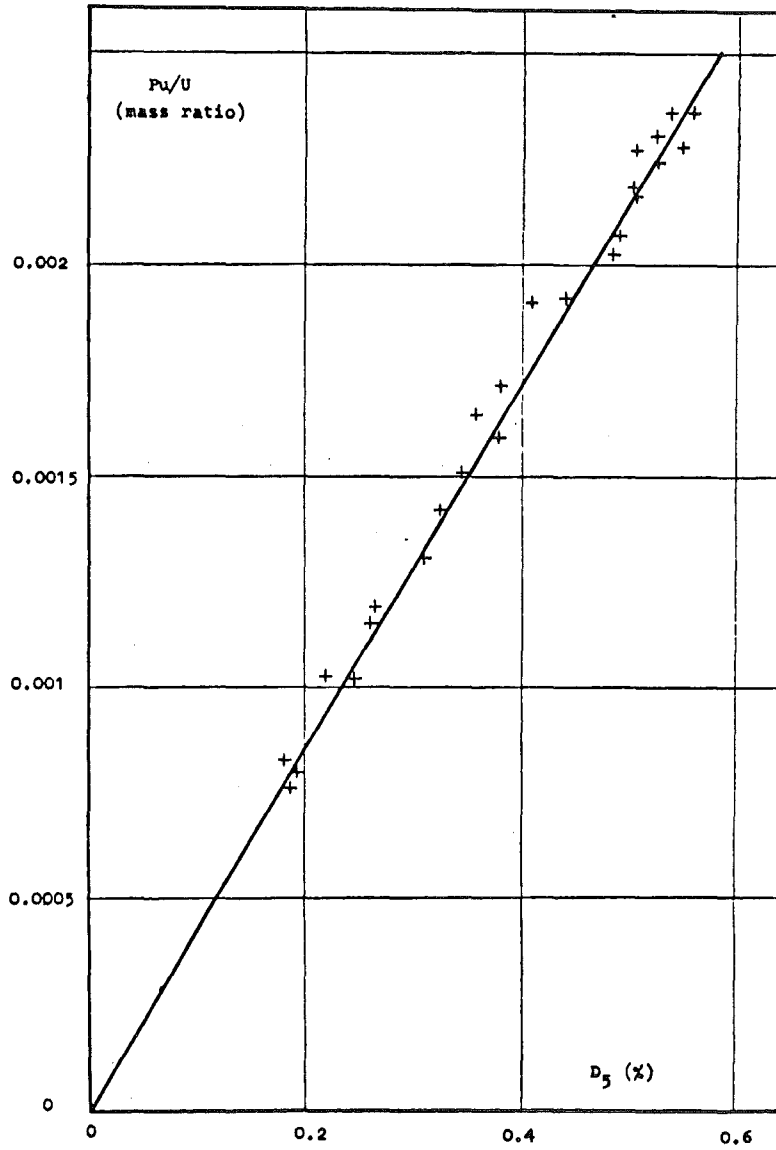


Abb. 3: Pu/U ratio versus ^{235}U depletion for Latina reactor fuel

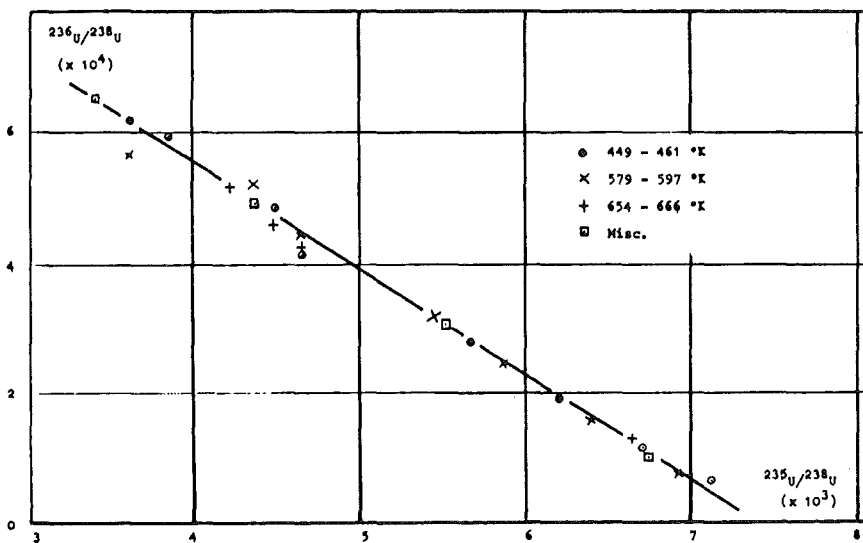


Abb. 4: $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ ratio versus $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ ratio for Chapelcross reactor fuel

Anwendungsmöglichkeiten der
Isotopenkorrelation in Anreicherungskaskaden
zum Zweck der Spaltstoffflußkontrolle

W. Fuhse

Fa. Dornier-System, Friedrichshafen

Zusammenfassung:

Die Anwendbarkeit von "Minor Isotope Safeguarding Technique" (MIST) wurde im vergangenen Jahr in einer Studie für Zentrifugenanlagen untersucht. Von Blumkin und v. Halle konnte bereits früher gezeigt werden, daß die Bilanzierung von U-234 als unterstützende Safeguards-Maßnahme bei Diffusionsanlagen anwendbar ist. Weiterhin bewiesen sie, daß andere Trennprozesse - also auch die Zentrifuge - zu den gleichen Meßwerten führen, d.h. die Effekte sind grundsätzlich nicht vom Anreicherungsgrad der Einzelelemente abhängig. Daher ist aus der U-234 Bilanzierung kein Aufschluß über die Trennfaktoren der Zentrifugen zu erwarten.

Nach unseren Untersuchungen, die qualitativ erläutert werden, wird die Anwendung der "MIST"-Technik durch die Flexibilität der An- und Abreicherungsgrade und die nichtideale Auslegung (Auf- und Abrundung der Zentrifugenzahlen, Ausfälle von Trennelementen) beeinträchtigt. Schließlich wird gezeigt, daß bestimmte Abweichungen gegenüber den Ergebnissen von Blumkin und v. Halle dadurch zu erwarten sind, daß die Trennung von U-234 gegenüber U-238 durch das Isotop U-235 beeinflusst wird. Die Isotopentrennung in dem ternären Gemisch wird für eine Hochanreicherungsanlage parametrisch behandelt und die Tendenzen werden diskutiert.

Einleitung

Die Kernmaterialüberwachung von Gas-Ultra-Zentrifugen-Anlagen ist insofern problematisch, als die Zentrifugentechnologie den Regelungen der Geheimhaltung unterliegt und deshalb nicht alle Anlagenbereiche durch die IAEA inspiziert werden können.

Unter diesen Umständen besteht auch keine Möglichkeit zu prüfen, ob die Kaskadenschaltung verändert wurde mit dem Ziel, in einem nichtdeklarierten Prozeßschritt hochangereichertes Uran herzustellen.

Diese Problematik wurde aufgegriffen und Untersuchungen dahingehend durchgeführt, inwiefern unter Ausnutzung von Isotopenkorrelationen eine Höheranreicherung von der Peripherie der Anlage her entdeckt werden kann.

Der grundlegende Effekt

Das Uran kommt nicht nur vor als Isotop U-235 und als Isotop U-238, sondern auch in geringen Spuren als U-234, das meistens nicht beachtet wird.

Außerdem gibt es in wiederaufbereitetem Uran eine Reihe von anderen Isotopen (z.B. U-236), die ebenfalls nur schwach vertreten sind. Bei der Isotopenkorrelation in Anreicherungsanlagen sollen nun gerade diese schwach vertretenen Isotope genau vermessen werden, um zusätzliche Informationen darüber zu gewinnen, ob die Anlage in der deklarierten Weise betrieben wurde.

Dabei soll der folgende Effekt ausgenutzt werden:

In Abb. 1 ist eine ideale Anreicherungskaskade dargestellt. Die Breite der einzelnen Stufen entspricht der Fläche der Diffusionsmembran in der Stufe oder der Zahl der Zentrifugen, Trenndüsen oder anderer Trennelemente. Die Breite der Stufen ist so ausgelegt, daß jedes Element (oder Flächenelement bei

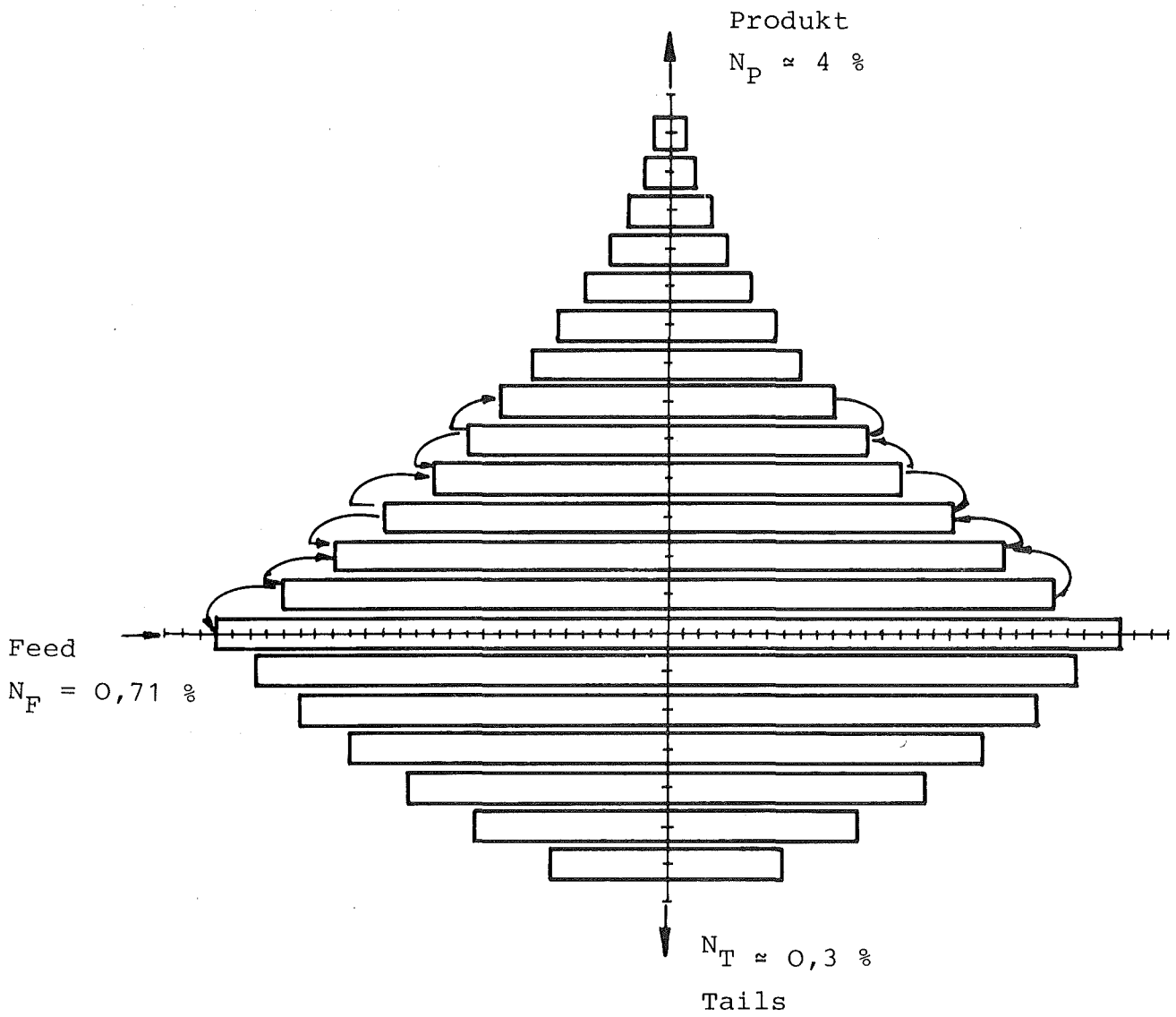


Abb. 1: Ideale Kaskade für niedrige Anreicherung

Diffusionsanlagen) den gleichen Durchsatz hat. Die Kaskadenform hat also zunächst noch nichts mit den Isotopenmischungen in den Trennelementen zu tun, es ist lediglich wichtig, in welcher Weise die Trennelemente den Urdurchsatz aufspalten in einen Massenstrom, der nach oben, und einen Massenstrom, der nach unten geführt wird.

Nun ist es wichtig, nach Möglichkeit nur solche Massenströme zusammenzufassen, die dieselbe Konzentration an U-235 haben, da sonst die Entmischungsentropie, die von den Trennelementen aufgebracht wurde, wieder teilweise verlorengeht. Oder um mehr im Fachjargon zu bleiben, da sonst Trennarbeit vernichtet wird, für die der Anreicherer schließlich bezahlt wird.

Um dies zu verhindern, wird das Massenstromverhältnis θ so eingestellt, daß es eine bestimmte Relation mit den Trennfaktoren erfüllt.

$$\theta = \frac{\beta-1}{\alpha\beta-1} \cdot \frac{1+\alpha R_F}{1+R_F} \quad ; \quad R_F = N_F / (1-N_F)$$

Wir wollen gleich vorausschicken, daß die Trennfaktoren für U-234 größer sind als für U-235, und - da ja das Isotop U-235 das interessanteste ist - wird dessen Anreicherungsfaktor das Massenstromverhältnis bestimmen. Damit ist klar, daß bezüglich des Isotops U-234 in der gezeigten idealen Kaskade Vermischungen auftreten.

Betrachten wir nun einmal die Grundstufe der Kaskade. Hier ist nur ein kleiner Teil des Gesamtdurchsatzes durch das eingespeiste "Feed"-Material gegeben. Der größte Teil des Materials kommt von den benachbarten Stufen auf die Grundstufe zu. Die Kaskade ist dabei so ausgelegt, daß für U-235 keine Mischungsverluste auftreten, d.h. alle Ströme, die hier zusammenkommen, haben die gleiche Konzentration, nämlich Natururankonzentration.

Bei dem Isotop U-234 ist dies anders, da die Kaskade für dieses Isotop nicht vermischungsfrei arbeitet. Das heißt, daß die Grundstufe eine Mischkonzentration hat, die anders ist als die Natururankonzentration.

Die darüberliegenden Stufen erhalten ihrerseits wieder Material von Stufen, die noch höher liegen, und so kann man verstehen, daß die Mischkonzentration in der Grundstufe umso mehr von der Natururankonzentration abweicht, je mehr Stufen im Anreicherungsteil der Kaskade angebracht sind.

Diese Veränderung macht sich in ähnlicher Weise auf die "Tails"-Konzentration bemerkbar. Man ist also durch die Bestimmung der U-234-Konzentration im "Tails" in der Lage zu erkennen, wieviele Stufen im Anreicherungsteil angeordnet sind bzw. auf welche U-235-Konzentration angereichert wird.

Um 10 kg auf 80 % angereichertes Material herstellen zu können, benötigt man ca. 2 t Natururan (siehe Abb. 2). Inwiefern ein Defizit von 8 kg U-235 bzw. 2 t Natururan durch Bilanzierung entdeckt werden kann, hängt vom gesamten Urandurchsatz in der Anlage und der Meßgenauigkeit ab. Besteht die Notwendigkeit, das Tails (~ 2 t) aus der Höheranreicherung in die Bilanzierung mit einzubeziehen, dann kann dies entweder durch Rückmischung zum "normalen" Tails geschehen oder der Behälter, der das Tails aus der Höheranreicherung enthält, wird den "normalen" Tailsbehältern beigelegt. Im ersten Fall wird der Effekt der Verschiebung der U-234-Konzentration, abhängig vom gesamten Urandurchsatz, verkleinert und ist ab einer gewissen Menge nicht mehr meßtechnisch erfaßbar.

Es sollte hinzugefügt werden, daß bei Diffusionskaskaden durch die "squared off" Kaskadierung (Aneinanderfügung von Linearkaskaden) im allgemeinen auch Zwischenprodukte nach außen gelangen, in denen eine U-234-Verschiebung beobachtet werden kann. Bei Zentrifugen wird man aber im allgemeinen keine Zwischenprodukte haben, da man die Kaskaden besser der idealen Form anpassen kann.

Die Ergebnisse von Blumkin und v. Halle

Diese Methode wurde seit ca. 1972 detailliert von Blumkin und v. Halle überprüft.

Blumkin und v. Halle arbeiten für Union Carbide, die ihrerseits wieder für den Betrieb der großen Diffusionsanlage in Oak Ridge, Tennessee, verantwortlich ist.

Daher ist verständlich, daß Blumkin und v. Halle in erster Linie an die Anwendung der Isotopenkorrelation bei Diffusionsanlagen dachten - zunächst für betriebliche Anwendungen, später jedoch auch für die Spaltstoffflußkontrolle.

Da aber auch in Amerika die Zentrifuge als ernsthafter Konkurrent zum Diffusionsverfahren erkannt ist, beschäftigten sich Blumkin und v. Halle auch eine gewisse Zeit mit Zentrifugenanlagen.

So erhielten sie das interessante Ergebnis, daß bei idealen Kaskaden die Verschiebung der U-234-Konzentration nicht vom Trennfaktor der Zentrifuge abhängig ist (Abb. 3, 4, 5 und 6).

Diese Ergebnisse konnten durch unsere Rechnungen aufs beste bestätigt werden.

Nun wissen wir aber, daß die tatsächlich gebauten Kaskaden bisweilen erhebliche Abweichungen von der idealen Kaskadengestalt haben (Rundungsfehler, Zentrifugenausfälle, Abweichung von den nominalen Betriebsbedingungen), so daß die Ergebnisse von Blumkin und v. Halle nur mit Einschränkungen anwendbar sind.

Außerdem mußten Blumkin und v. Halle für ihre Rechnungen annehmen, daß die Anreicherungsfaktoren von U-234 und U-235 in einem bestimmten Verhältnis stehen. Wir mußten aber - als wir die Ergebnisse sahen - davon ausgehen, daß die Trennung

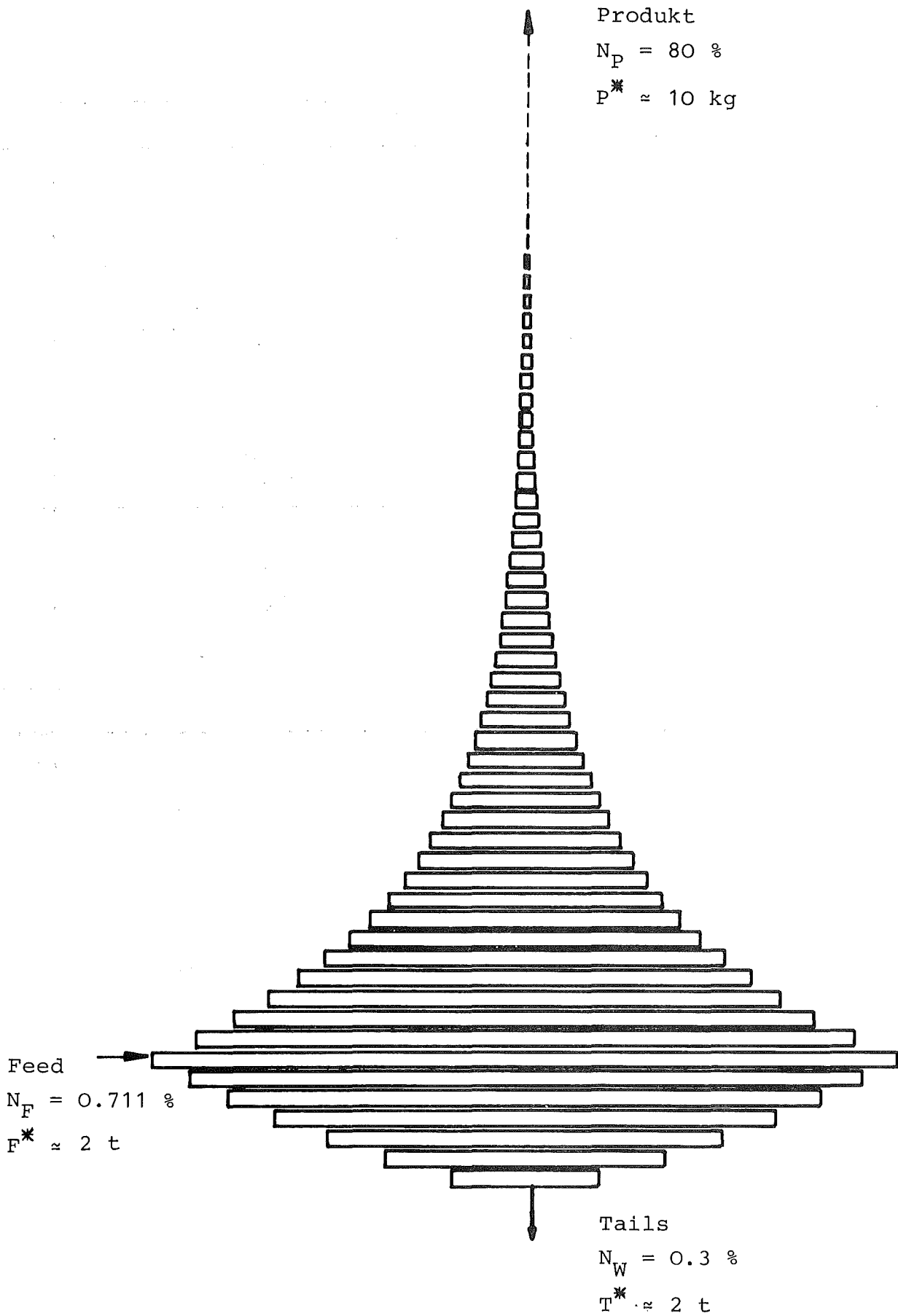


Abb. 2: Ideale Kaskade für Hochanreicherung

Verhältnis
 $\frac{U-235}{U-234}$

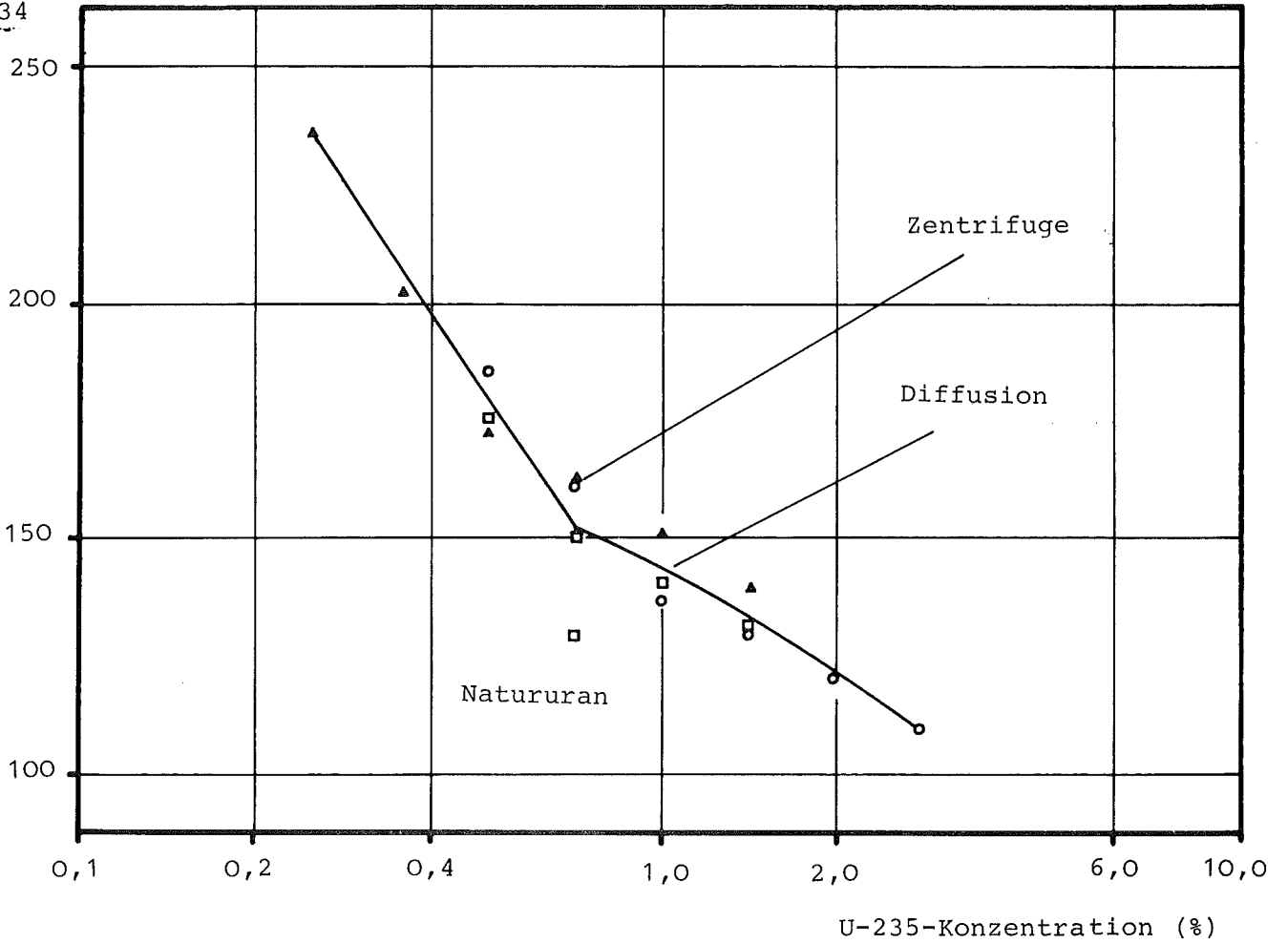


Abb. 3: Isotopenverhältnis U-235/U-234 in niedrig anreichernden idealen Kaskaden

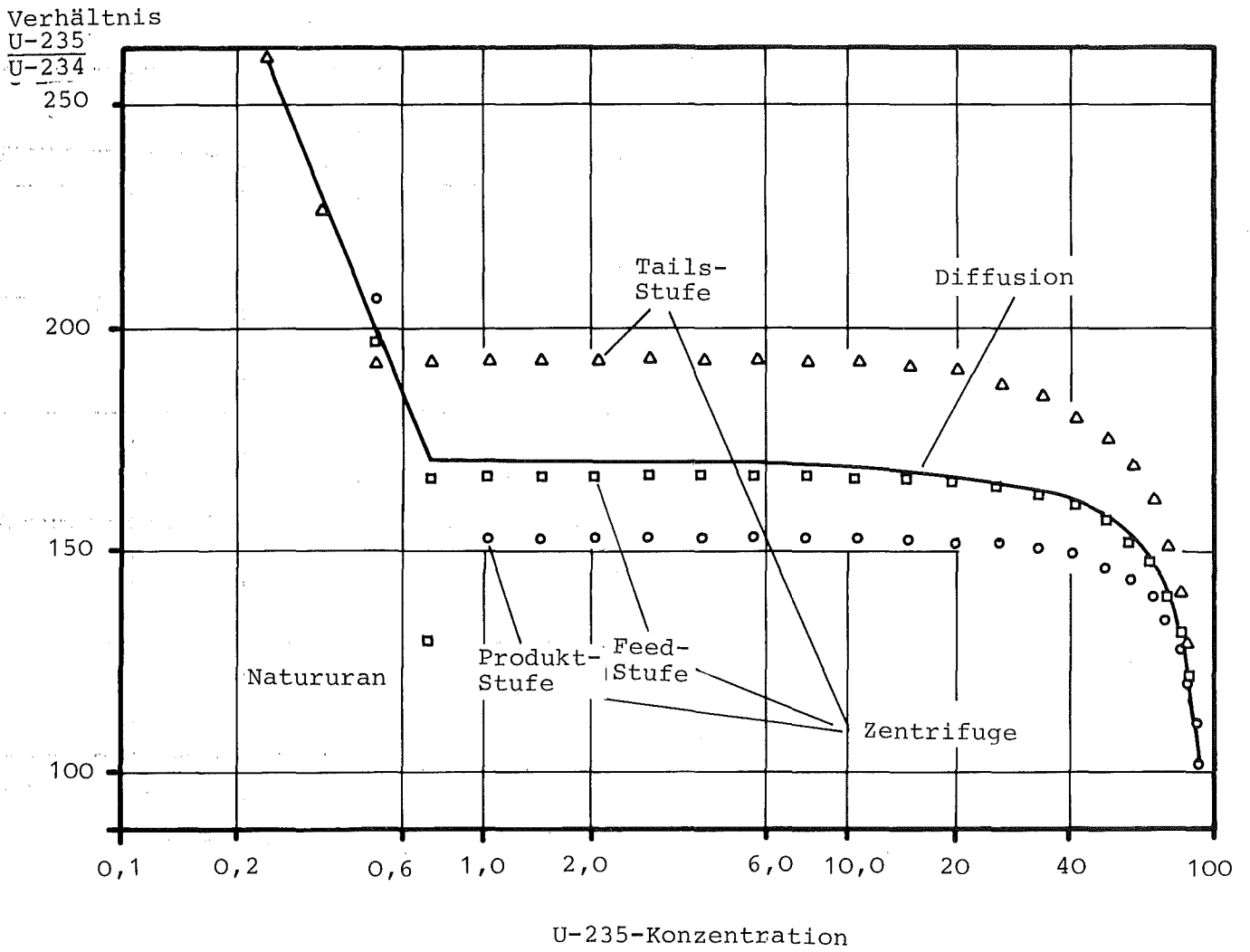


Abb. 4: Isotopenverhältnis U-235/U-234 in hochanreichernden idealen Kaskaden

Verhältnis
 $\frac{U-235}{U-234}$

Tails-Konzentration: 0,25 % U-235

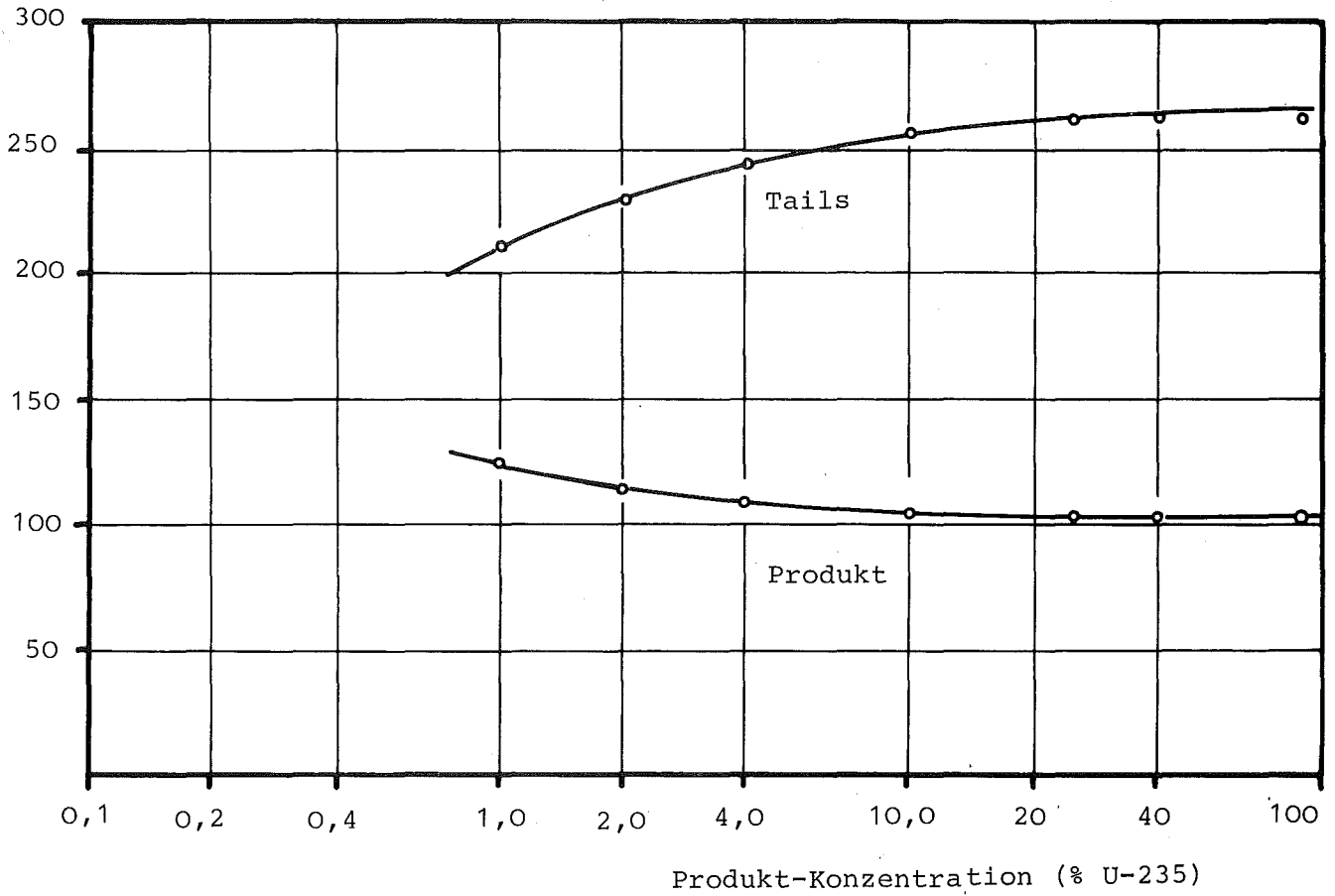


Abb. 5: Abhängigkeit des U-235/U-234-Verhältnisses am Produkt- und Tails-Ende idealer Kaskaden von der Produkt-Konzentration

¶ Produkt-Konzentration: 4 % U-235

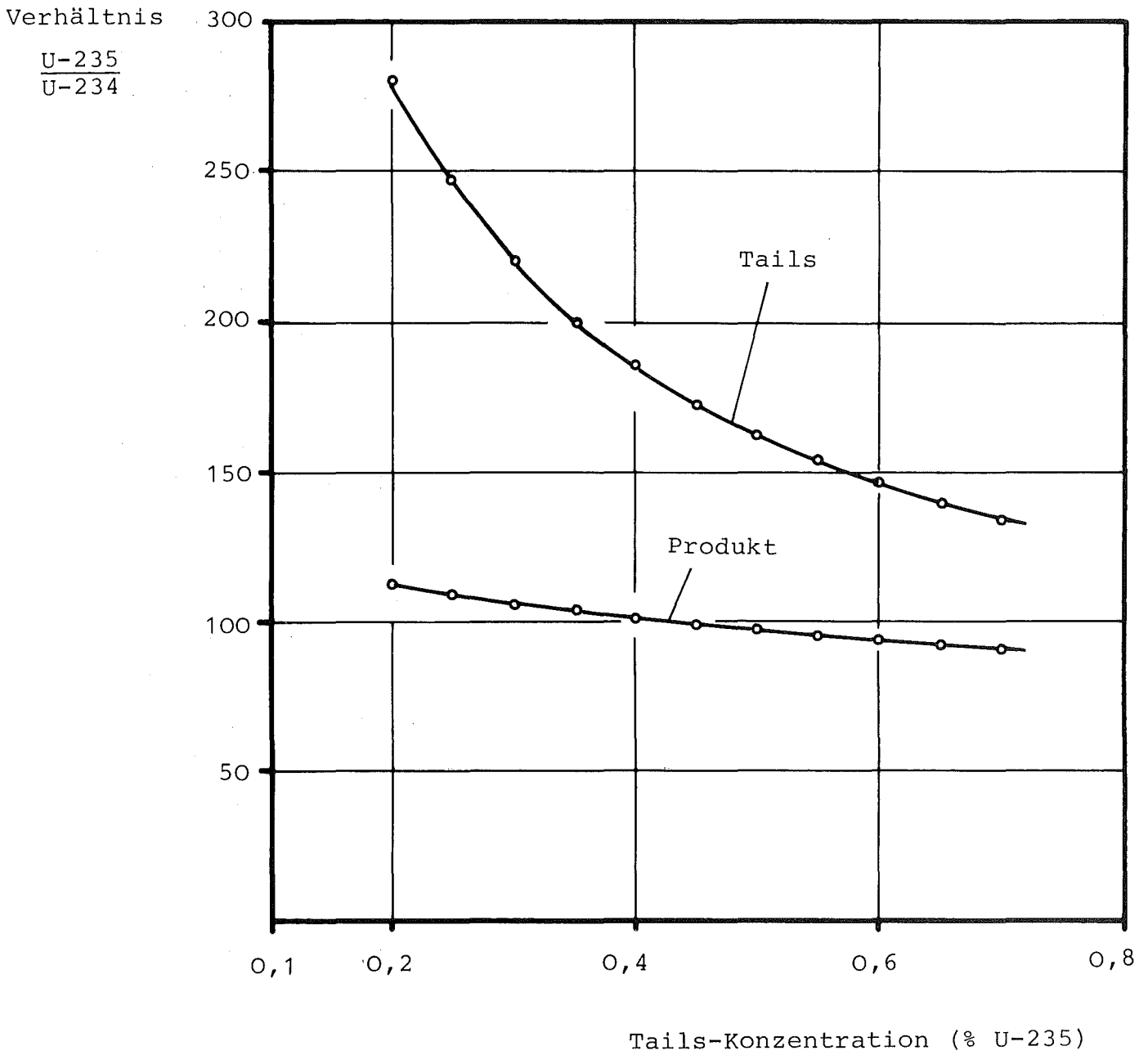


Abb. 6: Abhängigkeit des U-235/U-234-Verhältnisses am Produkt- und Tails-Ende idealer Kaskaden von der Tails-Konzentration

der U-234-Isotope (gegenüber U-238) auch von dem Anteil des Isotops U-235 abhängig ist, d.h. daß unterschiedliche Stufen in einer Kaskade andere Trennfaktoren α' β' für U-234 liefern.

Zunächst soll mit Abb. 7 darauf hingewiesen werden, daß die Zentrifuge von der Physik her wesentlich komplizierter ist als z.B. eine Diffusionszelle. So muß durch die axiale Sekundärströmung das radiale Konzentrationsgefälle, das durch die Zentrifugalkraft verursacht wird, in einen axialen Konzentrationsunterschied umgeformt werden.

Daher zeigt die Zentrifuge in ihrem Trennverhalten eine starke Abhängigkeit vom Durchsatz, wie es schematisch in Abb. 8 dargestellt ist (Fuhse, Dissertation TU Berlin, 1972).

Wir sind aufgrund der Geheimhaltungsverpflichtung nicht in der Lage, detailliert darauf einzugehen, welche Konsequenz dieses Verhalten der Zentrifuge auf die Regelbarkeit von Kaskaden hat, es ist aber bereits aus diesem Bild erkenntlich, daß Kaskaden mit vielen Stufen durch die Eskalierung der Einzeleffekte ein äußerst kompliziertes Verhalten zeigen werden.

In Abb. 9 sind einige Gleichungen zusammengestellt, die die Entmischung von U-234 in Zentrifugen behandeln. Mit N' ist die Konzentration von U-234 und mit N die von U-235 bezeichnet.

Wenn wir annehmen, daß U-235 sich im thermodynamischen Gleichgewicht befindet (Gleichheit von Druck- und Gegendiffusionsstrom), so erhalten wir als erste Näherung, daß die Entmischung von U-234 entsprechend der Potenz $1-N$ von der Konzentration des U-235 abhängt.

Liegt dagegen für U-234 thermodynamisches Gleichgewicht vor, so ist die (radiale) Entmischung unabhängig von der U-235-Komponente. Dies ist wohl der Fall, den Blumkin und v. Halle

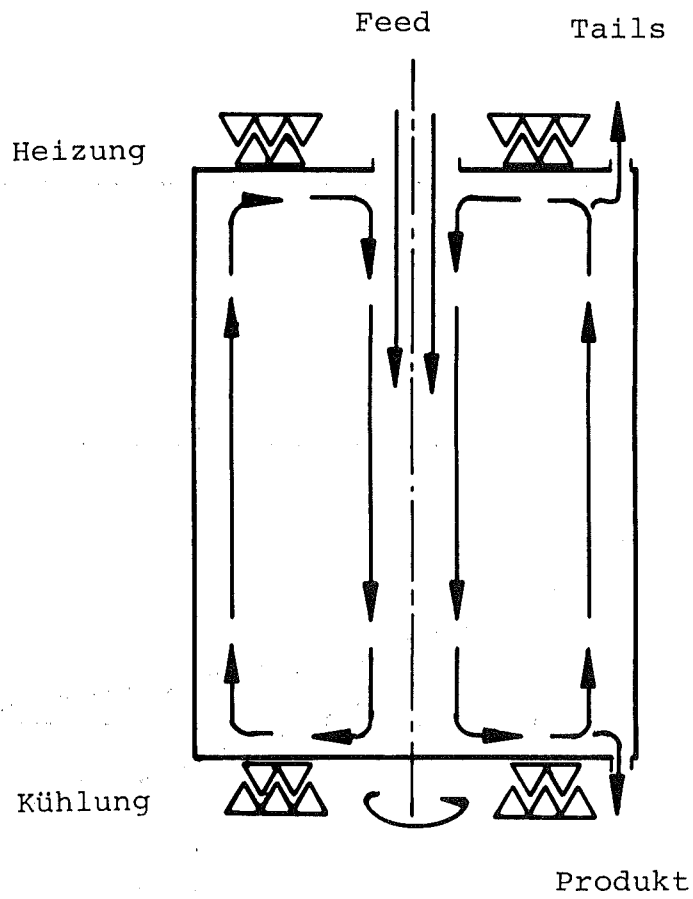


Abb. 7: Strömung in einer Gegenstromzentrifuge
(mit thermischer Anregung der Strömung)

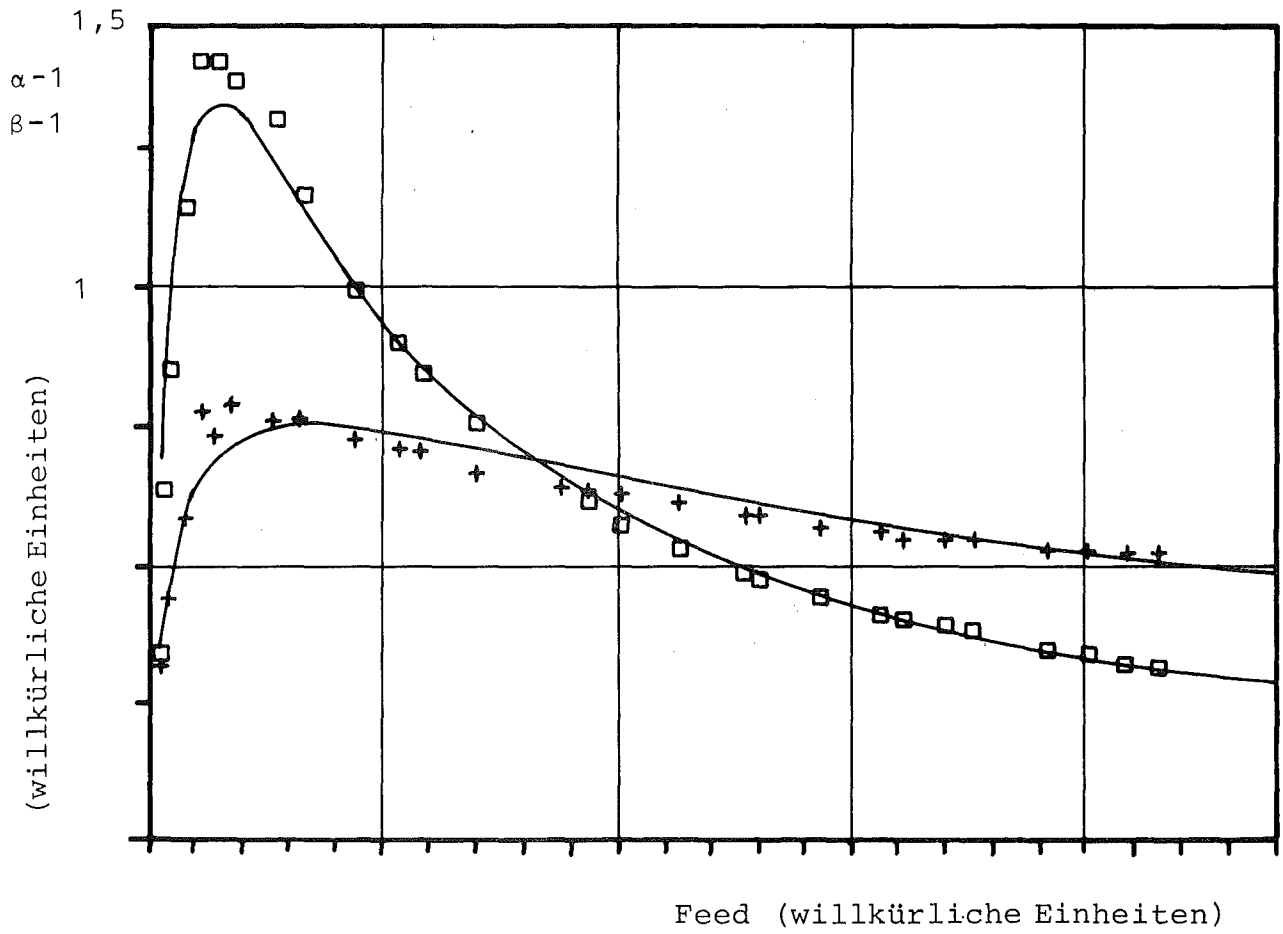


Abb. 8: Abhängigkeit der Trennfaktoren vom Durchsatz

Differentialgleichung für U-234

$$\text{div} \left\{ D\rho(1-N) \left[\frac{\Delta M_4 N' (1-N') \vec{b}}{RT} + \text{grad } N' \right] \right\} \\ + \left\{ D\rho \left[\frac{+ \Delta M_3 N (1-N) \vec{b}}{RT} + \text{grad } N \right] - \vec{v}(1-N) \right\} \text{grad } N' = 0$$

Annahme des thermodynamischen Gleichgewichts für U-235

$$\text{grad } N = - \frac{\Delta M_8 N (1-N)}{RT} \vec{b}$$

$$\alpha' \beta' = \alpha \beta \frac{4}{3} (1-N)$$

$$\alpha' \beta' = \alpha \beta \frac{4}{3} (1-qN)$$

thermodynamisches Gleichgewicht für U-234

$$\text{grad } N' = - \frac{\Delta M_4 N' (1-N')}{RT} \vec{b}$$

$$\alpha' \beta'_0 = \alpha \beta \frac{4}{3} \quad (\text{elementarer Entmischungseffekt})$$

im Auge hatten, als sie die Berechnungen für Zentrifugenkaskaden machten.

In unseren Kaskadenrechnungen haben wir zur ersten "Kontaktaufnahme" mit dem Problem einen Parameter eingeführt, mit dem diese beiden Fälle überdeckt werden können.

Die Resultate zu den Kaskadenrechnungen sind in Bild 10 dargestellt. Die Kreise repräsentieren die U-235/U-234-Konzentrationsverhältnisse im Tails einer Kaskade, die eine Produktkonzentration von 80 % liefert.

Links unten sehen wir als Dreieck das U-235/U-234-Verhältnis einer normalen Kaskade; das Rechteck beschreibt größenordnungsmäßig den Variationsbereich, der beim Ausfall von 10 % in einzelnen Stufen ermittelt wurde. Im allgemeinen sind Zentrifugenausfälle statistisch verteilt, so daß in Wirklichkeit ein kleinerer Variationsbereich zu beobachten sein sollte.

Für die hochanreichernde Kaskade haben wir für einige Stufen eine Ausfallquote von 1 % angenommen. Der dazugehörige Variationsbereich ist ebenfalls in das Diagramm eingetragen. Bei diesen Rechnungen haben wir den Parameter q mit 0 festgelegt; bei anderen Werten von q verschiebt sich der Variationsbereich etwa in der Art der eingezeichneten Kreise.

Nach dieser Darstellung sieht es so aus, als ob die Anwendung der Isotopenkorrelation selbst durch die Unsicherheiten, die bei realen Kaskaden auftreten, noch eine gute unterstützende Maßnahme der Spaltstoffflußkontrolle darstellt. Dies ist sicherlich solange richtig, wie der Betreiber sich an den nominalen Arbeitspunkt von Kaskaden hält. Unsere Untersuchungen haben jedoch gezeigt, daß bei Abweichungen von den nominalen Betriebsbedingungen gewisse Komplikationen auftreten, die die Anwendung der Isotopenkorrelationstechnik in einer gewissen Weise erschweren.

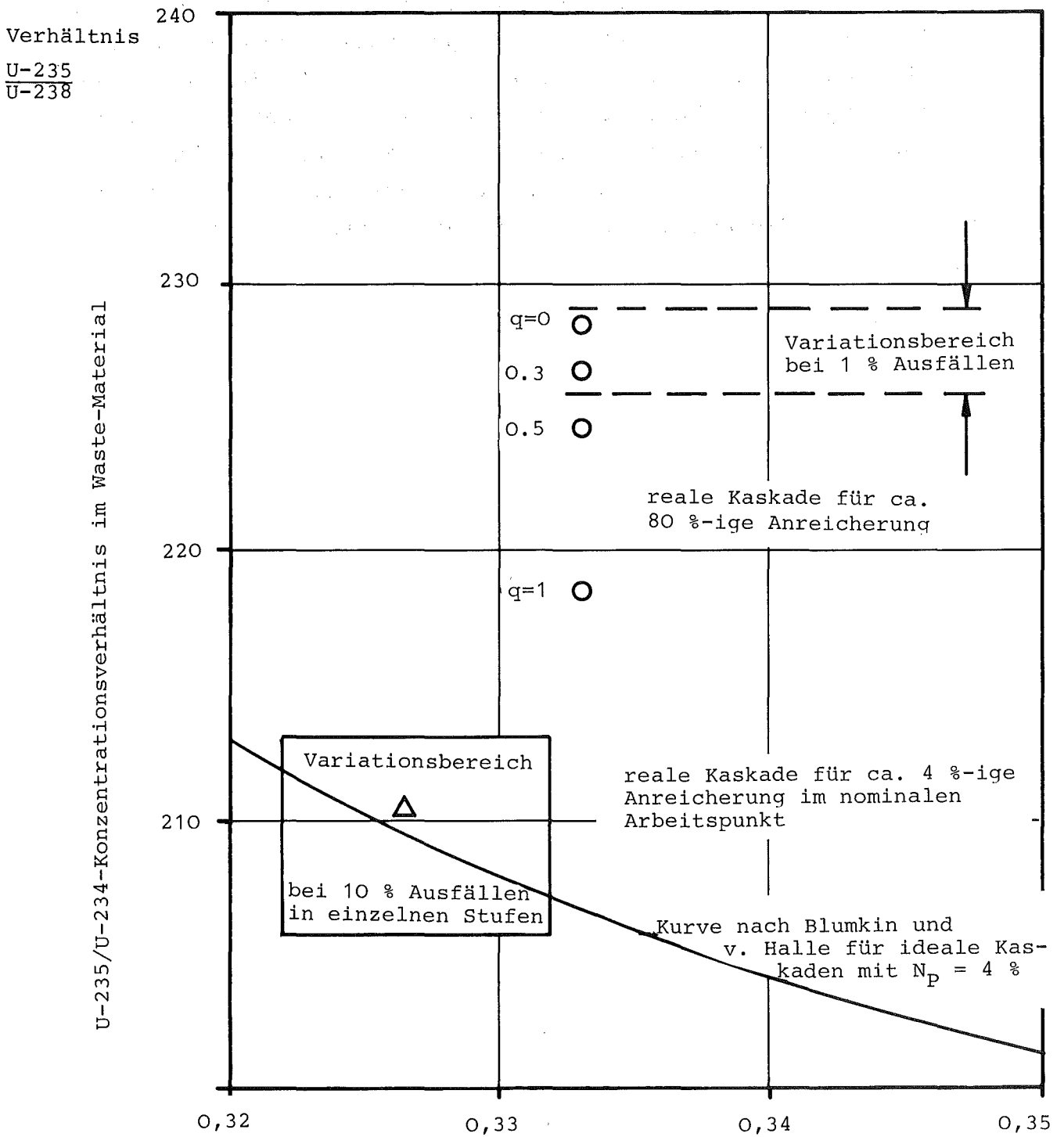


Abb. 10: Vergleich der U-235/ U-234-Verhältnisse im Tails von hoch- und niedriganreichernden Kaskaden

Wir haben vor, diese Effekte parametrisch zu untersuchen, um trotz der Wahrung der Geheimhaltungsverpflichtung Aussagen darüber machen zu können, inwieweit die "MIST"-Technik eine Entdeckung von Hochanreicherung unterstützt. Dabei ist auch zu bedenken, in welcher Weise die Aussagekraft der "MIST"-Technik durch eine Mischung des Tails-Materials der hochanreichernden Kaskade mit normalem Tails-Material verringert wird.

Anwendung der Isotopenkorrelationstechnik
bei der Wiederaufarbeitung

R. Berg

Gesellschaft für Wiederaufarbeitung
von Kernbrennstoffen mbH,
Eggenstein-Leopoldshafen

Einleitung

Bei der Bestrahlung im Reaktor entstehen wichtige und komplizierte Änderungen im Kernbrennstoff:

- Reduktion des U-235-Gehaltes wegen der Spaltung und als Folge davon Produktion von Spaltprodukten mit Massenzahl zwischen 70 und 160 verteilt über 34 sowohl aktive als auch stabile Isotope.
- Reduktion des U-235-Gehaltes wegen Neutroneneinfang und als Folge davon Produktion von U-236, Np-237, Pu-238.
- Reduktion des U-238-Gehaltes wegen Neutroneneinfang und als Folge davon Produktion von Pu-239, Pu-240, Pu-241 und Pu-242 und höherliegende künstliche Elemente wie z.B. Cm, Bk, Cf.

Jede Änderung ist abhängig von mehr oder weniger bekannten Naturgesetzen und Naturkonstanten; damit ist zu erwarten, daß Korrelationen zwischen den obengenannten Änderungen bestehen müssen.

Die Isotopenkorrelationstechnik wurde im Kontroll-Labor der Wiederaufarbeitungsanlage geboren.

Sie mußte da geboren werden und zwar aus folgenden Gründen:

- Die wichtigsten Daten der Korrelations- oder Verifikations-technik entstehen dort, routinemäßig werden aus einer Eingangsprüfung folgende Daten ermittelt:

Minimum: U/Pu-Verhältnis oder U- und Pu-Konzentration

U-Isotopenzusammensetzung

Pu-Isotopenzusammensetzung

γ-aktive Spaltprodukte wie Zr/Nb-95

Cs-137

Cs-134

Ru-106

Ru-103

Zusätzlich können andere γ -aktive Spaltprodukte ermittelt werden (z.B. Sb-125/Te-125, Sr-90 (β -Emitter)) und im Prinzip jedes aktive oder inaktive Nuklid, das in der Lösung vorhanden ist. Oft wird Nd-148 massenspektrometrisch bestimmt und als Abbrandmonitor verwendet. Auch Transplutoniumnuklide können bestimmt werden (Cm, Cf).

- Shipperangaben und die gefundene Menge Spaltmaterial in der WA-Anlage stimmten in den vergangenen Jahren nicht oft überein, und obwohl sich die Übereinstimmung verbessert hat, gibt es auch heute Unterschiede, die für die Zukunft eliminiert werden müssen.

In der WA-Anlage versucht man ununterbrochen, Bilanzen zu erstellen. Leider stimmten diese Bilanzen nicht immer und wir müssen zugeben, daß es auch heute einige Schwierigkeiten gibt. Daß wir heute wahrscheinlich wissen, wovon diese Schwierigkeiten stammen, ändert diese Tatsache nicht.

Wenn der Reaktorbetreiber informiert wurde, daß er die gebildete Plutoniummenge mit 5 % oder mehr überschätzt hatte, protestierte er und meinte, daß der Wiederaufarbeiter - sprich Analytiker - sich vertan hatte.

Noch schlimmer war die Lage intern zwischen dem Anlagenbetreiber und dem Analytischen Labor. Der Betreiber "wußte", daß seine Produktmengen in Ordnung waren, er behauptete natürlich auch, daß er keine (oder nur geringfügige) Verluste hatte, und wenn in der Bilanz MUF-Werte auftauchten, war er davon überzeugt, daß die Eingangsanalyse nicht richtig war. Wir wissen und wußten natürlich alle, daß die Eingangsanalyse nicht die einfachste ist - im Gegenteil wahrscheinlich zu den schwierigsten Analysen überhaupt gehört.

Jeder Analytiker weiß, daß selbst die einfachste Analyse daneben gehen kann, und als Folge davon hat er sich von Anfang an extrem bemüht mit der Eingangsanalyse.

Damit war die Grundlage für Verifikations- oder Korrelations-technik gelegt (als analytische Selbstverteidigung):

- Jede Bestimmung wurde mindestens in Duplikat gemacht und statistisch überprüft,
- Standards für Konzentrationsbestimmung und Isotopenanalysen wurden immer regelmäßig mitgeföhren,
- Vergleiche mit Shipperangaben und früheren Daten von demselben Reaktor - oder ähnlichen Reaktoren - wurden gemacht,
- Interlabvergleiche wurden initiiert und durchgeführt, damit Fehlerquellen und Leistungsmerkmale bekannt wurden.

Historische Entwicklung

Bis heute liegen veröffentlichte Korrelationsdaten von 17 Reaktoren vor; davon sind 5 Druckwasserreaktoren (4 leichtwasser- und 1 schwerwassermoderierter), 8 Siedewasserreaktoren, 3 Gas-Graphit-Reaktoren und ein Forschungsreaktor.

Bei der WAK liegen noch nicht publizierte Daten von zusätzlichen Reaktoren vor, beabsichtigt wird eine zukünftige Veröffentlichung der Resultate.

Vier WA-Anlagen haben Daten zur Isotopenkorrelation geliefert:

- Nuclear Fuels Services (U.S.A.)
- Eurochemic (Belgien)
- WAK (Deutschland)
- Windscale (England).

Mehrere Safeguardsexperimente wurden durchgeführt, wobei Isotopenanalytik Teil des Experiments war.

- In U.S.A. wurden mehrere Reaktoren von Battelle Memorial untersucht (NFS - West Valley Plant)
- Bei der EUROCHEMIC-Anlage in Belgien sind 4 Safeguards-experimente (MOL-I-MOL-IV) durchgeführt worden. Mol I bis Mol III wurden von GfK/Projekt Spaltstoffflußkontrolle initiiert und koordiniert in enger Zusammenarbeit mit CEN/SCK in Mol, EUROCHEMIC und Euratom, Luxemburg.
- Das Mol-IV-Experiment wurde von CEN, SCK des Belgischen Kernforschungszentrums initiiert und koordiniert.

Besonders wichtig scheint mir das IDA-72-Experiment (Isotope Dilution Analysis), wo 22 verschiedene Labors Isotopen- und Konzentrationsbestimmungen auf echte Eingangslösungen des Reaktors TRINO durchführten.

Die Ergebnisse sind im KFK-Bericht 1100 publiziert und jeder, der sich mit Isotopenkorrelationstechniken befaßt, sollte diesen Bericht intensiv studieren.

Bei der Eingangsanalyse entstehen routinemäßig die folgenden Datenmengen:

U	Pu	
U ₄	Pu ₈	
U ₅	Pu ₉	
U ₆	Pu ₀	
U ₈	Pu ₁	
	Pu ₂	
Cs ₇	Ru ₆	Zr ₉
Cs ₄	Ru ₃	Ce ₄
(Sb·125)	(Sr·90)	
(Nd·148)	(Kr, Xe)	

(Np, Am, Cm, Cf)

Gekoppelt mit Volumen- oder Gewichtsmessung der Gesamtcharge können Gesamtmenge Uran bzw. Plutonium pro Elementeinheit berechnet werden. Ich brauche wohl nicht zu sagen, daß in dieser Analyse eine Fülle von Information steckt.

Der Reaktor liefert dem Wiederaufarbeiter bzw. dem Safeguardsinspektor die folgende Information:

Vor der Bestrahlung

U^0
 U_5^0

Nach der Bestrahlung

Gesamt U / Element)
 U_5)
Pu) berechnet
Abbrand)

Zusätzliche Angaben

Bestrahlungsgeschichte = Reaktorhistogramm
Bestrahlung
Entladedatum - Kühlzeit

Damit können wir zuerst folgende Vergleiche durchführen:

Eingang WA

$$\begin{aligned} U_{5h} - U_R &= \Delta U \\ Pu_{5h} - Pu_R &= \Delta Pu \\ U_{5h}^5 - U_R^5 &= \Delta U^5 \end{aligned}$$

WA-interne Vergleiche

$U_{Eing} - U_{Aus}$) Erst nach
 $Pu_{Eing} - Pu_{Aus}$) Kampagnenabschluß
 $U_{Eing}^5 - U_{Aus}^5$) möglich!

Vergl. Shipper-Receiver

Ausgang WA

$$\begin{array}{l} U_{Sh} - U_R \\ Pu_{Sh} - Pu_R \\ Iso_{Sh} - Iso_R \end{array}$$

Später, wenn eine WA-Kampagne zu Ende geführt ist, können die interne Bilanzierung und weitere Vergleiche mit dem Abnehmer vom U- und Pu-Endprodukt durchgeführt werden.

Ich glaube, daß ich keine Geheimnisse verrate, wenn ich jetzt sage, daß diese Vergleiche meistens nicht stimmen.

Meistens stimmen die Uranvergleiche, also $\Delta U = \pm 0$.

Das ist eine erste Kontrolle, daß die Messung vernünftig gelaufen ist.

Dann wird festgestellt, daß $\Delta Pu > 0$ ist.

Frage: Ist die Pu-Messung daneben gelaufen? Oder hat der Reaktor die produzierte Pu-Menge falsch abgeschätzt?

Der nächste Vergleich könnte eine Andeutung geben: wenn $\Delta U_5 < 0$ ist, hat der Reaktor seinen Abbrand überschätzt.

Qualitativ ist eine Übereinstimmung da, aber der Wiederaufarbeiter möchte gern eine größere Sicherheit haben, der Analytiker möchte gern eindeutige Beweise liefern, daß seine Analytik in Ordnung ist.

Diese Sicherheit und diese Beweisführung ist meines Erachtens möglich, wenn man sich die Mühe macht, die vorhandenen Eingangsdaten zu korrelieren und zu vergleichen. Diese Korrelationsanalyse und Verifikation ist bei WAK jetzt ein wichtiger Teil unserer Qualitätskontrolle.

Hier möchte ich gern sagen, daß bei WAK so eine Qualitätskontrolle relativ leicht durchführbar ist, weil unsere Auflösungskapazität genau einem halben Druckwasserreaktor-Element entspricht und genau 1 1/2 Siedewasserelementen.

Die Eingangsanalyse sieht folgendermaßen aus:

Kontaminations- gefahr		Eichungsfehler möglich
	(1) Behälterhomogenisierung	
	(2) Behältervolumen bzw. -gewicht	X
X	(3) Probennahme	
X	(4) Dichtebestimmung	X
X	(5) Aliquotierung	X
X	(6) Verdünnung	X
X	(7) Aliquotierung	X
X	(8) Spikezugabe	X
X	(9) Chemische Trennung	
	(10) Filamentierung	
X	(11) Massenspektrometrie	X

Jede Eingangsanalyse wird mindestens in Duplikat durchgeführt, das bedeutet für den Druckwasserreaktor, daß jedes Element mit mindestens 4 U, 4 Pu und 2 Isotopenbestimmungen je U und Pu charakterisiert wird; d.h., daß für eine Kampagne mit 15 t Uran und 130 kg Pu in der WAK

100 Eingangschargen

gemessen werden.

Der analytische Aufwand ist etwa wie folgt:

220 U-Bestimmungen
220 Pu-Bestimmungen
100 U-Isotopenanalysen
100 Pu-Isotopenbestimmungen

Zusätzlich werden etwa

50 U-Standards
50 Pu-Standards

50 Pu-Isotopenstandards

50 U-Isotopenstandards

gefahren.

Als Vergleich habe ich WAK mit KEWA verglichen, unter der Annahme, daß KEWA eine Eingangscharge pro Tag hat.

Ich habe diesen Vergleich gemacht, um zu zeigen, welche statistischen Vorteile eine Kleinanlage gegenüber einer Großanlage hat und wie geeignet eine Kleinanlage ist, um IC-Daten zu erstellen.

Es ist auch deutlich, daß eine Großanlage sich systematische Fehler in der Eingangsanalyse nicht leisten kann. Deswegen habe ich in dieser Figur den QC-Aufwand einer Großanlage nicht aufgezeichnet.

Wenn weitere Elemente aus derselben Reaktorcharge in einer Kampagne aufgearbeitet werden, sind dies Grundlagen für eine intensive, aber leider arbeitsaufwendige Kontrolle.

Anhand einiger Beispiele möchte ich gern versuchen zu beweisen, welche potenten Werkzeuge wir zur Verfügung haben.

Zuerst möchte ich einige Korrelationen rekapitulieren, die sich als sehr nützlich erwiesen haben:

$$\frac{\text{Pu/U}}{D_5}$$

$$\frac{\text{Pu/U}}{\text{Pu}^0}$$

$$\frac{\text{Pu/U}}{\text{Abbrand}}$$

$$\frac{D^5}{\text{Pu}^0}$$

$$\frac{\text{Pu/U}}{U_5}$$

$$\frac{D_5}{\text{Pu}^8/\text{Pu}^0}$$

$$\frac{\text{Pu/U}}{U_6}$$

Pu/U gegen Abbrand

Wenn diese Korrelation nicht stimmt, gibt es mehrere mögliche Erklärungen:

- 1 - Pu-Analyse nicht korrekt
- 2 - U-Analyse nicht korrekt
- 3 - Abbrand nicht korrekt
- 4 - Pu-Recycleelement
- 5 - Auflöser hatte Restmengen von Spaltmaterial

Wenn die Duplikatanalyse übereinstimmende U- und Pu-Resultate gibt, wissen wir, daß U- und Pu-Bestimmung stimmt.

Wenn nicht, müssen Wiederholungen durchgeführt werden und sehr oft wissen wir, welche Bestimmung fehlerhaft war, dabei können wir den Wiederholungsaufwand gering halten.

Ob die Abbrandangabe nicht korrekt war, kann mit der Isotopenzusammensetzung des Urans (vorausgesetzt, daß die Anfangsanreicherung korrekt war!) und/oder des Plutoniums verifiziert werden.

Liegt ein Pu-Recycleelement vor, muß es anhand der Pu-Isotopenanalyse erkennbar sein.

Wenn im Auflöser Restmengen von Spaltmaterial vorhanden waren, stimmen zwar U/Pu-Verhältnisse und Isotopenverhältnisse, aber nun haben wir Schwierigkeiten mit dem Shippervergleich.

Ähnliche Überlegungen treffen für jede Korrelation zu.

Versuchen wir jetzt als Gedankenexperiment, etwa 10 % des Tagesdurchsatzes von Pu abzuzweigen, indem wir unsere Eingangsbestimmung verfälschen.

Setzen wir voraus, daß der in Frage kommende Reaktor von vorhergehenden und/oder nachherkommenden Chargen gut charakterisiert werden kann (z.B. aus historischen Daten).

Können wir einfach allein eine zu niedrige Pu-Konzentration anbieten? Die Antwort ist nein.

Mit einer zu gering angegebenen Pu-Menge bekommen wir ein verkleinertes Pu/U-Verhältnis und die erste Frage, die ein Inspektor sich stellt: "Ist die Abbrandangabe des Reaktors falsch?" Diese Frage überprüft man sehr schnell, indem man die Isotopenverhältnisse für Uran und Plutonium untersucht und korreliert. Die Frage muß dann gestellt werden: Wurde die U-Menge dann zu hoch gefunden? Hier ist die Antwort zu finden in dem Vergleich zwischen Reaktor und Wiederaufarbeiter. Ein Leichtwasserreaktor kennt heute seine Elemente sehr gut, und ein 10%iger Fehler in der Uranangabe ist ausgeschlossen.

Man kann natürlich den U-Wert am Eingang auch verfälschen, aber dann müssen weitere Maßnahmen getroffen werden, um diese recht große Uranmenge unentdeckt wegzubringen.

Jetzt versuchen wir gemeinsam mit dem Reaktor eine Abzweigung des Plutoniums. Brennelement-Anfangsdaten können nur schwer verfälscht werden, dazu muß der Brennelementhersteller auch mitspielen, d.h. die U-Menge des Elements ist gut bekannt. Also bleibt es uns nur übrig, Abbrandangaben zu ändern. Damit ist ein geringeres Pu/U-Verhältnis erklärt, und Pu könnte dementsprechend abgezweigt werden.

Aber nein; Abbrandangaben müssen auch mit U- und Pu-Isotopenzusammensetzung korrelieren, es genügt nicht die Analytische Verfälschung des Pu-Resultates, wir müssen auch U-Isotopenzusammensetzung und Pu-Isotopenzusammensetzung verfälschen.

Nehmen wir jetzt an, daß der Safeguards-Inspektor kommt und nach einer Probe zur Kontrolle fragt. Man erklärt ihm, daß leider bekannte Mengen U und Pu aus alten Lagerbeständen re-

zykliert wurden, so daß das Pu-U-Verhältnis nicht mehr repräsentativ ist.

Dann besteht keine Kontrollmöglichkeit mehr über U- und Pu-Analysen. Aber angenommen, daß Endprodukte "rezykliert" worden waren, ist es immer möglich, aus den Verhältnissen Cs 137 / Cs 134, Cm 242 / Cm 244, Ru-106 / Ru-103 Aussagen über Abbrände und Kühlzeiten zu bekommen.

Sehen wir uns Abb. 1 an.

Die Parallelität ist erstaunlich gut und ermöglicht eine recht schnelle Überprüfung der Daten.

Bei den heutigen Leichtwasserreaktoren liegen die Abbrände der Elemente sehr eng zusammen, aber die Linearität ist festgestellt und die Anfangsanreicherung gut bekannt.

Ich möchte gern ein instruktives Beispiel geben:

Bei der WA-EUROCHEMIC wurde von einem bestimmten Druckwasserreaktor Kampagne gefahren und wir haben diese Kurven erstellt. Vertrauensbereiche wurden bestimmt und alles lief bestens. Bis eine Charge außerhalb dieser Kurve fiel. Die sofort unternommene Wiederholung bestätigte die erste Messung, und der Punkt blieb störend abseits liegen.

Um die Aufklärung dieses Problems verstehen zu können, muß ich etwas über die Anlage erzählen.

Der Auflöser hatte 3 Positionen, in jeder Position wurde ein PWR-Element eingesetzt. Eine Auflösercharge war gleich ein Eingangsbehälter, also könnten wir die vorher erwähnten Vergleiche mit dem Shipper durchführen.

Wir haben uns die Elementangaben des Reaktors beschafft und den Beladungsplan des Auflösers.

Auf den ersten Blick schien alles in Ordnung zu sein, bis wir entdeckten, daß aus den 45 Elementen einige eine höhere Anfangsanreicherung hatten.

Die Hauptmenge der Elemente hatte eine Anfangsanreicherung von 2,8 gew. % U-235, aber einige (ich glaube, es waren 5) hatten 3,1 gew. % U-235 als Anfangsanreicherung.

Die fünf Elemente waren am Kampagnenende aufzulösen.

Was passiert, wenn eine Verwechslung zwischen 2 Elementen stattfindet?, fragten wir uns.

Es war relativ leicht, einige Berechnungen durchzuführen, wo alle Verwechslungsmöglichkeiten berücksichtigt wurden. Dabei stellten wir fest, daß wenn ein Element mit der höheren Anreicherung mit 2 Elementen mit der niedrigeren aufgelöst wurde, der gefundene Kurvenpunkt sich wie festgestellt verschieben müßte.

Weitere Untersuchungen stellten fest, daß die in Frage kommenden Elemente sich in einem gemeinsamen Transportbehälter befunden hatten. Also war ein Verwechslungsfehler bei der Beladung oder Entladung der Behälter relativ leicht möglich.

Jetzt haben wir geduldig gewartet, bis die Kampagne zu Ende war, um den endgültigen Beweis zu bekommen; und in der Tat - bei den höher angereicherten Elementen stimmte die Korrelation wie erwartet auch nicht.

Die Bilanz stimmte, der Reaktor war zufrieden und wir auch.

Ein zweites Beispiel aus der Praxis:

Ein Reaktor mit geringem Abbrand wird aufgearbeitet.

Die Prozeßkontroll-Analysen der ersten EingangschARGE liegen vor. Große Überraschung, wenn wir ein Pu/U-Verhältnis finden, das einem Abbrand von mehr als 10.000 MWd/t entspricht.

Das Schichtlabor hat auch α -spektrometrische Bestimmungen gemacht, und wir sehen uns die Spektren an:
Es ist eindeutig feststellbar aus dem $\text{Pu}^8/\text{Pu}^{9+0}$ Verhältnis, daß das Plutonium von hoch bestrahltem Uran stammt, aber nicht von Abbränden über 10.000 MWd/t, sondern in der Gegend von etwa 6000 bis 9000 MWd/t.

Es stimmt also vorne und hinten nicht, aber wir können schon auf der Basis von historischen Daten, der Geschichte der WA-Anlage und Anlagenkenntnissen eine Hypothese aufstellen.

Plutonium hatte sich in der Anlage akkumuliert und tauchte jetzt im Auflöser auf.

Diese Hypothese wurde später eindeutig bewiesen mit der Isotopenzusammensetzung des Urans (Abbrandverifikation), Shipper-Receiver Uranvergleichen und mit der Zeit asymptotisch abnehmendem Pu/U-Verhältnis.

Wir konnten auch auf der Basis von Isotopenanalysen des Plutoniums das aufgetauchte Plutonium drei verschiedener Reaktoren recht genau zuordnen.

Ein drittes Beispiel:

In jeder WA-Anlage ist es möglich, obwohl unwahrscheinlich, einer Auflösercharge ein falsches Element zuzuordnen. Wenn die in Frage kommenden Elemente abbrandmäßig nur um einige Prozent unterschiedlich sind, wird dieser Umtausch sofort erkennbar, und später, wenn alle Daten vorhanden sind, kann eindeutig und überzeugend Beweis geführt werden.

Viertes Beispiel:

Wir haben Büchsen mit zerlegtem Versuchselement bekommen, mit Angaben, die mitnichten stimmten.
Hier könnte bewiesen werden, daß unterschiedliche Abbrände,

unterschiedliche Anfangsanreicherungen und nichtbestrahltes Material vermischt worden waren.

Fünftes und letztes Beispiel:

Unser Spektrometrielabor kann aufgrund γ -spektrometrischer Analysen wiederaufgearbeitete Reaktoren erkennen, Kühlzeiten und Abbrände abschätzen.

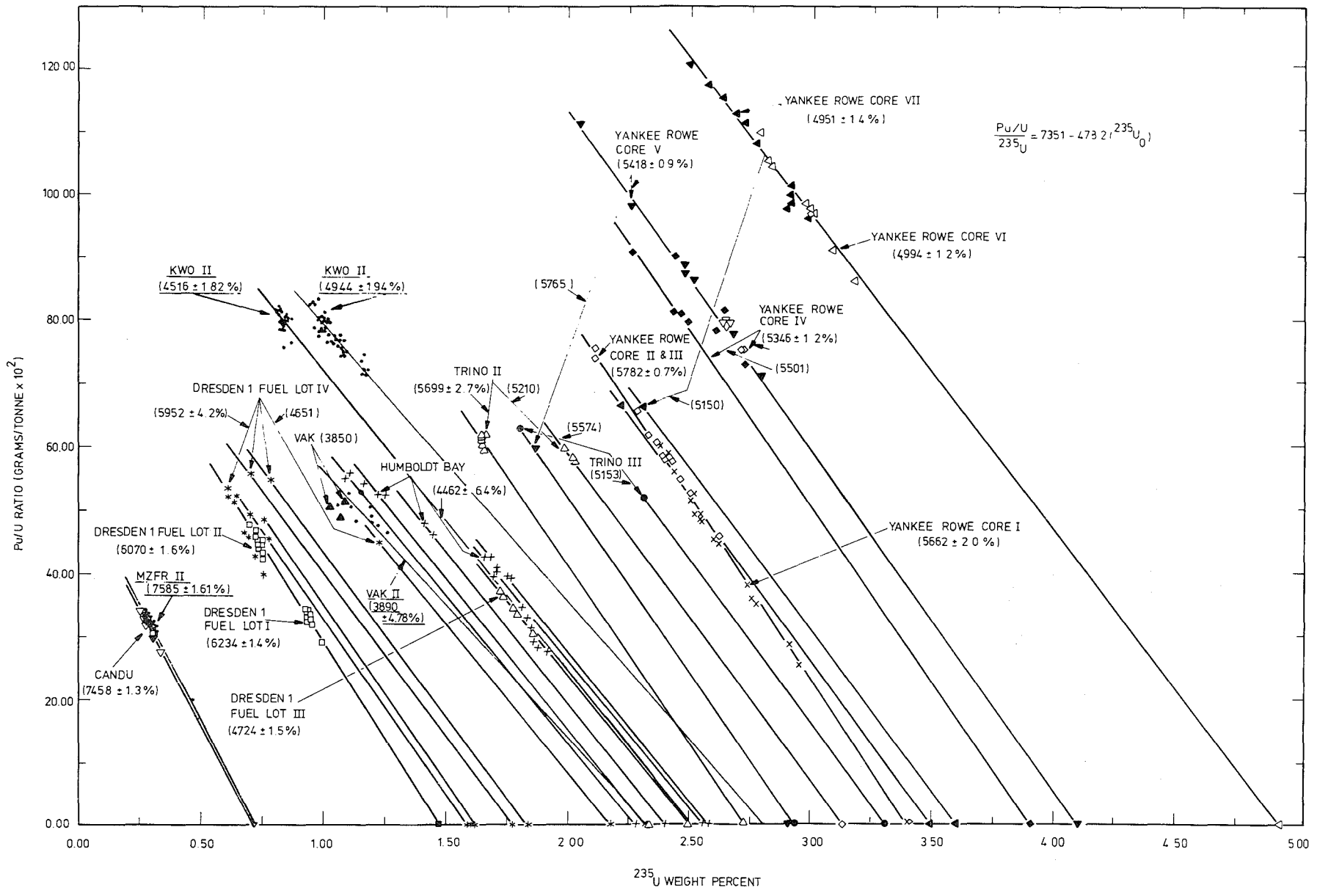


FIGURE 1. Pu/U RATIO VERSUS ²³⁵U WEIGHT PERCENT FOR THE COLLECTIVE DATA

Theoretische Untersuchungen zur Isotopenkorrelationstechnik,
eine Übersicht über bisherige theoretische Arbeiten

H.W. Wiese

Institut für Neutronenphysik und Reaktortechnik (INR)

Kernforschungszentrum Karlsruhe

Einleitung

In diesem Beitrag wird der gegenwärtige Stand der theoretischen Arbeiten zur Isotopenkorrelationstechnik (ICT) umrissen. Es wird das Ergebnis einer kurzen Literaturstudie vermittelt. Akzentverschiebungen im Rahmen einer umfassenderen Analyse sind daher nicht auszuschließen. Im INR sind Untersuchungen über ICT ab 1977 geplant.

1. Einführende Erläuterungen zum Begriff "Isotopenkorrelationen"

In thermischen Reaktoren wird ^{235}U abgebrannt; ein Teil der bei der Spaltung freiwerdenden Neutronen wird in ^{238}U eingefangen, und es entstehen über Zwischenprozesse ^{239}Pu und höhere Plutoniumisotope. D.h. mit steigendem Abbrand von ^{235}U nimmt der totale Plutoniumgehalt im Brennstoff zu, während der totale Urangehalt abnimmt: die Größe Pu/U nimmt zu, U und Pu in Gewichtseinheiten. Man beschreibt den Abbrand von ^{235}U in diesem Zusammenhang üblicherweise durch die Änderung der Anreicherung von ^{235}U ,

$$(1) \quad {}^{235}\text{D} \equiv \left(\frac{{}^{235}\text{U}}{\text{U}_{\text{tot}}} \right)_{t=0} - \left(\frac{{}^{235}\text{U}}{\text{U}_{\text{tot}}} \right)_{t>0}$$

^{235}U und U_{tot} in Gewichtseinheiten. Trägt man in einem Diagramm Pu/U über ${}^{235}\text{D}$ für verschiedene Leichtwasserreaktoren auf, findet man für Abbrände bis etwa 30.000 MWd/tU näherungsweise den linearen Zusammenhang oder die lineare Isotopenkorrelation

$$(2) \quad \text{Pu/U} \approx R_5 \cdot {}^{235}\text{D}.$$

Dabei hängt die Proportionalitätskonstante R_5 u.a. vom Reaktortyp, der Anfangsanreicherung und den Betriebsbedingungen ab. Abb. 1, entnommen aus Ref. /1/, zeigt Beispiele für solche linearen Korrelationen. Als Beispiel für eine nicht-lineare Korrelation sei

$$(3) \quad \frac{{}^{242}\text{Pu}}{{}^{240}\text{Pu}} = f\left(\frac{{}^{240}\text{Pu}}{{}^{239}\text{Pu}}\right)$$

genannt. Diese Korrelation ist auf Abb. 2, entnommen aus Ref. /2/, dargestellt.

Allgemein formuliert sind Isotopenkorrelationen Beziehungen zwischen den während des Reaktorbetriebs und der nachfolgenden Abklingzeit (u.U. auch über einen anderen Zeitraum mit definierten und erfaßbaren Randbedingungen) sich ändernden Isotopenmengen

- der abbrennbaren spaltbaren Materialien (fissile elements)
- der durch Neutroneneinfang und anschließendem β -Zerfall konvertierten nicht-spaltbaren schweren Materialien (fertile elements)
- der Konversionsprodukte
- der stabilen und radioaktiven Spaltprodukte.

Man unterscheidet üblicherweise zwischen

- Korrelationen schwerer Isotope
- Korrelationen stabiler Spaltprodukte und schwerer Isotope
- Korrelationen radioaktiver Spaltprodukte und schwerer Isotope.

2. Aufgaben einer Theorie der Isotopenkorrelationen

Der Ausgangspunkt der Ermittlung von Isotopenkorrelationen war die graphische Analyse experimentell bestimmter Isotopenkonzentrationen in bestrahlten Kernbrennstoffen. Dabei wurden teilweise einfache, insbesondere näherungsweise lineare Abhängigkeiten gefunden, angefangen mit Pu/U als Funktion von ${}^{235}\text{D}$.

Es stellte sich die Frage, ob diese einfachen Zusammenhänge auf eine allgemein gültige Gesetzmäßigkeit hinweisen. Denn es verblüfft zunächst, daß beim bekanntlich exponentiellen Aufbau der höheren Isotope auch für größere Abbrände lineare Abhängigkeiten vorhanden sein sollten, wie es für kleine Abbrände im Nichtsättigungsbereich der erzeugten Transurane eher zu erwarten gewesen wäre.

Das Ziel theoretischer Überlegungen muß sein, diese Abhängigkeiten aus den beteiligten nuklearen Prozessen (Spaltung, Neutroneneinfang, radioaktiver Zerfall) herzuleiten, um

- die gefundenen Korrelationen physikalisch interpretieren zu können,
- den Einfluß von Reaktorparametern wie der Anfangsanreicherung, des Kühlmittelvoids, des Moderator/Brennstoff-Verhältnisses usw. zu kontrollieren,
- die Frage nach einer möglichen Extrapolation auf höhere Abbrände zu klären.

3. Bereits durchgeführte theoretische Untersuchungen

Theoretische Untersuchungen von Isotopenkorrelationen wurden vor allem bei BNWL (Battelle Northwest Laboratories) in den USA und EURATOM in Ispra/Italien, aber auch bei der GfK-Karlsruhe durchgeführt. Sie erfolgten auf zwei Ebenen. Die eine Ebene ist die der totalnumerischen Behandlung mit Hilfe von Reaktorabbrandcodes, die z.B. von Foggi, Ispra, bearbeitet wurde. Die zweite Ebene ist die der grundsätzlichen Überlegungen, beginnend mit einer analytischen Behandlung der Abbrandgleichungen; derartige Untersuchungen wurden hauptsächlich von Christensen, Schneider und Prezbindowski bei Battelle Northwest und von Krämer, Karlsruhe, vorgenommen.

3.1 Zur "Linearität" von Pu/U in Abhängigkeit von ²³⁵D

Im Vordergrund der analytischen Bemühungen steht die Frage: Wie verändert sich Pu/U mit dem Abbrand von ²³⁵U? Insbesondere: Bis zu welchem Abbrand ist diese Korrelation linear, welchen Einfluß haben die Anfangsanreicherung, das Moderator/Brennstoff-Verhältnis und damit der Void bei Leichtwasserreaktoren und das Hüllmaterial?

Für kleine Abbrände gilt sicherlich $U \approx U_0$ und $Pu = a + b \cdot {}^{235}\text{D}$ mit $a = 0$, da für ${}^{235}\text{D} = 0$ auch $Pu = 0$ sein muß. Damit ist aber

$$(4) \quad Pu/U \approx \frac{b \cdot {}^{235}\text{D}}{U_0} = C \cdot {}^{235}\text{D}, \quad C = \text{const.},$$

linear für kleine Abbrände. Die experimentellen Ergebnisse zeigen, daß diese Linearität bis etwa zu Abbränden von 25000 MWD/tU geht. Es stellt sich die Frage: Ist dieser Abbrand noch als klein anzusehen im Sinne der obigen Näherung oder sorgen Kompensations- oder Sättigungseffekte für eine weitergehende Linearität? Untersuchungen dieser Fragestellungen wurden von Weisbin und Thorpe / 3/, von Prezbindowski / 1 / sowie von Krämer / 4 / vorgenommen. Im folgenden wird in vereinfachter Form das Vorgehen von Prezbindowski skizziert; es werden dabei hier zunächst nur die Isotope ${}^{235}\text{U}$, ${}^{238}\text{U}$ und ${}^{239}\text{Pu}$ berücksichtigt, und es wird angenommen, daß der Anteil von ${}^{238}\text{U}$, die Neutronenwirkungsquerschnitte σ und der Neutronenfluß ψ näherungsweise zeitlich konstant sind. Es werden die üblichen Symbole verwendet; so ist z.B. N^5 die Teilchenzahlendichte der ${}^{235}\text{U}$ -Kerne, σ_c^8 der Neutroneneinfangquerschnitt für ${}^{238}\text{U}$. Es genügen nun N^5 , N^8 und N^9 den Diff.-Gl.

$$(5) \quad \frac{dN^5}{dt} = -\sigma_a^5 N^5 \psi(t),$$

$$(6) \quad \frac{dN^9}{dt} = \sigma_c^8 N^8 \psi(t) - \sigma_a^9 N^9 \psi(t)$$

Unter Ersetzen von $\sigma_a^9 N^9$ durch $\sigma_f^9 N^9$ ($\sigma_c^9 N^9$ führt auf ${}^{240}\text{Pu}$, was hier nicht berücksichtigt werden soll) folgt hieraus

$$(7) \quad \frac{dN^9}{dN^5} = \frac{\sigma_c^8 N^8 - \sigma_f^9 N^9}{-\sigma_a^5 N^5}$$

und, mit $d^5 = N_0^5 - N^5$ als Änderung der Teilchenzahlendichte von ${}^{235}\text{U}$ sowie mit $N^8 = N_0^8$,

$$(8) \quad \frac{dN^9}{d(d^5)} = \frac{\sigma_c^{8N^8} - \sigma_f^{9N^9}}{\sigma_a^{5N^5}}$$

Geht man von einer zeitlich konstanten Leistung aus, so ist ϵ mit ϵ als für alle spaltbaren Kerne als gleich angenommenem Leistungskonversionsfaktor -

$$(9) \quad \epsilon (\sigma_f^{5N^5} + \sigma_f^{9N^9}) = \epsilon \sigma_f^{5N^5}$$

Mit $\alpha^5 = \sigma_c^5 / \sigma_f^5$ kann hieraus

$$(10) \quad \sigma_a^{5N^5} = (1 + \alpha^5) [\sigma_f^{5N^5} - \sigma_f^{9N^9}] > 0$$

bestimmt werden. Setzt man dies in Gl. (8) für $dN^9/d(d^5)$ ein, bekommt man

$$(11) \quad \frac{dN^9}{d(d^5)} = \frac{1}{1 + \alpha^5} \frac{\sigma_c^{8N^8} - \sigma_f^{9N^9}}{\sigma_f^{5N^5} - \sigma_f^{9N^9}}$$

Diese Beziehung ist nützlich im Zusammenhang mit Diskussion der Linearität von Pu/U in Abhängigkeit von $D^5 \equiv {}^{235}D$. Es ist nämlich - dabei wird Uran in to und Pu in gr angegeben und es bezeichnet z.B. g^5 das Gewicht eines ${}^{235}U$ -Kerns - mit Gl. (1) und $K = \frac{U_o}{U}$

$$(12) \quad \begin{aligned} D^5 &= \frac{1}{U_o} [U_o^5 - K U^5] \\ &= \frac{g^5}{U_o} [N_o^5 - K N^5] \end{aligned}$$

und damit

$$\begin{aligned}
 \frac{Pu}{U}/D^5 &= \frac{g^9 N^9}{10^6 (g^8 N^8 + g^5 N^5)} \frac{U_0^5}{g^5} / [N_0^5 - K \cdot N^5] \\
 (13) \qquad &= C \frac{N^9}{N^8 + g^5/g^8 \cdot N^5} / [N_0^5 - K \cdot N^5]
 \end{aligned}$$

mit der Konstanten $C = \frac{g^9}{g^5 \cdot g^8} \cdot U_0^5 \cdot 10^{-6}$, sowie mit $g^5/g^8 = 0.9874$. Die Konstante K ist 1 zur Zeit $t=0$ (frischer Brennstoff) und erhöht sich für YANKEE ROWE-Brennstoff auf etwa 1.04 nach einem Abbrand von 25000 MWd/tU / 1 /. Mit (13) ist aber unter Vernachlässigung der Abbrandabhängigkeit von K und, wenn man weiterhin die Größen $N^8 + g^5/g^8 \cdot N^5$ als näherungsweise zeitunabhängig gleich N_0^8 ansieht,

$$(14) \qquad \frac{Pu}{U} / D^5 \approx C \cdot \frac{N^9}{N_0^8} / d^5$$

Da zu prüfen ist, ob die $\frac{Pu}{U}/D^5 = \text{const}$ ist, genügt es, nachzusehen, ob N^9 eine lineare Funktion von d^5 ist. Abb. 3 zeigt von Prezbindowski ermittelte Werte für $\frac{Pu}{U}/D^5$ und $\frac{dN^{Pu}}{d(d^5)}$ als Funktion des Abbrandes für Brennstoff des Druckwasserreaktors YANKEE ROWE. Dabei wurden die höheren Plutoniumisotope ^{240}Pu , ^{241}Pu , ^{242}Pu berücksichtigt, und es wurde die Änderung des Neutronenflusses und der Wirkungsquerschnitte mit der Zeit mitgenommen. Das Ziel, hier eine Konstante zu bekommen, wird nicht erreicht. Die Abweichung von der angestrebten Konstanten beträgt beim Beziehen auf einen Mittelwert etwa 2 % bei einem Abbrand von 25000 MWd/tU. Diese Abweichung ist systematisch und wird mit zunehmendem Abbrand größer. Der Einfluß von ^{242}Pu ist deutlich: durch den Aufbau dieses Isotops wird, wie Abb. 3 zeigt, die Abweichung von der Linearität - hier von der Horizontalen - vergrößert.

Zusammenfassend wird bezüglich der Linearität von Pu/U in Abhängigkeit von der ^{235}U -Abreicherung folgendes festgestellt:

1. Ein streng linearer Zusammenhang liegt nicht vor.
2. Die Linearität ist gut im Bereich von 5000 - 18000 MWd/tU Abbrand (Abweichung ≤ 0.5 %).

3. Die Linearität ist befriedigend zwischen 18000 und etwa 28000 MWd/tU Abbrand (Abweichung $\leq 1\%$).
4. Der Verlauf oberhalb etwa 30000 MWd/tU Abbrand ist unbekannt, dort sind systematische Abweichungen von der Linearität zu erwarten.
5. Es ist offen, wie die Korrelation bei Plutoniumrückführung aussieht.

Im Zusammenhang mit 4. wird darauf hingewiesen, daß eine Extrapolation historischer Daten von kleinen Abbränden auf solche oberhalb 30000 MWd/tU fragwürdig sein kann.

3.2 Zum Einfluß von Reaktorparametern

Als Reaktorparameter, die einen Einfluß auf Isotopenkorrelationen ausüben, sind bereits erwähnt worden: die Anfangsanreicherung, das Moderator/Brennstoff-Verhältnis, das Hüllmaterial. Weiter beeinflussen Änderungen des Neutronenspektrums durch unterschiedliche Voiddichten beim Siedewasserreaktor die Korrelation. So ist z.B. für Randelemente, die einem weicheren Neutronenspektrum ausgesetzt sind, ein anderes Verhalten als für zentrale Brennelemente zu erwarten. Eine Untersuchung von Foggi / 5/, deren Ergebnisse auf Abb. 4 dargestellt sind, läßt diesen Effekt deutlich erkennen. Hier ist $\frac{^{236}\text{U}}{^{238}\text{U}}/D^5$ über der Anfangsanreicherung aufgetragen. Die MR-Werte sind verschiedene Moderator/Brennstoff-Verhältnisse. Es ist zu erkennen, daß der YANKEE ROWE Reaktor mit 4.1 % Anreicherung nicht im Bereich der Linearität liegt.

Ähnliches gilt für Brennelemente mit unterschiedlichem Hüllmaterial. So hat z.B. Edelstahl eine stärkere Neutronenabsorption im Bereich thermischer Energien als Zircaloy. Dies hat ein anderes Neutronenspektrum zur Folge und damit eine andere Steigung der Korrelationsgeraden. Dies ist von Christensen / 6/ und auch von Foggi / 5/ mit Hilfe totalnumerischer Reaktorabbrandrechnungen untersucht worden.

3.3 "Linearisierung" von Isotopenkorrelationen

Aufgrund ihrer einfachen Anwendbarkeit bei der praktischen Brennstoffkontrolle kommt den linearen Korrelationen eine besondere Bedeutung zu. Prezbindowski / 1/ hat einige interessante empirische Versuche zur Linearisierung von Konzentrationsverhältnissen für verschiedene Isotope vorgenommen. Ein Verfahren beruht auf den folgenden Überlegungen. Wenn sich die Isotope A und B während

der Bestrahlungszeit $(0, t_0)$ aufbauen gemäß

$$(15) \quad \left\{ \begin{array}{l} N^A(t_0) = N_0^A \exp \left[- \int_0^{t_0} dt \sigma^A \psi(t) \right] \\ N^B(t_0) = N_0^B \exp \left[- \int_0^{t_0} dt \sigma^B \psi(t) \right], \end{array} \right.$$

so ist

$$(16) \quad \frac{N^A(t_0)}{N^B(t_0)} = \frac{N_0^A}{N_0^B} \exp \left[- \int_0^{t_0} dt (\sigma^A - \sigma^B) \psi(t) \right]$$

und mit zunächst beliebigen Exponenten $x, y \neq 0$

$$(17) \quad \frac{[N^A(t_0)]^x}{[N^B(t_0)]^y} = \frac{[N_0^A]^x}{[N_0^B]^y} \exp \left[- \int_0^{t_0} dt (x\sigma^A - y\sigma^B) \psi(t) \right].$$

Nach Prezbindowski gibt es Exponenten x und y derart, daß näherungsweise zu jeder Zeit t_1 im Bestrahlungsintervall gilt

$$(18) \quad \int_0^{t_1} dt [x\sigma^A - y\sigma^B] \psi(t) \approx 0.$$

x und y lassen sich dann bestimmen aus

$$(19) \quad \left\{ \begin{array}{l} \frac{[N^A(t_1)]^x}{[N^B(t_1)]^y} = \frac{[N_0^A]^x}{[N_0^B]^y}, \\ \frac{[N^A(t_2)]^x}{[N^B(t_2)]^y} = \frac{[N_0^A]^x}{[N_0^B]^y}, \end{array} \right.$$

und man erhält die lineare Korrelation

$$(20) \quad \left[\frac{N^A(t)}{N^A_0} \right]^x = \left[\frac{N^B(t)}{N^B_0} \right]^y$$

Ein weiteres von Prezbindowski beschriebenes Verfahren / 1 / zur Erzeugung linearer Isotopenkorrelationen besteht in der Anwendung empirisch ermittelter Koeffizienten im Sinne einer unterschiedlichen Wichtung verschiedener Isotope. Darauf soll hier nicht näher eingegangen werden. Die angegebenen Methoden sind für praktische Anwendungen gut geeignet, die Abweichungen vom streng linearen Verhalten liegen im Promillebereich. Theoretisch unbefriedigend ist allerdings, daß die verwendeten Exponenten bzw. Koeffizienten empirisch durch Anpassung gefunden werden müssen. Inwieweit eine Extrapolation zu höheren Abbränden möglich ist, ist ungeklärt, jedenfalls sind experimentell gesicherte Daten dazu erforderlich.

4. Zukünftige Arbeiten zur Isotopenkorrelationstechnik im INR

Die Isotopenkorrelationstechnik läßt sich im Prinzip auf jedes Nuklid anwenden, nur sollten die resultierenden Korrelationsfunktionen für Anwendungszwecke möglichst einfach und leicht experimentell überprüfbar sein. Deswegen beschränken sich die bisher betrachteten Korrelationen nicht auf Pu/U-Verhältnisse; Korrelationen zwischen anderen Isotopen, z.B. Spaltprodukten, wurden z.B. von Foggi /7/ untersucht. Es wird in diesem Zusammenhang auf den Beitrag von Koch zu diesem Seminar hingewiesen, in dem Korrelationen bezüglich Spaltprodukt-edelgase diskutiert werden.

Die Arbeiten im INR werden auf die theoretische Ermittlung und Begründung weiterer einfacher Korrelationen zielen, z.B. für die höheren Plutoniumisotope und auch für Transplutoniumelemente zur Absicherung und Unterstützung der hier hauptsächlich diskutierten Plutonium-Uran-Korrelationen. Ein wesentlicher Schwerpunkt wird sein, die Verhältnisse bei der Rückführung von Plutonium in thermischen Reaktoren zu studieren.

Insgesamt ergibt sich für die angestrebten theoretischen Bemühungen folgendes Programm:

1. Ermittlung der Linearitätsgrenze bei einer Genauigkeit auf 1 - 1.5 %.
2. Korrelationen für Abbrände größer als 30000 MWd/tU für LWRs.

3. Überprüfung und Absicherung der Korrelationen durch experimentelle Daten bei LWRs.
4. Korrelationen für Brennstoffe aus Leichtwasserreaktoren mit Plutoniumrückführung und Überprüfung an Experimenten.
5. Korrelationen für Brennstoffe aus Hochtemperaturreaktoren (HTR) und Überprüfung an Experimenten.
6. Einfache Korrelationen für Transplutone.

Dieses Programm soll dazu beitragen, die Isotopenkorrelationstechnik zu einem zuverlässigen Hilfsmittel der Spaltstoffflußkontrolle werden zu lassen. Darüber hinaus ist selbstverständlich, daß die Untersuchungen in wichtigen Punkten des Brennstoffkreislaufs im Hinblick auf die sichere Vorhersage des Plutonium-, Aktiniden- und Aktivitätsinventars z.B. im Rahmen der Wiederaufarbeitung von Brennstoffen Bedeutung hat.

Der Autor dankt Herrn Dr. H. Küsters für kritische Anmerkungen zum ersten Manuskript dieser Untersuchung sowie für seine Mitarbeit bei der Erstellung des programmatischen Teils.

Referenzen

- /1/ D.L. Prezbindowski,
Theory of Present and Future Applications of Isotopic Ratios.
BNWL-SA-4276 (1972)
- /2/ D.E. Christensen,
Application of Isotopic Correlation Safeguard Techniques to Verify
the Plutonium Content of Humboldt Bay Spent Fuel
BNWL-SA-4274 (1972)
- /3/ C.R. Weisbin, M.M. Thorpe,
"Assay of Spent Power Reactor Fuel Elements: Analysis", Nuclear Safeguards
Research and Development Program Status Report
LA-4605-MS (1970)
- /4/ R. Kraemer,
Schwerisotopenkorrelationen in abgebrannten Kernbrennstoffen aus
thermischen Reaktoren
(unveröffentlicht)
- /5/ C. Foggi, P. Frandoli,
Correlations between Heavy Isotopes in Irradiated Fuels of Light Water
Power Reactors
(unveröffentlicht)
- /6/ D.E. Christensen, R.A. Schneider,
Summary of Experience with Heavy-Element Isotopic Correlations
IAEA-SM-201/10 (1976)
- /7/ C. Foggi, F. Frenquelluci, G. Perdisa,
Isotopic Correlations based on Fission Product Nuclides in LWR Irradiated
Fuels
IAEA-SM-201/44 (1972)

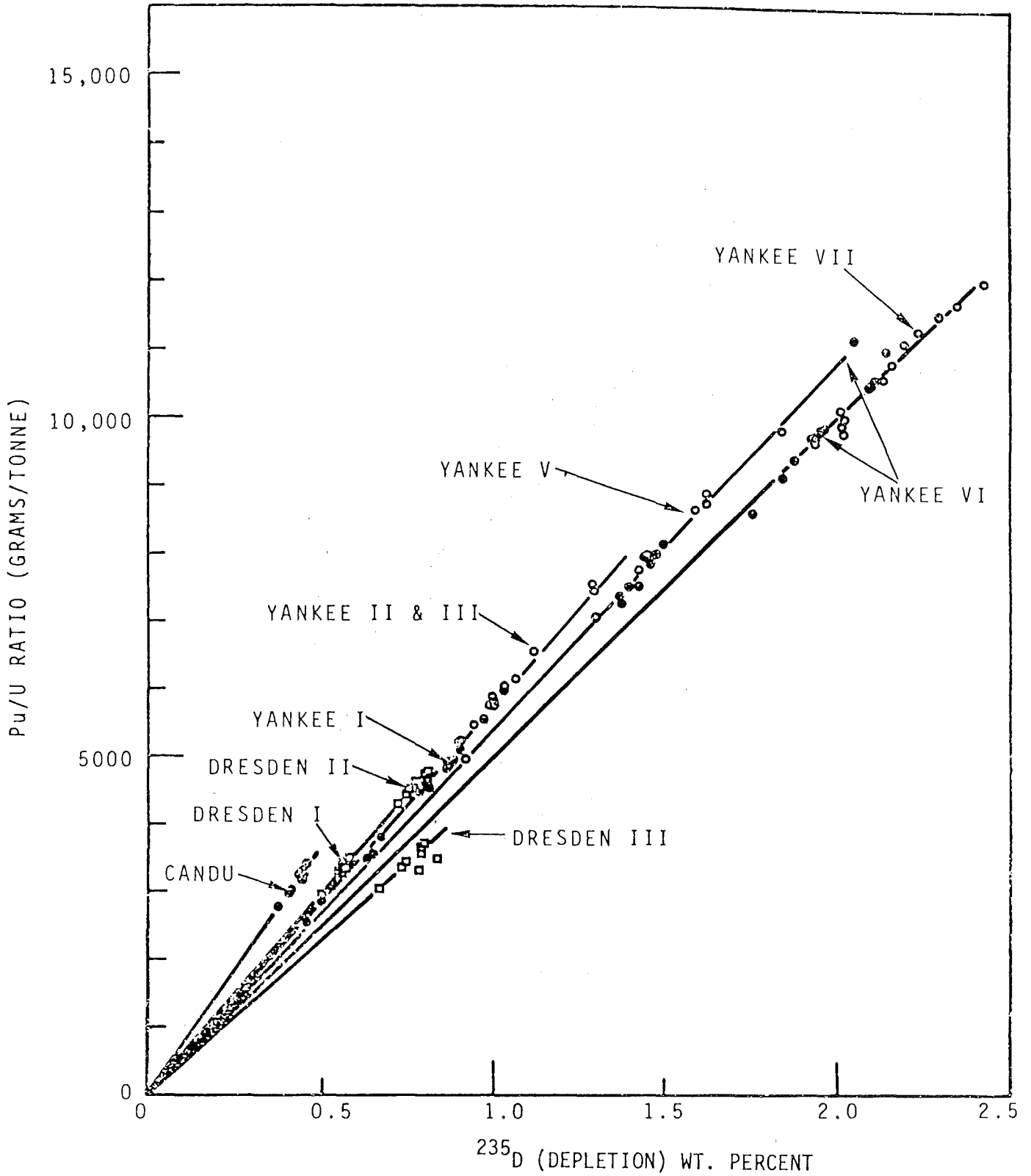


Abb. 1: Pu/U Ratio versus ^{235}D resulting from chemical reprocessing plant measurements.

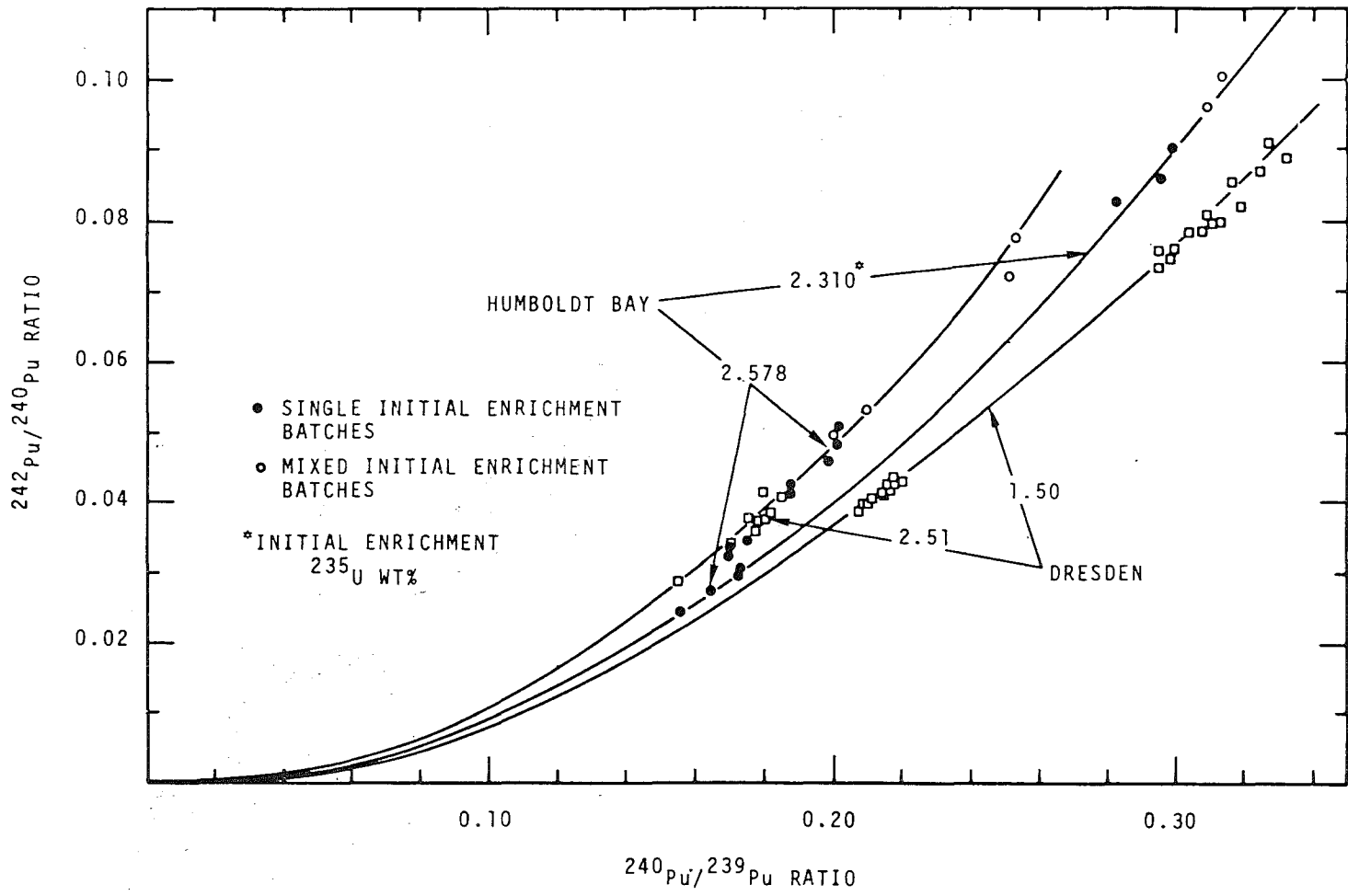


Abb. 2: $^{242}\text{Pu}/^{240}\text{Pu}$ RATIO VERSUS $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ RATIO
 FOR HUMBOLDT BAY AND DRESDEN 1 DATA

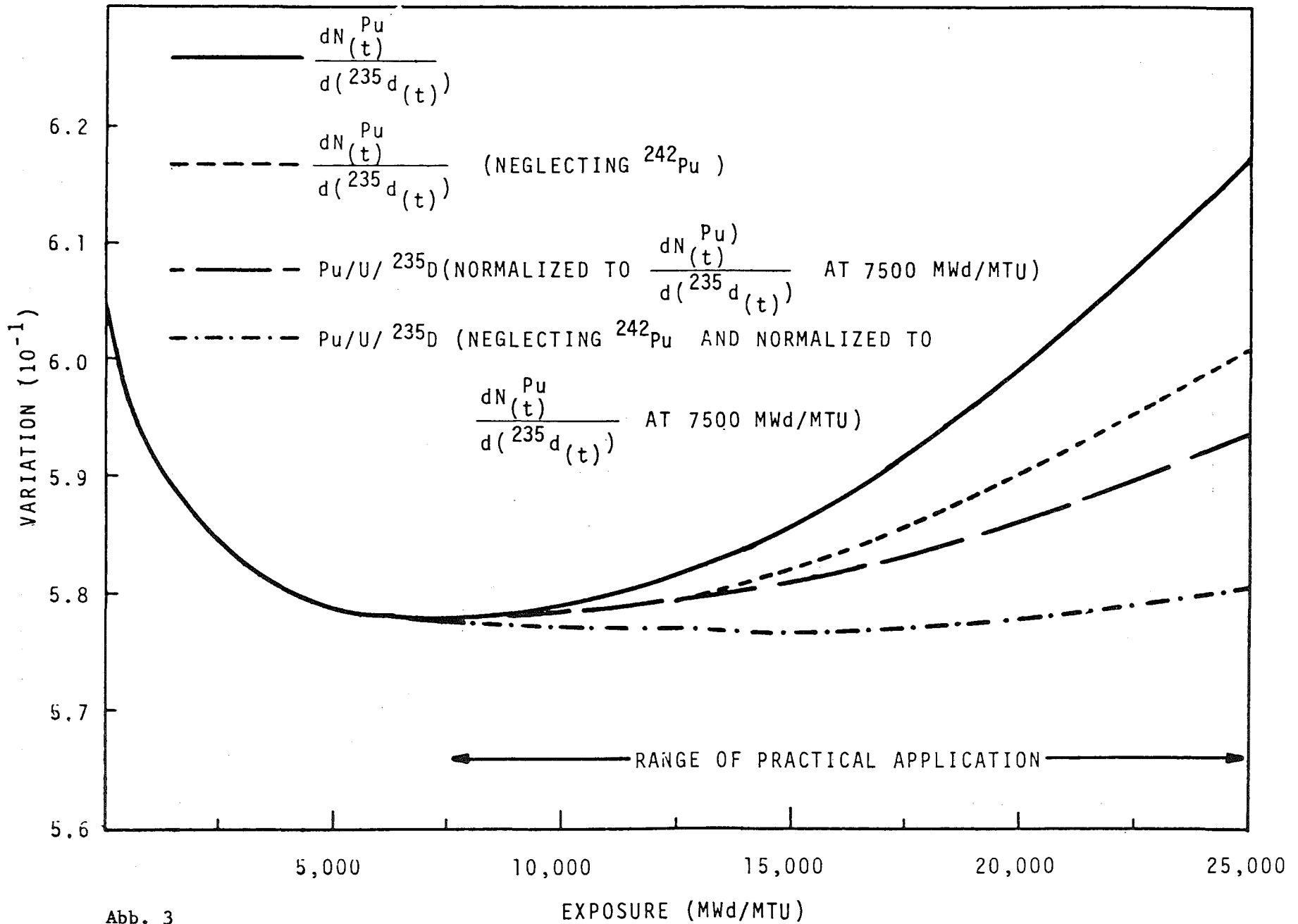


Abb. 3

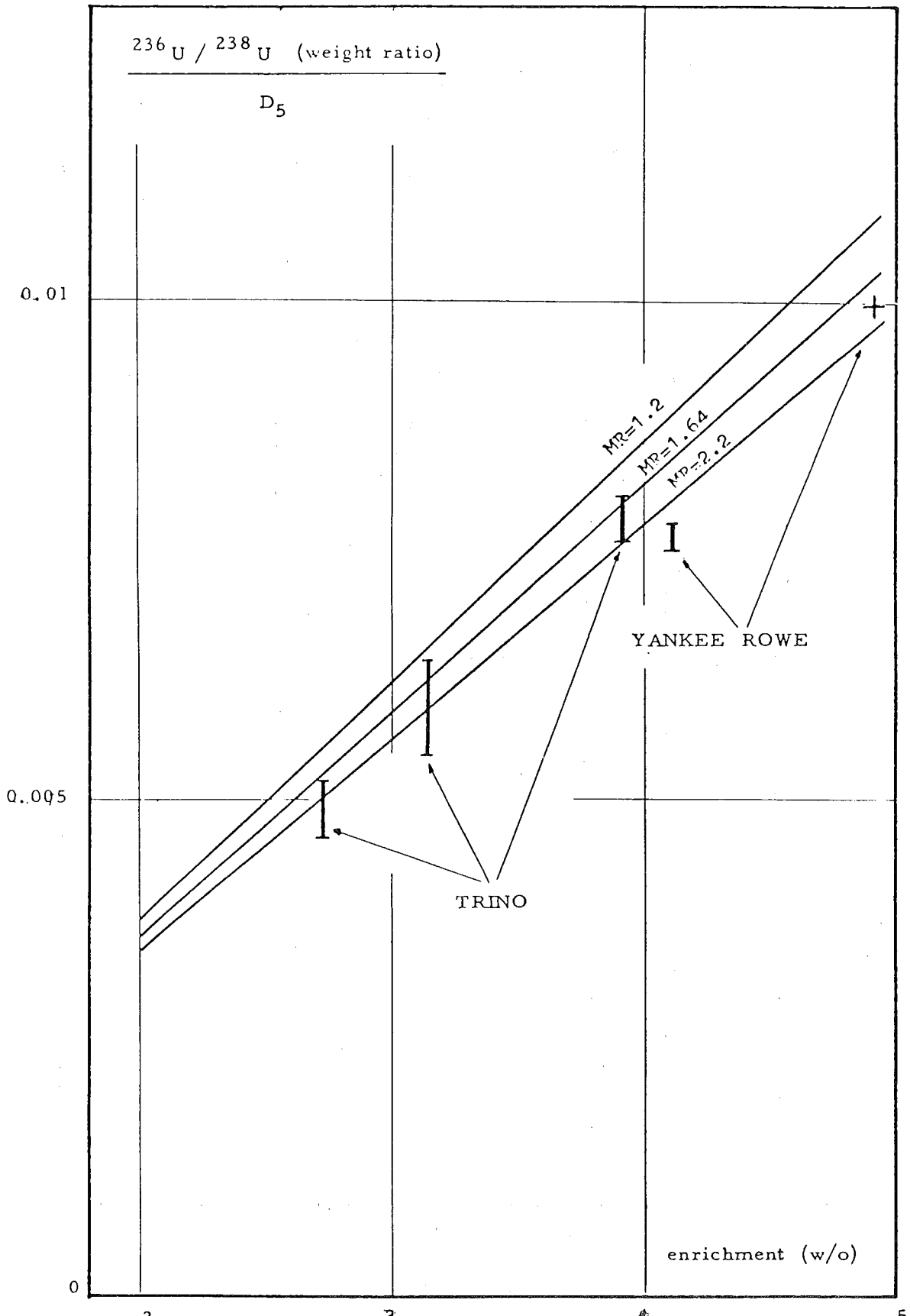


Abb. 4: ^{236}U accumulation/ ^{235}U depletion ratio; comparison with experimental results from Trino and Yankee Rowe reactors

Isotopenkorrelationstechnik in
der Spaltstoffflußkontrolle

L. Koch

Europäisches Institut für Transurane,
Karlsruhe

Einleitung

Zu den sogenannten sensitiven kerntechnischen Anlagen rechnet man die der U-235-Anreicherung und der Wiederaufarbeitung von abgebrannten Kernbrennstoffen. Es werden hier die Spaltstoffe U-235 sowie Plutonium gewonnen und liegen in leicht abzweigbarer Form vor. Einer Spaltstoffflußkontrolle sind nicht alle Teile der Anlagen zugänglich; im Falle der Anreicherung auch, um technologische Einzelheiten des Verfahrens geheimzuhalten und im Falle der Wiederaufarbeitung schon wegen der hohen Gammastrahlung. Daher ist man auf eine Bilanzierung der ein- und ausgehenden Spaltmaterialströme angewiesen, deren Vollständigkeit man durch Beobachtung und Versiegelung zu gewährleisten versucht. Gegenüber der Effizienz dieser Kontrolle können Zweifel aufkommen, weil die Materialbilanz innerhalb der intransparenten Anlagenteile verfälscht werden könnte. Hier jedoch kann die Isotopenkorrelationstechnik eingreifen.

Isotopenkorrelationstechnik

Die sich verbrauchenden und neu bildenden Nuklide im Kernbrennstoff des Reaktors sowie die Anreicherung von U-235 gegenüber U-234 sind untereinander inhärent konsistent und lassen sich in Form von linearen Korrelationen ausdrücken, wie aus den vorhergehenden Vorträgen zu ersehen ist. So ist z.B. die Energiefreisetzung bzw. der Abbrand der Leichtwasserreaktoren direkt proportional dem Spaltproduktverhältnis $\text{Xe-132}/\text{Xe-131}$ für verschiedene DWR und SWR (Abb. 1).

Wählt man von den mannigfach beobachteten Korrelationen solche aus, denen eine relativ einfache Messung des Isotopenverhältnisses zugrunde liegt (z.B. U-235/234, Pu-240/241, Xe-132/131), dann kann man durch diese Messung über die Korrelation die für eine Spaltstoffflußkontrolle relevante Information, wie U-235-Anreicherung oder Pu-Bildung, mit einem geringeren Aufwand erzeugen als mit den sonst üblichen direkten Analysemethoden.

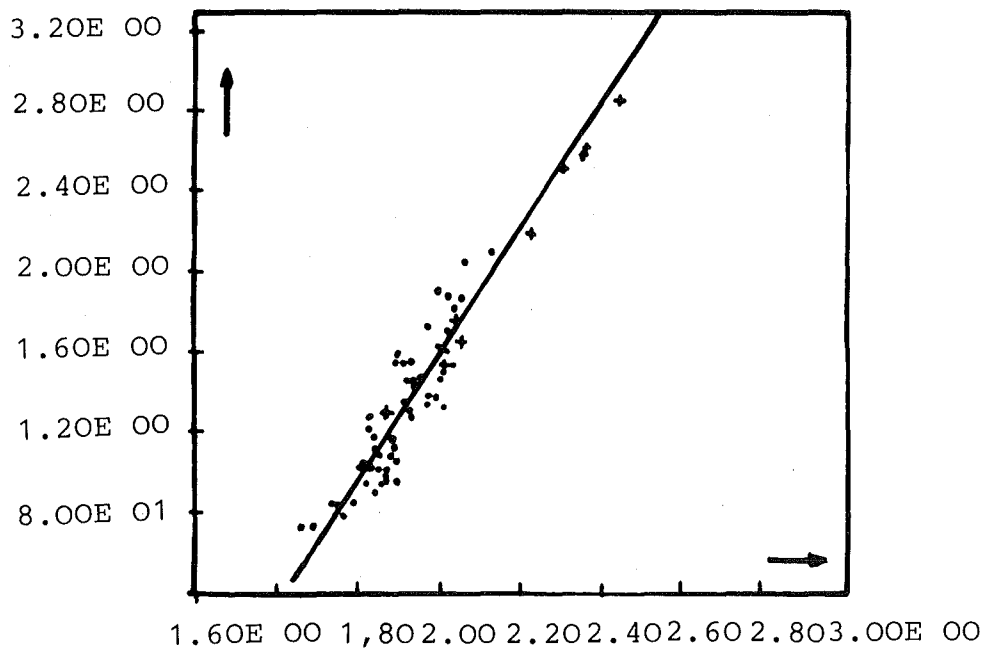


Abb. 1: Isotopenkorrelation

Zwischen dem Abbrand, FIMA % (in Atomprozenten) und dem Atomverhältnis Xe-132/131 für verschiedene (+) DWR (KWO, SENA TRINO VERSELLES) (.) SWR (DODEWAARD, KAHL, GARIGLIANO, GUNDREMMINGEN, LINGEN).

Dies soll ein Beispiel verdeutlichen. Ausgehend von einer linearen Korrelation des Typs $Pu/U_c = a + bX_1/X_2$ (U_0 anfängliche Uranmenge, X_1/X_2 ein Isotopenverhältnis) läßt sich die im Brennelement gebildete Menge Pu einfach berechnen nach:

$$Pu = U_0 (a + b X_1/X_2).$$

Die anfängliche Uranmenge wurde bei der Herstellung der BE gemessen, d.h. die Isotopenkorrelation greift weit zurück und überdeckt dabei die Zeit im Reaktor und Lagerbecken. Somit kann die Gültigkeit der Isotopenkorrelationen über den ganzen Brennstoffzyklus entscheidend die Verfälschungssicherheit der Materialbilanzen erhöhen bei einer gleichzeitigen möglichen Verminderung des Inspektionsaufwandes.

Die Überwachung von U-235-Anreicherungsanlagen durch Isotopenkorrelation ist weniger entwickelt als für Wiederaufarbeitungsanlagen, wo bereits erste Ergebnisse erzielt wurden, auf die im einzelnen näher eingegangen wird.

Anwendungsmöglichkeiten der Isotopenkorrelationstechnik

Die Anwendung einer Isotopenkorrelationstechnik kann man sich in drei aufeinanderfolgenden Stufen vorstellen, entsprechend der gesammelten Erfahrung und des daraus resultierenden Vertrauens in die Methode /1/.

Kontrolle der Konsistenz von Analysendaten

Inzwischen ist die Isotopenkorrelationstechnik bereits ein weithin akzeptiertes, probates Mittel zur Kontrolle der Konsistenz von Analysendaten bestrahlter Kernbrennstoffe. Zwei Vorteile dieser Technik überzeugen:

Aus den Korrelationen der neuen Analysendaten kann man fehlerhafte Analysen erkennen und bis zu dem ursächlichen Analysenschritt zurückverfolgen, d.h. es muß nicht mehr die gesamte Analyse wiederholt werden.

Aufgrund der Möglichkeit, durch Isotopenkorrelationen die Analysendaten zu kontrollieren, kann man auf die sonst üblichen Doppelanalysen verzichten.

Verifikation von Betreiberdaten

Bisher wurden Analysendaten des Betreibers dadurch verifiziert, daß man in einem zweiten Labor die gleiche Probe analysieren läßt. Dieses Verfahren kann man - zumindest teilweise - durch die Isotopenkorrelationstechnik ersetzen, indem man die neuen Daten mit sogenannten historischen Korrelationen vergleicht. Unter historischen Korrelationen versteht man solche, die aus Daten gewonnen wurden, deren Richtigkeit sichergestellt ist und die für einen Brennstoff gelten, der unter analogen Bedingungen hergestellt bzw. im Reaktor eingesetzt war wie die zu vergleichenden Proben. Aber noch einen weiteren Vorteil beinhaltet diese Art von Verifikation. Es können auch mehrere systematische Fehlerquellen entdeckt werden, die bei einem Analysenvergleich nicht mitbemerkt werden, wie z.B. falsche Probennahme und Probenvorbereitung oder Rückführung von Pu innerhalb der Anlage (Abb. 2).

Entdeckung von abgezweigtem Material

Treten Abweichungen zwischen neuen Daten und historischen Korrelationen auf, so kann es dafür mehrere Ursachen geben. Es bedarf neben großer Erfahrung einer ausgefeilten Isotopenkorrelationstechnik, um in den Abweichungen einen Hinweis auf eine Spaltstoffabzweigung zu entdecken.

Vergleich mit Standardverfahren

Welche Möglichkeiten in der Isotopenkorrelationstechnik stecken, zeigt ein Vergleich mit den üblichen Verfahren der Eingangsanalyse einer Wiederaufarbeitung /2/.

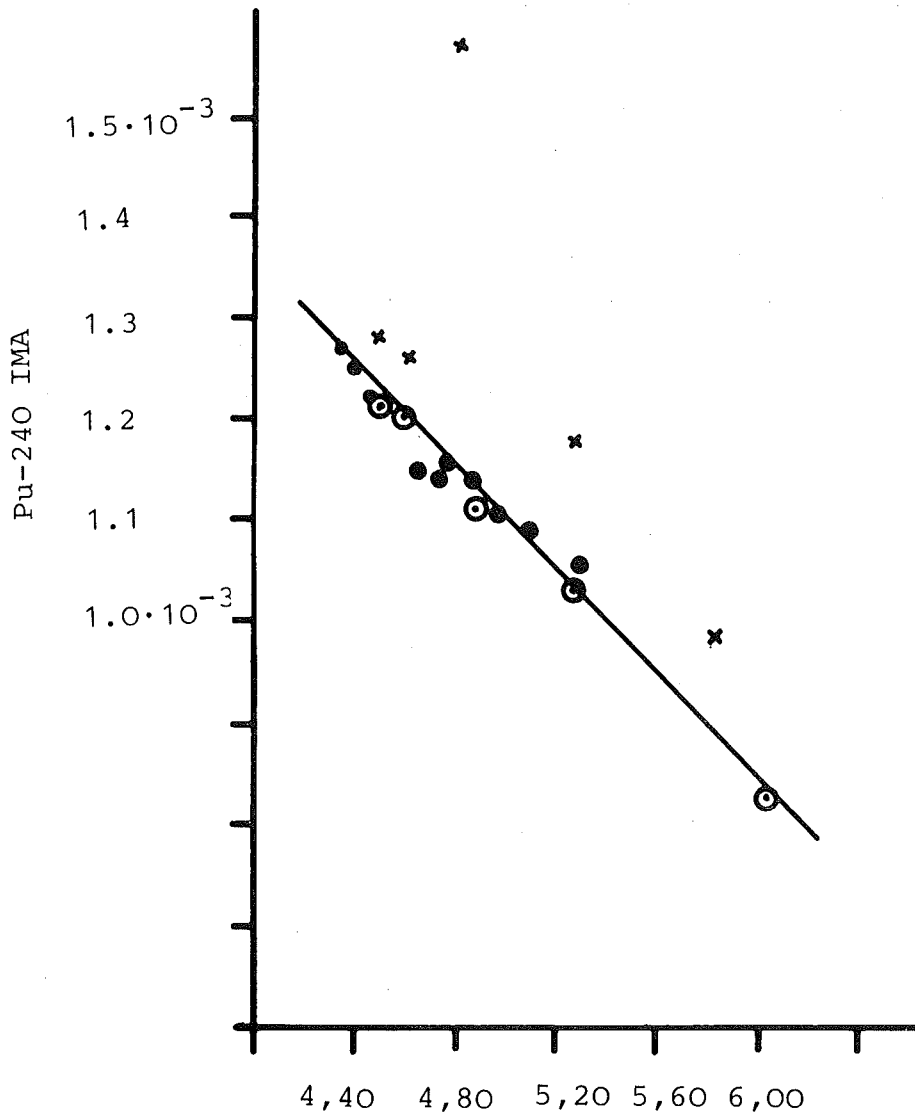


Abb. 2: Isotopenkorrelation

Zwischen Pu-240IMA (Atome pro anfängliche Uranmetallatome) und dem Atomverhältnis Pu-241/242

● historische Daten (TRINO)

× KWO Daten unkorrigiert für Pu-Rückführung

○ KWO Daten korrigiert für Pu-Rückführung

- Die weitest verbreitete Methode besteht in einer direkten Analyse, die das Volumen und die Dichte der Eingangslösung in einem Meßtank bestimmt und in einem verdünnten Aliquot durch eine massenspektrometrische Isotopenverdünnungsanalyse die Uran- und Plutoniumkonzentration mißt.
- Ältere Anlagen, die nicht über Meßtanks verfügen, benutzen die sogenannte Pu/U-Verhältnismethode, die das Messen der Eingangslösungsmenge ersetzt durch die früher durchgeführte Messung der anfänglichen Menge des Urans, U_0 im Brennstoff. So wird nur das Verhältnis Pu/U durch eine massenspektrometrische Isotopenverdünnungsanalyse bestimmt und, um auf das U_0 beziehen zu können, der gespaltene Anteil des Kernbrennstoffes über eine Abbrandanalyse ermittelt.

Vergleicht man den Analysenaufwand der Isotopenkorrelationstechnik mit diesen Standardmethoden, so wird deutlich, daß für erstere nur die relativ einfache Messung eines Isotopenverhältnisses nötig ist, wobei sich die Zahl möglicher Fehlerquellen (gleichbedeutend mit Verfälschungsmöglichkeiten) verringert (Tab. 1).

Zwischen den verschiedenen Isotopenkorrelationen gibt es diesbezüglich Unterschiede. Dabei zeigt sich, daß die Spaltgas-Korrelationen vorteilhafter sind.

- Aus innerbetrieblichen Gründen wird es mitunter erforderlich, plutoniumhaltige Lösung rückzuführen und mit der Eingangslösung zu vermischen, was sowohl das Pu-Isotopenverhältnis als auch die Pu-Menge ändert (Abb. 2). Dies tritt bei Spaltgasen nicht auf. Ein Methodenvergleich /2/ anhand einiger Auflösungen eines KWO-Brennstoffes zeigte für die Isotopenkorrelationstechnik zwar eine geringere Genauigkeit, doch muß mit berücksichtigt werden, daß die Randbedingung dieses Experimentes (wie z.B. nicht vorgesehene Isotopenanalyse des rückgeführten

Methoden	Direkte Analyse	Pu/U Methode	Korrelationen		
			U/Pu	Xe	Cs
FEHLERQUELLEN					
Volumen-, Dichtemessung	X				
Aliquotierung	X				
Isotopenverdünnung	X	X			
Isotopenanalyse	X	X	X	X	X
anfängl. Uran		X	X	X	X
histor. Korrelationen			X	X	X
Pu-Rückführung	X	X	X		
Verfälschungssicherheit	--	-	0	++	++
Inspektionsaufwand	-	0	+	+	--
Störung des Betriebs- ablaufes	--	-	-	+	--
Genauigkeit	++	++	0	-	--

Tab. 1: Methodenvergleich

(++ sehr günstig, + günstig,
0 neutral, - ungünstig,
-- sehr ungünstig)

Plutoniums) das Entstehen von nicht erfaßten systematischen Fehlern begünstigte, die sich vornehmlich im Fehler der Isotopenkorrelationen zeigen (Tab. 2).

Methode	^{235}U (kg)	^{238}U (kg)	^{239}Pu (kg)	^{240}Pu (kg)	^{241}Pu (kg)	^{242}Pu (kg)
Pu/U	9,084	575,1	2,515	0,6584	0,2936	0,05984
Direct Δ (%)	9,118 +0,84	577,6 + 0,43	2,528 +0,52	0,6625 +0,62	0,2955 +0,65	0,06032 +0,80
240/242 Pu cor. Δ (%)	9,093 +0,10	575,7 + 0,10	2,490 -1,00	0,6460 -1,88	0,2869 -2,28	0,4643 -22,41
84/83 Kr cor. Δ (%)	9,054 -0,33	575,7 + 0,10	2,473 -1,67	0,6341 -3,69	0,2807 -4,39	0,05440 -9,09

Tab. 2: Abweichungen der Methoden untereinander (bezogen auf Pu/U-Methode) anhand von Resultaten der Wiederaufarbeitung von KWO Brennelementen

- Eine Probennahme der Spaltgase im Abgas des Auflöser ist sehr einfach und greift nicht so in den Betrieb einer Wiederaufarbeitungsanlage ein, wie das Ziehen einer Probe aus einem Meßtank.

Notwendige Forschungs- und Entwicklungsarbeiten aus der Sicht der Spaltstoffflußkontrolle

Die bisherigen Erkenntnisse über Isotopenkorrelationen reichen noch nicht aus, um daraus ein Instrument der Spaltstoffflußkontrolle zu machen. Zuvor müssen folgende Problembereiche näher untersucht werden.

Katalogisierung und Zugriff historischer Daten

Im Rahmen einer von der IAEA eingesetzten Arbeitsgruppe werden zur Zeit der Katalog relevanter Informationen für eine Isotopenkorrelationstechnik festgelegt und die Voraussetzungen zur elektronischen Datenverarbeitung geschaffen. Dazu wird eine Datenbank-Software entwickelt, die auf ihre Verwendbarkeit hinsichtlich der verschiedenen Anwendungsmöglichkeiten der Isotopenkorrelationstechnik getestet wird. Demnächst ist vorgesehen, die Programme auf statistische Untersuchungen für den Vergleich neuer Daten mit historischen Korrelationen auszudehnen und die bisher veröffentlichten Isotopendaten abzuspeichern.

Entwicklung einer operationalen Isotopenkorrelationstechnik

Ein Verfahren zum Einsatz der Isotopenkorrelationstechnik bei der Eingangsanalyse der Wiederaufarbeitung ist in den U.S.A. von BNL vorgeschlagen und von der IAEA im wesentlichen übernommen worden /3/. Es besteht aus drei Phasen, die, ergänzt durch eigene Vorstellungen, im folgenden beschrieben werden:

- In der ersten Phase vor der Wiederaufarbeitung werden Daten der aufzuarbeitenden Brennelemente, BE, gesammelt (Fabrikation, Reaktor) und dahingehend überprüft, ob Ausreißer in den späteren Korrelationen durch außergewöhnliche Umstände (z.B. Ersetzen von BE-Stäben) zu erwarten sind. Diese Kontrolle erreicht man dadurch, daß man entweder die vom Reaktorbetreiber berechneten Plutoniumisotopenkonzentrationen mit gesicherten historischen Korrelationen vergleicht oder über Korrelationen zwischen Cs-134/137 und dem Pu-Gehalt oder Abbrand /2/. Das Cs-134/137-Verhältnis kann durch zerstörungsfreie Gamma-spektrometrie der BE gemessen werden. Diese Messung kann schon im Reaktorlagerbecken erfolgen und somit zu einem Zeitpunkt lange vor der Wiederaufarbeitung. Damit er-

öffnet sich die zusätzliche Möglichkeit einer rechtzeitigen Entdeckung etwaiger nicht erwarteter Abweichungen (Abb. 3). Für solche BE-Auflösungen, von denen eine Abweichung von den Isotopenkorrelationen erwartet werden kann, wird eine intensive Überwachung vorgesehen.

- In der zweiten Phase während der Auflösung werden von allen Eingangslösungen Proben gezogen, von denen die nach einem statistischen Probennahmeplan ausgewählten sowie die Proben der oben erwähnten besonderen BE in einem Kontrolllabor analysiert werden. Die restlichen Proben bleiben vorläufig in der Anlage. Werden die Spaltgasisotope im Auflöserabgas gemessen (was aus Gründen des Umweltschutzes erforderlich sein könnte), so können die erwarteten Pu-Mengen über Spaltgaskorrelationen überprüft werden und, falls erforderlich, zusätzliche Proben für eine Kontrollanalyse ausgewählt werden.
- In der dritten Phase nach Abschluß der Kampagne werden die Analysendaten des Anlagenbetreibers und die des Kontrolllabors verglichen und mittels Isotopenkorrelationstechnik überprüft. Die Erklärung etwaiger Ausreißer unter den Daten erfordert zusätzliche Analysen der in der Anlage gelagerten Proben. Sollten dann nicht erklärbare Abweichungen übrigbleiben, ist es unumgänglich, die detaillierte Geschichte des betreffenden BE von der Herstellung an zurückzuverfolgen, die den Schlüssel zum Verständnis enthalten muß.

Überprüfung der Anwendbarkeit der Isotopenkorrelationstechnik und der zu erwartenden Genauigkeit durch integrale Experimente

Die Verwendbarkeit der Isotopenkorrelationstechnik unter Inspektionsbedingungen soll anhand integraler Experimente überprüft werden. Es ist vorgesehen, solch ein Experiment, ICE (Isotope Correlation Experiment), 1977 in der WAK durchzuführen.

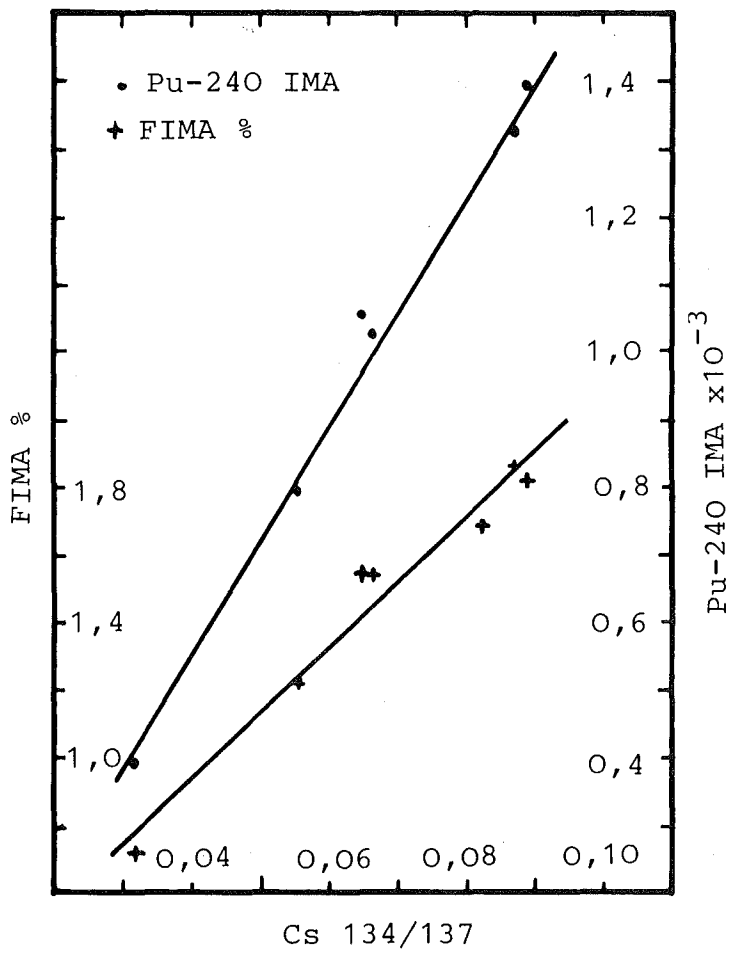


Abb. 3: Isotopenkorrelation

Zwischen dem Abbrand, FIMA % bzw. dem Pu-240IMA und dem Atomverhältnis Cs-134/137 für DODEWAARD BE-Proben.

Eine zusätzliche Behinderung des Betriebsablaufes einer Wiederaufarbeitungsanlage, verglichen mit der normalen Inspektion, ist nicht zu erwarten. Es sei denn, man versucht, in der ersten Phase vor der Auflösung durch zerstörungsfreie Messungen über Cs-134/137 Korrelationen in ausgewählten BE den Pu-Gehalt zu überprüfen.

Schwierig für den Inspektor dürfte es sein, die weit zurückliegenden Informationen von BE-Herstellung und Reaktorbetrieb aufzufinden. Daher soll diesem Aspekt besondere Aufmerksamkeit gewidmet werden.

Über die Genauigkeit der Isotopenanalysen liegen bereits ausreichend Erfahrungen durch internationale Laborvergleiche vor /4/, jedoch nicht über die Genauigkeit der Isotopenkorrelationstechnik.

Daher müssen bei diesem Experiment alle zusätzlichen Fehlerquellen (z.B. Verluste im Abfall, Rückstände etc.) bekannt sein, um die Genauigkeit der einzelnen Isotopenkorrelationen zu bestimmen.

Schließlich soll durch dieses Experiment der Inspektionsaufwand der Isotopenkorrelationstechnik bestimmt werden.

Einfluß neuer technologischer Konzepte auf die Isotopenkorrelationstechnik

Die ständige Entwicklung der Kerntechnologie kann Rückwirkungen auf die Isotopenkorrelationstechnik haben. Deshalb sollte rechtzeitig mit der Untersuchung neuer Konzepte begonnen werden.

In einer künftigen 1500 jato Wiederaufarbeitungsanlage werden sicher geänderte Bedingungen bei der BE-Auflösung vorliegen, deren Einfluß auf die Anwendbarkeit der Isotopenkorrelationstechnik untersucht werden müßte. Eine diesbezügliche Studie ist vorgesehen.

Die Vergiftung von Brennstäben mit Gd scheint bei hohen Abbränden geringen Einfluß auf die normale Pu-Isotopenbildung zu haben. Erste Nachbestrahlungsdaten müssen im Hinblick auf die Anwendbarkeit der Isotopenkorrelations-technik untersucht werden.

Die Pu-Rückführung in thermischen und schnellen Reaktoren beeinträchtigt die Pu-Isotopenkorrelationen entscheidend. Erste Untersuchungen werden auf diesem Gebiet begonnen.

Literaturnachweis:

- /1/ L. Koch, M. Bresesti, Journ. of the Institute of
Nuclear Materials Management, Vol. IV
No. III, P. 498 (1975)
- /2/ L. Koch, G. Cottone, Reaktortagung 1973, p. 338 (1973)
- /3/ V. Sukhoruchkin IAEA/STR-52 (1976)
- /4/ W. Beyrich, E. Drosselmeyer (editors), KFK 1905 (1975)