

KfK 2971
Mai 1980

Projekt Spaltstoffflußkontrolle

Jahresbericht 1978

Herausgeber: H.-R. Mache
Projekt Spaltstoffflußkontrolle

Kernforschungszentrum Karlsruhe

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

Projekt Spaltstoffflußkontrolle

KfK 2971

Projekt Spaltstoffflußkontrolle
Jahresbericht 1978

Herausgeber: H.-R. Mache

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH, Karlsruhe

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

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH
ISSN 0303-4003

Annual Report of the Nuclear Safeguards Project 1978

Summary

The present report describes the major activities carried out in 1978 in the framework of the Nuclear Safeguards Project by the institutes of the Kernforschungszentrum Karlsruhe, Kernforschungsanlage Jülich, the European Institute of Transuranium Elements and some industrial firms.

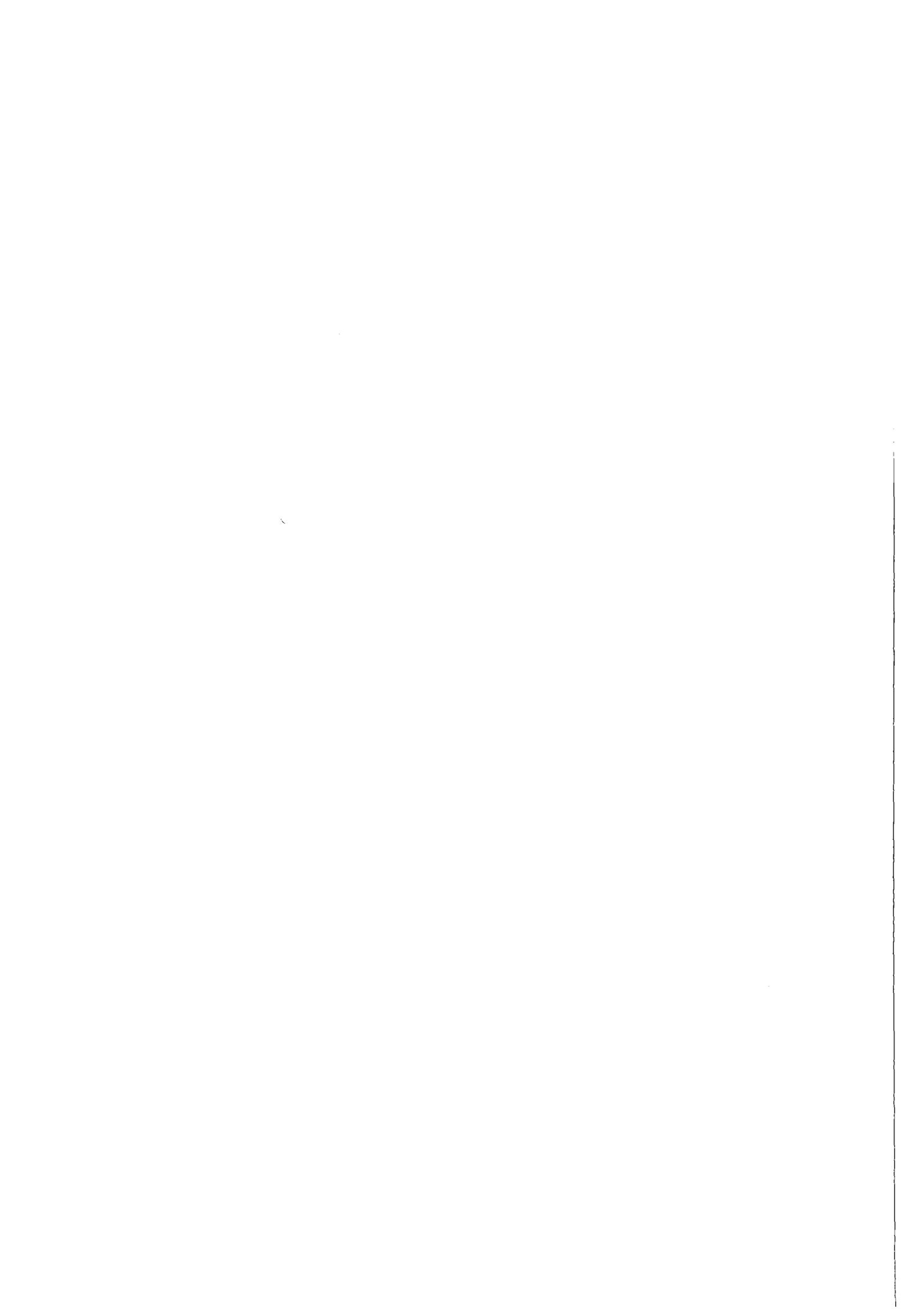
Zusammenfassung

Der vorliegende Bericht beschreibt die Arbeiten am Projekt Spaltstoffflußkontrolle, die von den an diesem Projekt beteiligten Instituten des Kernforschungszentrums Karlsruhe, der Kernforschungsanlage Jülich, dem Europäischen Institut für Transurane und einigen Industriefirmen im wesentlichen im Jahre 1978 durchgeführt wurden.

Dieser Bericht enthält Beiträge von

R. Avenhaus¹⁾, W. Bahm²⁾, H. Bernhardt³⁾, W. Beyrich²⁾, U. Bicking²⁾, G. Bork⁴⁾
E. de Braga Melo¹¹⁾, R. Braun³⁾, Chr. Brückner⁴⁾, R. Buttler⁷⁾, P.P. Chakraborty⁹⁾,
S.J. Choithramani⁹⁾, H. Deutsch³⁾, H. Eberle⁶⁾, W. Eyrich⁵⁾, S. Flach³⁾, H. Frick¹⁾,
E. Gantner³⁾, W. Golly²⁾, D. Gupta²⁾, M. Hartmann³⁾, M.R. Iyer⁹⁾, A. Jaeschke¹⁾,
V. Jarsch¹⁾, R. Kerpe¹⁾, L. Koch⁸⁾, , M. Kühle⁵⁾, W.D. Lauppe⁷⁾, H.-R. Mache²⁾,
E. Mainka³⁾, M. Marzo¹⁰⁾, P. Matussek⁶⁾, I. Michel-Piper⁶⁾, E. Mönnich²⁾, J. Neuber³⁾,
St. Nicolai⁷⁾, S. Onnen¹⁾, H. Ottmar⁶⁾, K.H. Pfeffer⁴⁾, F.J. Polster¹⁾, W. Rust²⁾,
W. Scheuerpflug²⁾, S. Schoof³⁾, D. Sellinschegg²⁾, M. Shafiee⁵⁾, G. Spannagel¹⁾,
G. Tretter²⁾, F. Voß²⁾, J. Weppner²⁾, H.W. Wiese⁵⁾, J. Voit¹⁾.

- 1) Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH., Institut für Datenverarbeitung in der Technik
- 2) Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH., Entwicklungsabteilung Kernmaterial-sicherung
- 3) Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH., Institut für Radiochemie
- 4) Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH., Hauptabteilung Sicherheit
- 5) Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH., Institut für Neutronenphysik und Reaktortechnik
- 6) Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH., Institut für Angewandte Kernphysik
- 7) Kernforschungsanlage Jülich
- 8) Europäisches Institut für Transurane
- 9) delegiert vom Bhabha Atomic Research Centre, Trombay, Indien
- 10) delegiert vom Instituto de Energia Atomica, Sao Paulo, Brasilien
- 11) CNEN, Comissao Nacional de Energia Nuclear, Brasilien



Inhaltsübersicht

Seite

Einführung	
D. Gupta, H.-R. Mache	
1. <u>Entwicklung von Konzepten und Systemen</u> <u>zur Kernmaterialüberwachung</u> (Vorhaben 07.01.02)	
1.1 Überwachungskonzepte für typische kerntechnische Anlagen	1-1
1.1.1 Einleitung	1-1
1.1.2 Überwachungsmaßnahmen in der SNEAK	1-1
1.1.3 Überwachungskonzept für Anreicherungsanlagen nach dem Trenndüsenverfahren	1-3
1.1.4 Bestandsaufnahme zur Überwachung kerntechnischer Anlagen in der Bundesrepublik	1-4
1.2 Theoretische Analyse der Pu/U/D ²³⁵ -Korrelationstechnik	1-5
1.3 Systemanalytische Untersuchungen von Materialbilanzierungsfragen	1-9
1.4 DV-Systeme für die Kernmaterialüberwachung im KfK	1-12
1.5 Literaturverzeichnis zu Kapitel 1	1-16
2. <u>Implementierung von Überwachungssystemen</u> (Vorhaben 07.01.03)	
2.1 Einführung der EURATOM/IAEO-Kernmaterialüberwachung in kerntechnischen Anlagen; Entwicklung von Containment/Surveillance-Einrichtungen	2-1

	<u>Seite</u>
2.1.1 Übersicht über die Arbeiten	2-1
2.1.2 Konzept für die Durchführung der Kernmaterialüberwachung nach dem Verifikationsabkommen im Kernforschungszentrum Karlsruhe	2-3
2.2 Implementierung von direkten Methoden	2-6
2.2.1 Entwicklungsstand des automatischen Röntgenfluoreszenz-analysensystems für die on-line-Analyse von Uran und Plutonium in der WAK	2-6
2.3 Implementierung von zerstörungsfreien Methoden	2-8
2.3.1 In-Line-Meßsystem zur Bestimmung der ²³⁵ U-Anreicherung in einer LWR-Brennelementfabrikationsanlage	2-8
2.3.2 Herstellung von physikalischen Standards für gamma-spektrometrische ²³⁵ U-Anreicherungsmessungen	2-9
2.3.3 Anlage zur Bestimmung des Plutoniumgehaltes von schwach- und mittelaktiven Abfällen in 200-l-Fässern	2-10
2.4 Kernmaterial-Überwachungssystem für Forschungszentren	2-13
2.5 Kontrollsystem für den Kugelhaufenreaktor THTR-300	2-19
2.6 Literaturverzeichnis zu Kapitel 2	2-22
3. <u>Entwicklung und Erprobung von Verfahren und Komponenten im Zusammenhang mit der Kernmaterialüberwachung</u> (Vorhaben 07.01.04)	
3.1 Direkte Methoden	3-1

	<u>Seite</u>
3.1.1 Einführung	3-1
3.1.2 Serviceanalysen	3-1
3.1.3 Entwicklung von Analysenverfahren	3-2
3.1.3.1 Automatisches Massenspektrometer	3-2
3.1.3.2 Isotopenkorrelationsexperiment	3-2
3.2 Zerstörungsfreie Methoden	3-4
3.2.1 Pu/U-Verhältnisbestimmung in Mischverbindungen von Uran und Plutonium	3-4
3.2.2 Gammaskopmetrische Plutoniumisotopenanalyse	3-4
3.2.3 Gammaabsorptiometrie zur Bestimmung der Konzentration von Aktiniden in Lösungen	3-6
3.2.4 Meßgerät zur Bestimmung des Plutoniumgehaltes in kleinen Abfallbehältern durch Messung der Gamma- eigenstrahlung	3-9
3.3 Interlaboratoriumstests	3-11
3.3.1 Interlaboratoriumstest "AS-76"	3-11
3.3.2 Interlaboratoriumstest "IDA-78"	3-12
3.3.3 Entwicklung eines Verfahrens zur Beurteilung analytischer Interlabordifferenzen	3-12
3.3.4 Interlaboratoriumstest für Plutonium-Isotopen- verhältnismessungen durch Gammaskopmetrie	3-15
3.4 Literaturverzeichnis zu Kapitel 3	3-18

Anhang A: Verzeichnis der Veröffentlichungen des
Projektes SpFK für das Jahr 1978

Anhang B: Verzeichnis der Primärberichte des Projektes
SpFK für das Jahr 1978

Anhang C: Abkürzungsverzeichnis

Einführung

D. Gupta, H.-R. Mache

Unter Berücksichtigung politischer und wirtschaftlicher Randbedingungen werden im Projekt Spaltstoffflußkontrolle technisch-wissenschaftliche Grundlagen für die internationale Überwachung von Kernmaterialien und kerntechnischen Einrichtungen erarbeitet. Mit den Forschungs- und Entwicklungsarbeiten zur Kernmaterialüberwachung sollen einerseits die Überwachungsbehörden und das BMFT und zum anderen Betreiber und Errichter von kerntechnischen Anlagen in der Bundesrepublik unterstützt werden, mit vernünftigem Aufwand den internationalen Verpflichtungen (EURATOM- und IAEO-Überwachung nach dem EURATOM- bzw. NV-Vertrag) nachzukommen.

Im vorliegenden Bericht werden die im Jahr 1978 im Rahmen des Projektes Spaltstoffflußkontrolle erzielten Ergebnisse zusammengefaßt. Wie im Jahresbericht 1977 (KfK 2681) sind die Beiträge der Institute und Abteilungen entsprechend den Forschungsvorhaben des Kernforschungszentrums Karlsruhe geordnet. Die im Berichtszeitraum erstellten Veröffentlichungen und Primärberichte sind in den Anhängen A und B zusammengestellt.

Kapitel 1 faßt die Ergebnisse zum Forschungsvorhaben "Entwicklung von Konzepten und Systemen zur Kernmaterialüberwachung" zusammen. Die 1977 begonnene Analyse zur Kernmaterialbilanzierung und Datenverifikation in der KfK wurde abgeschlossen. Dabei zeichnete sich die SNEAK als eine Anlage mit besonders hohem Kernmaterialbestand aus, dessen Überwachung einige Schwierigkeiten beinhaltete. Durch die Entwicklung eines alternativen Überwachungskonzeptes konnte eine für Überwachungsbehörden und Betreiber akzeptierbare Lösung gefunden werden, die überwiegend auf Containment- und Surveillance-Maßnahmen beruht. Zu den verschiedenen anderen kerntechnischen Einrichtungen der KfK wurde mit IAEO und EURATOM über die "Anlagenspezifischen Anhänge" verhandelt, wobei eigene konzeptionelle Überlegungen einfließen (Einzelheiten dazu in Kapitel 2.1.2).

Zur Entwicklung des Überwachungskonzeptes für Trenndüsenanlagen wurde der Ablaufplan zur Aufnahme des realen Kernmaterialbestandes detailliert und die experimentelle Erprobung vorbereitet. Die Bestandsaufnahme zur Überwachung kerntechnischer Anlagen der Bundesrepublik zeigt, daß bei der gegenwärtigen Überwachungspraxis keine grundlegenden Schwierigkeiten bestehen.

Mit Hilfe der Isotopenkorrelationstechnik wurde für einen 1300-MWe-Druckwasserreaktor und für Abbrände von 10.000-40.000 MWD/t Uran eine lineare Korrelation für die Elemente Pu/U/abgereichertes U-235 gefunden. Durch spieltheoretische Ansätze wurde eine Möglichkeit zur Bestimmung des optimalen Stichprobenumfangs für die Inspektionsbehörde zur effektiven Aufdeckung von Datenverfälschungen aufgezeigt. Das gegenwärtige Überwachungssystem der IAEA wurde auf seine Parameter untersucht, die sich einerseits aus allgemein akzeptierbaren Kriterien ableiten oder andererseits unter Berücksichtigung halbquantitativer und qualitativer Argumente festgelegt werden müssen.

Die Realisierung des KfK-internen DV-Systems für die Kernmaterialüberwachung wurde mit der endgültigen Festlegung der Datenstruktur und der Implementierung des Datenverwaltungssystems und wesentlicher Teile des Systemkerns fortgesetzt.

Im Kapitel 2 werden die Arbeiten zum Forschungsvorhaben "Implementierung von Überwachungssystemen" wiedergegeben.

Zur Bestimmung der U-235-Anreicherung von LWR-Brennstoff wurde ein In-Line-Meßgerät für den Routinebetrieb entwickelt, das 1979 bei RBU eingesetzt werden soll. Die Arbeiten zur Automatisierung des Röntgenfluoreszenzmeßsystems für die WAK werden fortgesetzt.

Für den Nachweis geringer Restmengen von Pu in 200-l-Abfallfässern wurde Neutronenmeßanordnung bis zum Routineeinsatz bei ADB entwickelt. An der Entwicklung von Brennelementsiegeln für LWR wurde weitergearbeitet. Eine erste Version eines Kamerasystems für den Einsatz in der Kernmaterialüberwachung wurde fertiggestellt und zum Test der IAEA übergeben.

Als Beitrag der KFA Jülich an den F+E-Arbeiten des Projektes Spaltstoffflußkontrolle wurde im Berichtsjahr 1978 das Kernmaterialbilanzierungs- und -kontrollsystem der KFA Jülich im Teilbereich Heiße Zellen auf dem zentralen IBM-Rechner realisiert und erprobt sowie das zugehörige Meßsystem zur Verifikation der Kerndaten weiter entwickelt. Für den Kugelhaufenreaktor THTR-300 wurde versucht, ein Überwachungskonzept zu entwerfen, das weitgehend auf bereits von den Überwachungsbehörden anerkannte und erprobte Verfahren zurückgreift. Zur Lösung von Detailproblemen wurden Methoden zur Identifizierung der Kannen für abgebrannte Brennelemente des THTR-300 erarbeitet und Möglichkeiten zur geeig-

neten Versiegelung der betrieblich notwendigen Öffnungen in der Beschickungsanlage untersucht.

Die Arbeiten zum Vorhaben "Entwicklung und Erprobung von Verfahren und Komponenten im Zusammenhang mit der Kernmaterialüberwachung" werden in Kapitel 3 dargestellt. Sie umfassen verschiedenartige Tätigkeiten und reichen von den Untersuchungen von Meßmethoden für den Einsatz zur Kernmaterialüberwachung über die Durchführung von Isotopenkorrelationsexperimenten und Interlaboratoriumstests bis zu den unterstützenden Serviceanalysen.

Für die Konzentrationsbestimmung von Plutonium und Uran in Lösungen von Wiederaufarbeitungsanlagen wurden zwei unterschiedliche zerstörungsfreie Meßmethoden weiterentwickelt. Die Auswertung der Meßdaten von Interlaboratoriumstest AS-76 wurde weitgehend abgeschlossen; mit der Vorbereitung des Interlaboratoriumstests IDA-78 (massenspektrometrische Verdünnungsanalyse von Eingangslösungen aus Wiederaufarbeitungsanlagen) wurde begonnen.

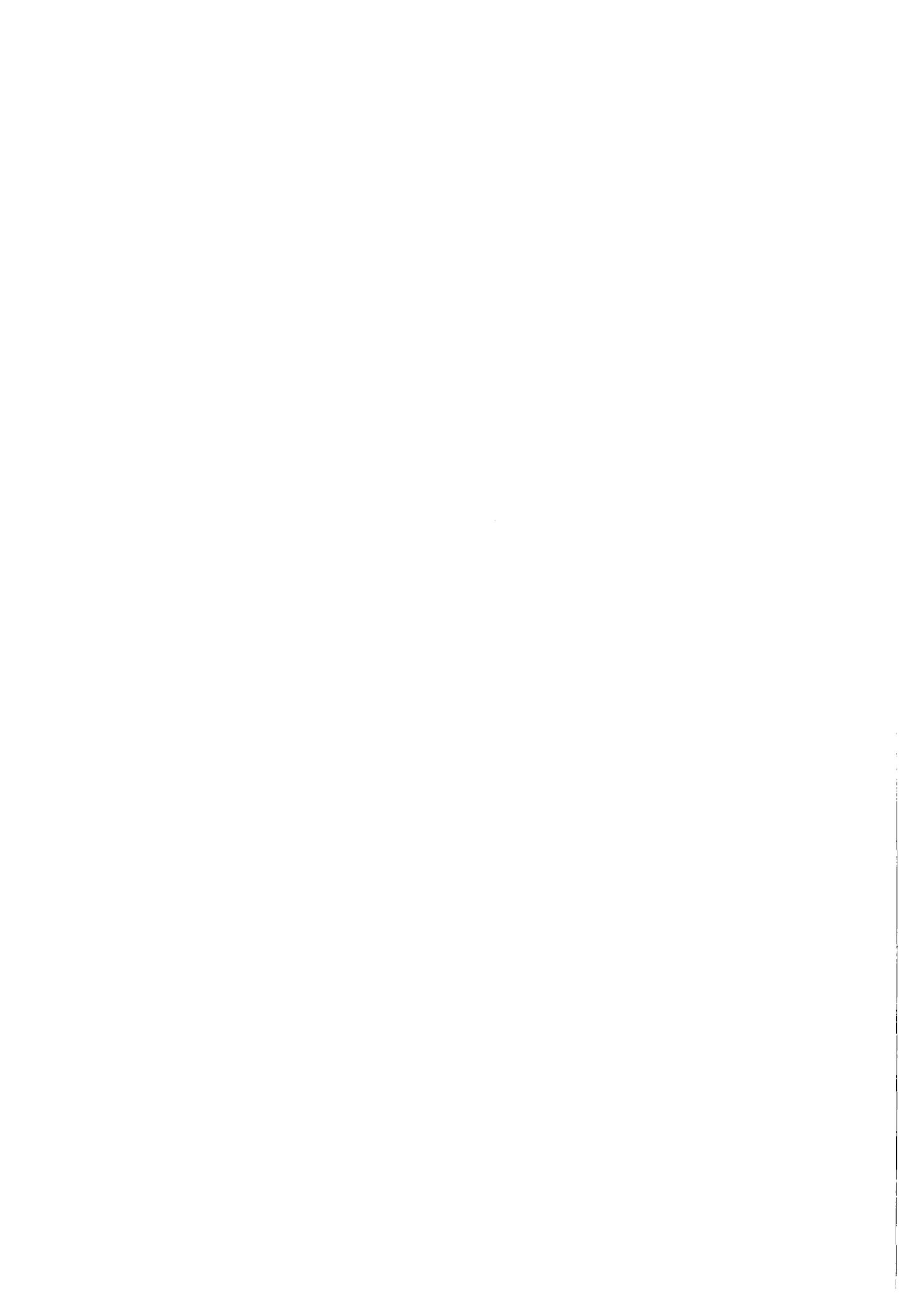
Die Arbeiten des Projektes wurden in enger internationaler Zusammenarbeit durchgeführt. Das Projekt hat innerhalb von SAGSI (Standing Advisory Group on Safe-guards Implementation der IAE0) aktiv bei den Diskussionen dahingehend mitgewirkt, daß die derzeitig von der IAE0 verwendeten qualitativen Zielvorstellungen hinsichtlich Menge und Entdeckungszeit nur vorübergehenden und keinen endgültigen Charakter haben. In mehreren Arbeitsgruppen der ESARDA (European Safe-guards Research and Development Association) wurden die im Projekt erzielten Arbeitsergebnisse eingebracht, und es wurde sich an den INFCE-Diskussionen (International Fuel Cycle Evaluation) durch Erarbeitung von Stellungnahmen zu verschiedenen Arbeitsunterlagen beteiligt.

Im Jahr 1978 wurde das IAE0-Unterstützungsprogramm der Bundesrepublik verabschiedet. Ein großer Teil der im Projekt erzielten Ergebnisse fließt unmittelbar in das Programm ein und stellt die Basis der 1979 voll anlaufenden F+E-Arbeiten zur Unterstützung der IAE0 dar. Das Projekt lieferte außerdem mehrere wissenschaftliche Beiträge für verschiedene internationale Symposien zur Kernmaterialüberwachung.

Inhaltsverzeichnis zu Kapitel 1

Seite

1.	<u>Entwicklung von Konzepten und Systemen</u> <u>zur Kernmaterialüberwachung</u> (Vorhaben 07.01.02)	
1.1	Überwachungskonzepte für typische kerntechnische Anlagen	1-1
1.1.1	Einleitung F. Voß	1-1
1.1.2	Überwachungsmaßnahmen in der SNEAK Chr. Brückner, E. Mönnich, W. Scheuerpflug, D. Sellinschegg, F. Voß	1-1
1.1.3	Überwachungskonzept für Anreicherungsanlagen nach dem Trenndüsenverfahren J. Weppner, W. Bahm, E. de Braga Melo	1-3
1.1.4	Bestandsaufnahme zur Überwachung kerntechnischer Anlagen in der Bundesrepublik U. Bicking, W. Golly, W. Rust, D. Sellinschegg, F. Voß	1-4
1.2	Theoretische Analyse der Pu/U/D ²³⁵ -Korrelationstechnik M. Marzo, H.W. Wiese	1-5
1.3	Systemanalytische Untersuchungen von Materialbilanzierungsfragen R. Avenhaus, H. Frick	1-9
1.4	DV-Systeme für die Kernmaterialüberwachung im KfK A. Jaeschke, V. Jarsch, R. Kerpe, S. Onnen, F.-J. Polster, G. Tretter, J. Voit	1-12
1.5	Literaturverzeichnis zu Kapitel 1	1-16



1. Entwicklung von Konzepten und Systemen zur Kernmaterialüberwachung
(Vorhaben 07.01.02)

1.1 Überwachungskonzepte für typische kerntechnische Anlagen

1.1.1 Einleitung

F. Voß

Im Bereich der Konzeptentwicklung lagen die Schwerpunkte bei der Bearbeitung von Überwachungsmaßnahmen für kerntechnische Einrichtungen des KfK (hauptsächlich für SNEAK) und bei der Fortführung der Erstellung eines Überwachungskonzepts für eine Trenndüsen-Urananreicherungsanlage. Die Bestandsaufnahme der Kernmaterialüberwachung in kerntechnischen Anlagen der Bundesrepublik wurde im begrenzten Umfang weitergeführt. Im Rahmen von INFCE wurde an der Erarbeitung von Stellungnahmen zu verschiedenen Arbeitsunterlagen mitgearbeitet.

1.1.2 Überwachungsmaßnahmen in der SNEAK

Chr. Brückner, E. Mönnich, W. Scheuerpflug, D. Sellinschegg, F. Voß

Die SNEAK-Anlage zeichnet sich durch einen besonders hohen Kernmaterialbestand aus, dessen Verteilung auf mehrere Bereiche, wie Kernmateriallager, Brennelementzwischenlager und Reaktor, sich ständig ändert, dessen Gesamtwert jedoch praktisch konstant ist. Das Kernmaterial hat die Form von Plättchen, Blöcken und ähnlichem, es wird betrieblich ausschließlich nach Stückzahl gehandhabt.

Die Forderungen der IAEA und EURATOM zu Beginn der Verhandlungen über die "Anlagen-spezifischen Anhänge" bestanden in der Kernmaterialbilanzierung mit zweimaliger Bestandsaufnahme und -prüfung pro Jahr und einer ständigen Verifikation der internen Kernmaterialbewegungen beim Be- und Entladen der Brennelemente und Versiegelungs- und Beobachtungsmaßnahmen zum Aufdecken nichtdeklarerter Bewegungen. Der Haupteinwand gegen diese Forderungen war, daß sie zu einer unzumutbaren Belastung des Betreibers führen würden, denn eine konventionelle reale Bestandsaufnahme kann mehrere Wochen oder unter Umständen sogar Monate dauern.

Es wurde daher ein alternatives Konzept entwickelt, das intensiven Gebrauch von Containment/Surveillance-Maßnahmen macht /1-3/. Dieses sieht vor:

- SNEAK bildet eine Anlage mit einer Materialbilanzzone, 3 Schlüsselmeßpunkten für Bestandsaufnahmen (Lager, Zwischenlager, Reaktor), mehreren strategischen Punkten für Beobachtungs- und Versiegelungsmaßnahmen und zusätzlichen strategischen Punkten für die Verifikation der internen Materialbewegungen (u.a. Umladebereich)
- je ein Inspektor von IAEO und EURATOM sind ständig anwesend
- eine Verifikation der internen Materialbewegungen wird durchgeführt über
 - stichprobenweise Verifikation des Inhalts von Lagerbehältern nach deren Beladung
 - Versiegelung von Lagerbehältern
 - stichprobenweise Verifikation von Brennelementen beim Beladen,
 - bei manueller Füllung: unmittelbar vor dem Beladen,
 - bei automatischer Füllung: Transfer zur Handfüllmaschine
 - Siegel an gefüllten Brennelementen
 - Kameraüberwachung des Brennelementzwischenlagers
 - Kameraüberwachung des Transfers von Brennelementen zwischen Core und Brennelementzwischenlager
 - Versiegelung von Brennelementen an Core-Positionen (einzeln oder in Gruppen), zu diesem Zweck wurde für SNEAK eine spezielle Versiegelungsvorrichtung entworfen
- zweimal im Jahr wird eine Bestandsverifikation durch Siegelprüfung durchgeführt
- eine Anfangsinventarverifikation, nach Versiegelung der Core-Positionen und Lagerbehälter am Stichtag, durch Verifizieren des Materials im Verlauf seiner Umladung während des nächsten Jahres.

Der wesentliche Vorteil gegenüber konventionellen Maßnahmen resultiert aus der Brennelement- und vor allem der Positionsversiegelung, wozu für SNEAK spezielle Versiegelungseinrichtungen entworfen wurden. Die routinemäßigen realen Bestandsaufnahmen und die Verifikation reduzieren sich damit auf eine Überprüfung der Integrität der Siegel und eine Identitätsprüfung der Brennelemente. Das Konzept

wurde von den Überwachungsbehörden akzeptiert.

Die vorgeschlagenen Maßnahmen wurden in erster Linie eingeführt, um das zeitraubende Entladen des Cores zur Verifikation zu vermeiden. Sie ermöglichen jedoch, ohne zusätzlichen Aufwand das von der IAEA in sensitiven Anlagen angestrebte Ziel der schnellen Entdeckung einer abrupten Abzweigung zu erreichen.

1.1.3 Überwachungskonzept für Anreicherungsanlagen nach dem Trenndüsenverfahren

J. Weppner, W. Bahm, E. de Brago Melo

Zur Detaillierung und Absicherung des entwickelten Überwachungskonzepts für die Trenndüsenanlage wurden hauptsächlich die folgenden Arbeiten durchgeführt:

- Aufstellung eines detaillierten Ablaufplanes zur Aufnahme des Kernmaterialbestandes in der Trenndüsenanlage,
- Abschätzung des Inventuraufwandes für Betreiber und Überwachungsbehörde,
- Durchführung von Vorversuchen am Kreislauf zur kontinuierlichen UF_6 -Verflüssigung (Normetex-Loop).

Es zeigt sich, daß eine vollständige, verifizierbare Bestandsaufnahme ohne Unterbrechung des Anlagenbetriebs bei geringem zeitlichen Aufwand für Betreiber und Überwachungsbehörde möglich ist. Im einzelnen ist nach vorliegender Abschätzung mit einem zeitlichen Inventuraufwand von

ca. 220 Mannstunden für den Betreiber, sowie
ca. 150 " " die Überwachungsbehörde

zu rechnen (Demo-Anlage, ungefähr 200 t SWU/a).

Die Vorversuche am Normetex-Loop, die im wesentlichen aus der Aufnahme der Füllstandskennlinie bestanden, ergaben, daß eine genaue Ausrichtung des Pufferbehälters wegen der Einbauten und der Geometrie für die Reproduzierbarkeit der Füllstandsmessung unbedingt erforderlich ist.

Die bisher erarbeiteten Ergebnisse wurden unter besonderer Berücksichtigung der für die Aufnahme des realen Kernmaterialbestandes vorgeschlagenen Prozeduren zusammengestellt /1-4/ und /1-5/. Die Arbeiten wurden in Zusammenarbeit mit der Fa. Interatom durchgeführt.

1.1.4 Bestandsaufnahme zur Überwachung kerntechnischer Anlagen in der Bundesrepublik

U. Bicking, W. Golly, W. Rust, D. Sellinschegg, F. Voß

Die Bestandsaufnahme der Kernmaterialüberwachung in kerntechnischen Anlagen der Bundesrepublik erbrachte bisher als wesentliches Teilergebnis, daß es in den bestehenden Anlagen keine grundsätzlichen Schwierigkeiten gibt, die derzeitigen IAEÜ-Überwachungsziele zu erreichen /1-7/. Unter Umständen ergeben sich jedoch Probleme, wenn die in der Diskussion befindlichen kurzen Entdeckungszeiten von 1-2 Wochen verbindlich werden sollten. Weiterhin zeigte die Bestandsaufnahme, daß in den Berechnungen von $\sigma(\text{MUF})$ in den meisten Fällen Unabhängigkeit aller Meßfehler angenommen wird. Diese Voraussetzung wird in der Praxis sehr oft nicht erfüllt und führt daher möglicherweise zu großen Verfälschungen des Ergebnisses. Um in Zukunft auch mit realistischen Annahmen rechnen zu können, wurde ein Rechenprogramm auf der Basis des im IAEA Safeguards Technical Manual, Part F, angegebenen Verfahrens erstellt, das auch Korrelationen zwischen verschiedenen Meßfehlern berücksichtigt.

Die Untersuchungen über die Auslegung und Planung einer überwachungs- und sicherheitstechnisch optimierten Fabrikationsanlage zur Verarbeitung hochangereicherten Urans im Rahmen des NUKEM-II-Vertrags wurden bereits im Jahresbericht 1977 des PSpFK /1-6/ ausführlich dargestellt. Die Ergebnisse dazu liegen nun in geschlossener Form als Abschlußbericht vor /1-2/. Ebenso konnte die Analyse zu der Materialbilanzierung und Datenverifikation im KfK nach teilweiser Überarbeitung vollständig fertiggestellt und als Grundlage für Verhandlungen mit den Überwachungsbehörden bereitgestellt werden /1-1/.

Im Rahmen der INFCE-Diskussionen wurden Stellungnahmen zu Arbeitspapieren der Arbeitsgruppe 4 und 5 (Wiederaufarbeitung, Plutoniumhandhabung bzw. Schneller Brüter) erarbeitet. Schwerpunkt war dabei die Beurteilung der Proliferationsresistenz verschiedener Brennstoffkreisläufe. Die wichtigste Schlußfolgerung bestand darin, daß unter langfristigen Aspekten keiner der betrachteten Zyklen (LWR-Once-Through, LWR mit Recycling, SBR) inhärent wesentlich proliferationsresistenter ist als andere. Technische Alternativen (wie Civex oder Spiking) erschweren lediglich die Entwendung durch subnationale Gruppen. Für die Proliferation auf staatlicher Ebene stellen sie aber kein wesentlich größeres Hindernis dar; sie erschweren vielmehr viele der bewährten Überwachungsmaßnahmen oder machen sie sogar undurchführbar.

1.2 Theoretische Analyse der Pu/U/D²³⁵-Korrelation

M. Marzo, H.W. Wiese

Einführung

Die Pu/U/D²³⁵-Korrelation erlaubt bei bekannter U²³⁵-Abreicherung (D²³⁵) einen unmittelbaren Rückschluß auf das Pu/U-Verhältnis und gestattet so eine Kontrolle des im Eingangstank der Wiederaufarbeitungsanlage vom Betreiber gemessenen Pu/U-Wertes.

Problemstellung

Die bisherigen experimentellen Befunde und theoretischen Untersuchungen /1-8/, /1-9/, /1-10/ zu dieser Korrelation hatten innerhalb der Meßgenauigkeit abbrand-unabhängige Pu/U/D²³⁵-Werte für Abbrände von unter 10 000 bis etwa 30 000 MWd/tU geliefert. Dabei war u.a. offen geblieben,

- aufgrund welcher physikalischen Zusammenhänge dieses Verhalten zustande kommt,
- welcher Verlauf für Abbrände über 30 000 MWd/tU in modernen Reaktoren zu erwarten ist,
- wie Reaktor- und Brennstoffparameter, z.B. die Anfangsanreicherung, in den Korrelationswert eingehen.

Durch die am Beispiel eines 1300 MWe-Druckwasserreaktors vom Typ BIBLIS-B vorgenommenen Untersuchungen konnte ein großer Teil dieser Fragen geklärt werden /1-11/.

Lösungsweg

Es wurde ein einfaches, räumlich nulldimensionales Modell benutzt, in dem die den Plutoniumaufbau beschreibenden Abbrandgleichungen analytisch gelöst werden können. Denn eine Untersuchung dieser Fragen mit numerischen mehrdimensionalen Abbrandrechnungen liefert bei relativ großem Aufwand nur wenig Einsicht in die inneren Zusammenhänge. Wegen der Durchmischung des Brennstoffes im Eingangstank der Wiederaufbereitungsanlage genügt es, räumliche Effekte, die nur im Sinne

einer Mittelwertbildung eine Rolle spielen, durch eine nachträgliche zweidimensionale Rechnung zu berücksichtigen. Die im Modell verknüpften Nuklide sind U^{235} , U^{236} , U^{238} , Np^{237} , Pu^{238} , Pu^{239} , Pu^{240} , Pu^{241} und Pu^{242} .

Die wichtigsten, in einem nulldimensionalen Modell erfaßbaren Einflußgrößen, die sich mit der Nuklidzusammensetzung und damit mit dem Abbrand ändernden effektiven Neutronenwirkungsquerschnitte, wurden über Stufenfunktionen in die Modellrechnung eingebracht. Die Bereitstellung der Wirkungsquerschnitte unter Berücksichtigung des Einflusses von B^{10} , von lokalen Heterogenitätseffekten und von Spaltprodukten erfolgte außerhalb des Modelles unter Einsatz erprobter Zell- und Abbrandprogramme sowie durch Zugriff auf die Karlsruher Kerndatenbibliothek KEDAK-3 /1-12/.

Ergebnisse

Die Ermittlung der Korrelation auf der Basis des Modells liefert eine Konstanz der Korrelationswerte $Pu/U/D^{235}$ bis auf ± 0.65 % zwischen 10 000 und 40 000 MWd/tU Abbrand. Mit den zum Vergleich und zur Absicherung herangezogenen Wirkungsquerschnitten des LEOPARD-Programms /1-13/ findet man einen auf ± 1.35 % konstanten Verlauf. Der Einsatz von HAMMER+ORIGEN-Querschnitten /1-14/, /1-15/ liefert eine Änderung von ± 2 % in der Korrelation im selben Abbrandintervall. Die zugehörigen Korrelationsverläufe sind in Abb. 1-1 dargestellt.

Die Korrelation ist sensitiv, vor allem bezüglich der Abbrandabhängigkeit der Pu^{239} - und Pu^{240} -Querschnitte. Bei Vernachlässigung der Abbrandabhängigkeit wird die Korrelation mit dem Abbrand zunehmend zu klein berechnet und zwar um 8 % bei Pu^{239} und um 4 % bei Pu^{240} bei einem Abbrand von 40 000 MWd/tU. Die Korrelation ist sensitiv bezüglich des Einflusses der Heterogenität der Brennstäbe: Dessen Berücksichtigung in der Wignerschen rationalen Näherung vergrößert die Eingruppenneutronenwirkungsquerschnitte bis 35 % und bewirkt eine abbrandunabhängige deutliche Zunahme der Korrelationswerte. Bei weiterführenden Untersuchungen, besonders im Zusammenhang mit Siedewasserreaktoren, bei denen Voideffekte eine Rolle spielen, ist eine genauere Behandlung der Heterogenität erforderlich. Der von den heutigen Unsicherheiten in den nuklearen Daten der thermischen Wirkungsquerschnitte und Resonanzintegrale zu erwartende Fehler bei der Berechnung der Korrelation beläuft sich bei Erhaltung des konstanten Verlaufs auf maximal ± 4 %.

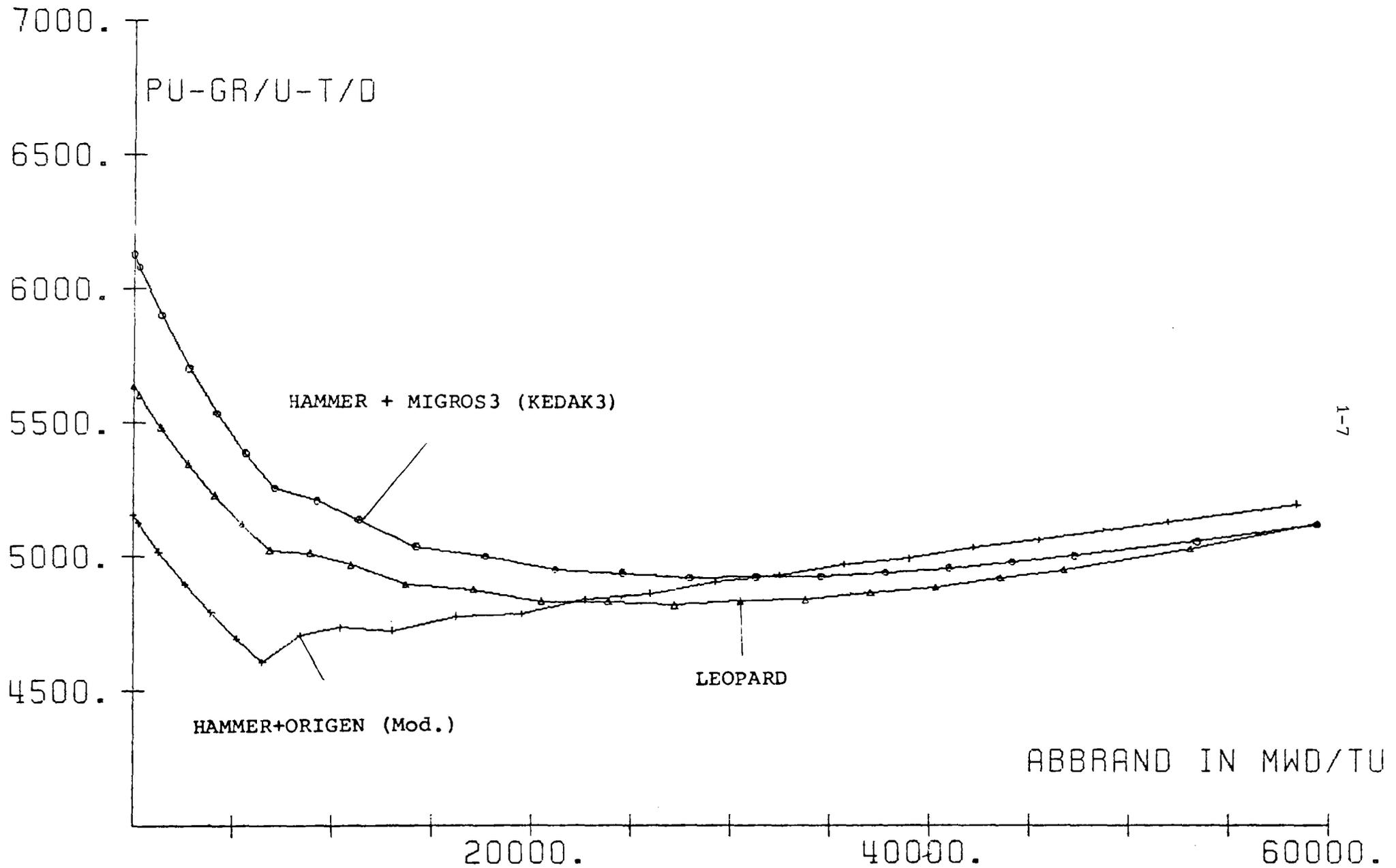


Abb. 1-1: KORRELATION PU/U/D AUS UNTERSCHIEDL. QUERSCHNITTSSAETZEN

Die Abschätzung des Einflusses des radioaktiven Zerfalls während der Kühlzeit ergibt eine Absenkung der Korrelation um 1.6 % in 2 Jahren, die überwiegend durch den β -Zerfall von Pu^{241} verursacht wird. Die Konstanz wird dadurch verbessert; dies ist auch bei einer Berücksichtigung des Zerfalls während der Bestrahlung durch eine genauere Rechnung zu erwarten.

Im Bereich der untersuchten U^{235} -Anfangsanreicherungen zwischen 1.9 % und 3.2 % (BIBLIS-B) ist die Korrelation besser als auf $3 \cdot 10^{-4}$ % umgekehrt proportional zur Anfangsanreicherung.

Zur Ermittlung des Einflusses der ortsabhängigen Bestrahlung wurden zweidimensionale Abbrandrechnungen mit dem Rechenprogramm CITATION /1-16/ vorbereitet und durchgeführt. Für einen Abbrand von 15 000 MWd/tU ergab sich dabei für Brennelemente gleicher Anfangsanreicherung eine Schwankung von etwa 1 % im Korrelationswert. Ein Vergleich mit Messungen aus dem Isotopenkorrelationsexperiment der ESARDA für KWO-Brennelemente wurde begonnen. Die bisherigen Ergebnisse sind im Rahmen der Unterschiede in den Messungen verschiedener Labors vernünftig.

Schlußbemerkung und Ausblick

Die durchgeführte Untersuchung liefert die theoretische Interpretation und Untermauerung der experimentell für Abbrände bis etwa 30 000 MWd/tU als konstant innerhalb der Meßgenauigkeit ermittelten $\text{Pu}/\text{U}/\text{D}^{235}$ -Korrelation. Aus den Modellrechnungen ergibt sich eine Fortsetzung dieses Verlaufs bis zu Abbränden über 40 000 MWd/tU. Die Änderung des Korrelationswertes mit dem Bestrahlungsort ist bei gleicher Anfangsanreicherung von etwa gleicher Größe wie die Abweichung vom konstanten Verlauf.

Die Arbeiten werden mit dem Vergleich zum Experiment als Schwerpunkt fortgeführt. Die dazu erforderliche höhere Genauigkeit der abbrandabhängigen Wirkungsquerschnitte und die Berücksichtigung aller relevanten Nuklidketten wird durch den Einsatz von umfangreichen Zellcodes und Abbrandprogrammen erreicht werden.

1.3 Systemanalytische Untersuchungen von Materialbilanzierungsfragen

R. Avenhaus, H. Frick

Die systemanalytischen Untersuchungen konzentrierten sich auf drei Themenkreise:

- Die Verifikation von Inventardaten,
- die geeignete Fortschreibung von MUF-Daten und
- die geeignete Berücksichtigung von Inspektor-Daten bei der Erstellung der Materialbilanz.

Die allgemeinen Untersuchungen zur Frage der Zahl der festzulegenden Parameter bei der Einrichtung eines internationalen Überwachungssystems in einem Staat wurde vorläufig abgeschlossen und über die erzielten Ergebnisse wurde berichtet /1-17/.

Verifikation von Inventardaten /1-18/

Es wurde die folgende Fragestellung behandelt: Betrachtet werden R Materialklassen, wobei die i-te Materialklasse N_i -Einheiten umfaßt, deren Verifikation den Aufwand ε_i erfordert. Es wird weiter angenommen, daß der Betreiber, falls er die Daten einer Einheit der i-ten Klasse verfälscht, diese um den klassenspezifischen Betrag μ_i verfälscht. Gesucht sind zu vorgegebenem Gesamtüberwachungsaufwand

$$C = \sum_i \varepsilon_i \cdot n_i ,$$

wobei n_i die Zahl der verifizierten Einheiten in der i-ten Klasse ist, und zu vorgegebener Gesamt-Datenverfälschung

$$M = \sum_i \mu_i \cdot r_i ,$$

wobei r_i die Zahl der gefälschten Einheiten in der i-ten Klasse ist, die optimalen Stichprobenumfänge n_i^* der Inspektionsbehörde, die optimalen Verfälschungszahlen r_i^* des Anlage-Betreibers sowie die resultierende Entdeckungswahrscheinlichkeit $1-\beta(\underline{n}^*, \underline{r}^*)$.

Für den Fall, daß Meßfehler vernachlässigt werden können, d.h. für den Fall, daß Fehlalarme ausgeschlossen sind, ergab die spieltheoretische Analyse, daß es genügt, die Gesamt-Entdeckungswahrscheinlichkeit

$$1-\beta(\underline{n}, \underline{r}) = 1 - \prod_i \left(1 - \frac{r_i}{N_i}\right)^{n_i}$$

unter den oben angegebenen Randbedingungen bezüglich der n_i zu maximieren, und bezüglich der r_i zu minimieren, d.h. daß es genügt, einen Sattelpunkt der Funktion $1-\beta(\underline{n}, \underline{r})$ im Definitionsbereich zu bestimmen.

Unter der Annahme, daß die Stichprobenumfänge näherungsweise als kontinuierliche Variable aufgebaut werden können, ergab sich folgende Lösung:

$$n_i^* = \frac{C}{\sum_j \mu_j \cdot \varepsilon_j \cdot N_j} \cdot \mu_i \cdot N_i \cdot \exp(-\kappa \cdot \varepsilon_i),$$

$$r_i^* = N_i \cdot (1 - \exp(-\kappa \cdot \varepsilon_i)) \quad , \quad i=1 \dots R$$

$$1-\beta(\underline{n}^*, \underline{r}^*) = 1 - \exp(-\kappa \cdot C)$$

wobei κ eindeutig bestimmt ist durch

$$\sum_i \mu_i \cdot N_i \cdot \exp(-\kappa \cdot \varepsilon_i) = \sum_i \mu_i \cdot N_i \cdot M \quad .$$

Für $r_i \cdot n_i \ll N_i$ stimmt diese Lösung mit einer Lösung überein, die schon früher abgeleitet wurde:

$$n_i^* = \frac{C}{\sum_j \mu_j \cdot \varepsilon_j \cdot N_j} \cdot \mu_i \cdot N_i$$

$$r_i^* = \frac{M}{\sum_j \mu_j \cdot \varepsilon_j \cdot N_j} \cdot \varepsilon_i \cdot N_i \quad , \quad i=1 \dots R \quad .$$

Diese Lösung soll exemplarisch auf die Inventur in einer Fabrikationsanlage im Rahmen eines Forschungsauftrages des Joint Research Centre Ispra an das Kernforschungszentrum angewendet werden.

Fortschreibung von MUF-Daten /1-19/, /1-20/

In letzter Zeit wurden von amerikanischer Seite aus neuere Überlegungen zur besseren Ausnutzung der Materialbilanzdaten angestellt, die dahingehen, geeignete Linearkombinationen von MUF-Daten einer Referenzzeit (z.B. ein Jahr) zu bilden. Obwohl es aus prinzipiellen Gründen sehr bedenklich erscheint, diesen Weg zu gehen, da zur Entlastung des Anlagen-Betreibers am Ende einer Inventurperiode abschließend festgestellt werden sollte, ob die Differenz zwischen Buch- und realem Inventar signifikant ist oder nicht, wurden diese Überlegungen aufgegriffen mit dem Ziel, die einschränkenden Aussagen über Entwendungsstrategien (gleiche Entwendung in allen Inventurperioden) zu verallgemeinern, um so zu einer fundierteren technisch-statistischen Bewertung dieser Überlegungen zu gelangen.

Es wurde unter anderem das folgende Resultat erzielt: Falls die Differenzen MUF_i , $i=1\dots n$, zwischen den Buch- und den realen Inventaren an den Enden der n Inventurperioden einer Referenzzeit zu einer Gesamtaussage zusammengefaßt werden sollen, besteht die optimale Vorgehensweise der Inspektionsbehörde zur Schätzung des gesamten im Referenzzeitraum entwendeten Materialbetrages gegen jede beliebige Entwendungsstrategie darin, die MUF_i mit gleichen Gewichten zu addieren.

Berücksichtigung von Inspektionsdaten bei der Erstellung der Materialbilanz /1-21/

Es wurde schon im Statistical Manual F der IAEO diskutiert, daß es neben dem ursprünglich vorgesehenen Verfahren - zuerst über die D-Statistik die Betreiber-Daten mit Hilfe von Inspektordaten zu überprüfen, und danach allein mit Hilfe der Betreiberdaten über die MUF-Statistik die Materialbilanz zu überprüfen - ein anderes Verfahren gebe, bei dem auch bei der Erstellung der Materialbilanz die Inspektordaten verwendet werden (die sogenannte MUF-D-Statistik). Für das letztgenannte Verfahren wurden allerdings nur qualitative Argumente angegeben.

Es wurde nun mit Hilfe des Lemma von Neyman und Pearson gezeigt /1-21/, daß unter der Annahme, daß der Betreiber, wenn überhaupt

- alle Materialdaten um einen klassenspezifischen Betrag fälscht,
und weiter
- eine optimale Aufteilung der Gesamtentwendung in Entwendung mittels Datenfälschung und in Entwendung durch Ausnützung der Unsicherheit der Materialbilanz vornimmt,

die MUF-D-Statistik optimal im Sinne der Entdeckungswahrscheinlichkeit ist.

Es wurde in dieser Arbeit allerdings auch darauf hingewiesen, daß dies eine rein statistische Argumentation ist, und daß gewichtige Gründe für das alte Verfahren sprechen.

1.4 DV-System für die Kernmaterialüberwachung im KfK

A. Jaeschke, V. Jarsch, R. Kerpe, S. Onnen, F.-J. Polster, G. Tretter,
J. Voit

Die Arbeiten am anwenderunabhängigen Systemkern des DV-Systems zur Spaltstoffflußkontrolle für Institute des Kernforschungszentrums Karlsruhe wurden fortgeführt /1-22/, /1-23/. Das Konzept für die Datenstruktur des Systems wurde an den Anforderungen der Institute und von EURATOM überprüft. Nach geringfügigen Modifikationen konnte der Umfang und die Struktur der Daten endgültig festgelegt werden. Die Datenstruktur sieht zur Beschreibung eines Kernmaterialobjekts drei unterschiedliche Datensätze vor (siehe Abb. 1-2). Der Materialdatensatz enthält sämtliche zur Beschreibung eines Kernmaterials erforderlichen Daten. Der Objektdatensatz umfaßt alle Daten zur eindeutigen Charakterisierung eines bestimmten Kernmaterialobjekts und einen Hinweis auf das im Objekt enthaltene Kernmaterial. Zur Beschreibung von Kernmaterialobjekten, die mehrere unterschiedliche Kernmaterialien enthalten, wird der Verbunddatensatz benötigt.

Parallel zur endgültigen Festlegung der Datenstruktur wurde das System der Grundfunktionen im Detail spezifiziert. Unter Grundfunktion ist dabei eine nicht weiter zerlegbare Operation mit Kernmaterial zu verstehen wie z.B. Transfer eines Kernmaterialobjekts, Zerlegung eines Objekts, Vereinigung

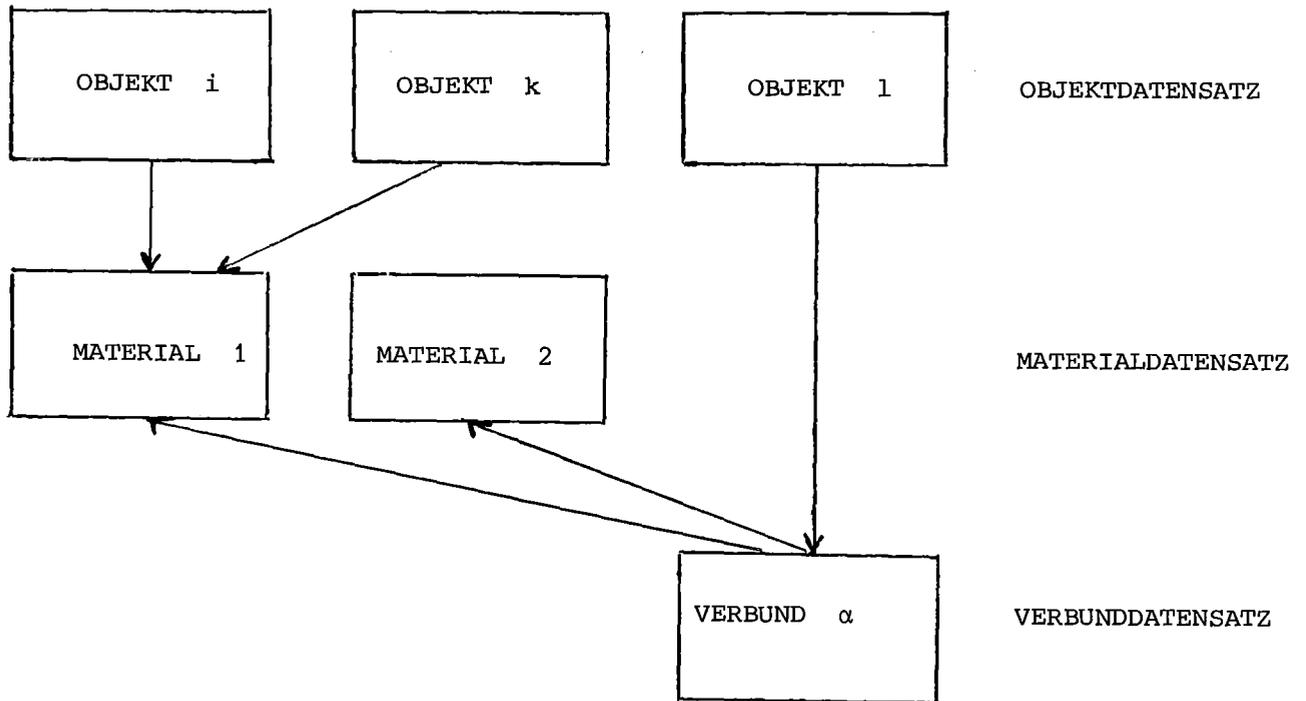


Abb. 1-2: Schematische Darstellung der Datenstruktur des DV-Systems für die Kernmaterialüberwachung

von Objekten usw. Das vollständige System von Grundfunktionen erlaubt es, jede Handhabung von Kernmaterial als eine Sequenz von Grundfunktionen darzustellen. Da jeder Grundfunktion im DV-System ein Softwaremodul entspricht, kann jede reale Handhabung von Kernmaterial, z.B. die Montage eines Brennelements, durch Aneinanderreihen der Moduln im Rechner beschrieben werden. Mit der softwaremäßigen Realisierung dieser Moduln wurde begonnen.

Um das für eine DV-mäßige Realisierung ideale, der Denkweise des Benutzers jedoch nicht angepaßte Konzept der Grundfunktion an den Sprachgebrauch des jeweiligen Benutzers anzupassen, verfügt das System über ein flexibles

Dialog-Interfacesystem. Dieses in Form einer Programmbibliothek auf der IBM-Großrechenanlage realisierte System wurde auf den SIEMENS-Prozeßrechner übertragen und an die spezielle SIEMENS-Hardware angepaßt.

Die Implementierung des DV-Systems für die Überwachung von SNEAK wurde vorrangig in Angriff genommen. In Zusammenarbeit mit der Hauptabteilung Kerntechnische Betriebe (KTB) und mit der Unterstützung von EKS und HS wurden die Details für die anwenderspezifischen Dialoge geklärt. Begonnen wurde mit den Dialogen zur Initialisierung der Bestandsdateien für SNEAK. Der Entwurf der Eingabedispays, die Dialogabläufe sowie die Abbildung der Eingabedaten auf die Datenstrukturen wurden festgelegt. Alternativ zur Dialogeingabe wurde eine Initialisierung über Lochkarten konzipiert. Erfassungsformulare und Kartenformate hierfür wurden vereinbart.

Die Spezifikation der Dialoge für die Verbuchung SNEAK-spezifischer Materialbewegungen und SNEAK-spezifischer Operationen mit Kernmaterial wurde begonnen. Dabei ergab sich, daß sich sämtliche Operationen bei SNEAK mit 8 verschiedenen Dialogen beschreiben lassen.

Gemeinsam mit SNEAK wurden außerdem die Anforderungen an das SNEAK-spezifische Berichtswesen festgelegt. Es zeigte sich, daß um die Anforderungen zu erfüllen, neben den für die Kernmaterialüberwachung relevanten Daten Betriebsdaten in den Dateien mitgeführt werden müssen. Die Datenstruktur des allgemeinen Konzepts erwies sich jedoch als ausreichend flexibel, um diese Daten zu speichern und für die Berichte bereitzustellen. Das SNEAK-Berichtswesen umfaßt neben den orts- und objektbezogenen Berichten verschiedenen Detaillierungsgrads auch Materiallisten, Brennelementtyplisten u.ä. Die Erstellung der EURATOM-Berichte ist erwartungsgemäß aufwendig, da die objektbezogenen gespeicherten Daten für die chargenbezogenen EURATOM-Berichte umsortiert werden müssen. Die Programme für diese Berichte sind in Arbeit.

Generell bestätigt sich, daß das allgemeine Konzept - d.h. die allgemeine Datenstruktur und das System von Grundfunktionen - ohne Schwierigkeiten auf die Gegebenheiten von SNEAK anwendbar ist und alle Anforderungen des Betreibers erfüllen kann.

Für das im Rahmen des Vorhabens entwickelte Datenbanksystem für Kleinrechner FADABS wurde die Einbettung des Systems in die Programmiersprache FORTRAN abgeschlossen. Das Datenbanksystem wurde um ein Modul zum Einfügen invertierter Listen erweitert. Damit bietet FADABS neben sequentiellen Suchen eine weitere Zugriffsmöglichkeit, die eine wesentliche Beschleunigung im Ablauf der Benutzerdialoge und bei Anfragen und Berichtserstellung garantiert.

1.5 Literaturverzeichnis zu Kapitel 1

- /1-1/ AVENHAUS, R.; GOLLY, W.; RUST, W. (unveröffentlichte Ergebnisse)
- /1-2/ SCHINZER, F; BICKING, U. (unveröffentlichte Ergebnisse)
- /1-3/ BRÜCKNER, C.; JOURDAN, G.; MOENNICH, E.; SCHEUERPFUG, W.,
SELLINSCHEGG, D.; VOSS, F.
"International Safeguards in a Large Inventory Fast Critical Assembly"
Proc. of the 1st Annual Symp. on Safeguards and Nuclear Material
Management; Brussels, Belgium, April 25-27, 1979, p. 67
- /1-4/ BAHM, W.; WEPPNER, J.
"Safeguards Technology in a Uranium Enrichment Facility Based on the
Separation Nozzle Process".
Proc. of the IAEA International Symposium on Nucl. Mat. Safeguards,
Vienna, Austria, October 2-6, 1978, IAEA-SM-231/14
- /1-5/ BAHM, W., DIDIER, H.J.; GUPTA, D.; WEPPNER, J.
"Material Management and International Safeguards in a Uranium
Enrichment Facility Based on Separation Nozzle Process"
Proc. of the 1st Annual Symp. on Safeg. and Nucl. Mat. Management;
Brussels, Belgium, April 25-27, 1979, p. 62
- /1-6/ Jahresbericht Projekt Spaltstoffflußkontrolle 1977
KfK 2681 (1978)
- /1-7/ BAHM, W. et al.
"The Capabilities of Present Day Safeguards Techniques in Existing
Nuclear Facilities like Fabrication, Reprocessing and Uranium Enrichment"
Proc. of IAEA Intern. Symp. on Nucl. Mat. Safeg., Vienna, Austria,
October 2-6, 1978, IAEA-SM 231/16
- /1-8/ CHRISTENSEN, D.E.; SCHNEIDER, R.A.
"Summary of Experience with Heavy-Element Isotopic Correlations"
Proc. of IAEA Intern. Symp. on the Safeg. of Nucl. Mat., Vienna, Austria,
October 20-24, 1975, IAEA-SM 201/10

- /1-9/ PRESBINDOWSKI, D.L.
"Theory of Present and Future Safeguards Applications of Isotopic Ratios"
BNWL-SA-4276 (1972)
- /1-10/ KRAEMER, R.
Private Mitteilung
- /1-11/ WIESE, H.W., MARZO, M.
"Korrelationen zwischen schweren Isotopen: Eine theoretische Untersuchung
der Pu/U/D²³⁵-Korrelation in einem 1300 MWe-Druckwasserreaktor"
Symp. on Isotopic Correlation and its Application to the Nuclear Fuel
Cycle, Stresa, Italien, Mai 1978
- /1-12/ GOEL, B.; WELLER, F.
"Evaluations for the German Nuclear Data Library KEDAK-3,
Part 2: Fissile and Fertile Materials"
KfK 2386/III (1977)
- /1-13/ BARRY, F.R.
"LEOPARD - A Spectrum Dependent Non-Spatial Depletion Code"
WCAP-3741 (1963)
- /1-14/ SUICH, J.E.; HONECK, H.C.
"The HAMMER System", DP-1064 (1967)
- /1-15/ BELL, M.J.
"ORIGIN - The ORNL Isotope Generation and Depletion Code"
ORNL-4628 (1973)
- /1-16/ FOWLER, T.B.; VONDY, D.R.; CUNNINGHAM, G.W.
"Nuclear Reactor Core Analysis Code: CITATION"
ORNL/TM-2496, Rev. 2 (1971)
- /1-17/ AVENHAUS, R.; HEIL, J.
"Safeguards Systems Parameters"
Proc. of IAEA Intern. Symp. on Nucl. Mat. Safeg., Vienna, Austria,
October 2-6, 1978, IAEA-SM 231/7

- /1-18/ AVENHAUS, R.
"Spieltheoretische Behandlung von Stichprobenkontrollen"
Diskussionspapier Nr.111/78 des Instituts für Wirtschaftswissenschaften
und Statistik der Universität Mannheim, November 1978
- /1-19/ FRICK, H.
"Optimal Linear Combinations of Accounting Data for the Detection of
Non-Constant Losses"
Nuclear Technology, im Druck
- /1-20/ FRICK, H.
"On an Application of Game Theory to a Problem of Testing Statistical
Hypotheses"
The International Journal of Game Theory, im Druck
- /1-21/ AVENHAUS, R.; FRICK, H.
"Statistical Analysis of Alternative Data Evaluation Schemes"
Proc. of the 1st Annual Symp. on Safeg. and Nucl. Mat. Management;
Brussels, Belgium, April 25-27, 1979, p. 442
- /1-22/ JARSCH, V.; ONNEN, S.; POLSTER, F.J.; WOIT, J.
"Uranium Data Description for a Generalized Real-Time Nuclear
Material Control System"
Proc. of IAEA Intern. Symp. on Nucl. Mat. Safeg., Vienna, Austria,
October 2-6, 1978, IAEA-SM 231/11
- /1-23/ JARSCH, V.; ONNEN, S.; POLSTER, F.-J.; and WOIT, J.
"An Approach to a Generalized Real-Time Nuclear Materials Control
System"
19th Annual Meeting of the Institute of Nuclear Materials Management,
Cincinnati, Ohio, 27-29 June (1978)

Inhaltsverzeichnis zu Kapitel 2

	<u>Seite</u>
2. <u>Implementierung von Überwachungssystemen</u> (Vorhaben 07.01.03)	
2.1 Einführung der EURATOM/IAEO-Kernmaterialüberwachung in kerntechnischen Anlagen; Entwicklung von Containment/Surveillance-Einrichtungen	2-1
2.1.1 Übersicht über die Arbeiten Chr. Brückner, G. Bork, K.H. Pfeffer	2-1
2.1.2 Konzept für die Durchführung der Kernmaterialüberwachung nach dem Verifikationsabkommen im Kernforschungszentrum Karlsruhe Chr. Brückner	2-3
2.2 Implementierung von direkten Methoden	2-6
2.2.1 Entwicklungsstand des automatischen Röntgenfluoreszenz-analysensystems für die on-line-Analyse von Uran und Plutonium in der WAK J. Neuber, S. Flach, R. Braun	2-6
2.3 Implementierung von zerstörungsfreien Methoden	2-8
2.3.1 In-Line-Meßsystem zur Bestimmung der ^{235}U -Anreicherung in einer LWR-Brennelementfabrikationsanlage H. Eberle, P. Matussek	2-8
2.3.2 Herstellung von physikalischen Standards für gamma-spektrometrische ^{235}U -Anreicherungsmessungen H. Eberle, P. Matussek, H. Ottmar	2-9
2.3.3 Anlage zur Bestimmung des Plutoniumgehaltes von schwach- und mittelaktiven Abfällen in 200-l-Fässern W. Eyrich, M. Küchle, M. Shafiee	2-10

	<u>Seite</u>
2.4 Kernmaterial-Überwachungssystem für Forschungszentren R. Buttler, W.D. Lauppe	2-13
2.5 Kontrollsystem für den Kugelhaufenreaktor THTR-300 St. Nicolai	2-19
2.6 Literaturverzeichnis zu Kapitel 2	2-22

2. Implementierung von Überwachungssystemen
(Vorhaben 07.01.03)

2.1 Einführung der EURATOM/IAEO-Kernmaterialüberwachung in kerntechnischen Anlagen; Entwicklung von Containment/Surveillance-Einrichtungen

2.1.1 Übersicht über die Arbeiten

Chr. Brückner, G. Bork, K.H. Pfeffer

Bei den Arbeiten zur Implementierung der Kernmaterialüberwachung einschließlich derer zur Entwicklung von Containment/Surveillance-Einrichtungen lassen sich vier Gebiete unterscheiden

1. Unterstützung von Anlagenbetreibern und BMFT bei der Einführung der Überwachungsmaßnahmen

Für das Zentrum mit allen betroffenen Einrichtungen legten EURATOM und IAEO Entwürfe für die Festlegung der technischen Einzelheiten der Überwachung in "Anlagenspezifischen Anhängen" vor. Diese Anhänge wurden unter Verwendung eigener konzeptioneller Überlegungen und in engem Kontakt mit den Betreibern der betroffenen Einrichtungen mit den Überwachungsorganisationen verhandelt. Die Verhandlungen betrafen auch grundsätzliche Fragen wie die Einteilung des Zentrums in "Anlagen" und "Materialbilanzzonen außerhalb von Anlagen". Über sie und die Ergebnisse wird weiter unten näher berichtet.

2. Arbeiten zur Kernmaterialüberwachung in der Fa. ALKEM /2-1/

Die Untersuchungen über Meßfehler und Bilanzierungsungenauigkeiten ergaben u.a., daß die Unsicherheitsbereiche für das "nicht nachgewiesene Material" (MUF) für Plutonium bei 0,35 %, für Natururan bei 0,09 % und für angereichertes Uran (> 20 % U-235) bei 0,5 % des Durchsatzes liegen. Besonders große Beiträge liefern die Meßunsicherheiten am Abfall. Die Arbeiten zur Zusammenstellung von Anforderungen an ein EDV-System zur Kernmaterialverfolgung und -bilanzierung konnten vorläufig abgeschlossen werden.

3. Entwicklung eines Überwachungskonzeptes für den SNR 300

Die Arbeiten werden, unter der Federführung des SBK und gemeinsam mit INB, im Rahmen des Unterstützungsprogramms der Bundesrepublik Deutschland für die IAE0 durchgeführt. Die bisherigen Arbeitsergebnisse wurden in einem internen Statusbericht zusammengefaßt.

4. Arbeiten zu Containment- und Surveillance-Maßnahmen

Ebenfalls Teil des IAE0-Unterstützungsprogramms sind Arbeiten zur Entwicklung von Kamerasystemen, zur Entwicklung und zum Test von LWR-Brennelementsiegeln (gemeinsam mit Reaktorbetreibern, VDEW und EURATOM) und zum Test von Containment/Surveillance-Einrichtungen unter Einsatzbedingungen (gemeinsam mit Anlagenbetreibern und EURATOM).

Eine erste Version eines Kamerasystems wurde zum Einsatz bei der Kernmaterialüberwachung fertiggestellt und der IAE0 zum Test übergeben.

In dem System sind verwirklicht

- Weitbereichs-Belichtungsautomatik
- Einzelbildauslösung
- Testsystem für Funktionstests
- autarke Stromversorgung für dreimonatigen Betrieb
- eingriffssicheres Gehäuse mit Versiegelungsmöglichkeit.

Vorarbeiten für eine Zeiteinblendung in einem weiterentwickelten Prototyp konnten abgeschlossen werden.

2.1.2 Konzept für die Durchführung der Kernmaterialüberwachung nach dem Verifikationsabkommen im Kernforschungszentrum Karlsruhe

Chr. Brückner

Die Verhandlungen über die "Anlagenspezifischen Anhänge" für das Kernforschungszentrum Karlsruhe mit allen seinen Einrichtungen begannen Anfang des Jahres 1978 und sind noch nicht vollständig abgeschlossen. Sie werden in engem Kontakt mit den Betreibern der einzelnen Einrichtungen geführt. In ihrem Verlauf waren Konzepte zu entwickeln, die bei den Verhandlungen sowohl hinsichtlich genereller Fragen, wie auch bei der Behandlung der Überwachungsmodalitäten für die einzelnen Einrichtungen zugrunde gelegt werden konnten.

Einteilung des Kernforschungszentrums in Anlagen und Materialbilanzzonen

Das Kernforschungszentrum wird in sieben Anlagen

- Schnelle-Nullenergie-Anordnung-Karlsruhe (SNEAK)
- Forschungsreaktor FR 2 (KTB/HZ)
- Anlage Heiße Zellen (KTB/HZ)
- Institut für Heiße Chemie (IHCh)
- Teilinstitut III des Instituts für Materialforschung (IMF III)
- Institut für Neutronenphysik und Reaktortechnik (INR)
- Schule für Kerntechnik (SKT) mit Siemens-Unterrichts-Reaktor (SUR) und Siemens-Unterkritischer-Anordnung (SUA)

und drei sogenannte Materialbilanzzonen außerhalb von Anlagen (locations outside facilities)

- Institut für Radiochemie (IRCh)
- Institut für Kernverfahrenstechnik (IKVT)
- Laboratorien (zu welchen zusammengefaßt sind: IRE, IAK mit Zyklotron, IMF I, AS, EKM/FK, IRB, LIT, ABRA, LAF)

eingeteilt. Bei dieser Einteilung sind, mit Ausnahme von der SNEAK und des FR 2, alle als "Anlage" eingestufteten Einrichtungen zum gegenwärtigen Zeitpunkt Anlagen mit einem Bestand von maximal 5 kg eff, für die eine Inspektion pro Jahr vorgesehen ist. Bei den entsprechend einem Kernmaterialbestand von jeweils maximal 1 kg eff als "Materialbilanzzone außerhalb von Anlagen" bezeichneten

Einrichtungen wird maximal eine IAE0-Inspektion pro Jahr festgelegt, sodaß de facto mit weniger als einer pro Jahr zu rechnen ist. Die zeitliche Durchführung der Inspektionen kann entsprechend der Einteilung individuell geeignet abgestimmt werden. Schließlich bietet die Einteilung die Möglichkeit, für jede Anlage und Materialbilanzzone außerhalb von Anlagen, falls erforderlich, individuell passende Regelungen für die Abbuchung von Abfall vom überwachungs-pflichtigen Kernmaterial zu finden.

Kernmaterialüberwachung an der SNEAK

Für die Überwachung von SNEAK wurde gemeinsam von EKS und HS ein Konzept entwickelt /2-2/, das durch den intensiven Einsatz von Containment- und Surveillance-Maßnahmen die durch die Überwachung bedingte Belastung des Betreibers stark reduziert. Die wesentlichen Züge des Konzepts und die Überwachungsmaßnahmen sind im Kapitel 1.1.2 skizziert und werden daher hier nicht wiederholt.

Kernmaterialüberwachung am FR 2

Schwerpunkt der Kernmaterialüberwachung beim FR 2 ist das in seinen Brennelementen in einer Menge von rund 2 kg pro Jahr erzeugte Plutonium. Die Überwachung des frischen wie des abgebrannten Brennstoffs in ihren Lagern bildet keine Schwierigkeiten. Die Brennelemente im Core jedoch sind ohne besonderen Aufwand nicht verifizierbar, da die Reaktorabdeckung bei Revisionen normalerweise nicht abgehoben wird. Das Überwachungskonzept für den FR 2 sieht dementsprechend vor:

- eine ständige Überwachung des Lagerbeckens für abgebrannte Brennelemente und der Abtransportwege für diese Elemente aus dem Lagergebäude mittels Kameras
- viermal pro Jahr eine Verifikation des Bestandes an abgebrannten Elementen im Lagerbecken (Zählen, falls möglich, Identifizieren der BE-Nummer, Ergänzung gegebenenfalls durch zerstörungsfreie Messungen) durch Inspektoren
- Verifikation der Abtransporte bestrahlter Brennelemente, falls diese nicht eindeutig mittels der Kameraüberwachung erkennbar sind, durch Inspektoren
- einmal pro Jahr eine Bestandsverifikation durch Inspektoren im Core und Absatzblock durch Ziehen von maximal fünf statistisch ausgewählten Brennelementen und (qualitatives) Ausmessen mit der γ -Meßeinrichtung der Lade flasche

- gemeinsam mit jeder Verifikation des Bestandes am abgebrannten Material eine Verifikation des Bestandes an frischen Brennelementen (Zählen, Identifizieren der Brennelemente durch zerstörungsfreie Messungen)
- einmal im Jahr eine Verifikation des Bestandes an sonstigem (nichtbestrahltem Kernmaterial).

Der FR 2 bildet eine eigene Materialbilanzzone. Für die Bestandsaufnahmen und -prüfungen werden 5 Schlüsselmeßpunkte unterschieden. Weitere strategische Punkte sind eingerichtet für die erwähnten Beobachtungsmaßnahmen mittels Kamera.

Überwachung des Siemens Unterrichtsreaktors (SUR 100)

Die Festlegung der Überwachungsmodalitäten für den SUR 100 erwies sich insofern als problematisch, als IAEO und EURATOM in einem ersten Entwurf des Anlagenspezifischen Anhangs als Bestandsaufnahme- und -prüfungsverfahren die Zählung und Identifizierung der Brennstoffplatten vorgesehen hatten; das heißt ein Verfahren, das ein mit erheblichen Betriebsbehinderungen und genehmigungstechnischen Schwierigkeiten verbundenes Öffnen des Reaktors im Verlaufe jeder Bestandsverifikation voraussetzt. Mittlerweile konnte EURATOM davon überzeugt werden, daß der indirekte Bestandsnachweis durch Kritischfahren des Reaktors und kinetische Messungen, der die erwähnten Schwierigkeiten umgeht, mit gleicher Aussagefähigkeit angewendet werden kann /2-3/. Die Verhandlungen mit der IAEO dauern noch an.

2.2 Implementierung von direkten Methoden

2.2.1 Entwicklungsstand des automatischen Röntgenfluoreszenzanalysen- systems für die on-line Analyse von Uran und Plutonium in der WAK¹⁾

J. Neuber, S. Flach, R. Braun

Nachdem 1977 mechanische Komponenten für die Probenabfüllung gebaut worden waren /2-4/, ist im Berichtszeitraum an der Erstellung und Verbesserung weiterer Komponenten, wie z.B. Bechermagazin, Becherschleuse, Transportgreifer, Lademaschine, Transportschlitten und Meßposition, gearbeitet worden. Alle kritischen Bauteile sind im Dauerversuch erfolgreich getestet worden. Die Betätigungszahlen lagen stets oberhalb einer Million.

Die Zusammenfassung der Einzelgeräte zum Probenpräparationsprozeß veranschaulicht Abb. 2-1.

Die Steuerung und Überwachung aller Funktionsabläufe dieser Probenvorbereitungsanlage soll über eine mikroprogrammierte Steuereinheit erfolgen, die in autonomer Weise den gesamten Materialfluß, die Dosiervorgänge und alle Handhabungsvorgänge übernehmen soll. Die Probenpräparation besteht aus folgenden Teilschritten:

- Eine Probe wird per Rohrpost in einen Probenpuffer eingeschossen.
- Eine Probe wird in die Probenabfüllung gebracht und Teile davon in einen Becher abgefüllt.
- Die im Becher befindliche Probe wird mit verschiedenen Lösungen vermischt, je nach vorgegebenem Rezept.
- Der leere Becher sowie die Zuwagen an Lösungen werden gewogen, das Gewicht jeweils notiert.
- Der Becher wird in die Meßkammer des Röntgenfluoreszenz-Spektrometers gestellt, der Inhalt analysiert. Die dabei anfallenden Daten werden direkt an den Prozeßrechner PDP 11/34 gesandt.

¹⁾ Die Entwicklungsarbeiten wurden unter gleichzeitiger Beteiligung am Projekt Wiederaufarbeitung und Abfallbehandlung (PWA) ausgeführt.

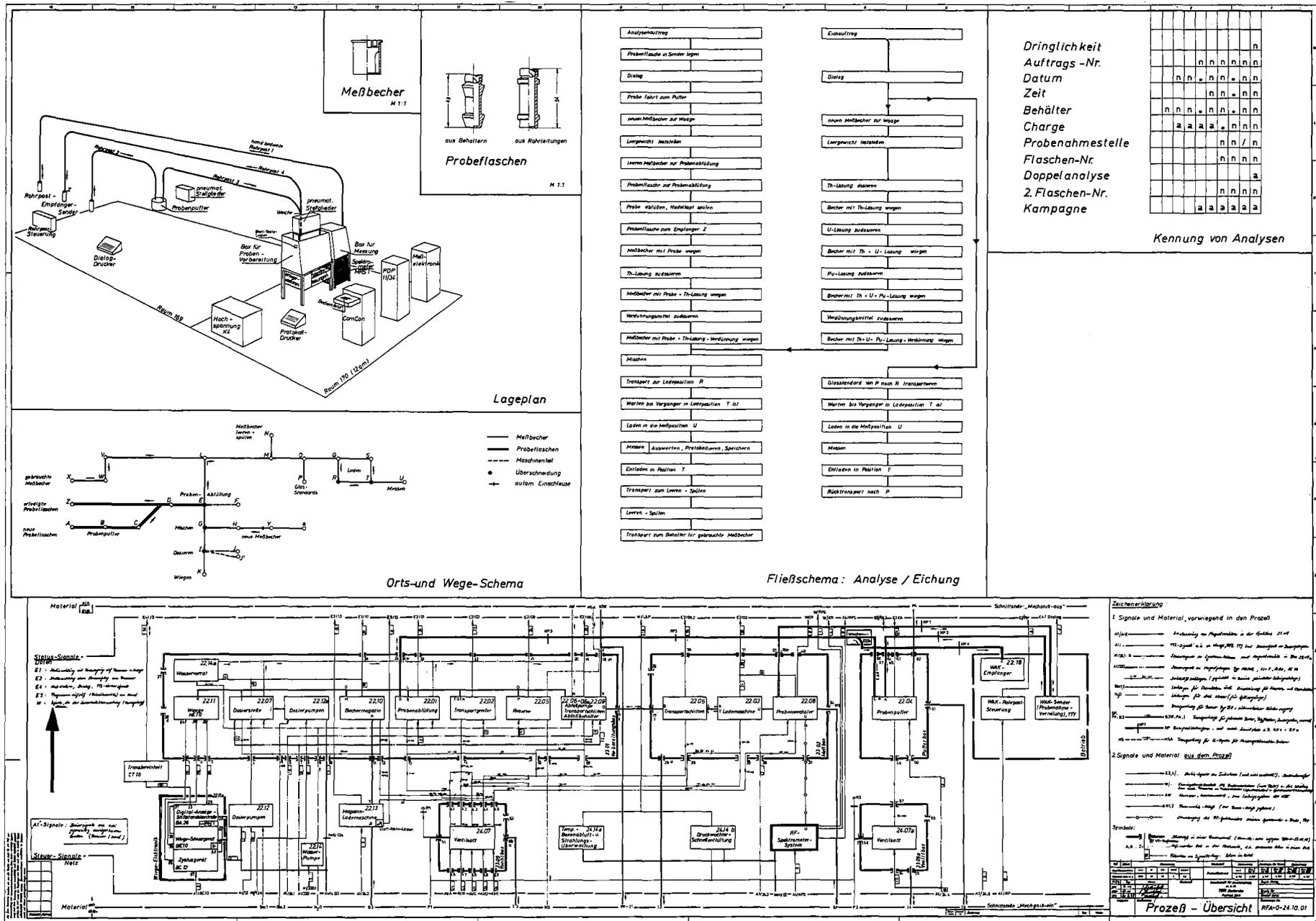


Abb. 2-1: Prozeßübersicht über das Röntgenfluoreszenzanalysensystem

- Der analysierte Becher wird geleert, gespült und dann in den Abfall geworfen.
- Ein Probenbericht wird an den Prozeßrechner PDP 11/34 gesandt.

Weiterhin sind folgende Gesichtspunkte bei der Handhabung zu berücksichtigen:

- Es sollen außer Probenanalysen Eichlösungen hergestellt und untersucht werden.
- Zu Wartungszwecken sowie zum Test und zur Behebung von Fehlerzuständen soll die Probenvorbereitungsanlage manuell über ein Bedienfeld gefahren werden können.
- Um höheren Durchsatz zu erreichen, sollen bis zu 3 Proben gleichzeitig in verschiedenen Teilen der Probenvorbereitungsanlage bearbeitet werden.
- Bei technischen Defekten soll die Anlage in einen definierten Zustand überführt werden.

Die notwendigen Spezifikationen für die Software und Hardware sind erstellt, für die Datenbehandlung und -auswertung wurde gemeinsam mit dem Industriepartner eine Systemanalyse durchgeführt.

2.3 Implementierung von zerstörungsfreien Methoden

2.3.1 In-Line Meßsystem zur Bestimmung der ²³⁵U-Anreicherung in einer LWR-Brennelementfabrikationsanlage

H. Eberle, P. Matussek

Das Anreicherungsmeßsystem wurde von der Herstellerfirma Anfang Dezember 1978 an KfK zum Test ausgeliefert. Im Mittelpunkt der Arbeiten im Berichtszeitraum stand die Softwareentwicklung, insbesondere die Erweiterung des fest programmierten ASSEMBLER-Meß- und Steuerprogramms durch eine frei programmierbare Anwendersoftware in einer höheren Programmiersprache.

Die freie Programmierbarkeit ist erforderlich, um aus betrieblichen oder meßtechnischen Gründen notwendige Programmänderungen einfach und schnell durch-

zuführen. In Zusammenarbeit mit der Firma RBU und der Herstellerfirma wurde ein Subset der Programmiersprache BASIC festgelegt, der es ermöglicht, unter Beibehaltung des festen Steuerprogrammablaufs die Subroutinen für die Kalibrierung, die Meßwertauswertung und den Ausdruck der Ergebnisse in BASIC zu programmieren und zum Hauptprogramm hinzuzufügen. Das Meßsystem wird nach gründlichen Tests beim KfK an die Firma RBU weitergegeben.

2.3.2 Herstellung von physikalischen Standards für gammaspektrometrische ²³⁵U-Anreicherungs-messungen

H. Eberle, P. Matussek, H. Ottmar

Die ESARDA-Arbeitsgruppe für zerstörungsfreie Meßverfahren plant in Zusammenarbeit mit dem BCMN, Geel, und NBS, Washington, die Herstellung und Verteilung international anerkannter, zertifizierter physikalischer Standards für gammaspektrometrische ²³⁵U-Anreicherungs-messungen an Uranoxidpulvern¹⁾.

Insgesamt sollen ca. 100 Eichsätze, jeweils bestehend aus 5 Proben mit ²³⁵U-Anreicherungsgraden zwischen 0,7 und ca. 3 %, hergestellt und an Laboratorien, nukleare Industriefirmen sowie staatliche und internationale Organisationen verteilt werden. Eine einzelne Probe besteht aus 200 g U₃O₈-Pulver, welches unter festgelegten Bedingungen in genau spezifizierte Aluminiumbehälter mit einem Außendurchmesser von 80 mm eingefüllt und versiegelt wird. Beim Einfüllen wird das U₃O₈-Pulver auf eine nominale Dichte von 2,5 g/cm³ komprimiert. Die Herstellung der Proben sowie die Charakterisierung des U₃O₈-Pulvers bezüglich Isotopenzusammensetzung und Elementverunreinigungen erfolgt beim BCMN in Geel und beim NBS in Washington.

In einem Vorversuch soll festgestellt werden, ob von einem bestimmten Batch-Material identische physikalische Standards, d.h. Proben mit identischer Emissionsrate für die ²³⁵U-Gammastrahlung in wohldefinierter Geometrie, hergestellt werden können. Für diesen Versuch wurden insgesamt 20 Proben mit 3 verschiedenen Anreicherungsgraden (0,3, 0,7, 2,9 % ²³⁵U) hergestellt. In einem Ringversuch zwischen dem KfK, EURATOM Ispra und NBS Washington soll die Gleich-

1) Die Überwachungsbehörden EURATOM und IAEA sind in die Herstellung der Standards miteinbezogen. Sie werden bei wichtigen Schritten in der Herstellungsprozedur, z.B. bei der Probenahme für die massenspektrometrischen Analysen, zugegen sein.

förmigkeit der Emissionsrate von Proben derselben Anreicherung mit Halbleiterspektrometern innerhalb einer relativen Meßgenauigkeit von 0,1 % untersucht werden. Mit der Verteilung der Proben wurde Ende 1978 begonnen. Nach Abschluß dieses Vorversuchs und Diskussion der Ergebnisse soll die endgültige Form der Herstellung der Standards festgelegt werden. Die Standards werden voraussichtlich Ende 1979 verfügbar sein.

2.3.3 Anlage zur Bestimmung des Plutoniumgehaltes von schwach- und mittelaktiven Abfällen in 200-l-Fässern

W. Eyrich, M. Kühle, M. Shafiee

Die Meßanlage dient zur Bestimmung von Plutonium in schwachaktiven 200-l-Abfallfässern, die im wesentlichen Fabrikationsabfall von der ALKEM und WAK enthalten. Die Abfälle bestehen im wesentlichen aus Kleenextüchern, Putzlappen etc., die in Plastikbeutel verpackt in die Fässer eingefüllt werden. Typisch ist eine Dichte von etwa $0,1 \text{ g/cm}^3$.

Die Messung basiert auf der Zählung der Spontanspaltneutronen von ^{240}Pu . Die anderen Isotope emittieren entweder wesentlich weniger Neutronen (^{239}Pu , ^{241}Pu , ^{238}U , ^{235}U) oder sind in sehr viel geringerer Konzentration vorhanden (^{238}Pu , ^{242}Pu). Die Isotopenzusammensetzung muß daher bekannt sein, um auf den Gesamtgehalt an Plutonium zu schließen.

Die Meßanlage besteht aus einem Polyäthylen-Hohlzylinder von 800 mm Innendurchmesser, 1200 mm Außendurchmesser und 1100 mm Höhe, einem inneren Zählrohrkranz und einem äußeren Zählrohrkranz mit je 36 Zählrohren. Der Boden und Deckel des Hohlzylinders sind jeweils mit 9 Zählrohren bestückt. Eine detaillierte Beschreibung der Meßanordnung ist in /2-5/ gegeben.

Im Jahre 1978 wurden bei einer provisorischen Aufstellung im INR Messungen mit simuliertem Abfall durchgeführt, um Empfindlichkeit und Meßgenauigkeit der Anlage zu ermitteln. Dazu wurden 2 Fässer mit Polyäthylenrohren gefüllt, um eine mittlere Dichte von $0,3 \text{ g/cm}^3$ bzw. $0,2 \text{ g/cm}^3$ zu erhalten. In die Fässer wurden nacheinander vertikale Rohre bei den Radien 0,0, 8,75, 17,4 und 26,0 cm eingeführt. Der Innenradius des Fasses betrug 28,0 cm. In diese Rohre wurde eine ^{252}Cf -Neutronenquelle der Quellstärke $1,81 \cdot 10^5 \text{ n/sec}$ an acht bis neun verschiedene vertikale Positionen gesetzt und die Zählrate der Meßanlage bestimmt.

Es wurde sowohl die Gesamtzählrate wie auch die Koinzidenzzählrate ermittelt. Dabei waren je neun Zählrohre zu einer Gruppe verbunden und an einen Verstärker angeschlossen. Dazu war der Hohlzylinder in vier Sektoren aufgeteilt, wobei in jedem die inneren und äußeren Zählrohre getrennt zusammengefaßt waren. Dies gibt acht Gruppen, der Deckel und der Boden bildeten je eine weitere Gruppe. Außer Höhe und Radius wurde auch der Winkel zwischen der Quelle und einer Zählrohrgruppe, gemessen von der Faßachse, variiert. Das Ergebnis der Messungen läßt folgende Schlüsse zu:

A. Gesamtzählrate

1. Jede Zählrohrgruppe ist besonders empfindlich für Quellen, die davor liegen. Damit lassen sich Ungleichmäßigkeiten der Quellverteilung erkennen.
2. Die Nachweisempfindlichkeit ϵ ist in nicht separierbarer Weise vom Radius und der Höhe der Quellposition und der Dichte des Matrixmaterials abhängig und beträgt

$$\epsilon = 0,11 \pm 28 \% \text{ (1}\sigma\text{-Wert)}$$

Die Variation mit der Höhe entspricht etwa einer cos-Verteilung. Nur bei der größten Dichte ($\rho = 0,3 \text{ g/cm}^3$) und den inneren Radien steigt die Empfindlichkeit in der Nähe von Deckel und Boden wieder an. Die Empfindlichkeit wächst mit dem Abstand der Quelle von der Faßachse, dies gilt besonders bei großer Dichte. Im Mittel nimmt die Empfindlichkeit ab, wenn die Dichte der Faßfüllung zunimmt.

3. Das Verhältnis der Zählrate vom inneren Kranz I zu äußerem Kranz A zeigt in mancherlei Hinsicht einen gegenläufigen Effekt zum Empfindlichkeitsverlauf: $\frac{I}{A}$ wächst mit der Dichte und nimmt mit dem Abstand der Quelle von der Achse ab. Leider gilt dies nicht für die größte Dichte und Quellorte nahe des Deckels. Daher zeigt das Produkt $\epsilon \cdot \frac{I}{A}$ keine wesentlich kleinere Variation als ϵ .
4. Die Variation läßt sich deutlich verkleinern, wenn man noch das Verhältnis der Zählraten von Deckel (D) zu Boden (B) hinzunimmt. Die gesuchte Quellstärke q ergibt sich bei unbekannter räumlicher Verteilung und unbekannter Matrixdichte am besten aus der Gesamtzählrate Z gemäß:

$$q = \frac{Z}{\epsilon} = 3,25 Z \left(\frac{I}{A} + 0,05 \frac{D}{B} \right) \pm 10 \% (1\sigma\text{-Wert})$$

Die Schwankung um $\pm 10 \%$ ist insofern pessimistisch, als hierbei die Quelle, d.h. das Plutonium, an einem Punkt im Faß lokalisiert war, während es tatsächlich homogener verteilt sein wird. Andererseits ist die Messung zu optimistisch, da das Matrixmaterial sehr homogen verteilt war, was tatsächlich nicht der Fall sein wird. Das Korrekturverfahren müßte noch mit realistischeren Faßfüllungen überprüft werden.

5. Von der Safeguards-Gruppe in Los Alamos wurde vorgeschlagen, die Abhängigkeit von der Matrixdichte bei derartigen Messungen dadurch zu eliminieren, daß man eine zusätzliche Messung mit einer extern angebrachten Quelle durchführt und darauf normiert, ("add a source"). Dies wurde hier auch probiert, und dabei wurden entweder alle Zählrohre oder die Zählrohrgruppen gegenüber der Quelle oder die Zählrohrgruppen in 90° von der Quelle herangezogen. Da damit aber nur die Dichte, nicht jedoch die Ortsabhängigkeit korrigiert werden kann, wurden keine so guten Ergebnisse wie mit der unter 4. angegebenen Methode erzielt. Es blieb eine 1σ -Schwankung von $\pm 20 \%$. Außerdem ist eine zweite Messung erforderlich.

B. Koinzidenz-Zählrate

6. Da die Nachweisempfindlichkeit ϵ quadratisch in die Koinzidenz-Zählrate eingeht, ist auch die Variation mit dem Quellort und der Matrixdichte doppelt so groß wie bei der Gesamtneutronen-Zählrate. Dazu kommt noch ein Effekt durch die Änderung der Neutronenlebensdauer mit der Matrixdichte, so daß die Variation sogar dreimal so groß wie bei der Gesamtneutronenzahl wird.

Nach Abschluß der hier beschriebenen Voruntersuchungen wurde die Anlage bei der ADB installiert. Dort werden 1979 noch weitere Messungen durchgeführt.

2.4 Kernmaterial-Überwachungssystem für Forschungszentren

R. Buttler, W.D. Lauppe

Im Rahmen der Arbeiten zum Kernmaterial-Überwachungssystem für Forschungszentren (KÜS) wurden die Elemente des in der Kernforschungsanlage Jülich konzipierten Überwachungssystems (Abb. 2-2) weiter entwickelt, implementiert und erprobt. Schwerpunktmäßig wurde als Hauptbestandteil des KÜS das Kernmaterial-Bilanzierungs- und Kontrollsystem (KBKS) im Teilbereich Heiße Zellen der KFA-Jülich auf dem Rechner realisiert und erprobt. Das zugehörige Meßsystem zur Verifikation der Kernmaterialdaten wurde weiter entwickelt. Diese Arbeiten wurden im Rahmen eines IAEO-Forschungsauftrages, der ab 1979 in das Unterstützungsprogramm der Bundesregierung für die IAEO übergang, durchgeführt.

Bei der Konzeption des KBKS wurde davon ausgegangen, nicht nur die von den Kontrollbehörden vorgeschriebenen Anforderungen zu erfüllen, sondern auch dem innerbetrieblichen Informationsbedürfnis Rechnung zu tragen. Es ist als integriertes, computergestütztes Informationssystem für die automatisierte Verarbeitung der umfangreichen und vielschichtigen Kernmaterialdaten ausgelegt. Schon jetzt kann gesagt werden, daß das System Modellcharakter für Forschungszentren besitzt. Ein Arbeitskreis, dem Mitarbeiter der betroffenen Institutionen angehören, ist für die Implementierung und Erprobung des KBKS im Teilbereich Heiße Zellen zuständig.

Nach Fertigstellung der Detailkonzeption /2-6/, die als Grundlage für die Erstellung aller notwendigen Rechenprogramme diente, konnte mit der EDV-technischen Realisierung begonnen werden. Als Programmiersprache wurde die Dialogsprache APL gewählt, in der alle Buchungsfunktionen und Auswertungsprogramme geschrieben wurden. Für die Speicherung und Verwaltung der Daten wurde ein eigenes Datenbanksystem, ebenfalls in APL, erstellt. Betrieben wird das Buchhaltungssystem auf der zentralen Rechenanlage der KFA, einer IBM 370/168 Maschine unter dem Timesharing Betriebssystem TSS.

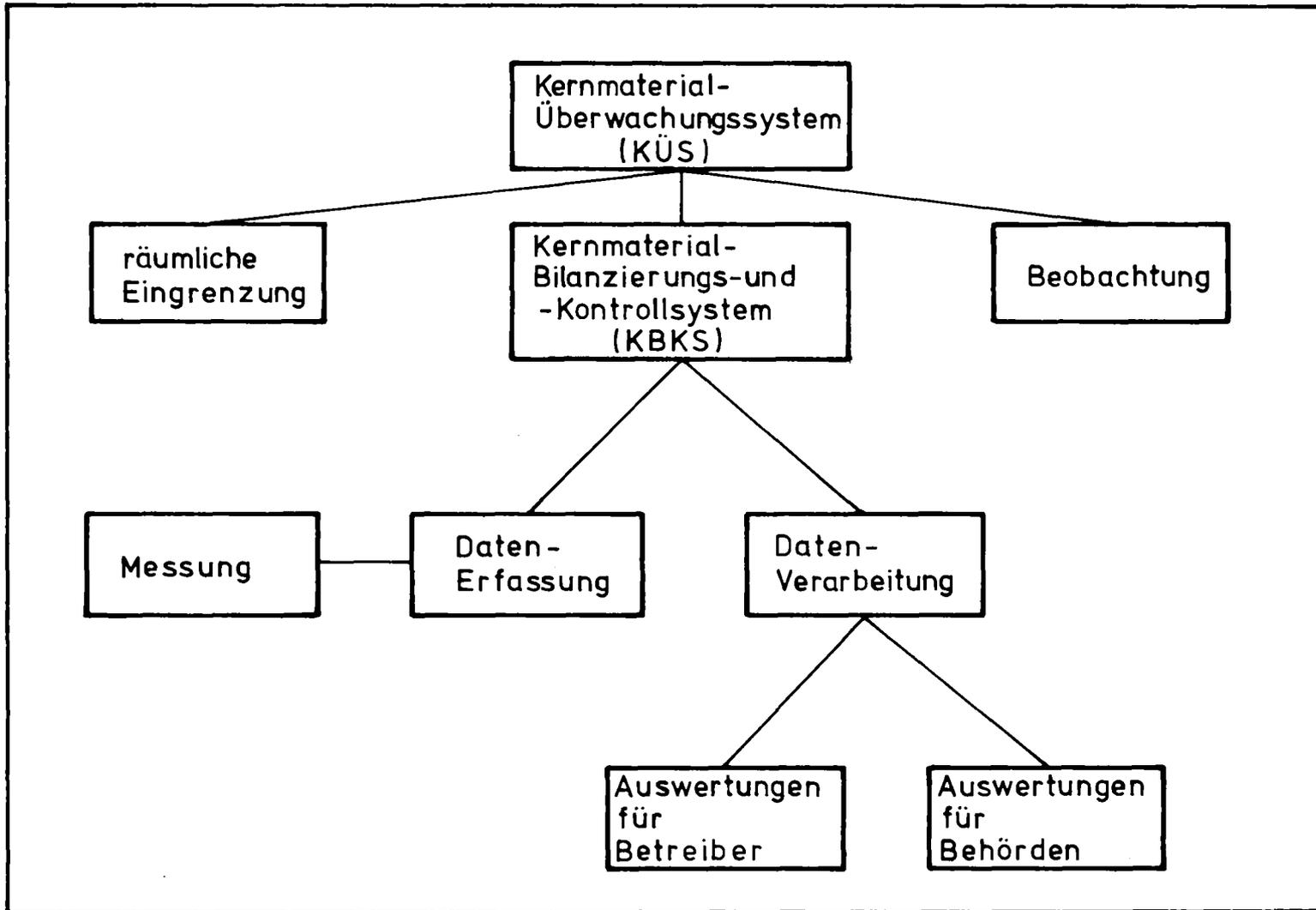


Abb. 2-2: Kernmaterial-Überwachungssystem (KÜS)

Die späteren Anwender des Systems wurden bereits in der Implementierungsphase mit hinzugezogen, um ihre Belange und praktischen Erfahrungen möglichst umfassend mit berücksichtigen zu können und sie so schon frühzeitig mit dem System vertraut zu machen.

Das Buchhaltungssystem besitzt 2 Hauptdateien (Vorgangsdatei und Bestandsdatei) sowie einige Nebendateien bzw. Tabellen. Erfasst werden die Daten von Inventareinheiten (IE), die über fest programmierte Buchungsvorgänge dem System mitgeteilt werden. Hierbei werden die Anwender im Dialog durch die Buchungen geführt, die dezentral mittels Schreibmaschinenterminals vorgenommen werden. Jeder Buchungsvorgang ändert die Datensätze der betroffenen IE (Abb. 2-3) in der Bestandsdatei. Alle Buchungsvorgänge (auch Korrekturen) werden chronologisch in der Vorgangsdatei gespeichert.

Da eine Erprobung mit echten Daten praxisgerechtere Ergebnisse erwarten ließ, wurden sukzessiv die echten Daten in das System eingegeben und das System unter realen Betriebsbedingungen erprobt. Darüber hinaus konnte durch diesen Erfassungsmodus eine mehrwöchige Stilllegung des Betriebes vermieden werden. Hierzu wurden zunächst die Daten eines Teils der IE in die Datenbank aufgenommen und erste Tests durchgeführt. Während der Testphase wurde der Datenbestand kontinuierlich vervollständigt, bis er schließlich im Endstadium den gesamten Kernmaterialbestand der Heißen Zellen beinhaltete.

Während der gesamten Dauer der Erprobung des computergestützten Systems wird die bisherige manuelle Buchhaltung parallel weitergeführt. Für die Aufnahme des ersten Teils der Daten wurde ein spezielles Programm erstellt, mit dessen Hilfe die in den vorhandenen Büchern enthaltenen Daten in die Datenbank übertragen wurden. Dabei wurden auch die nach den neuen Kontrollmodalitäten zusätzlich benötigten Angaben sowie weitere Daten für innerbetriebliche Zwecke erfasst und eingegeben. Die Aufnahme der Daten der restlichen IE wurde mit Hilfe der programmierten Buchungsvorgänge durchgeführt.

KERNFORSCHUNGSANLAGE JUELICH GMBH
KERNSTOFFBUCHHALTUNG

ZUSTANDSKARTE KERNSTOFF-INVENTAREINHEITEN (IE) ZK

WETZEL 03.10.78 14.49 H

NAME : A7502308 UMG-BEZ : AVR-STCHPR/50/23/0/8/

MBZ	SMP-Z	INST	GEN-BFR	GEB-NR	RAUM	POS
6	A	GHZ	H1	01,02	503	

KERNSTOFF- KAT	MASSE (G)	TOL (VH)	BESTIMMUNGS-		
			GRDL	METH	DATUM
D-U-AB					
N-U-NAT					
L-U-LOW					
H-U-HIGH	16,88	10,0	F	MB	141275
P-PU					
T-TH	241,50	10,0	F	MB	141275

NUKLID	MASSE/AKTIVITAET EINH.	TOL (VH)	MESS-	
			METH	DATUM
U-233	2,538 G	10,0	NA	191277
U-235	12,575 G	10,0	NA	191277
SP-PROD	1531,250 CI	50,0	CC	100178

STUECK	PH CH -MAT	BTH-ART	ZUST	FORM	BESTRAHLUNGS- ENDE
25	S1 NN	0	I	0	191277

MAT-IAEO	CHARGE	VERPFL	VERTR	VERW-ZW	BP
EOOI	6AHTS1CH	A	27	CH	H1B1

MASSE-IE (G)	ANR (VH)	M/X	ZUS-KENNZ	RFF	SUBIE
5103,75	89,56	6	THTR-2	B1	0

Abb. 2-3: Zustandskarte für Inventareinheiten

Bei den Programmtests im Rahmen der Systemerprobung wurden alle in der Praxis vorkommenden Fälle für jede Buchungsfunktion erprobt, um syntaktische und logische Fehler in den Programmen zu beseitigen. Außerdem wurden die Eingabeprotokolle und die Buchungsbelege sowie die Vorgangsdatei auf Unstimmigkeiten und Abweichungen von der Konzeption überprüft. Ein Kriterium in diesem Zusammenhang waren u.a. eine Untersuchung über die Häufigkeit der einzelnen Buchungsvorgänge. Obwohl der Probetrieb gegen Ende des Berichtszeitraumes noch nicht abgeschlossen war, konnten folgende vorläufigen Werte pro Monat ermittelt werden:

- 70 Ortsveränderungen, an denen jedoch weit mehr als 70 Inventareinheiten beteiligt waren,
- 20 Teilungen,
- 5 Zusammenlegungen und
- 30 Updates.

Zu diesem Zeitpunkt waren etwa 3300 IE (über 90 % des gesamten Kernmaterialinventars der Heißen Zellen) erfaßt.

Der Probetrieb lieferte die folgenden vorläufigen Ergebnisse:

Das System ist auch für EDV-ungeübte Anwender leicht zu handhaben. Die Möglichkeiten, nach beliebigen Kriterien Auswertungen vorzunehmen (Such- und Sortierprozesse), wurden von den Anwendern in großem Umfang genutzt. So können z.B. Ort, Menge, Art oder Verteilung des Materials jederzeit detailliert abgefragt und beliebige Inventarlisten erstellt werden. Solche Auswertungen waren mit der bisherigen Handbuchhaltung nicht oder nur mit sehr großem Aufwand möglich.

Das System bewirkt eine im Vergleich zur manuellen Buchhaltung wesentlich genauere Buchführung, da es den Anwender durch eine strenge Dialogführung zu vollständigen und präzisen Angaben zwingt. So gibt es z.B. bei jedem Buchungsvorgang eine Anzahl von Merkmalen, die unbedingt angegeben werden müssen, um die Buchung durchführen zu können. Weiter werden alle Eingaben, soweit überhaupt möglich, vom System auf Zulässigkeit geprüft.

Die von den internationalen Kontrollbehörden geforderten Berichte werden maschinell aus den vorhandenen Daten erstellt, ohne daß von den Buchenden Kenntnisse über zu erstellende Berichte gefordert werden.

Der Personalaufwand für die Kernmaterialbuchhaltung ist nach bisherigen Erfahrungen trotz verschärfter Kontrollanforderungen der nationalen und internationalen Behörden, eines größeren Datenvolumens und wesentlich erweiterter Auswertungsmöglichkeiten nicht gestiegen. Die Nutzung der beim Betreiber bereits vorhandenen Hardware trug entschieden zur Kosteneffektivität des EDV-Systems bei, ohne damit seine universelle Anwendbarkeit einzuschränken.

Im Rahmen der meßtechnischen Erfassung der Kernmaterialdaten wird nur dann eine Neubestimmung durchgeführt, wenn keine Buchdaten vorhanden oder diese nur unzureichend bekannt sind. Zur Aufnahme des realen Bestandes an Kernmaterial und zur Überprüfung der Daten einzelner IE werden zerstörungsfreie Meßverfahren in das KBKS mit einbezogen. Die Messungen werden von einer zentralen Meßstelle durchgeführt. In der Erprobungsphase hat sich das MAS-System (Multi-Purpose-Assay-System) für die in der KFA vorkommenden Kernmaterialkonfigurationen mit unbestrahltem Spaltstoff am besten bewährt. Bei dieser Methode wird die zu untersuchende Probe mit den moderierten Neutronen einer Cf-252 Quelle bestrahlt, wobei das in der Probe vorhandene Kernmaterial spaltet. Die Spaltneutronen und prompte Gammastrahlung werden in vier in Koinzidenz geschalteten Plastiksintillationszählern nachgewiesen. Zur Auswertung werden die 2/4 und 3/4 Koinzidenzen herangezogen. Ausführliche Eich- und Testmessungen haben eine weitgehende Unabhängigkeit der Meßergebnisse von der speziellen Geometrie der Probe ergeben.

Für die Kernmaterialbestimmung an bestrahlten Konfigurationen wird die Methode des selektiven Neutronentransportes angewandt. Die Probe wird hier mit den niederenergetischen Neutronen einer Sb-Be Quelle bestrahlt. In einem BF_3 -Zählrohr werden die Spaltneutronen nachgewiesen, während die niederenergetischen Quellneutronen in einer mit Neutronengiften versetzten Wasserschicht absorbiert werden.

Beide Methoden erlauben für die in der KFA vorkommenden Kernmaterialkonfigurationen eine ausreichende Spaltstoffbestimmung und können in das KBKS mit einbezogen werden.

Abschließend kann gesagt werden, daß das KBKS bereits jetzt den größten Teil der gestellten Anforderungen voll erfüllt. Darüber hinaus ist es für die Anwender eine wertvolle Hilfe bei ihrem internen Kernmaterialmanagement.

2.5 Kontrollsystem für den Kugelhaufenreaktor THTR-300

St. Nicolai

Schwerpunkte der Arbeit am Kontrollsystem für den THTR-300 waren die:

- Entwicklung eines Kernmaterial-Sicherungssystems für den THTR-300 Kugelhaufenreaktor
- Erarbeitung und Zusammenstellung von Methoden zur Identifizierung der Kannen für abgebrannte Brennelemente des THTR-300
- Arbeiten zur Versiegelung an betrieblich notwendigen Öffnungen innerhalb der Beschickungsanlage des THTR-300

Ziel der Untersuchungen des ersten Aufgabenschwerpunktes war es, für eine neue Reaktorlinie, den Thorium-Hochtemperaturreaktor mit kugelförmigen Brennelementen, ein entsprechendes Überwachungskonzept zu entwerfen und den internationalen Kontrollbehörden vorzustellen. Dabei soll diese Untersuchung das notwendige Basismaterial bereitstellen, das es den beteiligten Institutionen - IAE0, EURATOM, Reaktorhersteller und -betreiber sowie der Kernforschungsanlage Jülich (KFA) - in iterativen Prozeßschritten ermöglicht, ein adäquates, den internationalen Safeguards-Richtlinien entsprechendes Kernmaterialüberwachungssystem für den Hochtemperaturreaktor zu implementieren.

Bei der Entwicklung der Konzeption des Sicherungssystems wurde versucht, bestehende, von den Überwachungsbehörden bereits anerkannte und erprobte Verfahren zu übernehmen, soweit es das unterschiedliche Reaktorkonzept im Vergleich zum Leichtwasserreaktor zuläßt. Demnach werden die Überwachungsmaßnahmen auf drei wesentlichen Elementen beruhen.

Diese bestehen aus der Materialbuchführung als Maßnahme von grundlegender Bedeutung, verbunden mit der räumlichen Eingrenzung und der Beobachtung als wichtiger ergänzender Maßnahme.

Das entwickelte Überwachungssystem wurde zunächst auf den in der Bundesrepublik im Bau befindlichen THTR-300 zugeschnitten. Die Konzeption ist jedoch so angelegt, daß auch andere Kugelhaufen-Hochtemperaturreaktoren mit den hier vorgeschlagenen Maßnahmen überwacht werden können.

Diese Arbeit wurde im Rahmen des IAE0-Forschungsvertrages Nr. 1877/RB durchgeführt und liegt als Bericht vor /2-7/.

Als zweiter Aufgabenschwerpunkt wurde im Rahmen der Arbeiten zu einem Kernmaterial-Sicherungssystem für den THTR-300 Kugelhaufenreaktor Methoden zu einer eindeutigen Identifizierung der Kannen für abgebrannte Brennelemente und Verfahren zu einer Kontrolle der Identität und Unversehrtheit der Kannen analysiert und beschrieben. Dabei sollten die Vor- und Nachteile der verschiedenen Methoden einander gegenübergestellt werden, wobei besonders folgende Beurteilungskriterien zu analysieren waren:

- Verfälschungssicherheit
- Betriebssicherheit
- Aufwand, sowohl für die Herstellung und das Anbringen der Siegel, bzw. für eine Kamerainstallation im Lager, als auch für die routinemäßige Kontrolle durch die Behörde.

Die zu beschreibenden Methoden sollten sich nicht ausschließlich auf Versiegelungstechniken (Containmentmethoden) beschränken, sondern auch Beobachtungen (Surveillancemethoden) einschließen.

Anlagenspezifische Details (Kannen, Verschließen der Kannen, Lager für abgebrannte Brennelemente) sowie die vom Hersteller und Betreiber des THTR-300 vorgesehenen Verfahrensprozeduren wurden berücksichtigt.

Bei diesen Untersuchungen hat sich gezeigt, daß hier sowohl Containmentmethoden mit Ultraschall-Versiegelung als auch Surveillance-Maßnahmen mit Fernsehkameras anwendbar sind. Beide Methoden haben einen hohen technischen Entwicklungsstand und wurden in modifizierter Form bereits eingesetzt. Diese Arbeit liegt als vorläufiger Abschlußbericht vor.

Zu einem dritten Detailproblem zur Kernmaterial-Sicherung am THTR wurden Arbeiten zur Versiegelung an betrieblich notwendigen Öffnungen innerhalb der Beschickungsanlage durchgeführt. Dabei stellte sich folgendes Problem:

Alle Funktionsteile (FT) innerhalb der Beschickungsblöcke B1 bis B8 der Beschickungsanlage des THTR sind auswechselbar. An diesen Stellen der Reaktoranlage ist demnach Zugriff zu Kernmaterial (bei Reparatur und/oder Wartung) gegeben. Eine Entwendung bei einer solchen Gelegenheit wird

zwar durch die Bilanzierung aufgedeckt, eine "flankierende Maßnahme" würde aber wesentlich die Sicherheit der Aussage einer Nichtabzweigung erhöhen.

Es besteht die Möglichkeit, alle ausbaubaren FT, die mit Schraubverbindungen in den Blöcken gehalten werden, mit Siegeln zu versehen, wobei es genügen würde, eine Schraubverbindung eines FT zu versiegeln.

Ein Problem bildet die Vielzahl der Funktionsteile (Dosierer, Weichen, Drucksperrren, Vereinzelter, Zählstellen) und damit die Vielzahl der anzubringenden und zu kontrollierenden Siegel. Etwa 80 der oben genannten FT der Beschickungsanlage bzw. jeweils eine Schraubverbindung eines FT müßten versiegelt werden.

Es wurde deshalb überlegt, ob mit Hilfskonstruktionen die Versiegelung ganzer Blöcke möglich ist, wobei der Ausbau der FT und damit eine Entwendung von Brennelementen ohne Entfernung der Hilfskonstruktion unmöglich ist, die Durchführung gewisser Wartungsarbeiten an den FT (Schmieren, Kontrollieren) jedoch möglich bleibt.

Als Siegel ist das von der KFA entwickelte elektronische Siegel VACOSS II vorgesehen.

2.6 Literaturverzeichnis zu Kapitel 2

- /2-1/ BORG, G.; BRÜCKNER, C.; HAGENBERG, W.
 "Abschätzung der Ungenauigkeit einer Kernmaterialbilanz in einer Mischoxid-Fabrikationsanlage"
 Proc. of the 1st Annual Symp. on Safeguards and Nuclear Material Management; Brussels, Belgium, April 25-27, 1979, p. 456
- /2-2/ BRÜCKNER, C.; JOURDAN, G.; MOENNICH, E.; SCHEUERPFUG, W., SELLINSCHEGG, D.; VOSS, F.
 "International Safeguards in a Large Inventory Fast Critical Assembly"
 Proc. of the 1st Annual Symp. on Safeguards and Nuclear Material Management; Brussels, Belgium, April 25-27, 1979, p. 67
- /2-3/ BRÜCKNER, C.
 "Zur Verifikation des Kernmaterialbestandes an Siemens-Unterrichtsreaktoren mit Hilfe des Nachweises der Kritikalität"
 Proc. of the 1st Annual Symp. on Safeguards and Nuclear Material Management; Brussels, Belgium, April 25-27, 1979, p. 62
- /2-4/ Jahresbericht Projekt Spaltstoffflußkontrolle 1977.
 KfK 2681 (1978)
- /2-5/ Jahresbericht Projekt Spaltstoffflußkontrolle 1976.
 KfK 2465 (1977)
- /2-6/ BUTTLER, R.; BÜKER, H.
 "Ein Kernmaterial-Bilanzierungs- und -Kontrollsystem für Forschungszentren"
 Band I: "Detailkonzeption eines computergestützten Buchhaltungssystems
 Jül-1540 (1978)
- /2-7/ ENGELHARDT, H.
 "Entwicklung eines Kernmaterial-Sicherungssystems für den THTR-300 Kugelhaufenreaktor"
 Jül-1522 (1978)

3.	<u>Entwicklung und Erprobung von Verfahren und Komponenten im Zusammenhang mit der Kernmaterialüberwachung</u> (Vorhaben 07.01.04)	
3.1	Direkte Methoden	3-1
3.1.1	Einführung E. Mainka	3-1
3.1.2	Serviceanalysen E. Gantner, E. Mainka	3-1
3.1.3	Entwicklung von Analysenverfahren	3-2
3.1.3.1	Automatisches Massenspektrometer L. Koch	3-2
3.1.3.2	Isotopenkorrelationsexperiment H. Bernhardt, H. Deutsch, E. Gantner, M. Hartmann, L. Koch, E. Mainka, S. Schoof	3-2
3.2	Zerstörungsfreie Methoden	3-4
3.2.1	Pu/U-Verhältnisbestimmung in Mischverbindungen von Uran und Plutonium H. Eberle, H. Ottmar	3-4
3.2.2	Gammaskpektrometrische Plutoniumisotopenanalyse H. Eberle, M.R. Iyer, H. Ottmar	3-4
3.2.3	Gammaabsorptiometrie zur Bestimmung der Konzentration von Aktiniden in Lösungen H. Eberle, P. Matussek, I. Michel-Piper, H. Ottmar	3-6

	<u>Seite</u>
3.2.4 Meßgerät zur Bestimmung des Plutonium- gehaltes in kleinen Abfallbehältern durch Messung der Gammaeigenstrahlung P.P. Chakraborty, S.J. Choithramani, M.R. Iyer, P. Matussek, H. Ottmar	3-9
3.3 Interlaboratoriumstests	3-11
3.3.1 Interlaboratoriumstest "AS-76" W. Beyrich, G. Spannagel	3-11
3.3.2 Interlaboratoriumstest "IDA-78" W. Beyrich, G. Spannagel	3-12
3.3.3 Entwicklung eines Verfahrens zur Beurteilung analytischer Interlabordifferenzen W. Beyrich, G. Spannagel	3-12
3.3.4 Interlaboratoriumstest für Plutonium-Isotopen- verhältnismessungen durch Gammaskpektrometrie H. Ottmar	3-15
3.4 Literaturverzeichnis zu Kapitel 3	3-18

3. Entwicklung und Erprobung von Verfahren und Komponenten
im Zusammenhang mit der Kernmaterialüberwachung
(Vorhaben 07.01.04)

3.1 Direkte Methoden

3.1.1 Einführung

E. Mainka

Der Schwerpunkt der Arbeiten zu den direkten Meßmethoden, die von der analytischen Gruppe des Instituts für Radiochemie und von der Abteilung Massenspektrometrie des Europäischen Instituts für Transurane durchgeführt worden sind, lag bei der Beteiligung bzw. Durchführung des Isotopenkorrelationsexperimentes.

Es konnte außerdem die Testphase des automatischen Massenspektrometers abgeschlossen werden /3-1/, /3-2/, /3-3/. Eine potentiometrische Thorium-Bestimmungsmethode ist erfolgreich erprobt worden /3-4/. Die Beteiligung an den Vorbereitungen des IDA-78-Experimentes nahm zudem einen breiten Raum ein.

3.1.2 Serviceanalysen

E. Gantner, E. Mainka

Im Jahr 1978 wurden für das Projekt Spaltstoffflußkontrolle folgende Analysen ausgeführt:

<u>Aufgabenstellung</u>	<u>Meßverfahren</u>	<u>Zahl der Analysen</u>
U-Standards (NDA)	Gravimetrie	23
	u. pot. Titration	23
U-Pu-Standards NDA	pot. Titration	30
U-Pu-Standards (Autom. RFA)	RFA	101
U-Konzentrations- bestimmung	pot. Titration	8
SALE-Programm	gravimetr. Bestimmung	8

<u>Aufgabenstellung</u>	<u>Meßverfahren</u>	<u>Zahl der Analysen</u>
Isotopenverdünnungs- analysen	Massenspektrometrie	20
U-Konzentrations- bestimmungen	"	60
Isotopenanalysen	"	60
Isotopenverdünnungs- analysen	"	20
Pu-Konzentrations- bestimmung	"	60
Isotopenanalysen	"	60
Aliquotierung von WAK-Proben, Eingangstankgerinnungen und Präparation der Proben	-	200

3.1.3 Entwicklung von Analysenverfahren

3.1.3.1 Automatisches Massenspektrometer

L. Koch

Die Testphase des automatischen Massenspektrometers ist abgeschlossen. Über die bisherigen Ergebnisse wurde in 2 Veröffentlichungen /3-1/, /3-2/ berichtet. Die Herstellerfirma hat die Erfahrungen der hier vorhandenen Version des automatischen Massenspektrometers genutzt und ein weiterführendes Gerät entwickelt, das in Serie bereits gefertigt wird und z.Zt. bei WAK und BCMN, Geel in Betrieb ist.

3.1.3.2 Isotopenkorrelationsexperiment

H. Bernhardt, H. Deutsch, E. Gantner, M. Hartmann, L. Koch, E. Mainka,
S. Schoof

Massenspektrometrische Isotopenverdünnungsanalyse¹⁾

Während des Experimentes wurde beobachtet, daß der im Labor eingeführte Redox-Zyklus für den vollständigen Isotopenaustausch nicht ausreicht, hingegen Standardproben mit der vorhandenen Arbeitstechnik sehr gute Ergebnisse liefern,

¹⁾ Ergebnisse, die im Zusammenhang mit diesem Experiment stehen, können nur mit Genehmigung aller Beteiligten einschließlich der Reaktorbetreiber und Wieder-aufarbeiter veröffentlicht werden.

so daß die auftretenden Probleme mit der Produktlösung in Zusammenhang stehen mußten. Im Vergleich zur ASTM-Vorschrift E 267-70 haben wir die verdünnte Dis-solverlösung nur mit HF behandelt und kein HClO_4 zugesetzt. Es wurde angenommen, daß die Überführung von Spike und Analysenlösung in einen Oxydationszustand zum Austausch ausreichen sollte. Unsere Experimente zeigten, daß vor dem üblichen Redox-Zyklus die Probe mit HF, H_2O_2 behandelt werden muß, wenn der Isotopenaustausch erfolgreich sein soll.

Anwendung der Isotopenkorrelation

Isotopenkorrelation eines Pu-Brennstabes des Siedewasserreaktors GARIGLIANO

Die Arbeiten an diesem Brennstoff konnten abgeschlossen werden. Die Resultate sind zusammengefaßt in /3-5/. Es konnte gezeigt werden, daß auch bei einer Rückführung von Plutonium in Leichtwasserreaktoren Isotopenkorrelationen zu erwarten sind, die im Großen und Ganzen denen der reinen Uranbrennstoffe entsprechen. Durch Bildung von Plutonium-Depletionkorrelationen analog zu denen der U-235-Abreicherung kann das Problem unterschiedlicher Plutoniumzusammensetzung beim Herstellen des Brennstoffs eliminiert werden.

Isotopenkorrelationsexperiment

Für das Isotopenkorrelationsexperiment wurden die Rohdaten der Analysen ausgewertet, die aus den Labors von IRCh, TU, WAK und IAEA kamen. Dabei wurden zwei Verfahren angewendet:

- Die Analysenwerte der einzelnen Labors wurden durch "Paired-Comparison" verglichen in Bezug auf statistische und systematische Fehler. Das dabei angewandte Verfahren wurde mit ähnlichen der IAEA und des ECN, Petten in Vergleich gesetzt.
- Aufbauend auf der Isotopenkorrelationstechnik wurde unter Zugrundelegung historischer Daten die Genauigkeit der Analysendaten wieder in Bezug auf statistische und systematische Fehler untersucht.

Ein vorläufiger Vergleich zeigt, daß "Paired-Comparison" geeigneter für einen Analysenvergleich erscheint. Sobald die endgültigen Daten des Experimentes zusammengestellt sind, wird ein abschließender Vergleich der Auswertemethoden möglich sein.

3.2 Zerstörungsfreie Methoden

3.2.1 Pu/U-Verhältnisbestimmung in Mischverbindungen von Uran und Plutonium

H. Eberle, H. Ottmar

Für die Pu/U-Verhältnisbestimmung mit Hilfe der Röntgenfluoreszenzanalyse (RFA) wurde der experimentelle Aufbau verbessert. Eine neue intensive ^{57}Co -Ringquelle und ein Ge-Detektor mit extrem hoher Energieauflösung ermöglichen kürzere Meßzeiten, reduzieren den Anteil der vom Uran und Plutonium kommenden Eigenstrahlung im Röntgenfluoreszenzspektrum um ein Vielfaches und erlauben eine bessere Trennung der Uran- und Plutoniumröntgenlinien.

3.2.2 Gammaskpektrometrische Plutoniumisotopenanalyse

H. Eberle, M.R. Iyer, H. Ottmar

Die Arbeiten zur gammaskpektrometrischen Plutoniumisotopenanalyse hatten folgende Untersuchungen zum Gegenstand /3-8/:

1. Einfluß der Methode der Peakflächenermittlung von Gammalinien auf die Isotopenverhältnisbestimmung
2. Erreichbare Meßgenauigkeit bei Messungen an größeren Plutoniummengen und Meßzeiten unter 1 h.

Zu 1: Neben der Methode der Summation von Kanalgehalten (CHSUM) wurden auch das interaktive Fitprogramm GAUSSFIT /3-6/ sowie das Fitprogramm SAMPO /3-7/ zur Analyse von Plutoniumgammaskpektren eingesetzt. Ein Teil der Ergebnisse ist in Tabelle 3-1 zusammengefaßt. Die Resultate zeigen, daß die beiden verwendeten Fitprogramme zur Peakanalyse keine wesentliche Verbesserung gegenüber der einfacheren Methode der Kanalsummation erbringen.

Tabelle 3-1: Gammaskpektrometrisch bestimmte Plutonium-Isotopenverhältnisse, dividiert durch den massenspektrometrischen Referenzwert

Probentyp	$\frac{^{238}\text{Pu}}{^{241}\text{Pu}}$ ^{a)}			$\frac{^{239}\text{Pu}}{^{241}\text{Pu}}$ ^{b)}			$\frac{^{240}\text{Pu}}{^{241}\text{Pu}}$ ^{c)}	
	GSFIT	SAMPO	CHSUM	GSFIT	SAMPO	CHSUM	GSFIT	CHSUM
NBS 948	1.030	1.020	1.087	1.019	1.005	0.987	0.967	0.930
NBS 947	0.976	0.964	0.967	1.010	1.002	0.982	0.928	0.905
NBS 946	0.977	0.975	0.973	1.021	1.003	0.961	0.928	0.914
75 % $^{239+241}\text{Pu}$	0.971	0.975	0.972	1.045	0.984	0.953	0.981	0.945
70 % $^{239+241}\text{Pu}$	0.974		0.960	1.003	0.950	0.932	0.955	0.951

a) Aus Gammalinien 152 keV (^{238}Pu) und 148 keV (^{241}Pu)

b) Aus Gammalinien 203 keV (^{239}Pu) und 208 keV (^{241}Pu)

c) Aus Gammalinien 160 keV (^{240}Pu) und 164 keV (^{241}Pu)

Zu 2: Für die praktische Anwendung der Meßmethode, z.B. für Verifikationsmessungen durch die Überwachungsbehörden, ist von Interesse mit welcher Genauigkeit Isotopenverhältnisse in einer realistischen Meßzeit bestimmt werden können. Im Hinblick auf die verbreitete Anwendung der Neutronenkoinzidenzmessung zur quantitativen Plutoniumbestimmung (effektiv gemessen wird dabei der ^{240}Pu -Gehalt) interessiert in erster Linie die relative Häufigkeit des Isotopes ^{240}Pu . Abb. 3-1 zeigt anhand unserer Erfahrungen mit welcher Genauigkeit das Isotopenverhältnis $\frac{^{239}\text{Pu}}{^{240}\text{Pu}}$ an größeren Probenmengen (d.h. Pu-Gehalt ≥ 10 g) in einer Meßzeit von 30 min bestimmt werden kann. Für die Bestimmung des Isotopenverhältnisses wurden die hochenergetischen Gammalinien 642 keV (^{240}Pu) und 646 keV (^{239}Pu) verwendet. Die erreichbare Meßgenauigkeit hängt wesentlich vom Americium-Gehalt in der Plutoniumprobe ab, da ^{241}Am eine Gammalinie emittiert, die energetisch nahe bei der Gammalinie des ^{240}Pu liegt.

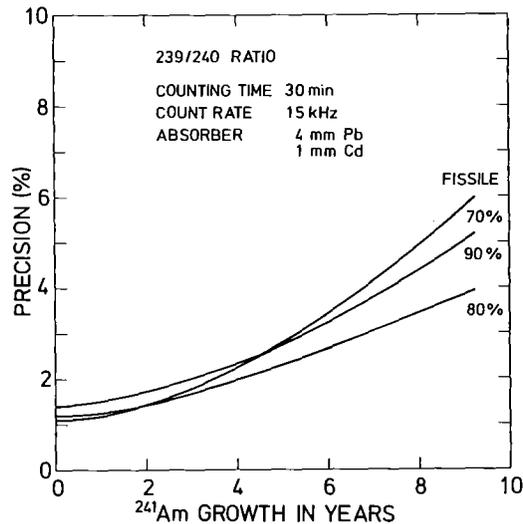


Abb. 3-1: Erreichbare Meßgenauigkeit für die gammaspektrometrische Bestimmung des Verhältnisses $^{239}\text{Pu}/^{240}\text{Pu}$ an größeren Proben (≥ 10 g Pu) bei einer Meßzeit von 30 min

3.2.3 Gammaabsorptiometrie zur Bestimmung der Konzentration von Aktiniden in Lösungen

H. Eberle, P. Matussek, I. Michel-Piper, H. Ottmar

Die Methode der K-Kantengammaabsorptiometrie zur Bestimmung von Schwermetallkonzentrationen (Uran, Plutonium) in Lösungen wurde weiterentwickelt und praktisch erprobt. Die Arbeiten konzentrierten sich auf Transmissionsmessungen mit einem Röntgenerators (Abb. 3-2).

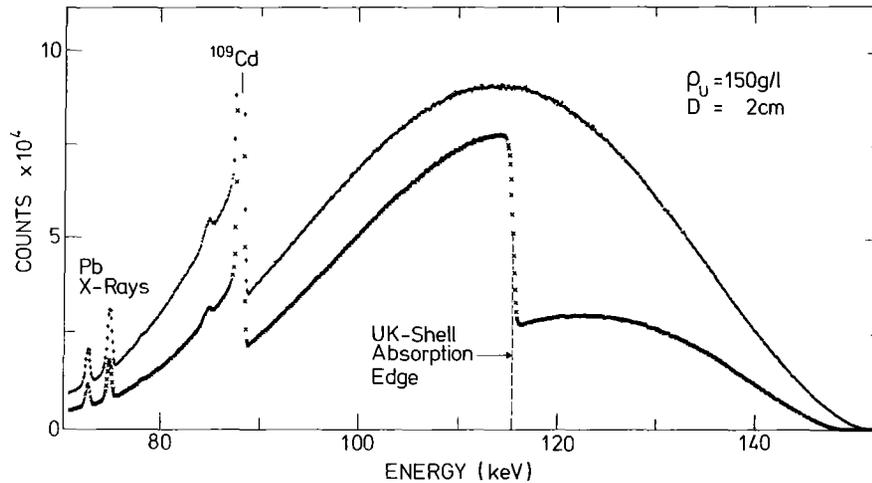


Abb. 3-2: Gefiltertes Röntgenbremsspektrum (obere Kurve) nach der Transmission durch eine Uranlösung (untere Kurve). Die ^{109}Cd -Gammalinie bei 88 keV dient als Referenzlinie zur digitalen Stabilisierung der Analogelektronik

Unter Verwendung eines 160 keV-Wechselspannungsgenerators wurden durch eine Serie von Messungen an Uranlösungen folgende Fragestellungen untersucht:

- Geeignete Algorithmen zur Bestimmung der Sprunghöhe des Transmissionspektrums an der K-Kante (s. Abb. 3-2).
- Linearität der Beziehung zwischen gemessener Sprunghöhe und Konzentration des betreffenden Schwermetalls
- Einfluß von Matrixeffekten auf die Schwermetallkonzentrationsbestimmung
- Langzeitstabilität der Meßanordnung.

Abb. 3-3 zeigt Ergebnisse von Messungen, die an einem Satz von 10 Eichlösungen mit Urankonzentrationen im Bereich zwischen 30 g/l und 260 g/l durchgeführt wurden.

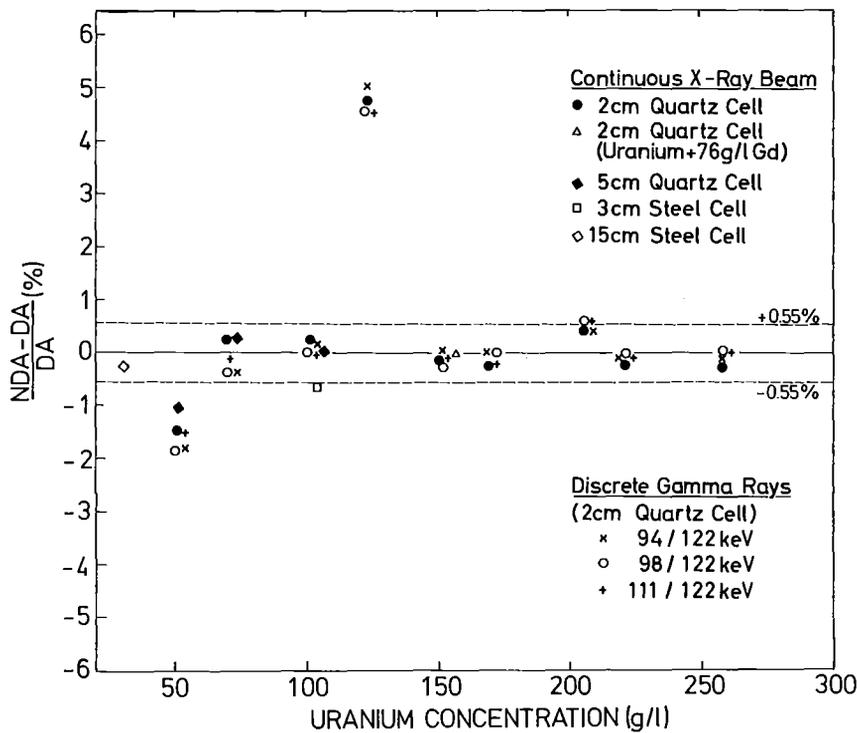


Abb. 3-3: Relative Abweichung zwischen gammaabsorptimetrisch (NDA) und gravimetrisch (DA) bestimmten Urankonzentrationswerten. Das Fehlerband von $\pm 0.55\%$ stellt den kombinierten Fehler beider Bestimmungsmethoden (Gammaabsorptimetrie 0.25% , Gravimetrie 0.3%) dar.

Sie bestätigen den linearen Zusammenhang zwischen gemessener Sprunghöhe und Schwermetallkonzentration. In zwei Fällen wich die gammaabsorptimetrisch gemessene Konzentration deutlich vom gravimetrisch bestimmten Referenzwert ab. Wir vermuten hier einen Fehler bei der chemischen Analyse. Die Resultate aus der Gammatransmissionsmessung mit dem kontinuierlichen Photonenspektrum aus dem Röntgengenerator wurden durch Transmissionmessungen bei diskreten Energien bestätigt. Im letzteren Fall wurde eine Kombination von Uranröntgenlinien ($K\alpha_1$, $K\alpha_2$ oder $K\beta_{1,3}$) einerseits und ^{57}Co -Gammastrahlung (122 keV) andererseits für die Transmissionmessungen unterhalb und oberhalb der K-Absorptionskante von Uran verwendet. Die Ergebnisse dieser Messungen sind ebenfalls in Abb. 3-3 eingetragen.

Nach den vorliegenden Erfahrungen können für die typischen Konzentrationswerte von Endprodukten einer Wiederaufarbeitungsanlage (ca. 100 - 300 g/l) die in Abb. 3-4 für verschiedene Meßzeiten angegebenen Meßgenauigkeiten erzielt werden. Die Genauigkeit wird am größten, wenn das Produkt aus Konzentration und Probendicke optimal gewählt sind. Für den Konzentrationsbereich von 100 - 300 g/l liegen die optimalen Probendicken zwischen ca. 2-5 cm.

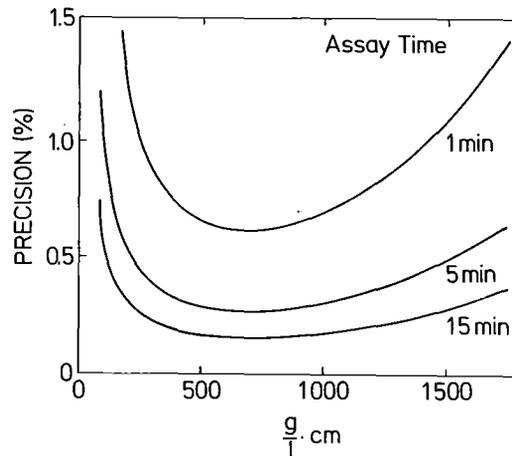


Abb. 3-4: Meßgenauigkeit für die Schwermetallkonzentrationsbestimmung aus der K-Kanten-Gammaabsorptiometrie mit kontinuierlichem Röntgenspektrum als Funktion des Produktes von Konzentration (in g/l) und Probendicke (in cm)

3.2.4 Meßgerät zur Bestimmung des Plutoniumgehalts in kleinen Abfallbehältern durch Messung der Gammaeigenstrahlung¹⁾

P.P. Chakraborty, S.J.Choithramani, M.R. Iyer, P. Matussek, H. Ottmar

Im Mittelpunkt der Arbeiten am Plutonium-Abfallmeßgerät stand die Korrektur der Gammastrahlungsmessung hinsichtlich absorbierender Materialien.

¹⁾ Die Arbeiten werden im Rahmen des deutsch-indischen Zusammenarbeitsabkommens durchgeführt.

Die Bestimmung des Plutoniumgehalts im Abfallbehälter erfolgt in der Weise, daß die Zählraten in 2 Energiefenstern gemessen werden, wobei das eine Fenster P einen für das Plutonium charakteristischen Peak einschließt, das andere Fenster B einen für den Compton-Untergrund charakteristischen Untergrundbereich. Der Plutoniumgehalt ergibt sich dann zu

$$P_u = a P - b B \quad (3-1)$$

a und b sind Konstanten, die durch Messungen zu bestimmen sind. Ist ein absorbierendes Material im Abfallbehälter vorhanden, so wird die Plutoniummenge zu klein bestimmt, und zwar umso kleiner, je größer die effektive Dicke des Absorbers, je höher die Kernladungszahl des Absorbers und je niedriger die Energie der Gammastrahlung ist.

Wenn die Plutoniummengenbestimmung nach Gl. (3-1) bei verschiedenen Gammaenergien durchgeführt wird, so läßt sich unter gewissen Randbedingungen eine Absorptionskorrektur durchführen. Für Plutonium sind Gammalinien um 100 keV, 200 keV und 400 keV geeignet.

Dies führt zu den folgenden Bestimmungsgleichungen für die Plutoniummenge P_u im Abfallbehälter:

$$a_{\nu} P_{\nu} - b_{\nu} B_{\nu} = P_u \cdot e^{-\mu_{\nu}(Z) \cdot \rho \cdot d}, \quad \nu=1,2,3 \quad (3-2)$$

Dabei bedeutet

- P_{ν}, B_{ν} Zählraten in Peak- und Untergrundfenster für die 3 Energien
 a_{ν}, b_{ν} Eichkonstanten für die 3 Energien
 $\mu_{\nu}(Z)$ Massenabsorptionsquerschnitte der absorbierenden Substanz mit der Kernladungszahl Z für die 3 Energien
 $\rho \cdot d$ Dichte x Dicke $\hat{=}$ Massenbelegung des Absorbers.

Aus den gemessenen Zählraten P_{ν} und B_{ν} in den drei Energiebereichen läßt sich mit Gl. (3-2) der Quotient der Differenzen der Absorptionskoeffizienten

$$Q(Z) = \frac{\mu_1(Z) - \mu_2(Z)}{\mu_1(Z) - \mu_3(Z)}$$

errechnen, der charakteristisch für das Absorbermaterial ist und zur Identifizierung des Materials benutzt werden kann. Unter Benutzung der Massenabsorptionskoeffizienten μ_v des so identifizierten Absorbermaterials wird dann die effektive Flächenbelegung $\rho \cdot d$ errechnet und die absorptionskorrigierte Plutoniummenge bestimmt.

Da für die Bestimmung der drei unbekanntenen Größen Plutoniummenge, Kernladungszahl und Flächenbelegung des Absorbers bei Messungen mit einem NaJ-Kristall nur drei brauchbare Gammapeaks aufgelöst werden können, kann diese Methode der Absorptionskorrektur nur angewendet werden, wenn das zu bestimmende Plutonium die gleiche Isotopenzusammensetzung hat wie die verwendeten Standards und frei ist von wesentlichen Kontaminationen mit anderen Gammastrahlern.

Erste Messungen wurden im Frühjahr 1978 bei BARC, Bombay, durchgeführt. Es ist vorgesehen, die Meßdatenaufnahme, die Auswertung und den Ausdruck der Ergebnisse mit einem Mikroprozessor durchzuführen. Die notwendigen Programme für den Mikroprozessor 8085 wurden in Karlsruhe entwickelt und getestet. Zur genauen experimentellen Bestimmung der Massenabsorptionskoeffizienten und der $Q(Z)$ -Werte sind weitere Messungen bei BARC vorgesehen.

3.3 Interlaboratoriumstests

3.3.1 Interlaboratoriumstest "AS-76"

W. Beyrich, G. Spannagel

Hinsichtlich der Aufgabenstellung und des Teilnehmerkreises dieses Experimentes wird auf die vorausgegangenen Jahresberichte verwiesen /3-9/, /3-10/.

Wie in allen vorausgegangenen Interlaboratoriumstests ergab die Auswertung der Meßergebnisse wiederum, daß die "Interlaborabweichung" den Hauptanteil bei der Meßunsicherheit darstellt, ansteigend mit zunehmendem Pu-238-Gehalt der Probe,

also zunehmender Peaküberlagerung im Spektrum. Zur Klärung der Frage, inwieweit dieser Effekt durch die sehr unterschiedlichen Auswerteverfahren bedingt ist, die zur Anwendung kamen, wurden von allen Laboratorien die Originalmeßdaten repräsentativer α -Spektren angefordert und nach einer einheitlichen Methode ausgewertet. Für die eingehende Diskussion und Beurteilung der Ergebnisse dieses Interlabttests ist ein Treffen der Teilnehmer Anfang 1979 vorgesehen.

3.3.2 Interlaboratoriumstest "IDA-78"

W. Beyrich, G. Spannagel

Über Ziele und Planung dieses Experimentes wurde bereits im Jahresbericht 1976 berichtet /3-9/. Insgesamt 37 Laboratorien aus 15 Ländern oder internationalen Organisationen sagten ihre Teilnahme zu, dabei erstmals auch Laboratorien aus Brasilien, Finnland, der Tschechoslowakei und der Sowjetunion.

Das erforderliche Probenmaterial war im Januar bei der Gesellschaft zur Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen gewonnen worden. Die Metallspikezugabe (Teil 1.3 des Experimentes) wurde unmittelbar danach im IRCh des KfK durchgeführt, ebenso die Herstellung der verdünnten Probelösung. Danach wurde das Material zur Herstellung weiterer Proben zum Zentralbüro für Kernmessungen, Geel/ Belgien, transportiert (für die Teile 1.1 und 1.2 des Meßprogramms).

3.3.3 Entwicklung eines Verfahrens zur Beurteilung analytischer Interlabordifferenzen

W. Beyrich, G. Spannagel

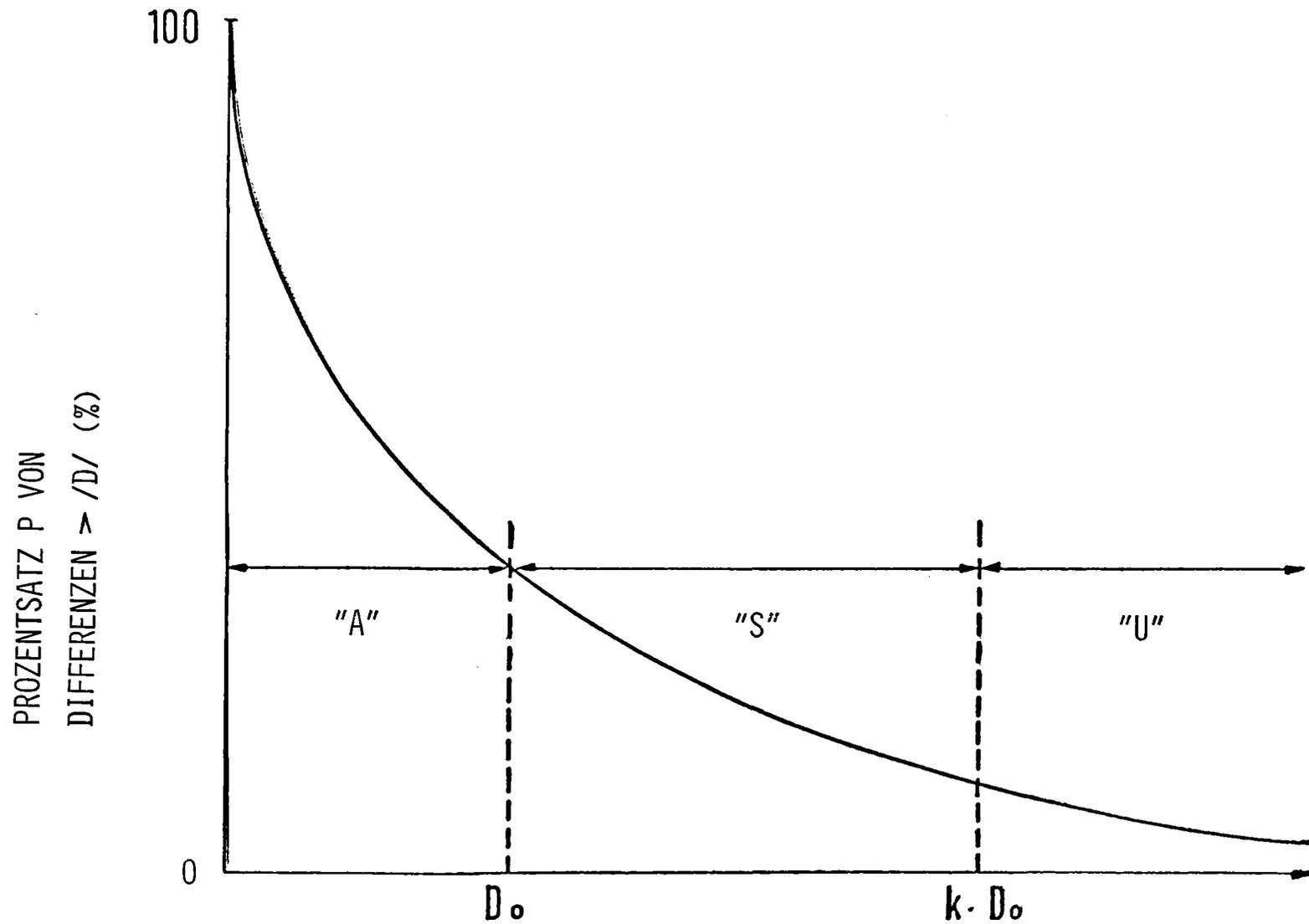
Eine rasche, praxisbezogene Beurteilung der bei einer Verifikationsanalyse gefundenen Abweichung vom Deklarationswert ist für die Durchführung der Überwachungsmaßnahmen im Routinebetrieb wichtig. Hierzu wurde ein empirisches Verfahren vorgeschlagen und 1977 von der EG-Überwachungsbehörde in Luxemburg erfolgreich erprobt /3-11/.

Es besteht im wesentlichen aus zwei Stufen:

1. Empirische Herleitung von Verteilungskurven für Interlabordifferenzen aus den Ergebnissen von Interlabortests, wie sie bereits früher beschrieben worden war /3-12/,
2. Festlegung geeigneter Bereiche zur Klassifizierung der beobachteten Differenzen.

Abb. 3-5 gibt eine schematische Darstellung. Durch geeignete Festlegung von zwei Schwellwerten D_0 und $k \cdot D_0$ ($k > 1$) ergeben sich die angedeuteten drei Bereiche "A" ("acceptable"), "S" ("suspicious") und "U" ("unsatisfactory"). Ist die beobachtete Differenz kleiner als D_0 , so ist keinerlei weitere Maßnahme von seiten der Kontrollbehörde erforderlich, ist sie größer als $k \cdot D_0$, so ist eine unmittelbare Kontaktaufnahme mit dem Anlagenbetreiber zur Klärung der Ursache angezeigt. Der Graubereich "S" ist vorgesehen, um auf ein zu häufiges Auftreten relativ hoher Differenzen aufmerksam zu werden, die beispielsweise durch eine systematische Abweichung der Analysenverfahren bei den Laboratorien bedingt sein können.

Der Vorteil des Verfahrens für den Anlagenbetreiber besteht darin, daß die Klassifikation auf realistischen, bei Routinemessungen gewonnenen Daten beruht und gleichzeitig eine einheitliche, dem internationalen Stand des jeweiligen Analysenverfahrens entsprechende Beurteilung gewährleistet ist.



RELATIVE DIFFERENZ /D/ ZWISCHEN DEN ERGEBNISSEN ZWEIER LABORATORIEN (%)

ABB. 3-5: BEREICHE ZUR KLASSIFIZIERUNG VON INTERLABORDIFFERENZEN (SCHEMATISCH)

3.3.4 Interlaboratoriumstest für Plutonium-Isotopenverhältnismessungen durch Gammaskpektrometrie

H. Ottmar

Im April 1977 veranstaltete die ESARDA-Arbeitsgruppe für zerstörungsfreie Meßverfahren im ECN Petten (Holland) ein Diskussionsstreffen über Plutoniumisotopenanalysen mittels hochauflösender Gammaskpektrometrie. Es zeigte sich, daß mehrere Laboratorien innerhalb der ESARDA F+E.-Tätigkeiten auf diesem Gebiet durchführen. Die Teilnehmer kamen überein, Vergleichsmessungen an identischem Probenmaterial unter definierten Randbedingungen durchzuführen, um einen besseren Einblick in den gegenwärtigen Entwicklungsstand der Meßmethode zu erhalten.

Als zu analysierende Referenzmaterialien wurden die NBS-Isotopenstandards SRM 946, 947 und 948 gewählt, die in mehreren Labors verfügbar waren. Dadurch sollte das schwierige Problem des internationalen Transports von Plutonium umgangen werden. Für die Bestimmung von Plutoniumisotopenverhältnissen aus den gemessenen Gammaskpektren wurde ein einheitlicher Satz nuklearer Daten, d.h. von Isotopenhalbwertszeiten und Gammaabsolutintensitäten, vorgeschlagen. Der Auswertung wurden die im American National Standard ANSI 15.22 (1975) empfohlenen Halbwertszeiten sowie die kürzlich publizierten Gammaabsolutintensitäten von R. Gunnink et al. /3-13/ zugrunde gelegt.

Vier Laboratorien aus dem ESARDA-Bereich berichteten im Frühjahr 1978 über die Ergebnisse ihrer Messungen. Bestimmt wurden die Plutoniumisotopenverhältnisse $238/241$, $239/241$ und $240/241$ sowie das Verhältnis $^{239}\text{Pu}/^{241}\text{Pu}$. Die Resultate zeigten z.T. eine beträchtliche Streuung. Als Beispiel zeigt Abb. 3-6 die Ergebnisse für das Isotopenverhältnis $^{239}\text{Pu}/^{241}\text{Pu}$ für den Isotopenstandard SRM 947. Die gezeigten Meßwerte stellen den Quotienten des Resultats aus der Gammamessung und den massenspektrometrischen Referenzwert dar. Das genannte Isotopenverhältnis wurde vorwiegend aus dem gemessenen Intensitätsverhältnis der Gammalinien 203 keV (^{239}Pu) und 208 keV (^{241}Pu) bestimmt. Die gammaskpektrometrischen Resultate sind als Funktion der Energieauflösung der verwendeten Gammaskpektrometer bei 129 keV aufgetragen. Wie zu erwarten ist, werden die Meßfehler mit schlechter werdender Auflösung größer.

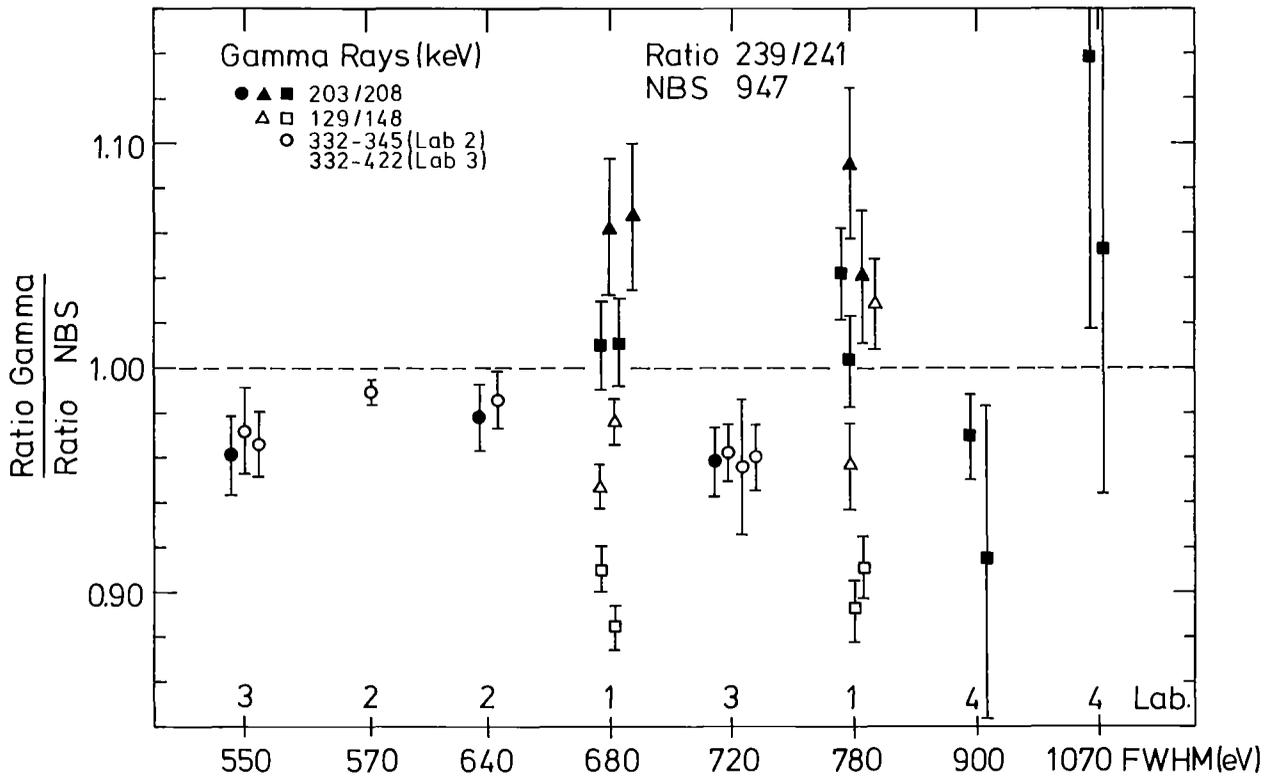


Abb. 3-6: Isotopenverhältnis $^{239}\text{Pu}/^{241}\text{Pu}$ für NBS 947 aus Gammamessungen, dividiert durch den massenspektrometrischen Referenzwert, aufgetragen als Funktion der Energieauflösung der verwendeten Spektrometer bei 129 keV. Die verschiedenen Symbole bezeichnen verschiedene Methoden der Peakflächenbestimmung. Kreise: Kanalsummation, Dreiecke: Gaußfit mit linearem Untergrund, Quadrate: Gaußfit mit Stufenfunktion zur Beschreibung des Untergrundes.

Es gibt im wesentlichen 3 Hauptfehlerquellen, welche das Resultat einer gamma-spektrometrischen Plutonium-Isotopenverhältnisbestimmung beeinflussen können:

- Fehler bei der Peakflächenbestimmung
- Fehler bei der Bestimmung der relativen Ansprechwahrscheinlichkeit für Gammalinien verschiedener Energie
- Fehler bei der Korrektur auf Störlinien.

Zur genaueren Analyse der einzelnen Fehlerkomponenten wurde ein zweiter Vergleichstest vorgeschlagen und durchgeführt, bei dem identische Gammaskpektren von den 3 Isotopenstandards zur Bestimmung der Isotopenverhältnisse an insgesamt 10 Laboratorien verteilt wurden. Die Ergebnisse dieses Vergleichstests werden 1979 vorliegen.

3.4 Literaturverzeichnis zu Kapitel 3:

- /3-1/ BRANDALISE, B.; COTTONE, G.; CRICCHIO, A.; GERIN, F.; KOCH, L.
 "Automatic Evaluation of Isotope Analysis of Nuclear Fuels Including
 Isotope Dilution, Mass Spectrometry, Alpha Spectrometry and Isotope
 Correlation Technique with an Appropriate Databank"
 EUR-5669 (1976)
- /3-2/ KOCH, L.
 "On-Line Data Evaluation Used in Automatic Mass Spectrometric
 Isotope Dilution Analysis of Nuclear Fuels"
 Gazzetta Chimica Italiana, Annali Di Chimica, Roma (1977), S. 767ff
- /3-3/ KOCH, L.; MAINKA, E.
 "Progress in the Verification of Reprocessing Input Analysis of
 Nuclear Material Safeguards"
 Reprint from ACS Symp. Series No. 79 (1978), S. 73ff
- /3-4/ MAINKA, E.; COERDT, W.
 "Versuche zur schnellen und genauen Thoriumbestimmung mit potentiometrischer Endpunktbestimmung"
 KFK 2709 (1978)
- /3-5/ KOCH, L.; SCHOOF, S.; STEINERT, H.
 "The Influence of Plutonium Recycling in BWR's on Isotope Correlations"
 Symposium: Isotopic Correlation and its Application to the Nuclear
 Fuel Cycle, ESARDA, Stresa, Italien (1978)
- /3-6/ HAASE, V. "Methoden zur Analyse von Gammaskpektren"
 Kfk 730 (1968)
- /3-7/ ROUTTI, J.T. Report UCRL-19452 (1969)
- /3-8/ EBERLE, H.; MATUSSEK, P.; OTTMAR, H.; MICHEL-PIPER, I.; CHAKRABORTY, P.P;
 und IYER, M.R.
 "Non-Destructive Elemental and Isotopic Assay of Plutonium and Uranium
 in Nuclear Materials"
 Proc.of IAEA Intern.Symp. on Nucl.Mat. Safeguards, Vienna, Austria,
 October 2-6, 1978, IAEA-SM-231/12

- /3-9/ Jahresbericht Projekt Spaltstoffflußkontrolle 1976
KfK 2465 (1977)
- /3-10/ Jahresbericht Projekt Spaltstoffflußkontrolle 1977
KfK 2681 (1978)
- /3-11/ BEYRICH, W.; SPANNAGEL, G.
"Practical Approach to a Procedure of Judging the Results of Analytical
Verification Measurements"
Proc. of IAEA Intern. Symp. on Nucl. Mat. Safeguards, Vienna, Austria,
October 2-6, 1978, IAEA-SM-231/8
- /3-12/ BEYRICH, W.
"The Problem of Analytical Interlaboratory Differences in Practical
Safeguards"
Proc. of IAEA Symp. on Safeguarding Nuclear Materials, Vienna, Austria,
October 20-24, 1975, IAEA-SM-201/109
- /3-13/ GUNNINK, R.; EVANS, J.E.; PRINDLE, A.L.
Report UCRL-52139 (1976)

A N H A N G A

Verzeichnis der Veröffentlichungen
des Projektes SpFK für das Jahr 1978

- 1) IDT, EKS
Jarsch, V.; Onnen, S.; Polster, F.J.; Gupta, D.
Prinzipieller Aufbau des DV-Systems für die Spaltstoffflußkontrolle
im Kernforschungszentrum Karlsruhe
Reaktortagung, Hannover, 4.-7. April 1978,
Deutsches Atomforum e.V., Kerntechnische Ges. im Dt. Atomforum e.V.
Leopoldshafen 1978: ZAED, S. 482-85

- 2) IDT
Fenyi, S.; Frick, H.
Mathematical treatment of first order kinetic systems with respect to
the carbon dioxide cycle of the earth
KfK 2621 (März 1978)

- 3) IDT
Jarsch, V.; Onnen, S.; Polster, F.J.; Voit, J.
An approach to a generalized real-time nuclear materials control system
19. Annual Meeting of the Institute of Nuclear Materials Management,
Cincinnati, Ohio, June 27-29, 1978

- 4) IAK
Eberle, H.; Matussek, P.; Michel-Piper, I.; Ottmar, H.; Allex, H.
Elemental and isotopic concentration analyses on nuclear fuels using
non-destructive assay techniques
Charakterisierung und Qualitätskontrolle von Kernbrennstoffen, Karlsruhe,
13.-15. Juni 1978. Zusammenfassungen der Beiträge. Karlsruhe: Kern-
forschungszentrum, Inst. f. Material- u. Festkörperforschung 1978.
S. 59-61

- 5) IRCh
Koch, L.; Mainka, E.
Progress in the verification of reprocessing input analysis for nuclear material safeguards
ACS Symposium Series, Vol. 79: Nuclear Safeguards Analysis. Based on a Symp. spons. by the Div. of Nuclear Chemistry and Technology at the 175th Meeting of the American Chemical Society, Anaheim, Calif., March 13-17, 1978. E.A. Hakkila, Ed. Washington, D.C.; Amer. Chem. Soc. 1978. S. 73-81
- 6) IDT
Jarsch, V.; Onnen, S.; Polster, F.J.; Voit, J.
Uniform data description for a generalized real-time nuclear materials control system.
Internat. Symp. on Nuclear Material Safeguards, Vienna, October 2-6, 1978
IAEA-SM-231/11
- 7) IDT
Avenhaus, R.; Fenyi, S.; Frick, H.
Mathematical treatment of box models for the CO₂ cycle of the earth.
Williams, J. (Hrsg.): Carbon Dioxide, Climate and Society. Proc. of a IIASA Workshop, Laxenburg, Austria, Febr. 21-24, 1978. Oxford, Frankfurt (usw.): Pergamon Pr. 1978. (IIASA Proceedings Series: Environment. Vol. 1) S. 121-27
- 8) AFAS, IDT, EKS
Paschen, H.; (Studienleiter); Avenhaus, R.; (Hauptbearb.);
Avenhaus, R.; Sellinschegg, D.; (Mitarb.)
Konsequenzen des großtechnischen Einsatzes der Kernenergie in der Bundesrepublik Deutschland. Teil VI: Kernmaterialüberwachung.
KfK 2706 (Oktober 1978), ASA-ZE/15/78
- 9) EKS
Bahm, W.; Gupta, D; Didier, H.J.; Weppner, J.
Nuclear materials management in a uranium enrichment facility based on the separation nozzle process.
19. Annual Meeting of the Institute of Nuclear Materials Management, Cincinnati, Ohio, June 27-29, 1978

- 10) IAK
Eberle, H.; Matussek, P.; Ottmar, H.; Michel-Piper, I.;
Iyer, M.R.; Chakraborty, P.P.
Non-destructive elemental and isotopic assay of plutonium and uranium
in nuclear materials.
Internat. Symp. on Nuclear Materials Safeguards, Vienna, Austria,
October 2-6, 1978
IAEA-SM-231/12
- 11) EKS
Bahm, W.; Berg, R.; Bicking, U.; Golly, W.; Rust, W.; Schinzer, F.;
Strauß, R.; Schmidt, W.; Tretter, G.; Voß, F.; Gupta, D.
The capabilities of present day safeguards techniques in existing
nuclear facilities like fabrication, reprocessing, and uranium
enrichment.
Internat. Symp. on Nuclear Material Safeguards, Wien, Austria,
October 2-6, 1978
IAEA-SM-231/13
- 12) EKS
Bahm, W.; Weppner, J.; Didier, H.J.
Safeguards technology in a uranium enrichment facility based on the
separation nozzle process.
Internat. Symp. on Nuclear Material Safeguards, Wien, Austria,
October 2-6, 1978
IAEA-SM-231/14
- 13) IDT, EKS
Beyrich, W.; Spannagel, G.
Practical approach to a procedure of judging the results of analytical
verification measurements.
Internat. Symp. on Nuclear Material Safeguards, Wien, Austria,
October 2-6, 1978
IAEA-SM-231/8

- 14) EKS
Gupta, D.
A review of physical protection program in the Federal Republic of Germany
19. Annual Meeting of the Institute of Nuclear Materials Management, Cincinnati, Ohio, June 27-29, 1978
- 15) EKS
Gupta, D.; Heil, J.
Design features relevant to improved IAEA safeguards
Internat. Symp. on Nuclear Material Safeguards, Wien, Austria, October 2-6, 1978
IAEA-SM-231/10
- 16) EKS
Mönnich, E.; Müller, G.; Scheuerpflug, W.; Sellinschegg, D.
A continuous controllable containment system for the SNM flow in a zero power plutonium reactor facility
19. Annual Meeting of the Institute of Nuclear Materials Management, Cincinnati, Ohio, June 27-29, 1978
- 17) IDT
Polster, F.J.
FADABS: Ein Datenbanksystem für den Siemens Prozeßrechner 330
Tagungsbericht der 9. Jahrestagung des Siemens Prozeßrechner Anwenderkreises I vom 5. bis 7. April 1978 im Kernforschungszentrum Karlsruhe. KfK 2642 (April 78), S. 227-44
- 18) SpFK
Mache, H.R. (Hrsg.)
Projekt Spaltstoffflußkontrolle. Jahresbericht 1977
KfK 2681 (Oktober 1978)
- 19) IRCh
Mainka, E.; Coerdt, W.
Versuche zur schnellen und genauen Thoriumbestimmung mit potentiometrischer Endpunktbestimmung
KfK 2709 (Oktober 1978)

- 20) IDT
Avenhaus, R.; Heil, J.
Safeguards systems parameters
Internat. Symp. on Nuclear Materials Safeguards, Wien, Austria,
October 2-6, 1978
IAEA-SM-231/7
- 21) IDT
Kerpe, R.
Eine Implementierung des "Least Recently Used"-Seitenersetzungs-
algorithmus für den Prozeßrechner 330.
Tagungsbericht der 9. Jahrestagung des Siemens Prozeßrechner Anwender-
kreises I vom 5.-7. April 1978 im Kernforschungszentrum Karlsruhe
KfK-2642 (April 1978) S. 245-54
- 22) IDT
Avenhaus, R.
Spieltheoretische Behandlung von Stichprobenkontrollen
Univ. Mannheim, Fakultät für Volkswirtschaftslehre und Statistik
Discussion Paper Nr. 111/78
- 23) INR
Wiese, H.W.; Marzo, M.
Korrelationen zwischen schweren Isotopen: Eine theoretische Unter-
suchung der Pu/U/D²³⁵-Korrelation in einem 1300 MWe-Druckwasserreaktor
Symp. on Isotopic Correlation and its Application to the Nuclear Fuel
Cycle, Stresa, Italy, May 9-11, 1978
- 24) KFA Jülich
Buttler, R.; Büker, H.
Ein Kernmaterial-Bilanzierungs- und -Kontrollsystem für Forschungs-
zentren
Band I: Detailkonzeption eines computergestützten Buchhaltungssystems
Jül-1540 (1978)

25) KFA Jülich

Engelhardt, H.

Entwicklung eines Kernmaterial-Sicherungssystems für den THTR-300

Kugelhaufenreaktor

Jül-1522 (1978)

Verzeichnis der Primärberichte
des Projektes SpFK für das Jahr 1978

Folgende Berichte enthalten unveröffentlichte Informationen von vorläufigem und betriebsinternem Character. Eine Zurverfügungstellung der Berichte ist nach entsprechender einzelvertraglicher Vereinbarung über die Nutzung des darin enthaltenen know how (know-how-Vertrag) möglich. Entsprechende Anfragen sind an die Stabsabteilung Patente und Lizenzen (PAL) des KfK zu richten.

I. Entwicklung von Konzepten und Systemen zur Kernmaterialüberwachung

- 1) 07.01.02 P 00 A EKS
D. Gupta, J. Heil
Design Features Relevant to Improved IAEA Safeguards
Dezember 1978
- 2) 07.01.02 P 02 A IDT
F.J. Polster
Using a Preprocessor to Implement a Data Manipulation Language For a
Minicomputer Data Base System
April 1978
- 3) 07.01.02 P 02 B IDT
V. Jarsch, S. Onnen, F.J. Polster, J. Voit
An Approach to a Generalized Real-Time Nuclear Materials Control System
Juni 1978
- 4) 07.01.02 P 02 C IDT
R. Kerpe
Das FADABS-Dateizugriffssystem DZS: Beschreibung und Programmdokumentation
November 1978
- 5) 07.01.02 P 02 D IDT
F.J. Polster
FORDAM-Handbuch
Oktober 1978
- 6) 07.01.02 P 02 E IDT
F.J. Polster
Die Übersetzung von FORDAM-Anweisungen in FORTRAN
Dezember 1978

- 7) 07.01.02 P 02 F IDT
V. Jarsch, S. Onnen, F.-J. Polster, J. Voit
Uniform data description for a generalized real-time nuclear materials
control system
Oktober 1978
- 8) 07.01.02 P 03 A IDT
R. Avenhaus, S. Fenyi, H. Frick
Box Models for the Carbon Dioxide Cycle of the Earth
Oktober 1978
- 9) 07.01.02 P 03 B IDT
R. Avenhaus
Spieltheoretische Behandlung von Stichprobenkontrollen
November 1978
- 10) 07.01.02 P 03 C IDT
H. Frick
Optimal Linear Combinations of Accounting Data for the Detection of
Non-Constant Losses
Dezember 1978
- 11) 07.01.02 P 03 D IDT
H. Frick
On an Application of Game Theory to a Problem of Testing
Statistical Hypothesis
Dezember 1978
- 12) 07.01.02 P 03 E IDT
S. Fenyi, H. Frick
On the Asymptotic Behaviour of the Solution of a Differential Equation
System Used in First Order Kinetic Systems
Dezember 1978
- 13) 07.01.02 P 04 A EKS, IDT
R. Avenhaus, W. Golly, W. Rust
Kernmaterialbilanzierung und Datenverifikation im Kernforschungs-
zentrum Karlsruhe
November 1978

- 14) 07.01.02 P 04 B EKS
D. Gupta, W. Bahm, J. Weppner
Nuclear Materials Management in a Uranium Enrichment Facility Based
on the Separation Nozzle Process
November 1978
- 15) 07.01.02 P 04 C EKS
W. Bahm, U. Bicking, W. Golly, D. Gupta, W. Rust, G. Tretter, F. Voß
The Capabilities of Present Day Safeguards Techniques in Existing
Nuclear Facilities Like Fabrication, Reprocessing and Uranium Enrichment
November 1978
- 16) 07.01.02 P 04 D EKS
F. Voß
Kommentar zum Entwurf des IAEA "Safeguards Technical Manual, Part C"
November 1978
- 17) 07.01.02 P 04 E EKS
W. Bahm, J. Weppner
Safeguards Technology in a Uranium Enrichment Facility Based on the
Separation Nozzle Process
November 1978
- 18) 07.01.02 P 04 F EKS
U. Bicking
Auslegung und Planung einer überwachungs- und sicherungstechnisch
optimierten Fabrikationsanlage - Abschlußbericht
November 1978
- 19) 07.01.02 P 04 G EKS
U. Bicking, W. Golly, W. Rust, F. Voß
Erarbeitung von Grundlagen für das Überwachungssystem eines Entsorgungszentrums
November 1978
- 20) 07.01.02 P 04 I EKS
F. Voß
Stellungnahme zu Arbeitspapieren der INFCE Arbeitsgruppe 4
November 1978

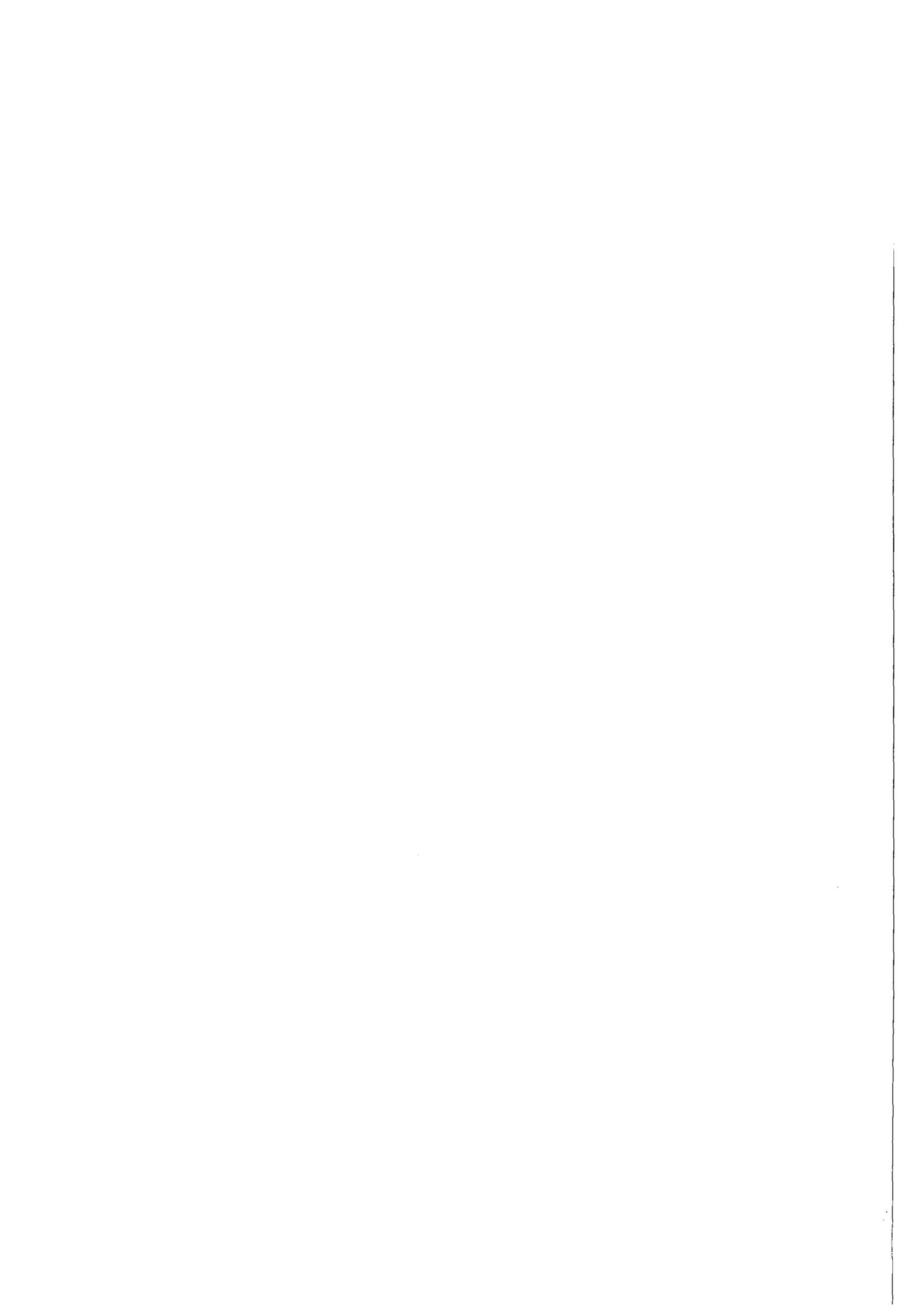
II. Implementierung von Überwachungssystemen

- 21) 07.01.03 P 02 A IRCh
J. Neuber, S. Flach, R. Braun
Erstellung eines Röntgenfluoreszenz-Analysensystems für die On-Line-
Analyse von U und Pu in der WAK
Dezember 1978
- 22) 07.01.03 P 04 A AS
G. Bork, Chr. Brückner
Zur Abschätzung der Ungenauigkeit einer Kernmaterialbilanz in einer
Mischoxid-Fabrikationsanlage
September 1978

III. Entwicklung und Erprobung von Verfahren und Komponenten im
Zusammenhang mit der Kernmaterialüberwachung

- 23) 07.01.04 P 01 A IRCh
E. Mainka, W. Coerdts
Versuche zur schnellen und genauen Thoriumbestimmung mit potentiometrischer Endpunktbestimmung
November 1978
- 24) 07.01.04 P 02 A EKS, IDT
W. Beyrich, G. Spannagel
Practical Approach to a Procedure of Judging the Results of Analytical
Verification Measurements
Oktober 1978
- 25) 07.01.04 P 02 B EKS, IDT
W. Beyrich, G. Spannagel
The Mass Spectrometric Determination of U-235 in Uranium Hexafluoride
Oktober 1978

- 26) 07.01.04 P 02 C EKS, IDT
W. Beyrich, G. Spannagel
Preliminary Report on the Evaluation of the AS-76 Interlabtest, Part I
November 1978
- 27) 07.01.04 P 02 D EKS, IDT
W. Beyrich, G. Spannagel
Auswertung einiger Pafex-II-Ergebnisse hinsichtlich der auftretenden
Interlabordifferenzen
- 28) 07.01.04 P 02 E EKS
W. Beyrich
Measurement Results of Three French Laboratories Obtained in 1977 on
the Samples Used in the GfK-Dornier Interlabtest (KfK 2340)
November 1978
- 29) 07.01.04 P 03 A IAK
H. Eberle, P. Matussek, I. Michel-Piper, H. Ottmar
Non-Destructive Elemental and Isotopic Assay of Plutonium and Uranium
in Nuclear Materials
Oktober 1978
- 30) 07.01.04 P 03 B IAK
H. Ottmar, H. Eberle
Plutonium Fraction Measurements in Mixed U-Pu Fuel Materials
Oktober 1978



A N H A N G C

Abkürzungsverzeichnis

ADB	Abteilung Dekontaminationsbetriebe der KfK
ALKEM	Alpha-Chemie und Metallurgie GmbH, Hanau
ASTM	American Standards Methods
BARC	Bhabha Atomic Research Centre, Trombay, Indien
BCMN	Central Bureau for Nuclear Measurements, Geel, Belgien
ECN	Netherlands Energy Research Foundation, Petten, Niederlande
EKS	Entwicklungsabteilung Kernmaterialsicherung der KfK
ESARDA	European Safeguards Research and Development Association
HS	Hauptabteilung Sicherheit der KfK
INB	Internationale Natrium-Brutreaktor-Baugesellschaft mbH, Bergisch-Gladbach
INR	Institut für Neutronen- und Reaktorphysik der KfK
IRCh	Institut für Radiochemie der KfK
KFA	Kernforschungsanlage Jülich
KfK	Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH
KWO	Kernkraftwerk Obrigheim
LWR	Leichtwasserreaktor
NBS	National Bureau of Standards
NDA	Non-destructive Analysis
NORMETEX	Testkreislauf zur kontinuierlichen UF ₆ -Verflüssigung
RBÜ	Reaktor-Brennelement Union, Hanau
RFA	Röntgenfluoreszenzanalyse
SALE	Safeguards Analytical Laboratory Evaluation (-Programm)
SBK	Schnell-Brüter-Kernkraftwerksgesellschaft mbH, Essen
SBR	Schneller Brutreaktor
SNEAK	Schnelle-Nullenergie-Anordnung Karlsruhe der KfK
THTR	Thorium-Hochtemperatur-Reaktor
TU	EURATOM Europäisches Institut für Transurane
VDEW	Verband deutscher Elektrizitätswerke e.V.
WAK	Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe

