



KfK 3169
Oktober 1981

Projekt Spaltstoffflußkontrolle

Jahresbericht 1980

Herausgeber: H.-R. Mache
Projekt Spaltstoffflußkontrolle

Kernforschungszentrum Karlsruhe

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

Projekt Spaltstoffflußkontrolle

KfK 3169

Projekt Spaltstoffflußkontrolle

Jahresbericht 1980

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 1980

Summary

The present report describes the major activities carried out in 1980 in the framework of the Nuclear Safeguards Project by the institutes of the Kernforschungszentrum Karlsruhe and the European Institute of Trans-uranium Elements.

Zusammenfassung

Der vorliegende Bericht beschreibt die Arbeiten am Projekt Spaltstoffflußkontrolle, die von den an diesem Projekt beteiligten Instituten des Kernforschungszentrums Karlsruhe und dem Europäischen Institut für Transurane im wesentlichen im Jahre 1980 durchgeführt wurden.

I N H A L T

	<u>Seite</u>
Einführung	1
1. <i>Entwicklung von Konzepten und Systemen zur Kernmaterialüberwachung</i>	4
1.1 Überwachungskonzepte für typische kerntechnische Anlagen	4
1.1.1 Überwachungskonzept für Trenndüsenanlagen	4
1.1.2 Überlegungen zur Überwachung von Wiederaufarbeitungsanlagen und von sonstigen kerntechnischen Einrichtungen	5
1.2 Systemanalytische Untersuchungen zur Anwendbarkeit der Echtzeitmaterialbilanzierung als Überwachungsmaßnahme	8
1.3 Quantifizierung von Containment/Surveillance-Maßnahmen	11
1.4 Systemanalytische Untersuchungen zur optimalen Auswertung der vom Inspektor verifizierten Materialbilanzdaten	12
1.5 DV-System für die Kernmaterialüberwachung in der KfK	14
1.6 Analyse von institutionellen Maßnahmen	17
2. <i>Vorarbeiten zur Implementierung von Überwachungssystemen</i>	20
2.1 Entwicklung und Tests von Containment/Surveillance-Einrichtungen	20
2.1.1 Feldtests von Beobachtungs- und Versiegelungssystemen der IAEA	20
2.1.2 Siegelssystem für LWR-Brennelemente	20
2.1.3 Überwachungskamerasystem auf der Basis einer Super-8-Filmkamera	21
2.2 Implementierung von direkten Meßmethoden	23
2.2.1 Bericht über den Entwicklungsstand des automatisierten Röntgenfluoreszenzanalyse-systems	23
2.2.2 Isotopenverdünnungsanalyse mit Pu-244-Spiketechnik	23

	<u>Seite</u>
2.3 Implementierung von zerstörungsfreien Methoden	25
2.3.1 Plutoniumabfallmeßgerät für kleine Behälter mit schwach aktivem Abfall	25
2.3.2 Probemessungen mit einem Neutronenmeßgerät für die Plutoniumbestimmung in 200-l-Abfallfässern	26
3. <i>Entwicklung und Erprobung von Verfahren und Komponenten im Zusammenhang mit der Kernmaterialüberwachung</i>	27
3.1 Direkte Meßmethoden	27
3.1.1 Emissionsspektrometrie nach Plasmaanregung	27
3.1.2 Isotopenkorrelationsexperiment	28
3.2 Zerstörungsfreie Meßmethoden	31
3.2.1 Gammaabsorptiometrie für die Uran- und Plutoniumbestimmung in Prozeßlösungen	31
3.3 Interlaboratoriumstests	32
3.3.1 Interlaboratoriumstest IDA-80	32
3.3.2 Probenherstellung für IDA-80	33
3.3.3 Beteiligung an Interlaboratoriumstests	34
3.3.4 Empirisches Verfahren zur Datenauswertung	35
3.3.5 Interlaboratoriumstest für Plutoniumisotopen-Verhältnismessungen durch Gammaskpektrometrie	36
Anhang: Verzeichnis der Veröffentlichungen des Projektes Spaltstoffflußkontrolle für das Jahr 1980	

Einführung

Im vorliegenden Bericht werden die im Jahre 1980 innerhalb des Projektes Spaltstoffflußkontrolle (PSpFK) erzielten Ergebnisse und ausgeführten Arbeiten zur internationalen Kernmaterialüberwachung zusammengefaßt. Die Forschungs- und Entwicklungsarbeiten waren weitgehend durch das IAEO-Unterstützungsprogramm der Bundesrepublik Deutschland und von ESARDA (European Safeguards Research and Development Association) sowie Anforderungen von der Industrie und des BMFT bestimmt.

Die Einzelbeiträge sind grob in drei Kapitel aufgeteilt, die sich - wie in den vorausgehenden Jahresberichten - durch die Zuordnung zu den drei Vorhaben des F+E-Programms 1980 für das Projekt ergeben. Als Grundlage dienten dem Bericht vorwiegend die Beiträge der am Projekt beteiligten Institute und Abteilungen, die für den "Ergebnisbericht über Forschung und Entwicklung 1980" des Kernforschungszentrums Karlsruhe eingereicht wurden. Die im Berichtszeitraum erschienenen Veröffentlichungen sind im Anhang zusammengestellt.

Für das Jahr 1980 waren gemäß dem F+E-Programm des Kernforschungszentrums Karlsruhe zur internationalen Kernmaterialüberwachung die folgenden Themenbereiche geplant:

- a) Untersuchung zur Realisierbarkeit der derzeitigen Überwachungsziele im geplanten Entsorgungszentrum, von Trenndüsenanlagen und bei fortgeschrittenen Reaktorsystemen;
- b) Untersuchungen zur Bewertung verschiedener Überwachungsmaßnahmen;
- c) Inbetriebnahme des DV-Systems zur Kernmaterialüberwachung des KfK und Vorbereitung des Systems für den industriellen Einsatz;
- d) Anpassung und Erprobung von Überwachungskomponenten;
- e) Vervollständigung des automatischen Röntgenfluoreszenz-Meßsystems; Einbau und Erprobung des Plutoniummeßsystems zur Abfallmessung in der HDB;
- f) Entwicklung von Meßverfahren zur Echtzeitbilanzierung in Wiederaufarbeitungsanlagen.

Dazu sind im wesentlichen folgende Ergebnisse erhalten worden:

Zu a): Aufgrund der geänderten politischen Lage zum ehemals geplanten integrierten Entsorgungszentrum wurden die Arbeiten auf mehr grundsätzliche Überlegungen zur Überwachung größerer Wiederaufarbeitungsanlagen verlagert.

Bezüglich der Trenndüsenanlage konnte gezeigt werden, daß lediglich geringfügige Ergänzungen des betrieblich notwendigen Meßsystems auch die Anforderungen aus der Überwachung abdecken. Die Aktivitäten zu fortgeschrittenen Reaktorsystemen wurden zunächst zurückgestellt, bis die Aufgabenverteilung mit den späteren Betreibern geklärt ist. In Erweiterung des F+E-Programms erfolgte eine Überprüfung der Anforderungen an ein internationales Plutoniumlager. Es konnte gezeigt werden, daß durch geringfügige Modifikationen des bestehenden IAEO-Berichtssystems die Anforderungen erfüllt werden könnten.

Zu b): Gemeinsam mit der DWK wurde ein Materialfluß- und Inventarschema für die Überwachung einer 1000 jato-Referenzwiederaufarbeitungsanlage erstellt. Für die vorgeschlagene Echtzeit-Materialbilanzierung wurden die in der Literatur genannten möglichen statistischen Verfahren analysiert, ein konkretes Auswerteverfahren für eine angenommene konstante Verlustmenge pro Bilanzperiode erarbeitet und mit simulierten Daten erprobt. Für den unterstellten speziellen Fall ergab sich ein um den Faktor 3 zuverlässigere Aussage der Echtzeitbilanzierung gegenüber der klassischen Bilanzierungsmethode.

Zur Quantifizierung der Aussagefähigkeit von Containment/Surveillance-Maßnahmen wurde ein erster mathematischer Ansatz am Beispiel eines in einer Personenschleuse eingebauten Strahlenmonitors entwickelt.

Zu c): Die Dialoge für die Anfangsbestandsaufnahme des DV-Systems bei SNEAK wurden fertiggestellt und der Probetrieb des Systems aufgenommen.

Zu d): Mit dem Einsetzen von drei versiegelten Brennelementen in das Core des Versuchskraftwerkes Kahl hat das Siegel-Demonstrationsexperiment begonnen. Mit einem erweiterten Kamerasystem auf der Basis einer Super-8-Filmkamera wurden erfolgreich ausgedehnte Zuverlässigkeitstests durchgeführt. Der Test eines Nachtsichtgerätes zur Beobachtung

der Cerenkov-Strahlung an bestrahlten Brennelementen in der WAK zeigte die prinzipielle Verwendbarkeit für die qualitative Überwachung.

Zu e): Die erforderlichen Komponenten sind entwickelt und werden demnächst kalt erprobt.

Zu f): Ein Gammaabsorptionsspektrometer zur Pu-Bestimmung wurde entwickelt.

Im folgenden Text werden die Ergebnisse bzw. Tätigkeiten etwas ausführlicher dargestellt und Hinweise auf entsprechende Veröffentlichungen und die beteiligten Institutionen gegeben.

1. Entwicklung von Konzepten und Systemen zur Kernmaterialüberwachung

1.1 Überwachungskonzepte für typische kerntechnische Anlagen

1.1.1 Überwachungskonzept für Trenndüsenanlagen

In den vorangegangenen Berichtszeiträumen wurde ein Überwachungskonzept für Trenndüsenanlagen auf der Basis der Kernmaterialbuchführung erstellt sowie Versuche zur experimentellen Absicherung des Konzeptes vorbereitet bzw. durchgeführt und ausgewertet. Wesentlicher Bestandteil dieser Versuche ist ein Test von Elementen des Konzeptes in der First Cascade (FC), der ersten Ausbaustufe der Demonstrationsanlage.

Die bisherigen Untersuchungen zeigten, daß zur vollständigen Erfassung des Anlageninventars und -durchflusses nur in geringem Umfang eine Erweiterung und Ergänzung des betrieblichen Meßsystems erforderlich ist.

Die Untersuchungen zu Problemen der Verifikation, Eichung, Kalibrierung etc. ergaben im wesentlichen die folgenden Aussagen:

- Die Verifikation von überwachungsrelevanten Primärdaten ist möglich.
- Cross-Checks bezüglich Inventar- und Durchflußmessungen sind in allen Fällen möglich, wobei die zentrale Waage bzw. die Füllstandsmeßeinrichtungen der Puffer als Referenz dienen.
- Probleme der Eichung und Kalibrierung sind z.T. noch zu lösen.

Weiterhin zeigte sich, daß zur internationalen Überwachung der FC wegen deren spezifischer Charakteristika (kein Anlagendurchsatz, geringes Inventar, keine Höheranreicherung möglich) nur Aktivitäten in geringem Umfang erforderlich sind.

- Hauptergebnisse:
- Das betrieblich vorgesehene Meßsystem für die Demo-Anlage ist in geringem Umfang zu erweitern bzw. zu ergänzen.
 - Eine Verifikation der Anlagendurchflüsse und -inventare ist möglich.

- Zur internationalen Überwachung der FC sind Aktivitäten in nur geringem Umfang erforderlich.

Veröffentlichung:

- /1/ Weppner, J.; Didier, H.J.; de Braga Melo, E.
Role of C/S Measures in the International Safeguards System for Separation Nozzle Enrichment Facilities.
2nd Annual Symp. on Safeguards and Nuclear Material Management, Proc., Edinburgh, March 26-28, 1980. ESARDA-11 (1980), S. 238-40.

Beteiligte Institutionen: EKS

INTERATOM, CNEN, NUCLEI

1.1.2 Überlegungen zur Überwachung von Wiederaufarbeitungsanlagen und von sonstigen kerntechnischen Einrichtungen

Der Vergleich von vier nationalen Ansätzen für Überwachungskonzepte großer Wiederaufarbeitungsanlagen wurde im Rahmen der International Working Group on Reprocessing Plant Safeguards (IWG-RPS) fortgesetzt und eine eigene Bewertung vorgenommen /2/. Dabei wurden einige spezielle Themen näher betrachtet: Definition von Alarmen und Versagen von Überwachungssystemen sowie deren Folgen; Verifizierbarkeit von Daten; Kombination von Materialbuchführung mit Containment/Surveillance-Maßnahmen. Es stellte sich heraus - wie schon beim Konzeptvergleich -, daß zu wenig detaillierte Informationen zur Verfügung stehen, um endgültige Aussagen zu ermöglichen. Bereiche für weitere erforderliche F+E-Arbeiten wurden identifiziert und eine verstärkte Untersuchung der Möglichkeiten der Echtzeitmaterialbilanzierung und der Containment/Surveillance-Maßnahmen als notwendig erkannt (siehe Kapitel 1.2 und 1.3).

Das Materialflußschema für einen Referenz-Brennstoffzyklus, der aus einer Brennelementfabrikation und 6 Reaktoren besteht, wurde ausgearbeitet. Für einen vorgegebenen Satz an Verfälschungsmöglichkeiten wurden in Abhängigkeit von Materialform und -art die sich daraus ergebenden Anomalien identifiziert. Es zeigt sich, daß das gegenwärtige

Überwachungssystem der IAEO alle diese Anomalien detektieren kann.

Im Auftrag von BMFT wurde eine technische Untersuchung für die Beurteilung der Notwendigkeit der IAEO-Überwachung in einer Schwermwasser-Herstellungsanlage vorgenommen. Die Studie zeigt u.a., daß die Überwachung solcher Anlagen

- nach den Bestimmungen des NV-Vertrags nicht möglich ist und für Staaten, die den NV-Vertrag unterschrieben haben, nicht erforderlich ist und deshalb die Überwachung solcher Anlagen nur für Staaten, die dem NV-Vertrag nicht beigetreten sind, relevant ist;
- für IAEO nur von geringer Bedeutung sein kann und
- global und einfach sein muß, um unnötig hohen Aufwand zu vermeiden, soweit die Überwachung überhaupt angewendet werden soll.

Eine erneute Analyse der Überwachungsproblematik von Gasultrazentrifugenanlagen (GUZ) für die Urananreicherung im Auftrag von BMFT ergab, daß Art und Umfang der IAEO-Überwachung stark von den politisch festzulegenden Abzweigmöglichkeiten beeinflusst wird.

- Hauptergebnisse:
- Um eine Entscheidung zwischen den verschiedenen Überwachungsansätzen treffen zu können, sind vorher detailliertere Untersuchungen zur Echzeitmaterialbilanzierung und zu den Containment/Surveillance-Maßnahmen notwendig.
 - Mit Hilfe eines ersten Bewertungsschemas wurde das Überwachungssystem eines Modell-Brennstoffzyklus analysiert.

Veröffentlichungen:

/2/ Voß, F.; Gupta, D.

Preliminary Comparative Assessment of Advanced Safeguards Approaches for Reprocessing Facilities.

2nd Annual Symp. on Safeguards and Nuclear Material Management, Proc., Edinburgh, March 26-28, 1980. ESARDA-11 (1980), S.246-51.

/3/ Gupta, D.

Design Features Relevant to Improved Safeguards Implementation
in Existing Nuclear Facilities.

International Training Course on Nuclear Materials Accountability
and Control for Safeguards Purposes, Santa Fe, May 27 - June 6,
1980.

/4/ Sellinschegg, D.

Kernmaterialüberwachung bei Wiederaufarbeitungsanlagen.

Grupe, H. (Hrsg.)

Wie sicher ist die Entsorgung, Vortr. einer Informationsveran-
staltung über Fragen der Kernenergie, Karlsruhe, Juni 1980,
KfK 1980, S. 9-15.

Beteiligte Institutionen: EKS, PSpFK-PL

1.2 Systemanalytische Untersuchungen zur Anwendbarkeit der Echtzeitmaterialbilanzierung als Überwachungsmaßnahme

Das langfristige Hauptziel ist, für die Methode der Echtzeitmaterialbilanzierung - die durch die neuformulierten Überwachungsziele der IAEO international in Betracht gezogen wird - geeignete Auswerteverfahren zu untersuchen und die Leistungsfähigkeit dieser Überwachungsmethode anhand von konkreten Beispielen zu demonstrieren.

Zunächst wurden die in der Literatur bekannt gewordenen Auswertungsverfahren analysiert /5/. Es zeigte sich, daß es eine Reihe von Ansätzen gibt, jedoch noch weitere Entwicklungsarbeiten erforderlich sind.

Man hat sich darauf konzentriert, nach erwartungstreuen Schätzern mit minimaler Varianz für die Verlustmenge zu suchen mit dem Fernziel, aus dem Verhalten der Verlustmenge auf eventuell vorliegende Abzweigungsstrategien schließen zu können. Die Untersuchungen wurden für eine konstante Verlustmenge pro Bilanzperiode begonnen. Die Simulation einer Echtzeitmaterialbilanzierung für eine 1000 jato Wiederaufarbeitungsanlage hat unter den Randbedingungen einer täglichen Inventur bei laufender Anlage, stationärem Betriebszustand, konstantem Inventar in den Prozeßkomponenten und keiner Rekalibration der Meßgeräte im Referenzzeitraum zu den in der folgenden Abbildung dargestellten Ergebnissen geführt.

Es zeigt sich, daß die Varianz des Schätzers für die Verlustmenge durch den systematischen Fehler der Durchflußmessung bestimmt wird, wobei der wesentliche Anteil des systematischen Fehlers aus der Eingangsmessung kommt. Eine konstante Verlustmenge - z.B. von 0,2 kg pro Bilanzperiode - wird durch den Schätzer sichtbar gemacht.

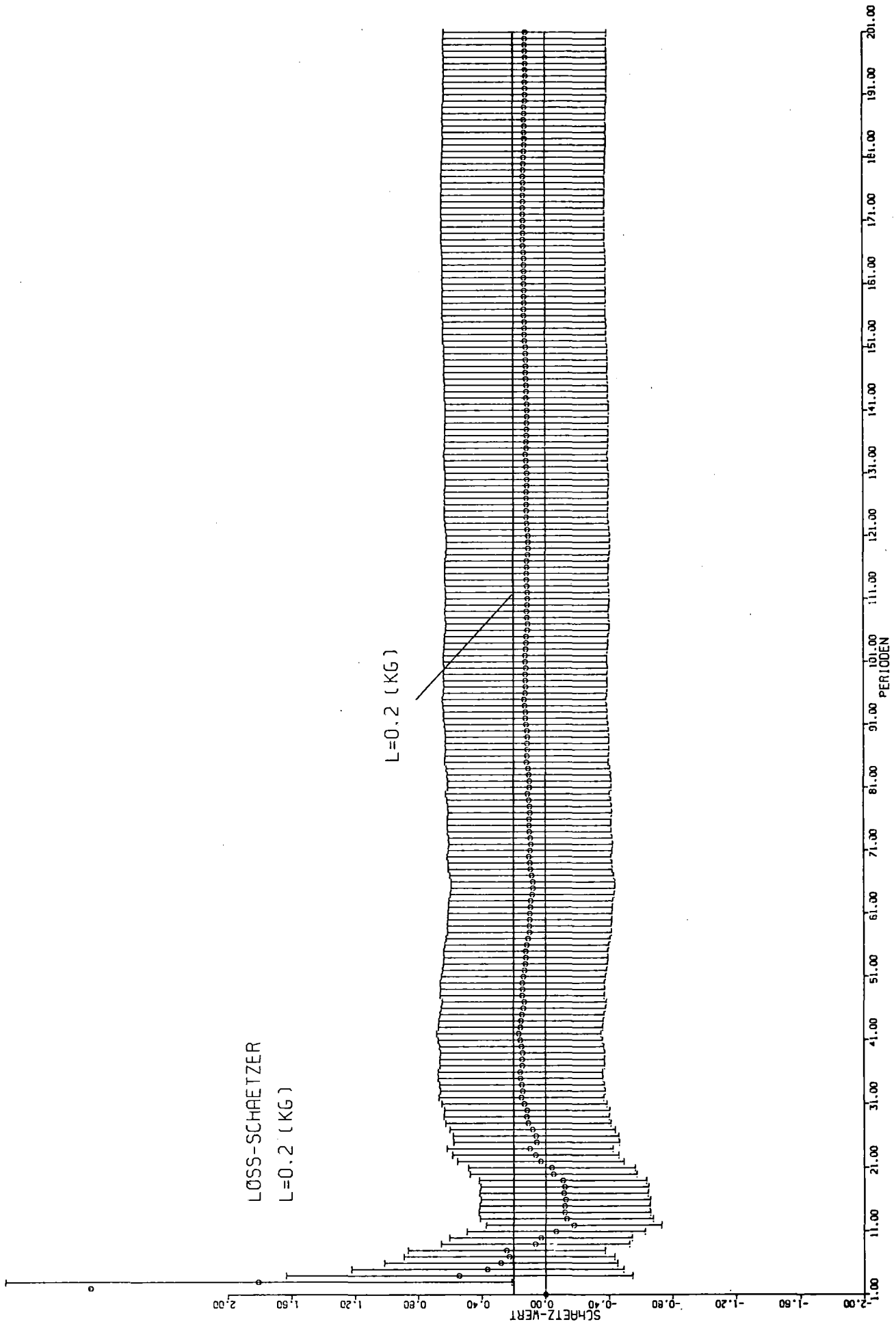


Abb. 1: Schätzer für eine konstante Verlustmenge

Hauptergebnis: Als erster Schritt zur Auswahl geeigneter Auswahlverfahren wurde ein Schätzer für eine konstante Verlustrate erarbeitet und exemplarisch auf simulierte Daten einer 1000 jato Wiederaufarbeitungsanlage angewandt.

Veröffentlichung:

/5/ Sellinschegg, D.

Übersicht über Ansätze zur mehrperiodigen Materialbilanzierung.

KfK-2401 (August 1980).

Beteiligte Institutionen: EKS

1.3 Quantifizierung von Containment/Surveillance-Maßnahmen

Mit Hilfe von Methoden der statistischen Testtheorie ist die Materialbilanzierung mit Datenverifikation in wesentlichen Teilen quantifiziert worden. Es wurde nun der Versuch unternommen, diesen Formalismus auf die Containment/Surveillance-Maßnahmen zu übertragen. Bisher hat man dazu an einem Strahlungsmonitor für eine Personenschleuse beispielhaft die Anwendbarkeit untersucht. Dabei wurden die folgenden Probleme herausgearbeitet:

- Wenn die Quantifizierung von Containment/Surveillance-Maßnahmen keine Abschätzung über die maximale möglicherweise entwendete Menge geben kann, so ist die Containment/Surveillance-Maßnahme nur auf die Rolle eines Indikators begrenzt. Auf einer zweiten Aktionsstufe ist zwischen echten und falschen Alarmen zu unterscheiden.
- Mehr Aufmerksamkeit ist der Redundanz von C/S-Maßnahmen zu widmen, wenn eine quantitative Bewertung mittels der Test- und/oder Zuverlässigkeitstheorie angestrebt wird.
- Zur Bewertung von C/S-Systemen sollten nur realistische Abzweigstrategien zugrunde gelegt werden; diese müssen jedoch voll abgedeckt werden.

Hauptergebnis: Die Übertragung der Methoden der statistischen Testtheorie auf die Quantifizierung von C/S-Maßnahmen zeigte bisher eine Reihe von Problemen auf, die weiterer theoretischer und experimenteller Untersuchungen bedürfen.

Veröffentlichung:

/16/ Avenhaus, R.; Beedgen, R.; Leitner, E.; Saad, M.
Quantification of the Performance of C/S Components.
Seminar of the ESARDA Working Group on Containment/Surveillance,
JRC Ispra, September 17-19, 1980, S. 207-223.

Beteiligte Institutionen: IDT
DWK

1.4 Systemanalytische Untersuchungen zur optimalen Auswertung der vom Inspektor verifizierten Materialbilanzdaten

Die Untersuchungen zu der Frage nach der "besten" Auswertung von Materialbilanzdaten, die gemeinsam mit JRC Ispra durchgeführt wurden, sind zu einem vorläufigen Abschluß gebracht worden. Dabei stellte sich heraus, daß es bei vorgegebener Gesamtfehlalarmwahrscheinlichkeit α kein Testverfahren gibt, daß bei allen möglichen Entwendungsstrategien eine größtmögliche Entwendungswahrscheinlichkeit liefert. Die numerischen Berechnungen am konkreten Fall NUKEM machten quantitative Vergleiche der Testverfahren möglich. Wegen Einzelheiten wird auf die vorliegenden Veröffentlichungen verwiesen /17,18,19/; im Jahresbericht 1979 des Projektes Spaltstoffflußkontrolle wurde bereits ein ausführlicherer Bericht über die Arbeiten gegeben.

Hauptergebnis: Kein Testverfahren kann bei vorgegebener Gesamtfehlalarmwahrscheinlichkeit für alle möglichen Entwendungsstrategien die maximale Entwendungswahrscheinlichkeit liefern.

Veröffentlichungen:

- /6/ Avenhaus, R.; Geiger, W.; Jaeschke, A.
Kernmaterialbilanzierung und Datenverifikation.
KfK-Nachrichten, 12 (1980) Nr. 1-2, S. 40-46.
- /17/ Avenhaus, R.; Beedgen, R.
Statistical Analysis of Alternative Data Evaluation Schemes.
Part II: Extended Theoretical Considerations ((D,MUF)-Problem).
2nd Annual Symp. on Safeguards and Nuclear Material Management,
Proc., Edinburgh, March 26-28, 1980. ESARDA-11 (1980), S.167-72.
- /18/ Beedgen, R.; Neu, H.
Statistical Analysis of Alternative Data Evaluation Schemes.
Part III: Numerical Example with MUF-D- and Bivariate (D,MUF)-
Tests.
2nd Annual Symp. on Safeguards and Nuclear Material Management,
Proc., Edinburgh, March 26-28, 1980. ESARDA-11 (1980), S. 194-201.

/19/ Avenhaus, R.; Beedgen, R.; Neu, H.

Verification of Nuclear Material Balances: General Theory and
Application to a Highly Enriched Uranium Fabrication Plant.

KfK-2942 / EUR-6406e (August 1980).

Mache, H.R. (Hrsg.)

Projekt Spaltstoffflußkontrolle Jahresbericht 1979.

KfK-3166 (April 1981).

Beteiligte Institutionen: IDT

NUKEM, JRC Ispra

1.5 DV-System für die Kernmaterialüberwachung in der KfK

Das DV-System zur Überwachung der Kernmaterialien im KfK soll umfassend und nahezu in Realzeit die Betreiber und Inspektoren über die Kernmaterialbestände informieren und die Berichte für die internationale Überwachung (EURATOM-Berichte) automatisch erstellen. Als 1. Ausbaustufe wird dieses System für die SNEAK realisiert.

Um jederzeit aktuelle detaillierte Informationen über sämtliche Kernmaterial-Einheiten in der Anlage liefern zu können, werden die genauen Positionen der Kernmaterialien innerhalb der Anlage geführt und sämtliche Bewegungen und Veränderungen der Materialien verbucht. Das Verbuchen der Bewegungen und Veränderungen ("Prozesse") erfolgt betriebsbegleitend mit Hilfe von vor Ort installierten Terminals durch die Prozeß-Operateure selbst.

Die Funktionen des Kernmaterialüberwachungssystems für die SNEAK lassen sich grob unterteilen in die Erfassung und Abspeicherung der Daten in der Datenbasis einerseits und die Aufbereitung und Ausgabe dieser Daten in Form verschiedener Berichte und Auskünfte andererseits. Die Erfassung der Daten erfolgt im wesentlichen in zwei Stufen. Bei der Inbetriebnahme des DV-Systems wird der Anfangsbestand an Kernmaterialien detailliert aufgenommen. Nach dieser Initialisierung werden dann sämtliche Prozesse mit diesen Kernmaterialien erfaßt, so z.B. Transfers, Brennelement (BE)-Montagen usw. Mit diesen eingegebenen Daten ist das System dann in der Lage, die gewünschten betrieblichen und EURATOM-Berichte zu erstellen.

Zur Erhöhung der Datensicherheit bei der Dialogeingabe wurden mehrere Erweiterungen am institutsunabhängigen Dialogteil angebracht. Außerdem wurden Maßnahmen für den Datenschutz (Zugangskontrollen) und zur Verbesserung der Antwortzeiten bei den Dialogen implementiert.

Die Dialoge für die Aufnahme des Anfangsbestands (Materialtyp-, BE-Typ- und Ortsdialog sowie Material- und BE-Bestandsaufnahmedialog) wurden im Rahmen des mit dem Anwender abgestimmten Funktionsumfangs fertiggestellt, zu einem Gesamtsystem integriert und ihre Bedienung in einem vorläufigen Benutzerhandbuch beschrieben. Der Materialtypdialog wurde vom Anwender erprobt und einige Anforderungsänderungen realisiert. Ende 1980 wurde in der SNEAK mit der Datenaufnahme begonnen.

Vier der acht Prozeßdialoge (Materialtransfer intern, Behältertransfer, BE-Transfer, BE-Demontage) sind implementiert. Die betrieblichen Berichte wurden um mehrere Funktionen erweitert und in das Gesamtsystem integriert. In Abb. 2 ist die Programmstruktur und in Abb. 3 die Datenstruktur des DV-Systems für die KMÜ wiedergegeben.

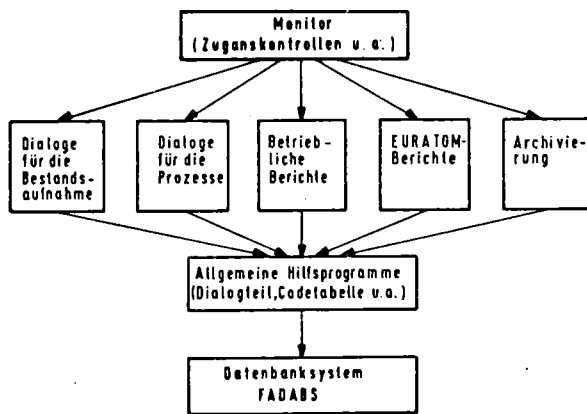


Abb. 2: Programmstruktur des DV-Systems für die KMÜ

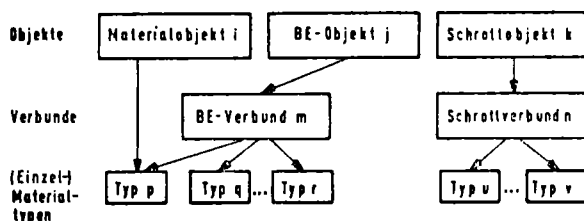


Abb. 3: Datenstruktur des DV-Systems für die KMÜ

- Hauptergebnisse:
- Die Dialoge für die Anfangsbestandsaufnahme und die betrieblichen Berichte wurden für den Probebetrieb in der SNEAK fertiggestellt..
 - Die Dialoge für das Verbuchen der Kernmaterialprozesse in der SNEAK wurden weitgehend detail-spezifiziert und z.T. programmiert.

Veröffentlichungen:

- /6/ Avenhaus, R.; Geiger, W.; Jaeschke, A.
Kernmaterialbilanzierung und Datenverifikation.
KfK-Nachrichten, 12 (1980) Nr. 1-2, S. 40-46.
- /7/ Geiger, W.; Jaeschke, A.; Kerpe, R.; Polster, F.J.;
Tretter, G.; Voit, J.
Measures Allowing to Attain a High Data Reliability in a Nuclear
Material Accounting System.
2nd Annual Symp. on Safeguards and Nuclear Material Management,
Proc., Edinburgh, March 26-28, 1980. ESARDA-11 (1980), S. 73-74.

Beteiligte Institutionen: IDT, EKS

1.6 Analyse von institutionellen Maßnahmen

Durch institutionelle Maßnahmen, unter denen im wesentlichen Konzepte zur Internationalisierung zu verstehen sind, soll durch das Einbinden der einzelnen Staaten in ein internationales Vertragssystem und durch das Verflechten der einzelstaatlichen Nuklearinteressen verhindert werden, daß ein Einzelstaat Eigenentwicklungen auf dem Gebiet der Kerntechnik fördert, die den Interessen der Gesamtheit zuwiderlaufen.

In den INFCE-Berichten sind eine ganze Reihe solcher institutionellen Maßnahmen vorgeschlagen und diskutiert worden, so z.B. eine Internationale Kernbrennstoffbank, eine Internationale Kernbrennstoffbehörde und Regionale (d.h. durch mehrere Staaten einer Region betriebene) Kernbrennstoffkreislaufzentren. Zur Zeit wird jedoch nur das Konzept der Lagerung überschüssiger Plutoniummengen unter internationaler Kontrolle, kurz als "International Plutonium Storage" (IPS) bezeichnet, intensiv in Hinblick auf eine mögliche Einführung dieser Maßnahme diskutiert. Entsprechend konzentrierten sich die Arbeiten im Jahr 1980 auf IPS, insbesondere auf den Vergleich der Datenanforderungen eines zukünftigen IPS-Systems mit der Datenerfassung des jetzigen Systems der Spaltstoffflußkontrolle sowie auf Untersuchungen der Struktur eines IPS-Systems.

IPS und Spaltstoffflußkontrolle

Das IPS-Konzept stützt sich rechtlich auf den Artikel XII.A.5 des IAEA-Statuts. In diesem Artikel wird der IAEA das Recht eingeräumt, von den Mitgliedsstaaten die Hinterlegung von überschüssigen Spaltstoffmengen zu fordern, um damit nationale Anhäufungen zu vermeiden.

Um diese Forderung jedoch fachkundig begründen zu können, muß die IPS-Behörde Kenntnis über die existierenden Plutoniummengen, deren Eigentümer und deren vorgesehenen Gebrauch erhalten.

Spaltstoffmengen und ihre Bewegungen werden bereits im Rahmen des NV-Vertrags (vgl. INFCIRC/153) bzw. anderer Regelungen (vgl. INFCIRC/66) von der IAEA erfaßt. Es liegt also nahe, die Datenerfassungen für IPS- und Spaltstoffflußkontrollzwecke zu harmonisieren. Allerdings werden

nicht alle Daten, die für IPS relevant und notwendig sind, durch das jetzige IAEO-Berichtswesen bereits erfaßt, insbesondere fehlen Angaben über die Eigentumsverhältnisse, den vorgesehenen Gebrauch und die zu durchlaufenden Verarbeitungsgänge. Auch die Meldepflichtigkeit muß für IPS-Zwecke anders geregelt werden.

Die bisher durchgeführte Überprüfung der mit diesem Thema verbundenen Fragestellungen führte zu dem Ergebnis, daß durch entsprechende Modifizierungen des jetzigen IAEO-Berichtswesens fast alle IPS-relevanten Daten von jenem miterfaßt werden können. Die Überlegungen zu diesem Themenkreis konnten zur Unterstützung der deutschen Seite (BMFT) bei den IPS-Verhandlungen bei der IAEO in Wien verwendet werden.

IPS-Struktur

Das IPS-Konzept, über das z.Zt. im internationalen Rahmen diskutiert wird, umfaßt zwei Komponenten:

- "hardware", d.h. die physische Lagerung und Kontrolle überschüssiger Plutoniummengen;
- "software", d.h. die datenmäßige Erfassung aller Plutoniummengen, ihrer Bewegungen und Verarbeitungsschritte.

Die Ausführung dieser Aufgaben läßt sich in sechs Aktivitäten aufgliedern. Während es für die buchhalterischen Aktivitäten (Registrierung, Löschen der Registrierung) und für die Aktivitäten im Zusammenhang mit der Lagerung (Anliefern, Lagern und Kontrollieren) Vorbilder im System der Spaltstoffflußkontrolle gibt, stellen die Aktivitäten "Rückgabe" und "Verwendungsnachweis" neue Anforderungen dar. Sowohl "Rückgabe" als auch "Verwendungsnachweis" zwingen zu Entscheidungsfindungen im IPS-System: Soll die angeforderte Plutoniummenge zurückgegeben werden? Ist der Nachweis der bestimmungsgemäßen Verwendung glaubhaft erbracht worden?

Mit der Untersuchung der Möglichkeiten für die Durchführung dieser Aktivitäten und deren Konsequenzen, um zu einem glaubhaften und praktikablen IPS-System zu gelangen, wurde begonnen. Da Organisation und Gestaltung des IPS-Systems noch nicht festliegen, sondern noch Gegenstand internationaler Verhandlungen sind, kann ein abschließendes

Ergebnis zu dieser Thematik zum jetzigen Zeitpunkt nicht vorgelegt werden.

Hauptergebnis: Das IPS-System, als eine der institutionellen Maßnahmen, kann grundsätzlich in das IAEA/EURATOM-Kontrollwesen eingebettet werden. Das derzeitige Kontrollsystem ist überfordert, wenn von IPS der prospektive Nachweis für die Plausibilität von angeforderten Plutoniummengen und deren ausschließliche friedliche Nutzung verlangt wird.

Beteiligte Institutionen: AFAS, EKS

2. Vorarbeiten zur Implementierung von Überwachungssystemen

2.1 Entwicklung und Tests von Containment/Surveillance-Einrichtungen

2.1.1 Feldtests von Beobachtungs- und Versiegelungssystemen der IAEO

Im Juli 1980 fand der Test eines Nachtsichtgerätes zur Beobachtung der Cerenkov-Strahlung an bestrahlten Kernbrennstoffen am Lagerbecken der WAK statt. Das Experiment und seine Auswertung zeigten die Verwendbarkeit von Verfahren und Gerät für qualitative Beobachtungsmaßnahmen an bestrahlten Brennelementen und Brennstäben in Wasserbecken bis hin zur Feststellung konstruktiver Details. Voraussetzung ist eine geringe Beleuchtung, wodurch sich Konflikte mit Sicherheitsvorschriften ergeben können. Zur Überwindung der Probleme erscheint eine Weiterentwicklung des Verfahrens möglich, weitere Tests sind erforderlich.

Hauptergebnis: Es konnte nachgewiesen werden, daß die Cerenkov-Strahlung für die Überwachung bestrahlten Brennelemente einsetzbar ist.

Beteiligte Institutionen: HS

GWK, IAEO

2.1.2 Siegelsystem für LWR-Brennelemente

Im Mai 1980 wurde ein Siegel-Test-Experiment im Versuchsaatomkraftwerk Kahl begonnen. Auf drei Brennelementen vom KWU-Typ sind je zwei Siegel aufgesetzt. Die Siegel wurden mit den dafür vorgesehenen Werkzeugen im Naßlager auf die Brennelemente aufgebracht und mit Ultraschall identifiziert. Die Brennelemente befinden sich seitdem im Core. Eine optische Kontrolle im November 1980 bestätigte den einwandfreien Sitz der Siegel. Einige beim Testbeginn erkannte Probleme haben zu einer Weiterentwicklung des Siegelsystems geführt. Im Dezember 1980 konnten Verbesserungen der Siegelidentifizierbarkeit in einem Demonstrationsversuch nachgewiesen werden. Die Versiegelung der Brennelemente der nächsten Nachladung des VAK wurde vorbereitet, die Unter-

lagen für die Siegeladaption an den Exxon-Brennelementen sind fertig ausgearbeitet.

Hauptergebnis: Ein Dauertest von Brennelementsiegeln wurde im Versuchsatomkraftwerk Kahl mit der Versiegelung von 3 Brennelementen aufgenommen.

Veröffentlichung:

Brückner, Chr.; Crutzen, S.; Heger, H.; Pahl, L.

Zum Stand des Brennelementsiegel-Demonstrationsexperiments im Versuchsatomkraftwerk Kahl, 3rd Annual Symp. on Safeguards and Nuclear Material Management Proc., Karlsruhe, May 6-8, 1981, ESARDA-13 (1981), S. 345-348.

Beteiligte Institutionen: HS

JRC Ispra, VDEW; VAK Kahl

2.1.3 Überwachungskamerasystem auf der Basis einer Super-8-Filmkamera

An sieben Exemplaren der ersten industriell gefertigten Kleinserie sowie an einer 20 Stück umfassenden, für EURATOM gefertigten Zweitserie des Kamerasystems wurden eine Reihe von Tests durchgeführt, um Aussagen über die Zuverlässigkeit der Kameras und über die Verwendbarkeit verschiedener Filmtypen zu erhalten.

Vier der sieben Kameras erreichten störungsfrei und ohne nachweisbaren Verschleiß jeweils mehr als 250000 Bildauslösungen. An einer weiteren Kamera trat infolge zu hoher Umgebungstemperatur ($> 50^{\circ}\text{C}$) vorübergehend eine Störung auf, sie erreichte nach Temperaturrücknahme dann bis heute störungsfrei 220000 Aufnahmen. Die sechste Kamera fiel nach 65000 Aufnahmen wegen Motorschaden (Materialfehler) aus, die siebte Kamera hat zur Zeit 50000 Aufnahmen anstandslos erreicht. Die 20 Kameras der EURATOM-Serie durchliefen einen Abnahmetest mit je 2500 Bildauslösungen ohne Beanstandungen.

Testläufe zur Film-Prüfung wurden an 31 Normalfilmen (15 m in Normalkassette), 34 MFX-Filmen (30 m Dünnschichtfilm in Normalkassette) und mit 8 Großkassetten (mit je 61 m Normalfilm) durchgeführt. Die Tests

mit Normalfilmen in 15 m wie in Großkassetten verliefen anstandslos. An 23 mit normalem Drehmoment bei der Filmaufwicklung (ca. 80 gcm) durchgezogenen MFX-Filmen traten in 3 Fällen Störungen auf, als deren Ursache erhöhte Luftfeuchtigkeit in der Umgebung oder Knicke im Filmmaterial festgestellt werden konnten. 8 Testläufe von MFX-Filmen mit erhöhtem Drehmoment verliefen störungsfrei.

Zwei Prototypen eines weiterentwickelten Systems mit Datum- und Zeiteinspiegelung wurden im Dezember 1980 ausgeliefert. Labortests an den Systemen haben begonnen.

Hauptergebnis: Die Tests einer Kleinserie von Überwachungsfilmkameras erbrachten eine hohe Zuverlässigkeit der Kamerasysteme.

Veröffentlichungen:

Brückner, Chr.; Daib, H.; Pfeffer, K.H.

Advanced KfK Film Camera System, 3rd Annual Symp. on Safeguards and Nuclear Material Management Proc., Karlsruhe, May 6-8, 1981, ESARDA-13 (1981), S. 431-433.

/20/ Brückner, Chr.

On the Application of Optical Surveillance in Safeguards,
Seminar of the ESARDA Working Group on Containment/Surveillance,
JRC Ispra, September 17-19, 1980, S. 143-150.

Beteiligte Institutionen: HS

2.2 Implementierung von direkten Meßmethoden

2.2.1 Bericht über den Entwicklungsstand des automatisierten Röntgenfluoreszenzanalyse-systems

Die Spezifikation der Programme für die Steuerung wurde ausgearbeitet und die Programmierung extern vergeben.

Zur Vervollständigung der mechanischen Anteile des Analysensystems (zur Handhabung und Vorbereitung der Proben) wurde der Probenpuffer konstruiert und angefertigt.

Nach Fertigstellung der Mechanik und Implementierung der vergebenen Software wird das Gesamtsystem nahezu voll betriebsfähig. Die einzige Einschränkung resultiert aus der Verwendung eines entkoppelt betriebenen Sequenzspektrometers anstelle des Mehrkanalgeräts, welches sich bereits in der WAK in Erprobung befindet. Das zeitliche Meßverhalten des Mehrkanalspektrometers wird simuliert, zur Auswertung gelangen jedoch echte Meßdaten, die vom Lochstreifen übernommen werden. Eine längere Dauererprobung wird auf die Abnahme der Software folgen.

Hauptergebnis: Die Mechanik zum Probenpuffer wurde fertiggestellt.

Beteiligte Institutionen: IRCh
GWK

2.2.2 Isotopenverdünnungsanalyse mit Pu-244-Spiketechnik

Bei Verwendung von Pu-242 als Indikatorisotop der Isotopenverdünnungsanalyse muß in einer getrennten (nicht mit Indikator versetzten Probe) der Pu-242 Gehalt der zu untersuchenden Probe gemessen werden. Diese Messung kann entfallen (sie entspricht ca. 30 % des Analysenaufwands), wenn man Pu-244 als Indikatorisotop benutzt, das nicht im Kernbrennstoff der LWR enthalten ist. Da gleichzeitig U-233 zur Bestimmung der Uranisotopenkonzentration benutzt wird, das ebenfalls nicht im Brennstoff enthalten ist, gilt diese Einsparung betreffend des Analysenaufwandes auch für den Mischindikator Pu-244 und U-233.

Wie vorgesehen, wurden erste Versuche mit einem Pu-244 Indikator durchgeführt. Dazu wurde das Rechenprogramm, welches den Meßablauf und die Datenerfassung des automatischen Massenspektrometers steuert, entsprechend erweitert. Desgleichen wurde das Auswertungsprogramm der Isotopenverdünnungsanalyse so umgeschrieben, daß auch die Isotopenzusammensetzung des Pu und U aus den mit Indikator versetzten Proben ermittelt werden kann, die zuvor aus den Proben, die nicht mit einem Indikator versetzt waren, bestimmt wurde.

Ein Vergleich zwischen der herkömmlichen Methode und einem Mischindikator aus Pu-244 und U-233 ist angelaufen.

Hauptergebnis: Das automatische Massenspektrometer wurde auf die Pu-244-Spiketechnik umgestellt, so daß erste Probenmessungen durchgeführt werden können.

Beteiligte Institutionen: TUI, IRCh

2.3 Implementierung von zerstörungsfreien Methoden

2.3.1 Plutoniumabfallmeßgerät für kleine Behälter mit schwach aktivem Abfall

Im Rahmen des Deutsch-Indischen Zusammenarbeitsabkommens ist in Zusammenarbeit mit dem Bhabha Atomic Research Centre (BARC), Bombay, ein Plutoniumabfallmeßgerät fertiggestellt worden. Es ist vorgesehen für die Bestimmung des Plutoniumgehalts in schwach kontaminierten Abfällen, die in Abfallbehältern mit einem Volumen von ca. 5 l vorliegen.

Die Bestimmung des Plutoniumgehalts erfolgt über den Nachweis der Gammaeigenstrahlung der Plutonium-Isotope Pu-239 und Pu-241. Hierfür wird ein großflächiger NaJ-Detektor (5" x 2") in Verbindung mit einem Vielkanalanalysator verwendet. Während der Messung rotieren die Abfallbehälter vor dem Gammadetektor, um eine möglichst gleichförmige geometrische Nachweiswahrscheinlichkeit über das Behälter-Volumen zu erreichen.

Durch die Einbeziehung einer Korrektur auf Gammaabsorption in der Abfallmatrix konnte die Zuverlässigkeit in der quantitativen Plutoniumbestimmung wesentlich verbessert werden. Die Absorptionskorrektur wird aus dem gemessenen Gammaskpektrum abgeleitet. Die hierfür erforderliche Software wurde in einem Intel 8085 Mikroprozessor implementiert. Die Mikroprozessor-Software beinhaltet die komplette Datenauswertung und Eichroutinen. Das Programm für die Korrektur auf Gammaabsorption erlaubt auch eine ungefähre Identifikation des Matrixmaterials. Diese Information wird zusammen mit dem gemessenen Plutoniumgehalt auf einer Teletype ausgedruckt. Das Meßgerät wurde nach seiner Kalibrierung über einen Zeitraum von 6 Monaten erfolgreich auf seine Zuverlässigkeit und Stabilität hin getestet und befindet sich nun im Routineeinsatz.

Hauptergebnis: Das automatisierte Pu-Abfallmeßgerät wurde fertiggestellt und befindet sich im Routineeinsatz.

Veröffentlichung:

Matussek, P.; Ottmar, H.; Iyer, M.R.; Chakraborty, P.P.; Choitramani, S.J.; Sharma, D.N.

A Microprocessor-Based Plutonium Waste Monitor with Internal Matrix Attenuation Correction, 3rd Annual Symp. on Safeguards and Nuclear

Material Management, Proc., Karlsruhe, May 6-8, 1981, ESARDA-13
(1981), S. 139-142.

Beteiligte Institutionen: IAK
BARC (Bombay)

2.3.2 Probemessungen mit einem Neutronenmeßgerät für die Plutonium-
bestimmung in 200-l-Abfallfässern

Nach einigen Probemessungen bei HDB mußte die provisorisch aufgestellte Anlage zur Bestimmung von Plutonium in 200 l Fässern wieder abgebaut werden. Eine Meßanlage für automatischen Betrieb wurde spezifiziert, und die Ausschreibungsunterlagen wurden erstellt. Eine Beschaffung der Meßanlage wurde wegen Finanzmittelkürzungen zurückgestellt.

Beteiligte Institutionen: INR

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

3.1 Direkte Meßmethoden

3.1.1 Emissionsspektrometrie nach Plasmaanregung

Im Bereich von 294 bis 346 nm sind die beobachteten Pu-Linien vermessen und deren Nachweisempfindlichkeiten bestimmt worden.

Für die Urananalyse sind verschiedene Störeinflüsse untersucht worden.

Zur Bestimmung der Nachweisempfindlichkeiten verschiedener Pu-Linien sind reine Pu-Lösungen analysiert worden. Die Ergebnisse sind in Tabelle 1 zusammengefaßt.

Tabelle 1: Nachweisempfindlichkeit verschiedener Plutonium-Linien

Wellenlänge (nm)	$\frac{I_L}{I_B}$	konz. (µg/ml)	Nachweisgrenze (µg/ml)
294.52	5.123	100	0.586
295.00	28.87	100	0.104
296.45	27.83	100	0.108
297.23	159.57	100	0.019
298.00	59.17	100	0.051
298.81	48.00	100	0.062
299.39	57.15	100	0.051
299.63	85.47	100	0.035
300.04	149.25	100	0.020
309.33	15.00	100	0.200
319.83	6.57	100	0.456
340.10	7.44	100	0.403
346.50	4.77	100	0.629

Die Nachweisempfindlichkeit der Analysentechnik in verdünnten wäßrigen Lösungen liegt sowohl für Uran als auch für Plutonium bei 0.1 µg/ml und stimmt mit den Literaturdaten für Uran gut überein.

In einem weiteren Versuch wurde der Störfluß von Lösungen mit höherem Salzgehalt untersucht.

Mit dem vorhandenen Meinhard-Zerstäubersystem können Lösungen bis zu 3 % Salzgehalt analysiert werden. Die Nachweisgrenze für Uran unter diesen Arbeitsbedingungen liegt bei $\sim 1.4 \mu\text{g/ml}$.

In simuliertem HAW-Material kann die empfindliche U-Linie wegen Spektralinterferenzen nicht verwendet werden. Als Analysenlinie bietet sich die U-Linie bei 294.19 nm an. Die Nachweisempfindlichkeit geht auf $0.6 \mu\text{g/ml}$ hoch.

- Hauptergebnisse:
- Die Nachweisempfindlichkeit der Emissionsspektrometrie nach Plasmaanregung liegt in verdünnten wäßrigen Lösungen für Uran und Plutonium bei $0,1 \mu\text{g/ml}$.
 - Mit dieser Analysetechnik können Lösungen bis zu 3 % Salzgehalt analysiert werden.

Beteiligte Institutionen: IRCh, TUI

3.1.2 Isotopenkorrelationsexperiment

Die Analysendaten des Isotopenkorrelationsexperiments (ICE) wurden von vier verschiedenen Arbeitsgruppen nach unterschiedlichen statistischen Methoden ausgewertet. Für die Erstellung des Berichtes von ICE waren weiterführende Auswertungen in bezug auf die Bewertung dieser statistischen Methoden erforderlich. Der Bericht soll Anfang 1981 fertiggestellt werden.

Im Anschluß an die mit ICE gesammelten Erfahrungen konzentrierten sich die weiteren Arbeiten auf zwei Hauptziele:

- 1) Erstellung einer Prozedur, die sowohl für die Inspektion der Spaltstoffflußkontrolle am head-end der Spaltstoffflußkontrolle als auch für das geplante zweite Isotopenkorrelationsexperiment Fehlerquellen ausschließt, die im ersten Experiment beobachtet wurden und deren Beseitigung eine Voraussetzung für die anschließende statistische Auswertung ist.

2) Entwicklung einer Prozedur zur statistischen Analyse der Resultate verschiedener Methoden:

- a) Pu/U-Methode
- b) Isotopenkorrelationen mit Daten aus der direkten Bestimmung der schweren Elemente und Spaltprodukte und aus der passiven zerstörungsfreien n- und γ -Messung.
- c) Theoretische Berechnungen von Isotopenkorrelationen
- d) Reaktorbetreiberdaten
- e) Parallelanalysen

Das Ziel dieser statistischen Prozedur ist eine Bestimmung von Ausreißerdaten und die Abschätzung von systematischen und zufälligen Fehlern für jede der aufgeführten Methoden.

Erste Arbeiten für die Entwicklung beider Prozeduren sind im Gange. Der für 1980 geplante Beginn des zweiten Isotopenkorrelationsexperiments mußte wegen Abschaltung der WAK auf 1982 verschoben werden.

Hauptergebnis: Weiterführende Auswertung der Analysendaten des Isotopenkorrelationsexperiments nach unterschiedlichen statistischen Methoden ausgeführt.

Veröffentlichungen:

/8/ Beets, C.; Bemelmans, P.; Franssen, F.; Schoof, S.

Head-end Fissile Material Balance of a Reprocessing Campaign: An On Site Evaluation Procedure, 2nd Annual Symp. on Safeguards and Nuclear Material Management, Proc., Edinburgh, March 26-28, 1980. ESARDA-11 (1980), S. 347-52.

/9/ Schoof, S.; Zijp, W.L.

Comparison of the Isotope Correlation Technique with Conventional Statistical Methods, 2nd Annual Symp. on Safeguards and Nuclear Material Management, Proc., Edinburgh, March 26-28, 1980. ESARDA-11 (1980), S. 342-46.

/10/ Koch, L.

The Isotopic Correlation Experiment, 2nd Annual Symp. on Safeguards and Nuclear Material Management, Proc., Edinburgh, March 26-28, 1980. ESARDA-11 (1980), S. 392-95.

/11/ Arenz, H.J.; Hough, G.; Koch, L.

Experience for Safeguards Gained in the Isotope Correlation
Experiment, 2nd Annual Symp. on Safeguards and Nuclear Material
Management, Proc., Edinburgh, March 26-28, 1980. ESARDA-11 (1980),
S. 339-41.

Beteiligte Institutionen: IRCh, TUI

3.2 Zerstörungsfreie Meßmethoden

3.2.1 Gammaabsorptiometrie für die Uran- und Plutoniumbestimmung in Prozeßlösungen

Zur Demonstration der Möglichkeiten und Leistungsfähigkeit der Gammaabsorptiometrie für die Bestimmung von Uran- und Plutoniumkonzentrationen in Prozeßlösungen aus einer Wiederaufarbeitungsanlage ist in einem Alphalabor des Instituts für Radiochemie im KfK ein Prototypmeßgerät aufgebaut worden. Das Meßgerät ist seit Herbst 1980 betriebsbereit für die Handhabung plutoniumhaltiger und hochradioaktiver Lösungen. Das vorgesehene umfangreiche Meßprogramm zur Erprobung des Gammaabsorptiometers wurde mit ersten Messungen an Plutoniumnitratlösungen begonnen.

Hauptergebnis: Gammaskpektrometer für die Bestimmung von U- und Pu in Prozeßlösung in einer Handschuhbox aufgebaut und erste Messungen durchgeführt.

Veröffentlichungen:

/12/ Eberle, H.; Matussek, P.; Michel-Piper, I.; Ottmar, H.

Assay of Uranium and Plutonium in Solution by K-edge Photon Absorptiometry of a Continuous X-ray Beam, 2nd Annual Symp. on Safeguards and Nuclear Material Management, Proc., Edinburgh, March 26-28, 1980, ESARDA-11 (1980), S. 372-78.

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

Operational Experiences with K-Edge Photon Absorptiometry for Re-processing Feed and Product Solution Analysis, 3rd Annual Symp. on Safeguards and Nuclear Material Management, Proc., Karlsruhe, May 6-8, 1981, ESARDA-13 (1981), S. 109-114.

Beteiligte Institutionen: IAK

3.3 Interlaboratoriumstests

3.3.1 Interlaboratoriumstest IDA-80

Hinsichtlich der Zielsetzung und Planung dieses Experiments zur massenspektrometrischen Isotopenverdünnungsanalyse von Uran und Plutonium wird auf die vorausgegangenen Jahresberichte des PSpFK für 1977 und 1979 verwiesen.

Im Februar 1980 erfolgte eine erneute Probenahme aus einer Eingangs-
lösung der WAK. Einschließlich der Referenzmaterialien wurden in Zu-
sammenarbeit mit IRCh und ZBKM (EURATOM, Geel) insgesamt ca. 600 Einzel-
proben hergestellt (siehe 3.3.2) und verpackt. Der Versand an Labora-
torien in Europa und Japan erfolgte im Juli, zu den U.S.-Laboratorien
im September. Bis Jahresende standen noch 5 Einzeltransporte wegen
administrativer Schwierigkeiten aus.

Es wurden weitere Bausteine für die Datenerfassung und -auswertung
erstellt. Zur Datenübermittlung wurden für die Teilnehmerlabors die
erforderlichen Formblätter und Richtlinien ausgearbeitet.

Hauptergebnis: Der grenzüberschreitende Austausch geringer Kernmate-
rialmengen, wie sie für analytische Zwecke erforder-
lich sind (IDA-80: ca. 100 mg U und 0,4 mg Pu pro La-
bor) ist durch die komplizierte administrative Abwick-
lung und die große Anzahl der damit befaßten nationalen
und internationalen Behörden unverhältnismäßig erschwert.

Veröffentlichung:

/13/ Beyrich, W.; Spannagel, G.

Auswertung von Ringversuchen zur Kernmaterialanalyse,
KfK-Nachrichten, 12 (1980), No. 1-2, S. 46-48.

Beteiligte Institutionen: EKS, IDT

IRCh, ZBKM (EURATOM) Geel

3.3.2 Probenherstellung für IDA-80

Wegen der internationalen Beteiligung mußte die Probenvorbereitung für IDA-80 mit besonderer Sorgfalt geplant und ausgeführt werden.

Um Kontaminationen zu vermeiden, wurden zunächst die für die Operationen vorgesehenen Boxen soweit als möglich dekontaminiert und alle benötigten Hilfsmittel beschafft. 19 Inputproben aus der FR2-Kampagne der WAK wurden sorgfältig gemischt und je 3 Proben zum Spiken und für die RFA entnommen. Die Hauptmenge der Lösung wurde filtriert und anschließend 3 Aliquote für RFA, 9 zum Spiken und 1 zum Herstellen einer 1:100 verdünnten Lösung verwendet. Das Spiken wurde in jedem Fall mit Solid-Spikes (als U-Pu-Legierung) vorgenommen. Nach dem Spiken wurden insgesamt 300 Aliquote eingedampft, sorgfältig verpackt und zusammen mit der verdünnten Lösung nach Geel transportiert. Die Hauptmenge der hergestellten Proben dient dem eigentlichen Experiment. Der Rest ist für Nebenexperimente in Geel und im IRCh vorgesehen.

Bei der Herstellung der Proben wurden die Materialbewegungen ständig durch Wägung bzw. durch RFA kontrolliert. Die Konzentrationen von U und Pu in den Ausgangslösungen wurde durch RFA bestimmt. Die relative Standardabweichung (1 %) lag für Uran bei 0,4 % und für Plutonium bei 1 %.

Insgesamt wurde durch RFA gemessen: 48x U, Pu; 3x Zr, Mo, Ru.

Aufgrund der Erfahrungen bei der 1978 durchgeführten Probenvorbereitung wurden folgende Verbesserungen vorgenommen: Durch Filtration der Lösung nach dem Mischen wurde eine klare Lösung gewonnen und die Menge und Zusammensetzung der ungelösten Rückstände konnte bestimmt werden. Der Solid-Spike wurde außerhalb der Box eingewogen und anschließend das entsprechende Aliquot zugewogen. Die Größe des Aliquots wurde auf 1 ml erhöht. Nach dem Auflösen des Spikes und der Entnahme der Hauptmenge wurden die Reste (mit den beim Lösen der Spikes aufgetretenen Niederschlägen) erneut mit HNO_3/HF gekocht. Dadurch ist eine Kontrolle auf Vollständigkeit der Mischung Probe-Spike möglich. Die Menge an U und Pu in den Niederschlägen war so gering, daß Fehler über 1 % unwahrscheinlich werden. Zwei Spikeproben wurden wegen zu großer Abweichung ausgetauscht. Die Ursache war in einem Fall wohl ein - trotz größter Sorgfalt aufgetretener - Aliquotierungsfehler.

Hauptergebnis: Probenmaterial für IDA-80 erfolgreich hergestellt.

Beteiligte Institutionen: IRCh, EKS
GWK, ZBKM (EURATOM) Geel

3.3.3 Beteiligung an Interlaboratoriumstests

Die im IRCh verfügbaren Analysemethoden sind im internationalen Laboratoriumstest zu erproben.

Die Beteiligung am SALE-Programm (Safeguards Analysical Laboratory Evaluation-Programm) läuft routinemäßig weiter. Durch den Einsatz des Titroprozessors bei der potentiometrischen Analyse konnte die relative Standardabweichung für diese Proben auf besser als 0,1 % gesteigert werden.

Im Zusammenhang mit dem IAEA-Unterstützungsprogramm Task C13 waren "coated particles" auf ihren Th-/U-Gehalt zu analysieren. Die von uns erarbeitete potentiometrische Th-Analysemethode konnte in diesem Zusammenhang getestet werden. Die relative Standardabweichung war auch hier besser als 0,1 %.

In Vorbereitung für das IDA-80-Experiment sind Homogenitätstests durchgeführt worden /14/. Sie ergaben, daß der Einfluß von Inhomogenitäten kleiner bzw. gleich der Meßgenauigkeit ist.

Die Arbeiten zum IDA-80-Experiment sind eben angelaufen.

Während die Beteiligung am SALE-Programm routinemäßig erfolgt, war die Th-U-Analyse von "coated particles" eine Sonderaufgabe, die erfolgreich abgeschlossen werden konnte. Z.Zt. wird am IDA-80-Experiment gearbeitet.

Hauptergebnisse: - Einfluß der Inhomogenitäten bei den IDA-80-Proben als nicht relevant bestimmt.
- Die potentiometrische Th-Analysemethode konnte auf eine relative Standardabweichung $< 0,1$ % verbessert werden.

Veröffentlichung:

/14/ Bernhard, H.; Bolz, E.; Deutsch, H.; Hartmann, M.; Gantner, E.; Mainka, E.; Wertebach, H.

Homogeneity Test Performed on Input Tank Solutions in a Re-processing Plant, 2nd Annual Symp. on Safeguards and Nuclear Material Management, Proc., Edinburgh, March 26-28, 1980.

ESARDA-11 (1980), S. 106-108.

Beteiligte Institutionen: IRCh

3.3.4 Empirisches Verfahren zur Datenauswertung

In den vorausgegangenen Jahren war mehrfach über die Anwendung eines empirischen Auswerteverfahrens (DoD-Methode, Distribution of Differences) zur Beurteilung analytischer Interlabdifferenzen berichtet worden. Dabei werden die (absoluten) Differenzen der bei Wiederholungsmessungen gewonnenen Werte als Grundelement der Datenauswertung betrachtet und ihre kumulative Häufigkeitsverteilung graphisch dargestellt. Aus den so gewonnenen Kurven ist eine sinnvolle Schätzung der Varianz (bzw. Standardabweichung) der zugrunde liegenden Datenmenge möglich, auch wenn diese im statistischen Sinne inhomogen ist. Hierdurch wird der bei Anwendung klassischer statistischer Verfahren erforderliche Ausschluß einzelner extremer Meßwerte aufgrund von Ausreißerkriterien vermieden. Dies ist beispielsweise bei der Auswertung von Interlaboratoriumsprogrammen von Vorteil, da in diesem Fall der Ausschluß von Meßdaten einzelner Teilnehmerlaboratorien aus rein statistischen Gründen prinzipiell problematisch ist und darüber hinaus die unterschiedliche Beeinflussung von Varianzschätzungen je nach Art und Schärfe des willkürlich gewählten Ausreißerkriteriums kaum toleriert werden kann.

Zur Veranschaulichung zeigt Abb. 4 als numerisches Beispiel die Schätzwerte für die Standardabweichung einer aus 18 Einzelwerten bestehenden Datenmenge, die sich nach unterschiedlichen Auswerteverfahren ergeben. Dabei ist die Zahl der Extremwerte innerhalb der Datengruppe schrittweise vergrößert worden. Sie wurden durch Erhöhung des jeweils höchsten Wertes der Datengruppe um den Betrag $2s^*$ erzeugt, wobei s^* die Standardabweichung der Ausgangsdatengruppe bezeichnet. Danach kann sich die

geschätzte Standardabweichung in diesem Beispiel um bis zu 400 % ändern, wenn ein anderes Ausreißerkriterium gewählt wird oder, bei gleichem Kriterium, wenn sich der Extremwertanteil in der Datengruppe nur geringfügig ändert.

Demgegenüber liefert das DoD-Verfahren ohne Datenausschluß einen mit zunehmendem Extremwertanteil stetig ansteigenden Schätzwert sinnvoller Größe. Dieser ist nach den bisherigen Untersuchungen bis zu einem Extremwertanteil von ca. 30 % von der Größe der Extremwerte weitgehend unabhängig. Erst bei hohen Extremwertanteilen treten unterschiedliche und sprunghaft ansteigende Schätzwerte auf.

Für den Fall einer normalverteilten Datenmenge konnte bewiesen werden, daß die Varianzschätzung nach der DoD-Methode erwartungstreu ist.

Hauptergebnis: Das DoD-Verfahren ermöglicht eine sinnvolle Varianzschätzung auch inhomogener Datengruppen ohne den Ausschluß von Meßwerten.

Veröffentlichung:

/15/ Beyrich, W.; Spannagel, G.

Analytical Data for Practical Safeguards: Performance and Evaluation of International Intercomparison Programs, Proc. of the ANS Meeting at Kiawah Island, November 26-30, 1979, NBS special publication 582 (1980), S. 42-54.

Beteiligte Organisationen: EKS, IDT

3.3.5 Interlaboratoriumstest für Plutoniumisotopen-Verhältnismessungen durch Gamma-spektrometrie

Die experimentellen Untersuchungen zur zerstörungsfreien Bestimmung der Isotopenzusammensetzung von Plutonium mittels Gammaabsorptiometrie, die bisher an relativ kleinen Plutoniumproben unter Laborbedingungen durchgeführt wurden, sind im Rahmen eines internationalen Vergleichsprogramms mit einer Meßkampagne in einer Plutonium-Fabrikationsanlage fortgesetzt worden. Hierbei wurden unter betriebsnahen Bedingungen realistische Proben aus dem Plutoniumlager des Fabrikationsbetriebs analysiert. Die

Plutoniummengen dieser Proben lagen zwischen 0,5 und 3 kg.

Die Erfahrungen aus diesen Messungen werden bei der bevorstehenden Erstellung der Analysenprogramme zur Plutoniumisotopenmessung an verschiedenartigen Proben miteinfließen.

Hauptergebnis: Unter betriebsnahen Bedingungen wurden im Rahmen eines internationalen Vergleichs gammaspektrometrische Analysen zur Isotopenbestimmung von Pu-Proben aus einem Fabrikationsbetrieb durchgeführt.

Veröffentlichung:

Ottmar, H.

Results from an Interlaboratory Exercise on the Determination of Plutonium Isotopic Ratios by Gamma Spectrometry, KfK 3149 (1981).

Beteiligte Institutionen: IAK

A N H A N G

Verzeichnis der Veröffentlichungen des
Projektes Spaltstoffflußkontrolle
für das Jahr 1980

- /1/ Weppner, J.; Didier, H.J.; de Braga Melo, E.
Role of C/S Measures in the International Safeguards System for
Separation Nozzle Enrichment Facilities.
2nd Annual Symp. on Safeguards and Nuclear Material Management, Proc.,
Edinburgh, March 26-28, 1980. ESARDA-11 (1980), S. 238-40.
- /2/ Voß, F.; Gupta, D.
Preliminary Comparative Assessment of Advanced Safeguards Approaches
for Reprocessing Facilities.
2nd Annual Symp. on Safeguards and Nuclear Material Management, Proc.,
Edinburgh, March 26-28, 1980. ESARDA-11 (1980), S. 246-51.
- /3/ Gupta, D.
Design Features Relevant to Improved Safeguards Implementation in
Existing Nuclear Facilities.
International Training Course on Nuclear Materials Accountability and
Control for Safeguards Purposes, Santa Fe, N.M., May 27 - June 6, 1980.
- /4/ Sellinschegg, D.
Kernmaterialüberwachung bei Wiederaufarbeitungsanlagen.
Grupe, H. (Hrsg.), Wie sicher ist die Entsorgung, Vortr. einer
Informationsveranstaltung über Fragen der Kernenergie, Karlsruhe,
Juni 1980. Karlsruhe: KfK 1980, S. 9-15.
- /5/ Sellinschegg, D.
Übersicht über Ansätze zur mehrperiodigen Materialbilanzierung.
KfK-2401 (August 1980).
- /6/ Avenhaus, R.; Geiger, W.; Jaeschke, A.
Kernmaterialbilanzierung und Datenverifikation.
KfK-Nachrichten, 12 (1980), No. 1-2, S. 40-46.

- /7/ Geiger, W.; Jaeschke, A.; Kerpe, R.; Polster, F.J.; Tretter, G.;
Woit, J.
Measures Allowing to Attain a High Data Reliability in a Nuclear
Material Accounting System.
2nd Annual Symp. on Safeguards and Nuclear Material Management, Proc.,
Edinburgh, March 26-28, 1980. ESARDA-11 (1980), S. 73-74.
- /8/ Beets, C.; Bemelmans, P.; Franssen, F.; Schoof, S.
Head-end Fissile Material Balance of a Reprocessing Campaign: An On
Site Evaluation Procedure.
2nd Annual Symp. on Safeguards and Nuclear Material Management, Proc.,
Edinburgh, March 26-28, 1980. ESARDA-11 (1980), S. 347-52.
- /9/ Schoof, S.; Zijp, W.L.
Comparison of the Isotope Correlation Technique with Conventional
Statistical Methods.
2nd Annual Symp. on Safeguards and Nuclear Material Management, Proc.,
Edinburgh, March 26-28, 1980. ESARDA-11 (1980), S. 342-46.
- /10/ Koch, L.
The Isotopic Correlation Experiment.
2nd Annual Symp. on Safeguards and Nuclear Material Management, Proc.,
Edinburgh, March 26-28, 1980. ESARDA-11 (1980), S. 392-95.
- /11/ Arenz, H.J.; Hough, G.; Koch, L.
Experience for Safeguards Gained in the Isotope Correlation Experiment,
2nd Annual Symp. on Safeguards and Nuclear Material Management, Proc.,
Edinburgh, March 26-28, 1980. ESARDA-11 (1980), S. 339-41.
- /12/ Eberle, H.; Matussek, P.; Michel-Piper, I.; Ottmar, H.
Assay of Uranium and Plutonium in Solution by K-edge Photon Absorptio-
metry of a Continuous X-ray Beam.
2nd Annual Symp. on Safeguards and Nuclear Material Management, Proc.,
Edinburgh, March 26-28, 1980. ESARDA-11 (1980), S. 372-78.
- /13/ Beyrich, W.; Spannagel, G.
Auswertung von Ringversuchen zur Kernmaterialanalyse.
KfK-Nachrichten, 12 (1980) No. 1-2, S. 46-48.

- /14/ Bernhard, H.; Bolz, E.; Deutsch, H.; Hartmann, M.; Gantner, E.; Mainka, E.; Wertenbach, H.
Homogeneity Test Performed on Input Tank Solutions in a Reprocessing Plant.
2nd Annual Symp. on Safeguards and Nuclear Material Management, Proc., Edinburgh, March 26-28, 1980. ESARDA-11 (1980), S. 106-108.
- /15/ Beyrich, W.; Spannagel, G.
Analytical Data for Practical Safeguards: Performance and Evaluation of International Intercomparison Programs.
Proc. of the ANS Meeting at Kiawah Island, November 26-30, 1979, NBS special publication 582 (1980), S. 42-54.
- /16/ Avenhaus, R.; Beedgen, R.; Leitner, E.; Saad, M.
Quantification of the Performance of C/S Components.
Seminar of the ESARDA Working Group on Containment/Surveillance, JRC Ispra, September 17-19, 1980, S. 207-223.
- /17/ Avenhaus, R.; Beedgen, R.
Statistical Analysis of Alternative Data Evaluation Schemes, Part II: Extended Theoretical Considerations ((D,MUF)-Problem).
2nd Annual Symp. on Safeguards and Nuclear Material Management, Proc., Edinburgh, March 26-28, 1980. ESARDA-11 (1980), S. 167-72.
- /18/ Beedgen, R.; Neu, H.
Statistical Analysis of Alternative Data Evaluation Schemes, Part III: Numerical Example with MUF-D- and Bivariate (D,MUF)-Tests.
2nd Annual Symp. on Safeguards and Nuclear Material Management, Proc., Edinburgh, March 26-28, 1980. ESARDA-11 (1980), S. 194-201.
- /19/ Avenhaus, R.; Beedgen, R.; Neu, H.
Verification of Nuclear Material Balances: General Theory and Application to a Highly Enriched Uranium Fabrication Plant.
KfK-2942 / EUR-6406e (August 1980).
- /20/ Brückner, Chr.
On the Application of Optical Surveillance in Safeguards.
Seminar of the ESARDA Working Group on Containment/Surveillance, JRC Ispra, September 17-19, 1980, S. 143-150.