

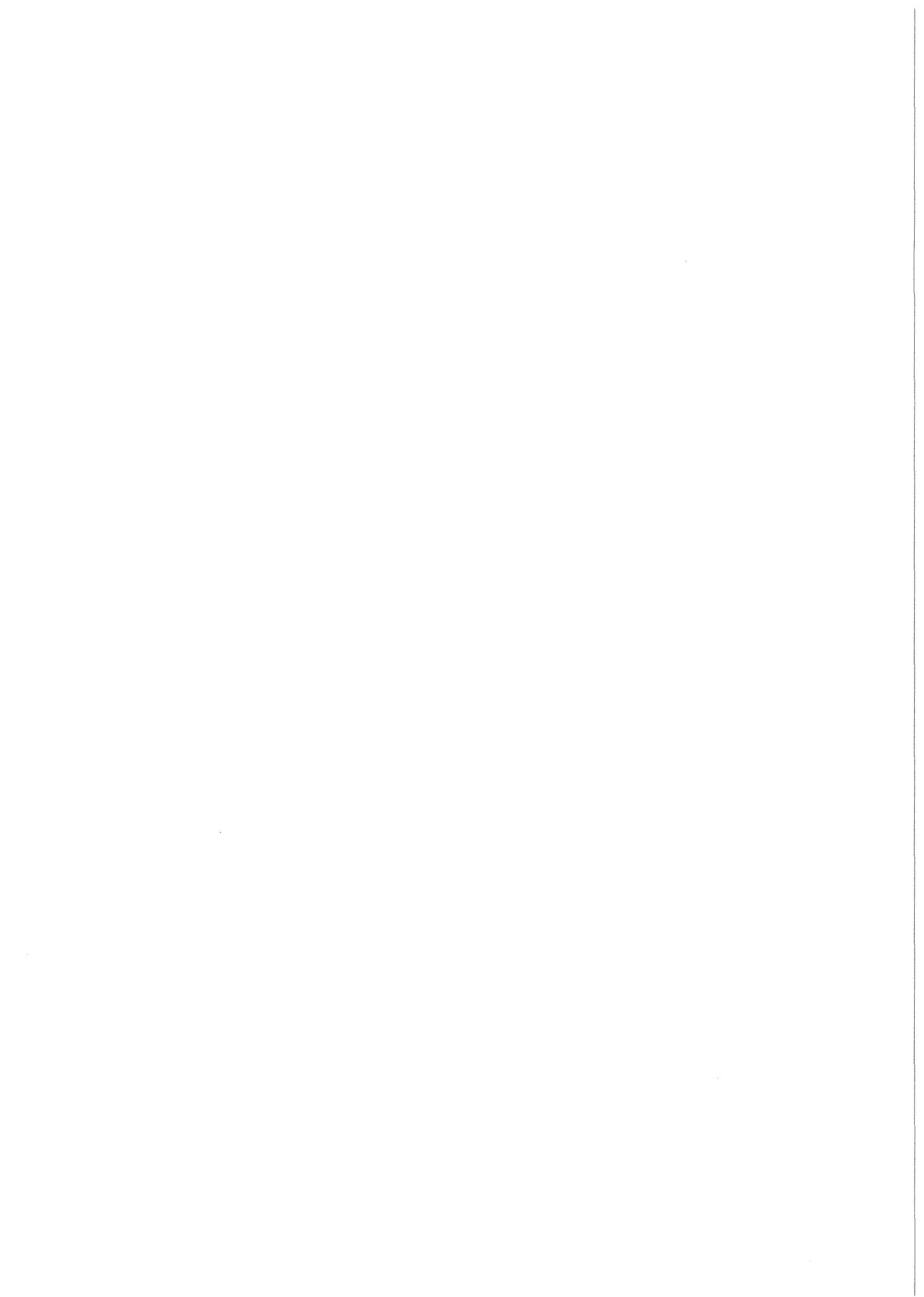
KfK 3369

Juli 1982

# Zerstörungsfreie Plutoniumbestimmung in Abfallgebinden der Eurochemic in Mol

W. Eyrich, W. D. Klotz, H. Würz  
Institut für Neutronenphysik und Reaktortechnik  
Projekt Wiederaufarbeitung

Kernforschungszentrum Karlsruhe



KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

Institut für Neutronenphysik und Reaktortechnik

Projekt Wiederaufarbeitung

KfK 3369

PWA 15/82

Zerstörungsfreie Plutoniumbestimmung in Abfall-  
gebinden der Eurochemic in Mol

W. Eyrich

W.D. Klotz

H. Würz

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

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH  
ISSN 0303-4003

## Zusammenfassung

Die Faßmeßanlage wurde bei der Eurochemic in Mol zur zerstörungsfreien Bestimmung des Plutoniumgehalts von Wastegebinden eingesetzt. In realistischen Wasteproben schwankt der ( $\alpha n$ ) Anteil an der Neutronenemission in einem weiten Bereich. Deshalb kann die Plutoniumbestimmung nur über eine Koinzidenzmessung erfolgen. Die aus den Messungen und aus Rechnungen gewonnenen Aussagen und Verfahren zur Elimination von Multiplikations- und Matrixeffekten werden diskutiert.

Bei einem auf minimalen Neutronenuntergrund ausgelegten Aufstellungs-ort kann mit dem derzeitigen Gerät eine Pu Nachweisgrenze von ca. 20 mg/200 l Faß erreicht werden.

## Nondestructive Plutonium Assay of Eurochemic Waste Items

### Abstract

The Neutron Well Counter was used for the Pu assay of Eurochemic waste items. Due to rather large changes of the ( $\alpha n$ ) contribution to the neutron emission the Pu assay only can be done by the neutron coincidence method. Measurements and experimental results for the Eurochemic waste items are described. Moreover estimations for the important parameters neutron multiplication and chemical composition of the waste are given. It is demonstrated how to eliminate the influence of both these quantities.

With the presently available neutron well counter minimum Pu contents of 20 mg are detectable in 200 l drums.

## Inhaltsverzeichnis

Einleitung

Meßmethode

Meßaufbau

Eichmessungen, kleine Gebinde

Diskrepanzen zwischen Cf und Pu

Eichmessungen in Mol

Multiplikationseffekte Eichpräparate

Messungen an Wastegebinden

Resultate und Diskussion

Multiplikationseffekte für homogenisierte Abfallgebände

Multiplikationseffekte für andere Abfallgebände

Matrixeinflüsse für kleine Gebinde

Multiplikations- und Matrixeffekte für 200 l Gebinde

Zusammenfassung

Literatur

## Einleitung

Die im INR entwickelte und gebaute Faßmeßanlage /1/, wurde bei der Eurochemic in Mol zur Bestimmung des Gehalts an Plutonium in Wastegebinden eingesetzt. Die Ziele der Meßkampagne waren:

- 1) Test und Erprobung der Faßmeßanlage an realistischen Pu-haltigen Wastegebinden
- 2) Durchführung einer Plutoniumbilanzierung des zur Naßveraschung bestimmten Abfalls
- 3) Sammlung von Erfahrungen mit der Faßmeßanlage
- 4) Bestimmung des Einflusses der Wastematrix auf das Meßergebnis
- 5) Bestimmung des Einflusses von Multiplikationseffekten auf die Koinzidenzzählrate

## Meßmethode

Die Meßmethode basiert auf einer passiven Neutronenmessung. Die Neutronenemission der geradzahligen Pu-isotope 238, 240 und 242 und von Am 241 wird nachgewiesen. Die totale Emission und die Anteile aus Spontanspaltung und  $(\alpha, n)$  sind in Tabelle 1 angegeben. Die angegebenen  $(\alpha, n)$  Werte gelten für  $\text{PuO}_2$ .

Die  $(\alpha, n)$  Neutronenausbeute hängt stark von der chemischen Zusammensetzung des Wastes ab. Deshalb ist für eine verlässliche Pu-bestimmung die Unterscheidung zwischen Neutronen aus Spontanspaltung und aus  $(\alpha, n)$  Reaktionen notwendig. Diese wird mit dem von Böhnel entwickelten Koinzidenzzähler /2/ durchgeführt. Dabei wird die Tatsache ausgenutzt, daß bei Spontanspaltung der geradzahligen Pu-isotope mehr als 2 Neutronen gleichzeitig emittiert werden. Die Einzelneutronen aus der  $(\alpha, n)$  Reaktion dagegen sind in ihrer zeitlichen Reihenfolge statistisch verteilt.

Die Neutronen leben eine gewisse Zeit  $t_L = 1/\alpha$  im Detektorsystem. Innerhalb des Zeitintervalls  $0 \leq t_M \leq \Delta t \approx 1/\alpha$ , nach Registrierung des ersten Neutrons wird es demnach sehr wahrscheinlich sein, zu einem Neutron aus Spontanspaltung einen zweiten Partner nach-

zuweisen (prompter Zyklus). Nach einer Wartezeit  $t_w \gg \Delta t$  dagegen werden keine Partner mehr zu dem den Meßzyklus auslösenden Neutron gefunden werden können.

Die gesuchten Koinzidenzzählrate ergibt sich aus der Differenz der Zählraten des prompten Zyklus (Zeitintervall  $\Delta t$  sofort nach einem registrierten Ereignis) und des verzögerten Zyklus (Zeitintervall ebenfalls  $\Delta t$  aber um  $t_w \gg \Delta t$  verzögert).

Die Koinzidenzzählrate  $ZR_{CC}$  ist gegeben, gemäß:

$$ZR_{CC} = \epsilon_C^2 \frac{\bar{\nu}(\bar{\nu}-1)}{2\bar{\nu}} (1-e^{-\alpha\Delta t}) q_{sp} \quad (1)$$

falls nur 1 Nuklid spontanspaltend ist und

$$ZR_{CC} = \epsilon_C^2 (1-e^{-\alpha\Delta t}) \sum_i \left( \frac{\bar{\nu}(\bar{\nu}-1)}{2\bar{\nu}} \right)_i n_i q_{sp}^i \quad (1a)$$

falls mehrere Nuklide spontanspaltend sind

Es bedeuten:

$\epsilon_C$ : Nachweisempfindlichkeit der Detektoranordnung für Spontanspaltneutronen

$q_{sp}$ : Neutronenemission durch Spontanspaltung

$\bar{\nu}$ : mittlere Anzahl der pro Spontanspaltung emittierten Neutronen

$1/\alpha$ : Lebensdauer der thermischen Neutronen im

$n_i$ : Anteil des Isotops  $i$

$\Delta t$ : Zeitintervall innerhalb dessen der 2. Partner zum auslösenden Ereignis erwartet wird.  $\Delta t \approx 1/\alpha$

Die Gesamtzählrate  $ZR_{\text{tot}}$  ist gegeben durch:

$$ZR_{\text{tot}} = \epsilon_{\text{tot}} q_{\text{tot}} = \epsilon_c q_{\text{sp}} + \epsilon_{\alpha n} q_{\alpha n} \quad (2)$$

mit

$q_{\alpha n}$  : Neutronenemission durch  $(\alpha n)$  Reaktionen

$\epsilon_{\alpha n}$  : mittlere Empfindlichkeit der Detektoranordnung für  
( $\alpha n$ ) Neutronen

### Meßaufbau

Der Meßaufbau ist schematisch in Abb.1 dargestellt. Die Detektoranordnung besteht aus einem großen Hohlzylinder aus Polyäthylen mit fest verbundenem PE-Boden und einem abnehmbaren PE-Deckel. Mit Ausnahme des Deckels sind alle PE-Flächen mit  $\text{BF}_3$  Zählrohren bestückt. Die Detektoren sind in 2 Lagen angeordnet. Damit wird im Prinzip erreicht, daß der Neutronennachweis von der Energie des Neutrons abhängig wird. Z.B. kann ein niederenergetisches Neutron die innere Detektorschicht i noch erreichen, wird aber vor dem Erreichen der äußeren Detektorschicht a im Moderator absorbiert. Das Verhältnis der Zählraten  $ZR_{\text{tot}}^i / ZR_{\text{tot}}^a$  ist demnach eine Funktion der Energie der in die Detektoranordnung eintretenden Neutronen.  $ZR_i / ZR_a$  nimmt für Neutronenenergien  $E_n > 0,2$  MeV mit wachsender Energie ab.

Zur Reduktion der Empfindlichkeit der Detektoranordnung gegen Untergrundneutronen sind die Außenseiten des PE-Blocks mit Cd-blech abgeschirmt.

Die Elektronik ist mit Ausnahme des Koinzidenzzählers konventionell. Die  $\text{BF}_3$  Zählrohre werden bei 2400 Volt betrieben. Jeweils 9 Zählrohre bilden eine Gruppe mit eigener Hochspannungsversorgung und eigener Impulselektronik.

### Eichmessungen, kleine Gebinde

Zur Eichung der Meßapparatur wurden Messungen mit 2 Pu-oxid-Eichpräparaten und mit einer  $^{252}\text{Cf}$ -Neutronenquelle im Labor durchgeführt. In Mol standen außerdem mehrere Plutoniumpräparate zur Verfügung. Das Plutonium war jeweils homogen vermischt mit ca. 2 kg typischem brennbarem Matrixmaterial und in PVC Beuteln verpackt. Die Pu-präparate entsprachen in ihrer Matrix-Zusammensetzung (Neopren, PVC, Zellulose), in ihrer Geometrie und auch in ihrer Materialmenge weitgehend den realistischen zur Ausmessung vorgesehenen Wastebeuteln. In Tabelle 2 ist die mittlere chemische Zusammensetzung des Matrixmaterials angegeben.

Angaben über die Neutronenquellstärken  $q_{\text{sp}}$  (Emission durch Spontanspaltung) der einzelnen Eichpräparate finden sich in Tabelle 3.  $q_{\text{sp}}$  wurde für die Pu-präparate unter Verwendung der Daten der Tabelle 1 und der Analysenresultate der Präparatehersteller berechnet.

Die gemessene Abhängigkeit  $ZR_{\text{CC}} = f(\Delta t)$  ist in Abb.2 für die Fälle leeres Analysevolumen mit Cd und Analysevolumen mit PE-Stücken gefüllt ( $\rho_{\text{H}_2\text{O}} = 0,2 \text{ g/cm}^3$ ) ohne Cd dargestellt. Die Präparate befanden sich jeweils im Zentrum des Analysevolumens.

Aus  $ZR_{\text{CC}} = f(\Delta t)$  wurden die Lebensdauer  $1/\alpha$  der Neutronen im Detektorsystem und eine Schätzung für die Empfindlichkeit  $\epsilon_{\text{C}}$  bestimmt. Aus Gl.(1) ergibt sich:

$$\frac{dZR_{\text{CC}}}{d\Delta t} = ZR_{\text{CC}} = \frac{\overline{v(v-1)}}{2\overline{v}} \epsilon_{\text{C}}^2 q_{\text{sp}} \alpha e^{-\alpha\Delta t} = A e^{-B\Delta t} \quad (3)$$

Die Parameter A und B von Gl.(3) wurden durch least-square-fit bestimmt. Bei bekanntem A und B berechnet sich die Empfindlichkeit  $\epsilon_{\text{C}}$  gemäß:

$$\epsilon_c^2 = \frac{A}{\frac{\bar{\nu}(\bar{\nu}-1)}{2\bar{\nu}} q_{sp} B} \quad (4)$$

Zahlenwerte für die Lebensdauer  $1/\alpha$  der thermischen Neutronen im Detektor und für  $\epsilon_c$  sind in Tabelle 4 angegeben.

Mit den gemäß Gl.(3) bestimmten  $1/\alpha$  Werten wurden aus den Koinzidenzzählraten  $ZR_{cc}$  gemäß Gl.(1) Nachweisempfindlichkeiten  $\epsilon_c$  bestimmt. Das Koinzidenzzeitintervall  $\Delta t$  betrug  $100 \mu s$ . Die Resultate sind in Tabelle 5 angegeben. Die Genauigkeit in  $\epsilon_c$  wird auf  $\pm 10\%$  geschätzt. Auffallend ist zunächst, daß bei den angenommenen Quellstärken  $q_{sp}$  (Tabelle 3) die Empfindlichkeiten  $\epsilon_c$  für Pu und Cf differieren.

#### Diskrepanzen zwischen Cf und Pu

Zur Demonstration der deutlich außerhalb der Meßfehler liegenden Diskrepanzen in den Empfindlichkeiten  $\epsilon_c$  zwischen Cf und den Pu-präparaten sind in Tabelle 6 gemessene und berechnete  $ZR_{tot}/ZR_{cc}$ -Verhältnisse angegeben. Gemäß Gl.(1) und (2) ergibt sich für das Verhältnis  $ZR_{tot}/ZR_{cc}$ :

$$ZR_{tot}/ZR_{cc} = \frac{\epsilon_{tot} q_{tot}}{q_{sp} \epsilon_c^2 \frac{\bar{\nu}(\bar{\nu}-1)}{2\bar{\nu}} (1-e^{-\alpha\Delta t})} \quad (5)$$

Der Zeitfaktor  $1-e^{-\alpha\Delta t}$  kann eliminiert werden, wenn z.B. Verhältnisse  $(ZR_{tot}/ZR_{cc})^{Cf}/(ZR_{tot}/ZR_{cc})^{Pu}$  gebildet werden.

Man erhält:

$$A = \frac{(ZR_{tot}/ZR_{cc})^{Cf}}{(ZR_{tot}/ZR_{cc})^{Pu}} = \frac{(\epsilon_c^{Pu})^2 F(\bar{\nu})^{Pu} q_{sp}^{Pu}}{\epsilon_c^{Cf} \epsilon_{tot}^{Pu} F(\bar{\nu})^{Cf} \left[ \epsilon_c^{Pu} q_{sp}^{Pu} + \epsilon_{an}^{Pu} q_{an}^{Pu} \right]} \quad (6)$$

Da Cf nur Spontanspaltungsneutronen emittiert, ist in Gl.(6) verwendet worden

$$q_{\text{tot}}^{\text{Cf}} = q_{\text{sp}}^{\text{Cf}} \text{ und } \epsilon_{\text{tot}}^{\text{Cf}} = \epsilon_{\text{c}}^{\text{Cf}}$$

$$F(\bar{\nu}) = \frac{\nu(\nu-1)}{2\bar{\nu}}$$

Die gemessenen Zählratenverhältnisse zeigen einen systematischen Trend der auf Totzeiteffekte im Koinzidenzzähler hindeutet. Der totzeitfreie Wert für A ist 0,405. Dies wurde durch Verwendung eines schwachen Cf-Präparates bestätigt. Die Größe der Totzeiteffekte in  $ZR_{\text{cc}}$  ist in der letzten Spalte von Tabelle 6 angegeben. Anwendung der Totzeitkorrektur ergibt für die Empfindlichkeit  $\epsilon_{\text{c}}^{\text{Cf}}$  (Tabelle 5 1. Zeile) 19,5 statt 17,4. Dieser Wert ist diskrepant zu  $\epsilon_{\text{tot}}^{\text{Cf}}$  (es muß gelten  $\epsilon_{\text{c}}^{\text{Cf}} = \epsilon_{\text{tot}}^{\text{Cf}}$ ). Außerdem sind die Empfindlichkeiten für das Cf-Präparat systematisch niedriger als für die Pu-Präparate.

Die Ursache der unterschiedlichen Empfindlichkeiten von Cf und Pu wurden etwas näher untersucht. Es kommen in Betracht:

- 1) eine energieabhängige Detektorempfindlichkeit  $\epsilon(E)$
- 2) ein falscher Wert  $q_{\text{sp}} = q_{\text{tot}}$  für Cf
- 3) falsche Werte  $q_{\text{sp}}$  für die Pu-präparate
- 4) eine unterschiedliche mittlere Energie der Spontanspalt- und ( $\alpha$ n) Neutronen für die Pu-oxid Präparate
- 5) falscher Wert für  $F(\bar{\nu})$  für Cf

Pkt. 3) kann ausgeschlossen werden, da die  $\epsilon_{\text{c}}$ -Werte für die Pu-Präparate der verschiedenen Hersteller innerhalb  $\pm 5\%$  übereinstimmen.

Die Energieabhängigkeit der Detektorempfindlichkeit  $\epsilon(E)$  wurde in 1-dimensionalen Kugelgeometrie berechnet und in Abb.3a dargestellt. Unter Verwendung von  $\epsilon(E)$  wurde abgeschätzt ob die Nachweisempfindlichkeit  $\epsilon_c$  für Pu und Cf verschieden ist. Nach /3/ kann das Quellspektrum der Spontanspaltungsneutronen durch eine Maxwellverteilung beschrieben werden gemäß:

$$\chi(E) = \sqrt{E} \exp(-E/\theta) \quad (7)$$

mit 
$$\theta = \frac{2}{3}(0,74 + 0,653 \sqrt{\bar{\nu}+1}) \quad (8)$$

Mit Gl.(7) und (8) wurde die über das Spaltspektrum gemittelte Empfindlichkeit  $\epsilon_c$  berechnet, gemäß

$$\epsilon_c = \frac{\int \epsilon(E) \chi(E) dE}{\int \chi(E) dE}$$

Bei der angenommenen Energieabhängigkeit von  $\epsilon(E)$  ergibt sich ein Unterschied in  $\epsilon_c$  für Pu und Cf von etwa 2% d.h.  $\epsilon_c^{Pu} = 1,02 \epsilon_c^{Cf}$ .

Ebenfalls berechnet wurden energieabhängige Zählratenverhältnisse  $ZR_{tot}^i/ZR_{tot}^a$ . Die Resultate sind in Abb.3b dargestellt. Aus  $ZR_{tot}^i/ZR_{tot}^a$  berechnen sich für Cf mit  $\epsilon_{tot} = \epsilon_c$  und bei gleichem Zeitfaktor  $F(\alpha\Delta t) = 1 - e^{-\alpha\Delta t}$  die entsprechenden Koinzidenzzählratenverhältnisse  $ZR_{CC}^i/ZR_{CC}^a$  gemäß

$$ZR_{CC}^i/ZR_{CC}^a = (ZR_{tot}^i/ZR_{tot}^a)^2 \quad (9)$$

Gl.(9) gilt nicht für die Pu-präparate, da Spontanspaltungs- und ( $\alpha n$ ) Neutronen verschiedene mittlere Energien haben können.

Die höhere mittlere Energie der Cf-Spontanspaltungsneutronen sollte sich besonders im Verhältnis  $ZR_{CC}^i/ZR_{CC}^a$  bemerkbar machen. Mit einer anderen Detektoranordnung (weniger Detektoren im inneren Ring) wurden die Zählraten-Verhältnisse innen/außen für verschiedene Fälle bestimmt. Die Resultate sind in Tabelle 7 angegeben. Die totalen Zählratenverhältnisse sind für Pu etwas niedriger als für Cf. Das Verhältnis nimmt mit wachsendem Wassergehalt der Matrix zu. Zunehmende Thermalisierung im Analysevolumen bewirkt,

daß der thermische Neutronenfluß bereits in kurzer Entfernung von der inneren Detektoroberfläche ein asymptotisches Verhalten zeigt. Gleichzeitig sinkt die Empfindlichkeit  $\epsilon$ , da weniger Neutronen das Analysevolumen verlassen. Ebenfalls in Tabelle 7 sind die gemessenen Koinzidenzzählratenverhältnisse angegeben. Die Unterschiede zwischen Cf und Pu liegen wie erwartet bei ca. 4%.

Unverständlich ist, weshalb Gl.(9) nicht gültig ist. Für Cf müßten die Werte  $ZR_{cc}^i/ZR_{cc}^a$  um ca. 16% größer sein als in Tabelle 7 angegeben. Für Pu könnte der Wert  $ZR_{tot}^i/ZR_{tot}^a$  durch höherenergetische ( $\alpha n$ ) Neutronen zusätzlich reduziert sein (siehe weiter unten). Damit besteht die Diskrepanz sowohl für Cf als auch für Pu. Unter Verwendung des Zählratenverhältnisses

$$\frac{ZR_{cc}}{ZR_{tot}^2} = \frac{c}{n^2} = \frac{\epsilon_c^2}{\epsilon_{tot}^2} F(\bar{\nu}) (1 - e^{-\alpha \Delta t}) \frac{q_{sp}}{q_{tot}^2} \quad (10)$$

mit  $\epsilon_c = \epsilon_{tot}$  für Cf und dem Wert für die Lebensdauer  $1/\alpha$  aus Tabelle 4 kann die Quellstärke  $q_{tot}$  des Cf-Präparats bestimmt werden. Die Koinzidenzzählraten  $ZR_{cc}^{Cf}$  wurden gemäß Tabelle 6 um Totzeiteffekte korrigiert. Die dabei erhaltenen Werte  $c/n^2$  sind in Tabelle 8 angegeben und in Gl.(10) zur Berechnung von  $q_{tot}^{Cf}$  verwendet worden. Innerhalb eines Fehlerbereichs von maximal  $\pm 10\%$  ergeben sich gleiche  $q_{tot}^{Cf}$ -Werte, unabhängig von der betrachteten Anordnung.

Unter der Annahme  $\epsilon_c^{Pu} = \epsilon_{\alpha n}^{Pu}$  wurden mittels Gl.(10) auch  $q_{tot}$  Schätzwerte für die Pu-präparate gewonnen (Tabelle 8). Allerdings ist die Annahme  $\epsilon_c^{Pu} = \epsilon_{\alpha n}^{Pu}$  nicht richtig. Für Molpräparate ist  $ZR_{tot}^i/ZR_{tot}^a$  um den Faktor 1,1 größer als für Cf. Gemäß Abb. 3b ist dies eindeutig auf eine niedrigere mittlere Energie der ( $\alpha n$ ) Neutronen dieser Präparate zurückzuführen. Gemäß Tabelle 7 ergeben sich für die Pu-oxid Proben niedrigere  $ZR_{tot}^i/ZR_{tot}^a$  Werte als für Cf. Dies könnte ein Hinweis darauf sein, daß die ( $\alpha n$ ) Neutronen dieser Proben eine höhere mittlere Energie besitzen als die Spontanspaltungsneutronen. Dieser Verdacht wird durch die Berechnung von  $\epsilon_{\alpha n}^{Pu}$  gemäß Gl.(2) erhärtet.  $q_{\alpha n}$  und  $q_{sp}$  wurden für die Pu-oxid Proben aus den Herstellerdaten (Tabelle 3a und 3b) berechnet. Es ergab sich, daß  $\epsilon_{\alpha n}$  ca. 20% niedriger ist als  $\epsilon_c$ . Ein direkter experimenteller Beweis für diesen Sachverhalt steht allerdings noch aus.

Gemäß Gl.(6) kann A berechnet werden. Verwendet wurden dazu:  
 $(q_{\text{tot}}/q_{\text{sp}})^{\text{Cf}} = 1,0$ ;  $(q_{\alpha n}/q_{\text{sp}})^{\text{Pu}} = 0,67$  sowie die Werte  $F(\bar{v})$  für  
 Cf und Pu aus Tabelle 1. Mit  $\epsilon_C^{\text{Pu}} = 1,02 \epsilon_C^{\text{Cf}}$  ergibt sich aus  
 Gl.(6):

$$A = \frac{0,58}{1 + \frac{\epsilon_{\alpha n} q_{\alpha n}}{\epsilon_C q_{\text{sp}}}} \quad (6a)$$

Für  $\epsilon_C^{\text{Pu}} = \epsilon_{\alpha n}^{\text{Pu}}$  ergeben sich die in Tabelle 6 berechneten A-Werte.  
 Diese sind nach Totzeitkorrektur um ca. 18% niedriger als die  
 experimentell bestimmten.

Als mögliche Ursachen für die Diskrepanz Cf/Pu verbleiben damit  
 noch die Möglichkeiten: falsche Werte für  $q_{\text{sp}}^{\text{Cf}}$  und für  $F(\bar{v})^{\text{Cf}}$  und  
 $\epsilon_{\alpha n}^{\text{Pu}} \neq \epsilon_C^{\text{Pu}}$ .

Mit  $\epsilon_C^{\text{Pu}} \epsilon_C^{\text{Cf}} = 21,5\%$  folgt aus Gl.(2):

$$q_{\text{sp}}^{\text{Cf}} = q_{\text{tot}}^{\text{Cf}} = 7,8 \cdot 10^4 \text{ n/sec anstatt wie angenommen,}$$

$$q_{\text{sp}} = 9,45 \cdot 10^4 \text{ n/sec}$$

Gemäß Tabelle 9 ergibt sich dann für  $F(\bar{v})^{\text{Cf}}$ :

$$F(\bar{v})^{\text{Cf}} = \frac{\sqrt{v(v-1)}}{2\bar{v}} \text{ Cf} \quad 1,33 \pm 16\%$$

Mit diesen beiden Änderungen könnten die Diskrepanzen zwischen  
 Cf und Pu gemäß den Tabellen 5 und 6 beseitigt werden. Allerdings  
 sind die oben gemachten Annahmen zweifelhaft. Insbesondere der  
 Wert für  $F(\bar{v})$  ist in Widerspruch zum Wert  $F(\bar{v}) = 1,574$  berechnet  
 unter Verwendung von  $\bar{v} = 3,76 \pm 0,015$  und  $\sigma = 1,207$ .

### Eichmessungen in Mol

Die in Mol eingesetzte Meßanlage wurde vor Beginn der Messungen mit Eurochemic Präparaten geeicht. Zur Verfügung standen 5 verschiedene Präparate Pu I bis Pu V, siehe Tabelle 3. Es wurden Eichkurven für 3 verschiedene Fälle bestimmt. Die Abhängigkeit der Koinzidenzzählrate  $ZR_{CC}$  von der Menge des Plutonium im Bereich des Zentrums des Analysevolumens ist in Abb.4 dargestellt. Durch Kombination der Pu-präparate wurden als Gesamtmenge im Analysevolumen 65 g Pu erreicht.

In Tabelle 10 sind die Meßresultate für die Fälle ohne und mit Cd-Abschirmung aufgelistet. Der PE-Deckel der Meßanlage war stets frei von Cd, der Boden war stets mit Cd abgeschirmt. Für den Fall ohne Cd nimmt das Zählratenverhältnis  $ZR_{tot}/ZR_{CC}$  mit wachsender Pu-menge ab. Dies ist ein Hinweis darauf, daß Multiplikationseffekte auftreten. Für den Fall mit Cd-Abschirmung des Analysevolumens ist die Abnahme von  $ZR_{tot}/ZR_{CC}$  mit wachsender Pu-menge im betrachteten Bereich  $Pu_{tot} \leq 65$  g gering. Dagegen zeigt der Fall Anordnung mit reduzierter Empfindlichkeit (Verwendung nur des äußeren Detektorrings) ebenfalls den Einfluß von Multiplikationseffekten auf die Koinzidenzzählrate.

### Multiplikationseffekte Eichpräparate

Der Einfluß der durch die Neutronenemission des Plutoniums induzierten Spaltung auf die Koinzidenzzählrate  $ZR_{CC}$  wurde untersucht. Nach /4/ ist die totale Koinzidenzzählrate  $ZR_{CC}^T$  gegeben durch:

$$\begin{aligned}
 ZR_{CC}^T &= (F - F_{FF}) \sum_{i=2}^N (i-1) Q_i(\epsilon_c, \bar{v}_{sp}) + F_{\alpha n} \sum_{i=2}^N (i-1) Q_i(\epsilon_{\alpha n}, \bar{v}_{FF}) \\
 &+ F_{FF} \sum_{i=2}^N (i-1) Q_i(\epsilon_c, \bar{v}_{EFF})
 \end{aligned} \tag{11}$$

In Gl. (11) bedeuten:

- $\epsilon_c$  Detektorempfindlichkeit für Spontanspaltneutronen
  - $\epsilon_{\alpha n}$  Detektorempfindlichkeit für ( $\alpha n$ ) Neutronen
  - $F$  Spontanspaltrate
  - $F_{FF}$  durch Spontanspaltungsneutronen induzierte Spaltrate
  - $F_{\alpha n}$  durch ( $\alpha n$ ) Neutronen induzierte Spaltrate
  - $Q_i(\epsilon, \bar{\nu})$  Wahrscheinlichkeit, daß im Detektorsystem  $i$  Neutronen nachgewiesen werden, wenn  $\bar{\nu}$  Neutronen emittiert wurden
- $\bar{\nu}_{sp} = 2,151$  Pu-240
- $\bar{\nu}_{FF} = 3,12$  Pu-239 Spaltung von ( $\alpha n$ ) Neutronen an Pu-239 induziert
- $\bar{\nu}_{EFF} = \bar{\nu}_{sp} + \bar{\nu}_{FF} - 1 = 4,27$  } Spaltung von Spontanspaltneutronen  
an Pu-239 induziert
- $\sigma_{EFF} = \sqrt{\sigma_{sp}^2 + \sigma_{FF}^2} = 1,52$  }

Nach /5/ berechnen sich die Größen  $Q_i(\epsilon, \bar{\nu})$  gemäß:

$$Q_i(\epsilon, \bar{\nu}) = \epsilon^i \sum_{n=i}^N \binom{n}{i} (1-\epsilon)^{n-i} G(n) \quad (12)$$

wobei

$G(n)$  gegeben ist durch

$$G(n) = \frac{1}{\sigma \sqrt{2\pi} \sum_{n'=0}^{\infty} G(n')} \exp\left(-\frac{(n-\bar{\nu})^2}{2\sigma^2}\right) \quad (13)$$

$G(n)$  ist die Wahrscheinlichkeit, daß pro Spaltereignis mit  $\bar{\nu}$ -Neutronen  $n$  Neutronen emittiert werden.

Die  $G(n)$  wurden für verschiedene Fälle berechnet. Werte sind in Tabelle 11 angegeben. Die Größen  $\sum_{i=2}^N (i-1)Q_i(\epsilon, \bar{\nu})$  sind ebenfalls in Tabelle 11 für die Fälle ohne  $i=2$  Cd-Abschirmung ( $\epsilon_c=21\%$ ) und mit Cd-Abschirmung ( $\epsilon_c=18\%$ ) angegeben.

Zur Berechnung von  $ZR_{CC}^T$  gemäß Gl.(11) müssen noch die induzierten Spaltraten  $F_{\alpha n}$  und  $F_{FF}$  bekannt sein. Dazu wurden Quellmultiplikationsrechnungen mit DTK /6/ in Kugelgeometrie für 30 l Gebinde im Analysenzentrum durchgeführt. Tatsächlich liegt Zylindergeometrie mit  $H/D=100/65$  vor. Dieser Geometrieeffekt wurde mittels einer 2-dimensionalen Vergleichsrechnung korrigiert. Die Resultate sind in Abb.5 als Funktion des Pu-gehalts im Analysevolumen dargestellt. Das Verhältnis  $Q_{ne}/Q_{fiss}$  gibt an, wieviel Neutronen notwendig sind, um 1 induziertes Spaltneutron zu erzeugen. Im Fall Analysevolumen ohne Cd hängt  $Q_{ne}/Q_{fiss}$  stark von der Matrixzusammensetzung ab. Z.B. erhöht der Zusatz von Chlor (gemäß Tabelle 2 mit ca. 29 Gew.% im synthetischen Waste enthalten) das Verhältnis  $Q_{ne}/Q_{fiss}$  um etwa 70%. Die Werte von Abb.5 gelten mit Chlor. Auffallend ist 1) eine wachsende Selbstabschirmung des Plutoniums für Pu Konzentrationen oberhalb etwa 7g Pu/l und 2) eine Reduktion der induzierten Spaltrate um den Faktor 8,4 wenn das Analysevolumen mit Cd abgeschirmt wird. Dies ergibt sich, da die Neutronen überwiegend in der Detektoranordnung abgebremst werden.

Die Verhältnisse  $Q_{ne}/Q_{fiss}$  werden auch zur Berechnung von  $F_{\alpha n}$  und  $F_{FF}$  verwendet gemäß:

$$F_{FF} = \frac{q_{sp}}{\bar{v}_{FF} \frac{1}{Q_{ne}/Q_{fiss}}} \quad (14)$$

$$F_{\alpha n} = \frac{q_{\alpha n}}{\bar{v}_{FF} \frac{1}{Q_{ne}/Q_{fiss}}}$$

Die Koinzidenzzählrate ohne Multiplikation  $ZR_{CC}^{OM}$  ist gegeben gemäß:

$$ZR_{CC}^{OM} = F \sum_{i=2}^N (i-1) Q_i(\epsilon, \bar{v}_{sp}) \quad (15)$$

Die Multiplikation  $M_{CC}$  ergibt sich aus:

$$M_{CC} = \frac{ZR_{CC}^T}{ZR_{CC}^{OM}} \quad (16)$$

In den Abb.6 und 7 ist  $M_{CC}$  als Funktion der Pu-menge im Analysevolumen und für verschiedene Werte  $q_{\alpha n}/q_{sp}$  für die drei Fälle mit und ohne Cd (Abb.6) und reduzierte Empfindlichkeit (Abb.7) dargestellt. Referenzwert  $q_{\alpha n}/q_{sp}$  ist der Wert für die Pu-präparate: 2,9. Die Multiplikationseffekte gemäß Gl.(16) sind größenordnungsmäßig identisch mit den gemessenen (Abb.4). Aus Abb.6 entnimmt man z.B. daß die induzierte Spaltung eine Erhöhung der Koinzidenzzählrate  $ZR_a$  um ca. 13% bei fehlender Cd-Abschirmung bewirkt.

(Pu-gehalt 65 g im Analysevolumen) Eine Erhöhung von  $ZR_{CC}$  ist für die Anordnung mit Cd-Abschirmung experimentell nicht feststellbar (Abb.4) die Rechnung ergibt 2% .

#### Messungen an Wastegebinden

Der gesamte  $\alpha$ -Abfall der Eurochemic beträgt ca. 1000 kg. Ein Teil dieser Wastemenge war bereits zur Naßveraschung vorbereitet worden. Dieser behandelte Abfall enthält nur noch in Schwefelsäure zersetzbare (brennbare) Bestandteile wie Kleenex Tücher, Neopren, PVC und andere Kunststoffe. Der "brennbare" Abfall war in einem Schredder zerkleinert und anschließend in PVC Beutel abgefüllt worden. Das Gewicht der einzelnen Beutel lag im Bereich 2,5-5 kg. Diese Gebinde können als homogenisierte Proben betrachtet werden. Jeweils 2 dieser Gebinde waren in 28 l Blechfässern untergebracht. Die Gebinde wurden einzeln und zu mehreren in der Meßanlage in Volumenmitte ausgemessen.

Neben diesen bereits behandelten Gebinden gab es aussortierte "nicht brennbare" Festabfälle jeweils in 28 l Blechfässern und noch nicht (Stand Februar 1981) behandelte Originalgebinde, ebenfalls in 28 l Fässern.

Der gesamte Abfall mit den 3 Abfallkategorien wurde in einer 6-wöchigen Meßkampagne ausgemessen. Die Gebinde bzw. die 28 l Blechfässer wurden jeweils einzeln in der Mitte des Analysevolumens

positioniert. Die Anlage wurde verschlossen (PE-Deckel ohne Zählrohre aufgesetzt) und jedes Gebinde jeweils bis zu 20 Minuten ausgemessen. Die Meßkampagne verlief soweit einwandfrei. Im Verlauf der Meßkampagne mußten 2 defekt gewordene  $\text{BF}_3$ -Zählrohre ausgewechselt werden.

Am Aufstellungsort in Mol ergab sich als Untergrundzählrate totaler Untergrund  $\text{ZR}_{\text{tot}}^{\text{U}} = 4,5$  c/sec, Untergrund der Koinzidenzzählrate  $\text{ZR}_{\text{CC}}^{\text{U}} = 0,2$  c/sec. Dieser Untergrund blieb über die gesamte Dauer der Meßkampagne konstant. Mehrmals täglich und jeweils über Nacht wurden Untergrundmessungen durchgeführt.

#### Resultate und Diskussion

Unter Verwendung der Eichkurven von Abb.4 für den Fall mit Cd-Abschirmung und unter Verwendung der Multiplikationskorrektur gemäß Abb.6 und 7 wurde aus den gemessenen Koinzidenzzählraten die Menge der Pu-isotope 238, 240 und 242 bestimmt. Der Pu-vektor hängt vom Abbrand ab. Dieser ist in der Regel für das Wastegebäude unbekannt. Deshalb kann bereits der Gehalt der geradzahligen Pu-isotope im Analysevolumen nicht genau bestimmt werden.

Die Abbrandabhängigkeit der Spontanspaltungsneutronenemission  $q_{\text{sp}}$  ist in Abb.8 dargestellt. Die Daten beruhen auf Aktinidenanalysenresultaten für TRINO /7/ und KWO-Brennstoff /8/, sowie für Grundremmingen Brennstoff /9/ und auf Eurochemic Betreiberdaten /10/. Ein Mittelwert für  $q_{\text{sp}}$  von  $(1010 \pm 50)$  n/(sec g Pu 238 + Pu 240 + Pu 242) deckt den Eurochemic Abfall ab. Wird auch Brennstoff aus modernen DWR's zugelassen (z.B. KWO) so vergrößert sich der Fehler auf

$$q_{\text{sp}} = (1010 \pm 70) \text{ n/(sec g Pu 238 + Pu 240 + Pu 242)}$$

Tabelle 12 enthält die komplette Liste aller vermessenen Wastegebinde mit dem Gehalt an Pu 238 + Pu 240 + Pu 242 in Gramm. Die Genauigkeit der Werte liegt für Pu 238 + 240 + 242 Gehalte kleiner 20 g bei  $\pm 5\%$ . Für höhere Pu-gehalte verschlechtern Multiplikationseffekte die Genauigkeit. Bei hohen Gesamtzählraten ( $ZR_{tot} > 20000c/sec$ ) wird die Genauigkeit durch nicht-reproduzierbare Schwankungen in  $ZR_{cc}$  drastisch verschlechtert. Einzelne Fälle mit geringerer Genauigkeit sind vermerkt.

Tabelle 12 enthält auch die Resultate der zum Zeitpunkt der Messungen noch unsortierten Wastegebinde und die Resultate des als nicht brennbar aussortierten Wastes. An einigen der noch nicht sortierten Wastegebinden wurden hohe Gesamtzählraten  $ZR_{tot}$  und hohe Koinzidenzzählraten  $ZR_{cc}$  gemessen. Entsprechend gering war die erreichbare Genauigkeit in der Pu-bestimmung. Die Werte der Tabelle 12 sind korrigiert um Multiplikationseffekte, inclusive der ( $\alpha n$ )Korrektur und um Totzeiteffekte .

Der unsortierte Waste befand sich in 28 l Blechfässern. Das maximale Gewicht der Gebinde betrug 8 kg. Diese Matrixmenge, obwohl doppelt so hoch wie für die brennbaren Gebinde, erzeugt keinen nachweisbaren Matrixeffekt. Zur Bestimmung der Pu-menge wurden deshalb dieselben Eichkurven verwendet (Abb.4) wie für die kleineren Gebinde.

Für die Bestimmung des totalen Gehalts an Plutonium zeigt Abb.9 den Zusammenhang zwischen der Neutronenemission  $q_{sp}$  und dem totalen Pu-gehalt. Für den Eurochemic Abfall ergibt sich ein Fehler von  $\pm 21\%$ . Dieser Fehler kann nur reduziert werden, wenn die Herkunft des Abfalls genau bekannt ist.

Für LWR-Brennstoff im Abbrandbereich 10-25 Gwd/tU ergibt sich der Fehler in der  $Pu_{tot}$ -bestimmung gemäß Abb.9 zu  $\pm 40\%$ .

Die Gesamtmenge an Pu im Waste errechnet sich gemäß:

$$1g(\text{Pu}238 + \text{Pu}240 + \text{Pu}242) \hat{=} (5,3 \pm 1,1)g \text{Pu}_{\text{tot}}$$

Der bis Ende 1980 aufbereitete brennbare Waste (Gebinde C101-C337) enthält  $(2636 \pm 525)g \text{Pu}_{\text{tot}}$ .

### Multiplikationseffekte homogenisierter Abfallgebände

Der Einfluß von Multiplikationseffekten auf die Koinzidenzzählrate wurde für Abfallgebände mit höheren Pu-gehalten und mit stark unterschiedlicher ( $\alpha n$ )-Neutronenproduktion untersucht. Verwendet wurden hierzu die Anordnungen Analysevolument mit und ohne Cd-Abschirmung. Gemäß Abb. 6 sollten beide Anordnungen für Pu-gehalte größer ca. 50 g eine unterschiedliche Beeinflussung der Koinzidenzzählrate durch Multiplikationseffekte zeigen. Dies wurde durch Messungen an "brennbaren" Abfallgebänden mit hohen Pu-gehalten überprüft. Die ausgemessenen Gebände sind zusammen mit den Resultaten in Tabelle 13 aufgelistet. Angegeben sind die gemessenen Zählraten, die totzeitkorrigierten Koinzidenzzählraten  $ZR_{\text{CC}}^{\text{K}}$  und die Gehalte an Pu 238 + Pu 240 + Pu 242. Für beide Fälle ergibt sich gute Übereinstimmung. Eine Ausnahme bildet zunächst das Gebände C 182. Für dieses Gebände ist die ( $\alpha n$ ) Neutronenemission etwa einen Faktor 1,35 höher als für die Pu-präparate. Diese höhere ( $\alpha n$ ) Neutronenemission bewirkt gemäß Abb. 6 für den Fall ohne Cd-abschirmung eine Erhöhung der Multiplikation um 4,2%. Wird dies berücksichtigt so reduziert sich der ermittelte Wert auf 18,3 g Pu 238 + Pu 240 + Pu 242, im Vergleich zu 17,5 g für den Fall mit Cd-abschirmung des Analysevolumentens.

Es wurden weite Resultate für homogenisierte Gebinde verglichen. Ausgewählt wurden solche mit hoher ( $\alpha n$ ) Emission. Die Resultate für diese Gebinde sind ebenfalls in Tabelle 13 aufgelistet. Für die Gebinde C 300 und C 182 + C 183 wird wieder analog zu oben eine Korrektur der höheren ( $\alpha n$ ) Neutronenemission durchgeführt. Für das Gebinde C 300 ist der ( $\alpha n$ ) Anteil verglichen mit dem Referenzfall um den Faktor 2,7 höher. Diese höhere ( $\alpha n$ ) Neutronenemission bewirkt eine Erhöhung der Multiplikation um ca. 2% für den Fall mit Cd-Abschirmung und ca. 14% für den Fall ohne Cd-Abschirmung. Damit erhält man für C 300:

$$\begin{aligned} & (\text{Pu } 38 + 40 + 42) \text{ mit Cd} = 11,0 \text{ g} \\ & (\text{Pu } 38 + 40 + 42) \text{ ohne Cd} = 10,7 \text{ g} \end{aligned}$$

Für die beiden Gebinde C 182 + C 183 erhält man nach Korrektur der ( $\alpha n$ ) Neutronenemission einen Gehalt an Pu 238 + Pu 240 + Pu 242 von 24,6 g. Aus der Addition beider Einzelgebäude ergibt sich: 24,8 g. Damit ist demonstriert, daß die Multiplikationseffekte berechnet gemäß Gl. (16) und dargestellt in Abb.6 und 7 richtig sind.

#### Multiplikationseffekte für andere Abfallgebäude

Unter den noch nicht sortierten Wastegebüden gab es welche mit hohen Gesamtzählraten (bis 50000 c/sec). Diese hohen Zählraten bewirken massive Totzeiteffekte. Da der Einfluß der Totzeit nur bis Zählraten  $ZR_{\text{tot}}$  von ca. 16200 c/sec bekannt ist (Tabelle 6) wurden einige dieser Gebüde mit hohen Gesamtzählraten in einer Detektoranordnung mit reduzierter Empfindlichkeit ausgemessen. Es wurde nur der äußere Detektorring ohne Cd-Abschirmung des Analysevolumens verwendet. Gemäß Abb.4 ergibt sich für diese Anordnung gegenüber dem Referenzfall Analysevolumen leer mit Cd-Abschirmung eine um den Faktor 8,4 reduzierte Koinzidenzzählrate. Allerdings ergibt sich auch eine stärkere Abhängigkeit von Multiplikationseffekten. Die Änderung der Koinzidenzzählrate durch Multiplikationseffekte ist in Abb.7 für die Anordnung mit reduzierter Empfindlichkeit dargestellt.

Ein Vergleich der Resultate ist in Tabelle 14 gegeben.

Die Zählraten  $ZR_{cc}$  sind jeweils um Totzeiten und Multiplikationseffekte korrigiert. Die Totzeiteffekte für Zählraten  $ZR_{tot}$  größer  $1,6 \cdot 10^4$  c/sec wurden durch logarithmische Extrapolation der experimentellen Werte für  $ZR_{tot} \leq 1,6 \cdot 10^4$  c/sec gewonnen. Da nicht bekannt ist wie genau die Extrapolation ist, ergeben sich für hohe Gesamtzählraten größere Unsicherheiten in den Werten Pu-238 + Pu 240 + Pu 242 der Referenzanordnung.

Als Verhältnis der korrigierten Koinzidenzzählraten erhält man den Mittelwert  $10,7 \pm 2,0$ , d.h. es ergeben sich höhere Pu-gehalte für die Referenzanordnung. Dies ist zu vergleichen mit dem aus den Eichmessungen ermittelten Wert von 8,4. Ursachen dieser Diskrepanzen könnten sein: 1) systematische Fehler in den Meßwerten  $ZR_{cc}$  der Referenzanordnung bei hohen Spaltstoffgehalten, 2) systematischer Fehler in der Totzeitkorrektur, 3) neutronenabsorbierende Materialien als Beimischung in den Fällen hohen Pu-gehalts. Letzteres bewirkt eine Reduktion der Multiplikation für die Anordnung mit reduzierter Detektorempfindlichkeit. Klarheit zu diesem Punkt kann nur gewonnen werden, wenn eine weitere Meßkampagne in Mol durchgeführt werden würde.

Eine weitere Kontrolle des Multiplikationseinflusses auf die Koinzidenzzählrate  $ZR_{cc}$  ergibt sich aus der Kombination verschiedener Gebinde. Ausgewählt wurden hierzu Gebinde mit hohen Pu-gehalten bei gleichzeitig nicht zu hoher Gesamtneutroneemission. Resultate sind in Tabelle 15 dargestellt. Die nicht sortierten Gebinde waren in 28 l Blechfässern enthalten. In der Tabelle ist vermerkt, welches der beiden Gebinde unten im Analysevolumen stand. Über eine Referenzmessung wurde die Änderung in  $ZR_{tot}$  und  $ZR_{cc}$  bei Änderung der Meßpositionen von Volumenmitte nach unten bestimmt. Die angegebenen Zählraten sind um diesen Geometrieeffekt korrigiert. Mit wachsendem Pu-gehalt im Analysevolumen tritt eine wachsende Unterschätzung des Multiplikationseffekts auf. Die Diskrepanz liegt im Rahmen der Unsicherheiten der Korrekturen für Totzeit und Geometrie.

### Matrixeinflüsse für kleine Gebinde

Gemäß Tabelle 7 ergibt sich, daß das Zählratenverhältnis innerer zu äußerer Detektorring  $ZR_{\text{tot}}^i/ZR_{\text{tot}}^a$  von der Zusammensetzung der Wastematrix abhängt.  $ZR_{\text{tot}}^i/ZR_{\text{tot}}^a$  nimmt mit wachsendem Wassergehalt der Matrix zu, während die Nachweisempfindlichkeit  $\epsilon$  abnimmt. Deshalb war es naheliegend, die Größe  $ZR_{\text{tot}}^i/ZR_{\text{tot}}^a$  zur Elimination der Einflußgröße Zusammensetzung der Wastematrix zu verwenden /1/. Der Einfluß des Wassergehalts der Wastematrix kann aus Tabelle 5 entnommen werden. Die Nachweisempfindlichkeit  $\epsilon$  wird z.B. gegenüber dem Fall wasserfreies Analysevolumen ohne Cd-Abschirmung um ca. 30% reduziert, wenn der Wassergehalt auf  $\rho_{\text{H}_2\text{O}} = 0,2 \text{ g/cm}^3$  ansteigt. Damit wird die Koinzidenzzählrate bei gleicher Emissionsrate der Spontanspaltungsneutronen auf die Hälfte reduziert. Die Empfindlichkeitsänderung ist für den Fall mit Cd-Abschirmung größer. Wenn der Wassergehalt von 0 auf  $0,2 \text{ g/cm}^3$  ansteigt, wird die Koinzidenzzählrate um den Faktor 3 reduziert.

Die einfache Korrekturmethode unter Verwendung von  $ZR_{\text{tot}}^i/ZR_{\text{tot}}^a$  geht davon aus, daß die mittlere Energie der ( $\alpha n$ ) Neutronen nicht zu sehr verschieden ist von der der Spontanspaltungsneutronen und daß das Eichpräparat bezüglich des Anteils der ( $\alpha n$ ) Neutronen an der Gesamtemission typisch ist für den Waste. Beide Annahmen treffen nicht zu. Deshalb kann die oben skizzierte Methode nicht zur Elimination des Matrixeinflusses verwendet werden.

Dies wird auch aus den Abb.9 und 10 deutlich. Aufgetragen ist jeweils die Gesamtheit der Meßresultate der Meßkampagne in Mol für die Fälle mit und ohne Cd-Abschirmung der inneren PE-Wand. Obwohl die verschiedenen Wastebeutel in etwa dieselbe Wastemenge enthalten (ein von Beutel zu Beutel variierender Matrixeffekt sollte demnach nicht auftreten) ändert sich das Verhältnis der Zählrate  $ZR_{\text{tot}}^i/ZR_{\text{tot}}^a$  in einem sehr großen Bereich. Gleichzeitig ändert sich das Verhältnis  $ZR_{\text{tot}}/ZR_{\text{cc}}$  maximal um einen Faktor 5. Die ( $\alpha n$ ) Neutronen haben demnach eine deutlich niedrigere Quellenergie als die Spontanspaltungsneutronen und ihr Anteil kann von Probe zu Probe stark schwanken. Die Cd-Abschirmung der inneren PE-Wand hat bei festgehaltener Matrix keinen Einfluß auf die Abhängigkeit der

Größe  $ZR_{\text{tot}}^i/ZR_{\text{tot}}^a$  vom Verhältnis  $ZR_{\text{tot}}/ZR_{\text{cc}}$ . Dies ist aufgrund der ähnlichen Abhängigkeit von  $ZR_{\text{tot}}^i/ZR_{\text{tot}}^a$  von der Neutronenenergie auch zu erwarten. Für den Fall "ohne Cd" sind lediglich wesentlich weniger Gebinde und außerdem nur bereits sortierte ausgemessen worden (Abb.10).

Die Cd-Abschirmung reduziert die Matrixabhängigkeit von  $ZR_{\text{tot}}^i/ZR_{\text{tot}}^a$  im betrachteten Variationsbereich  $0 \leq \rho_{\text{H}_2\text{O}} \leq 0,2 \text{ g/cm}^3$  von ca.  $\pm 21\%$  auf  $\pm 12\%$  erhöht aber gleichzeitig die Matrixabhängigkeit der Nachweisempfindlichkeit. In beiden Fällen muß wegen des letzteren der Einfluß der Wastematrix eliminiert werden. Dazu sind folgende Maßnahmen geeignet:

- 1) für  $ZR_{\text{tot}}$ : Korrektur über das Verhältnis  $ZR_{\text{tot}}^i/ZR_{\text{tot}}^a$
- 2) für  $ZR_{\text{cc}}$ : Korrektur über  $ZR_{\text{cc}}^i/ZR_{\text{cc}}^a$

Die Verwendung von  $ZR_{\text{tot}}$  zur Bestimmung des Pu-gehalts der Wasteprobe ist wegen des großen Variationsbereichs der ( $\alpha$ n) Neutronenanteile nicht sinnvoll. Die Matrixkorrektur hat unter Verwendung des Koinzidenzzählratenverhältnisses  $ZR_{\text{cc}}^i/ZR_{\text{cc}}^a$  zu erfolgen. Augenblicklich verfügbar sind  $ZR_{\text{cc}}^a$  Messungen an einigen wenigen realistischen Wasteproben. Trotz stark unterschiedlicher Verhältnisse  $ZR_{\text{tot}}/ZR_{\text{cc}}^{\text{tot}}$  ergibt sich nach Multiplikations- und Totzeitkorrektur ein konstanter Wert  $ZR_{\text{cc}}/ZR_{\text{cc}}^a$  (Tabelle 14 letzte Spalte).

Der bei den Messungen in Mol festgestellte große Variationsbereich der ( $\alpha$ n) Neutronenemission hat im Prinzip 2 Ursachen: 1) der Pu-waste stammt von Brennstoff mit unterschiedlichen Abbränden und 2) die unterschiedliche Vermischung des Pu mit Matrixmaterial sowie die Zusammensetzung und die Dichte der Matrix (Reichweite der  $\alpha$ -Teilchen und ( $\alpha$ n) Ausbeuten).

Es wurde geprüft ob Pkt. 1) als Ursache in Frage kommt. Dazu wurden wieder dieselben Aktinidenanalysenresultate und Eurochemic Betreiberdaten /7-10/ verwendet. In Abb. 12 ist die ( $\alpha n$ ) Neutronenemission über der Emission durch Spontanspaltung für Brennstoff der Reaktoren Obrigheim (KWO) Gundremmingen (SWR) und Trino bezogen auf  $1g Pu_{tot}$  aufgetragen. Die Eurochemic Betreiberwerte sind als Punkte mit eingetragen. Es ergibt sich in etwa ein linearer Zusammenhang zwischen  $\alpha n$  und Spontanspaltungsemission. Damit wird aber das Verhältnis  $q_{\alpha n}/q_{sp}$  konstant und damit im Abbrandbereich 10-35 Gwd/tU praktisch abbrandunabhängig. Pkt 1) scheidet damit als Ursache der Variation des Verhältnisses  $ZR_{tot}/ZR_{cc}$  aus.

#### Multiplikations- und Matrixeffekte für 200 l Gebinde

Es wurden folgende typische Fälle betrachtet: 1) eine homogene Verteilung von Pu im 200 L Volumen vermischt mit unterschiedlichen Matrixmaterialien und 2) eine lokale aber zum Zentrum des Analysevolumens symmetrische Pu-ansammlung umgeben von unterschiedlichem Matrixmaterial. Der Fall einer inhomogenen Pu-Verteilung im Analysevolumen wurde bisher nicht betrachtet.

Ziel der Untersuchungen sollte die Bestimmung folgender Punkte sein: 1) Einfluß und Möglichkeiten zur Elimination des Matrixeinflusses, 2) Einfluß und Elimination von Multiplikationseffekten und 3) Abschätzung des Fehlers in der Pu-Bestimmung durch eine unbekannte Pu-Materialverteilung im Analysevolumen. Pkt. 1) und 3) wurden experimentell untersucht, zu Pkt 2) wurden Quellmultiplikationsrechnungen in 2 dim. Zylindergeometrie durchgeführt.

Berechnete Multiplikationswerte  $M_{cc}$  sind in Abb.13 für 30 l Gebinde in Volumenmitte und in Abb.14 für 200 l Gebinde mit homogener Pu-Verteilung angegeben. Im Fall der 30 l Gebinde war das restliche

Volumen leer bzw. mit Polyäthylen der Dichten  $\rho_{\text{H}_2\text{O}}=0,1$  und  $\rho_{\text{H}_2\text{O}} = 0,3 \text{ g/cm}^3$  gefüllt. Aus Abb. 13 entnimmt man, daß bei moderierender Wastematrix ( $\rho_{\text{PE}} \geq 0,1 \text{ g/cm}^3$ ) Multiplikationseffekte bereits bei Pu-gehalten größer 5g auftreten. Ohne Cd-Abschirmung des Analysevolumens wird der Einfluß der Wastematrix auf die Multiplikation drastisch reduziert. Die Matrixabhängigkeit der Multiplikation wird für 200 l Gebinde mit homogener Pu-Verteilung noch weiter reduziert. Gemäß Abb. 14 kann damit die Multiplikationskorrektur ohne Kenntnis der Matrix erfolgen.

Der Einfluß der Matrixzusammensetzung auf das Koinzidenzmeßsignal  $ZR_{\text{CC}}$  wurde für die Fälle Volumen leer und Volumen gefüllt mit Polyäthylen der Dichte  $\rho_{\text{PE}}=0,18 \text{ g/cm}^3$  experimentell untersucht. Dazu wurde das große Pu-oxid-präparat in einem Meßraster bei 3 radialen und jeweils 9 axialen Positionen verwendet.

Die Resultate sind in Abb.15 dargestellt. Die Matrixkorrektur der Koinzidenzzählrate  $ZR_{\text{CC}}$  kann über das Verhältnis  $ZR_{\text{CC}}^i/ZR_{\text{CC}}^a$  erfolgen. Die Werte  $ZR_{\text{CC}}^i/ZR_{\text{CC}}^a$  sind leider keine Meßwerte, sondern gemäß Gl.(9) aus Meßwerten  $ZR_{\text{tot}}^i/ZR_{\text{tot}}^a$  mit einer Cf-Quelle berechnet. Für die Anordnung ohne Cd ergibt sich gemäß Abb. 15 eine stärkere Abhängigkeit von  $ZR_{\text{CC}}^i/ZR_{\text{CC}}^a$  von der Matrixzusammensetzung. Außerdem ergibt sich eine geringere Beeinflussung des Meßsignal  $ZR_{\text{CC}}$  durch die Pu-Verteilung im Analysevolumen. Die Fälle Pu im Zentrum und Pu auf einer Zylinderschale  $20 \leq r \leq 30 \text{ cm}$  unterscheiden sich für den Fall mit Cd um ca.  $\pm 23\%$ , für den Fall ohne Cd ist dagegen wegen des für beide Pu-Verteilungen verschiedenen  $ZR_{\text{CC}}^i/ZR_{\text{CC}}^a$  kein Einfluß auf  $ZR_{\text{CC}}$  zu erwarten.

### Zusammenfassung

Der Einsatz der Faßmeßanlage in der Eurochemic in Mol hat gezeigt, daß die passive Neutronenmessung eine relativ einfache, empfindliche und zuverlässige Methode zur Pu-bestimmung in Wastegebinden darstellt. In realistischen Wastegebinden kann der Anteil der ( $\alpha n$ ) Neutronen an der Neutronenemission in einem weiten Bereich schwanken. Damit muß zur Pu-bestimmung die Koinzidenzmethode verwendet werden.

Beschrieben werden Eichmessungen und die Messungen in Mol. Die aus diesen Messungen gewonnenen Aussagen über den Einfluß von Multiplikationseffekten und über Verfahren zur Elimination des Einflusses der Wastematrix auf die Pu-bestimmung werden diskutiert.

Mit der in Mol verwendeten Meßanlage wurden Nachweisgrenzen von 40 mg Pu in einem Analysevolumen von 200 l erreicht. Bei einem auf minimalen Neutronenuntergrund ausgelegten Aufstellungsort kann mit dem derzeitigen Gerät die Nachweisgrenze um mindestens einen Faktor 2 reduziert werden, d.h. minimale Pu-Mengen von ca. 20 mg/200 l können nachgewiesen werden.

Matrixeffekte und inhomogene Pu-Verteilungen sind für 200 l Gebinde noch weiter zu untersuchen. Dazu werden bei HDB Labormessungen auch an betonierten Fässern durchgeführt. Die bestehenden Diskrepanzen zwischen Pu und Cf sind weiter zu untersuchen. Außerdem ist eine experimentelle Bestimmung der Abhängigkeit der Koinzidenzzählrate von Totzeiteffekten durchzuführen.

Die Faßmeßanlage sollte stets ohne Cd-Abschirmung betrieben werden. Dies erlaubt die Elimination des Matrixeinflusses auf das Meßsignal und erleichtert die Multiplikationskorrektur.

Literatur

- /1/ W. Eyrich et al.: A Neutron Well Counter for Plutonium Assay in 200 l Waste Barrels, EUR 6629 EN, 1979
- /2/ K. Böhnel: Die Plutoniumbestimmung in Kernbrennstoffen mit der Neutronenkoinzidenzmethode, KfK 2203, 1975
- /3/ J. Terrell: Phy. Rev. 127, S.880, 1962
- /4/ E.W. Lees, B.W. Houton: Variable dead time counters. Theoretical responses and the effects of neutron multiplication. AERE-R-9168, 1978.
- /5/ A. Prosdocimi: Neutron Multiplicity Analyses as a Passive Interrogation Method. 1. Symp. ESARDA 25/27 April 1979, Brüssel
- /6/ C. Günther, W. Kinnebrock: Das ein-dimensionale Transportprogramm DTK, KfK 1381, 1971
- /7/ P. Barbero et al: Post Irradiation Examination of the Fuel Discharged from the TRINO Vercellese Reactor, EUR 5605e, 1977
- /8/ P. Barbero et al.: Post Irradiation Analysis of the Obrigheim Spent Fuel, EUR 6589e, 1979
- /9/ P. Barbero et al: Post Irradiation Analysis of the Gundremmingen BWR Spent Fuel, EUR 6301 EN, 1979
- /10/ R. Swennen: persönliche Mitteilung

Tabelle 1 Neutronenemission und  $\nu$ -Werte für Pu isotope

Nuklid	$\bar{\nu}$	$\frac{\overline{\nu(\nu-1)}}{2 \bar{\nu}}$	$q_{sp}$ (n/secg)	$q_{an}$ n/secg
Pu 238	2,21	0,896	2430	20110
Pu 240	2,15	0,869	898	270
Pu 242	2,14	0,864	1685	4,5
Cf-252	3,76	1,574	$2,3 \cdot 10^{12}$	$10^6$

Tabelle 2 Chemische Zusammensetzung des Matrixmaterials der Eurochemie Pu-Präparate. Dichte  $\rho \approx 0,2 \text{ g/cm}^3$   
Das Plutonium ist homogen in der Probe verteilt

Element	Gew. %
C	52,6
O	8,1
H	7,0
Cl	29
Zn	1,7
Si	0,9
Al	0,5
Fe	0,1

Tabelle 3a: Verwendete Eichpräparate und Neutronenquellstärken

Präparat	Quellstärke aus Spontan Spaltung	Quellstärke aus ( $\alpha$ n)	totale n-Emission	Gesamt menge Pu g	Menge Pu 238 + Pu 240 + Pu 242 g
	n/sec	n/sec	n/sec		
$^{252}\text{Cf}$	$9,45 \cdot 10^4$ (1)	-	$9,45 \cdot 10^4$	-	-
Puoxid 1	182	unbekannt	unbekannt	1,493	0,197
Puoxid 2 (2)	1843			15,1	1,99
Pu I	2092	unbekannt	unbekannt	9,62	2,016
Pu II	4000			18,4	3,85
Pu III	8153			37,5	7,85
Pu IV (3)	455			2,09	0,438
Pu V	1081			4,98	1,04

(1) Quellstärke am Nov. 1980

(2) Hersteller TUI

(3) Hersteller Eurochemic Mol

Tabelle 3b: Isotopenvektor der verwendeten Pu-präparate

Präp.	Pu-vektor (238;239;240;241;242)
Pu-oxid	(0,09; 85,33; 12,9; 1,43; 0,25)
Pu-präp. Mol	(0,87; 72,01; 18; 6,9; 2,04)

$\frac{\text{Am } 241}{\text{Pu}_{\text{tot}}}$  (+)  
(Gew.%)  
0,21  
3,34

bezogen auf Dez. 1980

Tabelle 4 Lebensdauer  $1/\alpha$  der thermischen Neutronen und Nachweisempfindlichkeit  $\epsilon_c$  der Detektoranordnung bestimmt aus least square fit  $ZR_{CC} = f(\Delta t)$

Fall	Quelle	$1/\alpha$ ( $\mu s$ )	$\epsilon_c$ (%)
Analysevol. leer ohne Cd	Cf (1)	innen 125	7,7
		außen 155	6,1
	Puppräparat I + II + III	135	20,1
Analysevol. mit PE ohne Cd	Puoxid	133	11,4
	Cf (1)	155	9,2
Analysevol leer mit Cd	Puppräparat II, III	98	17,8
Analysevol. mit PE mit Cd	Puoxid	95	13,3

(1): Andere Detektoranordnung mit weniger Detektoren im inneren Ring.

Tabelle 5: Nachweisempfindlichkeiten für Eichpräparate im Zentrum des Analysevolumens, Koinzidenzzeitintervall 100  $\mu$ s

Fall	Präparat	$ZR_{tot}$ (c/sec)		$ZR_{cc}$		$q_{sp}$ (n/sec)		$q_{tot}$		$\epsilon$ (%)	
								aus $ZR_{cc}$	aus $ZR_{tot}$		
Analysevol. leer ohne Cd	Cf	16120	2154			$9,45 \cdot 10^4$	$9,45 \cdot 10^4$	17,4	19,5		17,0
	Puoxid	749	45,2			2020		22,2			
	Pu III, Mol	6181	153			8150		20,1			
Analysevol. leer mit Cd	Puoxid	55	3,65			182		19,0			
	Pu III, Mol	5502	134			8150		17,8			
Analysevol. mit PE mit Cd	Puoxid	340	18,9			1843		13,6			
	Cf	8569	812			$9,45 \cdot 10^4$		9,4			9,0
Analysevol. mit PE ohne Cd	Puoxid	498	18,5			1843		14,8			

Tabelle 6: Vergleich gemessener und berechneter  $ZR_{tot}/ZR_{cc}$  - Verhältnisse

Fall	Präparat	$ZR_{cc}$ (c/sec)	$ZR_{tot}$	$\frac{(ZR_{tot}/ZR_{cc})^{Cf}}{(ZR_{tot}/ZR_{cc})^{Pu}}$		Totzeiteffekt im Koinzidenz- zähler (%)
				ME	RE*	
Analysevol. leer	Cf	2154	16200			
ohne Cd	Pu	45,2	749	0,451	0,342	12,6
Analysevol. mit	Cf	1034	11870			
PE, ohne Cd	Pu	18,5	498	0,426	0,342	6,5
Analysevol. mit	Cf	812	8569			
PE mit Cd	Pu	1,29	534	0,40	0,342	-
Analysevol. leer	Kl. Cf-Quelle	1,7	14,8			
ohne Cd	Pu	24,2	521,3	0,404	0,342	-

(\*) unter den Annahmen  $\epsilon_c^{Pu} = 1,02 \epsilon_c^{Cf}$

(\*) unter den Annahmen  $\epsilon_c^{Pu} = 1,02 \epsilon_c^{Cf}$   
 $\epsilon_{tot}^{Pu} = \epsilon_c^{Pu}$

Tabelle 7: Verhältnisse der totalen und der koinzidenten Zählraten.  
Die Präparate befinden sich jeweils im Zentrum des Analyse-  
volumens. Der innere Detektorring war ausgedünnt.

Fall	Präparat	$ZR_{tot}^i / ZR_{tot}^a$	$ZR_{cc}^i / ZR_{cc}^a$
Volumen leer ohne Cd	Cf	1,48	1,93
	Pu-oxid	1,43	1,87
Volumen mit PE ohne Cd	Cf	2,49	5,2
	Pu-oxid	2,42	5,07

Tabelle 8: Bestimmung der totalen Neutronenquellstärke verschiedener Präparate

Fall	Präparat	$c/n^2$ totzeit korrigiert	$q_{tot}$ (n/sec) aus $c/n^2$
Analysevol. leer ohne Cd	Cf	$9,24 \cdot 10^{-6}$	$8,5 \cdot 10^4$
	Puoxid 1	$8,05 \cdot 10^{-5}$	$3,3 \cdot 10^3$
	Pu III	$4,0 \cdot 10^{-6}$	$3,0 \cdot 10^4$
Analysevol. m. PE	Puoxid 2	$1,2 \cdot 10^{-3}$	$3,2 \cdot 10^4$ <sup>260</sup>
	Pu III	$4,42 \cdot 10^{-6}$	
Analysevol. m. PE mit Cd	Cf	$1,1 \cdot 10^{-5}$	$9,0 \cdot 10^4$ 305
	Puoxid 2	$1,1 \cdot 10^{-3}$	
Analysevol. m. PE ohne Cd	Cf	$7,81 \cdot 10^{-6}$	$1,0 \cdot 10^5$ $3,3 \cdot 10^3$
	Puoxid 1	$7,45 \cdot 10^{-5}$	

Tabelle 9: Bestimmung von  $F(\bar{v})^{Cf} = \frac{\sqrt{v(v-1)}}{2\bar{v}}$  unter Verwendung

verschiedener Gleichungen.

$$\text{Gl. (1): } F(\bar{v})^{Cf} = \frac{ZR_{cc}^{Cf}}{\epsilon_c^{-2} q_{sp}^{Cf} F(\Delta t)}$$

$$\text{Gl. (6a): } F(\bar{v})^{Cf} = 1,02 \frac{\epsilon_c^{Pu} F(\bar{v})^{Pu}}{\epsilon_{tot}^{Pu} (q_{tot}/q_{sp})^{Pu}} \frac{(ZR_{tot}/ZR_{cc})^{Pu}}{(ZR_{tot}/ZR_{cc})^{Cf}}$$

$$\text{Gl. (10): } F(\bar{v})^{Cf} = \frac{c/n^2 q_{tot}^{Cf}}{F(\Delta t)}$$

Beziehung No	F(v)	Fehler %
1	1,46	± 16
6	1,34	± 11
10	1,32	± 15

Tabelle 10: Eichmessungen mit Eurochemic Pu-Präparaten

a) Anordnung: Analysevolumen leer ohne Cd-Abschirmung

Präparat	238	g Pu <sub>tot</sub>	ZR <sub>tot</sub>	ZR <sub>cc</sub>	ZR <sub>tot</sub> /ZR <sub>cc</sub>
	g Pu <sub>240</sub> 242				
Pu I	2,01	9,66	1620	35,7	45,3
Pu II	3,85	18,5	3082	72,4	42,5
Pu III	7,85	37,6	6180	151,3	40,8
Pu V	1,0	4,98	850	18,9	45,0
Pu I + Pu II	5,86	28,1	4710	108,9	43,2
Pu I + Pu V	3,0	14,6	2454	54,1	45,3
Pu I + Pu III	9,86	45,2	7765	199,8	38,8
Pu II + Pu III	11,70	56,06	9300	299,5	40,5
Pu I + Pu II + Pu III	13,7	65,7	10825	281	38,5

b) Anordnung: Analysevolumen leer mit Cd-Abschirmung

Präparat	238	ZR <sub>tot</sub>	ZR <sub>cc</sub>	ZR <sub>tot</sub> /ZR <sub>cc</sub>
	g Pu <sub>240</sub> 242			
Pu I	2,01	1447	32,2	44,9
Pu II	3,85	2752	65,3	42,1
Pu III	7,85	5502	131,1	42,0
Pu IV	0,44	312	6,9	45,2
Pu V	1,0	770	17,9	43,0
Pu I + Pu V	3,0	2192	49,3	44,3
Pu I + Pu II	5,85	4189	97,5	43,0
Pu II + Pu III	11,70	8198	198,9	41,2
Pu I + Pu II + Pu III	13,7	9505	234	40,7

Tabelle 11: Wahrscheinlichkeiten für die Emission mehrerer Neutronen pro Spontanspaltung

Isotop	$^{239}\text{Pu}$	$^{240}\text{Pu}$	Schnellsplaltung	$^{252}\text{Cf}$
$\bar{\nu}$	3,12	2,151	4,27	3,76
$\sigma$	1,08	1,08	1,52	1,207
G(0)	0,0057	0,051	0,005	
G(1)	0,0538	0,205	0,026	0,0242
G(2)	0,2157	0,3679	0,086	0,11417
G(3)	0,3776	0,2727	0,186	0,2712
G(4)	0,272	0,0858	0,258	0,3242
G(5)	0,083	0,0115	0,234	0,195
G(6)	0,0109	0,0006	0,102 0,137	0,0591
G(7)	0,0006		0,015 0,052	0,00901
G(8)			0,00095 0,013	0,000691
G(9)			0,002	

Größen  $\sum_{i=2}^N (i-1) Q_i(\epsilon, \bar{\nu})$  für verschiedene  $\epsilon$ - und  $\bar{\nu}$ -Werte

Empfindlichkeit	$\bar{\nu}$		
$\epsilon$	2,151	3,12	4,27
$\%$	Pu-240	Pu-239	
18	0,0548	0,1153	0,178
21	0,0744	0,1557	0,217
6,5	0,00696	0,0149	0,0296

Tabelle 12: Liste der vermessenen Wastegebände mit Gehalt an Pu 238 + Pu 240 + Pu 242 in Gramm

38 Gebinde g Pu 40 42		38 Gebinde g Pu 40 42		38 Gebinde g Pu 40 42		38 Gebinde g Pu 40 42		38 Gebinde g Pu 40 42	
C 101	0,46	C 124	1,23	C 147	0,025	C 170	0,60	C 193	4,94
102	0,26	125	1,06	148	0,76	171	0,32	194	0,35
103	0,26	126	0,42	149	0,10	172	12,9	195	0,64
104	0,19	127	0,14	150	0,1	173	7,54	196	2,02
105	1,27	128	1,39	151	0,73	174	2,22	197	5,12
106	0,46	129	0,83	152	0,61	175	2,07	198	2,31
107	0,07	130	0,53	153	1,34	176	2,88	199	0,46
108	0,06	131	0,28	154	1,04	177	1,82	200	0,23
109	1,36	132	0,41	155	0,35	178	0,58	201	0,09
110	3,5	133	0,33	156	2,26	179	14,0 ± 1,5	202	0,084
111	2,39	134	0,23	157	2,51	180	1,81	203	0,05
112	1,22	135	0,13	158	1,9	181	10,44	204	0,07
113	2,68	136	1,19	159	1,04	182	17,65	205	0,06
114	1,11	137	4,33	160	1,31	183	5,6	206	0,05
115	1,24	138	1,0	161	0,63	184	5,43	207	0,09
116	3,02	139	0,52	162	0,45	185	6,94	208	0,1
117	1,28	140	0,64	163	2,60	186	4,74	209	0,03
118	1,09	141	2,38	164	3,20	187	1,82	210	0,04
119	0,62	142	3,06	165	1,65	188	0,43	211	0,03
120	2,28	143	1,43	166	1,27	189	7,97	212	0,035
121	1,97	144	1,09	167	0,52	190	18,3 ± 2,6	213	0,02
122	0,89	145	0,35	168	0,19	191	2,81	214	0,05
123	0,98	146	0,10	169	1,26	192	3,55	215	0,03

Gebinde	38 g Pu 40 42								
C 216	0,04	C 241	0,46	C 266	0,31	C 291	2,83	C 316	1,09
217	0,02	242	0,54	267	1,31	292	15,9	317	4,62
218	0,03	243	0,72	268	4,38	293	5,09	318	2,30
219	0,02	244	8,37	269	4,65	294	5,87	319	1,15
220	0,05	245	1,80	270	1,53	295	9,45	320	8,8
221	0,02	246	0,5	271	3,25	296	3,06	321	0,94
222	0,01	247	1,78	272	1,53	297	0,60	322	6,21
223	0,01	248	2,88 ± 0,6	273	8,74	298	0,85	323	0,76
224-1	0,025	249	1,13	274	0,48	299	3,65	324	0,40
224-2	0,025	250	1,91	275	0,14	300	11,2	325	21,2+2,2
226	0,02	251	6,15 ± 0,4	276	0,27	301	5,98	326	12,1
227	0,01	252	1,17	277	0,62	302	6,18	327	2,64
228	0,01	253	3,74	278	0,73	303	3,21	328	2,44
229	0,01	254	0,91 ± 0,1	279	0,95	304	3,36	329	1,0
230	0,006	255	0,48	280	1,47	305	2,46	330	3,6
231	0,003	256	3,28	281	0,48	306	1,56	331	2,1
232	0,024	257	1,25	282	0,65	307	2,56	332	1,56
233	0,01	258	4,34	283	1,33	308	1,17	333	0,56
234	0,005	259	2,0	284	1,76	309	1,9	334	0,85
235	0,01	260	2,15	285	2,2	310	0,98	335	0,55
236	0,005	261	1,78	286	0,76	311	0,84	336	4,12
237	< 0,002	262	0,40	287	0,51	312	2,10	337	0,27
238	0,74	263	0,75	288	0,26	313	3,31		
239	1,05	264	0,42	289	0,55	314	2,57		
240	0,14	265	1,3	290	0,79	315	2,46		

Gesamtmenge Pu 238 + Pu 240 + Pu 242 aller brennbaren Gebinde: (497,3 ± 25) g  
gesamte Pu-Menge : (2636 ± 525) g

Nicht brennbare Gebinde

item No	g	Pu 38 40 42
1001	1,37	
1002/1003	0,155	
W118	0,615	
W123	0,282	
W124	0,223	
W125	0,149	
W126	0,186	
W138	0,23	
W139	0,090	
W141		
W144	14,390 ± 1,7	
W149	0,107	
W150	0,094	
W175	0,395	
W176	0,348	
W187	1,0	
W188	0,093	
W179	< 0,005	
W189	0,275	
W209	1,33	
W210	1,87	
W211	0,75	
W212	0,35	
W235	0,3	
W236	0,16	

1 g Pu 238 + Pu 240 + Pu 242  $\hat{=}$  (5,3 ± 1,1) g Pu<sub>tot</sub>

S = 26,2 g (Pu 238 + 240 + 242)  $\hat{=}$  (139 ± 28,8) g Pu<sub>tot</sub>

i

Noch nicht sortierte Wastegebände

38 Gebinde g Pu 40		38 Gebinde g Pu 40		38 Gebinde g Pu 40		38 Gebinde g Pu 40	
42		42		42		42	
E 182	0,65	L 224	4,9	H 909	26,8	H 1118	26,6+3,5
E 268-2	20,3	B 149	25+8	H 1091	5,0	H 1099-4	0,01
E 269-1	30,1	B 160*	45+20	H 1095	14,8	S35-6	16,4
E 280-2	0,2	P 285	0,25	H 1097	10,8	S 28	4,1
E 281-2	25,8	H 655-2	5,9	H 1098	29,2	S 35-2	5,8
E 283	25,3	H 655-3	9,4	H 1099-1	2,6	S 35-4	18,4+4,5
E 275-2	13,8	H 655-1	33,8	H 1099-2	15,5	H 972-1	13,9
E 291-1	11,7	H 655-4	16,4	H 1099-3	3,9	H 986	4,8
E 291-2	30,9	H 708	3,8	H 1100	22,5	H 972-2	4,7
E 300	7,6	H 695	25,5	H 1101	2,3	H 1114	8,7
E 301-2	41,1	H 692	13,6	H 1104	12,9	H 1117	11,6
E 301-3	4,5	H 721	2,0	H 1105	4,61	H 1121	8,9
E 303	0,42	H 830	14,6	H 1106	8,6	S 35-5	16,1
E 279	1,85	H 845	11,3	H 1108	10,65	Summe	907
E 305	13,5	H 889	3,4	H 973	12,4		
E 306	3,7	H 888	4,0	H 989	10,1		
E 284-2	3,0	H 904	8,5	H 1092	2,6	B 182	0,65
E 307	4,4	H 918	2,6	H 1111	33,2+7,4	P 404	0,1
E 308	10,8	H 930	1,6	H 1113-1	9,4	P 808	< 0,05
E 426	7,1	H 959	6,9	H 1113-2	0,03		
S 2	4,6	H 971	3,4	H 1113-3	2,4		
S 28	4,1	H 972-1	13,9	H 1114	8,7		

\*Hoher Multiplikationseffekt

Gesamtmenge an Pu:

$$Pu_{tot} = (4807 \pm 1067) \text{ g}$$

Tabelle 13 Resultate für verschiedene Anordnungen. Demonstration des Multiplikationseffektes

Gebinde	Analysevol. mit Cd-Abschirmung					Analysevol. ohne Cd-Abschirmung				
	ZR <sub>tot</sub> (c/sec)	ZR <sub>cc</sub>	ZR <sub>cc</sub> <sup>K</sup>	ZR <sub>cc</sub> <sup>W</sup>	g Pu38+40+42	ZR <sub>tot</sub>	ZR <sub>cc</sub>	ZR <sub>cc</sub> <sup>K</sup>	ZR <sub>cc</sub> <sup>W</sup>	g Pu38+40+42
C 172	10100	214	220	217	12,9	11285	242	251	225	12,2
C 173	4740	121	121	121	7,0	5344	135	135	132	7,0
C 182	17140	259	295	289	17,5	19980	370	425	352	19,1
C 183	6575	96,5	96,5	96,5	5,6	7225	107	108	108	5,7
C 185	9880	111,5	115	115	6,7	10795	125	130	130	6,9
C 326	13943	198	212	207	12,1	15820	228	250	225	12,4
C 300	18920	170	192	190	11,2	22410	215	253	225	12,2
C 182+183						26710	484	585	475	25,6
PuI+II+III	9910	238	245	242	13,7	10820	281	293	263	13,7

ZR<sub>cc</sub>: Meßwert Koinzidenzzählrate

ZR<sub>cc</sub><sup>K</sup>: Totzeitkorrigierter Meßwert

ZR<sub>cc</sub><sup>W</sup>: Totzeit- und Multiplikationskorrigierter Wert der Koinzidenzzählrate

Tabelle 14 Vergleich der Pu-Bestimmung an umsortierten Wastegebinden mit hohen Pu-Gehalten.

Referenzanordnung: Analysevolumen mit Cd-Abschirmung und  $q_{\alpha n}/q_{sp} = 2,9$

Ausgeführte Korrekturen: Totzeit, Multiplikation incl. ( $\alpha n$ ) Neutronenemission

Gebinde	Referenzanordnung					nur äußerer Detektorring				$ZR_{cc}^W/ZR_{cc}^{Wa}$
	$ZR_{tot}$	$ZR_{cc}$	$ZR_{cc}^K$	$ZR_{cc}^W$	g Pu38+40+42	$ZR_{cc}^q$	$ZR_{cc}^{K,q}$	$ZR_{cc}^{Wa}$	g Pu38+40+42	
PuI+II+III	9910	238	245	242	13,7	32	32	28,8	13,7	8,4
E291-1	21455	217±5	253	243	14,3	29,5±3,5	29,5	24,6	11,7	9,8
E291-2	36620	645±35	812	745	43,9	87±15	92,2	64,9	30,9	11,5
E275-2	49740	298±55	382	344	20,1	38,9±8,5	43,6	29,1	13,8	11,8
E426	24650	111±22	134	127	7,5	19±6	19,4	14,9	7,1	8,5
S35-4	32580	445±22	556	519	30,6	46,9	48,8	38,7	18,4	13,4
S35-5	28490	305±15	372	347	20,4	41,9±9	42,3	33,8	16,1	10,2
H655-4	28540	382±28	466	435	25,6	44,1±11	45	34,6	16,4	12,5

Mittelwert 10,7±2,0

$ZR_{tot}$  totale Zählrate

$ZR_{cc}$ ,  $ZR_{cc}^a$  gemessene Koinzidenzzählraten

$ZR_{cc}^K$ ,  $ZR_{cc}^{K,a}$  totzeitkorrigierte Koinzidenzzählraten

$ZR_{cc}^W$ ,  $ZR_{cc}^{W,a}$  multiplikationskorrigierte Koinzidenzzählraten, Korrektur ( $\alpha n$ ) enthalten

Tabelle 15 Multiplikationseffekt bei hohen Pu-Gehalten in den Gebinden.  
Anordnung mit Cd-Abschirmung

Gebinde	ZR <sub>tot</sub>	ZR <sub>cc</sub>	ZR <sub>cc</sub> <sup>K</sup>	ZR <sub>cc</sub> <sup>W</sup>	<sup>38</sup> g Pu40 42
C 172	10093	214	220	217	12,9
C 173	4740	121	121	121	7,0
C 172 + C 173*	14420	331	364	350	
PuI + PuII + PuIII	9910	238	245	242	13,7
S 35-6	23505	248	295	278	16,4
PuI + II + III + S35-6 Mitte unten	33850	484	610	554	
E 301-2	12610	691	739	697	41,1
H 845	7410	196	196	192	11,3
H845 + E 301-2 Mitte unten	20540	908	1053	975	

\*Gebinde zusammen in 28-l-Blechfaß in Faßmitte

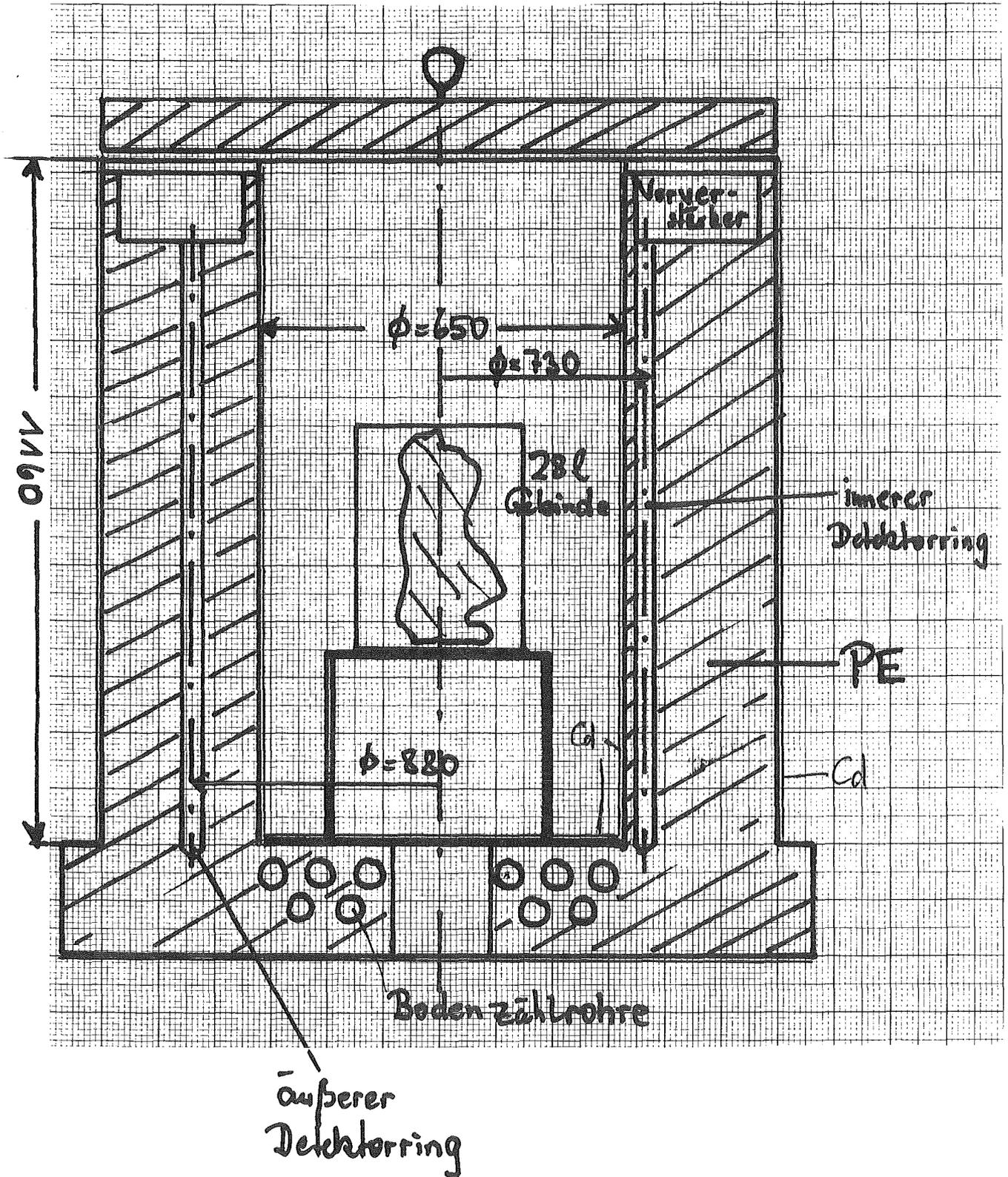


Abb.1: Fassmessanlage schematisch

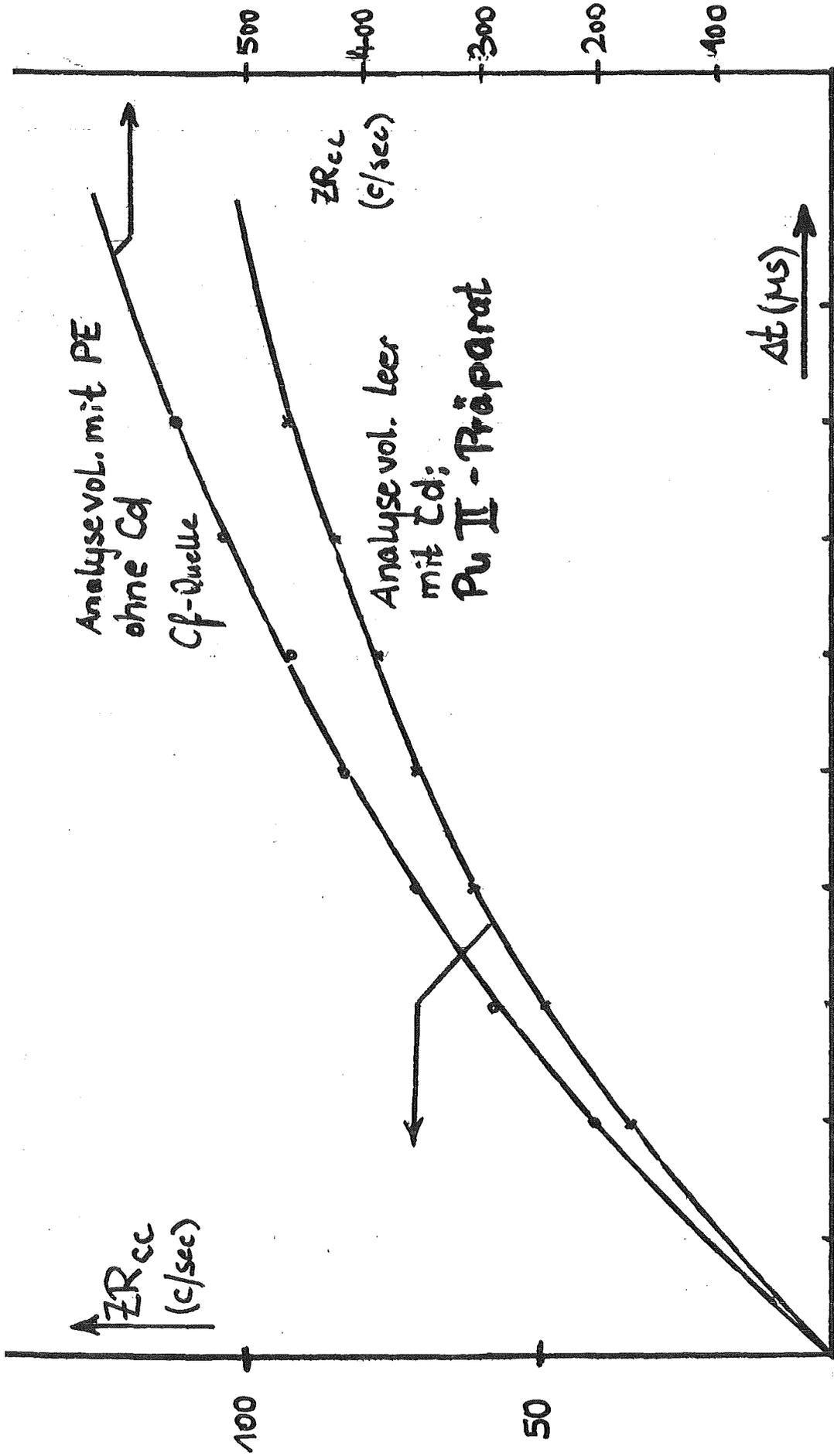


Abb. 2: Abhängigkeit der Koinzidenz Zählrate  $ZR_{cc}$  vom Koinzidenzzeitintervall  $\Delta t$

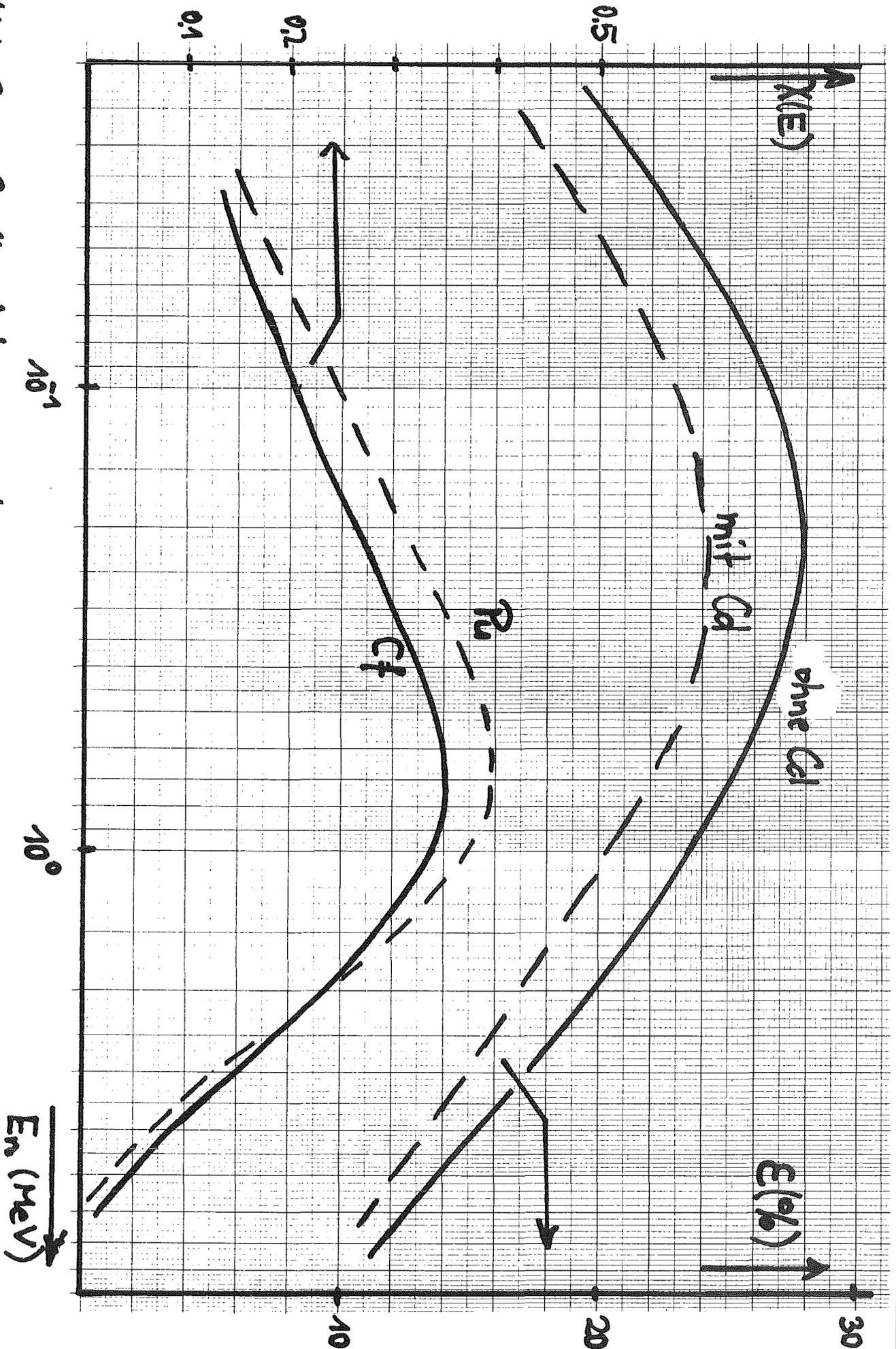


Abb. 30: Spaltsperrstrom und energieabhängige Detektorempfindlichkeit

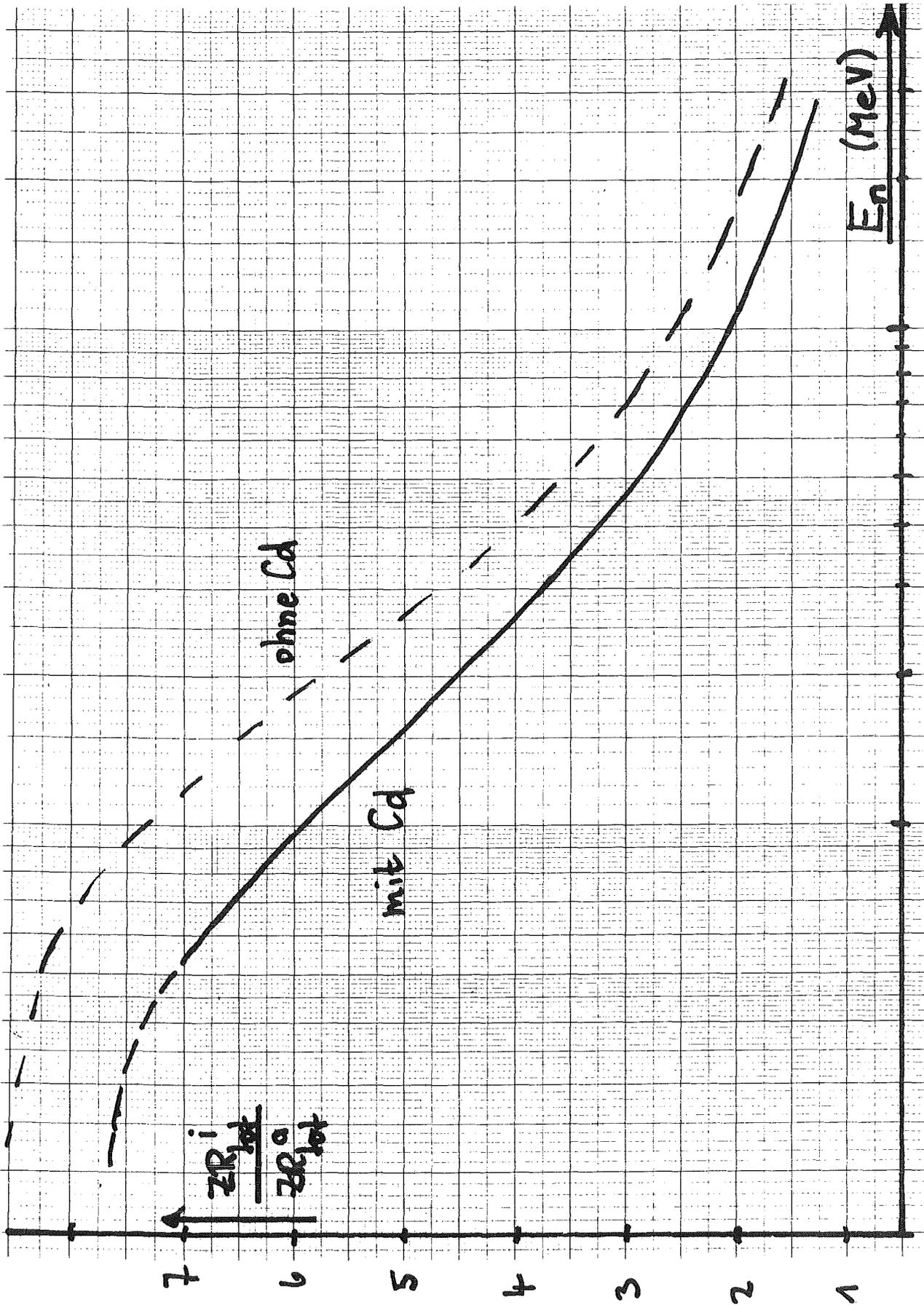


Abb. 3b : Energieabhängigkeit des Verhältnisses  $\frac{k_{tot}^i}{k_{tot}^a}$

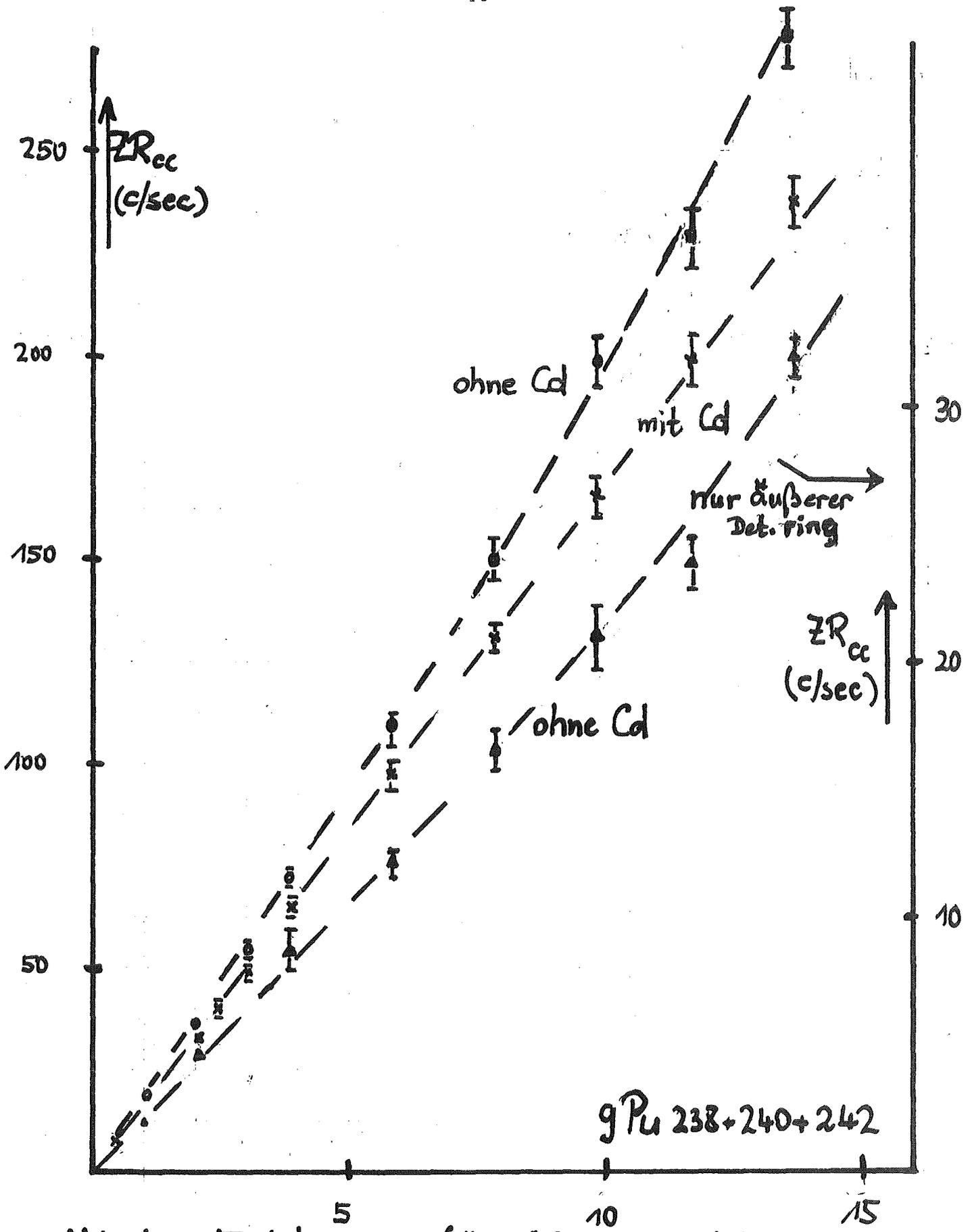


Abb. 4: Eichkurven für kleine Abfallgebinde

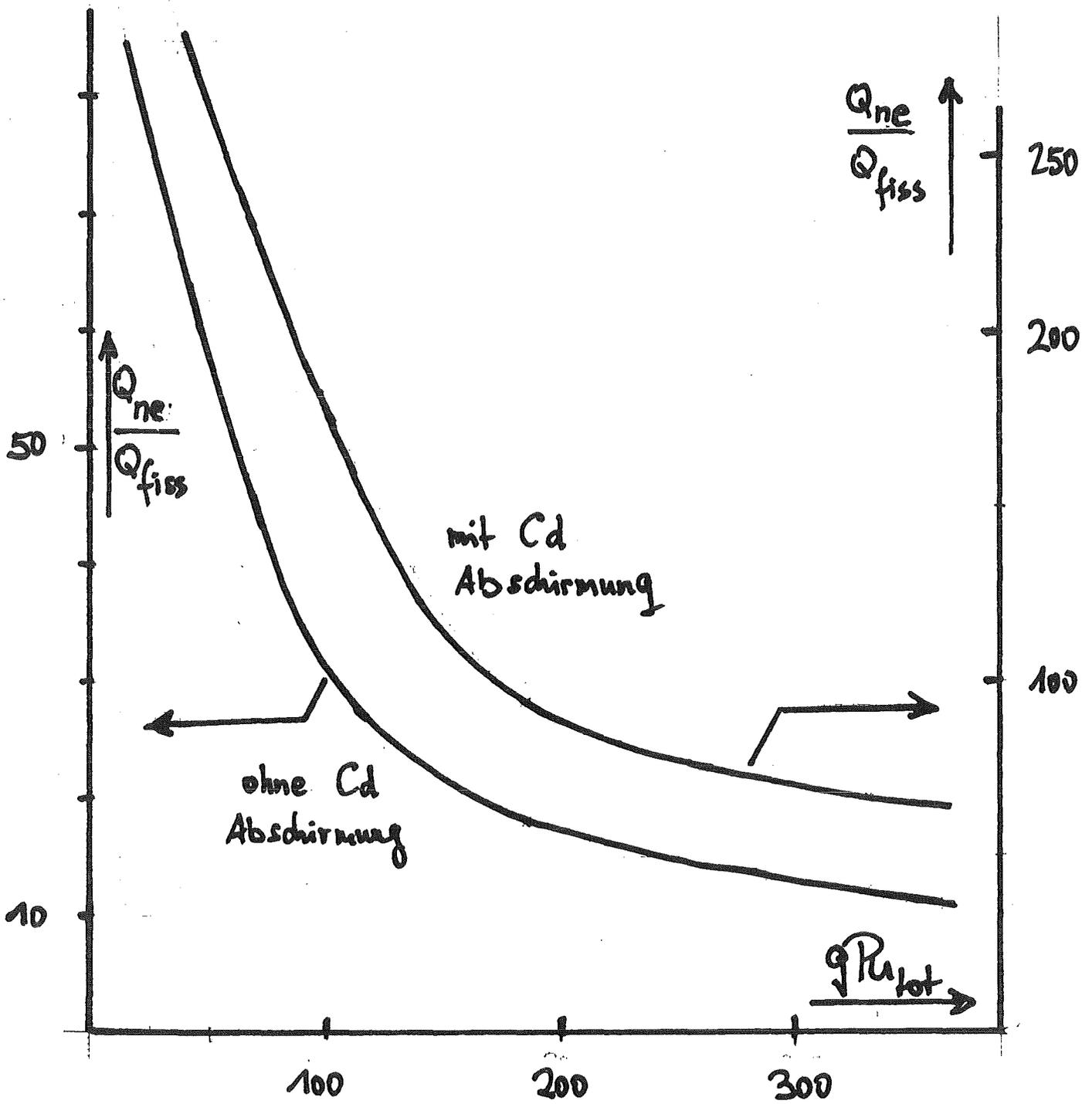


Abb.5: Quellmultiplikation für 28l Gebinde im Zentrum des Analyse volumens

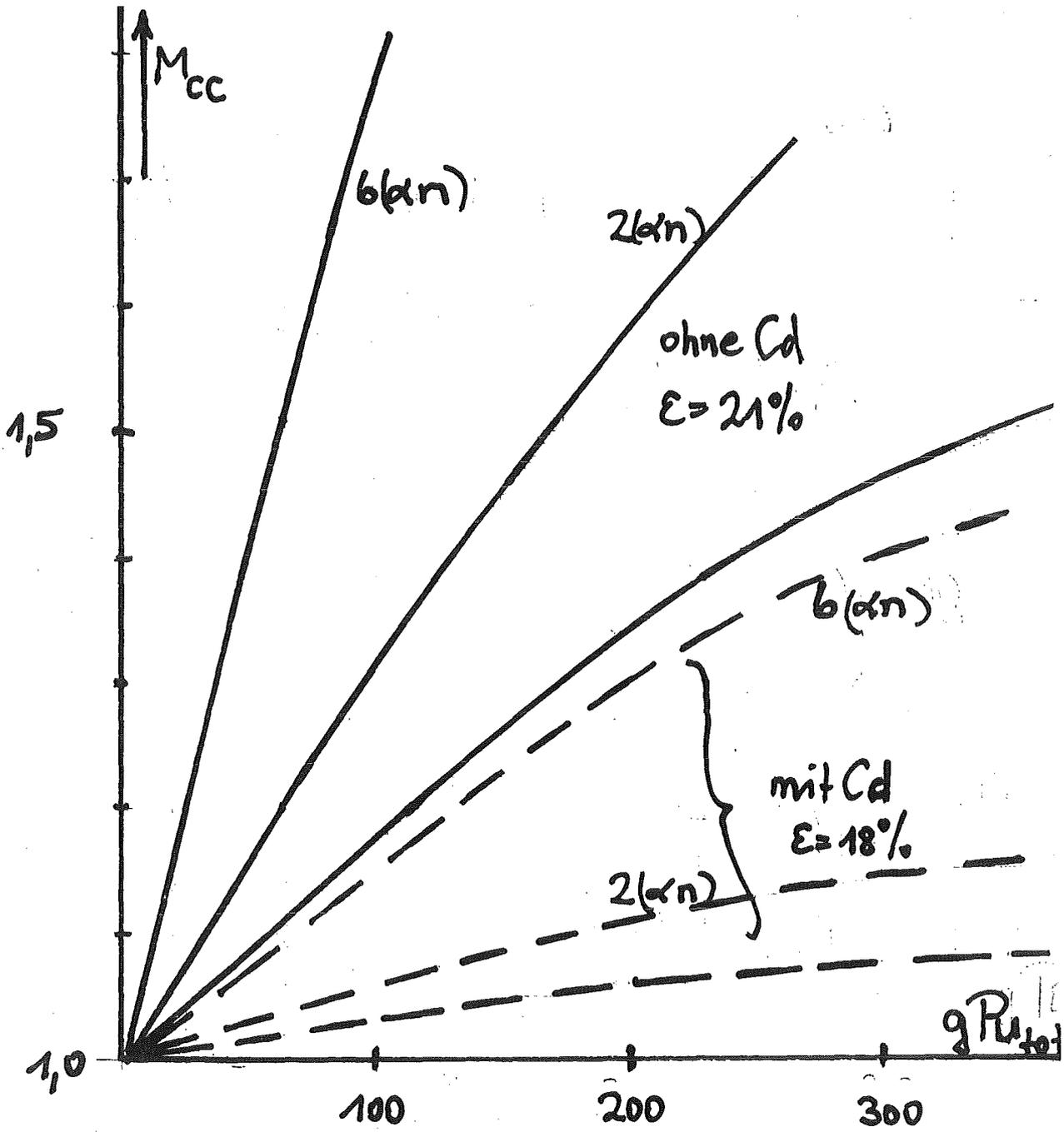


Abb. 6: Änderung der Koinzidenzzählrate durch Multiplikationseffekte für verschiedene  $(\alpha n)$  Neutronenemissionen. Referenzfall:  $q_{\alpha n}/q_{sp} = 2,9$

— Analysevolumen ohne Cd Abschirmung  
- - - " " mit " "

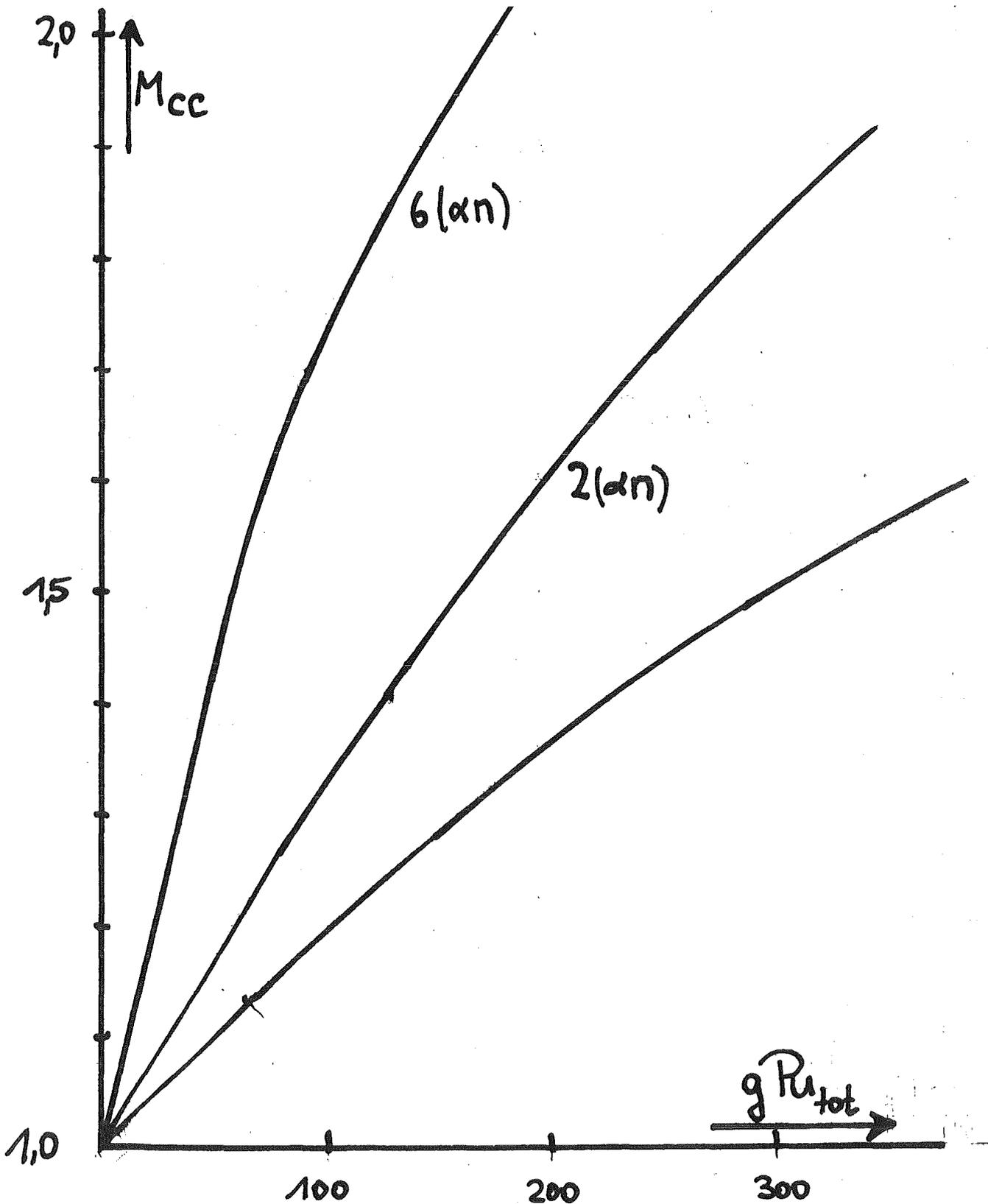


Abb. 7 : Multiplikationseffekt für Koinzidenzzählrate für verschiedene  $(\alpha n)$  Neutronenemissionen für Detektor empfindlichkeit  $\epsilon = 6,5\%$ . Referenzfall:  $q_{\alpha n}/q_{sp} = 2,9$

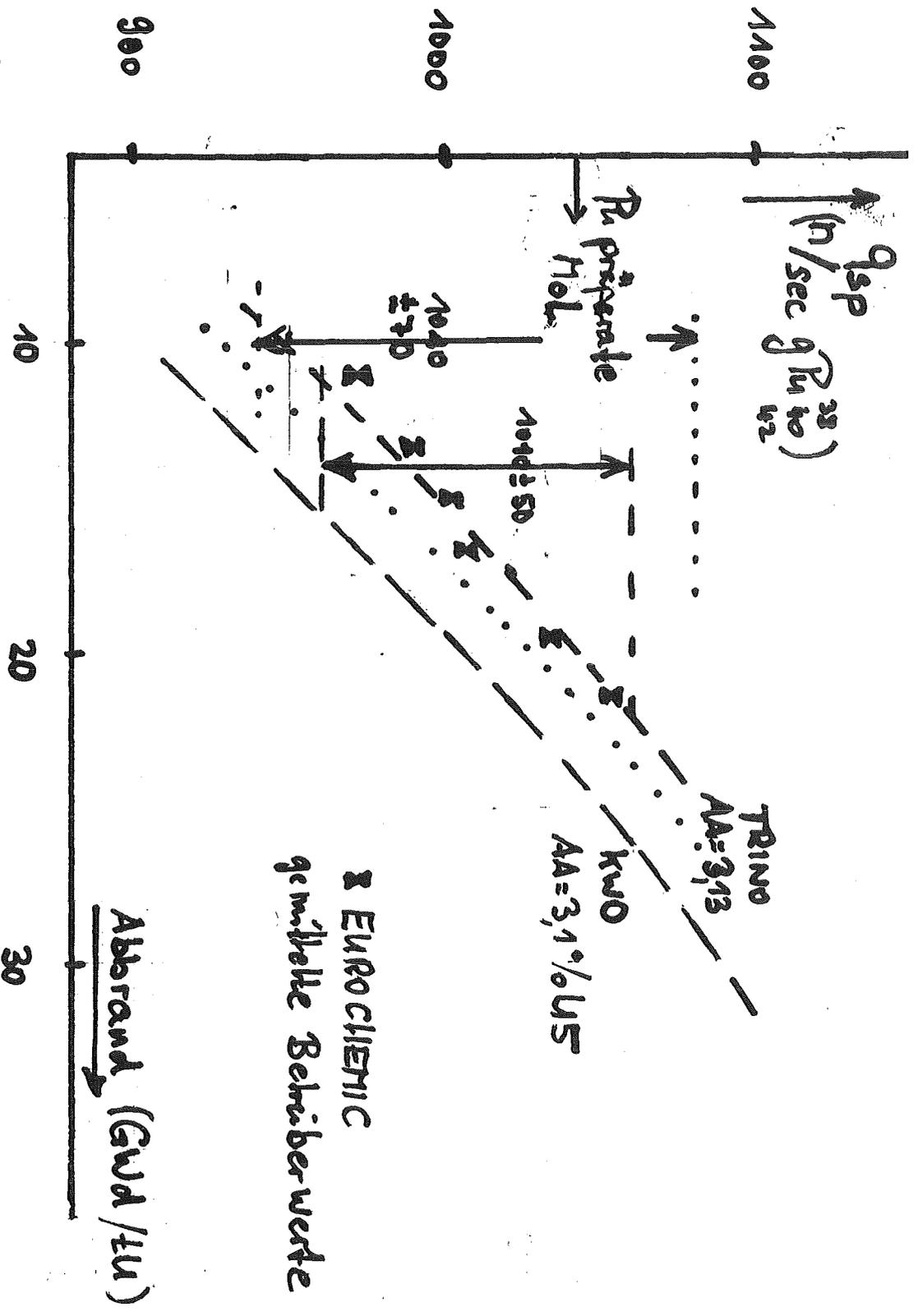


Abb. 8: Abbrandabhängige Neutronenemission von LWR  
Reinstoff

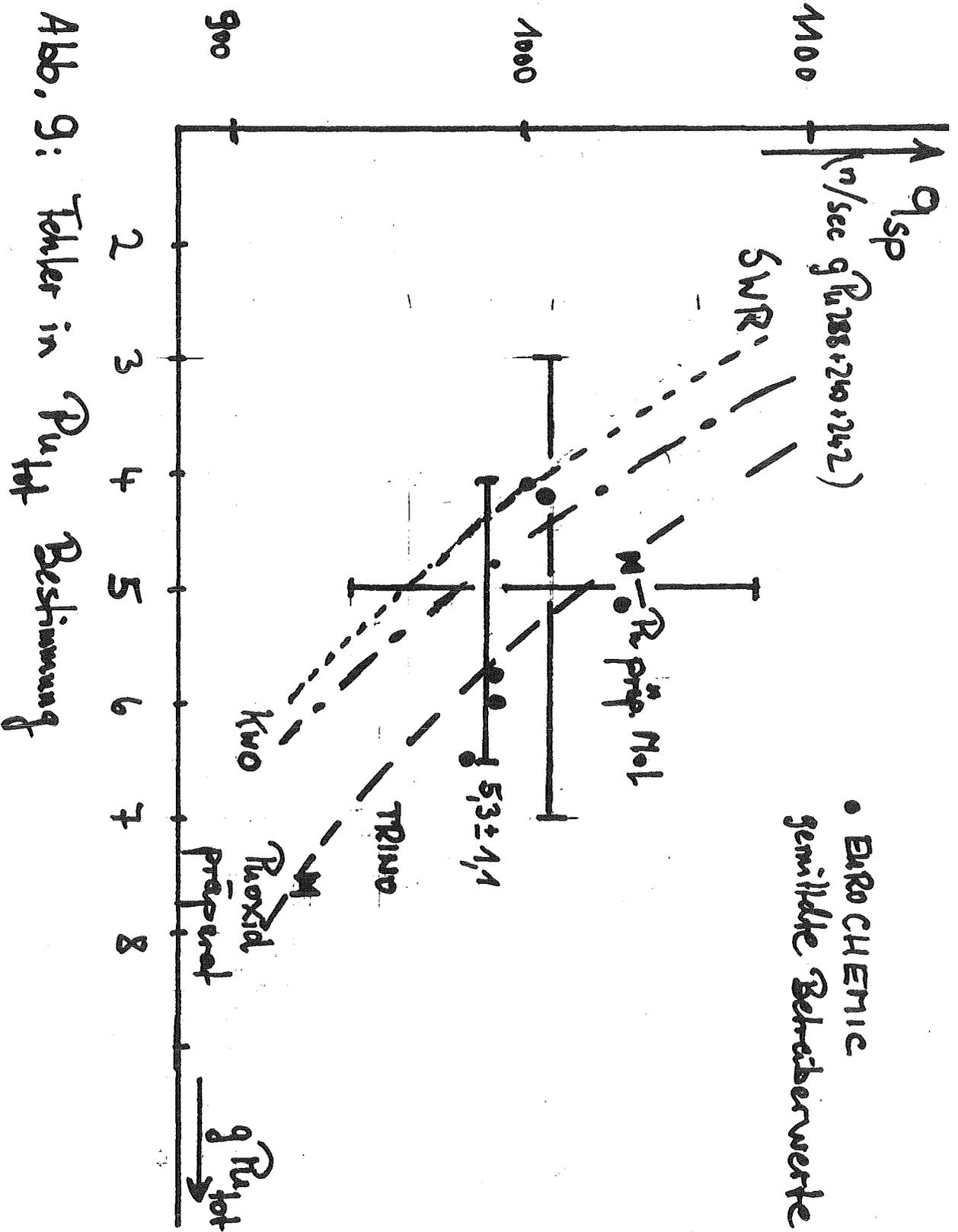


Abb. 9: Fehler in  $Pu_{tot}$  Bestimmung

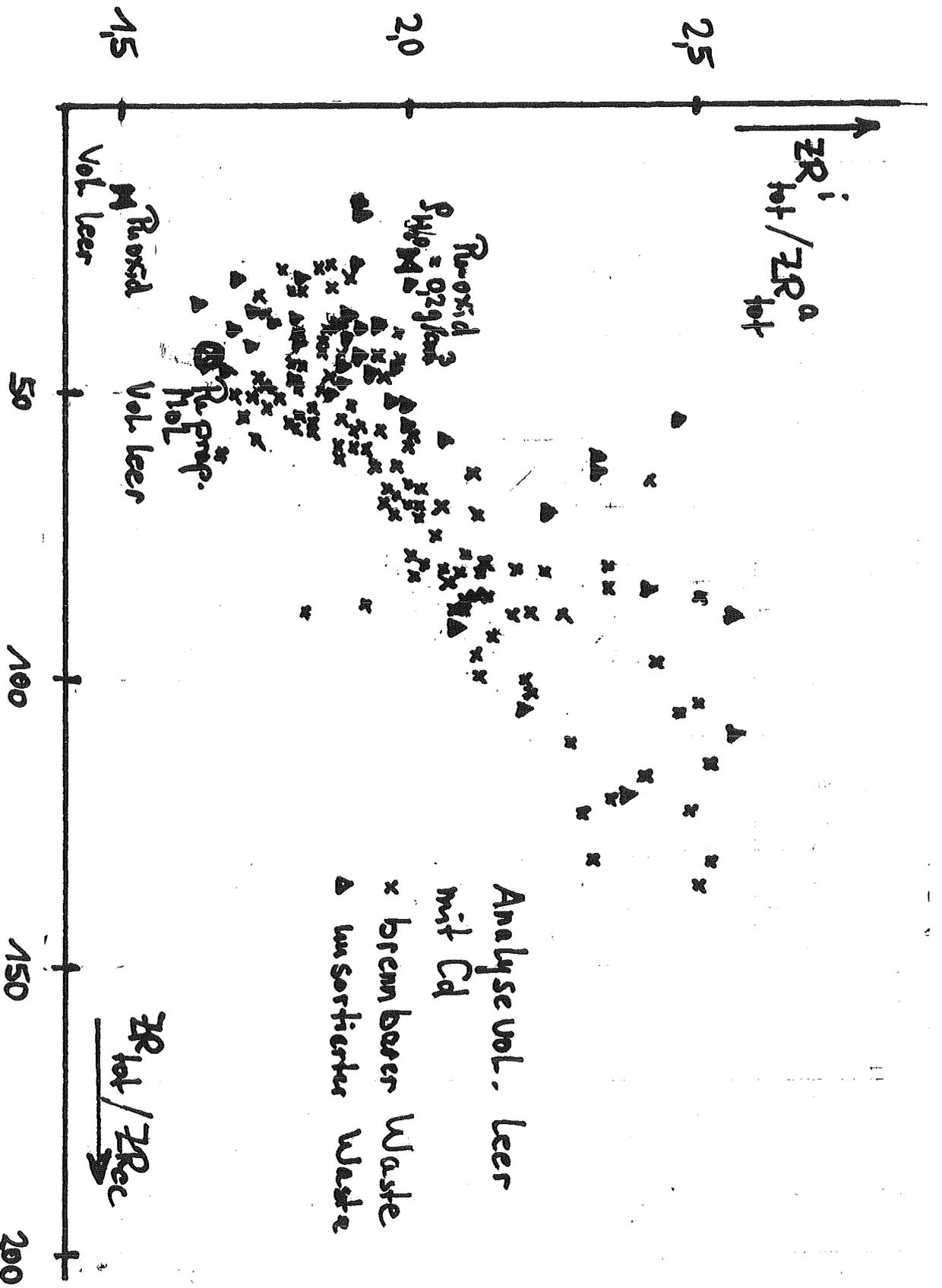


Abb. 10: Variationsbereich des Zählratenverhältnisses  $ZR^i / ZR^a$  ohne Matrixeffekte



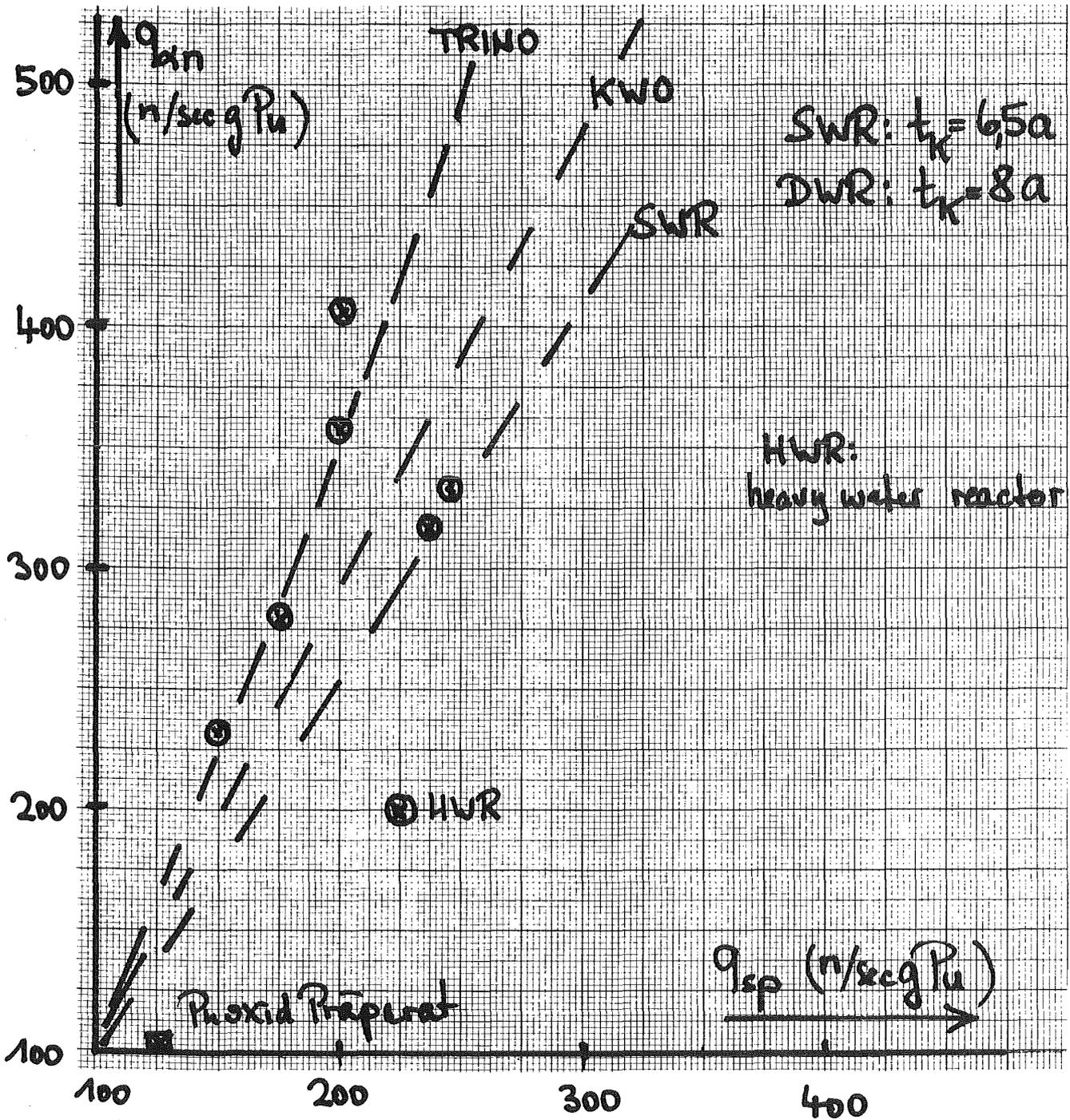


Abb. 12: Neutronen emission für LWR-Puoxid  
Kühlzeit  $t_k$  für SWR 6,5a, für DWR 8a  
⊙ Eurochemic Betreiberwerte

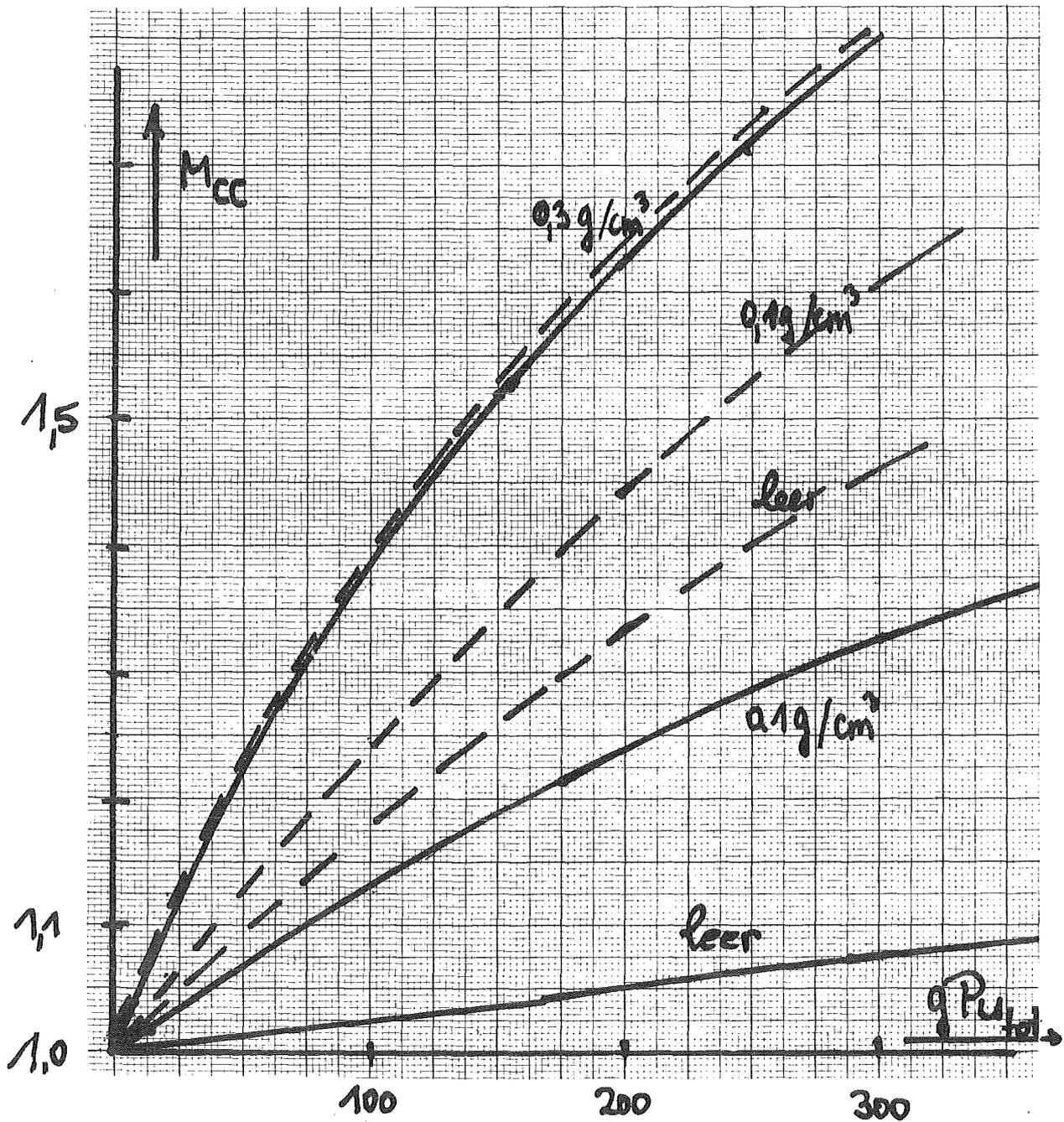


Abb. 13 : Multiplikation für 30 l Gebinde bei unterschiedlicher Matrixzusammensetzung des umgebenden Analysevolumen.  $q_{an}/q_{sp} = 2.9$ .

- mit Cd
- - - ohne Cd

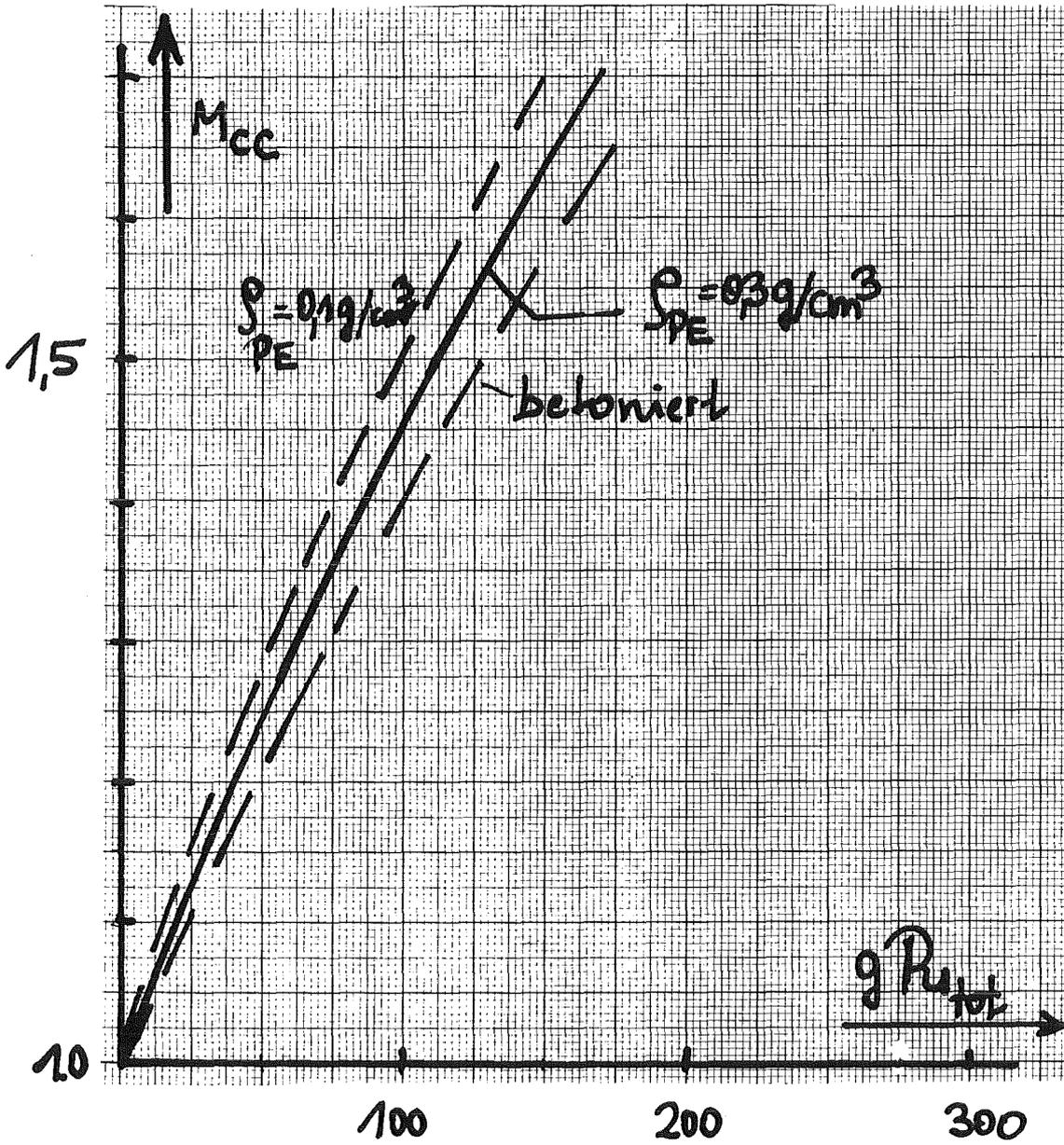


Abb. 14: Multiplikation für 200 l Gebinde bei unterschiedlicher Matrixzusammensetzung  $\rho_{kn} / \rho_{sp} = 2,9$ .

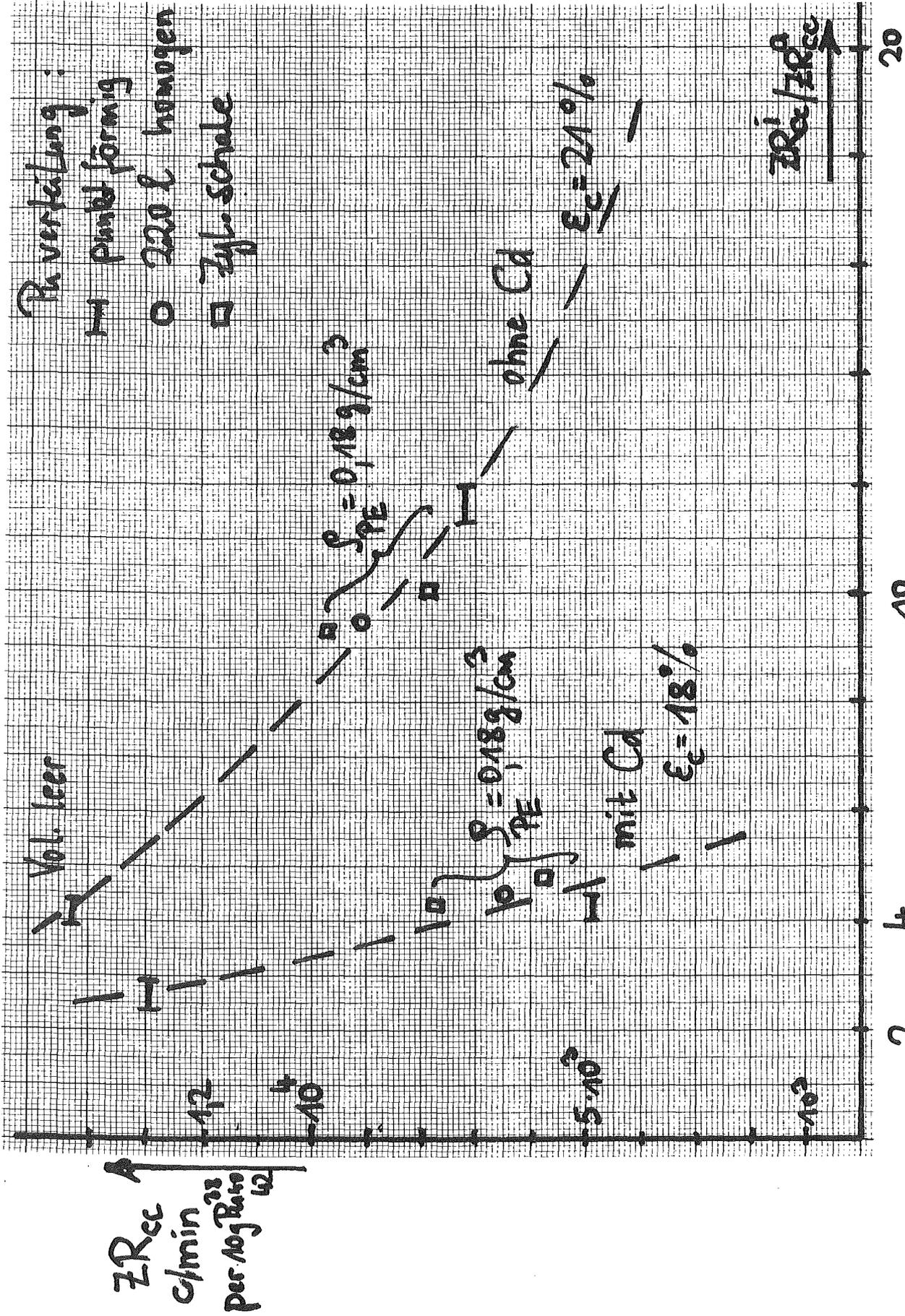


Abb. 15: Beeinflussung der Koinkidenz Zählrate  $ZR_{cc}$  durch Matrixeffekte und Korrekturen über  $ZR_{cc}^i / ZR_{cc}^a$