

KfK 2681  
Oktober 1978

# **Projekt Spaltstoffflußkontrolle Jahresbericht 1977**

Herausgeber: H. R. Mache  
Projekt Spaltstoffflußkontrolle

**Kernforschungszentrum Karlsruhe**

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

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE GMBH

ISSN 0303-4003  
ISSN 0340-4412

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

Projekt Spaltstoffflußkontrolle

KfK 2681

Projekt Spaltstoffflußkontrolle

Jahresbericht 1977

Herausgeber: H.-R. Mache

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH, Karlsruhe



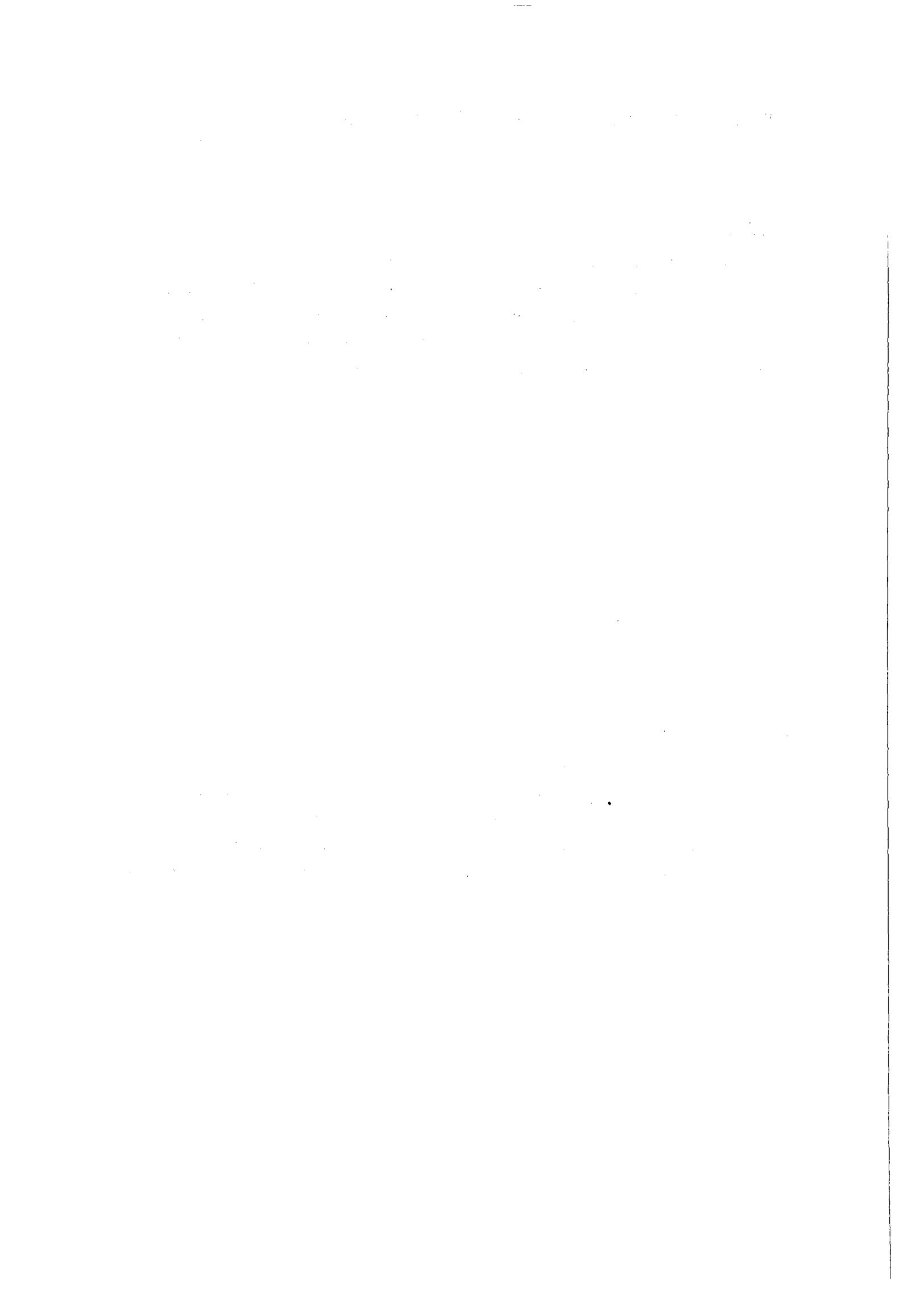
## Annual Report of the Nuclear Safeguards Project 1977

### Summary

The present report describes the major activities carried out in 1977 in the framework of the Nuclear Safeguards Project by the institutes of the Kernforschungszentrum Karlsruhe, Kernforschungsanlage Jülich, the European Institute of Trans-uranium Elements and some industrial firms.

### Zusammenfassung

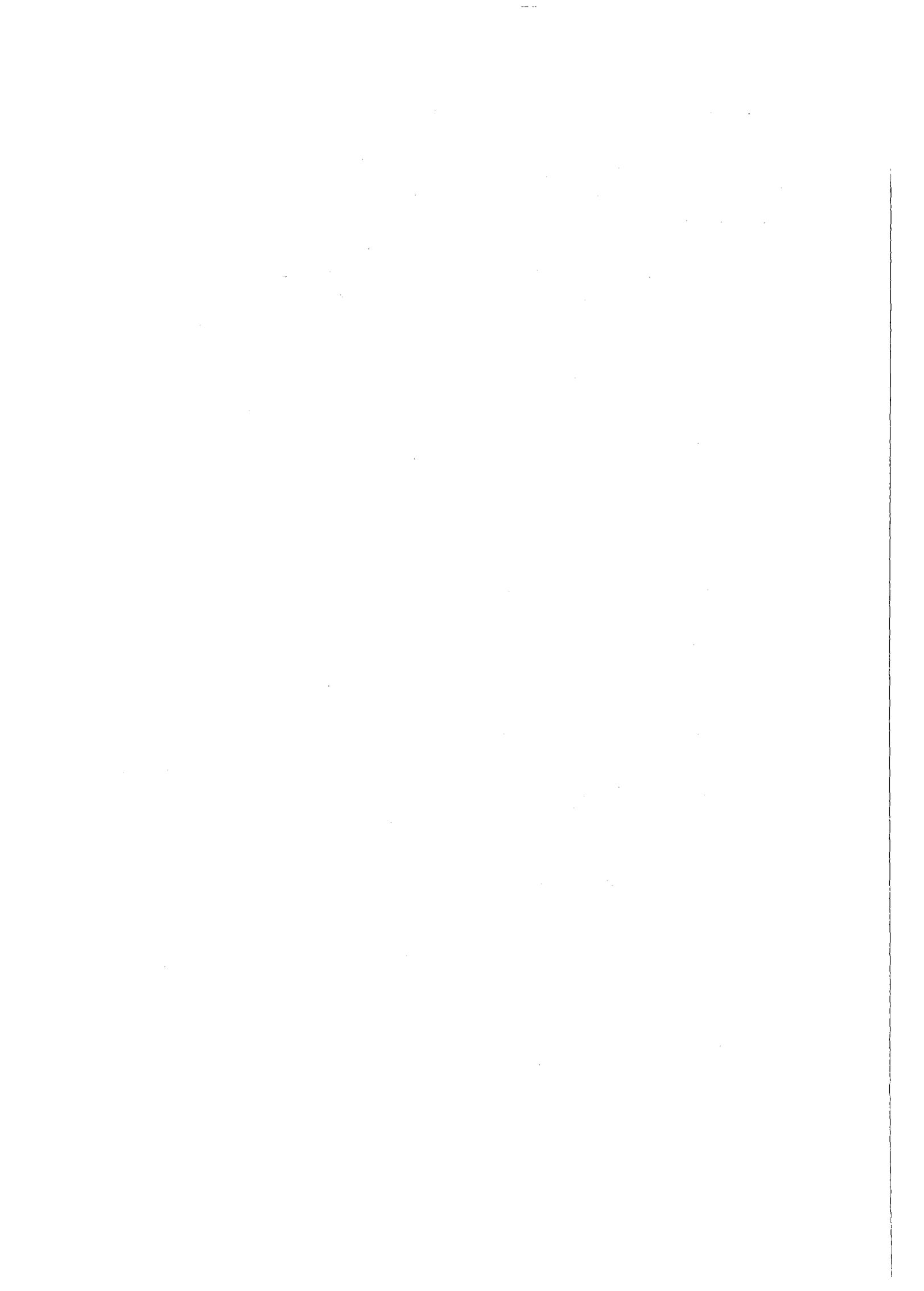
Der vorliegende Bericht beschreibt die Arbeiten am Projekt Spaltstoffflußkontrolle, die von den an diesem Projekt beteiligten Instituten des Kernforschungszentrums Karlsruhe, der Kernforschungsanlage Jülich, dem Europäischen Institut für Transurane und einigen Industriefirmen im wesentlichen im Jahre 1977 durchgeführt wurden.



Dieser Bericht enthält Beiträge von

R. Avenhaus<sup>1)</sup>, W. Bahm<sup>2)</sup>, H. Bernhardt<sup>3)</sup>, W. Beyrich<sup>2)</sup>,  
U. Bicking<sup>2)</sup>, G. Bork<sup>4)</sup>, B. Brandalise<sup>8)</sup>, R. Braun<sup>3)</sup>,  
Chr. Brückner<sup>4)</sup>, R. Buttler<sup>7)</sup>, P.P. Chakraborty<sup>9)</sup>, S.J.  
Choithramani<sup>9)</sup>, W. Coerdts<sup>3)</sup>, H. Deutsch<sup>3)</sup>, H. Eberle<sup>6)</sup>,  
H. Engelhardt<sup>7)</sup>, W. Eyrich<sup>5)</sup>, S. Flach<sup>3)</sup>, H. Frick<sup>1)</sup>,  
E. Gantner<sup>3)</sup>, W. Golly<sup>2)</sup>, D. Gupta<sup>2)</sup>, W. Hagenberg<sup>11)</sup>,  
M.R. Iyer<sup>9)</sup>, V. Jarsch<sup>1)</sup>, R. Kerpe<sup>1)</sup>, L. Koch<sup>8)</sup>, W. König<sup>3)</sup>,  
M. Kühle<sup>5)</sup>, E. Mainka<sup>3)</sup>, M. Marzo<sup>10)</sup>, P. Matussek<sup>6)</sup>,  
I. Michel-Piper<sup>6)</sup>, H.G. Müller<sup>3)</sup>, J. Neuber<sup>3)</sup>, S. Onnen<sup>1)</sup>,  
H. Ottmar<sup>6)</sup>, K.H. Pfeffer<sup>4)</sup>, F.-J. Polster<sup>1)</sup>, V. Raschendorfer<sup>11)</sup>,  
H. Ruf<sup>3)</sup>, W. Rust<sup>2)</sup>, S. Schoof<sup>3)</sup>, G. Spannagel<sup>1)</sup>, G. Stein<sup>7)</sup>,  
G. Tretter<sup>2)</sup>, F. Voß<sup>2)</sup>, J. Weppner<sup>2)</sup>, H.W. Wiese<sup>5)</sup>, J. Voit<sup>1)</sup>.

- 1) Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH, Institut für Datenverarbeitung in der Technik
- 2) Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH, Entwicklungsgruppe Kernmaterialsicherung
- 3) Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH, Institut für Radiochemie
- 4) Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH, Abteilung Sicherheit
- 5) Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH, Institut für Neutronenphysik und Reaktortechnik
- 6) Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH, Institut für Angewandte Kernphysik
- 7) Kernforschungsanlage Jülich
- 8) Europäisches Institut für Transurane
- 9) delegiert vom Bhabha Atomic Research Centre, Trombay, Indien
- 10) delegiert vom Instituto de Energia Atomica, Sao Paulo, Brasilien
- 11) Firma ALKEM, Wolfgang b. Hanau



## Inhaltsübersicht

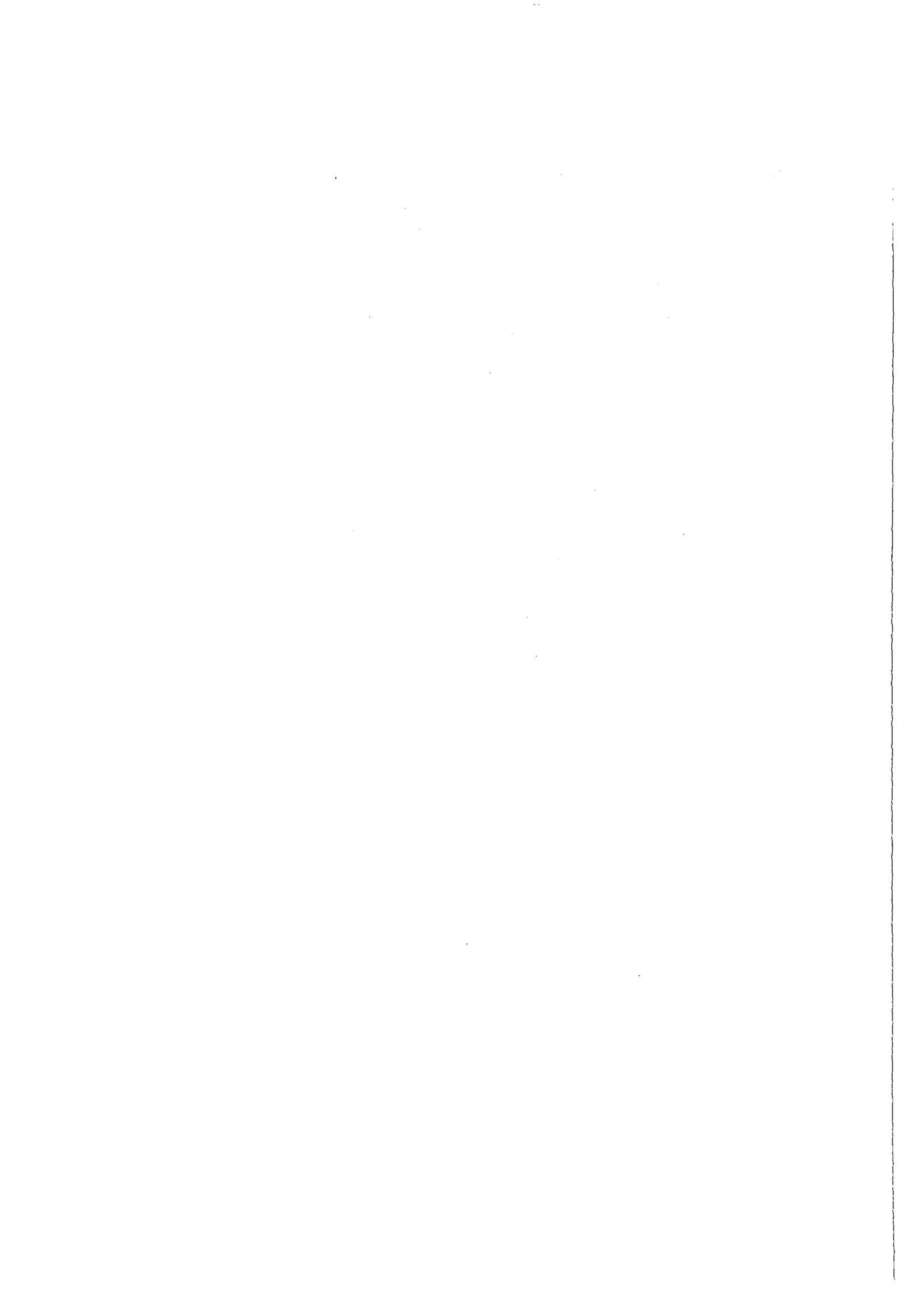
	<u>Seite</u>
Einführung	
1. <u>Entwicklung von Konzepten und Systemen zur Kernmaterialüberwachung (Vorhaben 07.01.02)</u>	1-1
1.1 Überwachungskonzepte für typische kerntechnische Anlagen	1-1
1.1.1 Einleitung	1-1
1.1.2 Bestandsaufnahme zur Spaltstoffflußkontrolle in bestehenden kerntechnischen Anlagen in der Bundesrepublik	1-1
1.1.3 Planung einer Neuanlage zur Verarbeitung von hochangereichertem Uran	1-3
1.1.4 Überwachungskonzept für eine Anreicherungsanlage nach dem Trenndüsenverfahren	1-12
1.1.5 Materialbilanzierung und Datenverifikation im KfK	1-17
1.2 Theoretische Arbeiten zur Isotopenkorrelationstechnik	1-21
1.3 Systemanalytische Untersuchungen	1-23

	<u>Seite</u>	
1.4	DV-Systeme für die Spaltstofffluß- kontrolle	1-33
1.4.1	Einführung	1-33
1.4.2	Das DV-System für die Kernmaterialüber- wachung im KfK	1-34
1.4.3	Das Datenverwaltungssystem	1-37
1.4.4	Der prinzipielle Aufbau des Dialogteils	1-40
1.4.5	Systemanalyse eines DV-Systems für die Spaltstoffflußkontrolle bei der Firma Reaktor-Brennelement Union GmbH	1-41
1.5	Literatur zu Kapitel 1	1-43
2.	<u>Implementierung von Überwachungssystemen</u> (Vorhaben 07.01.03)	2-1
2.1	Einführung der EURATOM/IAEO-Kernmaterial- überwachung in kerntechnischen Anlagen der Bundesrepublik	2-1
2.1.1	Übersicht über die Arbeiten	2-1
2.1.2	Zur Abschätzung der Ungenauigkeit einer Kernmaterialbilanz in einer Mischoxid- Fabrikationsanlage, untersucht am Beispiel der Fa. ALKEM	2-2

		<u>Seite</u>
2.2	Implementierung von direkten Methoden	2-17
2.2.1	Automatisierung der Uran- und Plutonium-Konzentrationsbestimmung durch Röntgenfluoreszenzanalyse	2-17
2.3	Implementierung von zerstörungsfreien Methoden	2-21
2.3.1	In-line-Meßsystem zur Bestimmung der $^{235}\text{U}$ -Anreicherung in einer LWR-Brennelement-Fabrikationsanlage	2-21
2.3.2	Eichstandards für gammaspektrometrische $^{235}\text{U}$ -Anreicherungsmessung	2-22
2.3.3	Anlage zur Bestimmung des Plutoniumgehaltes von schwach- und mittelaktiven Abfällen in 200-l-Fässern durch Messung der Spaltneutronen	2-24
2.4	Kernmaterial-Überwachungssystem für Forschungszentren	2-25
2.5	Kontrollsystem für Kugelhaufenreaktoren	2-28
2.6	Literaturverzeichnis zu Kapitel 2	2-30

	<u>Seite</u>
3. <u>Entwicklung und Erprobung von Verfahren und</u> <u>Komponenten im Zusammenhang mit der Kern-</u> <u>materialüberwachung</u> (Vorhaben 07.01.04)	3-1
3.1     Direkte Methoden	3-1
3.1.1   Einführung	3-1
3.1.2   Serviceleistungen und begleitende Arbeiten zur Automatisierung direkter Verfahren	3-1
3.1.3   Entwicklung von Analysenverfahren	3-2
3.1.3.1 On-line-Datenverarbeitung der automatischen Isotopenverdünnungsanalyse	3-2
3.1.3.2 Isotopenkorrelationen beobachtet für einen Pu-haltigen Brennstoff des SWR GARIGLIANO	3-9
3.1.3.3 Arbeiten zur naßchemischen Plutonium- konzentrationsbestimmung in festem Abfall	3-12
3.1.3.4 Arbeiten zur massenspektroskopischen Mg- Isotopenverdünnungsanalyse	3-15
3.2     Zerstörungsfreie Methoden	3-16
3.2.1   Pu/U-Verhältnisbestimmung in Mischver- bindungen von Uran und Plutonium	3-16
3.2.2   Gammaskopimetrische Plutoniumisotopen- analyse	3-22
3.2.3   Gammaabsorptiometrie zur Bestimmung der Konzentration von Aktiniden in Lösungen	3-27

	<u>Seite</u>	
3.2.4	Meßgerät zur Bestimmung des Plutonium- gehaltes in kleinen Abfallbehältern durch Messung der Gammaeigenstrahlung	3-31
3.2.5	Entwicklung eines rechnergesteuerten On-line- Datenaufnahme- und -auswertungssystems	3-33
3.3	Interlaboratoriumstests	3-36
3.3.1	Interlaboratoriumstest "AS-76"	3-36
3.3.2	Interlaboratoriumstest "IDA-78"	3-36
3.3.3	Untersuchung über Interlabor-Differenzen bei der UF <sub>6</sub> -Analyse	3-41
3.4	Literaturverzeichnis zu Kapitel 3	3-46
 ANHANG: Abkürzungsverzeichnis		



## Einführung

D. Gupta

Im Jahresbericht 1976 des Projektes Spaltstoffflußkontrolle (KFK 2465) wurden die verschiedenen Arbeitsbereiche des Projektes unter Berücksichtigung der geänderten Situation zur internationalen Kernmaterialüberwachung umrissen und ein Überblick über die Arbeiten für das Jahr 1977 gegeben. Die 1977 durchgeführten Arbeiten entsprechen weitgehend dieser Vorausschau.

Die Beiträge in diesem Bericht sind, im Gegensatz zu früheren Berichten, entsprechend den Forschungsvorhaben und Zielvereinbarungen zusammengefaßt, um eine leichte Zuordnung zu ermöglichen.

Kapitel 1 enthält alle Themen zu Forschungsvorhaben "Entwicklung von Konzepten und Systemen zur Kernmaterialüberwachung" (Vorhaben 07.01.02). Die Arbeiten zur Bestandsaufnahme der überwachungsrelevanten Meßmöglichkeiten, Containment- und Surveillancemaßnahmen, sowie anderer Überwachungstätigkeiten in bestehenden kerntechnischen Einrichtungen der Bundesrepublik Deutschland wurden aufgenommen. Bis Ende 1978 werden die Ergebnisse dieser Bestandsaufnahme in Form eines Berichtes vorliegen.

Die Untersuchungen zu Überwachungskonzepten für eine geplante neue Fabrikationsanlage für hochangereichertes Uran (NUKEM) sowie für das Kernforschungszentrum Karlsruhe sind weitgehend abgeschlossen. Entsprechende Untersuchungen für eine Uran-Anreicherungsanlage nach dem Trenndüsen-Verfahren werden voraussichtlich noch einige Jahre dauern. Diese Arbeiten werden in enger Zusammenarbeit mit den verantwortlichen Industriepartnern sowie Vertretern aus Brasilien durchgeführt.

Die systemanalytischen Arbeiten haben einige interessante und wertvolle Ergebnisse geliefert. So konnte z.B. gezeigt werden,

daß die Zusammenfassung von verschiedenen Bereichen einer kerntechnischen Anlage zu einer Materialbilanzzone zu einer größeren Entdeckungswahrscheinlichkeit für die Abzweigung von Kernmaterial führt als die Aufteilung in mehrere Zonen.

Die Arbeiten zur Entwicklung eines rechnergestützten Überwachungssystems für Kernmaterialien im Kernforschungszentrum Karlsruhe (Kapitel 1.4) und in der Kernforschungsanlage Jülich (Kapitel 2.4) zeigen nennenswerte Fortschritte. Die Untersuchungen bezüglich des Kernmaterialflusses und -bestandes im Zusammenhang mit dem DV-System sind abgeschlossen; die eigentliche Systemanalyse wird 1978 vorgenommen.

Kapitel 2 faßt die Arbeiten zu Forschungsvorhaben "Implementierung von Überwachungssystemen" (Vorhaben 07.01.03) zusammen. Die Unterstützungsarbeiten bei der Einführung der IAEA/EURATOM-Kontrolle in den Anlagen ALKEM, KFA, KfK, NUKEM und WAK wurden fortgeführt. Erwähnenswert in diesem Zusammenhang ist die Untersuchung zur erreichbaren Bilanzierungsgenauigkeit in der Firma ALKEM. Die Unsicherheit liegt bei ca. 0,5 % des Durchsatzes, wobei der weitaus größte Anteil aus der Ungenauigkeit der Abfallbestimmung herrührt. Die Arbeiten zur Versiegelung von LWR-Brennelementen sowie zur Kameraüberwachung wurden in das IAEA-Unterstützungsprogramm der Bundesrepublik Deutschland aufgenommen.

Die Arbeiten im Bereich der Implementierung von Meßsystemen wurden intensiv fortgeführt. Die automatische Probenahme-Einrichtung für die Röntgenfluoreszenzanlage in der WAK wurde eingebaut und das Steuerungs- und Auswertesystem für die gesamte Röntgenfluoreszenz-Anlage spezifiziert. Die zeitweise ungeklärte Finanzsituation bei diesem Teilprojekt hat zu einer Zeitverzögerung geführt. Die Arbeiten für die Eichstandards für die U 235-Untersuchungen im Rahmen der ESARDA-Tätigkeiten wurden abgeschlossen.

Für die Implementierung des Überwachungssystems in einem Kugelhaufenreaktor sind die Untersuchungen zu den Bilanzierungs- und Verifikationsmodalitäten weitgehend abgeschlossen. Die Arbeiten zu Containment- und Surveillance-Maßnahmen sind weiterzuführen.

In Kapitel 3 sind alle Arbeiten zum Forschungsvorhaben "Entwicklung und Erprobung von Verfahren und Komponenten in Zusammenhang mit der Kernmaterialüberwachung" (Vorhaben 07.01.04) beschrieben.

Im Zusammenhang mit diesen Arbeitsthemen sind insbesondere die chemischen Service-Analysen hervorzuheben. Im Berichtszeitraum wurden über 300 komplizierte chemische Analysen durchgeführt; sie dienten teilweise der Entwicklung neuer chemischer bzw. zerstörungsfreier Meßverfahren bzw. standen im Zusammenhang mit der Teilnahme an verschiedenen Interlaboratoriumstests. Erwähnenswert ist die Entwicklung neuer Meßverfahren für die Pu-Bestimmung im festen Abfall.

Die vorbereitenden Arbeiten zum Interlaboratoriumstest IDA-78 sind abgeschlossen. Bis jetzt haben sich ca. 34 Laboratorien aus 13 Ländern zur Teilnahme an diesem Test bereit erklärt. International gewinnen die Vergleichstest zunehmend an Bedeutung.

Die Entwicklung des on-line-Datenverarbeitungsverfahrens für die automatische Isotopenverdünnungsanalyse ist abgeschlossen. Einige erfolgversprechende Arbeiten mit  $\gamma$ -spektrometrischen Meßmethoden, z.B. für die Pu-Isotopenanalyse, Bestimmung der Konzentration von Pu in Lösungen usw., wurden intensiviert.

Im Bereich der internationalen Zusammenarbeit wurden die Projektarbeiten verstärkt. Die Bundesrepublik Deutschland beabsichtigt, in einem Unterstützungsprogramm die einzelnen Arbeitsprogramme mit der IAEA zusammenzufassen. Die Zusammenstellung der erforderlichen Unterlagen über Arbeitsthemen,

Finanzmittel und Personalaufwendungen wurde zum größten Teil im Rahmen der Projektarbeiten durchgeführt. Im Laufe des Jahres 1978 wird das Programm offiziell der IAEA angeboten.

Im Bereich der SAGSI-Arbeiten (Standing Advisory Group on Safeguards Implementation der IAEA) wurden vom Projekt mehrere Arbeitsunterlagen erstellt. Das Projekt lieferte außerdem einige wissenschaftliche Beiträge für verschiedene internationale Symposien zur Kernmaterialüberwachung.

1.	<u>Entwicklung von Konzepten und Systemen</u> <u>zur Kernmaterialüberwachung</u> (Vorhaben 07.01.02)	
1.1	Überwachungskonzepte für typische kerntechnische Anlagen	1-1
1.1.1	Einleitung F. Voß	1-1
1.1.2	Bestandsaufnahme zur Spaltstofffluß- kontrolle in bestehenden kerntechnischen Anlagen in der Bundesrepublik F. Voß	1-1
1.1.3	Planung einer Neuanlage zur Verarbeitung von hochangereichertem Uran U. Bicking	1-3
1.1.4	Überwachungskonzept für eine Anreicherungs- anlage nach dem Trenndüsenverfahren W. Bahm, J. Weppner	1-12
1.1.5	Materialbilanzierung und Datenverifikation im KfK R. Avenhaus, W. Golly, W. Rust	1-17
1.2	Theoretische Arbeiten zur Isotopen- korrelationstechnik M. Marzo, H.W. Wiese	1-21
1.3	Systemanalytische Untersuchungen R. Avenhaus, H. Frick	1-23

	<u>Seite</u>
1.4 DV-Systeme für die Spaltstofffluß- kontrolle	1-33
1.4.1 Einführung S. Onnen	1-33
1.4.2 Das DV-System für die Kernmaterialüber- wachung im KfK V. Jarsch, S. Onnen, F.-J. Polster	1-34
1.4.3 Das Datenverwaltungssystem F.-J. Polster, R. Kerpe	1-37
1.4.4 Der prinzipielle Aufbau des Dialogteils V. Jarsch, G. Tretter	1-40
1.4.5 Systemanalyse eines DV-Systems für die Spaltstoffflußkontrolle bei der Firma Reaktor-Brennelement Union GmbH J. Voit	1-41

1. Entwicklung von Konzepten und Systemen zur Kernmaterial-  
überwachung  
(Vorhaben 07.01.02)

1.1 Überwachungskonzepte für typische kerntechnische Anlagen

1.1.1 Einleitung

F. Voß

Der Schwerpunkt der F+E.-Tätigkeiten im KfK lag 1977 bei den Überlegungen für ein Konzept zur Bilanzierung von Kernmaterial und zur Datenverifikation im KfK. Die gemeinsam mit der Fa. NUKEM durchgeführten Arbeiten zur Auslegung und Planung einer überwachungs- und sicherheitstechnisch optimierten Fabrikationsanlage für hochangereichertes Uran wurden zu Ende geführt. In der Projektdefinitionsphase für das Überwachungskonzept einer Trenndüsenanlage waren verschiedene Probleme identifiziert worden. Die experimentelle Untersuchung einiger dieser Fragen wurde eingeleitet. Nach Abschluß der ursprünglich geplanten Arbeiten für eine Gas-Ultra-Zentrifugenanlage in 1976 ergab sich im vergangenen Jahr die Notwendigkeit zu weiteren Untersuchungen. Angesichts der verstärkten internationalen Diskussion über die Überwachungsmöglichkeiten eines Brennstoffzyklus und vor dem Hintergrund der zur Zeit diskutierten verschärften Ziele der internationalen Überwachung wurde mit einer Bestandsaufnahme der SpFK in der Bundesrepublik begonnen. Bedingt durch die Neuorganisation auf seiten der Industriepartner konnten die geplanten Arbeiten für das nukleare Entsorgungszentrum noch nicht durchgeführt werden.

1.1.2 Bestandsaufnahme zur Spaltstoffflußkontrolle in bestehenden  
kerntechnischen Anlagen der Bundesrepublik

F. Voß

Verschiedene Ursachen haben auf internationaler und nationaler Ebene zu einer intensiven Diskussion über die Überwachbarkeit von Kernmaterialien und Anlagen geführt:

Aktueller Anlaß war in der Bundesrepublik der geplante Bau eines Entsorgungszentrums in Gorleben. Auf internationaler Ebene wurde die Diskussion durch die geänderte Nuklearpolitik der USA ausgelöst, was u.a. zur Folge

hatte, daß die quantifizierbaren Überwachungsziele der IAEA mit der Absicht, sie zu verschärfen, neu überdacht wurden und noch werden. Parallel dazu begannen die Diskussionen über alternative Brennstoffzyklen, die jetzt im Rahmen von INFCE ("International Nuclear Fuel Cycle Evaluation") durchgeführt werden.

In dieser Situation ging vom BMFT die Anregung aus, den Stand der Spaltstoffflußkontrolle für kerntechnische Anlagen in der Bundesrepublik zusammengefaßt in einem Bericht darzustellen. Die Arbeiten hierzu wurden im Herbst 1977 aufgenommen. Der Schwerpunkt lag dabei auf Anlagen des offenen Teils des Brennstoffkreislaufs. Unter Verwendung von Literaturangaben wurde zunächst damit begonnen, für typische existierende kerntechnische Anlagen die Genauigkeit einer Materialbilanz abzuschätzen und die Ergebnisse mit den gegenwärtigen IAEA-Zielen zu vergleichen. Die bisher vorliegenden Resultate zeigen, daß diese Ziele in kleinen bestehenden Wiederaufarbeitungsanlagen, in Brennelementfabriken und Anreicherungsanlagen (GUZ) erreichbar sind. Dies gilt auch für zukünftige Trenndüsenanlagen. Weitere F+E-Arbeiten sind jedoch erforderlich, um festzustellen, inwieweit die Überwachungsziele in einer großen Wiederaufarbeitungsanlage erreicht werden können.

Anhand der Ergebnisse sollen die Hauptschwierigkeiten bei der internationalen Überwachung in existierenden Anlagen dargestellt werden. Ausgehend hiervon soll anschließend auf zu erwartende Probleme in zukünftigen großen Anlagen, d.h. vor allem im Entsorgungszentrum, eingegangen werden, die sich überwiegend aus dem höheren Durchsatz ergeben. Darüberhinaus ist aber mit völlig neuen Problemen zu rechnen, wenn die gegenwärtig diskutierten Entdeckungszeiten in der Größenordnung von 1 bis 2 Wochen für 8 kg Pu als verbindliche Überwachungsziele festgeschrieben werden sollten.

### 1.1.3 Planung einer Neuanlage zur Verarbeitung von hochangereichertem Uran

U. Bicking

#### Allgemein

Im Berichtszeitraum sind die Arbeiten zum NUKEM-II-Vertrag vertragsgemäß abgeschlossen worden. Die Arbeiten umfaßten die Definition von safeguards-relevanten Auslegungskriterien und die Auslegung und Planung einer überwachungstechnisch optimierten Fabrikationsanlage. Die Ergebnisse aus diesen Arbeiten sind in einem Abschlußbericht zusammengefaßt.

#### Einführung

In der neuen geplanten Fabrikationsanlage für hochangereichertes Uran soll im wesentlichen die bisherige Fertigung von Brennelementen für den MTR- und den HTR-Bereich fortgesetzt werden. Weiterhin soll die neue Fabrikationsanlage so ausgelegt werden, daß sie in bezug auf die Probleme der Kernmaterialüberwachung, wie sie aus dem Atomsperrvertrag erwachsen, überwachungsfreundlich wird.

Auf der Grundlage von Erfahrungen und erzielten Ergebnissen bei den Arbeiten zum NUKEM-I-Vertrag wurden safeguardsrelevante Auslegungskriterien definiert, die bei der Planung der Neuanlage Berücksichtigung finden.

Im folgenden werden schwerpunktmäßig die wichtigsten erzielten Ergebnisse dargestellt.

#### Definition von Auslegungskriterien

Auf der Grundlage der Kernmaterialüberwachung und den Ergebnissen aus den Arbeiten zur Implementierung der Überwachungsmaßnahmen in der bestehenden Anlage sind unter den safeguardsrelevanten Gesichtspunkten

- Einteilung in Materialbilanzzonen
- Definition von Schlüsselmeßpunkten
- Kontrolle und Verifikationsmöglichkeiten des

Kernmaterialflusses  
- Zugänglichkeit zum Kernmaterial

die Auslegungskriterien für die Neuanlage näher spezifiziert worden.

Auslegungskriterien für die Fabrikationsanlage

Unter dem Gesichtspunkt der Aufnahme und Prüfung des realen Bestandes sind die Auslegungskriterien der Gesamtanlage, d.h. die Aufteilung der Fertigungsbereiche mit den korrespondierenden Lagerbereichen zu definieren. Für die Planung und Organisation von Inventurverfahren sowie die rationelle Durchführung der Inventuren ist daraus folgend ein transparenter Kernmaterialfluß und damit zusammenhängend die Zugänglichkeit zum Kernmaterial von Bedeutung. Die Zugänglichkeit zum Kernmaterial unter Safeguards-Gesichtspunkten bedeutet die Verfügbarkeit des Kernmaterials zu Messungen, Probenahme und Identitätsprüfung durch die Überwachungsbehörde.

Aufteilung der Fertigungsbereiche

Die Aufteilung der Fertigungsbereiche sollte so erfolgen, daß eine klare Trennung zwischen den darin zu bearbeitenden Kernmaterialien erkennbar und eine einfache Einteilung in Schlüsselmeßpunkte für die reale Bestandsaufnahme möglich ist. Daraus folgt weiterhin, daß durch einfache technische Maßnahmen seitens der Überwachungsbehörden (Containment- und Surveillance-Maßnahmen) die Austauschbarkeit von Kernmaterial zwischen Schlüsselmeßpunkten verhindert werden kann.

Transparenter Kernmaterialfluß

Die Anordnung der Fertigungsbereiche, der kommunizierenden Lagerzonen (Eingangslager, Zwischenlager, Ausgangslager), der Wege, auf denen Kernmaterial transportiert wird, der Meßpunkte, an denen das Kernmaterial zur Buchführung erfaßt wird, soll so erfolgen, daß der Weg vom Ausgangsprodukt über Zwischenprodukte bis zum Endprodukt eindeutig und transparent erkennbar wird.

### Verfügbarkeit des Kernmaterials

Die Forderung der Überwachungsbehörden nach eigenen Messungen zur Bestimmung des Kernmaterialinhaltes in gemeldeten Chargen und Vorführen des Kernmaterials unterteilt in Chargen zur Prüfung des realen Bestandes stellt die Frage nach der Verfügbarkeit des Kernmaterials.

### Grundsätzliches zur Verarbeitung von Kernmaterial

Auf dem Weg zum spezifikationsgerechten Endprodukt durchläuft das Kernmaterial die Prozeß- und Produktionseinrichtungen der entsprechenden Fertigungsbereiche sowie die zugeordneten Lagerbereiche. Das Kernmaterial ist dabei nur während chemischer Umsetzverfahren und Schmelzvorgänge in geschlossenen Prozeßeinrichtungen oder Verweilzeiten in Glüh- und Kalzinationsöfen nicht zugänglich. In den übrigen Produktionsbereichen und den Lagerbereichen liegt das Kernmaterial in meßbaren Einheiten vor und ist zugänglich. Aus Gründen der Kritikalitätssicherheit werden die oben genannten Prozeßeinrichtungen so ausgelegt, der Kernmaterialinhalt der Chargen derart begrenzt, daß keine kritische Anordnung in den Anlagenteilen entstehen kann. Dies bedeutet, daß in Abhängigkeit von der Verarbeitungszeit in den betreffenden Anlagenteilen das Kernmaterial nach einem Prozeßschritt wieder in Chargen gegliedert vorliegt und kontrolliert werden kann.

### Auslegungskriterien für geschlossene Prozeßeinrichtungen

Ziel dieser Auslegungskriterien ist, geschlossene Prozeßeinrichtungen so auszulegen, daß das Prozeßinventar während einer Inventur zu definierten Meßpunkten transferiert wird, dabei jedoch verfahrenstechnische und betriebliche Belange berücksichtigt werden. Das angewendete chemische Verfahren und damit zusammenhängend die Verarbeitungszeit ist für die Auslegung obengenannter Prozeßeinrichtungen ausschlaggebend.

Wird die Verarbeitungszeit von Kernmaterialchargen länger als der vorgegebene Inventurzeitraum, so sind folgende Auslegungskriterien maßgebend:

- a) Prozeßanlagen im Durchsatz so auszulegen und Arbeitstaktfolgen so abzustimmen, daß die Kernmaterialchargen innerhalb eines vorgegebenen Zeitintervalls wieder vollständig und meßbar vorliegen.

- b) Bei zusammenhängend ablaufenden mehrstufigen chemischen Umsetzverfahren sind der Arbeitsschrittfolge entsprechend Zwischenbehälter vorzusehen, in denen eine Volumenmessung und Probenahme möglich ist.

#### Safeguardskriterien für Behandlung von chemisch aufzuarbeitenden Rückläufen

Unter safeguardsspezifischen Gesichtspunkten ist es notwendig, den Kernmaterialinhalt von Rücklaufchargen auf der Grundlage einer Messung zu bestimmen.

Befinden sich die Rückläufe in einem nicht analysenfähigen Zustand und werden zwischengelagert, so ist bei Ausgang aus dem betreffenden Produktionsbereich oder vor Einlagerung der Kernmaterialinhalt der Charge mit Hilfe von indirekten Methoden zu ermitteln.

Eine Alternative zu der oben beschriebenen Behandlung ist die sofortige Überführung der Rückläufe in einen analysenfähigen Zustand und Bestimmung des Kernmaterialinhaltes durch chemische Analyse. Dies bedeutet jedoch eine entsprechende Auslegung der Aufarbeitungsanlage, die ermöglicht, die anfallenden Rücklaufchargen unmittelbar aufzuarbeiten.

#### Safeguardskriterien für Behandlung von Abfällen

Bei Ausgang von solchen Abfallchargen werden diese am Schlüsselmeßpunkt für Abfallausgang als gemessene Verluste unter besonderen Bedingungen abgebucht.

Für das in Abfallchargen enthaltene nicht rückgewinnbare Kernmaterial werden die Sicherungsmaßnahmen (VA, Artikel 11) der Überwachungsbehörden beendet, da es für eine weitere nukleare Verwendung nicht geeignet ist. Dabei müssen die Daten des Kernmaterialinhaltes auf Messungen oder aufgrund von Messungen durchgeführten Schätzungen beruhen.

### Planung der Neuanlage

Im folgenden wird der aktuelle Planungsstand zu der Neuanlage für die Verarbeitung von hochangereichertem Uran der Firma NUKEM schwerpunktmäßig dargestellt.

### Auslegung der Produktionshalle

In einer neuen Produktionshalle sind alle Betriebs- und Lagerbereiche zusammengefaßt und nach dem Fertigungsablauf optimal angeordnet. Diese Zusammenfassung des gesamten Betriebes in einer geschlossenen Halle erfüllt Artikel 46, Absatz 6 Punkt ii des Verifikationsabkommens.

### Aufteilung in interne Materialbilanzbereiche bzw. Schlüsselmeßpunkte zur Aufnahme des realen Bestandes

Zur innerbetrieblichen Kernmaterialkontrolle sind die Produktionsbetriebe in getrennt bilanzierende Materialbilanzbereiche unterteilt. Außerdem sind für die Aufnahme des realen Bestandes sogenannte Schlüsselmeßpunkte (SMP) bestimmt. In den vorläufigen anlagenspezifischen Anhängen sind neben den Lagerbereichen folgende für den Neubau relevante Schlüsselmeßpunkte codiert vorgesehen.

1. Code B chemische Zwischenprodukte
2. Code D metallurgische Zwischenprodukte
3. Code F+G MTR Bildchen, Platten und Elemente
4. Code H U, Th-Oxid
5. Code J HTR-Kugeln
6. Code L Uranverbindungen

Neu hinzugekommen ist ein Betrieb für die Herstellung von uranoxidgefüllten Stäben, der einen eigenen SMP-Code erhält. Um die Möglichkeiten der Überprüfung bei Inventuren übersichtlich zu halten, sind für analytische Proben (Code K, AA) der Qualitätsstelle eigene SMP-Codes zuzuweisen.

Vorzusehende Schlüsselmeßpunkte:

1. Code X           Oxidlinie
2. Code XX          Qualitätskontrolle

Die innerbetrieblichen Materialbilanzbereiche folgen einer weiteren feineren Aufteilung, die die betrieblichen Belange und Schnittstellen berücksichtigt. Diese Schnittstellen (Abb. 1-1) werden so gelegt, daß meßbare Zwischenprodukte von einem Materialbilanzbereich in einen anderen oder das Lager transferiert werden.

#### Kontrolle des Kernmaterialflusses

Die Kontrolle des Kernmaterialflusses und somit das notwendige Meßsystem wird aus der bestehenden Anlage übernommen, da es bereits den Anforderungen nach dem Verifikationsabkommen genügt.

Das Meßsystem für die neu aufgenommene Oxidlinie wird im folgenden beschrieben.

Die Kernmaterialkontrolle wird in gleicher Form, wie aus der Herstellung von LWR-Brennstäben bekannt ist, vorgenommen. Da es sich hier um hochangereichertes Uran handelt, sind die Verarbeitungschargen entsprechend kleiner sowie die Meßqualität höher. Vom Meßsystem werden die Ausgänge an  $UO_2$ -Pellets erfaßt (siehe auch Abb. 1-1).

Bei Eingängen werden die Daten aus dem chemischen Prozeßbereich übernommen. Die weiteren Arbeiten umfassen lediglich das Zusammenstellen der Brennstabsäulen und Assemblieren der Brennelemente.

Hier werden die bekannten Daten über Kernmaterialinhalte fortgeschrieben und durch Zählung anschließend der Gesamtkernmaterialinhalt berechnet.

#### Planung der Aufstellung von Maschinen und Anlageteilen

Zur Kontrolle des Kernmaterials während der Aufnahme des realen Bestandes (Inventur) muß ein ungehinderter Zugang zu den einzelnen Materialchargen gewährleistet sein und eine übersichtliche Einteilung der einzelnen Fer-

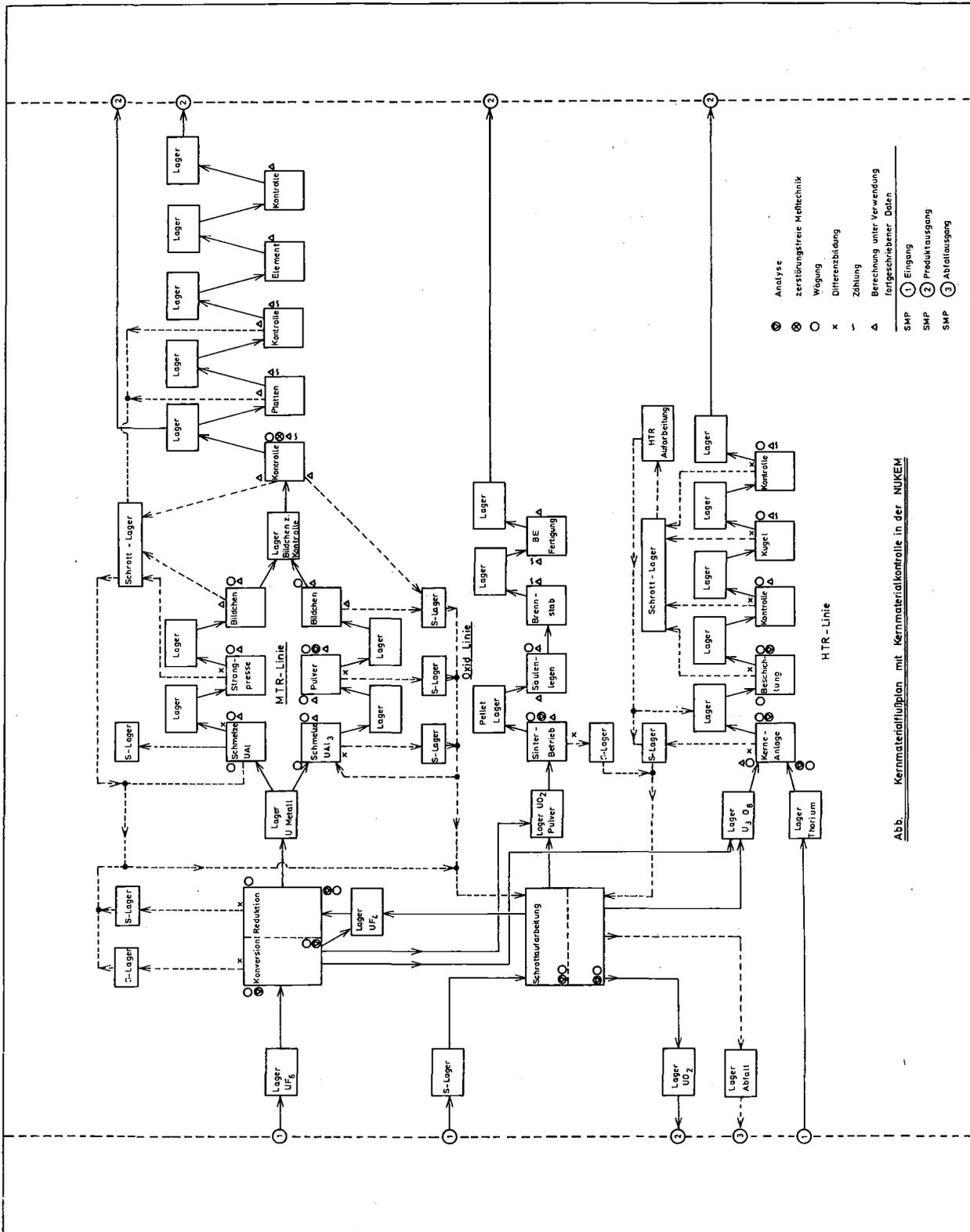


Abb. 1-1: Kernmaterialflußplan mit Kernmaterialkontrolle in der Fa. NUKEM

tigungsstufen angestrebt werden. Die geplante Aufstellung berücksichtigt diese Punkte. Es wurden zwischen den einzelnen Arbeitsgruppierungen Transportwege eingeplant, die wenn irgendmöglich, gradlinig verlaufen und so optisch deutliche Grenzen setzen. Alle Maschinen und Anlagen sind von diesen Transportwegen aus leicht zugänglich. Dies gilt natürlich besonders für Bereiche, in denen das Kernmaterial in Form von Bildchen, Platten und Brennstäben manuell bearbeitet wird. Bei den chemischen und metallurgischen Bereichen wurde die Zugänglichkeit durch eine den Fertigungsstufen angepaßte Unterteilung und Separierung der Anlagenteile - die sich teilweise auch aus Gründen der Kritikalitätssicherheit anbot - erreicht.

#### Lagerung von Kernmaterial

Zur Lagerung des Kernmaterials wird ein im Produktionsgebäude integriertes Lager geplant, das vom übrigen Betrieb völlig abgetrennt ist. Ein Boxensystem gewährleistet eine übersichtliche Lagerung des Kernmaterials. Die einzelnen Boxenreihen können durch Türen geschlossen und somit versiegelt werden.

#### Neukonstruktion von Anlageteilen

Die Neukonstruktion von Anlageteilen beschränkt sich im Vertragszeitraum auf die Konversion von  $UF_6$  zu U-Metall bzw. Oxid, da die Erfahrungen gezeigt haben, daß dieser Teil besonders verbesserungswürdig ist. Diese Konversion wurde bisher mit organischen Reagenzien (Perchloräthylen) vorgenommen. Eine Aufarbeitung zur Rückgewinnung des in den anfallenden Abfallstoffen enthaltenen Kernmaterials (Filtrate, Filter der Trocknungsanlage etc.) war daher praktisch nicht möglich. Durch die Neuplanung einer Anlage, in der mit dem in wässriger Phase ablaufenden AUC-Verfahren gearbeitet werden soll, soll diese Rückgewinnung und eine entsprechende Verringerung der Verluste möglich werden.

#### Aufarbeitung und Bilanzierung von Rückläufen und Abfällen

Die bei der Verarbeitung von Kernmaterial anfallenden Rückläufe werden teilweise dem Produktstrom direkt wieder zugegeben (z.B. nicht maßhaltige

Bildchen, Abfälle aus der Strangpresse etc.) oder müssen in der Schrottaufarbeitung chemisch aufbereitet werden (z.B. Beizlösungen etc.).

Die chemisch aufzuarbeitenden Rückläufe werden im Lager zwischengelagert und zu aufarbeitungswürdigen materialspezifischen Chargen zusammengefaßt.

Die Kernmaterialinhalte dieser Rücklaufchargen beruhen teilweise auf Meßwerten oder teilweise auf Differenzbildung aus den Betriebsbereichen.

Externe Schrotte werden in einem - je nach Art des Materials verschiedenen - mit dem Kunden und der Kontrollbehörde abzusprechenden Verfahren homogenisiert und analysiert.

Das Meßsystem umfaßt in der Schrottaufarbeitung i.a. nur die Ausgänge.

Ausgänge sind:  $UO_2$ ,  $U_3O_8$ ,  $UF_4$

Chargendatenbestimmung: Gewichtsbestimmung  
U-Gehalt (Analyse)  
U235-Gehalt (Massenspektrometrie)

Bei jedem Aufarbeitungsauftrag werden Bilanzen erstellt, in denen die festgestellten verschiedenen Verluste getrennt aufgeführt werden. Es fallen hauptsächlich folgende Verluste an:

- Gemessener Abfall meist als schwachaktives Abwasser
- Zurückbehaltener Abfall als einbetonierte Wässer höherer Aktivität oder Feststoffe.

Unter Berücksichtigung der geltenden Einlagerungsbedingungen werden diese Abfälle konditioniert und der behördlich vorgeschriebenen Endlagerung zugeführt.

Nach der Aufarbeitung des Schrotts werden auch die Differenzen zum Anfangsbuchbestand erkannt und entsprechend bilanziert.

1.1.4 Überwachungskonzept für eine Anreicherungsanlage nach dem Trenndüsenverfahren

W. Bahm, J. Weppner

Die im zweiten Halbjahr 1976 durchgeführten ersten Untersuchungen zur Erarbeitung eines Überwachungskonzeptes für die von der Bundesrepublik Deutschland nach Brasilien zu exportierende Trenndüsen-Demonstrationsanlage (Abb. 1-2) haben gezeigt, daß bei Aufnahme des realen Bestandes mit den betrieblich vorgesehenen Meßsystemen allein eine den Vorstellungen der Überwachungsbehörde entsprechende Bilanzierungsgenauigkeit nicht zu erreichen ist /1-1/.

Zum Zwecke der Materialverfolgung und -Bilanzierung ist die Anlage in 17 Schlüsselmeßpunkte (SMPs) zur Erfassung des Inventars und des Durchflusses aufgeteilt (Abb. 1-3).

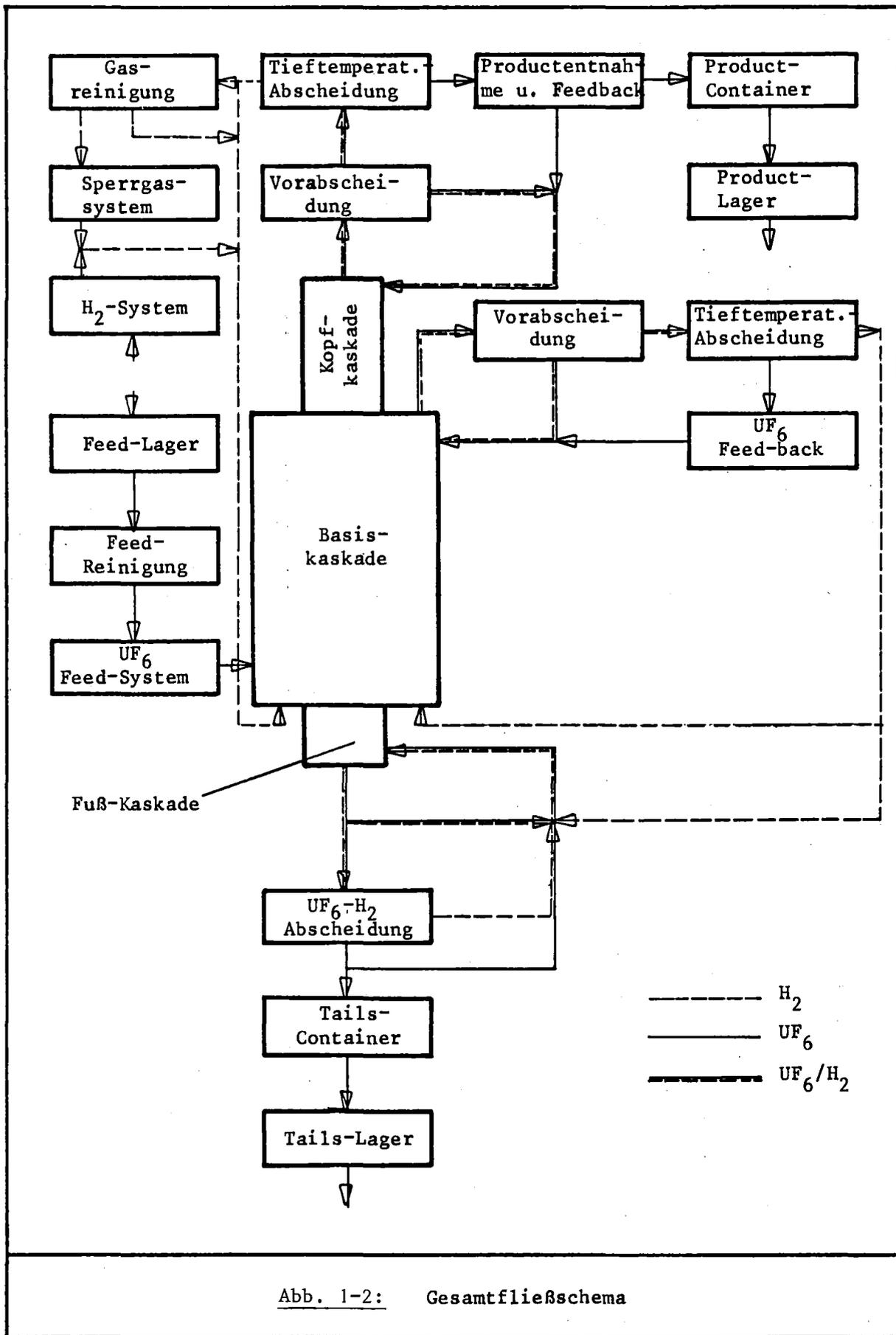
Entscheidend für die ungenügende Bilanzierungsgenauigkeit ist die Tatsache, daß an einigen SMPs eine Bestimmung und Verifizierung des Inventars nicht möglich war.

Die Arbeiten im zurückliegenden Berichtszeitraum konzentrierten sich aus diesem Grund im wesentlichen auf die

- Erarbeitung von Möglichkeiten zur Bestimmung und Verifizierung des Inventars an den genannten SMPs und die
- Vorbereitung von Versuchen, die der Aufnahme von Kennlinien dienen, die zur Inventarbestimmung an den genannten SMPs erforderlich sind.

Weiterhin wurden Arbeiten

- zur Abschätzung von Leckagen und Gasinventar,
  - zur Vorbereitung von experimentellen Untersuchungen zur Abschätzung von Gasinventar, Ablagerungen und Leckagen und
  - zum Skizzieren eines Ablaufplans zur Aufnahme des realen Bestandes
- durchgeführt.





Die Aktivitäten zur Inventarbestimmung konzentrierten sich insbesondere auf die Tieftemperaturabscheider, da eine Bestimmung und Verifizierung des Inventars an diesem SMP wegen der Anreicherung (bei Product ca. 3 % U-235) und des relativ großen Inventars und damit großen Beitrags zur Bilanzierungsungenauigkeit besonders wichtig ist.

Ziel der Untersuchungen war es, eine Möglichkeit zu finden, das Inventar der Tieftemperaturabscheider zu bestimmen und zu verifizieren ohne Störung des Anlagenbetriebs, d.h. ohne Leerfahren der teilgefüllten Tieftemperaturabscheider.

Es ist vorgesehen, das Inventar von gefüllten und austragenden Tieftemperaturabscheidern über den Pumpen-Durchsatz zu bestimmen, der nach derzeitigem Kenntnisstand über das Förderverhalten der zum Austragen des reinen  $UF_6$  aus den Tieftemperaturabscheidern verwendeten Verdichtern linear vom Pumpen-Vordruck abhängt.

Die Bestimmung des Inventars von abscheidenden Tieftemperaturabscheidern (Phase des Ausfrierens von  $UF_6$ ) ist nach dieser Methode nicht möglich, da hierzu eine Unterbrechung des Anlagenbetriebs notwendig wäre.

Die Überprüfung weiterer Möglichkeiten der Inventarbestimmung zeigte, daß eine direkte Messung des Inventars abscheidender Tieftemperaturabscheider nach dem derzeitigen Kenntnisstand nicht möglich ist.

Aus diesem Grunde ist vorgesehen, das Inventar an diesem Schlüsselmeßpunkt mit Hilfe der Abscheidekennlinie zu bestimmen.

Die durch theoretische Untersuchungen gewonnenen Kenntnisse über den qualitativen Verlauf der Kennlinie sind jedoch für eine genaue Inventarbestimmung nicht ausreichend. Aus diesem Grunde ist vorgesehen, die tatsächliche Abscheidekennlinie im späteren Anlagenversuchsbetrieb der First Cascade (erste Baustufe der Demonstrationsanlage) aufzunehmen.

Mit der Vorbereitung der dafür notwendigen Versuche wurde im Berichtszeitraum bereits begonnen.

Weiterhin wurden die der Abschätzung von Gasinventar, Ablagerungen und Leckagen dienenden Versuche vorbereitet und das zugehörige Versuchsprogramm detailliert ausgearbeitet.

Ein Ablaufplan zur Aufnahme des realen Bestandes wurde dargestellt, der unter Berücksichtigung der Möglichkeiten zur Bestimmung des Inventars der einzelnen Anlagenteile, der Zeittakte und des Taktverhaltens untereinander (soweit bekannt) eine möglichst genaue Erfassung des Lager- und Prozeßinventars an allen Schlüsselmeßpunkten ermöglichen soll.

Anhand der aktuellen Anlagendaten wurde für die an den einzelnen Schlüsselmeßpunkten voraussichtlich zu erreichenden Meßgenauigkeiten eine erste Abschätzung der Bilanzierungsgenauigkeit durchgeführt. Sie ergab Werte von 0,2-0,3 % bezogen auf den Feed-Durchsatz bei halbjährlicher Inspektion. Voraussetzung dafür ist, daß die noch durchzuführenden Versuche die der Rechnung zugrunde gelegten Meßunsicherheiten bestätigen.

Eine detaillierte Prozeßbeschreibung sowie eine Darstellung insbesondere der Probleme des "material management" finden sich in einem auf dem 19. Annual Meeting of the INMM gehaltenen Vortrag.

Der für das IAEA-Symposium vom 2.10.-7.10.1978 vorgesehene Beitrag bringt insbesondere eine ausführliche Darstellung des Konzeptes zur Aufnahme des Tieftemperaturabscheiderinventars.

Eine Zusammenfassung aller im zurückliegenden Berichtszeitraum durchgeführten Arbeiten und erzielten Ergebnisse sind in einem Arbeitsbericht nachzulesen /1-2/.

### 1.1.5 Materialbilanzierung und Datenverifikation im KfK

R. Avenhaus, W. Golly, W. Rust

#### Überblick

In Fortführung der 1976 erarbeiteten Anforderungen an ein rechnergestütztes Datenerfassungssystem für das KfK wurde nach Sitzungen mit EURATOM-Vertretern Ende 1976/Anfang 1977 eine detaillierte Studie zur Überwachung des spaltbaren Materials im KfK auf der Basis des IAEO-Systems /1-3/, das im Verifikationsabkommen /1-4/ für die Bundesrepublik Deutschland verbindlich ist, begonnen.

Ziel dieser Arbeit war es,

- die Frage der geeigneten Einteilung eines Forschungszentrums in Materialbilanzonen zu klären,
- die für die Erstellung der Materialbilanzen erforderlichen Klassen von Maßeinheiten zu erfassen; und weiter
- die Effizienz des Materialbilanzierungssystems,
- die optimale Verteilung des für die Datenverifikation vorgegebenen Überwachungsaufwandes, sowie
- die Effizienz der Datenverifikation.

zu bestimmen; dabei wird unter Effizienz die optimale und garantierte Entdeckungswahrscheinlichkeit als Funktion von Überwachungsaufwand und angenommener entwendeter Menge spaltbaren Materials verstanden.

#### Kriterien zur Materialbilanzierung

Gemäß /1-3/ ist für die Überwachung das Materialbilanzierungsprinzip das wichtigste Kriterium, wobei die Prinzipien der dichten Umhüllung (Containment) und der Beobachtung (Surveillance) ergänzende Funktionen haben. Dabei ist die Überwachung so organisiert, daß die Betreiber der kerntechnischen Anlagen die für die Erstellung der Materialbilanz notwendigen Daten (source data) aufnehmen und diese in zusammengefaßter Form an die zuständige nationale bzw. regionale Behörde weiterleiten, die diese dann an die internationale Behörde IAEO weitergibt. Diese überprüft die gelieferten Daten mit Hilfe

eigener, unabhängiger Messungen; stimmen die eigenen Messungen innerhalb der Meßgenauigkeit mit denen des Anlagebetreibers überein, dann akzeptiert die internationale Behörde diese Daten und erstellt die Materialbilanz allein mit Hilfe der Betreiberdaten.

Die Arbeiten konzentrierten sich ausschließlich auf die Elementkategorie Plutonium mit seinen Verbindungen, da

- Plutonium im Hinblick auf die Überwachung das wichtigste Material ist, und da weiter
- Plutonium im Kernforschungszentrum in vielfältigen U/Pu-Verbindungen vorliegt, demzufolge also die Uran-Materialverteilung zwangsläufig der des Plutoniums gleicht. Eine Uranbilanzierung würde also ein der Plutoniumbilanz ähnliches Ergebnis aufweisen, die Datenverifikation würde durch ähnliche Kriterien bestimmt.

Es erfolgte eine Zusammenstellung der Ausgangsdaten für die Analyse, d.h. eine Auflistung der Inventare und Flußdaten zusammen mit den zugehörigen Standardabweichungen der Meßfehler für alle Institute, in denen Plutonium gehandhabt wird, für den Referenzzeitraum 1.7.74 - 30.6.77. Die Datengliederung erfolgte analog der für das Datenerfassungssystem vorgesehenen Bereichsgliederung.

Drei prinzipielle Fragen im Zusammenhang mit der Materialbilanzierung sind

- die geeignete Größe der einzurichtenden Materialbilanzzone,
  - die Berücksichtigung von Meßeinheiten bei der Bilanzierung, die vom Betreiber im Bilanzzeitraum nicht verändert wurden, und
  - die Berücksichtigung des bestrahlten Materials.
- i) Da nach /1-3/ das Kriterium für die Größe einer Anlage die Gesamt-Entdeckungswahrscheinlichkeit ist, wurde in /1-5/ unter verschiedenen Voraussetzungen die Frage analysiert, ob die Unterteilung einer großen Anlage in mehrere kleine Bilanzzonen die Gesamt-Entdeckungswahrscheinlichkeit erhöht. Die in /1-6/ vorliegenden Ergebnisse sprechen für die

Zusammenfassung einer Anlage zu einer Materialbilanzzone (MBZ).

Es wurden für das KfK zwei Alternativen untersucht,

- die Zusammenfassung des KfK zu einer MBZ,
- die Unterteilung des KfK in drei MBZ.

ii) Das KfK stellt im Gegensatz zu durchsatzorientierten Fabrikationsanlagen eine inventarorientierte Anlage mit relativ geringen externen Ein- und Ausgängen dar, so daß hier das Gewicht der Überwachung auf der Datenverifikation des realen Inventars liegt.

Bei der Materialbilanz fallen Kernmaterialeinheiten, deren Identität im Bilanzierungszeitraum nicht geändert wurde und deren Materialgehalt unverändert geblieben ist, aus der Bilanz heraus, da sie vom Anlagebetreiber nicht zweimal gemessen, sondern nur fortgeschrieben werden, d.h. also mit identischen Zahlenwerten in das Buch- und das reale Endinventar eingehen. Die Unsicherheit bei der anfänglichen Messung hat also keinen Einfluß auf die Unsicherheit der Bilanz; formal läßt sich dies auch so zeigen, daß man diese Ausdrücke mitführt, die zugehörigen Varianzen und Kovarianzen berechnet und feststellt, daß diese sich vollständig aufheben. Dieser Sachverhalt gilt unabhängig davon, ob

- diese Einheiten mit Daten eines externen Lieferers oder des Anlagebetreibers selbst beschrieben werden, und
- es sich dabei um versiegelte, umhüllte oder offene Kernmaterialeinheiten handelt.

Natürlich könnte ein Anlagebetreiber die Unsicherheit der Kenntnis der Materialgehalte solcher Meßeinheiten ausnutzen, um von z.B. in offener Form vorhandenem Material einen gewissen Betrag abzuzweigen. Dies würde aber bedeuten, daß er bei der Endinventur einen gefälschten Wert dieser Meßeinheiten angibt. Die Entdeckung einer solchen Entwendungsstrategie ist jedoch ein Problem der Datenverifikation, bei der natürlich alle Meßunsicherheiten eine Rolle spielen und demzufolge berücksichtigt werden müssen.

iii) Ein besonderes Problem stellt das bestrahlte Material dar, das in einigen Instituten gehandhabt und gelagert wird. Da dieses Material infolge seiner hohen Radioaktivität mit z.Zt. gängigen physikalischen Meßverfahren keiner hinreichend genauen quantitativen Bestimmung unterzogen werden kann, wird auch das Material, welches in seiner Form verändert wurde (Herstellung von Metallographieproben), vom Anlagebetreiber nur fortgeschrieben und fällt somit aus der Bilanz heraus. Zusätzlich wirkt es für die Überwachungsbehörde wegen seiner Unzugänglichkeit Verifikationsprobleme auf. Hier sollten zwischen Überwachungsbehörde und Betreiber Lösungswege gefunden werden.

Dieser Sachverhalt spielt bei der Situation im KfK eine wesentliche Rolle.

#### Datenverifikation

Da in inventarorientierten Anlagen das Gewicht der Überwachung auf der Verifikation des Inventars liegt und in einem Forschungszentrum wie dem KfK das Kernmaterial entsprechend den verschiedenen Aufgabenstellungen in vielfältiger Zusammensetzung und Form vorliegt, ergeben sich für die Modalitäten der Datenverifikation durch die internationale Überwachungsbehörde Probleme vielfältiger Art.

Da für die Bestimmung einer optimalen Verteilung des Inspektionsaufwands als Optimierungskriterium die Gesamt-Entdeckungswahrscheinlichkeit vorzugeben ist, müssen zu deren Berechnung Entwendungsstrategien vorausgesetzt werden. Bei der Analyse zu einem für das KfK möglichen Datenverifikationssystem stößt man unter anderem auf folgende Probleme:

- Unzugänglichkeit des in mehreren Instituten gehandhabten und gelagerten hoch radioaktiven bestrahlten Materials;
- Unzugänglichkeit des in Kritischen und Nullenergie-Anlagen eingebauten leicht bzw. unbestrahlten Materials;
- Unzugänglichkeit von unbestrahltem Material, das zu Experimentierzwecken in Form von nicht mehr zerlegbaren Bestrahlungseinsätzen vorliegt und noch nicht in ein Reaktorcore eingesetzt ist;

- Fragen des Einsatzes von Meßverfahren und deren Aufwand für die vielfältigen Kernmaterialarten im KfK.

Das Überwachungssystem für das KfK befindet sich noch im Zustand der Diskussion mit der Überwachungsbehörde. Die Arbeiten sind deshalb darauf gerichtet, Vorschläge für ein mögliches Datenverifikationssystem zu machen. Dazu wurden numerische Rechnungen zur Optimierung des Überwachungsaufwandes und zur Beurteilung der Wirksamkeit des vorgeschlagenen Überwachungssystems durchgeführt.

Ein Bericht zur Materialbilanzierung und Datenverifikation im KfK ist in Arbeit und steht vor der Fertigstellung.

## 1.2 Theoretische Arbeiten zur Isotopenkorrelationstechnik

M. Marzo, H.W. Wiese

### Problemstellung

Isotopenkorrelationen sollen als flankierende Maßnahmen bei der Überwachung von Kernbrennstoffen eingesetzt werden. In der Diskussion ist besonders die Pu/U-D<sup>235</sup>-Korrelation<sup>+</sup>, die für Abbrände bis etwa 25.000 MWd/tU in LWRs ohne Pu-Rezyklierung näherungsweise linear ist. Für höhere Abbrände (oberhalb 30.000 MWd/tU) geben die Untersuchungen von Presbindowski /1-6/ einen Hinweis auf nichtlineares Verhalten. Im Institut für Neutronen- und Reaktorphysik durchgeführte erste Rechnungen mit ORIGEN /1-7/ ergaben noch deutlichere Abweichungen von der Linearität. Dies muß als starke Abhängigkeit von den nuklearen Daten wie auch von den verwendeten Verfahren interpretiert werden. Um eine zuverlässige Aussage zu ermöglichen, ist erforderlich

- eine Überprüfung und Verbesserung der nuklearen Daten,
- eine Untersuchung der Abhängigkeit der Korrelationen von den verwendeten Modellen,
- eine Überprüfung an Experimenten.

---

<sup>+</sup> D<sup>235</sup> = Abreicherung von U<sup>235</sup>

Die dazu durchgeführten Arbeiten und deren Stand sind im folgenden zusammengestellt.

### Nukleare Daten

Hinsichtlich der nuklearen Daten für den schnellen Energiebereich liegen Erfahrungen aus einem bewertenden Vergleich der bis Ende 1975 verfügbaren Spalt- und Einfangquerschnitte für schwere Materialien sowie aus einfachen Rechnungen für Spaltproduktkonzentrationen in einem SNR-Brennstab vor. Der Datenvergleich zeigte eine teilweise große Unsicherheit in den nuklearen Daten der Transurane im schnellen Energiebereich. Erste Verbesserungen unter Einbeziehung neuester Messungen wurden im Institut für Neutronen- und Reaktorphysik in Angriff genommen. Die Spaltproduktkonzentrationen wurden im wesentlichen ausreichend genau berechnet (Vergleich mit dem Experiment).

Für die Untersuchung von Isotopenkorrelationen für LWRs wichtigen thermischen Energiebereich wurden die vorhandenen nuklearen Daten einiger wichtiger schwerer Nuklide durch Vergleich mit aus Karlsruher KEDAK3-Daten /1-8/ berechneten Werte überprüft. Zur Absicherung der eigenen Datenbasis wurden des weiteren Auslegungsdaten großer LWRs verfügbar gemacht und eingesetzt. Es war dazu die Anwendung des Zellcodes HAMMER /1-9/ und des Zell- und Abbrandprogramms LEØPARD /1-10/ erforderlich.

### Abbrandabhängige effektive Wirkungsquerschnitte

Der Einsatz von LEØPARD ermöglicht des weiteren die Berücksichtigung der Abbrandabhängigkeit der eingehenden effektiven Wirkungsquerschnitte, die in dem einfachen, für erste Rechnungen benutzten Abbrandprogramm ØRIGEN nur durch die sukzessive Anwendung gesondert berechneter Wirkungsquerschnitte (z.B. mit HAMMER) berücksichtigt werden kann. Zur Absicherung der mit ØRIGEN, HAMMER und LEØPARD zu erzielenden Ergebnisse ist der Einsatz moderner Methoden, realisiert z.B. in den Codes QUABØX/CUBBØX /1-11/, vorgesehen.

### Berechnung der Pu/U-D<sup>235</sup>-Korrelation

Die Untersuchung dieser Korrelation für einen 1300 MWe-Druckwasserreaktor (ohne Pu-Rezyklierung) soll mit Hilfe eines nulldimensionalen Modells erfolgen, in dem die den Pu-Aufbau beschreibenden Abbrandgleichungen analytisch gelöst werden können. Die Erstellung dieses Modells wurde in Angriff genommen.

### Weiterführung der Arbeiten

Nach Abschluß der Untersuchungen für den Fall ohne Rezyklierung bis zur ESARDA-Konferenz im Mai 1978 sollen rezyklierte LWR-Brennstoffe behandelt werden. Ein Vergleich mit dem Experiment ist vorgesehen.

### 1.3 Systemanalytische Untersuchungen

R. Avenhaus, H. Frick

Im Jahr 1977 konzentrierten sich die systemanalytischen Untersuchungen auf drei Themenkreise, nämlich auf

- i) mathematisch-statistische Untersuchungen zur Frage der Aufteilung einer Materialbilanzzone in mehrere Unterzonen,
- ii) allgemeine Untersuchungen zur Frage der Zahl der festzulegenden Parameter bei der Einrichtung eines internationalen Überwachungssystems in einem Staat, sowie
- iii) Anwendung der bisher erarbeiteten Methode auf die Analyse konkreter kerntechnischer Anlagen.

Im Rahmen des dritten Themenkreises wurde die Studie "Kernmaterialüberwachung und Datenverifikation in der RBU" /1-12/ fertiggestellt, und es wurde eine entsprechende Studie für das Kernforschungszentrum Karlsruhe durchgeführt. Über die erstgenannte Studie wurde bereits im Jahresbericht 1976 berichtet, weshalb hier nicht weiter auf sie eingegangen werden soll. Über die zweite Studie wird im Abschnitt "Konzeptentwicklung" berichtet.

### Festlegung von Materialbilanzzonen

Im Rahmen der Überlegungen zur Einrichtung eines internationalen Überwachungssystems im Kernforschungszentrum Karlsruhe ergab sich die Frage, ob das Kernforschungszentrum zu einer großen Materialbilanzzone (MBZ) zusammengefaßt oder aber in mehrere Zonen aufgeteilt werden sollte. Zur Klärung dieser Frage war es notwendig, in einer Voranalyse die Kriterien festzulegen, nach denen eine solche Entscheidung zu treffen ist. Im folgenden soll zuerst der quantitative Aspekt der Problemstellung und danach sollen qualitative Aspekte betrachtet werden.

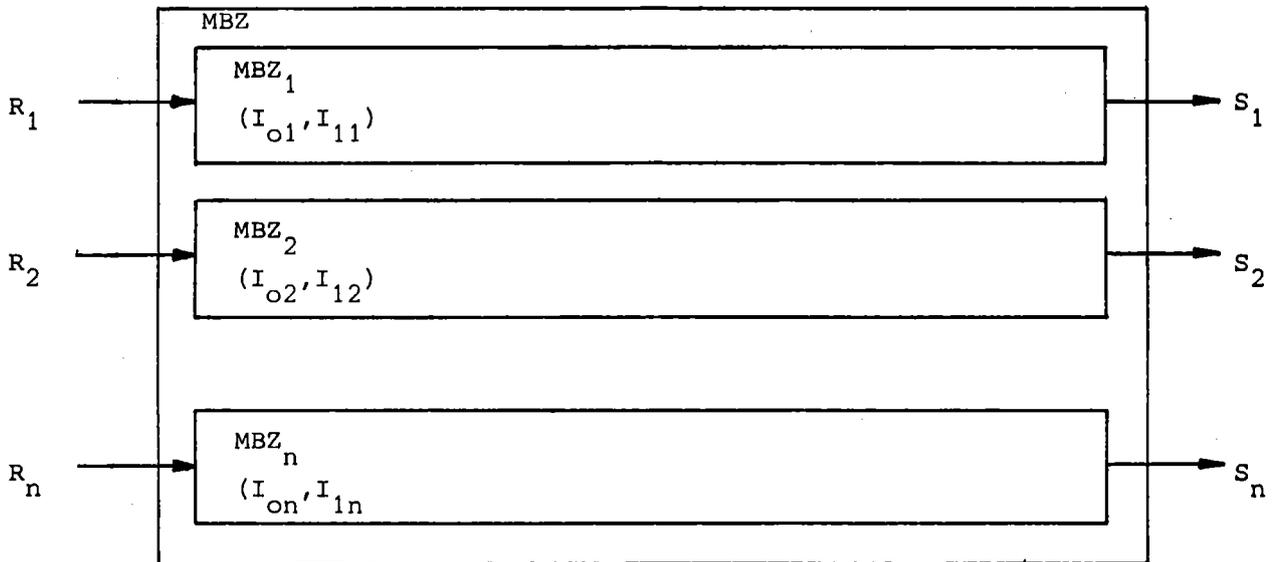
Ganz allgemein ist das Ziel der internationalen Überwachung die rechtzeitige Entdeckung der Entwendung signifikanter Kernmaterialmengen. Da der Aspekt der "Rechtzeitigkeit" bei der vorliegenden Problemstellung ohne Bedeutung ist, bleibt die Aufgabe der "Entdeckung der Entwendung signifikanter Kernmaterialmengen". Mit anderen Worten, entsprechend dem Überwachungsziel ist die Entdeckungswahrscheinlichkeit für eine bestimmte als entwendet angenommene Kernmaterialmenge ein Kriterium für die Beurteilung der vorliegenden Problemstellung, d.h. es ist zu untersuchen, ob die Zusammenfassung der betrachteten kerntechnischen Einrichtung zu einer MBZ, oder aber deren Aufteilung in mehrere Zonen zu einer höheren Entdeckungswahrscheinlichkeit führt.

Die Antwort auf diese Frage hängt natürlich von den Modellannahmen ab. Bisher wurden die folgenden drei verschiedenen Fälle betrachtet:

- Fall 1: Die kerntechnische Einrichtung wird in n "parallel liegende" Einheiten aufgeteilt, zwischen denen es keine Verbindungen gibt (Abb. 1-4).
- Fall 2: Die kerntechnische Einrichtung wird in n "seriell liegende" Einheiten aufgeteilt, zwischen denen das Material unabhängig als ausgehendes und als eingehendes Material gemessen wird (Abb. 1-5).
- Fall 3: Die kerntechnische Einrichtung wird in n seriell liegende Einheiten aufgeteilt, zwischen denen das Material nur einmal gemessen wird (Abb. 1-6).

Abb. 1-4

Unterteilung einer Materialbilanzzone  
in mehrere Unter-Zonen, Fall 1



$$MUF_i = I_{oi} + R_i - S_i - I_{i1}, \quad i = 1 \dots n$$

wobei

$I_{oi}$ : Startinventar der i-ten Unterzone

$I_{i1}$ : Endinventar der i-ten Unterzone

$R_i$ : Eingänge in die i-te Unterzone

$S_i$ : Ausgänge aus der i-ten Unterzone

$$MUF = \sum_i I_{oi} + \sum_i R_i - \sum_i S_i - \sum_i I_{i1} = I_{o1} + \sum_i R_i - \sum_i S_i - I_{11}$$

$$\text{var}(MUF_i) = \sigma_i^2 = \text{var}(I_{oi} + R_i - S_i - I_{i1})$$

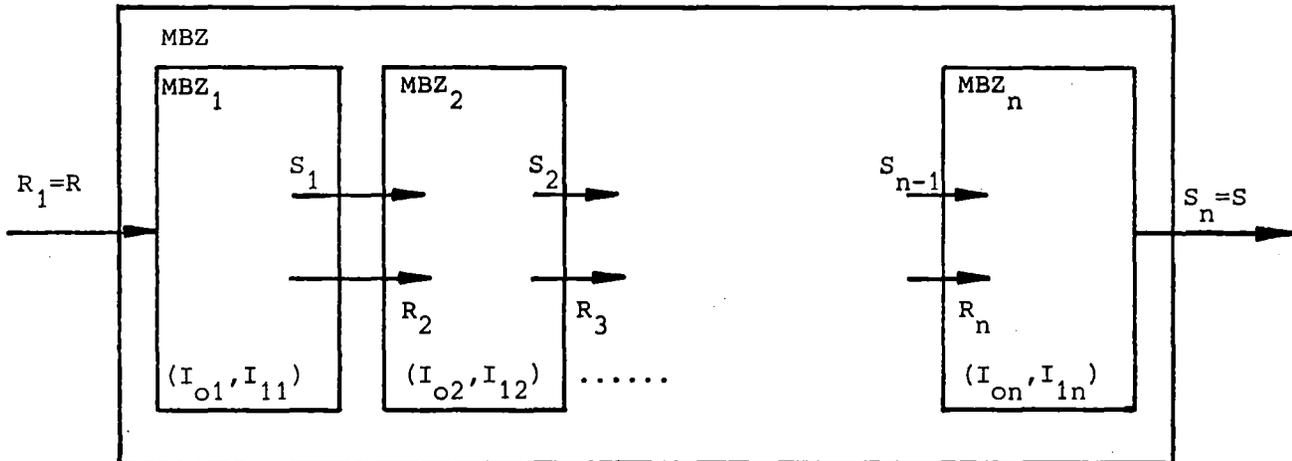
$$\text{var}(MUF) = \sigma^2 = \text{var}(I_{o1} + \sum_i R_i - \sum_i S_i - I_{11})$$

es gilt

$$\sigma^2 = \sum_i \sigma_i^2$$

Abb. 1-5

Unterteilung einer Materialbilanzzone  
in mehrere Unter-Zonen, Fall 2



$$MUF_i = I_{oi} + R_i - S_i - I_{1i}, \quad i = 1 \dots n$$

wobei

$I_{oi}$ : Startinventar der i-ten Unterzone

$I_{1i}$ : Endinventar der i-ten Unterzone

$R_i$ : Eingänge in die i-te Unterzone

$S_i$ : Ausgänge aus der i-ten Unterzone

$$MUF = \sum_i I_{oi} + R - S - \sum_i I_{1i} = I_o + R - S - I_1$$

$$\text{var}(MUF_i) := \sigma_i^2 = \text{var}(I_{oi} + R_i - S_i - I_{1i})$$

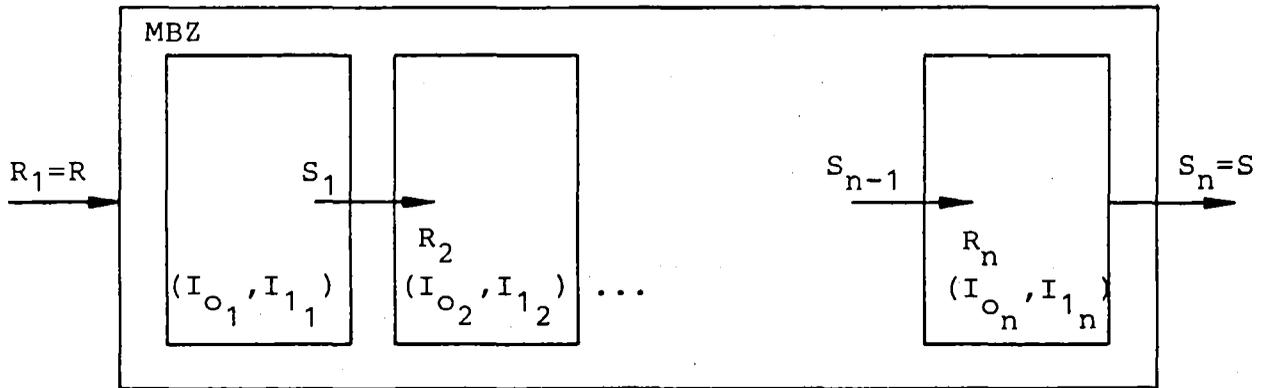
$$\text{var}(MUF) := \sigma^2 = \text{var}(I_o + R - S - I)$$

Es gilt

$$\sigma^2 = \sum_i \sigma_i^2$$

Abb. 1-6

Unterteilung einer Materialbilanzzone  
in mehrere Unterzonen, Fall 3



$$MUF_i = I_{O_i} + R_i - S_i - I_{1_i}, \quad i=1 \dots n$$

wobei

$I_{O_i}$  : Startinventar der  $i$ -ten Unterzone

$I_{1_i}$  : Endinventar der  $i$ -ten Unterzone

$R_i$  : Eingang in die  $i$ -te Unterzone

$S_i$  : Ausgang aus der  $i$ -ten Unterzone

Wegen  $S_i = R_{i+1}$ ,  $i=1 \dots n-1$  gilt

$$\sum_i MUF_i = \sum_i I_{O_i} + R - S - \sum_i I_{1_i} = I_O + R - S - I_1$$

$$\text{var}(MUF_i) = \sigma_i^2 = \text{var}(I_{O_i} + R_i - S_i - I_{1_i})$$

$$\text{cov}(MUF_i, MUF_j) = \begin{cases} -\text{var}(S_i) & \text{für } j=i+1 \\ 0 & \text{sonst} \end{cases}$$

$$\text{var}(MUF) = \sum_i \text{var}(MUF_i) + 2 \sum_{i < j} \text{cov}(MUF_i, MUF_j)$$

Die Entdeckungswahrscheinlichkeit  $1-\beta_1$  für eine Materialbilanzzone ist gegeben durch den Ausdruck (siehe /1-13/)

$$1-\beta_1 = \Phi\left(\frac{M}{\sigma} - U_{1-\alpha}\right),$$

wobei  $M$  die zu entwendende Menge ist,  $\alpha$  die Fehlalarmwahrscheinlichkeit, die mit der Signifikanzschranke  $s$  des Materialbilanztests durch den Ausdruck

$$1-\alpha = \Phi\left(\frac{s}{\sigma}\right)$$

verbunden ist, und wobei  $\sigma^2$  die Varianz des "Material Unaccounted For" (MUF) ist, das definiert ist durch die algebraische Summe von Anfangsinventar  $I_0$ , Eingängen  $R$ , Ausgängen  $S$  und Endinventar  $I_1$ :

$$\sigma^2 = \text{var}(\text{MUF}) = \text{var}(I_0 + R - S - I_1),$$

und wobei  $\Phi$  die Gauß'sche Normalverteilung und  $U$  ihre Umkehrfunktion ist.

Die Gesamt-Entdeckungswahrscheinlichkeit für die Fälle 1 und 2 ist gegeben durch den Ausdruck

$$1-\beta_2 = 1 - \prod_i \Phi\left(U_{1-\alpha_i} - \frac{M_i}{\sigma_i}\right),$$

wobei  $M_i$  die in der  $i$ -ten MBZ zu entwendende Menge ist,  $\alpha_i$  die  $i$ -te Fehlalarmwahrscheinlichkeit, die mit der Signifikanzschranke  $s_i$  des  $i$ -ten Materialbilanztests durch den Ausdruck

$$1-\alpha_i = \Phi\left(\frac{s_i}{\sigma_i}\right)$$

verbunden ist, und wobei  $\sigma_i^2$  die Varianz von  $\text{MUF}_i$  ist.

Die Gesamt-Entdeckungswahrscheinlichkeit für den Fall 3 ist gegeben durch den Ausdruck

$$1-\beta_3 = 1-w \{MUF_1 \leq s_1 \wedge \dots \wedge MUF_n \leq s_n / M_1, \dots, M_n\},$$

wobei die Signifikanzschranken  $s_i$ ,  $i=1, \dots, n$ , die Bedingung

$$1-\alpha = w \{MUF_1 \leq s_1 \wedge \dots \wedge MUF_n \leq s_n / 0, \dots, 0\}$$

erfüllen müssen. Explizit lassen sich diese Ausdrücke wegen der stochastischen Abhängigkeit zwischen den Prüfgrößen  $MUF_i$  nicht ohne weiteres angeben.

Die Aufgabe bestand also darin zu klären, ob die Nicht-Entdeckungswahrscheinlichkeit für die zusammengefaßte Materialbilanzzone

$$1-\phi\left(\frac{M}{\sigma} - U_{1-\alpha}\right)$$

für beliebige Werte von  $M$ ,  $\sigma$  und  $\alpha$  größer oder kleiner als die Nichtentdeckungswahrscheinlichkeit unter Verwendung optimaler Inspektions- bzw. Entwendungsstrategien für die Fälle 1 und 2,

$$\begin{array}{ll} \sup_{M_i} & \inf_{\alpha_i} \quad \Pi \phi\left(U_{1-\alpha_i} - \frac{M_i}{\sigma_i}\right) \\ \sum_i M_i = M & \Pi (1-\alpha_i) = 1-\alpha \end{array}$$

bzw. die entsprechende Nichtentdeckungswahrscheinlichkeit für Fall 3,

$$\begin{array}{ll} \sup_{M_i} & \inf_{\alpha_i} \quad w\{MUF_1 \leq s_1 \wedge \dots \wedge MUF_n \leq s_n / M_1, \dots, M_n\} \\ \sum_i M_i = M & \alpha_i \in S \end{array}$$

ist, wobei die Menge  $S$  gegeben ist durch

$$S = \{s_1, \dots, s_n\} : 1-\alpha = w\{MUF_1 \leq s_1 \wedge \dots \wedge MUF_n \leq s_n / 0, \dots, 0\}$$

Die Randbedingungen bezüglich der  $M_1 \dots M_n$  und der  $s_1 \dots s_n$  besagen gerade, daß beim Vergleich für beide Möglichkeiten - Unterteilung bzw. keine Unterteilung - die gleiche Gesamtentwendung und die gleiche Gesamt-Fehlalarmwahrscheinlichkeit festgehalten werden.

Das Ergebnis der Analyse /1-14/, /1-5/<sup>1)</sup> war, daß in allen betrachteten Fällen die Zusammenfassung der kerntechnischen Einrichtung zu einer Materialbilanzzone zu einer größeren Entdeckungswahrscheinlichkeit führt als die Aufteilung in mehrere Zonen.

Es muß betont werden, daß dieses Ergebnis nur unter den angegebenen Voraussetzungen gültig ist; auf der anderen Seite konnte kein Fall gefunden werden, bei dem das Gegenteil richtig wäre. In diesem Sinne kann das erzielte Ergebnis als sehr "stabil" bezeichnet werden.

Neben dem qualitativen Entscheidungskriterium "Entdeckungswahrscheinlichkeit" gibt es nun aber noch eine Reihe qualitativer Kriterien, die in der Praxis zu berücksichtigen sind. Zum einen unterstützt das Argument des einfachen Überwachungssystems das obige Ergebnis, da bei einer Zusammenfassung interne Transfers, die bei einer Zerlegung zu MBZ-überschreitenden Transfers würden, weder der internationalen Behörde berichtet noch von dieser verifiziert werden müssen. Auf der anderen Seite erfordert das Konzept einer großen MBZ, daß die Materialbilanz für diese MBZ für einen bestimmten Zeitpunkt geschlossen werden kann, mit anderen Worten, es muß zu diesem Zeitpunkt das reale Inventar der ganzen MBZ aufgenommen bzw. verifiziert werden, was der Größe der MBZ sicherlich eine Grenze setzt. Welcher dieser Gesichtspunkte den Ausschlag für die eine oder andere Entscheidung gibt, läßt sich nur am konkreten Beispiel festlegen.

---

1) Die Aussage für Fall 3 ist in dieser allgemeinen Form noch nicht in /1-14/ enthalten; sie wird aber in Kürze zusammen mit ihrem Beweis veröffentlicht werden.

Analyse von Systemparametern

Aus den z.Zt. auf internationaler Ebene geführten Diskussionen zur Frage der Festlegung von "goal quantities" sowie den vorher geschilderten Ergebnissen ergaben sich die in einem internen Bericht /1-15/ niedergelegten Überlegungen, welche globalen Parameter ein internationales Überwachungssystem in einem Staat charakterisieren, und nach welchen quantitativen und qualitativen Kriterien die Zahlenwerte dieser Parameter festzulegen sind.

Es wurden nach einer kurzen Charakterisierung des Überwachungssystems alle zu diskutierenden Parameter (siehe Tabelle 1-1) eingeführt und in "design parameter", "performance criteria" und "standards" eingeteilt. Es wurden für die Bestimmung der Werte der "design parameter", die sich nicht in quantitativer Weise aus den "performance criteria" ableiten lassen, qualitative Argumente gegeben, und es wurden schließlich Überlegungen zur Frage des Vergleichs von "performance criteria" (die die Effektivität des Systems messen) und "standards" (die das zugrunde liegende Überwachungsproblem charakterisieren) angestellt. Dabei muß betont werden, daß diese Überlegungen rein analytischer Natur waren, d.h. daß keine konstruktiven Vorschläge zur Festlegung von Zahlenwerten von "design parameters" gemacht wurden.

Table 1-1List of Parameters

(nach Ref. /1-15/)

Design Parameters

- 1) Number of Material Balance Areas
- 2) Number of inventory periods per reference time
- 3) Quality of measurement system ( $\sigma_{MUF}^2$ )
- 4) Verification effort
- 5) False alarm probability

Performance Criteria

- 6) Probability of detection
- 7) Expected detection time for a diversion
- 8) Goal quantity
- 9) Expected detection location for a diversion <sup>1)</sup>

Standards

Strategic importance of material, namely

- 10) Amount of fissile material needed for the construction of a nuclear weapon (threshold amount)
- 11) Time (and effort) needed for the production of a nuclear weapon (critical time)

---

<sup>1)</sup> Given for completeness only

## 1.4 DV-Systeme für die Spaltstoffflußkontrolle

### 1.4.1 Einführung

S. Onnen

Im Rahmen der Entwicklung und Realisierung des DV-Systems für die Kernmaterialüberwachung im KfK wurden die in 1976 begonnenen Arbeiten weitergeführt.

Die Analyse des Kernmaterialflusses in den unterschiedlichen kerntechnischen Einrichtungen und Forschungsinstituten führte zum Konzept eines allgemeinen DV-Systems für die Kernmaterialüberwachung, das später in den verschiedensten Kernanlagen leicht einsetzbar ist (Kapitel 1.4.2).

Zur Verwaltung der umfangreichen Materialdaten des SpFK-Systems wurde ein Datenverwaltungssystem (DVS) entwickelt und mit der Implementierung der ersten Version begonnen (Kapitel 1.4.3). Als wesentliche Komponente des Systems wurde der Dialogmodul, der die Schnittstelle zwischen Bediener und System bildet, erstellt (Kapitel 1.4.4). Die für das DV-System im KfK bestellte Rechner-Hardware wurde getestet und teilweise abgenommen.

Im Rahmen der Zusammenarbeit mit der kerntechnischen Industrie wurde ein Vertrag über die Durchführung einer Systemanalyse für ein SpFK-DV-System bei der Firma RBU abgeschlossen. Die Arbeit für diese Systemanalyse wurde angefangen (Kapitel 1.4.5).

Für die IAEA in Wien wurde Unterstützungsarbeit bei der Entwicklung des ISIS (IAEA Safeguards Information System) geleistet. Im Rahmen dieser Entwicklung wurden Arbeiten für die Planung und die Dokumentation des Input-Prozessors von ISIS durchgeführt.

1.4.2 Das DV-System für die Kernmaterialüberwachung im KfK

V. Jarsch, S. Onnen, F.-J. Polster

Die Anforderungen an das DV-System und der Informationsfluß eines solchen DV-Systems im Rahmen der internationalen Kontrolle sind im folgenden schematisch dargestellt:

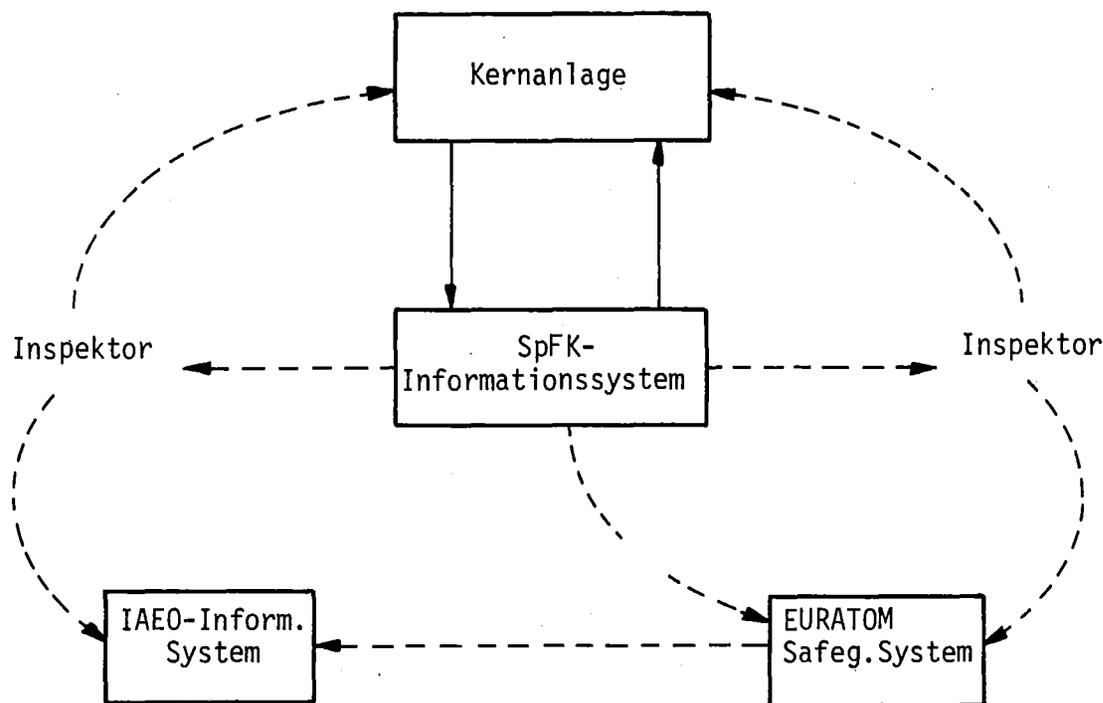


Abb. 1-6: Rolle des SpFK-Informationssystems im Rahmen der internationalen Kernmaterial-Kontrolle

Die Verschiedenartigkeit der Anforderungen der innerhalb des KfK angeschlossenen Institute erforderte ein anwenderinvariantes Systemkonzept, das die Anwendbarkeit des Systems auch in anderen der Spaltstoffflußkontrolle unterworfenen Anlagen ermöglicht.

Das DV-System dient zur Speicherung, Änderung und Archivierung von Daten über Kernmaterialbestände und Bestandsänderung im Kernforschungszentrum und Bilanzierung und Protokollierung der Materialbestände für Betreiber und Inspektoren.

Die Sensitivität der Daten erfordert neben Datensicherheit (Schutz vor Verlust und Verfälschung von Daten) vor allem auch Maßnahmen zum Datenschutz (z.B. Abwehr unbefugter Bediener Eingriffe, Schutz vor Bedienungsfehlern).

Im Rahmen der Kernmaterialkontrolle werden mit Hilfe des Systems folgende Bilanzierungs- und Protokollisten erstellt:

- EURATOM-Buchungsberichte für jede MBZ nach EURATOM-Verordnung /1-16/;
- Buchungsprotokolle, die die Primär- und Chargendaten über die Transfers, Bearbeitung und Meßanalysen der Kernmaterialbestände in der Anlage enthalten;
- Betriebsprotokolle für die Betriebsdaten in verschiedenen Instituten des Kernforschungszentrums;
- Bestandsmeldungen über das Kernmaterial in Instituten, Räumen (Lager, Labor) und Boxen;
- Inspektionslisten, die für die Planung und Durchführung einer Inspektion notwendig sind.

Das DV-System (siehe Abb. 1-7) besteht aus einem Dialogteil, einem Datenverwaltungssystem (DVS) und problemorientierten Funktionen. Der Dialogteil bildet einerseits die Schnittstelle zwischen Bediener und System und enthält andererseits Hilfsmittel zum Definieren der Benutzerdialoge.

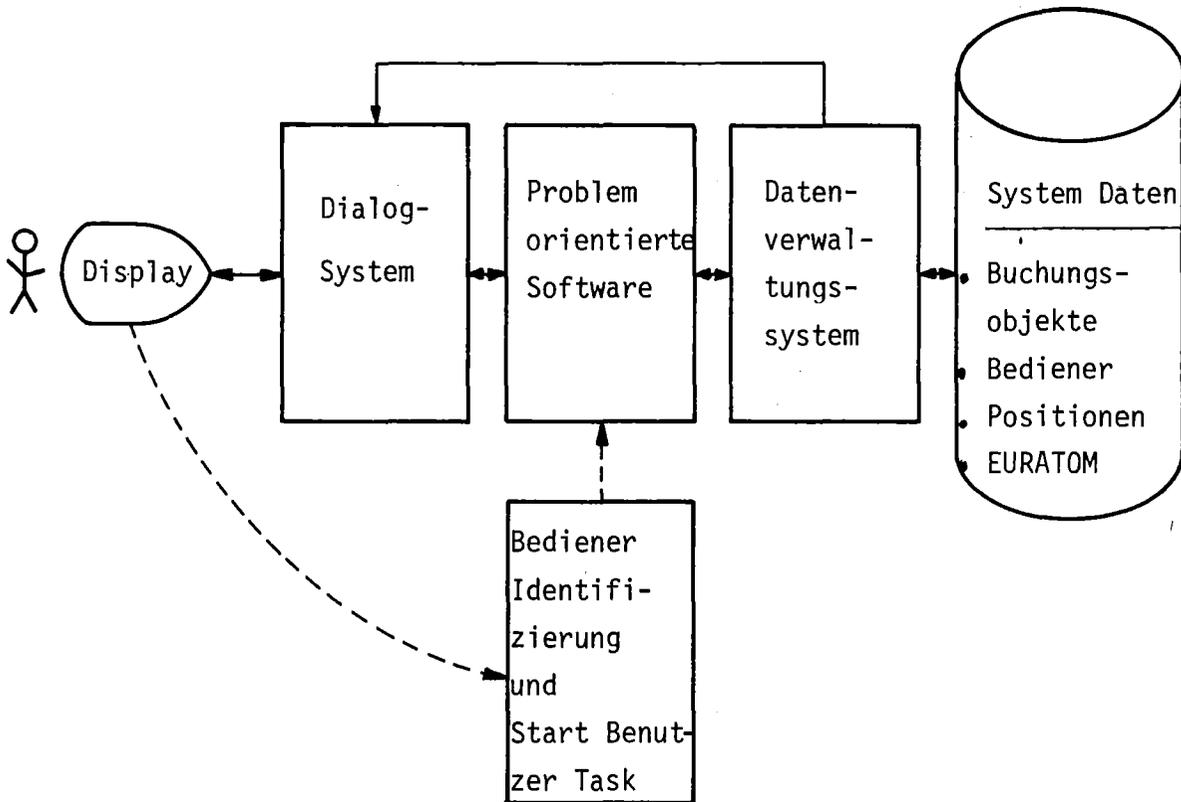


Abb. 1-7: Prinzipieller Aufbau des DV-Systems

Der Dialogteil veranlaßt die Ausführung problemorientierter Funktionen, übergibt an sie korrekte Bedienereingaben oder bereitet System-Ausgaben auf und übergibt sie an den Bediener.

Das DVS erlaubt u.a. eine komfortable Verwaltung von Daten auf Platten-speichern und spielt eine wesentliche Rolle bei den Maßnahmen zur Daten-sicherung.

Beide Moduln sind problemunabhängig. Der dritte Modul, die problemorien-tierte Software, enthält Funktionen für die Buchführung und die Proto-kollierung der Kernmaterialbestände.

Das System wird auf einem Prozeßrechner SIEMENS 330 mit alphanumerischen Sichtgeräten in Standard-FORTRAN implementiert. Es ist leicht auf andere Kleinrechner übertragbar.

### 1.4.3 Das Datenverwaltungssystem (DVS)

F.-J. Polster, R. Kerpe

Aufgabe des DVS ist die Verwaltung der Daten auf Peripheriespeichern; hierzu gehören also insbesondere

- das Ablegen von Daten in Plattendateien (d.h. das Abspeichern von Daten)
- das Wiederauffinden und Bereitstellen von gesuchten Daten (Retrieval-operation)
- Maßnahmen und Verfahren zur Datensicherung (Schutz vor Verlust von Daten aufgrund von software- oder hardware-Fehlern).

Hierfür wurde im Jahr 1977 das DVS FADABS (Flexibles, Aadaptierbares Daten Bank System) entworfen und die Programmierung dazu begonnen. Für den Entwurf waren folgende Anforderungen von Bedeutung:

- F 1: FADABS soll ein hohes Maß an Datenunabhängigkeit bieten: für den Anwender bzw. das Anwenderprogramm soll es unwesentlich sein, auf welche Weise die Daten und Dateien organisiert sind oder welche Zugriffsverfahren vorhanden oder implementiert sind.
- F 2: FADABS soll adaptierbar sein: das System soll z.B. zur Ausführung einer Retrievaloperation aus den möglichen, verfügbaren Zugriffsverfahren ein optimales Verfahren automatisch auswählen. (Diese Forderung ergibt sich notwendigerweise aus F 1).
- F 3: FADABS soll flexibel sein: das System muß so aufgebaut sein, daß, falls notwendig, neue Speicherungsformen leicht in das System inkorporiert werden können, um z.B. bestimmte Operationen innerhalb vorgegebener Zeiten durchführen zu können.
- F 4: FADABS muß eine Schnittstelle für den FORTRAN-Programmierer besitzen. Dies ergibt sich aus dem Bestreben, das SpFK-System möglichst weitgehend in FORTRAN zu implementieren (vgl. 1.4.2).

Näher soll an dieser Stelle nur auf F 1 und F 4 eingegangen werden:

Um der Forderung nach Datenunabhängigkeit (F 1) gerecht zu werden, implementiert FADABS ein relationales Datenmodell: Zum Verständnis des Folgenden genügt es, "Relation" bzw. "Tupel" als Synonyme zu "Datei" bzw. "Satz" (oder "record") zu betrachten; "Attribut" entspricht dem Begriff "(Daten-)Feld".

Die Forderung F 4 (Bereitstellung einer FORTRAN-Schnittstelle) bedeutet, daß FORTRAN um die Konzepte und Fähigkeiten von FADABS zu erweitern ist; wesentlich dabei ist, daß diese Schnittstelle leicht erlernbar und handhabbar ist.

Zu diesem Zweck wurde die Datenmanipulationssprache FORDAM entworfen. FORDAM ist also in FORTRAN eingebettet; FORDAM-Anweisungen können an beliebiger Stelle im Programm auftreten, jede Zeile, die eine FORDAM-Anweisung (oder einen Teil davon) enthält, beginnt mit "\*\*\*".

Die Erläuterung des Beispielprogramms in Abb. 1-8 soll dies verdeutlichen: Es wird eine Relation

NUCMAT (INST, MAT, WEIGHT, LOC, ...)

angenommen, deren Tupel das Kernmaterial im KfK beschreiben: für jedes Material, über das Buch zu führen ist, existiert ein Tupel in NUCMAT; INST gibt das Institut an, in dem sich das Material befindet, MAT beschreibt die Art des Materials (Pu oder U), WEIGHT und LOC enthalten das Gewicht bzw. den genauen Ort innerhalb des Instituts.

Aufgabe des Programms ist es, für jedes Pu-Material im IMF das Gewicht und den Lagerort aufzulisten.

Hierzu wird in Zeile 15 die Relation NUCMAT eröffnet und anschließend die Menge der Tupel (hier also die Materialien), die der Qualifikation Q (Zeile 4-6) genügen, dem Namen PULIST zugeordnet. Die Qualifikation beschreibt die in der Problemstellung gegebenen Materialien und ist selbst-erklärend. Der Aufruf in Zeile 21 bewirkt das Holen eines Tupels aus PULIST und die Übergabe der Werte von WEIGHT bzw. LOC an die Programmvariablen

```
1      INTEGER*2  ORT(10)
2      REAL      GEW
3      C
4      **      DEFINE QUALIFICATION Q / NUCMAT
5      **              INST .EQ. 'IMFIII' .AND. MAT .EQ. 'PU'
6      **              /
7      **      DEFINE QSS PULIST
8      **      DEFINE TUPLE PUIMF /NUCMAT,
9      **              (WEIGHT,GEW),
10     **              (LOC  ,ORT)
11     **              /
12     C
13     C      RELATION EROEFFNEN, QUALIFIZIERTE TEILMENGE BESTIMMEN
14     C
15     **      OPEN NUCMAT FOR RETRIEVAL
16     **      ASSIGN Q TO PULIST
17     C
18     C      RETRIEVAL UND AUFLISTEN
19     C
20     10     CONTINUE
21     **      RETRIEVE PUIMF FROM PULIST, ON EMPTY QSS GO TO 900
22     **      WRITE(6,1000) ORT,GEW
23     **      GO TO 10
24     C
25     900    CONTINUE
26     C      LISTE IST VOLLSTAENDIG
27     C
28     **      CLOSE NUCMAT
29     C
30     STOP
31     1000   FORMAT(5X,10A2,5X,F10.4)
32     END
```

GEW bzw. ORT gemäß der durch PUIMF gegebenen Vorschrift (Zeile 8-11). Anschließend folgt die Verarbeitung dieser Daten, hier das Ausdrucken. Wenn die Menge PULIST erschöpft ist, wird mit der Anweisung 900 fortgefahren, d.h. NUCMAT geschlossen (Zeile 28) und das Programm beendet.

#### 1.4.4 Der prinzipielle Aufbau des Dialogteils

V. Jarsch, G. Tretter

Innerhalb des gesamten DV-Systems ist der Dialogteil sowohl Schranke als auch Bindeglied zwischen Bediener und System (z.B. Daten). Seine Aufgabe ist die Transformation der Bedienereingaben in das System einerseits und der umgekehrte Vorgang andererseits.

Ziel jeder Transformation ist die Abbildung der Bedienereingaben in eine formale Darstellung eines Datums im Inter-Modul-Kommunikationsbereich bzw. die umgekehrte Abbildung von Daten aus dem Kommunikationsbereich in eine dem Bediener verständliche Darstellung.

Die Abbildung Bedienereingabe → interne formale Darstellung beinhaltet nicht nur die Projektion einer Darstellung in eine andere, sondern auch die Prüfung der Zuverlässigkeit und der syntaktischen und semantischen Korrektheit der Eingaben, soweit dies im Rahmen der geforderten schrittweisen Fehlerprüfung möglich ist. (In jedem Schritt kann nur Widerspruchsfreiheit zu bereits bekannten Daten geprüft werden).

Jeder Dialogschritt kann als "Skinner-Frame" (Reiz-Reaktion-Verstärkung) gesehen werden.

Für die gegenwärtige Realisierung im Rahmen des SpFK-DV-Systems heißt das, daß der Dialogersteller einen Dialog mittels wiederholter Anwendung zweier höherer Funktionen erstellt:

- einer Reiz-Funktion (z.B. Frage an den Benutzer) und
- einer Reaktion-Verstärkung-Funktion (Transformation der Eingabe, Prüfung und Rückmeldung an den Bediener, ggf. auch an die Zentrale).

Für den Dialog bedeutet das im Sinn der schritthaltenden Fehlerprüfung, daß die in einer Reiz-Reaktion-Verstärkung-Einheit gewonnenen Eingabedaten nach Verlassen dieser Einheit korrekt sind.

Es gibt also für den Dialogprogrammierer je eine Funktion für die Ausgabe und für die Eingabe, wobei der Typ der Daten, also die Transformationsvorschrift, als Parameter angegeben wird.

Transformationen, die über die im System enthaltenen hinausgehen, müssen vom Dialogersteller selbst programmiert werden, wobei vorhandene Transformationen benutzt werden können.

Ein weiterer Parameter der Funktionen ist der Modus, in dem sich das System befindet.

Modi können sein:

- normaler Durchlauf
- Schnelldurchlauf
- Schnelldurchlauf bis zum ersten nicht definierten Wert
- Schnelldurchlauf bis zur ersten Korrektur eines Datums durch den Bediener
- Abbruch oder
- Unterbrechung der Sitzung
- Fehler.

Der Modus kann vom Bediener explizit durch Kommandos oder implizit (z.B. durch Fehler) beeinflußt werden. Er steuert den weiteren Verlauf eines Dialogs, ist aber für den Dialogdefinierer im Normalfall unsichtbar, so daß dieser keine Fehlerprüfungs- und Kontrollstruktur aufbauen muß. Die modusabhängige Programmsteuerung ist u.a. ein Hilfsmittel für die nachträgliche Korrektur von Eingabefehlern.

#### 1.4.5 Systemanalyse eines DV-Systems für die SpFK bei der Firma

Reaktor-Brennelement Union GmbH

J. Voit

Das Institut für Datenverarbeitung in der Technik hat 1977 die Zusammenarbeit mit der RBU auf dem Gebiet der Systemanalyse eines rechnergestützten SpFK-Systems aufgenommen. Das geplante DV-System soll bei RBU

alle Kernmaterialbewegungen und -bestände in der Fertigung und im Lager erfassen, den jeweiligen Buchbestand bestimmen, Bestandslisten ausgeben und die Berichte für EURATOM (Bestandsänderungsbericht, Aufstellung des realen Bestandes und Materialbilanzbericht, vgl. /1-17/) erstellen.

Im wesentlichen wurde unter Verwendung überlassener Unterlagen und früherer Untersuchungsergebnisse /1-12/ in engem Kontakt mit RBU eine Istanalyse des Kernmaterialflusses und -bestandes durchgeführt /1-17/ und das bestehende Belegsystem daraufhin überprüft, ob es den neuen EURATOM-Anforderungen genügt und ob es in seiner jetzigen Form für die Übernahme auf ein DV-System geeignet ist. Die Anforderungen, die RBU aus betrieblicher Sicht an ein DV-System für die SpFK stellt, wurden erhoben. Außerdem wurde eine Standortliste für die Durchführung einer rechnergestützten Inventur bei RBU erarbeitet.

Mit der Aufnahme der Ein- und Ausgabedaten für das DV-System der SpFK wurde begonnen.

Die eigentliche Systemanalyse, d.h. die Bestimmung der Hardware-Konfiguration des DV-Systems und die Beschreibung seiner Funktionen, wird 1978 durchgeführt.

1.5 Literaturverzeichnis zu Kapitel 1

- /1-1/ Bahm, W.; Didier, H.J.; Gupta, D.; Schwegmann, P., 1976  
(unveröffentlicht)
- /1-2/ Bahm, W.; Didier, H.J.; Gupta, D.; Klos, A.; Schwegmann, P.;  
Weppner, J., 1978 (unveröffentlicht)
- /1-3/ "The Structure and Content of Agreements between the Agency and  
States Required in Connection with the Treaty on the Non-  
Proliferation of Nuclear Weapons", International Atomic Energy  
Agency, Report No. INFCIRC/153, Vienna, May 1971
- /1-4/ "Übereinkommen vom 5. April 1973"... "in Ausführung von Artikel  
III, Absätze 1 und 4 des Vertrages vom 1. Juli 1968 über die  
Nichtverbreitung von Kernwaffen", Bundesgesetzblatt, Jahrgang  
1974, Teil II, Nr. 32
- /1-5/ Frick, H.  
"Spieltheoretische Behandlung von Materialbilanzierungsproblemen"  
KfK 2564, Dezember 1977
- /1-6/ Presbindowski, D.L.  
"Theory of Present and Future Safeguards Applications of  
Isotopic Ratios", BNWL-SA-4276 (1972)
- /1-7/ Bell, M.J.  
"ORIGEN - The ORNL Isotope Generation and Depletion Code"  
ORNL-4628 (1973)
- /1-8/ Goel, B.; Weller, F.  
"Evaluation for the German Nuclear Data Library KEDAK 3. Part 2.  
Fissile and Fertile Materials", KfK 2386/III (1977)

- /1-9/ Suich, J.E.; Honeck, H.C.  
"The HAMMER System", DP-1064 (1967)
- /1-10/ Barry, F.R.  
"LEOPARD - A Spectrum Dependent Non-Spatial Depletion Code"  
WCAP-3741 (1963)
- /1-11/ Langenbuch, S.; Maurer, W.; Werner, W.  
"QUABØX/CUBBØX - Ein Grobgitterverfahren zur Lösung der  
Neutronendifferenzgleichungen", MRR-P-22 (1976)
- /1-12/ Avenhaus, R.; Golly, W.; Krüger, F.J.  
"Kernmaterialbilanzierung und Datenverifikation in der Brenn-  
elementfabrikationsanlage der Reaktor-Brennelement Union Hanau"  
KfK 2403, Juni 1977
- /1-13/ Avenhaus, R.  
"Material Accountability - Theory, Verification, Application"  
J. Wiley, New York, Chicester, Dezember 1977
- /1-14/ Avenhaus, R.; Frick, H.  
"Eine Ungleichung für normalverteilte Zufallsvariablen und  
ihre Anwendung bei Materialbilanzierungsproblemen", Beitrag zur  
Operations Research Konferenz, Aachen, September 1977
- /1-15/ Avenhaus, R., 1977 (unveröffentlicht)
- /1-16/ Kommission der Europäischen Gemeinschaften, Verordnung (EURATOM)  
Nr. 3227/76 der Kommission vom 19. Oktober 1976 zur Anwendung  
der Bestimmungen der EURATOM-Sicherungsmaßnahmen in Amtsblatt  
der Europäischen Gemeinschaften, 19. Jahrgang, Nr. L 363 vom  
31. Dezember 1976
- /1-17/ Voit, J., 1977 (unveröffentlicht)

	<u>Seite</u>
2. <u>Implementierung von Überwachungssystemen</u> (Vorhaben 07.01.03)	2-1
2.1 Einführung der EURATOM/IAEO-Kernmaterial- überwachung in kerntechnischen Anlagen der Bundesrepublik	2-1
2.1.1 Übersicht über die Arbeiten Chr. Brückner, G. Bork, K.H. Pfeffer	2-1
2.1.2 Zur Abschätzung der Ungenauigkeit einer Kern- materialbilanz in einer Mischoxid-Fabrikations- anlage, untersucht am Beispiel der Fa. ALKEM G. Bork, Chr. Brückner, W. Hagenberg, V. Raschendorfer	2-2
2.2 Implementierung von direkten Methoden	2-17
2.2.1 Automatisierung der Uran- und Plutonium- konzentrationsbestimmung durch Röntgen- fluoreszenzanalyse J. Neuber, S. Flach, R. Braun	2-17
2.3 Implementierung von zerstörungsfreien Methoden	2-21
2.3.1 In-Line Meßsystem zur Bestimmung der $^{235}\text{U}$ - Anreicherung in einer LWR-Brennelement- Fabrikationsanlage P. Matussek, H. Ottmar	2-21
2.3.2 Eichstandards für gammaspektrometrische $^{235}\text{U}$ -Anreicherungsmessungen P. Matussek, H. Eberle	2-22

	<u>Seite</u>
2.3.3 Anlage zur Bestimmung des Plutoniumgehalts von schwach- und mittelaktiven Abfällen in 200-l-Fässern durch Messung der Spalt- neutronen W. Eyrich, M. Kühle	2-24
2.4 Kernmaterial-Überwachungssystem für For- schungszentren R. Buttler, G. Stein	2-25
2.5 Kontrollsystem für Kugelhaufenreaktoren H. Engelhardt	2-28
2.6 Literaturverzeichnis zu Kapitel 2	2-30

2. Implementierung von Überwachungssystemen  
(Vorhaben 07.01.03)
- 2.1 Einführung der EURATOM/IAEO-Kernmaterialüberwachung in kerntechnischen Anlagen der Bundesrepublik
- 2.1.1 Übersicht über die Arbeiten  
Chr. Brückner, G. Bork, K.H. Pfeffer

Die Arbeiten auf dem Gebiet der Kernmaterialüberwachungs-Implementierung konzentrierten sich im Berichtsjahr auf drei Schwerpunkte:

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

Für das Kernforschungszentrum Karlsruhe wurden die "Grundlegenden Technischen Merkmale" zusammengestellt und EURATOM übersandt. Sie sind als "design informations" an die IAEO weitergeleitet worden. Im Auftrag des BMFT wurden IAEO-Inspektionen und -Besuche in GWK, NUKEM, ALKEM, RBU, VAK und im KfK beobachtet und über sie berichtet, an Verhandlungen über facility attachments für GWK, LWR und SUR teilgenommen und in Zusammenarbeit mit den Betreibern Stellungnahmen ausgearbeitet /2-1/.

2. Arbeiten zur Kernmaterialüberwachung in der Fa. ALKEM

Im Rahmen eines Zusammenarbeitsvertrags standen Arbeiten zur Einführung eines EDV-Systems (Zusammenstellung von Anforderungen) und zur Ergänzung der design informations (Zusammenstellung der Meßgenauigkeiten, Berechnung der erreichbaren Bilanzierungsgenauigkeit) in engem Kontakt mit Betreiber und EURATOM im Vordergrund. Über die Ergebnisse der letztgenannten Arbeit wird im folgenden berichtet.

3. Arbeiten zu Containment- und Surveillance-Maßnahmen

Gemeinsam mit einem Unterausschuß des VDEW-Arbeitskreises "Kernmaterialüberwachung" und EURATOM, Ispra, wurden Arbeiten an Versiegelungsverfahren für LWR-Brennelemente wieder aufgenommen. Bisherige

Ergebnisse sind die Klärung der Entwicklungspotentiale und die Zusammenstellung der Anforderungen. Die Arbeiten sollen in ein geplantes Zusammenarbeitsprogramm mit der IAEO aufgenommen werden. Ebenfalls in den Rahmen des geplanten Zusammenarbeitsprogramms fallen Arbeiten zum Aufbau eines Film-Kamerasystems, mit denen begonnen wurde. Das teilaufgebaute System wurde am KKW Stade und an der WAK getestet. Über seinen Aufbau ist an anderer Stelle berichtet /2-1/.

- 2.1.2 Zur Abschätzung der Ungenauigkeit einer Kernmaterialbilanz in einer Mischoxid-Fabrikationsanlage, untersucht am Beispiel der Fa. ALKEM  
G. Bork, Chr. Brückner, W. Hagenberg, V. Raschendorfer

#### Zusammenfassung

Aufgrund der EURATOM-Verordnung Nr. 3227/1976, Artikel 1 ist jeder Betreiber einer kerntechnischen Anlage verpflichtet, der Kommission der Europäischen Gemeinschaften die grundlegenden technischen Merkmale der Anlage gemäß dem entsprechenden Musterformblatt nach Anhang I der Verordnung anzugeben. Dieser Anhang I enthält verschiedene Fragebögen für die verschiedenen Anlagentypen. Für Konversions-, Fabrikations- und Wiederaufarbeitungsanlagen ist unter anderem folgendes anzugeben:

Beschreibung der Methoden zur statistischen Auswertung der im Rahmen der Programme zur Qualitätskontrolle der Messungen gewonnenen Daten hinsichtlich der systematischen und zufälligen Fehler und zur Abschätzung der Meßungenauigkeit (d.h. Bestimmung der zufälligen und systematischen Meßfehler und der jeweiligen Fehlergrenzen); Beschreibung der statistischen Verfahren, die zur Kombination einzelner Meßfehlerabschätzungen benutzt werden, um die Gesamtfehlergrenzen für Absender/Empfänger-Differenzen, den Buchbestand, den realen Bestand und das nicht nachgewiesene Material zu erlangen.

Die vorliegende Arbeit umfaßt die geforderte Abschätzung der Unsicherheit, mit der die Materialbilanz bei der Fa. ALKEM aufgrund zufälliger und systematischer Fehler geschlossen werden kann. Sie enthält die benutzten

Formeln und erläutert das Verfahren. Die Ergebnisse können unter bestimmten Randbedingungen als repräsentativ für diese Anlage angesehen werden.

### Allgemeine Vorbemerkungen

#### Bilanzierung und "nicht nachgewiesenes Material"

Für die Überwachung des Kernmaterials in einer kerntechnischen Anlage durch unabhängige Kontrollinstitutionen bildet die vom Anlagenbetreiber aufgestellte Kernmaterialbilanz eine wesentliche Grundlage. Die Bilanz bezieht sich auf einen vorgegebenen Bilanzierungszeitraum und bedeutet die Gegenüberstellung des realen Bestandes am Ende des Bilanzierungszeitraumes (B2) mit dem Sollbestand (Buchbestand) zum gleichen Zeitpunkt, wobei sich dieser aus dem realen Bestand (B1) am Anfang des Bilanzierungszeitraumes zuzüglich der Summe der Eingänge (E) und abzüglich der Summe aller Ausgänge (A) während des Bilanzierungszeitraumes errechnet. Die Differenz zwischen dem Buchbestand und dem realen Bestand (B2) wird als "nicht nachgewiesenes Material = material unaccounted for (MUF)" bezeichnet. Die Bilanzgleichung lautet für den Bilanzierungszeitraum demnach

$$\text{MUF} = \text{B2} - (\text{B1} + \text{E} - \text{A})$$

Der Erwartungswert für das nicht nachgewiesene Material ist Null, sofern kein Material "abgezweigt" wurde. Da jedoch alle Summanden der Bilanzgleichung aus Messungen stammen, die als unabhängig vorausgesetzt werden, sind die Summanden selbst und damit MUF fehlerbehaftet, und MUF besitzt einen Unsicherheitsbereich um den Erwartungswert Null. Die Varianz von MUF ist

$$\text{var}(\text{MUF}) = \text{var}(\text{B2}) + \text{var}(\text{B1}) + \text{var}(\text{E}) + \text{var}(\text{A})$$

#### Abzweigungsstrategien und Verifikationsmodelle

Eine Abzweigung von Kernmaterial ist denkbar

- mit Verfälschung der in die Bilanz eingehenden Daten für das Material, so daß die Bilanz scheinbar "aufgeht"
- ohne Verfälschung der Daten.

Dementsprechend muß die Kernmaterialüberwachung durch die Kontrollbehörden zwei Tätigkeiten umfassen:

- die Verifikation der Eingangsdaten der Bilanz durch Nachmessung, ggfs. stichprobenweise, sowohl der vom Betreiber in Bestandsänderungsberichten gemeldeten Bestandsänderungen, als auch der in Aufstellungen des realen Bestandes aufgelisteten Anfangs- und Endbestände (Datenverifikation)
- die Nachrechnung der Bilanz und die Bewertung des MUF.

Beide Schritte geschehen nach der gegenwärtig geübten Überwachungspraxis insofern unabhängig voneinander, als die Bilanzprüfung, mit Ausnahme bei Aufdeckung offensichtlicher Fehler, auf der Grundlage der vom Betreiber gemessenen und angegebenen Daten und nicht mit den bei der Datenverifikation von den Kontrollbehörden gefundenen Werten durchgeführt wird.

Die Datenverifikation erfolgt unter Berücksichtigung der bei den Einzelmessungen - des Betreibers wie denen der Inspektoren der Kontrollbehörde - auftretenden Fehler.

Die Bewertung des MUF muß die Unsicherheit der Bilanzierung, die sich in der Varianz des MUF bzw.  $\sigma(\text{MUF}) = \sqrt{\text{var}(\text{MUF})}$  ausdrückt, berücksichtigen. Mit anderen Worten: Will man bei der Bewertung einer Bilanz, die nicht  $\text{MUF} = 0$  ergibt, entscheiden, ob der Verdacht einer Abzweigung gerechtfertigt ist, muß man zunächst den durch zufällige und systematische Fehler bewirkten, also vom Meßsystem der Anlage bestimmten "natürlichen" Unsicherheitsbereich von MUF kennen.

Aus diesem Grunde gehören sowohl die Auflistung der Meßunsicherheiten als auch die Berechnung des Unsicherheitsbereiches von MUF zu den vom Betreiber an die Überwachungsbehörde zu übermittelnden Informationen über seine Anlage.

## Der Materialfluß in der Fabrikationsanlage ALKEM

### Allgemeines

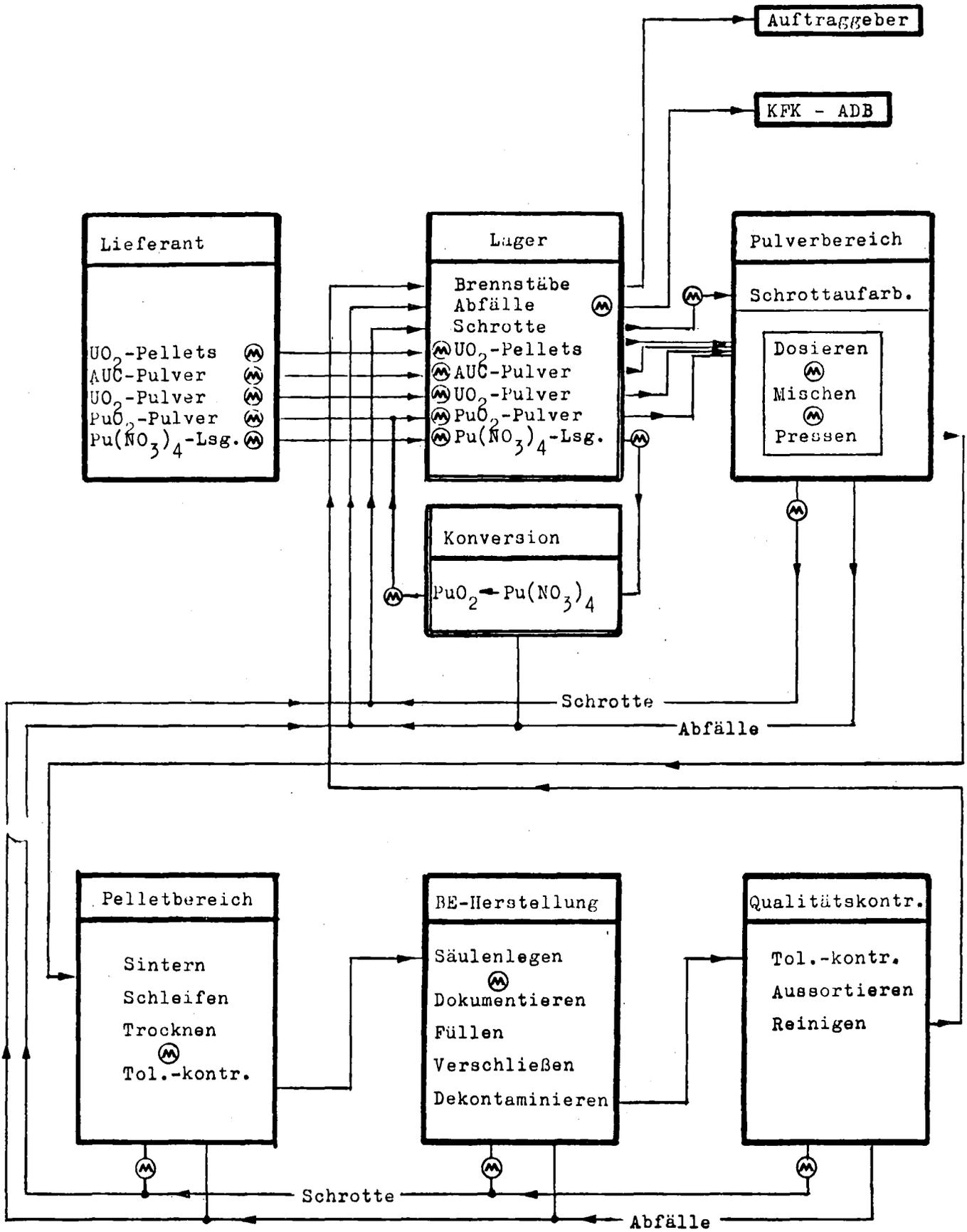
-----

Die Fabrikationsendprodukte der Fa. ALKEM sind Brennstäbe für Leichtwasserreaktoren und für schnelle Reaktoren. Als Ausgangsmaterial hierfür dienen Plutoniumnitrat, Plutoniumdioxid und Urandioxid. Die Fabrikationsstätte umfaßt eine Fabrikationshalle, in der Stahlcaissons für die einzelnen Verarbeitungsbereiche aufgestellt sind, die aus Sicherheitsgründen gegeneinander abgeschottet sind. Die eigentliche Verarbeitung erfolgt in  $\alpha$ -dichten Handschuhkästen, die zum Materialtransport mit ebenfalls  $\alpha$ -dichten Transportkanälen mit entsprechenden Schleusen untereinander verbunden sind. Die Einrichtungen der Anlage sind weitgehend mechanisiert und werden teilweise automatisch betrieben. Die Verarbeitung des Brennstoffes erfolgt portionsweise, wobei Größe und Anzahl der Portionen für die einzelnen Betriebsbereiche je nach deren Verarbeitungskapazität variieren. Wegen der unterschiedlichen Anforderungen an das Fertigprodukt verläuft der Betrieb in Kampagnen, deren Umfang sich nach der Auftragsmenge richtet.

### Die Verarbeitung des Materials

-----

Alles angelieferte Material wird zunächst dem Lagerbereich zugeführt. Das Plutoniumnitrat wird als salpetersaure Lösung in ca. 10 l fassenden Stahlflaschen angeliefert und nach einer Brutto-Tara-Wägung sowie einer Pu-Konzentrationsbestimmung in Vorrattanks abgefüllt, wobei es mit Restbeständen früherer Lieferungen vermischt werden kann. Aus diesen Tanks wird das Material in Portionen (Volumen- und Konzentrationsmessung) entnommen, die jeweils einer Konversionscharge entsprechen. Die Konversion verläuft über die Zwischenstufe Pu-Oxalat durch anschließende Kalzination zu  $\text{PuO}_2$ . Noch in der flüssigen Phase des Prozesses findet die Abtrennung des aus dem Pu-Isotop 241 durch  $\beta$ -Zerfall entstandenen Americium statt. Das entstandene  $\text{PuO}_2$ -Pulver wird gewogen und ins Lager zurückgeführt.



Ⓜ - Meßstelle

Abb. 2-1: Vereinfachtes Materialfließschema der Fa. ALKEM GmbH

Zur Herstellung des Brennstoffes werden dem Lager  $\text{PuO}_2$ ,  $\text{UO}_2$ , ggf. Ammonium-Uranyl-Carbonat-Pulver (AUC) oder andere Additive sowie geeignete Schrotte entnommen und im Pulverbereich entsprechend dem vorher berechneten Mischungsverhältnis dosiert und dem Mischer zugeführt. Die beigegebenen Schrotte wurden vorher aufgearbeitet, d.h. gemahlen, gesiebt und homogenisiert. Von der Brennstoffmischung werden Proben entnommen und an diesen überprüft, ob sich die berechnete Materialzusammensetzung tatsächlich eingestellt hat. Gegebenenfalls müssen einzelne Komponenten nachdosiert werden. Nach Feststellung der Gesamtmenge des Mischpulvers und der genauen Anteile der einzelnen Komponenten (Wägung und chemische Analyse) wird das Material der Pelletpresse zugeführt. Beim Preßvorgang entstehen Schrotte, die nach Arten (Grünschrott und Rücklaufpulver) getrennt gesammelt und gewogen werden, um sodann in das Lager gebracht zu werden. Die Grünlinge werden gezählt in den Pelletbereich transferiert, wo sie nach einer puffernden Zwischenlagerung gesintert werden. Nach dem Sintern wird an entnommenen Proben sowohl die chemische wie auch die Isotopenzusammensetzung des Materials festgestellt. Die Sinterlinge werden sodann geschliffen, gewaschen und getrocknet, danach durch Wägen von jeweils ca. 20 Pellets deren mittleres Gewicht bestimmt und sodann der Oberflächenkontrolle unterworfen. Die bei diesen Prozessen entstehenden Schrotte werden ebenfalls wieder gesammelt, gewogen und ins Lager zurückgeführt. Die nunmehr maßgerechten Pellets werden entsprechend der Spezifikation der Brennstäbe zu Teilsäulen auf besonderen Paletten zusammengelegt (je Palette ein Stab). Hier erfolgt die Dokumentation der Zusammensetzung jeder einzelnen Säule mit Zuteilung einer Kennzeichnung. Nach nochmaligem Trocknen der Teilsäulen werden diese in die Brennstabhülle eingeführt. Durch die an dieser Stelle erfolgende Kopplung der Brennstabnummer mit der Kennzeichnung der Brennstoffsäule wird der Inhalt des Brennstabes in einer Brennstabkarte festgehalten. Die Hülle wird dann evakuiert, mit Schutzgas geflutet und zugeschweißt. Mit der Brennstabendkontrolle wird das Fertigprodukt einer letzten Prüfung unterzogen, um sodann im Lagerbereich bis zum Transport an den Auftraggeber verwahrt zu werden. Die bei der Endkontrolle ausgeschiedenen Stäbe werden in den Produktionsprozeß zurückgeführt.

Der an fast allen Produktionsstellen ebenso wie im Analytikbereich entstehende Abfall wird je nach seiner Beschaffenheit (flüssig oder fest, ggf. brennbar oder nicht brennbar) behandelt, sortiert, in Plastiksäckchen eingeschweißt und letztlich in 200-l-Fässern gesammelt.

## Randbedingungen für die Bilanzierung

### Kernmaterialarten

Die Fa. ALKEM verwendet Uran verschiedener Anreicherungsgrade und Plutonium zur Herstellung von Reaktorbrennstäben. Da nach der genannten EURATOM-Verordnung das Kernmaterial in den Kategorien

- abgereichertes Uran
- Natururan
- angereichertes Uran mit bis zu 20 % U-235-Gehalt
- angereichertes Uran mit über 20 % U-235-Gehalt
- Plutonium

getrennt bilanziert werden muß, wurde auch die Abschätzung der Bilanzierungsunsicherheiten für jede Kategorie einzeln vorgenommen.

Das gesamte zu betrachtende Kernmaterial wird derart in Kernmaterialarten eingeteilt, daß jeder Art eine bestimmte Kombination von Meßverfahren mit gleichbleibenden zufälligen und systematischen Fehlerwerten zugeordnet werden kann. Für die Prozeßeingangsmaterialien (Pu-Nitrat, Pu-Oxid, U-Oxid und AUC-Pulver) ist diese Einteilung ohne weiteres möglich. Um das Prinzip auch für die Materialien beibehalten zu können, die aus Mischungen von Pu- und U-haltigen Substanzen bestehen (Mischoxid-Pulver, -Pellets, Brennstäbe, Schrotte) muß mit Rücksicht auf das Produktionsprogramm der Fa. ALKEM die Annahme getroffen werden, daß es zwei Arten gemischten Materials gibt, die sich sowohl in ihrem Pu-Gehalt, als auch im U-235-Gehalt stark unterscheiden.

Der numerischen Durchführung der Abschätzung wurden die vom Betreiber in der Zeit vom 1. September 1976 bis 31. August 1977 an die Überwachungsbehörde EURATOM übermittelten monatlichen Bestandsmeldungen (Nachweise IIIa und b) zugrunde gelegt.

### Korrelierte Werte /2-1/

Die oben angegebene Gleichung für die Beiträge von Unsicherheiten von Bestands-, Eingangs- und Ausgangsmessungen zur Bilanzierungsunsicherheit, d.h. zu  $\sigma_{\text{MUF}} = \sqrt{\text{var}(\text{MUF})}$  geht davon aus,



$$\begin{array}{r}
 B_1: M_x \pm \sigma_{M_x} \\
 B_2: M_x \pm \sigma_{M_x} \\
 \hline
 \text{Bilanz : } 0 + 0
 \end{array}$$

weder ein Beitrag zum MUF noch zu dessen Ungenauigkeit geleistet wird. Sie gelten als "korrelierte Kernmaterialmengen" und müssen vor der Berechnung der Bilanzierungsungenauigkeit aus den Bestands- bzw. Eingangs- und Ausgangslisten eliminiert werden. Die zur Berechnung herangezogenen Restmengen werden als "bereinigte Elementmasse" bezeichnet.

### Meßverfahren und Meßfehler

Die Feststellung der zu bilanzierenden Elementgewichte (Pu, U in den vier verschiedenen Anreicherungskategorien) geschieht in aller Regel durch eine Kombination von Massenbestimmung der Elementverbindungen bzw. Mischungen derselben und Konzentrationsmessungen, die regelmäßig an einer oder mehreren der Gesamtmasse entnommenen Proben durchgeführt werden. Eine Ausnahme von dieser Regel besteht bei der Abfallmessung.

### Verfahren zur Massenbestimmung

#### Brutto-Tara-Wägung

Die Brutto-Tara-Wägung wird für alle pulverförmigen Substanzen und Schrotte benutzt. Vom Betreiber wurden absolute, zufällige Fehler von  $\pm 1$  g für jeweils eine Wägecharge im 2-5 kg-Bereich angegeben. Bezüglich der systematischen Fehler wird davon ausgegangen, daß diese bei Brutto- und Tarawägung gleich groß (also gewichtsunabhängig) sind und sich deshalb aufheben.

#### Nettowägung

Die Nettowägung wird zur Massenbestimmung von Pellets angewandt. Für die als "Brennstäbe" bezeichneten Materialmengen werden die Daten der letzten Nettowägung der Pellets vor dem Einfüllen in die Brennstabhüllen übernommen und mit diesen bilanziert.

Als absolute zufällige Fehler der Nettowägung wurden vom Betreiber  $\pm 0,1$  g bei Wägechargen von 100-200 g angegeben. Systematische Fehler werden als vernachlässigbar angesehen, weil die Wägeeinrichtungen in kurzen Zeitabständen, z.T. sogar vor und nach jeder Wägung mit Eichgewichten kontrolliert werden. Es handelt sich um Waagen mit digitaler Anzeige.

#### Volumenmessung

Objekt der Volumenmessung ist das in Lösung befindliche Plutoniumnitrat. Bei der Volumenmessung handelt es sich streng genommen um die Ablesung einer Füllstandsanzeige bzw. um die Differenz zweier Füllstandsanzeigen. Der vom Betreiber angegebene relative zufällige Fehler von  $1 \cdot 10^{-2}$  beruht ebenso wie der in gleicher Größe angenommene systematische Fehler auf einer Schätzung.

#### Verfahren zur Konzentrationsbestimmung

---

##### Pu-Faktor-Bestimmung

Zur Bestimmung des Pu-Element-Gehaltes einer Substanz wird bei Fa. ALKEM eine potentiometrische Methode (AgO-Verfahren /2-3/) benutzt. Die vom Betreiber angegebenen Werte für zufällige und systematische Fehler sind unterschiedlich groß für die verschiedenen Substanzen. Sie hängen wesentlich auch von der Größe des Pu-Anteiles in der Substanz ab. Die Messung wird an einer oder mehreren entnommenen Proben durchgeführt. Dabei entstehen zufällige Probenahmefehler, die sowohl auf der mit einem Fehler behafteten Probenmenge wie auch auf Inhomogenitäten der Muttersubstanz beruhen können. Für die Annahme systematischer Probenahmefehler fanden sich keine plausiblen Argumente.

##### U-Faktor-Bestimmung

Die im letzten Absatz erwähnte Methode wird auch zur Bestimmung des U-Elementgehaltes herangezogen, jedoch muß vor der Uran-Bestimmung die Pu-Messung durchgeführt sein. Im übrigen gelten alle Ausführungen des vorherigen Absatzes auch hier.

Messungen am Abfall

## Plutonium im Abfall

Zur Feststellung von Pu-Mengen im Abfall bedient man sich bei Fa. ALKEM einer gammaspektroskopischen Meßmethode, die jedoch große Unsicherheiten aufweist. So ist man bei der Angabe von Fehlern auf Schätzungen angewiesen. Der Betreiber hat die anzunehmenden Fehler mit 30 % für zufällige und 40 % für systematische Fehleranteile angegeben.

Diese Unsicherheit bewirkt, daß in der Gesamtabstschätzung der Bilanzierungungenauigkeit der Abfall den weitaus größten Einzelposten ausmacht.

## Uran im Abfall

Für die hier vorliegende Arbeit wurde wegen Fehlens anderer Angaben von der Tatsache ausgegangen, daß zwischen Plutonium und Uran im Fertigungsprozeß bestimmte, feste Relationen hinsichtlich ihrer korrespondierenden Mengen bestehen. Deshalb konnte die anzusetzende Uranmenge im Abfall aus den Plutoniummengen im Abfall berechnet werden. Natürlich mußte hierfür die gleiche Fehlerbreite angenommen werden wie beim Plutonium, was auch beim Uran zu den gleichen Folgen hinsichtlich der Bilanzierungsunsicherheit führt.

Zur Behandlung der systematischen Fehler

Die verwendeten Werte für systematische Fehler beruhen auf Schätzungen des Betreibers. Da über ihre Herkunft und Art keine genauen Kenntnisse existieren, wurde ihre Auswirkung auf den Gesamtfehler mit zwei verschiedenen Modellannahmen untersucht:

Bei der Modellrechnung 1 wurde angenommen, daß alle bei Eingangs-, Ausgangs- und Bestandsmessungen auftretenden systematischen Fehler unabhängig voneinander sind und ihre Varianzen, bezogen auf die jeweiligen bereinigten Elementmassen, voll als additive Anteile der Varianz von MUF zu berücksichtigen sind.

Die Modellrechnung 2 geht dagegen davon aus, daß Messungen, gleichgültig ob bei Eingangs-, Ausgangs- oder Bestandsbestimmungen, die mit dem gleichen Meßverfahren durchgeführt werden, einen nach Vorzeichen und, bezogen auf die Höhe des Meßwertes, nach der relativen Größe konstanten systematischen Fehler aufweisen. Dies bedeutet, daß zum Beispiel dann, wenn zwei verschiedene, aber in der Masse gleiche Kernmaterialien bei einer Eingangsmessung bzw. bei einer Ausgangsmessung mit dem gleichen Meßverfahren bestimmt werden, sich die systematischen Fehler aufheben. Einen Beitrag zur Gesamtvarianz liefert bei mit einem bestimmten Meßverfahren M erfaßten Kernmaterial nur der systematische Fehler aus der Mengendifferenz:

$$B1(M) + E(M) - (B2(M) + A(M))$$

Zur Abschätzung der Bilanzierungsungenauigkeit benutzte Symbole und Formeln

Verwendete Symbole

M = Masse des Elementes der jeweils betrachteten Sorte (Pu, U<sub>ab</sub>, U<sub>nat</sub>, U<sub>an</sub> ≤ 20 % U-235, U<sub>an</sub> > 20 % U-235), enthalten in der im Referenzzeitraum betrachteten Gesamtmasse des Kernmaterials in der jeweiligen Kernmaterialart

m = wie oben, jedoch enthalten in einer Meßcharge

n = Anzahl der Meßchargen

Δ = absoluter zufälliger Fehler

δ = relativer zufälliger Fehler

δ<sub>s</sub> = relativer systematischer Fehler

Weitere Indices:

BW = Brutto-Wägung

TW = Tara-Wägung

W = Wägung

NW = Nettowägung

V = Volumenbestimmung

F = Elementfaktorbestimmung

P = Probennahme

Verwendete Formeln

-----

Für Brutto-Tara-Wägung und Elementfaktor-Bestimmung und Probenahme-  
fehler:

$$\text{var}(M) = M^2 \cdot \left( \frac{\delta_W^2}{N_W} + \frac{\delta_F^2 + \delta_P^2}{N_F} + \delta_{SF}^2 \right)$$

Für Netto-Wägung und Elementfaktor-Bestimmung mit Probenahmefehler:

$$\text{var}(M) = M^2 \cdot \left( \frac{\delta_{NW}^2}{N_W} + \delta_{SW}^2 + \frac{\delta_F^2 + \delta_P^2}{N_F} + \delta_{SF}^2 \right)$$

Für Volumenbestimmung und Elementfaktor-Bestimmung mit Probenahme-  
fehler:

$$\text{var}(M) = M^2 \cdot \left( \frac{\delta_V^2}{N_V} + \delta_{SV}^2 + \frac{\delta_F^2 + \delta_P^2}{N_F} + \delta_{SF}^2 \right)$$

Für Abfallmessungen:

Plutonium im Abfall:

$$\text{var}(M_{\text{Pu}}) = M_{\text{Pu}}^2 \cdot \left( \frac{\delta_A^2}{N_A} + \delta_{SA}^2 \right)$$

Uran im Abfall:

$$\text{var}(M_U) = M_U^2 \cdot \left( \frac{\delta_W^2}{N_A} + \frac{\delta_F^2}{N_A} + \delta_{SF}^2 \right)$$

Für  $\sigma_{\text{MUF}}$  -Berechnung:

$$\sigma_{\text{MUF}} = \left( \sum \text{var}(M) \right)^{1/2}$$

### Zusammenfassung und Diskussion der Ergebnisse

Die numerische Durchführung der Abschätzung der Bilanzierungsungenauigkeit ist in einem zweiten Berichtsteil enthalten, der beim Betreiber hinterlegt ist. Die Ergebnisse sind in der folgenden Tabelle zusammengestellt:

Kernmaterialsorte	$\sigma_{\text{MUF}}$ (% vom Durchsatz)	
	Modell 1	Modell 2
Plutonium	0,35	0,34
$U_{\text{ab}}$	0,07	0,05
$U_{\text{nat}}$	0,09	0,08
$U_{\text{an}} (<20\% \text{ U-235})$	0,25	0,25
$U_{\text{an}} (>20\% \text{ U-235})$	0,5	0,5

Folgende Erläuterung ist erforderlich: Während die Werte für  $Pu$ ,  $U_{\text{ab}}$ ,  $U_{\text{nat}}$  und  $U_{\text{an}} (>20\%)$  als repräsentativ angesehen werden können, trifft dies für  $U_{\text{an}} (<20\%)$  nicht zu, da der Durchsatz im betrachteten Zeitraum  $D_{U_{\text{an}} (<20\%)} \approx 0$ .

Die Tabelle erlaubt festzustellen, daß

- die Werte für  $\sigma_{\text{MUF}}$  alle deutlich unter 1 % des jährlichen Durchsatzes liegen
- es keinen wesentlichen Unterschied ausmacht, ob die Behandlung der systematischen Fehler nach dem ersten oder zweiten Modell erfolgt.

Im übrigen zeigt die Analyse der numerischen Behandlung der Bilanzierungsunsicherheit, daß der weitaus größte Anteil der Unsicherheit bei allen untersuchten Kernmaterialsorten aus der Ungenauigkeit der Abfallbestimmungen herrührt.

### Berücksichtigung des "hidden inventory"

Bei einer Aufnahme des realen Bestandes bleibt, auch dann, wenn diese nach Ausräumen der Anlage durchgeführt wird, eine gewisse Menge von Kernmaterial nicht erfaßt, die sich als Restmenge in Rohrleitungen, Schläuchen etc. befindet. Dieses "hidden inventory" liefert im allgemeinen einen wesentlichen Beitrag zum MUF. Bei Rechnungen über den Unsicherheitsbereich für das "material unaccounted for" findet das "hidden inventory" hingegen üblicherweise keine Berücksichtigung, da seine Menge und die Unsicherheit, mit der diese Menge angegeben werden kann, eben nicht auf Messungen bzw. Meßunsicherheiten sondern lediglich auf Schätzungen beruhen, in die auch Erfahrungswerte über Differenzen zwischen Soll- und Istbeständen in Anlageteilen einfließen.

Andererseits kann nicht übersehen werden, daß diese Erfahrungswerte einen erheblichen Schwankungsbereich des "hidden inventory" ausweisen, in der Weise, daß je nach Ausräumungsgrad das "hidden inventory" von einem Maximalwert bis nahe zu Null variieren und deshalb sein Beitrag zum "material unaccounted for" sowohl eine Vergrößerung des MUF als auch eine Verkleinerung bis hin zu negativen MUF-Werten bewirken kann.

Der Maximalwert des "hidden inventory" ( $B_H$ ) für Pu wurde für diese Betrachtung mit ca. 2 kg angenommen. Entschließt man sich, den Beitrag zum Schwankungsbereich des MUF mit  $\sigma_{BH} = 2$  kg anzugeben und quadratisch aufaddiert zu berücksichtigen, so resultieren für Pu folgende Werte für

$$\sigma_{MUF_1} \hat{=} 0,56 \% \text{ vom Durchsatz}$$

$$\sigma_{MUF_2} \hat{=} 0,55 \% \text{ vom Durchsatz}$$

---

Unserer besonderer Dank gilt den Herren van der Stricht, Rota und Cullington für fruchtbare Diskussionen, die unsere Arbeit wesentlich beeinflussten.

## 2.2 Implementierung von direkten Methoden

### 2.2.1 Automatisierung der Uran- und Plutoniumkonzentrationsbestimmung durch Röntgenfluoreszenzanalyse

J. Neuber, S. Flach, R. Braun

#### Bau und Erprobung der Mechanik

Die 1977 gefertigten Geräte für die Röntgenfluoreszenzanalyse zeigen die Abb. 2-2 und 2-3 in versuchsmäßigem Aufbau in den Boxen. Die sogenannte Probenabfüllung, die Bild 2-2 erkennbar durch die zwei senkrecht zu ihr führenden Rohrpostrohre, wurde in einem nachstehend etwas näher erläuterten Dauerversuch erfolgreich erprobt. Diese Maschine besorgt das Abfüllen von Prozeßlösungen aus Rohrpostkapseln in ca. 10 ml fassende Einwegküvetten. Dieses Gerät ist sinngemäßes Gegenstück zu automatischen Probenehmern im Wiederaufarbeitungsprozeß. Hier wie dort besteht ein wesentliches Problem in der Unterdrückung der Querkontamination. Wie wir beim Bau unseres Prototyps gelernt haben, bringt die völlige Vermeidung der Querkontamination einen extrem hohen Aufwand an (störungsanfälliger) Mechanik mit sich. Die jetzt erprobte Maschine begrenzt durch Leeren und Spülen der Entnahmekanüle das Verschleppen zu analysierender Elemente. Zum Beispiel verursacht eine Probe mit maximal vorkommender Plutoniumkonzentration in einer direkt nachfolgenden Probe rein rechnerisch eine Anhebung der dort vorhandenen Plutoniumkonzentration um höchstens 2-4 ppm. Mit umgekehrtem Effekt wird in die abgefüllten Proben ziemlich gleichbleibend etwa 1 mg Wasser eingetragen. Im übrigen verlief die Erprobung über 5000 Abfüllvorgänge fehlerlos. Diese Testdauer entspricht im Einsatz etwa einem Monat bei 24stündigem Betrieb.

Für die Erprobung mechanischer Geräte kam ein 1977 angeschafftes Mikroprozessorsystem zum Einsatz. Wesentliches Ziel ist die Gewinnung von Erfahrungen im Umfang mit solchen Systemen für die Laborautomatisierung. Der Aufbau des Mikroprozessors als auch die Erstellung der Leistungsstufen zur Ansteuerung von Ventilen und Motoren wurde im Herbst 77 abgeschlossen. Das Programmieren eines Handlungsablaufs von etwa 25 sichtbaren

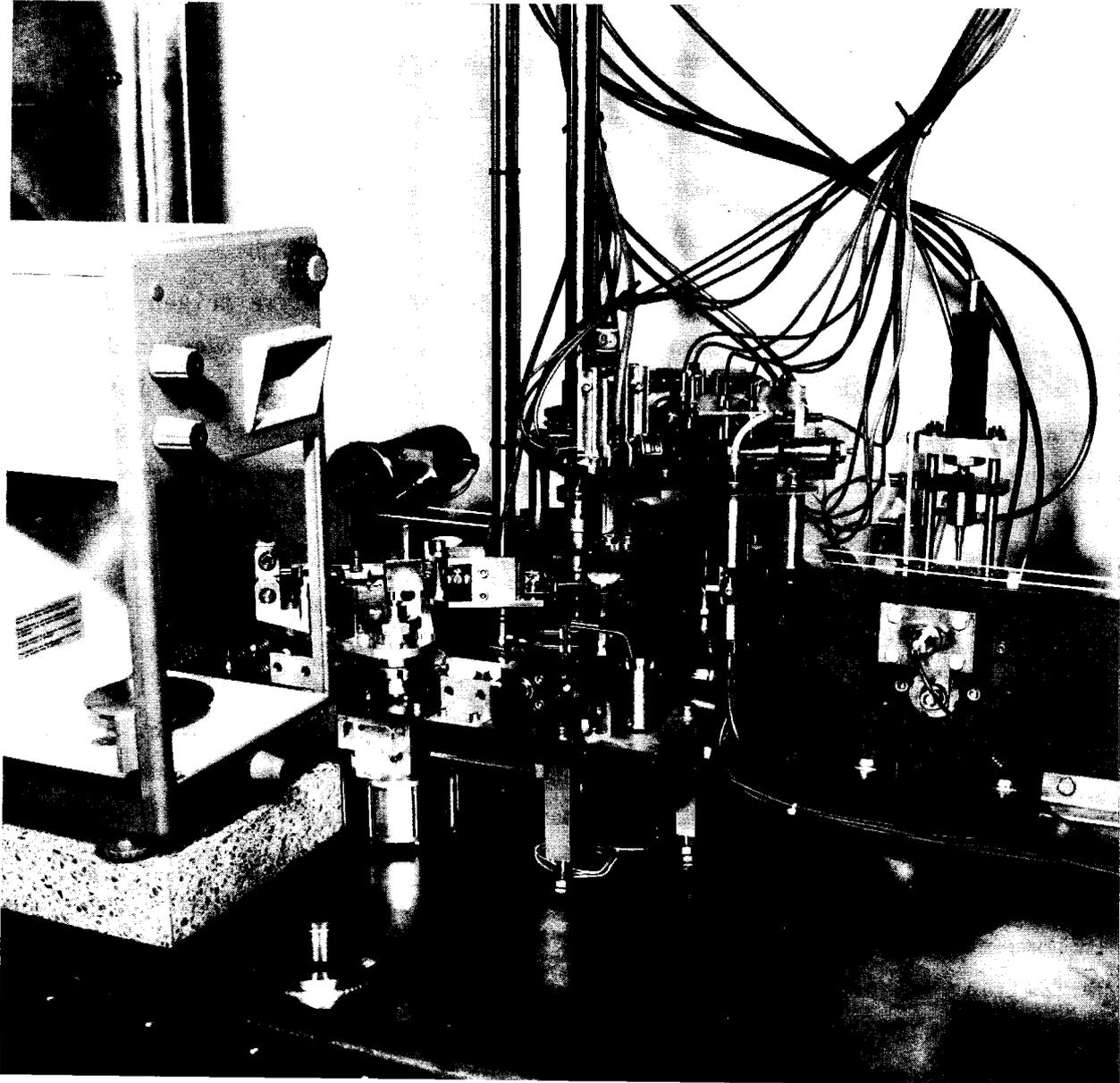


Abb. 2-2: Bestandteile der Probenvorbereitungsmechanik in der Präparationsbox.

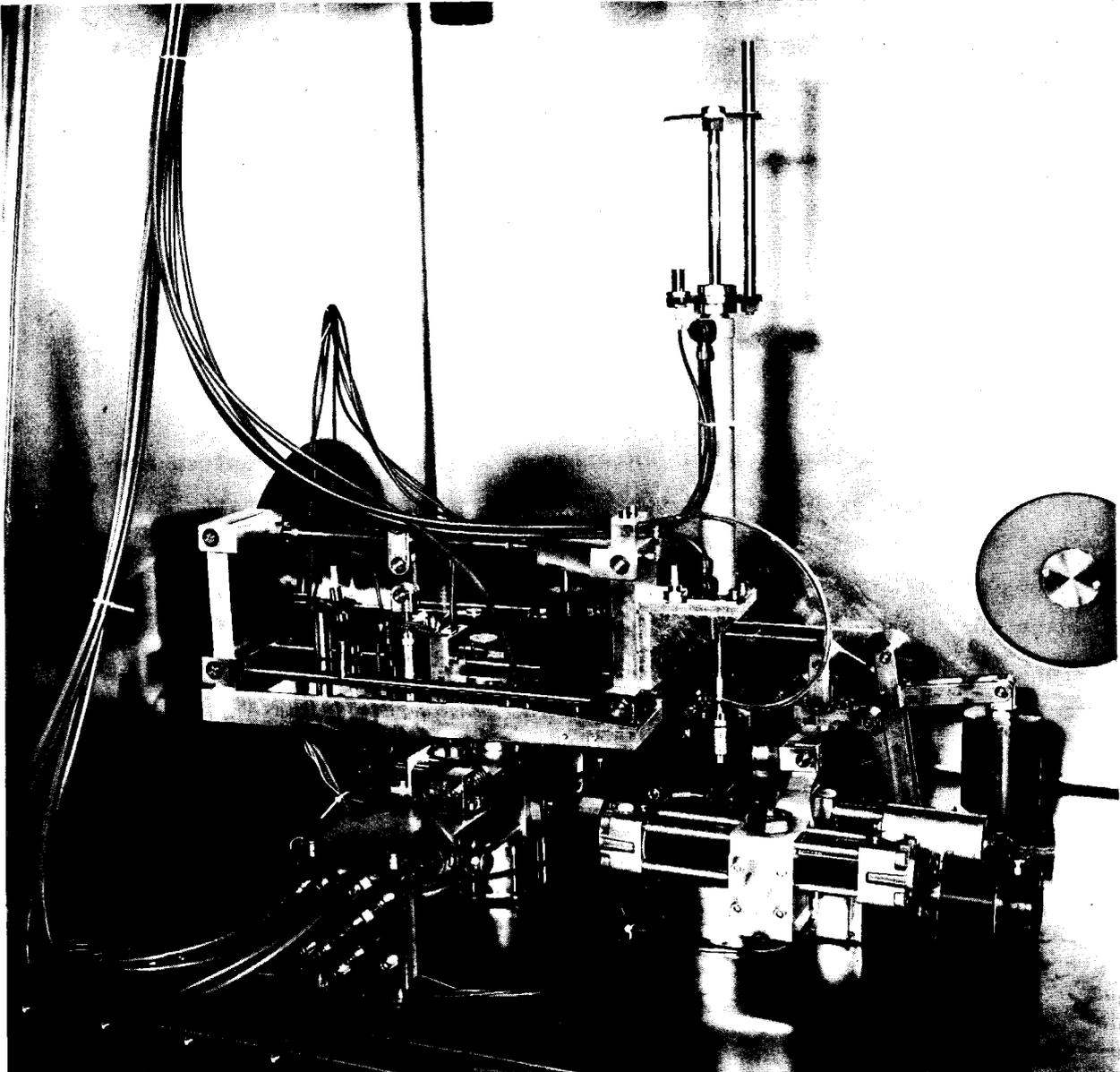


Abb. 2-3: Vorrichtungen in der Meßbox

Handlungsschritten der "Probenabfüllung" wurde als erstes in Angriff genommen. Für unsere Arbeits- und Entwicklungsbedingungen läßt sich zusammenfassend sagen, daß der Mikroprozessor besonders geeignet ist, das Steuerungsverhalten eines Gerätes abschließend zu prüfen und damit zu endgültigen Zustands-Schritt-Diagrammen zu kommen, wie sie für die Beschaffung einer Steuerung gebraucht werden. Für Verschleißtests, die wir an Bauelementen durchführen können und die direkten Einfluß auf die Konstruktion einer Maschine haben, sind einfache konventionelle Steuerungsmethoden zweckmäßiger.

### Prozeßführungssystem

Im Spätjahr wurden, beruhend auf Unterlagen der 1976 durchgeführten Ausschreibung, erneut Angebote für ein Steuerungs- und Auswertesystem eingeholt. Mit der exakten Festlegung der Pflichten des Industriepartners wurde begonnen. Der Liefervertrag sieht eine Auslieferung der gesamten Hardware für Mitte 78 und Abschluß des Auftrags für Januar 1979 vor. Zwischen WAK und uns werden zunächst Lösungen aus Reinstandards und dann echte Prozeßlösungen ausgetauscht. Auf diese Weise sollen die unterschiedlichen Spektrometertypen bei uns und in der WAK verglichen werden, um anhand der Prozeßlösungen die endgültigen Bedingungen für die Erstellung der Auswerte-Software zu ermitteln. Da das Prozeßführungssystem modular aufgebaut wird und FORTRAN als Programmiersprache Anwendung findet, können die beim Einsatz auftretenden Änderungswünsche noch berücksichtigt werden.

Die ungeklärte Finanzierungslage führte im Berichtszeitraum zu zeitlichen Verzögerungen sowohl bei der Fertigung der mechanischen Bauteile als auch bei der Beschaffung des Prozeßführungssystems.

### 2.3 Implementierung von zerstörungsfreien Methoden

Mit konkreten Meßgeräteentwicklungen zum Einsatz in kerntechnischen Anlagen zum Zweck der Spaltstoffflußkontrolle befaßten sich die fortgeführten Arbeiten zur In-Line-Messung der  $^{235}\text{U}$ -Anreicherung in einer LWR-Brennelementfabrikationsanlage sowie zur Plutoniumbestimmung in festen Abfällen.

Einen anderen Arbeitsschwerpunkt stellte die aktive Teilnahme an Gemeinschaftsvorhaben der Arbeitsgruppe für zerstörungsfreie Meßverfahren und physikalischen Standards der ESARDA dar. Hier ist in erster Linie das Vorhaben zur Herstellung physikalischer  $\text{U}_3\text{O}_8$ -Standards für gammaspektrometrische  $^{235}\text{U}$ -Anreicherungsmessungen zu nennen. Mit diesem Vorhaben sollen zum ersten Mal auf breiter internationaler Basis unter Einbeziehung der Überwachungsbehörden Euratom und IAEA anerkannte physikalische Standards für eine zerstörungsfreie Meßmethode hergestellt werden. Das amerikanische National Bureau of Standards (NBS) hat sich 1977 diesem von der ESARDA initiierten Vorhaben angeschlossen. Als weitere Gemeinschaftsaktivität der zuvor erwähnten Arbeitsgruppe der ESARDA ist ein Ende 1977 angelaufener Interlaboratoriums-Vergleichstest zur gammaspektrometrischen Plutoniumisotopenanalyse zu nennen, an dem neben dem KfK mehrere Labors innerhalb der ESARDA teilnehmen werden.

#### 2.3.1 In-Line-Meßsystem zur Bestimmung der $^{235}\text{U}$ -Anreicherung in einer LWR-Brennelementfabrikationsanlage

P. Matussek, H. Ottmar

Die für Ende 1977 geplante Installation und Inbetriebnahme des Meßsystems bei der Firma RBU hat sich um ca. 6 Monate verzögert. Der ursprünglich vorgesehene Lieferant für das Meßsystem hat unmittelbar vor Vertragsabschluß sein Angebot zurückgezogen. Die daraufhin erforderlichen neuen Verhandlungen mit einem anderen Auftragnehmer führten schließlich Mitte 1977 zum Kaufabschluß. Der Ablaufplan sieht vor, das rechnergesteuerte Meßsystem nach seiner Fertigstellung Mitte 1978 anhand von Labormessungen beim KfK gründlich auszutesten und anschließend bei der Firma RBU in der Produktionslinie zu installieren.

### 2.3.2 Eichstandards für gammaspektrometrische <sup>235</sup>U-Anreicherungs- messungen

P. Matussek, H. Eberle

Im Rahmen des Programms zur Beschaffung von <sup>235</sup>U-Eichstandards für gammaspektrometrische Anreicherungsmessungen, das von der Working Group for Techniques and Standards for Non-Destructive Analysis der ESARDA initiiert wurde, konnten die Arbeiten zur Festlegung der Prozeduren für die Charakterisierung und Spezifizierung des Standardmaterials sowie der Container abgeschlossen werden. Im Berichtszeitraum sagte auch das National Bureau of Standards der USA seine aktive Teilnahme an diesem Programm zu. Es ist die Herstellung von etwa 100 U<sub>3</sub>O<sub>8</sub>-Pulverstandardsätzen mit je 5 verschiedenen Anreicherungen vorgesehen. Damit werden den Anwendern erstmals physikalische Standards für gammaspektrometrische Messungen auf einer breiten Basis zur Verfügung stehen. Erste Testproben vom BCMN Geel für zerstörungsfreie Vergleichsmessungen werden für Mitte 1978 erwartet.

Im Mittelpunkt der Arbeiten stand die Klärung der Frage, ob homogene oder inhomogene Dichteänderungen des Uranpulvers die gemessene Gammaintensität beeinflussen. Rechnungen ergaben, daß bei Vernachlässigung der kohärent elastischen Streuung von Photonen keine Abhängigkeit der gemessenen 185 keV-Gammastrahlung von der Dichte und Verteilung des Uranpulvers im Probenbehälter besteht, solange die chemische Zusammensetzung des Uranpulvers und die <sup>235</sup>U-Anreicherung im Meßvolumen konstant ist, und eine ausreichende Dicke des Probenmaterials in allen vom Detektor sichtbaren Richtungen sichergestellt ist. Ausreichende Dicke bedeutet, daß die Flächenbelegung - d.h. das Produkt aus mittlerer Dichte und Dicke der Probe - im Fall von Uranoxid größer als 5 g cm<sup>-2</sup> bzw. 3.5 g cm<sup>-2</sup> sein muß, wenn das Meßergebnis um weniger als 0,1 % bzw. 1 % von der Probendicke abhängen soll.

Wenn man elastisch kohärente Streuprozesse im Probenmaterial berücksichtigt - das sind solche Streuprozesse, bei denen die Richtung der 185 keV-Gammaquanten geändert wird, nicht aber ihre Energie -, so ist die strenge Unabhängigkeit des Meßergebnisses von der Verteilung des Materials in der Probe nicht mehr gewährleistet. Die Dichteabhängig-

keit durch Streuung ist aber relativ klein, da der elastisch kohärente Streuquerschnitt nur etwa 5 % des totalen Wirkungsquerschnitts für die 185 keV Quanten beträgt. Dies gilt für alle in Frage kommenden Uranverbindungen.

Um die Zählraten der 185 keV-Gammastrahlung bei gegebener experimenteller Anordnung abschätzen zu können, wurden für verschiedene zylindrische Kollimatorgeometrien die zu erwartenden Intensitäten der  $^{235}\text{U}$ -Gammastrahlung berechnet. In die Rechnungen gingen neben der Kollimatorgeometrie und der chemischen Zusammensetzung des Probenmaterials nur elementare nukleare Daten ein: Halbwertszeit von  $^{235}\text{U}$ ,  $\alpha$ - und  $\gamma$ -Verzweigungsverhältnisse, elastisch kohärenter und totaler Wirkungsquerschnitt von Uran und den Matrixmaterialien. Das Ergebnis ist in Abb. 2-4 dargestellt.

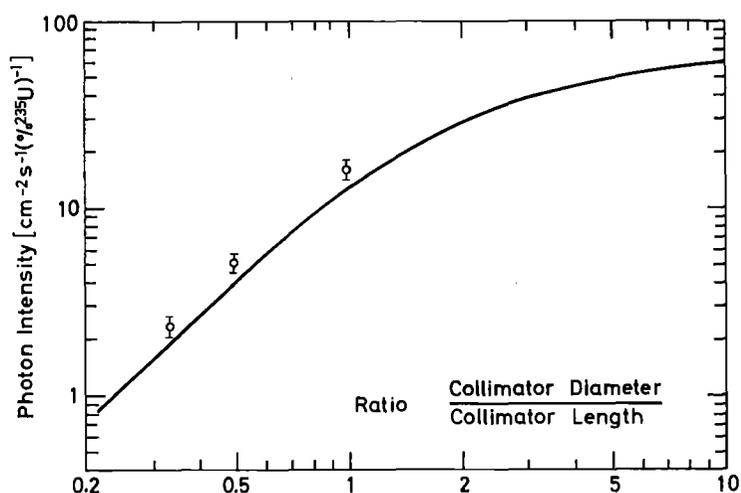


Abb. 2-4: Berechnete Intensität der 185 keV-Photonen am Kollimatorausgang für verschiedene Kollimatorgeometrien.

Die Kurve zeigt die berechnete Intensität der 185 keV-Gammastrahlung am Ort des Detektors in Einheit Photonen pro Sekunde und pro Flächeneinheit des Kollimatorquerschnitts in Abhängigkeit des Verhältnisses Kollimatorradius/Kollimatorhöhe. Nicht berücksichtigt ist die Absorption der Gammastrahlung in der Probenbehälterwand und in der Detektor-  
kappe.

Zur experimentellen Verifizierung der berechneten Intensitätswerte wurden Messungen an  $U_3O_8$ -Pulverproben ( $^{235}U$ -Anreicherung 0,7 %, 1,4 % und 3,2 %) mit einem hochauflösenden Ge(Li)-Detektor durchgeführt. Die verwendeten zylindrischen Bleikollimatoren hatten Höhen von 1 cm, 2 cm und 3 cm bei einem festen Kollimatordurchmesser von 1 cm. Die Meßwerte für die drei Kollimatoren sind in Abb. 2-4 eingetragen. Sie liegen um 15-20 % über den errechneten Werten. Die Abweichungen lassen sich zum Teil durch die schwierig zu bestimmende Ansprechwahrscheinlichkeit des Detektors für flächenhafte Quellen und durch die Tatsache erklären, daß in der Rechnung unvollständige Absorption an den Kollimator-  
kanten und elastisch kohärente Streuung an der Kollimatorwand vernachlässigt wurden. Darüberhinaus tragen aber sicher auch Ungenauigkeiten in den nuklearen Daten, insbesondere in den Wirkungsquerschnitten, zu den beobachteten Diskrepanzen zwischen berechneten und gemessenen Intensitäten bei.

### 2.3.3 Anlage zur Bestimmung des Plutoniumgehalts von schwach- und mittelaktiven Abfällen in 200 l Fässern durch Messung der Spaltneutronen

W. Eyrich, M. Kühle

Im Institut für Neutronen- und Reaktorphysik (INR) wurde eine Anlage entwickelt, mit der Plutonium in Abfallfässern über die Neutronenemission gemessen werden kann. Die Anlage wurde im Jahresbericht 1976 ausführlich beschrieben.

1977 wurden die Komponenten geliefert und erprobt. Die Anlage wurde in der INR-Technikumshalle aufgebaut und Funktionsprüfungen wurden durchgeführt. Anschließend wurden erste Messungen vorgenommen. Dazu wurde

eine Cf-Neutronenquelle der Quellstärke  $2 \times 10^5$  n/sec im leeren und mit Moderator gefüllten Faß untergebracht. Außerdem wurde die Quellen in einen Betonbehälter eingesetzt, um die einbetonierten Fässer der ADB zu simulieren. Mit mehreren Zählrohren wurde die Gesamtzählrate gemessen (nicht die Koinzidenzen). Dabei stellte sich heraus, daß man aus dem Zählratenverhältnis der äußeren zu den inneren Zählrohren im Polyäthylenmantel Information über den Moderatorgehalt im Faß gewinnen kann.

1977 wurde im Zuge des Umbaus der ADB in Zusammenarbeit mit einem Architektenbüro eine Meßstraße für die serienmäßige Plutoniumbestimmung in Fässern entworfen. 1978 wird voraussichtlich eine provisorische Aufstellung bei ADB erfolgen, wozu ebenfalls 1977 die Pläne erstellt wurden.

Außerdem wurden die zerstörungsfreien Meßmethoden für Kernbrennstoff in Abfallfässern in einer Studie verglichen. Für Gamma- und Neutronenemission sowie für die Messung verzögerter Neutronen mit einer gepulsten Quelle wurden Nachweisempfindlichkeiten und Meßgenauigkeiten angegeben.

#### 2.4 Kernmaterial-Überwachungssystem für Forschungszentren

R. Buttler, G. Stein

Auf der Grundlage des von der Arbeitsgruppe Spaltstoffflußkontrolle der KFA entwickelten Konzepts eines Kernmaterial-Überwachungssystems für große Forschungszentren wurden wesentliche Elemente des Systems weiter detailliert. Im Rahmen der Erarbeitung der Detailkonzeption für das Kernmaterial-Bilanzierungs- und -kontrollsystem (KBKS) wurden Verfahren zur Aufnahme des realen Bestandes und zur Erfassung der Kernmaterialdaten entwickelt. Ferner wurde ein IAEO-Forschungsauftrag zu Teilproblemen des Buchhaltungssystems bearbeitet.

In der KFA befaßt sich ein Arbeitskreis, dem Mitarbeiter der betroffenen Institutionen angehören, mit der Implementierung des computergestützten KBKS im Teilbereich Heiße Zellen der KFA. Zu den Aufgaben des Arbeitskreises zählen die Erstellung von programmierreifen Unterlagen und die Programmierung des Systems.

Das KBKS wird in der Programmiersprache APL unter Benutzung der in der KFA vorhandenen Hardware realisiert. Es dient als Informationssystem für Betreiberbelange und Behördenanforderungen. Die Erfassung und Überwachung des Materials vollzieht sich auf zwei Ebenen, die sich einer gemeinsamen Datenbank bedienen. Die untere Ebene wird von den betriebsinternen Kernmaterialverwaltungen der Institute gebildet, während die obere Ebene die Anforderungen einer zentralen Buchhaltungs- und Kontrollstelle erfüllt, die auch mittels geeigneter Auswerteprogramme die Berichte erstellt.

Das Spaltstoffinventar wird unter Berücksichtigung der besonderen Bedingungen in Forschungszentren nach den folgenden Kriterien charakterisiert: Unterteilung nach Inventareinheiten, buchungstechnische Zuordnung zu Materialbilanzzonen und Schlüsselmeßpunkten, Aufgliederung nach Umgangsarten, Materialkonfigurationen und Zusammenfassung nach Chargen. Die Daten werden auf zwei verschiedene Datenbestände verteilt: Die Stammdatei speichert für alle Inventareinheiten (IE) alle zur Beschreibung des aktuellen Zustands erforderlichen Daten (Merkmale einer IE).

Die Vorgangsddatei enthält alle Angaben, die zur Änderung von Merkmalen einer IE führen (Merkmale von Buchungsvorgängen). Jede IE wird mit einem im gesamten Forschungszentrum eindeutigen unveränderlichen Identifikationskennzeichen versehen. Die Angaben zu einer IE werden unter diesem Identifikationskennzeichen gespeichert und abgerufen.

Bei der Erfassung der Daten wird bei Umgang und Verwaltung des Kernmaterials von betrieblichen Abläufen ausgegangen. Solche Abläufe sind z.B. Zugang, Abgang sowie Prozeßabläufe mit Kernmaterial. In Verbindung mit diesen Abläufen ist eine Verifikation der Daten im allgemeinen nur dann möglich, wenn sie sich leicht durchführen läßt, wie z.B. durch Wägung, Längenmessung, Zählung usw. Wenn sich die Mengenangaben nicht ändern, werden die Buchdaten fortgeschrieben. Die durch die betrieblichen Abläufe bewirkten Veränderungen der Inventareinheit-Daten werden mittels Buchungsvorgängen im System registriert. Zu jedem der 8 Buchungsvorgänge (BV) ist ein Datensatz festgelegt. Die Eingabe der BV-Daten erfolgt durch autorisierte Personen nach Aufrufen des BV im Dialog zwischen Rechner und Anwender. Es werden nur Daten eingegeben, die der Rechner nicht kopieren oder selbst ermitteln kann. Um Fehler weitgehend auszuschließen, werden alle

prüfbareren Daten auf Richtigkeit oder Plausibilität geprüft. Durch entsprechende Zugriffsberechtigungen und geeignete Auswerteprogramme ist sichergestellt, daß jede Stelle nur die von ihr benötigten Informationen enthält.

Zur Bestimmung der Kernmaterialdaten der Inventareinheiten ist eine entsprechende Meßinstrumentierung erforderlich. Neubestimmungen von Kernmaterialdaten durch Messungen werden jedoch wegen des erforderlichen Aufwandes nur dann vorgenommen, wenn Materialdaten nicht vorliegen oder nicht hinreichend zuverlässig erscheinen. Messungen, die zur Aufnahme des realen Bestandes im Rahmen des Kontrollsystems durchgeführt werden, beruhen im wesentlichen auf zerstörungsfreien Meßverfahren. Die zentrale Stelle, die mit der Durchführung dieser Arbeiten betraut ist, wird aus diesem Grunde zunächst mit dem MAS-System (Multi-Purpose-Assay-System) ausgerüstet. Dieses System ist in der Lage, unbestrahltes Kernmaterial in den verschiedenen Konfigurationen, wie sie in der KFA vorkommen, zerstörungsfrei zu analysieren. Es beruht auf der Spaltkoinzidenztechnik nach Aktivieren der Proben mit Neutronen einer Cf-252 Quelle.

Bisher sind mit dem MAS-System detaillierte Messungen an unbestrahltem Kernmaterial, wie z.B. Kernen, Partikeln und kugelförmigen Brennelementen aus dem HTR-Brennstoffkreislauf, durchgeführt worden. Dieses sind im wesentlichen Konfigurationen, in denen Kernmaterial in der KFA vorliegt. Aus diesen Messungen hat sich ergeben, daß das MAS-System für den Einsatz in der zentralen Meßstelle geeignet ist. Für bestrahltes Kernmaterial werden derzeit Untersuchungen mit einem Meßsystem durchgeführt, das eine Sb-Be-Neutronenquelle zur Aktivierung der Proben und BF<sub>3</sub>-Zählrohre zur Registrierung der Spaltneutronen besitzt. Die Anordnung ist so ausgelegt, daß die niederenergetischen Quellneutronen vollständig in Wasser, das Neutronengifte enthält, absorbiert werden und nur die hochenergetischen Spaltneutronen die Zählrohre erreichen können (selektiver Neutronentransport).

Das KBKS ist in seinen Grundzügen auf dem Rechner realisiert worden, so daß bereits mit der Datenerfassung begonnen werden konnte. Am Ende des Berichtszeitraumes befanden sich die Daten von ca. 600 Inventareinheiten im Rechner. Der Beginn des Probetriebs und der abschließenden Darstellung der Detailkonzeption des KBKS ist für Anfang 1978 vorgesehen. Parallel zum Probetrieb wird das System weiter entwickelt und verbessert.

## 2.5 Kontrollsystem für Kugelhaufenreaktoren

H. Engelhardt

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

- Verbesserung der Bilanzierung des Coreteils und der Beschickungsanlage des Reaktors
- Vervollständigung des Kontrollsystems durch die Einführung ergänzender Maßnahmen wie Surveillance- und Containmentmaßnahmen
  - a) innerhalb der Beschickungsanlage
  - b) im Lager für abgebrannte Brennelemente bzw. für die Fässer für abgebrannte Brennelemente.

Im Rahmen des ersten Aufgabenschwerpunktes wurden auf der diesjährigen Reaktortagung die wesentlichen Gedanken der Bilanzierungsmöglichkeit und der Verifikationsmöglichkeit vorgestellt. Darauf aufbauend wurde im Berichtsjahr damit begonnen, das Bilanzierungssystem hinsichtlich Kontrolleffizienz und Betriebsbeeinflussung zu optimieren. Es zeigte sich, daß die sehr aufwendige Kugelzählinstrumentierung, die der Betreiber für seine Beschickungsstrategie benötigt, nicht vollständig in das Überwachungssystem übernommen werden muß. Trotz einiger Vereinfachungen konnte der Einfluß auf die Kontrolleffizienz gering gehalten werden.

Die Auswahl der Kugelzähler (Anzahl und Lokalisation), die Bestandteil des zu installierenden Überwachungssystems werden sollen, wurde mit Hilfe einer Schwachstellenanalyse getroffen. Nach Festlegung verschiedenartiger Bilanzierungskonzepte konnten unter Anwendung unterschiedlicher Entwendungsstrategien die Schwachstellen der jeweiligen Konzepte erkannt werden. Die so ermittelten Schwachstellen wurden durch geeignete Maßnahmen eliminiert.

Als zweiter Aufgabenschwerpunkt bei den Arbeiten am Kontrollkonzept THTR-300 wurden im Berichtsjahr Überlegungen zur Einführung geeigneter Surveillance- und Containmentmaßnahmen durchgeführt. So wird zur Zeit geprüft, ob die kontinuierliche Drucküberwachung des Hochdruckteils der Beschickungsanlage bzw. des Cores Bestandteil des Kontrollsystems werden kann. Diese Maßnahme würde wie eine Versiegelung des entsprechenden Reaktorteils wirken. An-

sonsten wären die Blöcke der Beschickungsanlage (Sammler-, Förder-, Ausschleusblöcke) oder die Funktionsteile der Blöcke (Dosieren, Weichen, Drucksperrren, Zählstellen, Vereinzeln, ...) zu versiegeln. Derzeit laufen Arbeiten zur Auswahl geeigneter Versiegelungsstrategien und -techniken für die Beschickungsanlage des Reaktors bzw. für bestimmte Teile desselben.

Im Berichtsjahr wurde fernerhin damit begonnen, das Kontrollkonzept über den Teil Reaktorcore/Beschickungsanlage hinaus auszudehnen, also die ganze Kraftwerkanlage zu erfassen. In diesem Zusammenhang wurden erste Arbeiten zur Versiegelung des Kannendeckels der Kannen für abgebrannte Brennelemente begonnen. In Zusammenarbeit mit dem JRC Ispra wurden Methoden zur Identitäts- und Integritätskontrolle entwickelt, die auf der Basis der Ultraschall-Meß- und Signalverarbeitung beruhen.

2.6 Literaturverzeichnis zu Kapitel 2

/2-1/ Jahresbericht 1977 der Abteilung Strahlenschutz und Sicherheit  
KfK 2620 (März 1978)

/2-2/ ROTA, A.  
Persönliche Mitteilung (unveröffentlicht)

/2-3/ LINDNER, L.; VON BAECKMANN, A.  
"Verfahren zur chemisch-analytischen Bestimmung von Plutonium und  
Uran in oxydischen Kernbrennstoffen"  
KfK 701, EUR 3714d (November 1967)

3.	<u>Entwicklung und Erprobung von Verfahren und Komponenten im Zusammenhang mit der Kernmaterialüberwachung</u> (Vorhaben 07.01.04)	
3.1	Direkte Methoden	3-1
3.1.1	Einführung E. Mainka	3-1
3.1.2	Serviceleistungen und begleitende Arbeiten zur Automatisierung direkter Verfahren E. Gantner, E. Mainka, H. Ruf	3-1
3.1.3	Entwicklung von Analysenverfahren	3-2
3.1.3.1	On-line Datenverarbeitung der automati- schen Isotopenverdünnungsanalyse B. Brandalise, L. Koch	3-2
3.1.3.2	Isotopenkorrelationen, beobachtet für einen Pu-haltigen Brennstoff des SWR GARIGLIANO S. Schoof, L. Koch	3-9
3.1.3.3	Arbeiten zur naßchemischen Plutonium- konzentrationsbestimmung in festem Abfall E. Mainka, W. Coerdts, W. König, H.G. Müller	3-12
3.1.3.4	Arbeiten zur massenspektroskopischen Mg-Isotopenverdünnungsanalyse E. Gantner, H. Bernhardt, H. Deutsch	3-15

		<u>Seite</u>
3.2	Zerstörungsfreie Methoden	3-16
3.2.1	Pu/U-Verhältnisbestimmung in Misch- verbindungen von Uran und Plutonium H. Eberle, H. Ottmar	3-16
3.2.2	Gammaspektrometrische Plutonium- isotopenanalyse H. Eberle, H. Ottmar	3-22
3.2.3	Gammaabsorptiometrie zur Bestimmung der Konzentration von Aktiniden in Lösungen P. Matussek, I. Michel-Piper, H. Ottmar	3-27
3.2.4	Meßgerät zur Bestimmung des Plutonium- gehaltes in kleinen Abfallbehältern durch Messung der Gammaeigenstrahlung M.R. Iyer, S.J. Choithramani, P.P. Chakraborty, P. Matussek, H. Ottmar	3-31
3.2.5	Entwicklung eines rechnergesteuerten On-line Datenaufnahme- und Auswertungs- systems P. Matussek	3-33
3.3	Interlaboratoriumstests	3-36
3.3.1	Interlaboratoriumstest "AS-76" W. Beyrich, G. Spannagel	3-36
3.3.2	Interlaboratoriumstest "IDA-78" W. Beyrich, G. Spannagel	3-36

	<u>Seite</u>
3.3.3 Untersuchung über Interlabor-Differenzen bei der UF <sub>6</sub> -Analyse W. Beyrich, G. Spannagel	3-41
3.4 Literaturverzeichnis zu Kapitel 3	3-46



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

3.1 Direkte Methoden

3.1.1 Einführung

E. Mainka

Die analytische Gruppe des Instituts für Radiochemie und die Abteilung Massenspektrometrie des Europäischen Instituts für Transurane haben im Berichtszeitraum für dieses Vorhaben gearbeitet.

Die Testphase des vollautomatischen Massenspektrometers in der Spaltstoffflußkontrolle ist weitergeführt worden, nachdem eine Erweiterung des Gesamtsystems erfolgte.

Die Entwicklungsarbeiten zur Isotopenkorrelationstechnik wurden fortgesetzt. Die Vorarbeiten zu einem Isotopenkorrelationsexperiment in der WAK sind abgeschlossen worden. Das Experiment konnte im Januar 1978 gestartet werden.

Der Schwerpunkt der naßchemischen Arbeiten lag in der Anpassung des titrimetrischen Plutonium-Bestimmungsverfahrens an die Wasteanalyse. Außerdem wurden die Arbeitsbedingungen für die massenspektroskopische Isotopenverdünnungsanalyse von Mg erarbeitet.

An einer potentiometrischen Thorium-Bestimmungsmethode wird z.Zt. noch gearbeitet.

3.1.2 Serviceleistungen und begleitende Arbeiten zur Automatisierung  
direkter Verfahren

E. Gantner, E. Mainka, H. Ruf

Im Berichtszeitraum wurden für das Projekt Spaltstoffflußkontrolle folgende Analysen ausgeführt:

Aufgabenstellung	Meßverfahren	Zahl der Analysen
Isotopenanalyse von Uran	MS	101
Isotopenanalyse von Plutonium	MS	60
U-Konzentrationsbestimmung	RFA	43
Pu-Konzentrationsbestimmung	RFA	15
Pu-238-Bestimmung	$\alpha$	36
Pu-Konzentrationsbestimmung Wasteanalyse	potentiom.	40
Pu-Konzentrationsbestimmung (SALE-Programm)		20
U-Konzentrationsbestimmung (SALE-Programm)		30

### 3.1.3 Entwicklung von Analysenverfahren

#### 3.1.3.1 On-Line Datenverarbeitung der automatischen Isotopenverdünnungsanalyse

B. Brandalise, L. Koch

Das bereits in früheren Berichten beschriebene /3-1/, /3-2/, /3-3/ automatische Labor zur Isotopenverdünnungsanalyse, AIDA (automatic isotope dilution analysis), besaß keine direkte Datenverarbeitung. Die von den Automaten anfallenden Ergebnisse (Waage,  $\alpha$ - und Massenspektrometer) wurden auf Lochstreifen gespeichert, gesammelt und von Zeit zu Zeit zur Auswertung auf der IBM-370-Rechenanlage gebracht. Es wurde eine direkte Verbindung zu der Datenverarbeitungszentrale geschaffen, die nicht nur die Analysenauswertung beschleunigte, sondern die Erfüllung der gestellten Forderungen nach größerer Datensicherheit und Vertraulichkeit gewährleistet.

#### Hardware

Die Koppelung der Automaten an die IBM-370 geschieht über zwei Transferrechner vom Typ PDP 11, von denen der kleinere Rechner, PDP 11/10, mit einem 32 K-Memory in nächster Nähe zu den Automaten im Labor aufgestellt

ist, während als Verkehrsrechner eine größere Version, PDP 11/45, in der Datenverarbeitungszentrale fungiert, die auch andere Rechner bedient.

Die Koppelung der einzelnen Automaten an den PDP-Rechner geschieht für die  $\alpha$ - und Massenspektrometer über einen eigens entwickelten Multiplexer /3-4/, während die Waage direkt an den Rechner über ein Standarddigital-Interface gekoppelt wurde (Abb. 3-1). Für eine Wägung müssen nur 11 Charakter übermittelt werden, so daß man mit der niedrigen Geschwindigkeit einer Teletype von 110 Bauds auskommt. Pro  $\alpha$ -Spektrum fallen 2400 Charakter an, für eine massenspektrometrische Messung dagegen nur ca. 250. Als Transfargeschwindigkeit wurde für diese Geräte 9600 Bauds gewählt.

#### Software

Sobald einer der Automaten bereit ist, Meßergebnisse abzugeben, signalisiert er es an den PDP-Rechner. Entsprechend dem Signal wählt der Rechner eines von drei Programmen aus. Im Falle eines  $\alpha$ -Spektrums wird auf dem PDP-Rechner die Auswertung des  $\alpha$ -Spektrums nach einem Programm durchgeführt, das bereits beschrieben wurde /3-5/. Die Ergebnisse werden auf einer FLOPPY-Platte gespeichert, wo auch die bereits im VARIAN 620 L ausgewerteten Massenspektren abgelegt werden. Desgleichen wird mit den Gewichten verfahren. Die der Waage angeschlossene Teletype wird zusätzlich zur Initialisierung der Analysen benutzt. Gleichzeitig zeigt sie das Ende eines Transfers an und gibt Kontrollmeldungen bei fehlerhafter Datenübermittlung (Abb. 3-2). Die Datenübermittlung von der Waage ist von untergeordneter Priorität zu der der anderen Automaten.

Der Transfer der auf der FLOPPY-Platte abgelegten Daten erfolgt periodisch vom PDP-Rechner aus gesteuert (Abb. 3-3).

#### Schlußbemerkung

Die beschriebene Anlage ist seit September 1977 in Betrieb und arbeitet seitdem problemlos. Erweiterungen sollen eine externe Speicherung der Analysenresultate ermöglichen, indem sie von dem Zentralrechner wieder

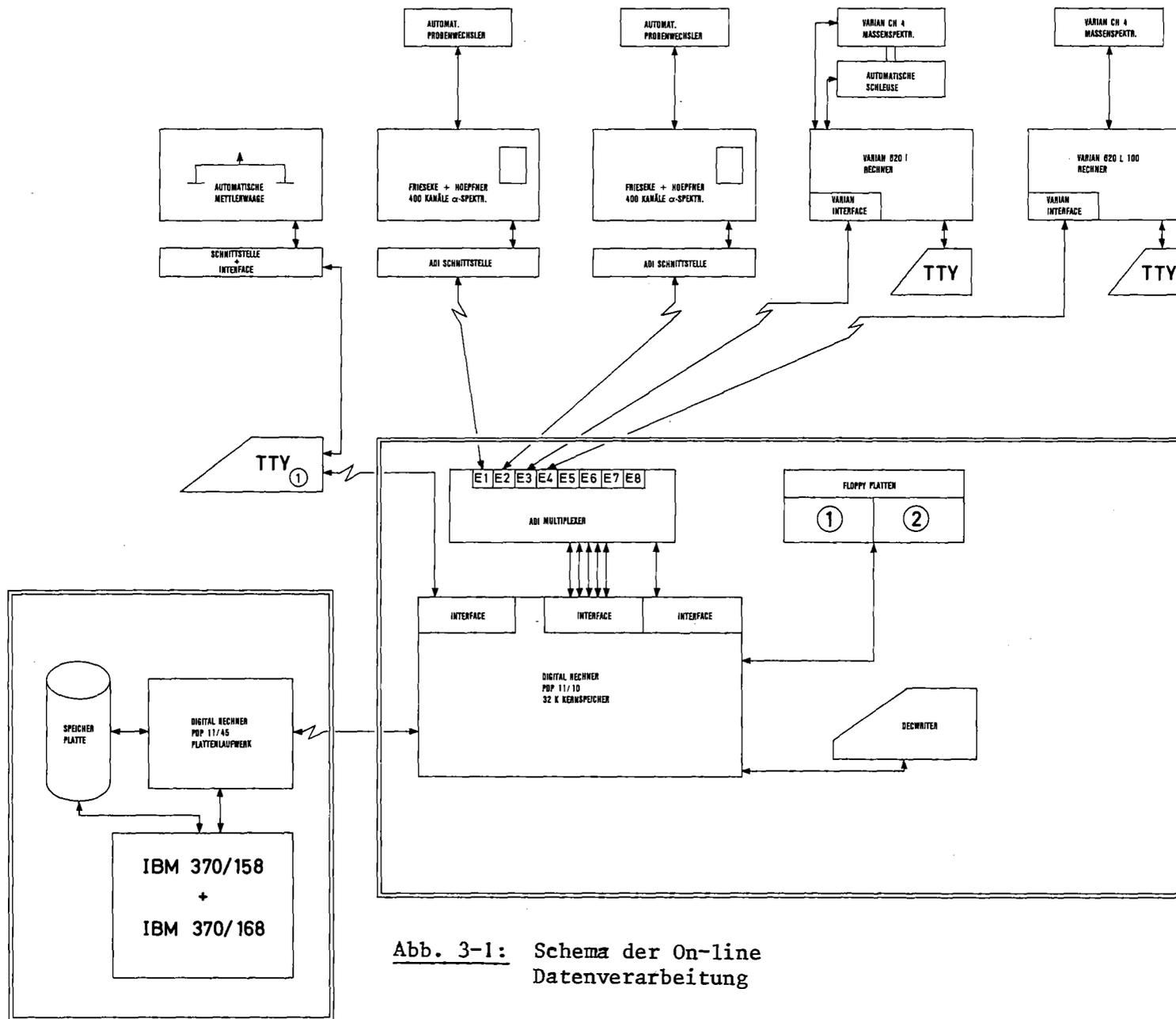


Abb. 3-1: Schema der On-line Datenverarbeitung

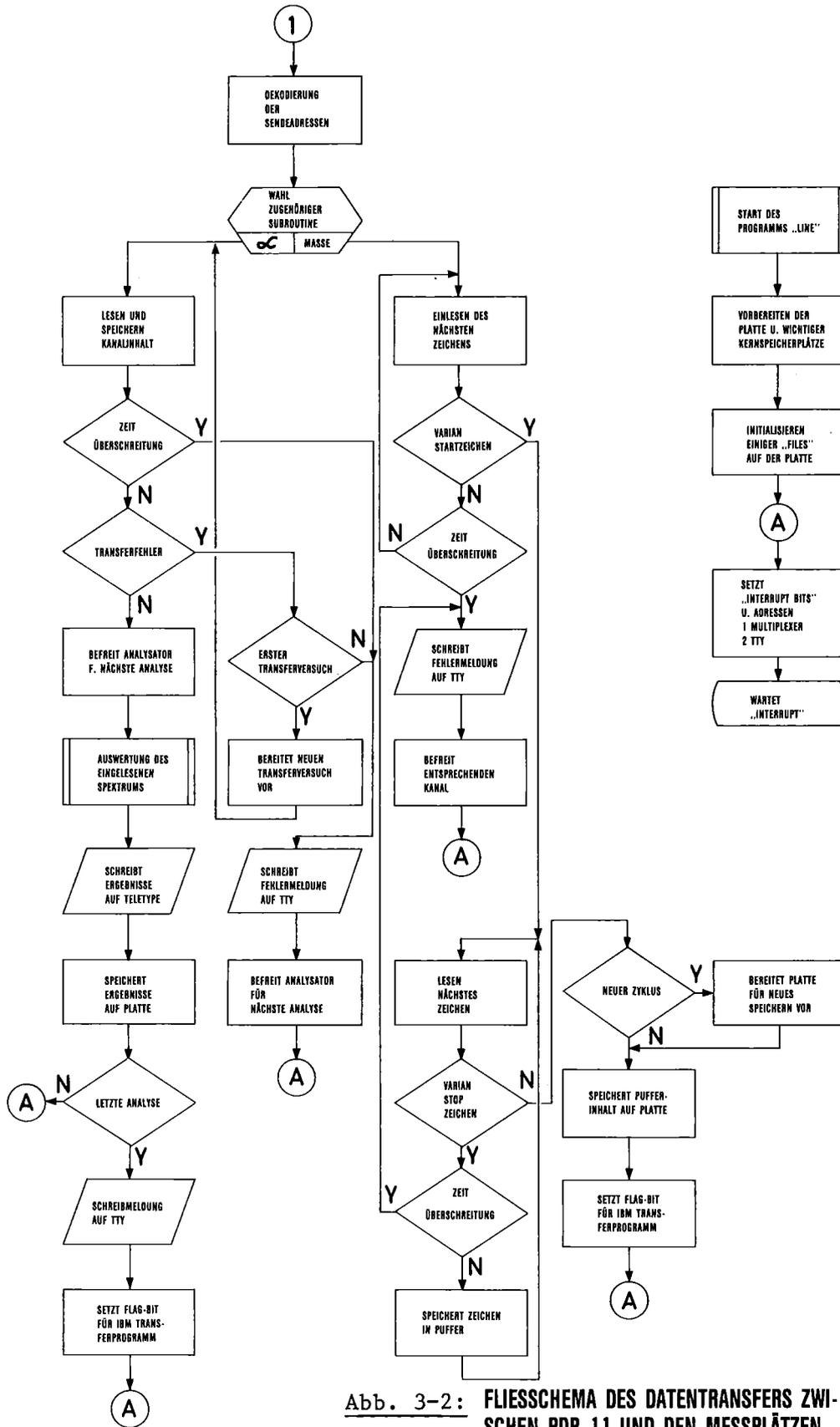


Abb. 3-2: FLIESSCHEMA DES DATENTRANSFERS ZWISCHEN PDP 11 UND DEN MESSPLÄTZEN





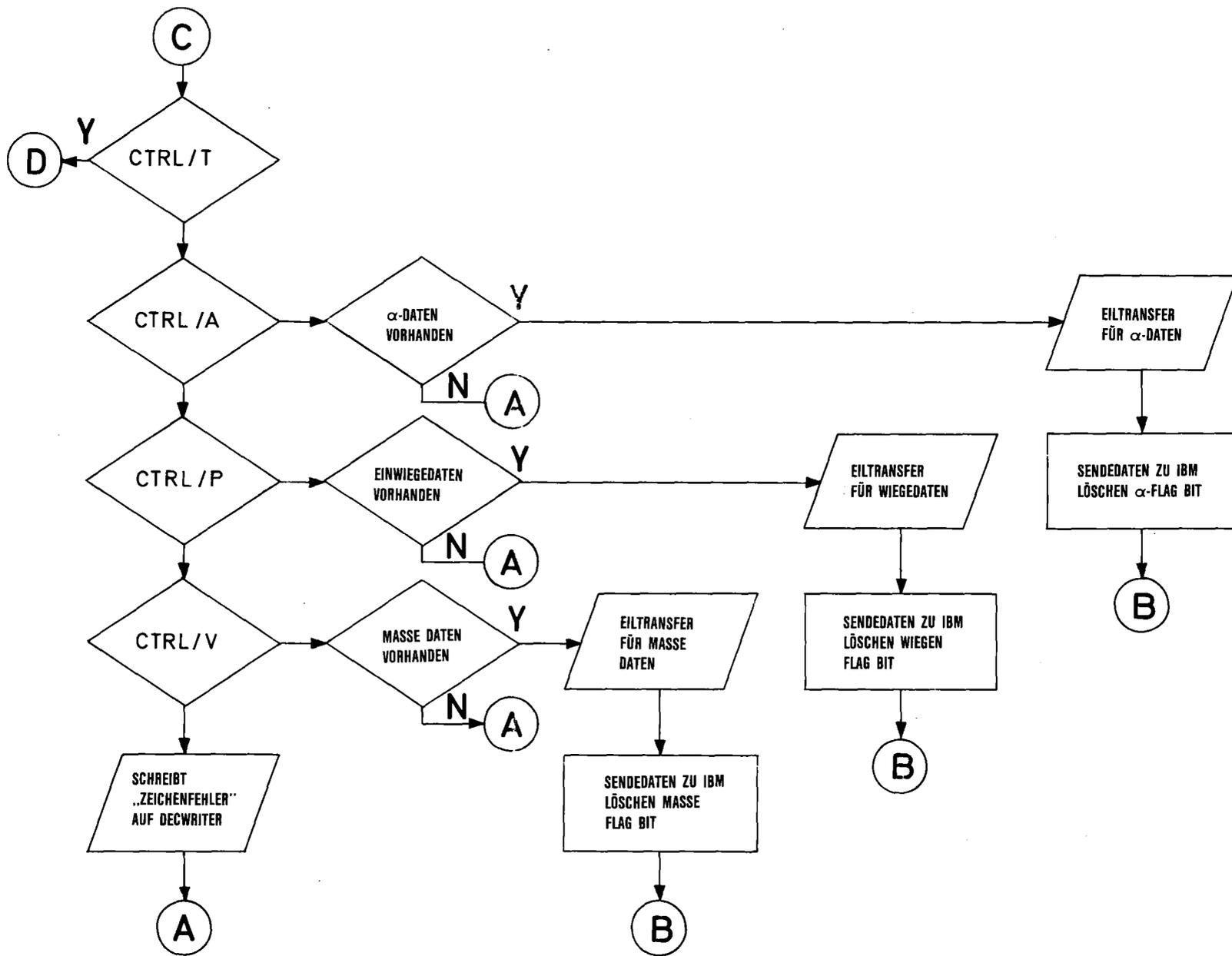


Abb. 3-3: Fortsetzung

zurückgeholt werden und auf einer Platte des VARIAN 620 L abgelegt werden. Dadurch wird eine Forderung nach erhöhter Vertraulichkeit der Daten erfüllt, da sie dann abgesichert im Labor gelagert werden. Zusätzlich erhöht sich die Datensicherheit. Diesem Aspekt wird auch während der Analysenauswertung dadurch Rechnung getragen, daß alle anfallenden Analysenzwischenergebnisse getrennt gespeichert werden, um sie wieder verfügbar zu haben, wenn eines der Rechensysteme ausfällt.

Inzwischen wurde mit einer Anpassung der Analysenresultate an das Datenverarbeitungssystem der Spaltstoffflußkontrolle in Luxemburg begonnen, indem die erzeugten Daten nach festgelegten Kriterien auf ihre Genauigkeit hin überprüft werden. Die Ausgabe des endgültigen Resultates entspricht den Normen der weiteren Datenverarbeitung der Direktion für Sicherheit und Überwachung in Luxemburg.

### 3.1.3.2 Isotopenkorrelationen, beobachtet für einen Pu-haltigen Brennstoff des SWR Garigliano

S. Schoof, L. Koch

Es ist zu erwarten, daß bei einer Rückführung von Plutonium die Isotopenkorrelationen, die für reine, uranhaltige Brennstoffe beobachtet wurden, nicht mehr gelten können. Insbesondere alle Korrelationen, die auf Transurane aufbauen, sind durch die höhere Ausgangskonzentration an Plutonium gestört. Aber auch Spaltproduktkorrelationen werden sich insofern ändern, als die Spaltausbeuten der in Betracht zu ziehenden Spaltquellen unterschiedlich sind.

Die unten beschriebenen Untersuchungen basieren auf Nachbestrahlungsuntersuchungen an Brennstofftabletten, die aus einem Prototyp-Brennelement des SWR Garigliano entnommen wurden.

Die Analysendaten von 21 reinen Uranbrennstoffproben verschiedener Anfangsanreicherung und von 18 Proben verschiedener Plutonium-Anreicherung in Natururan wurden auf lineare Korrelationen des Typs

$$Y = a \cdot X + b$$

hin ausgewertet, wobei X und Y für Abbrand, Nuklidkonzentration oder Isotopenverhältnis stehen. Für jede der beiden Brennstoffgruppen wurden über 400 Korrelationen untersucht.

1. Aus den Achsenabschnitten b wurden für beide Gruppen von Brennstoffen der Anfangsgehalt an Brennstoff bzw. einige Primärausbeuten der Spaltprodukte Kr, Xe und Nd für alle Korrelationen mit einem Korrelationskoeffizienten  $R \geq 0.95$  berechnet. In Tabelle 3-1 sind die Mittelwerte mit den zugehörigen Standardabweichungen Vergleichswerten gegenübergestellt, die aus Reaktordaten (nominale Anfangskonzentrationen) bekannt sind oder die aus Primärspaltausbeuten /3-6/ für U-235 bzw. Pu-239 + U-235 berechnet wurden.

Die Abweichungen zwischen Korrelationsdaten und Vergleichsdaten sind ebenfalls aufgeführt, der Mittelwert dieser Abweichungen liegt bei etwa 5 %. Berücksichtigt man, daß die aus Korrelationen berechneten Anfangswerte durch Extrapolation auf den Wert null aus einem kleinen Meßbereich gewonnen wurden, so ist die Übereinstimmung zwischen beiden Wertegruppen sehr gut.

Einige Fälle, bei denen die Abweichungen zwischen berechneten Werten und Vergleichswerten bedeutend höher als die entsprechenden Standardabweichungen sind, werden in einer ausführlichen Veröffentlichung diskutiert /3-7/.

2. Ein erheblicher Teil der Korrelationen ist von der Anfangskonzentration des Brennstoffes abhängig. Führt man für die Gruppe der Pu-Brennstoffproben die Abreicherung an Pu-Isotopen (Pu-239, Pu-240, Pu-241 und Pu-242) anstelle der Endkonzentration ein, so erhöht sich die Zahl der Korrelationen mit hohen Korrelationskoeffizienten für die Pu-Isotope der Massen 240, 241 und 242 beträchtlich. Im Gegensatz dazu korrelierten Pu-239 Endkonzentration und die Abreicherung von Pu-239 schlecht mit anderen Meßgrößen.
3. Ein Vergleich der starken Korrelationen für Uran- und Stickoxidbrennstoffe zeigt, daß U-235, U-235/U-238, Pu-240, Pu-241, Pu-242, Pu-240/Pu-239, Pu-242/Pu-240, Pu-242/Pu-241 und Xe-136/Xe-134 (als einziges

Tab. 3-1: Nuklidgehalt (IMA/C) primäres Spaltausbeuteverhältnis (PFYR) zu Beginn der Bestrahlung wie berechnet aus der linearen Korrelation mit  $R \geq 0.95$ . Vergleich mit Reaktoranalysen und Spaltausbeuten /3-6/

Nuklid oder Isotopenverhältnis	U-Probe				(U,Pu) Probe 2.0 w/o			
	Korrelationen IMA oder PFYR 2	relative Standardabweichung (%) 3	Fabrikationsdaten bzw. theoretische PFYR 4	Abweichung zwischen 2 und 4 bez. auf 4 (%) 5	Korrelationen IMA oder PFYR 6	relative Standardabweichung (%) 7	Fabrikationsdaten bzw. theoretische PFYR 8	Abweichung zwischen 6 und 8 bez. auf 8 (%) 9
U -235	1,98E-2 <sup>3)</sup>	10,0	2,05 E-2	- 3,4	6,51E-3	6,6	7,03 E-3	- 7,5
U -238	9,80E-1	0,3	9,77 E-1	+ 0,3	9,79E-1	0,7	9,73 E-1	+ 0,6
Pu-239	-----	-----	-----	-----	2,69E-2 <sup>2)</sup>	5,7	2,83 E-2	- 4,8
Pu-240	-----	-----	-----	-----	2,15E-3	26,4	2,01 E-3	+ 7,0
U -235/238	1,97E-2 <sup>3)</sup>	6,6	2,09 E-2	- 5,7	6,93E-3	6,0	7,25 E-3	- 4,4
Kr- 84/ 83	1,91	8,3	1,85	+ 3,3	1,72	4,8	1,68	+ 2,5
Kr- 84/ 86	5,04E-1	5,1	5,06 E-1	- 0,4	5,91E-1	1,2	6,03 E-1	- 6,7
Xe-131/134	3,76E-1	5,7	3,69 E-1	+ 1,9	4,66E-1	4,7	4,99 E-1	- 6,7
Xe-132/131	1,65	8,0	1,49	+ 10,7	1,55	6,8	1,42	+ 9,0
Xe-132/134	6,16E-1	4,2	5,49 E-1	+ 12,2	6,88E-1	3,2	6,68 E-1	+ 3,0
Nd-143/148	3,31 <sup>4)</sup>	6,9	3,54	- 6,6	-----	---	-----	-----
Nd-144/148	2,99 <sup>4)</sup>	3,1	3,21	- 6,8	2,40	4,4	2,48	- 2,9
Nd-145/148	2,26	4,8	2,34	- 3,2	-----	---	-----	-----
Nd-146/145	8,02E-1	3,4	7,56 E-1	+ 6,1	8,27E-1	3,2	8,09 E-1	+ 2,2
Nd-146/148	1,76	1,8	1,77	- 0,3	-----	---	-----	-----

1) PFYR berechnet für 2,0 w/o Plutonium + 0.70 w/o U-235; 2) 3,2 w/o plutonium; 3) 2,02 w/o U-235; 4) 3 Proben mit 2,42 w/o U-235

Spaltproduktverhältnis) besonders gut und häufig mit anderen Meßgrößen für beide Brennstoffarten korrelieren.

Cm-242 und der Abbrand ergeben einige gute Korrelationen für Pu-Brennstoff, aber keine Korrelationen mit  $R \geq 0.95$  für reine Uranbrennstoffproben. Hingegen korrelieren Am-243, Kr-84/Kr-83, Xe-132/Xe-131 und Nd-146/Nd-145 gut für Uranbrennstoffproben, aber im allgemeinen schlecht für Pu-Brennstoff.

4. Von den untersuchten Korrelationen gelten für alle Uran- und Plutoniumbrennstoffproben des SWR Garigliano, unabhängig von der Anfangszusammensetzung des Brennstoffes, zwei Korrelationen des Typs:

$$Y - Y_0 = a \cdot (X - X_0) + b,$$

wobei  $X_0$  und  $Y_0$  die Anfangswerte der Größen X und Y sind.

Es sind die folgenden Korrelationen:

Y	X	R	a	b
Pu-242/Pu-241	Pu-242/Pu-240	0.990	2.73	$-1.77 \cdot 10^{-2}$
Kr-84/Kr-83	Pu-242/Pu-240	0.974	3.93	0.674

Weitere Einzelheiten der beschriebenen Untersuchung können der Veröffentlichung /3-7/ entnommen werden.

### 3.1.3.3 Arbeiten zur naßchemischen Plutonium-Konzentrationsbestimmung in festem Abfall

E. Mainka, W. Coerdt, W. König, H.G. Müller

Nach der Ausarbeitung einer brauchbaren Aufschlußmethode in Tefloncontainern /3-8/ für Plutoniumaschen mit hohen  $\text{SiO}_2$ - $\text{TiO}_2$ -Gehalten gelang die Anpassung der potentiometrischen Pu-Analyse. Als Aufschlußmittel diente ein Schwefelsäure-Flußsäuregemisch, wobei die Flußsäure zum Aufschluß der schwerlöslichen Oxide diente. Die Zugabe von  $\text{HBF}_4$  bewirkte, daß die Fällung von schwerlöslichen Fluoriden durch die Bildung von Fluorboraten

verhindert werden konnte. Die Aufschlußbedingungen sind in Tabelle 3-2 zusammengestellt.

Tabelle 3-2: Aufschlußbedingungen

Probemenge:	0,5 bis 1 g
Säuremischung:	7 ml H <sub>2</sub> SO <sub>4</sub> konz. 1 ml HF 40 %-ig 3 ml HBF <sub>4</sub>
Aufschlußzeit: ca.	3 Std. bei 170°C

Der quantitative Aufschluß hat gegenüber allen anderen Aufschlußverfahren den Vorteil, daß die potentiometrische Bestimmung direkt und quantitativ durchgeführt werden kann, ohne daß Filtrationen und  $\gamma$ -spektroskopische Plutonium-Restgehaltbestimmungen notwendig sind.

Als Analysenmethode für die Plutoniumbestimmung wurde die von Davis und Townsend entwickelte potentiometrische Titration mit CuCl als Reduktionsmittel eingesetzt, das sich auch bei uns für Proben mit hohem Fremdstoffgehalt bewährt hat /3-9/.

Der in dem Analysenmaterial gefundene Fremdstoffgehalt ist in Tabelle 3-3 zusammengestellt. Die Daten sind emissionsspektroskopisch ermittelt worden.

Tabelle 3-3: Höchste gemessene Gehalte der einzelnen Fremdsbstanzen

analysierte Fremdstoffe	Konzentrationen (%)	analysierte Fremdstoffe	Konzentrationen (%)
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	25	MnO	1
CaO	2	Na <sub>2</sub> O	70
CuO	0,5	NiO	1
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	10	SiO <sub>2</sub>	30
K <sub>2</sub> O	5	TiO <sub>2</sub>	50
MgO	1	U <sub>3</sub> O <sub>8</sub>	70
		ZnO	1

Die Pu-Konzentrationen, die wir durch direkte Bestimmungen in den oben beschriebenen Aufschlußlösungen ermittelten, sind in Tabelle 3-4 aufgeführt. Zum Vergleich sind die entsprechenden Pu-Gehalte, die wir nach Pyrosulfataufschluß gewonnen haben, sowie die von MOL angegebenen Daten danebengestellt.

Tabelle 3-4: Pu-Gehalte der Wasteproben nach verschiedenen Aufschlußverfahren vorbehandelt

Probe	Pu-Gehalt MOL (1) (%)	Pu-Gehalt KfK % potent. ++	Pu-Gehalt KfK % potent. +++
EUR 1/1/K	11,16	11,0	11,0
EUR 1/2/K	11,32	12,2	12,0
EUR 1/3/K	3,5	3,1	3,3
EUR 2/1/K	13,41	11,0	11,5
EUR 2/2/K	13,44	12,0	12,7
EUR 2-BIS/1/K	13,4	12,8	12,6
EUR 2-BIS/2/K	12,3	11,1	11,4
EUR 2-BIS/3/K	2,6	2,4	2,4
EUR 3/1/K	12,06	12,08	12,09
EUR 3/2/K	13,36	13,4	13,5
EUR 4/1/K	10,11	10,2	10,16
EUR 4/2/K	9,1	8,9	9,0
EUR 5/1/K	5,0	4,3	4,3
EUR 5/2/K	4,05	4,0	4,0
EUR 5/3/K	4,02	4,1	4,1
EUR 5/4/K	3,99	4,1	4,1
RIN 1/K	2,9	2,8	2,9
RIN 2A/K	2,37	1,1	1,3
RIN 3A/K	2,96*	2,6	2,8

\*  $\alpha$ -spektroskopisch bestimmt

++ Pyrosulfataufschluß

+++ Aufschluß unter Druck

Eine Verbesserung der standardisierten potentiometrischen Analyse-  
methode konnte durch Thermostatisierung des Analysensystems erreicht  
werden. Zur Thermostatisierung wurde der Titrierstand so umgebaut, daß  
das Titriergefäß temperiert werden kann. Außerdem stehen jetzt sämt-  
liche für die Analyse benötigten Lösungen in einem Thermostaten. Auf  
diese Weise wurde die im Routinebetrieb erzielte Analysengenauigkeit  
um den Faktor 2 verbessert.

#### 3.1.3.4 Arbeiten zur massenspektroskopischen Mg-Isotopenverdünnungsanalyse

E. Gantner, H. Bernhardt, H. Deutsch

Zur Kalibrierung des Eingangstanks einer Wiederaufarbeitungsanlage kann  
unter anderem die Verwendung von Mg-Isotopen als Spike herangezogen werden  
/3-10/. Im Zusammenhang mit der Entwicklung eines solchen Eichverfahrens  
für die WAK-GWK haben wir untersucht, unter welchen Arbeitsbedingungen  
die Konzentration von Magnesium durch massenspektrometrische Isotopen-  
verdünnungsanalyse mit der besten Genauigkeit bestimmt werden kann. Diese  
Arbeitsbedingungen sind im folgenden beschrieben:

Ca. 20 µg Mg (Probenlösung: ca. 5 mg Mg/ml als  $MgCl_2$  in 1M HCl) werden  
auf ein Re-Bändchen (Zweibandtechnik) aufgebracht und eingetrocknet. Nach  
Einsetzen der Filaments in die Ionenquelle des Massenspektrometers  
(Varian Typ CH5TH) und Evakuieren wird das Ionisierungsband innerhalb von  
10 min auf 2000°C hochgeheizt (Temperaturkontrolle mit Pyrometer) und dann  
etwa 15 min gewartet. Anschließend wird innerhalb von 5 min das beladene  
Probenbändchen aufgeheizt, bis für Mg-24 (bis natürlichem Mg) ein Faraday-  
Signal zwischen 0,3 V und 1 V erreicht wird (erforderlicher Heizstrom  
1,8-2,0 A). Nach weiteren 5 min Wartezeit (Stabilisierung des Signals)  
werden innerhalb von max. 20 min manuell etwa 10 Doppel-Scans aufgenommen  
(eine rechnergesteuerte Messung ist im Bereich niederer Massen nicht mög-  
lich).

Zur Ermittlung der Genauigkeit und Reproduzierbarkeit wurden unter den  
beschriebenen Bedingungen 12 Natur-Mg-Proben gemessen und aus jeweils  
etwa 15 Einzelverhältnissen die Mittelwerte für die Atomverhältnisse  
 $m_{25}/m_{24}$  und  $m_{26}/m_{24}$  in den 12 Proben berechnet. Die für die Einzelproben  
gefundene Reproduzierbarkeit der Verhältnisse betrug  $\pm 0,4$  % relativ,

die der gemittelten Verhältnisse aus den 12 Werten lag bei  $\pm 0,3$  % relativ. Die so erhaltenen Mittelwerte entsprachen den für Natur-Mg gültigen Werten ( $m_{25}/m_{24} = 0,1266$  und  $m_{26}/m_{24} = 0,1394$ ). Dieses Verfahren zur Mg-Bestimmung durch massenspektrometrische Isotopenverdünnungsanalyse wurde an der Konzentrationsbestimmung einer Mg-26-Spike-Lösung (99,443 Atom-% Mg-26) erprobt und gegenüber der Bestimmung mittels Atomabsorption ein um etwa 1 % niedrigeres Ergebnis erhalten.

Weitere Eichmessungen in Gegenwart von Uran (realistischer Fall einer Dissolverlösung) ergaben, daß unter diesen Bedingungen (Mg:U bis 1:100) ein ausreichendes Mg-Meßsignal nur bei wesentlich höherem Heizstrom als unter den ermittelten Standardbedingungen erhalten wird. Da in diesem Fall eine beträchtliche Isotopenfraktionierung eintritt, ist eine chemische Abtrennung des Mg vor seiner massenspektrometrischen Analyse voraussichtlich nicht zu umgehen. Ein entsprechendes Trennverfahren wird ausgearbeitet.

### 3.2 Zerstörungsfreie Methoden

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

H. Eberle, H. Ottmar

Die Entwicklung bzw. Weiterentwicklung von zerstörungsfreien Meßverfahren zur Spaltstoffbestimmung als alternative oder ergänzende Meßmethoden zu den chemisch-analytischen Bestimmungsmethoden bildeten 1977 einen der Schwerpunkte der F+E-Arbeiten in diesem Forschungsbereich. Hierzu gehören die durchgeführten Arbeiten zur Konzentrationsbestimmung von spaltbarem Material in Lösungen mittels Gammaabsorptiometrie, die gammaspektrometrische Plutoniumisotopenanalyse und die Plutoniumgehaltsbestimmung in Uran-Plutonium-Mischverbindungen durch Röntgenfluoreszenzanalyse.

Für die quantitative Plutoniumbestimmung in Pu/U-Mischverbindungen stellt die Kenntnis des Pu/U-Verhältnisses eine wesentliche Hilfsinformation dar. Aus diesem Grunde verdienen Meßverfahren Beachtung, mit deren Hilfe diese Größe bestimmt werden kann. Es sind deshalb zwei mögliche Meßverfahren zur Pu/U-Verhältnisbestimmung untersucht worden, die besonders im

Hinblick auf Verifikationsmessungen im Rahmen der Spaltstoffflußkontrolle als praktikabel erscheinen. Es handelt sich dabei um zerstörungsfreie gammaspektrometrische Meßverfahren, die auf der Analyse charakteristischer Gammastrahlung von Uran- und Plutoniumisotopen einerseits bzw. auf der Analyse induzierter K-Röntgenstrahlung andererseits beruhen.

#### Analyse isotopenspezifischer Gammastrahlung

Bei diesem Verfahren wird das Pu/U-Verhältnis aus dem gemessenen Intensitätsverhältnis von isotopenspezifischen Gammalinien aus dem natürlichen radioaktiven Zerfall ermittelt. In der Praxis verwendet man vorzugsweise Gammalinien der Uranisotope  $^{235}\text{U}$  oder  $^{238}\text{U}$  bzw. von den Plutoniumisotopen  $^{239}\text{Pu}$  oder  $^{241}\text{Pu}$ .

Wir haben diese Meßmethode für die Pu/U-Bestimmung in einigen Brennstäben herangezogen. Der Kernbrennstoff in diesen Brennstäben bestand aus einer Mischung von Natururan und Plutonium mit Plutoniumgehalten zwischen 2 % und 7 %. Das Pu/U-Verhältnis wurde in diesem Fall aus dem gemessenen Intensitätsverhältnis der Gammalinien bei 646 keV des  $^{239}\text{Pu}$  und bei 743 keV des  $^{238}\text{U}$  bestimmt. Die Verwendung dieser Gammalinien erschien für dieses Anwendungsbeispiel am günstigsten. Die Ergebnisse sind in Tab. 3-5 zusammengestellt.

Tabelle 3-5:

Pu/U-Verhältnisbestimmung aus  $^{239}\text{Pu}$ - und  $^{238}\text{U}$ -Gammalinien

Probe	Pu/U Buchwert	Pu/U Gammamessung	<u>Gammam.-Buchwert</u> Buchwert (%)
Brennstab 1	0,0242	0,0219 $\pm$ 0,0006	-9,5
Brennstab 2	0,0453	0,0420 $\pm$ 0,0015	-7,3
Brennstab 3	0,0786	0,0717 $\pm$ 0,0027	-8,8

Wie man aus dem Vergleich der Meß- und Buchwerte in der Tabelle sieht, liegen die gemessenen Pu/U-Werte systematisch um ca. 8 % unter den angegebenen Sollwerten. Diese Abweichung kann auf Ungenauigkeiten in den für die Analyse benötigten Eingangsdaten beruhen: Für die Bestimmung des Pu/U-Verhältnisses aus dem gemessenen Intensitätsverhältnis der verwendeten Gammalinien des  $^{238}\text{U}$  und  $^{239}\text{Pu}$  müssen nämlich sowohl die Absolutintensitäten (Photonen/Zerfall) der Gammalinien als auch die Isotopenhäufigkeiten der emittierenden Isotope bekannt sein. Darüberhinaus setzt die Auswertung auch eine genaue Kenntnis der Isotopenhäufigkeit des  $^{238}\text{Pu}$  voraus, weil sowohl  $^{238}\text{U}$  als auch  $^{238}\text{Pu}$  Gammalinien gleicher Energie (beide Isotope zerfallen zum  $^{234}\text{U}$ ) emittieren und folglich die gemessene Intensität der  $^{238}\text{U}$ -Gammalinien auf einen Beitrag vom  $^{238}\text{Pu}$ -Zerfall korrigiert werden muß. Insgesamt zeigen unsere Erfahrungen, daß die Pu/U-Bestimmung aus isotopenspezifischen Gammalinien zumindest für Mischungen von Natururan und Plutonium, wo zur Analyse die intensitätsschwachen Gammalinien des  $^{238}\text{U}$  herangezogen werden müssen, lange Meßzeiten (mehrere Stunden) und eine komplizierte Spektrumsanalyse erfordert. Aus diesem Grunde haben wir als alternative Methode die Röntgenfluoreszenzanalyse erprobt.

#### Röntgenfluoreszenzanalyse (RFA)

Diese elementspezifische Meßmethode besitzt den Vorteil, daß sie keinerlei Vorausinformation über die Isotopenzusammensetzung des Urans und Plutoniums benötigt. Für die Pu/U-Bestimmung in einer Reihe verschiedenartiger Proben wurde die K-Röntgenstrahlung verwendet, die mit Hilfe der Gammastrahlung aus einer 1 mCi  $^{57}\text{Co}$ -Quelle angeregt wurde. Da Uran und Plutonium aufgrund ihrer natürlichen Radioaktivität eine nennenswerte Eigenstrahlung im Röntgenbereich aufweisen, mußten die Fluoreszenzspektren durch Spektrums- subtraktion auf diese Eigenstrahlung korrigiert werden. Abb. 3-4 zeigt als Beispiel die an einem Mischoxid-Brennstab gemessenen Spektren.

In Tabelle 3-6 sind die Ergebnisse von Pu/U-Bestimmungen durch Röntgenfluoreszenzanalyse zusammengestellt. Hierbei ist zu bemerken, daß die Pu/U-Werte aus den Röntgenfluoreszenzmessungen ohne jegliche Eichmessungen an Eichstandards allein unter Verwendung von atomaren Daten wie Photonwirkungsquerschnitte und Röntgenfluoreszenzausbeuten aus den gemessenen Röntgenintensitäten über die Beziehung

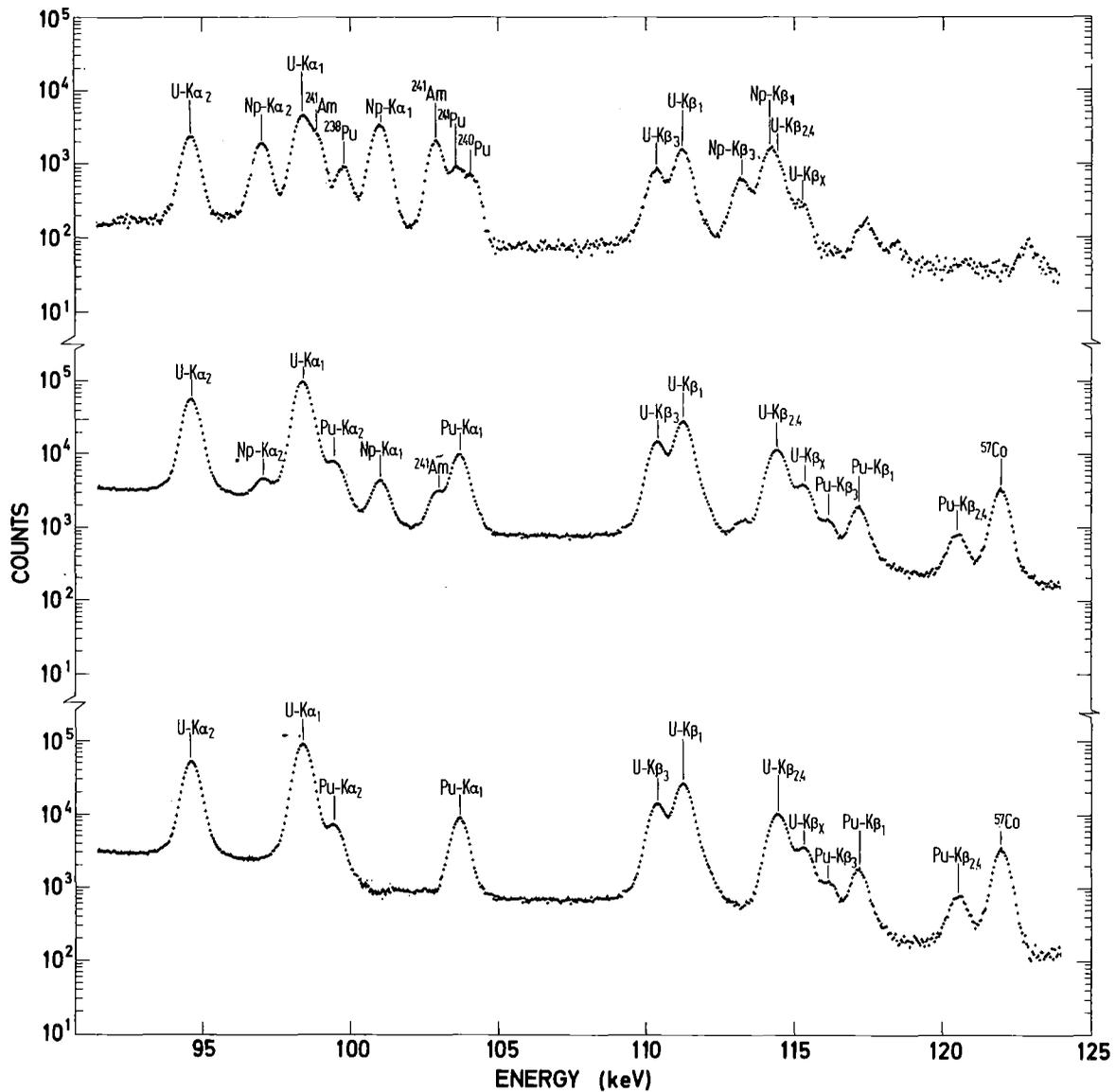


Abb. 3-4: Gammaspektren im Röntgenbereich, gemessen an einem Mischoxid-Brennstab ( $\text{Pu}/\text{U}=0,078$ ). Spektren von oben nach unten: Eigenstrahlungsspektrum, induziertes Röntgenfluoreszenzspektrum mit Eigenstrahlung, reines Fluoreszenzspektrum nach Subtraktion der Eigenstrahlung.

Tabelle 3-6:

Ergebnisse von Röntgenfluoreszenzmessungen zur Pu/U-Verhältnisbestimmung

Probe	Pu/U		RFA-Buchwert Buchwert (%)	$\Delta I_{U,Pu}$ (%)
	Buchwert	RFA		
Stab	0,0239	0,0233	- 2,5	0,27
Stab	0,0251	0,0240	- 4,4	0,29
Plättchen	0,0299	0,0284	- 5,0	0,34
Stab	0,0432	0,0418	- 3,2	0,48
Stab	0,0777	0,0737	- 5,1	0,86
Lösung	0,315	0,289	- 8,6	0,
Plättchen	0,363	0,327	- 9,9	3,5
Plättchen	0,366	0,337	- 7,9	3,6
Plättchen	0,404	0,384	- 5,0	3,8

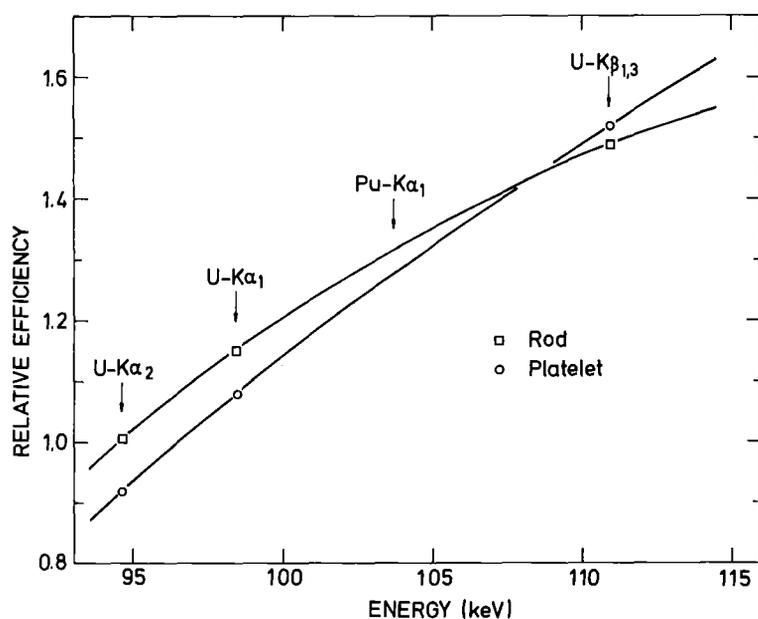


Abb. 3-5:

Verlauf der relativen Nachweiswahrscheinlichkeit für Röntgenstrahlung aus zwei verschiedenen Proben.

$$\frac{I_{\text{Pu}}}{I_{\text{U}}} = \frac{I_{\text{Pu}}}{I_{\text{U}} - \Delta I_{\text{U,Pu}}} \frac{(\sigma_{\text{K}} \omega_{\text{K}} f_{\text{K}})_{\text{U}}}{(\sigma_{\text{K}} \omega_{\text{K}} f_{\text{K}})_{\text{Pu}}} \frac{\varepsilon(E_{\text{U}})}{\varepsilon(E_{\text{Pu}})}$$

ermittelt wurden. Dabei bedeuten  $I_{\text{U}}$ ,  $I_{\text{Pu}}$  die gemessenen Intensitäten der für die Analyse verwendeten Uran- bzw. Plutonium-Röntgenlinien ( $U_{\text{K}\alpha_1}$ ,  $U_{\text{K}\alpha_2}$ ,  $U_{\text{K}\beta_{1,3}}$  bzw.  $\text{Pu}_{\text{K}\alpha_1}$ ),  $\Delta I_{\text{U,Pu}}$  die durch Plutonium  $K_{\beta}$ -Strahlung induzierte sekundäre Uranröntgenintensität,  $\sigma_{\text{K}} \omega_{\text{K}} f_{\text{K}}$  die Anregungswahrscheinlichkeit einer bestimmten K-Röntgenlinie mit dem Verzweigungsverhältnis  $f_{\text{K}}$  durch die primäre  $^{57}\text{Co}$ -Strahlung, und  $\varepsilon(E_{\text{U}})/\varepsilon(E_{\text{Pu}})$  das Verhältnis der Nachweiswahrscheinlichkeiten für Uran- bzw. Plutoniumröntgenlinien der Energie  $E_{\text{U}}$  bzw.  $E_{\text{Pu}}$ . Die Energieabhängigkeit der Nachweiswahrscheinlichkeit für die K-Röntgenlinien wurde in dem interessierenden Energiebereich direkt aus dem gemessenen Spektrum unter Verwendung der bekannten Verzweigungsverhältnisse für die Uranröntgenlinien  $U_{\text{K}\alpha_1}$ ,  $U_{\text{K}\alpha_2}$  und  $U_{\text{K}\beta_{1,3}}$  ermittelt (siehe Abb. 3-5). Die durch sekundäre Anregung erzeugte Uranröntgenintensität  $\Delta I_{\text{U,Pu}}$  ist unter Verwendung der Photonwirkungsquerschnitte aus /3-11/ und dem in /3-12/ angegebenen analytischen Ausdruck berechnet worden. Ihr prozentualer Beitrag zur gemessenen Intensität der Uranröntgenlinien ist in der letzten Spalte der Tabelle 3-6 angegeben. Für die flüssige Probe war dieser Anteil wegen der geringen Dichte der Probe vernachlässigbar. Zur Berechnung der primären Röntgenfluoreszenzausbeuten wurden ebenfalls die atomaren Daten aus /3-11/ verwendet.

Die in Tab. 3-6 zu beobachtenden Differenzen zwischen Meßwerten und Buchwerten können zum Teil auf die Unsicherheiten in den verwendeten atomaren Daten zurückgeführt werden. Es ist aber auch denkbar, daß der verwendete Formalismus zur Berechnung der sekundär induzierten Röntgenstrahlung die tatsächlichen Verhältnisse nicht richtig beschreibt.

Darauf scheint die Tatsache hinzudeuten, daß die Abweichung zwischen Meßwerten und Buchwerten mit steigendem Plutoniumgehalt im Mittel größer wird. Zum genauen Studium dieses sog. "Enhancement" Effektes sind Messungen an einer Reihe von Standardproben mit variierenden Mischungsverhältnissen geplant.

### 3.2.2 Gammaskpektrometrische Plutoniumisotopenanalyse

H. Eberle, H. Ottmar

Die Arbeiten zur gammaskpektrometrischen Plutoniumisotopenanalyse wurden 1977 wieder aufgenommen. Nachdem sich frühere Untersuchungen in erster Linie mit der Bestimmung des  $^{239}\text{Pu}/^{241}\text{Pu}$ -Verhältnisses befaßten, wurden diesmal alle gammaskpektrometrisch erfaßbaren Plutoniumisotope untersucht. Es sind dies die Isotope 238, 239, 240 und 241. Außerdem wurden Bestimmungen des  $^{241}\text{Am}$ -Gehaltes durchgeführt.

Die Messungen konzentrierten sich 1977 zunächst auf 4 verfügbare Plutoniumproben mit genau bekannter Isotopenzusammensetzung (Tab. 3-7). Anhand der Messungen an diesen Proben wurden verschiedene Auswerteverfahren zur Bestimmung von Isotopenverhältnissen erprobt. Da Gammalinien des  $^{241}\text{Pu}$  energetisch immer nahe bei Gammalinien der übrigen Plutoniumisotope liegen, erwies sich die Bestimmung der Isotopenverhältnisse 238/241, 239/241 und 240/241 als zweckmäßig.

Tab. 3-7: Isotopenzusammensetzung der Plutoniumproben zum Zeitpunkt der Gammamessung

Probe	Atomprozent				
	238	239	240	241	242
1 (NBS 946)	0.241	83.772	12.158	3.258	0.569
2 (NBS 947)	0.289	76.369	18.444	3.707	1.191
3	0.169	69.788	24.645	4.178	1.220
4	1.097	62.217	23.092	9.775	3.815

Die Ermittlung eines Isotopenverhältnisses  $N_1/N_2$  aus dem gemessenen Intensitätsverhältnis  $I_1/I_2$  von zwei isotopenspezifischen Gammalinien setzt gemäß der Beziehung

$$\frac{N_1}{N_2} = \frac{I_1}{I_2} \cdot \frac{T_1 B_2 \epsilon_2}{T_2 B_1 \epsilon_1}$$

die Kenntnis der Halbwertszeiten  $T$  der beiden Isotope und die Absolutintensitäten  $B$  der beiden Gammalinien voraus. Die Daten für die Halbwertszeiten wurden /3-13/, jene für die Absolutintensitäten /3-14/ entnommen. Außerdem muß das Verhältnis der Nachweiswahrscheinlichkeiten  $\epsilon_1$  und  $\epsilon_2$  für die beiden Gammaenergien bestimmt werden. Diese Größe, welche die Selbstabsorption der Gammastrahlung in der Probe, die Absorption in Hüll- und Absorbermaterialien sowie die Detektoransprehwahrscheinlichkeit beinhaltet, wurde - wie weiter unten beschrieben - aus dem gemessenen Spektrum ermittelt.

Zwei hochauflösende Halbleiterdetektoren standen für die Messungen zur Verfügung: eine planare Diode ( $V = 1,3 \text{ cm}^3$ ) mit einer Energieauflösung von 550 eV bei 122 keV und eine koaxiale Diode ( $V = 18 \text{ cm}^3$ ) mit einer Energieauflösung von 720 eV bei derselben Energie. Alle 4 Proben wurden mit beiden Detektorsystemen analysiert. Die Peakflächenbestimmung erfolgte durch Summation von Kanalgehalten, wobei für die Untergrundsubtraktion der Verlauf des Untergrundes unter einem Gammapeak bzw. einer Peakgruppe in Form einer "abgerundeten" Stufenfunktion /3-15/

$$B(i) = B(n) + \{B(m) - B(n)\} \frac{\sum_{j=n}^i y(j)}{\sum_{k=n}^m y(k)}$$

berechnet wurde. Hierbei bedeuten  $B(i)$  die berechnete Untergrundzählrate im Kanal  $i$ ,  $y(i)$  die gemessene Zählrate im Kanal  $i$  und  $B(n)$  bzw.  $B(m)$  die in peakfreien Bereichen zu beiden Seiten des zu analysierenden Peaks durch Mittelwertbildung bestimmten mittleren Untergrundzählraten.

Im folgenden sei kurz zusammengestellt, in welcher Weise die verschiedenen Isotopenverhältnisse ermittelt wurden, und welche Ergebnisse dabei erzielt worden sind.

$^{238}\text{Pu}/^{241}\text{Pu}$ -Verhältnis: Verwendet wurden die Gammalinien 148 keV des  $^{241}\text{Pu}$  und 152 keV des  $^{238}\text{Pu}$ . Da die 148 keV-Linie nicht vollständig aufgelöst werden konnte, wurden je nach Detektorauflösung die gesamte Peakintensität in den Bereichen 139-150 keV, 143-150 keV oder 146-150 keV bestimmt und auf Beiträge von  $^{239}\text{Pu}$  und  $^{241}\text{Am}$  korrigiert. Der Verlauf der relativen Nachweiswahrscheinlichkeit als Funktion der Gammaenergie  $\epsilon(E)$  wurde im Energiebereich zwischen 129 keV und 267 keV durch Anpassung eines Polynoms dritter Ordnung an gemessene Peakintensitäten von  $^{239}\text{Pu}$  - und  $^{241}\text{Pu}$  - Gammalinien bestimmt. Die Ergebnisse der gammaspektrometrischen Isotopenverhältnisbestimmung, normiert auf den massenspektrometrischen Referenzwert, sind in Tab. 3-8 zusammengefaßt.

Tab. 3-8:  $\frac{(^{238}\text{Pu}/^{241}\text{Pu})_{\text{Gamma}}}{(^{238}\text{Pu}/^{241}\text{Pu})_{\text{Massenspektr.}}}$

Probe	Planarer Detektor		Koaxialer Detektor
	143-150 keV +152 keV	146-150 keV +152 keV	139-150 keV +152 keV
1	0.956	0.965	0.950
2	0.968	0.974	0.947
3	0.926	0.935	0.910
4	0.950	0.958	0.922

$^{239}\text{Pu}/^{241}\text{Pu}$ -Verhältnis: Dieses Isotopenverhältnis wurde durch eine Multi-gruppenanalyse von mehr oder weniger komplexen Peakstrukturen im Energiebereich zwischen 332 und 422 keV bestimmt, die Gammalinien von  $^{239,241}\text{Pu}$  und  $^{241}\text{Am}$  enthalten. Verwendet wurden die Peakgruppen 328-339 keV, 339-347 keV, 365-378 keV, 378-385 keV, 389-395 keV und 421-425 keV. Die gemessene Intensität  $Y$  in jeder dieser Peakgruppen stellt eine Linearkombination von Beiträgen der genannten Isotope dar:

$$Y_i = \sum_{j=1}^J A_{ij} \epsilon_{ij} N_j$$

wobei  $A_{ij}$  als nukleare Konstante die Anzahl der Photonen/Zerfall des Isotops  $N_j$  im Energiebereich der Peakgruppe  $i$  und  $\epsilon_{ij}$  die Nachweiswahrscheinlichkeit für diese Photonen beschreiben. Der Verlauf der relativen Nachweiswahrscheinlichkeit wurde im Energiebereich zwischen 255 keV und 451 keV durch Anpassung einer Exponential- bzw. Potenzfunktion an gemessenen Intensitäten von  $^{239}\text{Pu}$ -Gammalinien bestimmt. Die unbekanntenen Isotopenhäufigkeiten  $N_{239}$ ,  $N_{241}$  und  $N_{\text{Am}}$  wurden dann aus dem linearen Gleichungssystem durch Least-Squares-Anpassung ermittelt. Die daraus resultierenden  $^{239}\text{Pu}/^{241}\text{Pu}$ -Verhältnisse, wiederum normiert auf die massenspektrometrischen Referenzwerte, sind in Tab. 3-9 zusammengestellt.

Tab. 3-9: 
$$\frac{(^{239}\text{Pu}/^{241}\text{Pu})_{\text{Gamma}}}{(^{239}\text{Pu}/^{241}\text{Pu})_{\text{Massenspektr.}}}$$

Probe	Planarer Detektor	Koaxialer Detektor
	332-422 keV	332-422 keV
1	0.971	0.973
2	0.966	0.962
3	0.971	0.974
4	0.974	0.975

$^{240}\text{Pu}/^{241}\text{Pu}$ -Verhältnis: Dieses Isotopenverhältnis wurde aus dem Intensitätsverhältnis der Gammalinie 160 keV ( $^{240}\text{Pu}$ ) und 164 keV ( $^{241}\text{Pu}$ ) bestimmt. Die 160 keV-Linie des  $^{240}\text{Pu}$  ist Bestandteil einer komplexen Peakstruktur mit wesentlichen Beiträgen von den Isotopen  $^{239,241}\text{Pu}$ . Dies erfordert große Korrekturen bei der Bestimmung der Intensität der  $^{240}\text{Pu}$ -Gammalinie. Die Ergebnisse der Gammaanalysen sind in Tab. 3-10 wiedergegeben.

Tab. 3-10:

$$\frac{({}^{240}\text{Pu}/{}^{241}\text{Pu})_{\text{Gamma}}}{({}^{240}\text{Pu}/{}^{241}\text{Pu})_{\text{Massenspektr.}}}$$

Probe	Planarer Detektor		Koaxialer Detektor	
	160 keV <sup>a)</sup> +164 keV	160 keV <sup>b)</sup> +164 keV	160 keV <sup>a)</sup> +164 keV	160 keV <sup>b)</sup> +164 keV
1	0.906	0.862	0.843	0.808
2	0.914	0.905	0.872	0.859
3	0.945	0.925	0.902	0.861
4	0.952	0.735	0.901	0.709

a) Untergrundfenster für Peakflächenbestimmung bei 158,6-158,9 u. 166,6-167,6 keV

b) Untergrundfenster für Peakflächenbestimmung bei 158,6-158,9, 162,6-162,9 u. 166,6-167,6 keV

Die Ergebnisse in den 3 vorstehenden Tabellen zeigen, daß die gammaspektrometrisch bestimmten Isotopenverhältnisse in unterschiedlichen Größenordnungen systematisch von den massenspektrometrischen Referenzwerten abweichen. Diese Abweichungen können zum Teil auf systematische Fehler in den bei der Auswertung der Gammaskpektren verwendeten Absolutintensitäten zurückgeführt werden, aber auch systematische Fehler in dem angewandten Auswerteverfahren sind nicht auszuschließen. Da andere Labors innerhalb der ESARDA ebenfalls auf diesem Gebiet arbeiten, hat die Arbeitsgruppe für zerstörungsfreie Meßverfahren der ESARDA einen Interlaboratoriums-Vergleichstest für gammaspektrometrische Isotopenanalysen vorgeschlagen, um einen umfassenden Überblick über den derzeitigen Stand der Technik dieser Meßmethode zu erhalten. Der Vergleichstest beinhaltet Analysen der Isotopenstandards NBS-SRM 946, 947 und 948. Die Auswertung der Gammaskpektren soll mit einem einheitlichen Satz nuklearer Daten erfolgen, jedoch sollen zur Peakflächenbestimmung unterschiedliche Methoden angewandt werden. Die Ergebnisse dieses Vergleichstests werden Mitte 1978 vorliegen.

### 3.2.3 Gammaabsorptiometrie zur Bestimmung der Konzentration von Aktiniden in Lösungen

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

Die Transmissionsmessung mit Gammastrahlung bietet eine einfache Möglichkeit, die Konzentration von schweren Elementen wie Uran und Plutonium in Lösungen auf zerstörungsfreiem Wege zu bestimmen. Hierbei wird ausgenutzt, daß der totale Absorptionswirkungsquerschnitt eines Elements bei den Gammaenergien, die der Anregungsenergie eines Elektrons in der K- oder L-Schale entsprechen, sprunghaft ansteigt. Der Logarithmus des Verhältnisses der Transmissionswerte unterhalb und oberhalb der K- bzw. L-Kante ist ein direktes Maß für die Konzentration dieses Elements im durchstrahlten Volumen.

Durch die Messung mit zwei Gammaquellen, deren Energien unterhalb und oberhalb der Absorptionskante liegen, läßt sich das Transmissionsverhältnis sehr einfach bestimmen. Da aber der Absorptionsquerschnitt des Matrixmaterials und/oder des Lösungsmittels bei diesen beiden Energien nicht exakt gleich ist, erhält man bei der "Zwei-Quellen-Methode" eine mehr oder weniger starke Abhängigkeit des Meßergebnisses von der Zusammensetzung und der Konzentration aller anderen Elemente in der Probe. Diese Abhängigkeit ist umso kleiner, je enger die Gammaenergien der verwendeten Gammastrahlen die Energie der Absorptionskante einschließen.

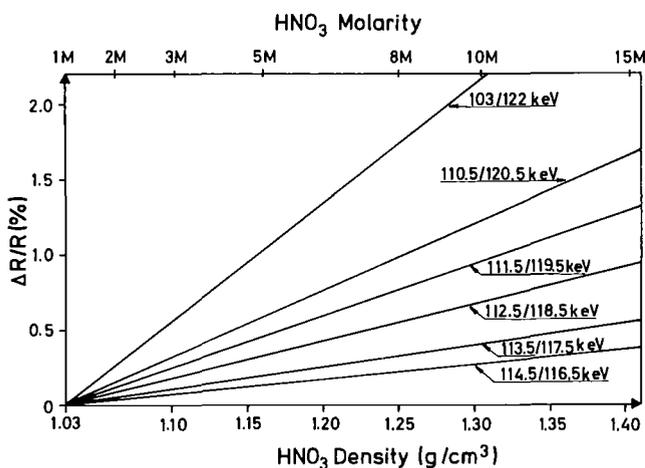


Abb. 3-6:

Prozentuale Änderung des Transmissionsverhältnisses für verschiedene Paare von Gammaenergien unterhalb und oberhalb der K-Absorptionskante von Uran bei Änderung der  $\text{HNO}_3$ -Molarität einer Uranylнитratlösung.

In Abb. 3-6 ist der Einfluß der Konzentration der Salpetersäure auf das Meßergebnis von Uranylнитratlösungen für verschiedene Paare von Gammaenergien dargestellt.

Um Matrixeffekte weitgehend auszuschließen, wurden Gammastrahlungsquellen mit einer kontinuierlichen Energieverteilung zu den Messungen verwendet. Bei dieser Methode kann das Transmissionsverhältnis sehr dicht an der Absorptionskante gemessen werden. Die limitierende Größe ist hier das endliche Auflösungsvermögen des Detektors; jedoch kann die Transmission direkt an der Absorptionskante durch geeignete Extrapolationsverfahren bestimmt und damit der Einfluß von Matrixmaterial vollständig eliminiert werden.

Im Berichtszeitraum konnte der mechanische Aufbau, die Abschirmung der 200 kV-Röntgenröhre und die Kollimation des Röntgenstrahls fertiggestellt werden. Die obere Kurve in Abb. 3-7 zeigt ein kontinuierliches Gammagespektrum, das mit diesem Röntgengenerator bei einer Hochspannung von 140 kV und einem Filter, bestehend aus 7 mm Kupfer und 2 mm Cadmium, gemessen wurde.

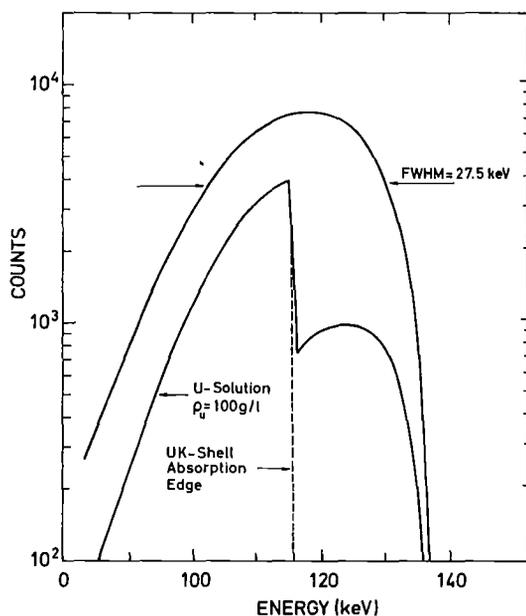


Abb. 3-7:

Gefilterter Röntgenstrahl aus einem Röntgengenerator vor und nach der Transmission durch eine 5 cm dicke Schicht einer Uranlösung mit 100 g U/l.

Die Halbwertsbreite der Energieverteilung der Röntgenstrahlung betrug 28 keV, das Intensitätsmaximum lag etwa bei der Energie der K-Absorptionskante von Uran. Die untere Kurve in Abb. 3-7 zeigt den gleichen gefilterten

Röntgenstrahl nach Durchstrahlung einer Kuvette mit Uranyl-nitratlösung bei einer Konzentration von 100 g Uran pro Liter.

Als zweite Methode zur Erzeugung eines kontinuierlichen Gammaspektrums wurde eine Comptonstreuquelle getestet; dabei wird die an Material mit kleiner Kernladungszahl Compton-gestreute 122 keV Gammastrahlung einer  $^{57}\text{Co}$ -Quelle verwendet. Durch Selektion der Streuwinkel mit Hilfe eines geeigneten Kollimators können die Breite und die Lage des Streuspektrums beeinflusst werden. Abb. 3-8 zeigt Messungen an einem so erzeugten Gammastrahl mit und ohne Uranmetallfolie mit 0,28 g U pro  $\text{cm}^2$ .

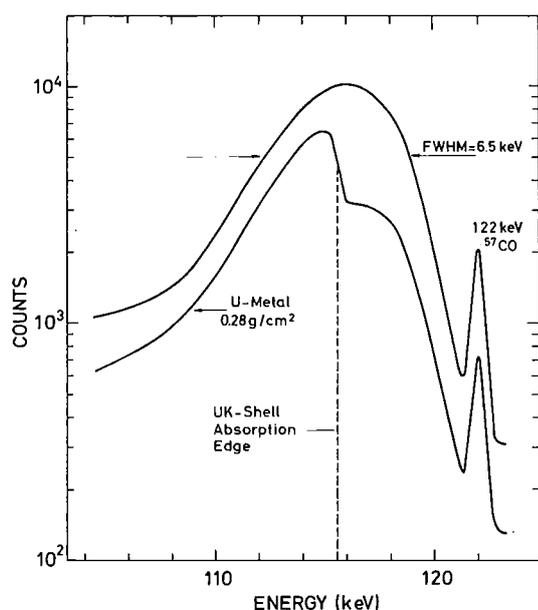


Abb. 3-8:

Kontinuierliches Comptonstreuungsspektrum von 122 keV Photonen aus einer  $^{57}\text{Co}$ -Quelle vor und nach der Transmission durch eine Uranmetallfolie.

Die Auswertung der gemessenen Röntgen- bzw. Gammaspektren geschieht durch Anpassung von geeigneten Funktionen an die gemessenen Transmissionswerte  $T(E)$  unterhalb und oberhalb der K-Kante. Es wurden verschiedene Fitfunktionen getestet. Dabei stellte sich heraus, daß eine Anpassung der Meßdaten gemäß der Gleichung

$$\ln \ln (1/T(E)) = \ln(\mu(E) \cdot \rho \cdot d)$$

mit einer Geraden oder Parabel eine ausreichende Genauigkeit liefert.  $E$  ist hierbei die Gammaenergie,  $T(E)$  die Transmission,  $\mu(E)$  der Absorptionswirkungsquerschnitt,  $\rho$  die Konzentration von Uran, Thorium, Plutonium) und  $d$  die Dicke der durchstrahlten Probe. Die Höhe des Transmissionsprunges bei der Energie der K-Kante wird durch Extrapolation der Meßwerte unterhalb

und oberhalb dieser Energie bestimmt.

Die Aufnahme der Spektren und die Auswertung der Messungen geschieht vollautomatisch durch den Anschluß an einen NOVA 2 Computer über ein CAMAC Interface. Die notwendige Software wurde im Berichtszeitraum entwickelt und getestet. Auf eine angeschlossene Magnetbandeinheit können die Meßergebnisse und Spektren archiviert werden. Erste Ergebnisse mit diesem Meßsystem sind in Abb. 3-9 dargestellt. Sie zeigen den Logarithmus des Verhältnisses  $R$  der Transmission unterhalb und oberhalb der K-Kante als Funktion der Urankonzentration für 9 Uranylнитratlösungen im Bereich von 50 bis 250 g Uran pro Liter. Die Messungen wurden an 3 cm langen Edelstahlküvetten vorgenommen, die typische Meßzeit betrug 2000 sec.

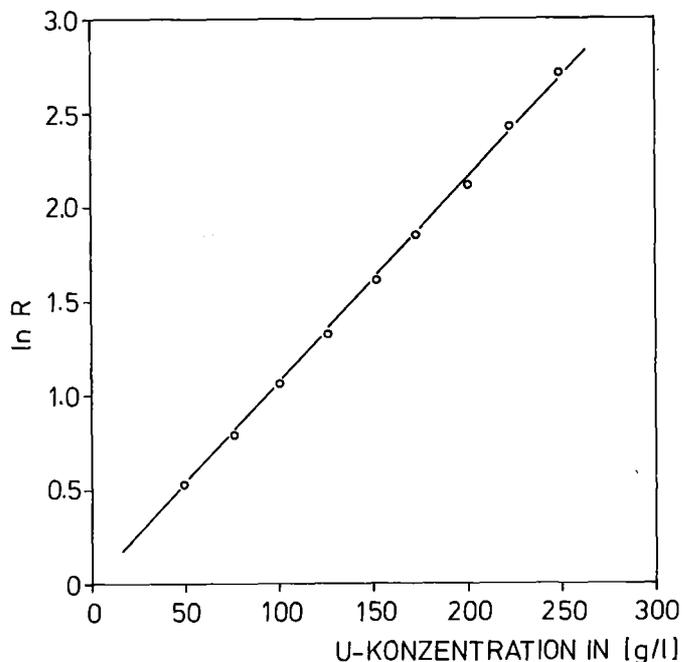


Abb. 3-9:

Der Logarithmus des Verhältnisses  $R$  der Transmission unterhalb und oberhalb der K-Kante als Funktion der Urankonzentration in Uranylнитratlösungen (Küvettenlänge 3 cm).

Für das Jahr 1978 ist die Beschaffung eines Gleichspannungsrontgengenerators vorgesehen; damit kann die mittlere Zählrate gegenüber der jetzigen Wechselspannungsröhre ohne Verschlechterung des Auflösungsvermögens des Detektors um einen Faktor 6-7 gesteigert werden bzw. die Meßzeit bei gleicher statistischer Genauigkeit um diesen Faktor gesenkt werden. Außerdem werden mit dieser Röhre Messungen im Bereich der L-Kanten möglich sein. Wegen des größeren Sprungs im Absorptionsquerschnitt an der L-Kante werden dann auch Uran- und Plutoniumkonzentrationen unterhalb 10 g pro Liter zerstörungsfrei mit Hilfe der Gammaabsorptiometrie meßbar sein.

### 3.2.4 Meßgerät zur Bestimmung des Plutoniumgehalts in kleinen Abfallbehältern durch Messung der Gammaeigenstrahlung

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

Im Rahmen des Deutsch-Indischen Zusammenarbeitsabkommens ist im Frühjahr 1977 ein Plutonium-Abfallmeßgerät fertiggestellt und bei BARC, Bombay, in Betrieb genommen worden. Es handelt sich hierbei um ein gammaspektrometrisches Meßgerät, welches in erster Linie zur quantitativen Bestimmung von Plutonium in solchen Abfallstoffen bestimmt ist, die außer Plutonium keine wesentlichen Kontaminationen mit anderen Gammastrahlern aufweisen. Die Meßmethode, die auch eine Korrektur auf Gammaabsorption in der Meßprobe beinhaltet, ist in /3-16/ beschrieben.

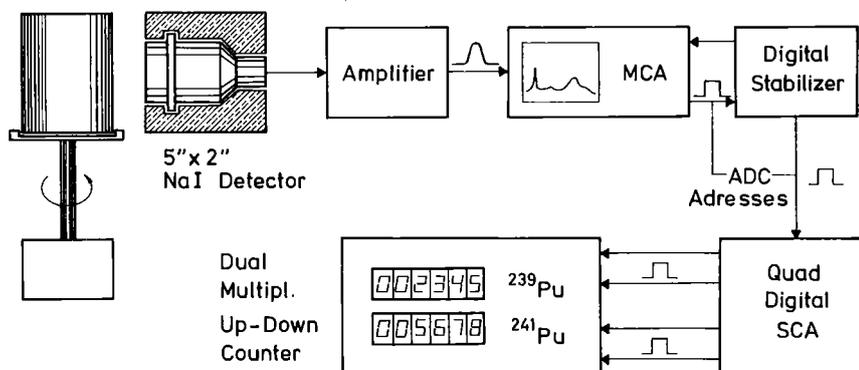


Abb. 3-10: Blockdiagramm des gammaspektrometrischen Plutonium-Abfallmeßgerätes

Abb. 3-10 zeigt das Blockschaltbild der Meßapparatur. Standardisierte Abfallbehälter mit einem Durchmesser von 15 cm und einer Höhe von 21 cm rotieren vor einem 5" x 2" NaJ-Detektor. Die dort nachgewiesene Gammastrahlung wird in einem Vielkanalanalysator (Kernspeicherbereich 1 K) analysiert und an dessen Bildschirm optisch dargestellt. Parallel dazu werden die digitalen Ausgangssignale des Analog-Digital-Wandlers 4 digitalen Fenstern zugeführt, mit deren Hilfe 4 verschiedene Spektrumsbereiche digital ausgewählt werden können. Die digitalen Fenster erzeugen immer

dann ein logisches Ausgangssignal, wenn die Kernspeicheradresse eines Detektorimpulses in den am digitalen Fenster ausgewählten Adressenbereich fällt. Die Ausgangszählraten  $c_1, c_2, c_3, c_4$  der 4 digitalen Fenster werden schließlich in zwei multiplizierenden Vor-Rückwärtszählern, die die Operationen

$$\begin{array}{l} A c_1 - B c_2 \text{ und} \\ C c_3 - D c_4 \end{array}$$

ausführen, weiterverarbeitet. Die Konstanten A, B, C, D sind in Einzelschritten im Bereich zwischen 0,000 und 0,999 vorwählbar. Bei geeigneter Eichung, d.h. bei geeigneter Wahl der 4 Spektrumsbereiche und der Eichkonstanten A, B, C, D, stellen die Ergebnisse dieser arithmetischen Operationen die gemessenen  $^{239}\text{Pu}$ - bzw.  $^{241}\text{Pu}$ -Mengen dar. Sie werden an 2 Leuchtziffern-Displays optisch angezeigt.

Zur Eichung der Meßapparatur wurden 6 Eichstandards hergestellt. Die enthielten Plutoniummengen zwischen 0,05 g und 2 g, die innerhalb der Standardbehälter in typischerweise vorkommenden Matrixmaterialien verteilt wurden. Die Zählraten in der 208 keV-Gammalinie und im Energiebereich 375-470 keV, jeweils auf Comptonuntergrund korrigiert mit Hilfe von Zählraten aus benachbarten Untergrundfenstern, wurden zur Bestimmung des  $^{241}\text{Pu}$ - bzw.  $^{239}\text{Pu}$ -Gehaltes verwendet.  $^{239}\text{Pu}$ -Mengen in der Größenordnung von ca. 10 mg konnten noch sicher nachgewiesen werden.

Die Isotopenzusammensetzung des Plutoniums ist im vorliegenden Anwendungsfall nahezu konstant (ca. 90 %  $^{239}\text{Pu}$ ). Dieser vorteilhafte Umstand konnte sowohl zur einfachen Feststellung von Absorptionseffekten als auch zum Nachweis anderer gammaaktiver Kontaminationen in den Meßproben genutzt werden. Als ein qualitativer Indikator für nennenwerte Gammaabsorption konnte die Abweichung der gemessenen  $^{241}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ -Verhältnisse vom bekannten Sollwert dienen. Aufgrund der unterschiedlichen Energie der  $^{241}\text{Pu}$ - und  $^{239}\text{Pu}$ -Gammastrahlung (208 keV gegen ca. 400 keV) weicht das gemessene  $^{241}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ -Verhältnis umso stärker vom Sollwert ab, je höher die Gammaabsorption in der Probe ist. Mit der Entwicklung eines quantitativen Korrekturverfahrens, welches durch Analyse der Gammastrahlung in den Energiebereichen um 100 keV, 200 keV und 400 keV sowohl eine Korrektur auf Absorption im Kernbrennstoff selbst als auch in den Matrixmaterialien der Abfallstoffe erlaubt, wurde begonnen.

Zum Nachweis von gammaaktiven Kontaminationen, die u.U. die Plutoniumbestimmung stören könnten, wurde folgendermaßen verfahren: neben dem normalen Energiefenster von 375-470 keV zur  $^{239}\text{Pu}$ -Bestimmung wurde noch ein weiteres Energiefenster im Bereich 290-470 keV gesetzt. Wie die Rechnungen in /3-16/ gezeigt haben, tragen bei  $^{239}\text{Pu}$ -Isotopenhäufigkeiten von  $\approx 90\%$  andere Isotope nur zu einem geringen Teil (<10 %) zur gemessenen Intensität in diesem Energiebereich bei. Für die  $^{239}\text{Pu}$ -Bestimmung konnten somit die Zählraten sowohl im Energiebereich 290-470 keV als auch im Energiebereich 375-470 keV verwendet werden. Eine  $^{239}\text{Pu}$ -Eichung wurde für beide Bereiche getrennt durchgeführt. Die Erweiterung der Auswerte-Elektronik durch einen weiteren Vor-Rückwärtszähler erlaubte dann bei jeder Messung einen Vergleich von zwei  $^{239}\text{Pu}$ -Meßwerten, die bei Abwesenheit von Störstrahlungen identisch sein sollten. Wichen die beiden Meßwerte jedoch stark voneinander ab, so konnte dies als ein Anzeichen für die Gegenwart von Gammastrahlung, die nicht von Plutonium stammte, gewertet werden. Solche Meßproben wurden ausgesondert und einer genaueren Spektrumsanalyse unterzogen.

### 3.2.5 Entwicklung eines rechnergesteuerten On-Line Datenaufnahme- und Auswertungssystems

P. Matussek

In der Aufgabenstellung der Arbeitsgruppe SpFK im IAK II überwiegen solche Meßverfahren, bei denen Gamma- oder Röntgenspektren aufgenommen und in verschiedener Weise ausgewertet werden. Es wurde daher ein flexibles Meßsystem entwickelt, das den verschiedenen Anwendungen gerecht werden kann. Der schematische Aufbau der Hardware ist in Abb. 3-11 dargestellt. Es besteht aus einem NOVA 2 Rechner mit 32 K Kernspeicher, einem 9 Spur Magnetbandgerät mit den Schreibdichten 800 und 1600 bpi und einer Bedienungskonsole (Teleprint) mit Lochstreifen Ein- und Ausgabe. Als Schnittstelle zum Experiment wurde das normierte Einschubsystem CAMAC verwendet. Damit stehen dem Anwender derzeit etwa 700 verschiedene kommerziell erhältliche Einschübe verschiedener Firmen für Datenaufnahme- und Steuerungszwecke in einem breiten Anwendungsbereich zur Verfügung (z.B. ADC's, Zähler, Timer, Displaytreiber, Digitalvoltmeter, Schritt-

motoransteuerungen usw.). Alle diese Einschübe können über das CAMAC-Interface vom Rechner gesteuert und ausgelesen bzw. beschrieben werden. Als Programmiersprache wurde die interpretative Sprache BASIC gewählt. Sie hat zwar den inhärenten Nachteil, relativ langsam zu sein, dagegen den Vorteil,

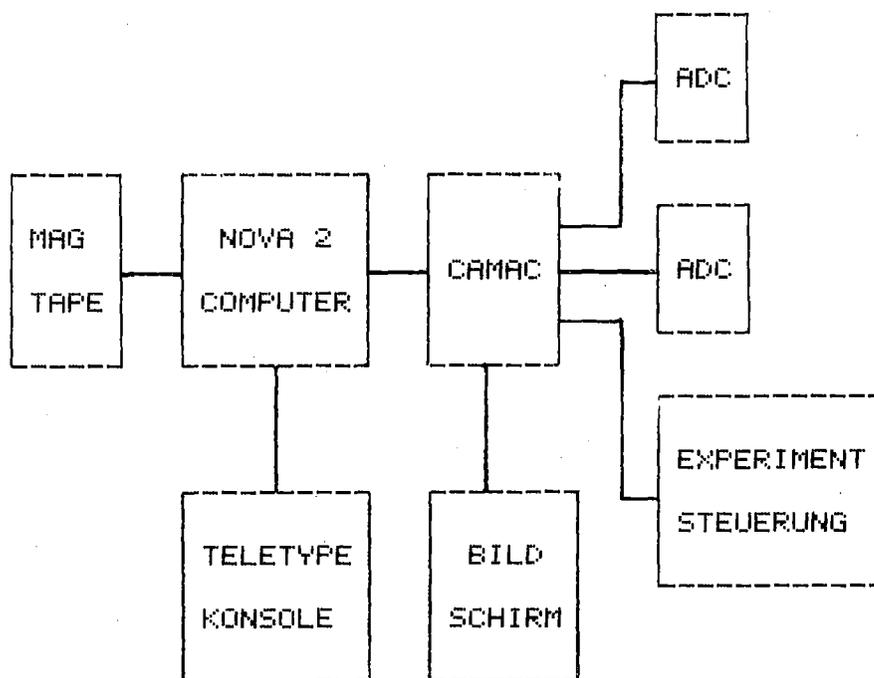


Abb. 3-11: Schematische Darstellung der Hardwarekonfiguration des On-Line Datenaufnahme- und Auswertungssystems.

daß Daten und Programmteile während der Run-Time abgerufen und schnell und bequem geändert werden können. Dies ist besonders bei der Neuentwicklung von Programmen eine große Erleichterung für den Programmierer. Ein schneller Datenverkehr, wie er für die Aufnahme von Spektren oder zur Aufbereitung von Live-Display-Daten notwendig ist, kann natürlich auf dieser Basis nicht erfolgen.

Es wurde daher eine Reihe von BASIC-Calls und ein Interruptmodul in Maschinensprache programmiert. Der schnelle Datentransfer erfolgt jetzt interruptgesteuert, die Interrupts können über BASIC-Calls zugelassen oder maskiert werden, die Statusinformation ist ebenfalls über BASIC-Calls zugänglich. Bei der Programmierung wurde auf leichte Verständlichkeit der Calls Wert gelegt; so läßt sich die Display-Routine z.B. mit CALL 6, "DISPLAY", Parameter 1 ... Parameter 6 aufrufen.

Der zur Verfügung stehende Kernspeicherbereich von 32 K ist in folgender Weise aufgeteilt: Etwa 14 K sind für das Betriebssystem, BASIC, die BASIC Calls und den Interruptmodul sowie Statusarrays reserviert, 12 K Kernspeicher stehen für die Akkumulierung von Spektren zur Verfügung, 6 K sind frei für Steuerungs- und Auswerteprogramme. Da die Wortlänge von 16 bit (entsprechend 65 535 counts) für die meisten Anwendungen nicht ausreicht, wurden je 2 Kernspeicherplätze zu einer ADC-Adresse zusammengefaßt. Es stehen damit für die Spektrenaufnahme 6 K Kanäle mit einem Speicherinhalt von 32 bit (entsprechend ca. 4 Milliarden counts) pro Kanal zur Verfügung. Dieser Speicherbereich kann von bis zu 7 unabhängigen ADC's benutzt werden, die Zuweisung der Bereiche für die einzelnen ADC's erfolgt über BASIC-Calls. Jedem ADC ist ein Timer zugeordnet, der Messungen im Real-Time oder Live-Time Mode gestattet. Umfangreiche Auswerteprogramme, für die der 6 K Programmspeicher nicht ausreicht, können in Overlay Technik programmiert werden: Die einzelnen Programmteile werden auf Magnetband abgelegt, und nur das jeweils benötigte Teilprogramm wird automatisch vom Magnetband in den Kernspeicher gelesen und ausgeführt.

Das On-Line Datenaufnahme- und Auswertesystem ist seit Herbst 1977 im Einsatz und wurde zunächst für die vollautomatische gammaabsorptiometrische Bestimmung von Urankonzentrationen in Lösungen und zur Auswertung der gammaspektrometrischen Messungen zur Plutoniumisotopenanalyse eingesetzt.

### 3.3 Interlaboratoriumstests

#### 3.3.1 Interlaboratoriumstest "AS-76"

W. Beyrich, G. Spannagel

Über die Aufgabenstellung dieses Experimentes und den Teilnehmerkreis war bereits im vorausgegangenen Jahr berichtet worden /3-17/. 1977 wurden im Zentralbüro für Kernmessungen (ZBKM) der EURATOM in Geel, Belgien die vier erforderlichen Probenmaterialien unterschiedlicher Pu-238-Konzentration hergestellt und in ca. 150 Meßproben aufgeteilt. Der Versand an die Teilnehmerlaboratorien war bis Ende Juni abgeschlossen. Vom Projekt SpFK wurden Richtlinien für die Durchführung der Analysen sowie Datenblätter für die Übermittlung der Meßergebnisse erarbeitet und an die Laboratorien verschickt.

In der zweiten Jahreshälfte 1977 wurden die verwendeten Probenmaterialien hinsichtlich ihrer exakten Isotopenzusammensetzung vom ZBKM sowie vom National Bureau of Standards (NBS), Washington, USA massenspektrometrisch untersucht. Im gleichen Zeitraum wurden die Rechenprogramme zur Auswertung der Meßdaten gemeinsam mit dem Institut für Datenverarbeitung in der Technik erstellt und erprobt. Die Meßwerte der Teilnehmer lagen bei Jahresabschluß nahezu vollständig vor.

#### 3.3.2 Interlaboratoriumstest "IDA-78"

W. Beyrich, G. Spannagel

Die Analyse der aktiven Eingangslösungen von Wiederaufarbeitungsanlagen in Bezug auf die Uran- und Plutoniumzusammensetzungen sowie deren Isotopenkonzentrationen nach der massenspektrometrischen Isotopenverdünnungsanalyse waren erstmals vor 6 Jahren in dem Experiment IDA-72 (Isotope Dilution Analysis) untersucht worden /3-18/. Im Hinblick auf die wachsende Bedeutung, die der Überwachung von Wiederaufarbeitungsanlagen zukommt, wurde die Durchführung eines neuen derartigen Experimentes "IDA-78" beschlossen mit der Zielsetzung, die Verbesserung dieser Analysetechnik in den vergangenen Jahren zu überprüfen und gleichzeitig neu entwickelte Verfahren zu erproben.

Es wurde vereinbart, dieses Meßprogramm gemeinsam mit dem Zentralbüro für Kernmessungen (ZBKM) der EURATOM in Geel, Belgien durchzuführen, das insbesondere die Probenherstellung und, zusammen mit dem National Bureau of Standards, Washington, USA, die Charakterisierung allen verwendeten Probenmaterials hinsichtlich einer genauen Zusammensetzung übernimmt.

Für einen wesentlichen Teil der Probenvorbereitung hat auch das Institut für Radiochemie des KfK umfangreiche Untersuchung zugesagt.

Im Berichtszeitraum wurde für das Experiment ein umfassendes Konzept erarbeitet und auf einer Tagung der ESARDA-Arbeitsgruppe "Destructive Analyses" im Oktober 1977 in Harwell diskutiert. Die wichtigsten Punkte sind:

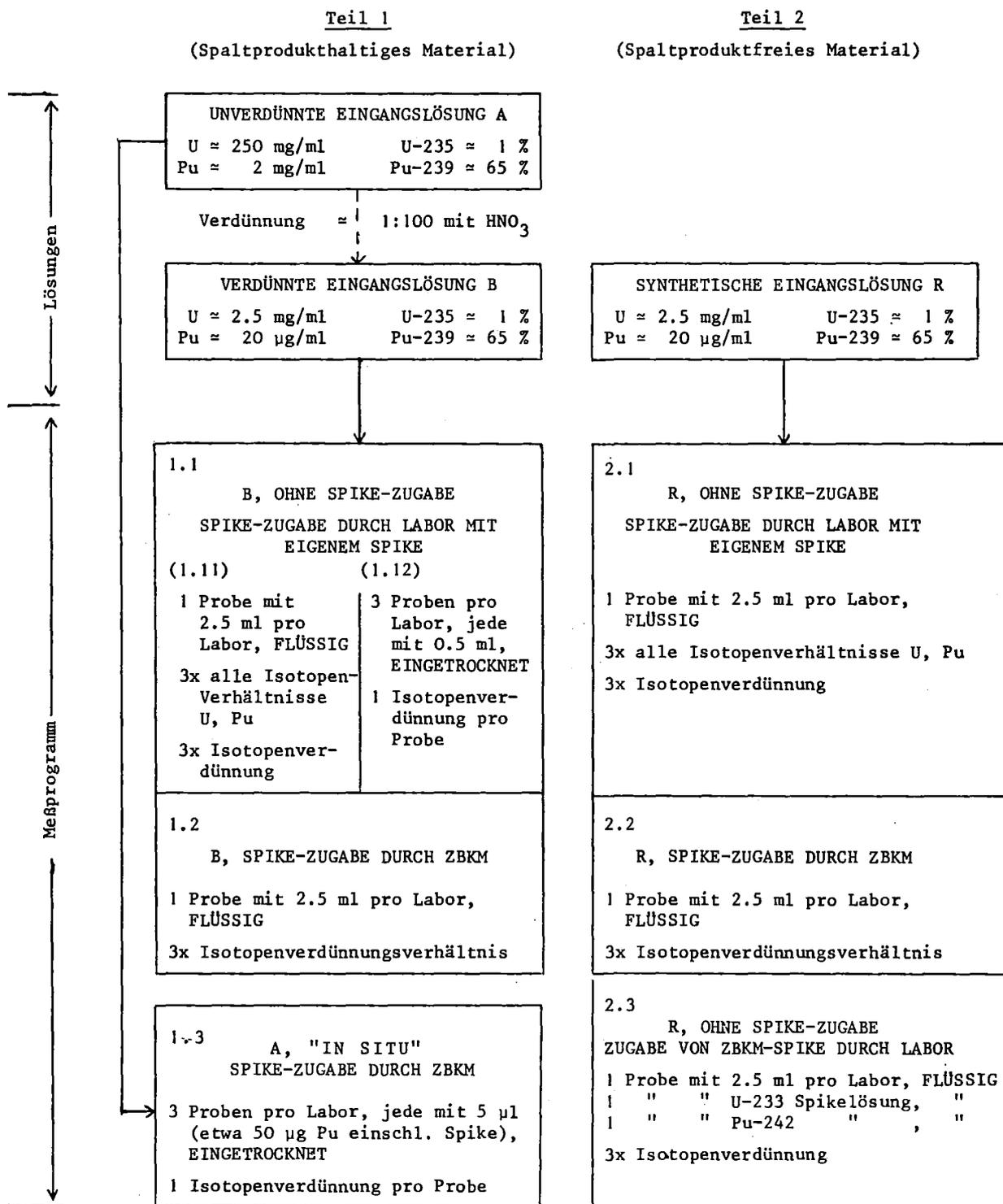
- a) Wiederholung der "Standard"-Messungen von IDA-72 zur Untersuchung der Entwicklung in den letzten 6 Jahren
- b) Verteilung verdünnter, aktiver Proben auch ohne Spike-Zusatz (sowohl in flüssigem als eingedampftem Zustand), um realitätsbezogene Werte zu erhalten
- c) Spike-Zugabe durch Teilnehmerlabors sowohl mit laboreigener als auch mit einheitlich vom ZBKM gelieferter Spikelösung, um zu ermitteln, ob letzteres die Übereinstimmung der Ergebnisse signifikant verbessert.
- d) Anwendung der in den letzten Jahren entwickelten "in-situ" Spike-Technik, da von dieser voraussichtlich die besten Ergebnisse zu erwarten sind. Hierbei werden metallische U/Pu-Legierungen als Spikematerial verwendet, das dem unverdünnten, hochaktiven Probenmaterial unmittelbar nach der Probenahme in der Wiederaufarbeitungsanlage zugesetzt wird.

Ein Überblick über die Auslegung des Gesamtexperimentes IDA-78 ist in Abb. 3-12 gegeben:

Teil 1 bezieht sich auf die Messung spaltproduktartigen Materials aus einer Wiederaufarbeitungsanlage.

In den Teilen 1.1 und 1.2 wird eine verdünnte Eingangslösung "B" verwendet, die aus der ursprünglichen, hochaktiven Eingangslösung "A" durch Verdünnung mit  $\text{HNO}_3$  im Verhältnis 1:100 hergestellt wird. Diese verdünnte Probenlösung

Abb. 3-12: Auslegung des Experimentes IDA-78 (Übersicht)



Bemerkung: Alle Probenlösungen werden hinsichtlich ihrer genauen Zusammensetzung durch das ZBKM und das NBS charakterisiert.

"B" wird ebenso wie in IDA-72 nach Spike-Zusatz im ZBKM an die Teilnehmer verteilt (Teil 1.2), darüber hinaus jedoch auch ohne vorherigen Spike-Zusatz zur Analyse in den Teilnehmerlaboratorien unter Verwendung der laboreigenen Spike-Lösungen (Teil 1.1). Es ist beabsichtigt, das Probenmaterial hierfür sowohl in flüssigem Zustand eingeschmolzen in Glasampullen zu versenden (Teil 1.1.1) als auch nach Eindampfung genau gewogener Aliquots in Glasröhrchen mit Stopfen (Teil 1.12).

In Teil 1.3 ist die Messung eingetrockneter Proben der unverdünnten Eingangslösung "A" vorgesehen, denen direkt nach der Probenahme in der Wiederaufarbeitungsanlage entsprechend der bereits erwähnten "in-situ" Spike-Technik metallischer U/Pu-Spike zugesetzt wurde.

Für Teil 2 des Experimentes wird eine synthetische, spaltproduktfreie U/Pu-Referenzlösung genau bekannter Zusammensetzung verteilt, sowohl mit als auch ohne vorherigem Spike-Zusatz. Da von der Messung dieses sauberen Probenmaterials genauere Ergebnisse zu erwarten sind, sollen in diesem Teil des Experimentes die Fehlerquellen des Spike-Vorgangs bei Verwendung flüssiger Spike-Lösungen im einzelnen untersucht werden. Daher sind sowohl Messungen an Proben vorgesehen, denen im ZBKM die Spike-Lösung bereits zugesetzt wurde (Teil 2.2), als auch die Analyse von Proben unter Spike-Zugabe in den Teilnehmerlaboratorien, wobei laboreigene Spike-Lösung (Teil 2.1) und auch Spike-Lösung des ZBKM (Teil 2.3) verwendet werden sollen.

Abb. 3-13 gibt einen Überblick über die verschiedenen Fehlerquellen, die in den einzelnen Teilen des Meßprogramms untersucht werden sollen. Auf Grund der Auslegung des Experimentes wird erwartet, daß insbesondere über folgende Fehlerkomponenten Informationen erhalten werden können:

- a) Beeinflussung der Meßergebnisse durch eventuelle Instabilität der verdünnten Eingangslösung  
(Vergleich der Ergebnisse von Teil 1.12 mit 2.1 und Teil 1.2 mit 2.2)
- b) Einfluß der Spaltprodukte auf die Analysen  
(Vergleich der Ergebnisse von Teil 1.12 mit 2.1 und Teil 1.2 mit 2.2)

Abb. 3-13: Zusammenstellung möglicher Ursachen für Meßunsicherheiten, über die Informationen aus dem Experiment IDA-78 erwartet werden

Programmteil	Probenvorbereitung und MS-Messung	Verhalten verdünnter, spaltproduktthaltiger Lösungen	Spike-Lösungen	Spike-Vorgang	Einfluß von Spaltprodukten auf die Analyse
1.11	X	X	X	X	X
1.12	X		X	X	X
1.2	X				X
1.3	X				X
2.1	X		X	X	
2.2	X				
2.3	X			X	

- c) Unsicherheiten der Meßergebnisse, die durch Verwendung laboreigener Spike-Lösungen hervorgerufen werden  
(Vergleich der Ergebnisse von Teil 2.1 und 2.3)
- d) Unsicherheiten der Meßergebnisse durch das Spike-Verfahren selbst  
(Vergleich der Ergebnisse von Teil 2.2 und 2.3).

Die Teile 1.2, 2.1 und 2.2 des Meßprogramms sind mit wesentlichen Teilen des Experimentes IDA-72 identisch, so daß ein unmittelbarer Vergleich möglich wird.

Wegen des hohen experimentellen Aufwandes für die Teilnehmerlaboratorien ist beabsichtigt, die Messungen zu Teil 1 unmittelbar nach Probenverteilung (voraussichtlich Frühjahr 1979) durchzuführen, für Teil 2 jedoch bis Ende 1979 zurückzustellen.

Die Einladung interessierter Laboratorien zur Teilnahme erfolgte vor Jahresende 1977.

Die Verfügbarkeit geeigneten Probenmaterials wurde mit der Gesellschaft zur Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen, Leopoldshafen, geklärt und die Zustimmung des Reaktorbetreibers eingeholt.

### 3.3.3 Untersuchung über Interlabor-Differenzen bei der UF<sub>6</sub>-Analyse

W. Beyrich, G. Spannagel

Die Bestimmung der U-235 Konzentration in UF<sub>6</sub> durch Gas-Massenspektrometrie war in den Jahren 1974/76 in einem Interlabtest in Zusammenarbeit mit der Firma Dornier untersucht worden /3-19/. Im Mai 1975 wurden die Ergebnisse eines ebenfalls auf die U-235 Bestimmung im UF<sub>6</sub> sowie seine Reinheitsbestimmung ausgerichteten Vergleichsexperimentes veröffentlicht, das vom New Brunswick Laboratory, USA, organisiert worden war /3-20/. Eine vergleichende Auswertung der in beiden Experimenten gewonnenen Ergebnisse war nicht zuletzt wegen ihrer hohen Bedeutung im Zusammenhang mit der Überwachung von Anreicherungsanlagen von Interesse. Dafür bot sich ein auf den Interlabor-differenzen aufbauendes empirisches Auswerteverfahren als besonders geeignet an, das von uns vor zwei Jahren erstmals vorgeschlagen wurde /3-21/.

Die Ergebnisse dieser Untersuchung, bei der ein Teil der Rechnungen in Zusammenarbeit mit dem Institut für Datenverarbeitung in der Technik ausgeführt wurde, sind in Abb. 3-14 bis 3-16 dargestellt. Sie können wie folgt zusammengefaßt werden:

a) U-Gehaltsbestimmung (NVL-Test; Abb. 3-14):

Bei Berücksichtigung aller von 16 Laboratorien verwendeten Meßverfahren überschreiten ca. 30 % der Interlabordifferenzen die zuvor von Experten in der Arbeitsgruppe "Destructive Analysis" der ESARDA mit 0,15 bis 0,2 % geschätzte "Signifikanzgrenze".

Werden nur die gravimetrisch gewonnenen Ergebnisse berücksichtigt, so wird dieser Grenzwert nur von 5-10 % der Differenzen überschritten. Die Gruppe der nicht gravimetrisch gewonnenen Daten allein zeigt das prozentual höchste Auftreten großer Interlabordifferenzen in diesem Test.

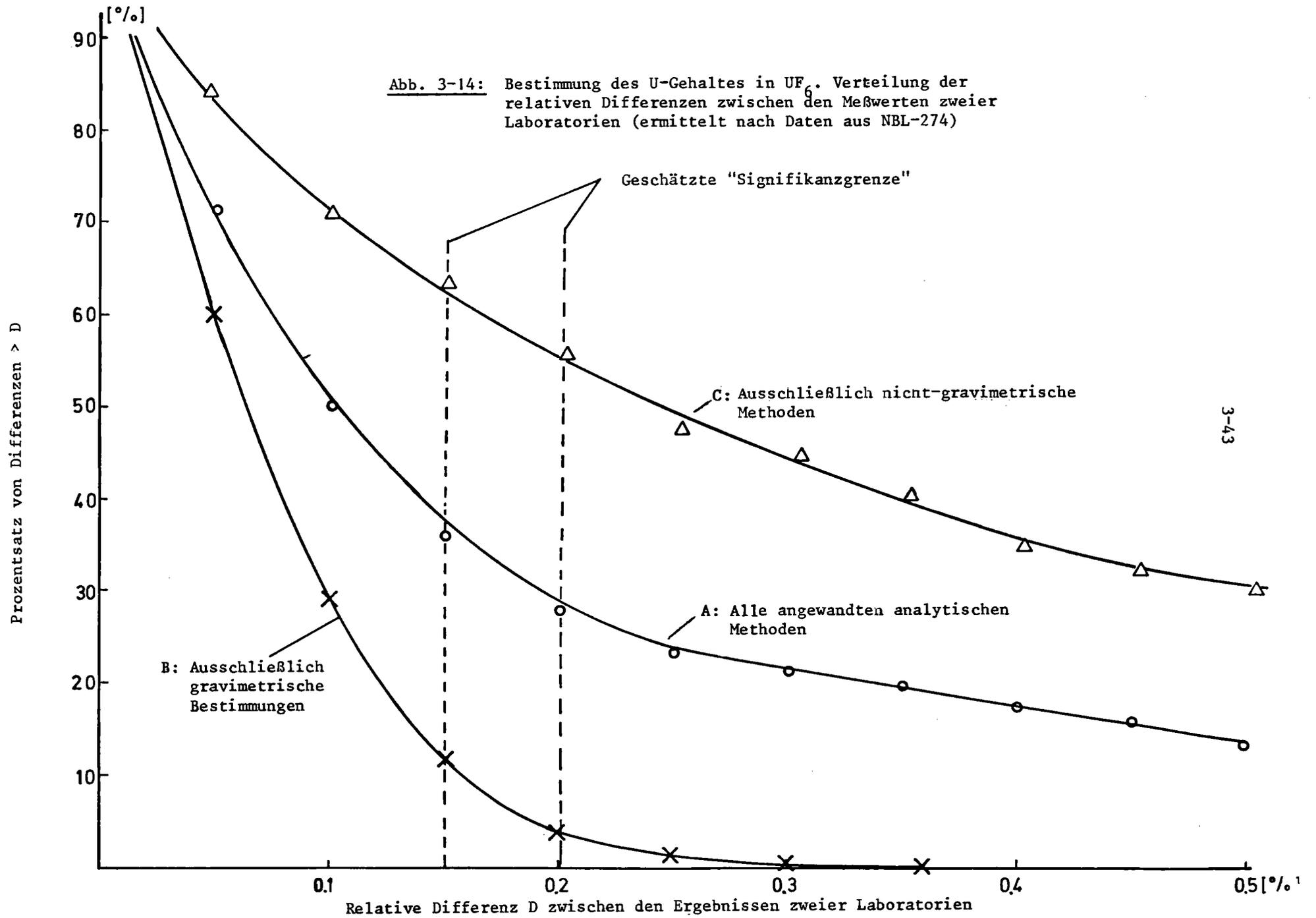
b) U-235-Bestimmung im Bereich natürlicher Konzentration (KfK-Dornier und NBL-Test, Abb. 3-15):

Die größten Interlabordifferenzen werden erwartungsgemäß bei Anwendung von Thermionenmassenspektrometern gefunden: Über 40 % der Differenzen liegen oberhalb 1 %. Bei Verwendung von Gasmassenspektrometern überschreiten im NBL-Test ca. 20 %, im KfK-Dornier Test nur ca. 5 % der Differenzen einen Wert von 0,2 %. Die günstigeren Ergebnisse im KfK-Dornier Experiment erklären sich mit großer Wahrscheinlichkeit aus der Verwendung einheitlicher Referenzmaterialien in diesem Experiment im Unterschied zum NBL-Test.

c) Abhängigkeit der zu erwartenden Interlabordifferenzen von der U-235-Konzentration (KfK-Dornier Test; Abb. 3-16):

Die vermutete Abnahme der Interlabordifferenzen mit steigendem U-235 Gehalt infolge günstigerer Meßbedingungen bestätigt sich deutlich.

Eine Veröffentlichung über die unter b) und c) aufgeführten Ergebnisse ist in Vorbereitung.



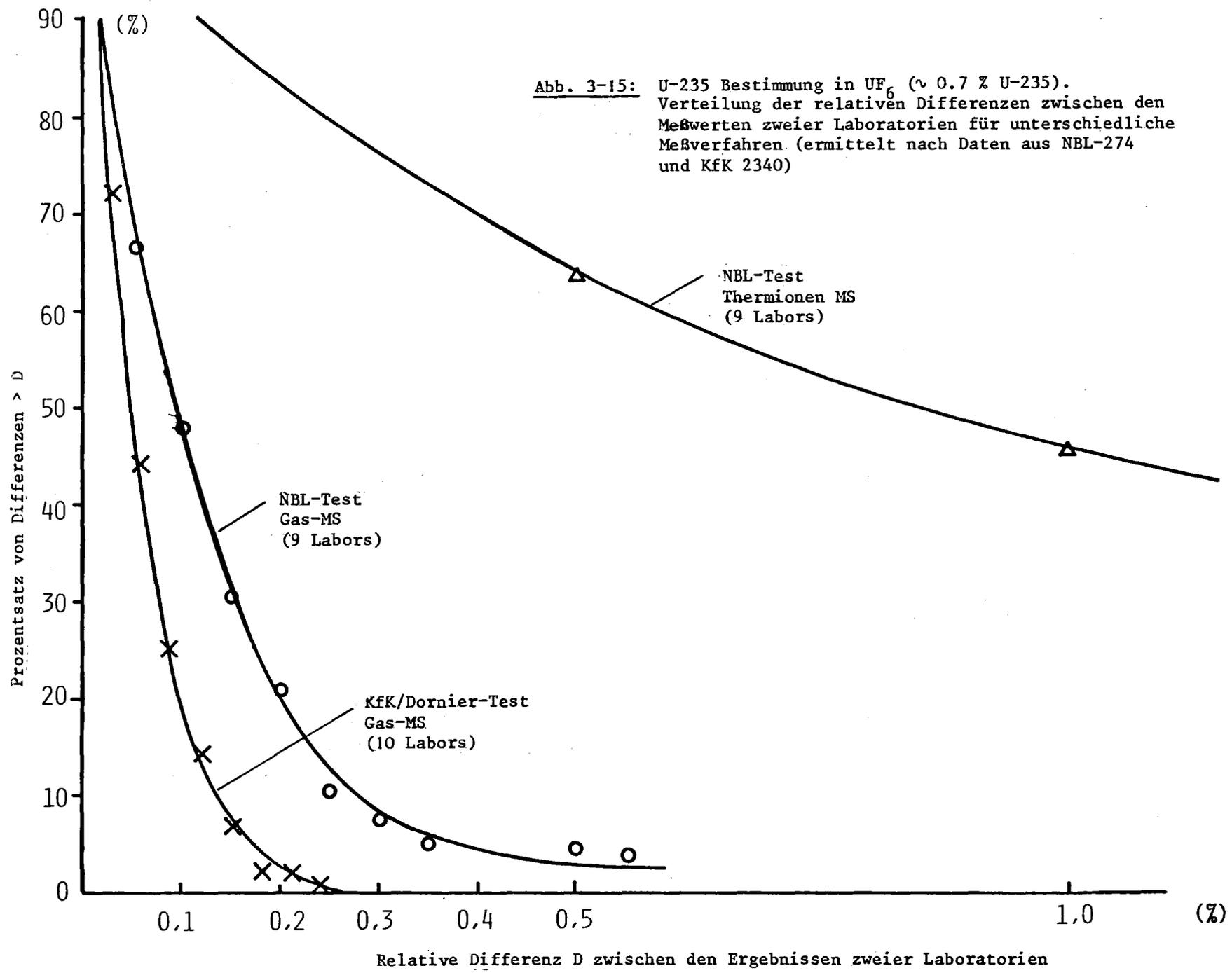
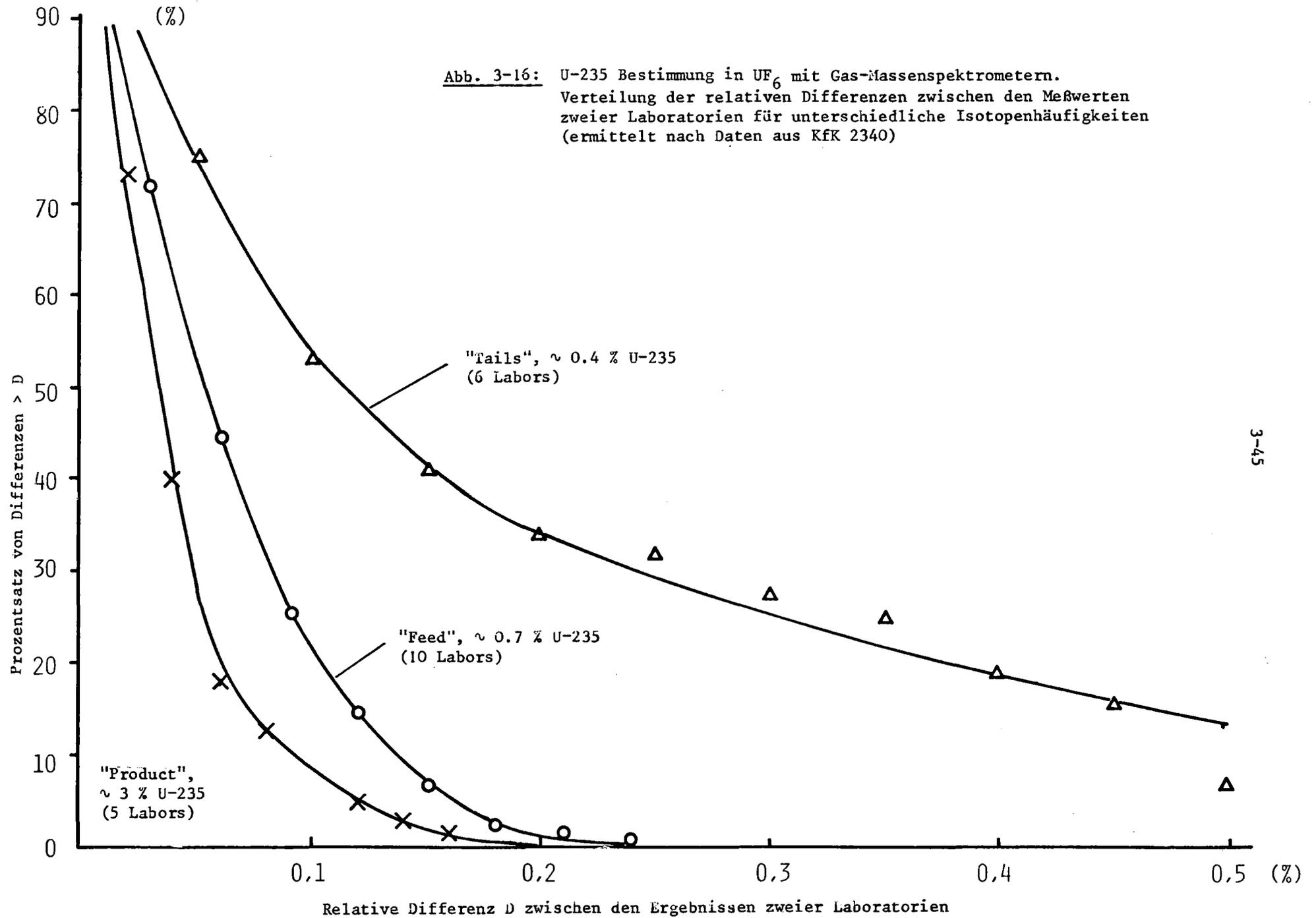


Abb. 3-16: U-235 Bestimmung in  $UF_6$  mit Gas-Massenspektrometern.  
 Verteilung der relativen Differenzen zwischen den Meßwerten  
 zweier Laboratorien für unterschiedliche Isotopenhäufigkeiten  
 (ermittelt nach Daten aus KfK 2340)



3.4 Literaturverzeichnis zu Kapitel 3:

- /3-1/ Jahresbericht Projekt Spaltstoffflußkontrolle 1976,  
KfK 2465, p. 3-2 (1977)
- /3-2/ Wilhelmi, M.; Brandalise, B.; Koch, L.; Rijkeboer, C.;  
Romkowski, M.  
"Einsatz eines vollautomatischen Massenspektrometers in der Spalt-  
stoffflußkontrolle", KfK 2319, EUR-5504 d (1977)
- /3-3/ Koch, L.  
"On-Line Data Evaluation Used in Automatic Mass Spectrometry",  
V Convegno di Spettrometria di Massa, Catania (1977) Annali  
de Chimica (to be published)
- /3-4/ Gruber, P.; Heeb, W.; Tentunian, V., 1977 (unveröffentlicht)
- /3-5/ Brandalise, B.; Cottone, G.; Cricchio, A.; Gerin, F.; Koch, L.  
"Automatic Evaluation of Isotope Analysis of Nuclear Fuels  
Including Isotope Dilution, Mass Spectrometry, Alpha Spectro-  
metry, and Isotope Correlation Technique with an Appropriate  
Data Bank", EUR-5669 (1977)
- /3-6/ Walker, W.H.  
"Status of Fission Product Yield Data for Thermal Reactors"  
AECL-4704 (Chalk River Nuclear Lab., Chalk River, Ontario,  
Feb. 1974)
- /3-7/ Schoof, S.; Steinert, H.; Koch, L.  
"The Influence of Plutonium Recycling in Boiling Water Reactors  
on Isotope Correlations"  
Vortrag gehalten auf "Symposium on the Isotopic Correlation and  
its Application to the Nuclear Fuel Cycle", Stresa (Italien),  
Mai 1978

- /3-8/ E. Mainka, W. Coerdts und W. König in W. Bahm ed., Projekt Spaltstoffflußkontrolle-Jahresbericht 1976, KfK 2465 (1977), S. 3-19 bis 3-26
- /3-9/ E. Mainka, W. Coerdts, W. König und H.G. Müller in G. Bork ed., Projekt Spaltstoffflußkontrolle-Jahresbericht 1975, KfK 2295 (1976), S. 3-22 bis 3-25
- /3-10/ Mathews, C.K.  
IAEA-SM-201/87
- /3-11/ Storm, E.; Israel, H.  
Nucl. Data Tables 7, No. 6 (1970)
- /3-12/ Sparks, Jr., C.J.  
"Advances in X-Ray Analysis", Band 19, S. 19 ff, Kendall/Hunt Publishing Company, Dubuque, USA (1976)
- /3-13/ American National Standard, ANSI N 15.22 (1975)
- /3-14/ Gunnink, R.; Evans, J.E.; Prindle, A.L.  
Report UCRL-52139 (1976)
- /3-15/ Gunnink, R.; Niday, J.B.; Siemens, P.D.  
Report UCRL-51577, Pt.1 (1974)
- /3-16/ Iyer, M.R.; Ottmar, H.  
"Assay of Plutonium in Process Wastes from Fuel Fabrication Plants"  
KfK 2321 (September 1976)
- /3-17/ Projektleitung Spaltstoffflußkontrolle (Hrsg.)  
Projekt Spaltstoffflußkontrolle - Jahresbericht 1976  
KfK 2465 (Juli 1977)
- /3-18/ Beyrich, W.; Drosselmeyer, E.  
"The Interlaboratory Experiment IDA-72 on Mass Spectrometric Isotope Dilution Analysis", KfK 1905/EUR 5203e (Juli 1975)

/3-19/ Beyrich, W.; Dürr, W; Großgut, W.

"Determination of the Isotope U-235 in Uranium Hexafluoride by Gas Mass Spectrometry: Results of an Interlaboratory Experiment Performed in 1975", KfK 2340/EUR 5503e (Februar 1977)

/3-20/ Bingham, C.D.; Bracey, J.T.

"Results of the General Analytical Evaluation Program for Uranium Hexafluoride, Phase I", NBL-274 (1975)

/3-21/ Beyrich, W.

"Consideration concerning the Problem of Analytical Interlaboratory Differences in Practical Safeguards"

Proceedings of the International Symposium on the Safeguarding of Nuclear Materials der IAEA, Wien, Oktober 1975 (1976)

# A N H A N G

## Abkürzungsverzeichnis

ADB	Abteilung Dekontaminationsbetriebe des Kernforschungszentrums Karlsruhe GmbH
BMFT	Bundesministerium für Forschung und Technologie
ESARDA	European Safeguards Research and Development Association
GWK	Gesellschaft für Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen mbH
HTR	Hochtemperaturreaktor
IAEA	International Atomic Energy Agency
IAK	Institut für Angewandte Kernphysik des Kernforschungszentrums Karlsruhe GmbH
IMF	Institut für Material- und Festkörperforschung des Kernforschungszentrums Karlsruhe GmbH
INR	Institut für Neutronenphysik und Reaktortechnik des Kernforschungszentrums Karlsruhe GmbH
ISIS	IAEA-Safeguards Information System
KFA	Kernforschungsanlage Jülich
KfK	Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH
KKW	Kernkraftwerk
LWR	Leichtwasserreaktor
MBZ	Materialbilanzzone
MUF	Material Unaccounted For
RBU	Reaktor-Brennelement Union, Hanau
SpFK	Spaltstoffflußkontrolle
SWR	Siedewasserreaktor
WAK	Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe

