

**KERNFORSCHUNGSZENTRUM  
KARLSRUHE**

August 1969

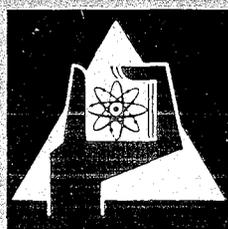
KFK 1040

Institut für Neutronenphysik und Reaktortechnik

Untersuchungen an der ANEX in Geesthacht

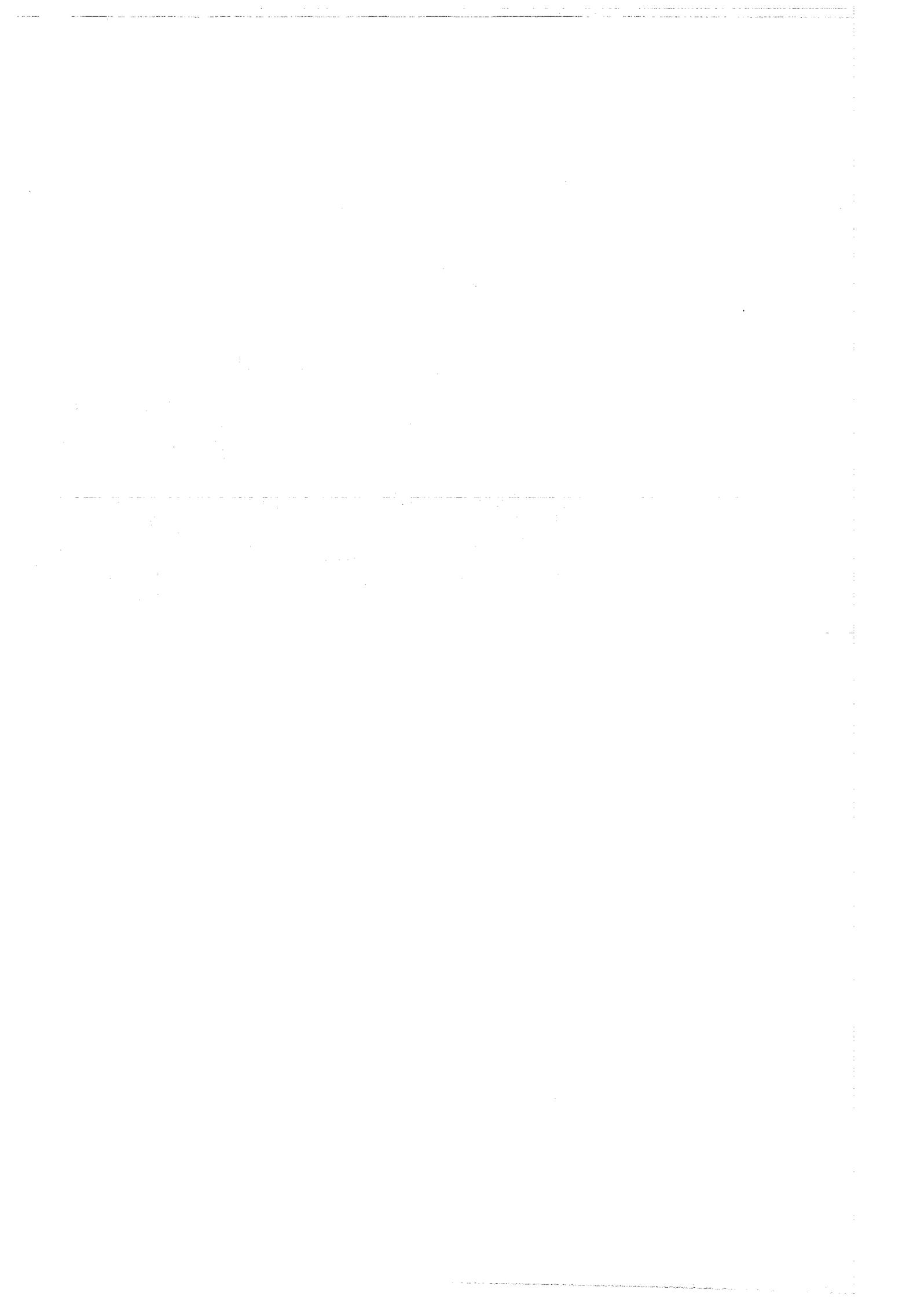
über die Anwendbarkeit von Reaktivitätsmessungen zur Spaltstoffflußkontrolle

M. Küchle



GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M. B. H.

KARLSRUHE



KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

August 1969

KFK 1040

Institut für Neutronenphysik und Reaktortechnik

---

Untersuchungen an der ANEX in Geesthacht

über die Anwendbarkeit von Reaktivitätsmessungen zur Spaltstoffflußkontrolle

M. Küchle

Gesellschaft für Kernforschung m.b.H., Karlsruhe



## 1. Einleitung

Zur Überwachung der nichtmilitärischen Nutzung der Kernenergie wurde von deutscher Seite der Vorschlag gemacht, die bisher übliche Überwachung der Anlagen und der Buchführung durch eine Überwachung des Spaltmaterials zu ersetzen. Dabei soll an bestimmten "Schlüsselpunkten" im Brennstoffzyklus der Durchsatz an Spaltmaterial gemessen werden, so daß eine Abzweigung von Spaltmaterial an der Bilanz sofort erkannt werden kann  $\overline{1,2,3}$ . Schlüsselpunkte sind meistens die Ein- und Ausgänge von Anlagen.

Am Ausgang einer Brennelement-Fabrikationsanlage muß der Spaltstoffgehalt der hergestellten Brennelemente zerstörungsfrei bestimmt werden. Die Messung muß betrugssicher sein. Eine Messung an ganzen Brennelementen scheint daher nicht möglich zu sein, daß keine Strahlung genügend transparent ist, um die Messung unempfindlich gegenüber dem Ort des Brennstoffs im Brennstabbündel zu machen. Daher müssen die Messungen an den einzelnen Brennstäben vor deren Assemblierung zum Brennelement durchgeführt werden.

Bei einer Fabrikationsanlage mittlerer Größe werden ca. 600 Brennstäbe pro Tag hergestellt, was zu einer Meßzeit von ca. 2 Minuten pro Stab bei 3-Schicht-Betrieb führt. Die Meßgenauigkeit soll besser als 2% in der  $U^{235}$ -Menge für Brennelemente thermischer Reaktoren sein. Diese Meßzeiten und Meßgenauigkeiten lassen sich ohne größere Schwierigkeiten durch Reaktivitätsmessungen in einer geeigneten kritischen Anordnung erzielen, wenn Eichmessungen möglich sind und die Methode der inversen Kinetik verwendet wird. Die Hauptschwierigkeit besteht darin, die Messungen betrugssicher zu machen.

## 2. Betrugssichere Reaktivitätsmessungen

Es gibt verschiedene Möglichkeiten mit einem Brennstab, der mehr oder auch weniger Spaltstoff als ein Standardstab enthält, das gleiche Reaktivitätssignal wie beim Standard zu erzeugen. Die wichtigsten Möglichkeiten sind:

1. Zugabe oder Entnahme von Absorber,
2. Vertauschung von  $U^{235}$  und  $Pu^{239}$ ,
3. Zugabe von Moderator,
4. Änderung der räumlichen Verteilung des Spaltstoffs im Stab (radial oder achsial).

Da Gewicht und Abmessungen des Stabes stimmen müssen, ist eine nennenswerte Zugabe von Moderator nicht möglich. Eine Veränderung in der achsialen Verteilung des Brennstoffs kann durch die Reaktivitätsmessung beim Einfahren des Stabes in die kritische Anordnung erkannt werden. Die Herstellung von Brennstofftabletten mit radial unterschiedlicher Spaltstoffkonzentration erfordert eine aufwendige Anlage, die nicht leicht unbemerkt errichtet werden kann. Daher ist es das primäre Ziel, Betrug durch Absorber und Vertauschen von  $U^{235}$  und  $Pu^{239}$  auszuschließen. Dazu ist es erforderlich, die Messungen nicht nur an einer kritischen Anordnung durchzuführen sondern an drei Konfigurationen oder Positionen in der Anordnung, die deutlich verschiedene Reaktivitätsempfindlichkeiten gegenüber Absorber,  $U^{235}$  und  $Pu^{239}$  besitzen.

Eine geringe Empfindlichkeit gegenüber Absorbern hat eine Anordnung mit einer brennstofffreien wassergefüllten zentralen Zone, wenn der zu messende Stab in das Zentrum dieser Zone eingesetzt wird. Dabei muß der Radius dieser Zone größer als die Wanderlänge für thermische und epithermische Neutronen und kleiner als die Bremslänge von Spaltneutronen sein. Da die Absorption im wesentlichen im thermischen und epithermischen Bereich stattfindet, würden Neutronen, die im Stab absorbiert werden, ohnehin nicht mehr in die Brennstoffzone gelangen, so daß die Absorption im Stab keinen Einfluß auf die Reaktivität hat. Die im Stab freigesetzten schnellen Spaltneutronen gelangen jedoch noch zurück in die Brennstoffzone, so daß das Spaltmaterial einen erheblichen Reaktivitätseinfluß besitzt.

In einem thermischen Reaktor hat  $\text{Pu}^{239}$  nur einen etwa 20% höheren Reaktivitätswert als  $\text{U}^{235}$ . Setzt man jedoch den zu untersuchenden Brennstab in ein Gadolinium-Rohr ein, welches nur epithermische Neutronen durchläßt so wird wegen der großen Resonanz bei 0,3 eV die Reaktivitätswirkung von  $\text{Pu}^{239}$  sehr viel größer als die von  $\text{U}^{235}$  sein. Dadurch müßte eine Vertauschung der Isotope erkennbar sein.

Es wurden zunächst einige Rechnungen durchgeführt, um die Größe der Effekte festzustellen und die optimale Reaktorordnung für solche Messungen zu finden. Dabei stellte sich heraus, daß das Verhältnis der Reaktivitätswirkung von Absorber zu Spaltmaterial im Reaktor mit Wasserzone erheblich kleiner ist als im kompakten Kern. Ein Betrug durch Zugabe oder Entnahme von Absorber müßte daher gut zu entdecken sein. Weniger klar war die Beurteilung der Unterscheidbarkeit von Plutonium und Uran durch Messung Gadolinium-umhüllter Stäbe. Die extrem starke Ortsabhängigkeit des Neutronenflusses und des Neutronenspektrums im Gadoliniumrohr konnte durch die THERMOS-Rechnung nicht gut wiedergegeben werden, und es war schwierig, gute mittlere Querschnitte für die Multigruppendiffusionsrechnung zu finden. Daher war hier eine experimentelle Prüfung besonders wichtig.

Weder der Siemens-Unterrichtsreaktor noch der Argonaut-Reaktor in Karlsruhe eigneten sich jedoch für solche Messungen. Dagegen bot die kritische Anordnung FRG-O in der Anlage für Nullenergieexperimente ANEX in Geesthacht sehr gute Voraussetzungen.

### 3. Ziel und Durchführung der Messungen am FRG-O

Es handelt sich beim FRG-O um eine flexible  $\text{H}_2\text{O}$ -Tankanordnung mit MTR-Brennelementen, in der Nullenergieexperimente für die Forschungsreaktoren in Geesthacht durchgeführt werden. Die Brennelemente hatten die Standardabmessungen von 76,1 x 80,5 cm und ergaben eine aktive Kernhöhe von 60 cm. Ein normales Brennelement enthielt 23 ebene Platten mit insgesamt 180 g  $\text{U}^{235}$ . Bei einigen Brennelementen fehlten 11 zentrale Brennstoffplatten, dort war ein Führungseinsatz aus Aluminium mit einem Spalt von 7 cm Länge und 3 cm Breite für die Regelstäbe eingebaut. Da diese Elemente nur etwa halb so viel Brennstoff wie die übrigen enthalten, werden sie Halbelemente genannt.

Aus folgenden Gründen war die Anordnung FRG-O für die vorgesehene Meßaufgabe sehr gut geeignet:

1. Der voll angereicherte Brennstoff ergibt eine kleine kritische Masse und somit eine große Reaktivitätsempfindlichkeit für zusätzlich eingebrachtes Spaltmaterial.
2. Die große Flexibilität erlaubt es, gewünschte Anordnungen schnell aufzubauen.
3. Die Wassermoderation ermöglicht es, sehr einfach die zentrale Wasserzone herzustellen.
4. Das Halbelement bot eine gute Möglichkeit, Testbrennstäbe in einen kompakten Kern einzusetzen.

Daher wurde ein gemeinsames Meßprogramm der GfK Karlsruhe und der GKSS Hamburg in der Zeit vom 7.2.69 bis 28.2.69 in Geesthacht durchgeführt. Die Planung der Messungen und die Analyse der Ergebnisse oblag der GfK, während alle Messungen und Kernaufbauten von der Betriebsmannschaft der ANEX unter der Leitung der Herren Dr. Wrobel, Dipl.Phys. Krull und Ing. Baumgart durchgeführt wurden.

Ziel der Messungen war es,

1. die Möglichkeit betrugssicherer Reaktivitätsmessungen experimentell zu verifizieren,
2. die Größe der oben erwähnten Effekte festzustellen,
3. die Berechnungen solcher Anordnungen zu überprüfen.

Es waren keine Änderungen an der Anordnung erforderlich, lediglich einige vertikale Einsätze für Testbrennstäbe mußten gefertigt werden.

Für die Messungen stand ein Satz von 14 Testbrennstäben zur Verfügung, von denen 6 Stück Brennstäbe thermischer Reaktoren (ST) und 8 Stück Brennstäbe schneller Reaktoren (SS) simulierten. Die Stäbe enthielten eine wachsende  $U^{235}$ -Anreicherung bei konstantem Pu-Gehalt oder umgekehrt eine wachsende Pu-Konzentration bei konstantem  $U^{235}$ -Gehalt. Der Pelletdurchmesser der ST-Stäbe betrug 11,53 mm, der der SS-Stäbe 5,73 mm. Die Länge betrug stets 985 mm. Die Zusammensetzung der Stäbe ist in Tab.1 wiedergegeben.

Tab.1 Daten der Teststäbe

Bezeichnung des Stabes	Pu (%)	$U^{235}$ (%)	Pu <sup>39+41</sup> (g)	$U^{35}$ (g)	Pu <sup>39+41</sup> + $U^{35}$ (g)	f
ST1	0	2	0,0	11,97	11,97	0,885
ST2	0,5	2	2,78	12,00	14,78	0,846
ST3	1	2	5,53	11,89	17,42	0,816
ST4	0	2,5	0,0	15,05	15,05	0,856
ST5	0,5	2,5	2,77	14,99	17,76	0,823
ST6	0	3	0,0	18,08	18,08	0,831
SS1	10	3	14,59	4,29	18,88	0,626
SS2	10	6	14,52	8,52	23,04	0,586
SS3	10	9	14,61	12,86	27,47	0,549
SS4	10	18	14,54	25,61	40,15	0,463
SS5	12,5	0	18,20	0,99	19,19	0,606
SS6	15	0	21,76	0,96	22,72	0,560
SS7	17,5	0	25,29	0,93	26,22	0,522
SS8	25	0	36,53	0,85	37,38	0,424

Das Plutonium hat folgende Isotopenzusammensetzung:

Pu <sup>239</sup>	90,875 % ,
Pu <sup>240</sup>	8,225 % ,
Pu <sup>241</sup>	0,856 % ,
Pu <sup>242</sup>	0,040 % .

Zur Simulation des Effektes von zugesetztem Absorber wurden die Stäbe für die entsprechenden Messungen in Nickel- bzw. Stahlhüllen von 1 mm Wandstärke eingeschoben. Dies ist nicht unrealistisch, da ein Betrüger den Absorber ohnehin eher dem Hüllmaterial als dem Brennstoff zusetzen würde. Außerdem wurde der negative Reaktivitätseffekt eines leeren Nickelrohres gemessen.

Folgende Kernanordnungen wurden aufgebaut, um den Einfluß von Brennstoff und Absorber bei verschiedenen großen zentralen Wasserzonen zu untersuchen:

1. Kernladung 10a mit Füllkörper

Dies ist eine 5 x 5 Elementanordnung, bei der die 4 Eckpositionen unbesetzt sind, mit einem Halbelement in der zentralen Position. Das Halbelement enthielt einen Aluminium-Füllkörper mit einer Bohrung von 23 mm Durchmesser, in welche die Testbrennstäbe eingesetzt wurden. Dies war die Referenzanordnung ohne Wasserzone.

2. Kernladung 10a ohne Füllkörper

Dies war dieselbe Kernladung wie unter 1. beschrieben, nur daß der Aluminium-Füllkörper entfernt und durch ein zentrales 25 x 1 mm Aluminiumrohr ersetzt wurde. Dadurch entstand eine zentrale Wasserzone von etwa 1,0 cm mittlerem Radius. Da die Geometrie nicht gut definiert war, wurden mit diesem Kern nur wenige Messungen durchgeführt.

3. Kernladung 12

Wie Kernladung 10a, nur daß das zentrale Halbelement gezogen und auf eine Randposition gesetzt wurde. In der Mitte der entstandenen Wasserzone wurde ein 25 x 1 mm Aluminiumrohr zur Aufnahme der Teststäbe eingesetzt. Der mittlere Radius der Wasserzone betrug 3,3 cm.

4. Kernladung 11

Dies war eine 6 x 6 Element-Anordnung, bei der die 4 zentralen Elemente gezogen waren. In der Mitte der entstandenen Wasserzone wurde wieder das 25 x 1 mm Aluminiumrohr eingesetzt. Der mittlere Radius der Wasserzone betrug hier 7,8 cm.

Für die Messung zur Unterscheidung von Plutonium und  $U^{235}$  wurde bei der Kernladung 12 in das 25 x 1 mm Aluminiumrohr ein 20 x 1 mm Rohr eingesetzt, auf welchem eine 0,1 mm Gadoliniumfolie aufgebracht war. Wegen der starken Absorption des Gadoliniums mußten 2 Halbelemente und ein Normalelement auf Eckpositionen zugesetzt werden (Kernladung 12b). Es wurden auch einige Messungen durchgeführt, bei denen das Gadolinium durch Kadmium ersetzt war. Die Kernladung 12 war hierbei ausgewählt worden, da sie die größten Reaktivitätseffekte der Stäbe brachte und die Meßwerte unter Gadolinium sonst zu klein gewesen wären.

Für Reaktivitätswerte  $\Delta\rho \leq 17 \text{ } \mu$  wurde eine Periodenmessung nach Einfahren des Testbrennstabes durchgeführt. Bei größeren Reaktivitätswerten wurde der Unterschied kritischer Regelstabstellungen mit und ohne Teststab verwendet.

Die Periodenmessung erfolgte mit einem RCL 400-Kanal-Zeitanalysator. Die Totzeitkorrektur und Anpassung der Meßdaten an eine Exponentialfunktion geschah mit einem digitalen Auswerteprogramm.

#### 4. Meßergebnisse

Die Ergebnisse der Messungen sind in Tab.2 zusammengefaßt. Die Auswertung ergab folgende Zusammenhänge:

1. Bei den Teststäben thermischer Reaktoren wächst der Reaktivitätswert linear mit dem Spaltstoffgehalt und beträgt bei Kernladung 10a:

$$\Delta\rho = 1,02 \text{ } \mu / \text{g } U^{235}, \quad \Delta\rho = 1,34 \text{ } \mu / \text{g } Pu^{239+241},$$

d.h. 
$$\frac{\Delta\rho_{Pu}}{\Delta\rho_U} = 1,32 .$$

Bei der Anordnung mit Gadolinium-Rohr (Kernladung 12b) waren die Werte

$$\Delta\rho = 0,202 \text{ } \mu / \text{g } U^{235}, \quad \Delta\rho = 0,69 \text{ } \mu / \text{g } Pu^{239+241},$$

also 
$$\frac{\Delta\rho_{Pu}}{\Delta\rho_U} = 3,41 .$$

Tab.2 Gemessene Reaktivitätswerte in cent

Stab	Kernladung					
	10a mit Al- Futter	10a ohne Al- Futter	12	12b mit Gd- Rohr	12b mit Cd- Rohr	11
SS1	14,2			6,90	1,51	
SS2	16,9					
SS3	19,0					
SS4	23,0			9,33	3,21	
SS5	15,0			7,7	1,57	63,6
SS6	17,2		97,5			68,3
SS7	19,0					72,3
SS8	22,9		121	10,0	2,86	82,5
ST1	6,76			1,19		40,7
ST2	10,44			3,19		
ST3	14,2			4,94		
ST4	9,93					47,7
ST5	13,25					
ST6	12,8	27		2,40	+0,0	54,6
SS8+Ni	8,34		86			69,0
SS8+Fe	14,3					74,5
10x1 Ni	-17,2	-25	-33			-4,8
ST6+Ni	-9,5					41,4
ST6+Fe						45,5
SS7+Fe						65,8

Mit dem Gadolinium-Rohr ist das Plutonium relativ zum Uran um den Faktor 2,6 wirksamer als ohne Gadolinium-Rohr (siehe Abb.1). Diese Unterscheidungsmöglichkeit ist ausreichend. Sie beruht jedoch ausschließlich auf der 0,3 eV-Resonanz. Bei Verwendung des 1 mm dicken Kadmium-Rohres zeigt sich kein Unterschied im Reaktivitätswert von Uran und Plutonium.

2. Die Stäbe schneller Reaktoren zeigen eine starke Selbstabschirmung und daher einen schwächer als linear mit dem Spaltstoffgehalt ansteigenden Reaktivitätswert. Korrigiert man für die Selbstabschirmung mit Hilfe einer Formel, die für rein absorbierende Stäbe gilt [4], so erhält man wieder einen linearen Zusammenhang, und zwar den gleichen wie bei den Stäben thermischer Reaktoren, wenn man auch dort die Abschirmkorrektur anbringt (siehe Abb.2). Die verwendeten Abschirmfaktoren

$$f = \frac{\text{Mittelwert des Flusses über den Stabquerschnitt}}{\text{Neutronenfluß am Stabrand}}$$

sind in Tab.1 aufgeführt. Sie wurden mit  $\sigma = \frac{\sqrt{\pi}}{2} \sigma(2200 \text{ m/sec})$  berechnet. Für die Messung mit Gadolinium-Rohr müßte man das effektive Resonanzintegral zur Korrektur verwenden.

3. Die Reaktivitätswirkung eines Absorbers (hier des 10 x 1 mm Nickelrohres) nimmt relativ zum Brennstoff stark mit dem Radius der Wasserzone ab und geht bei einem Radius von etwa 10 cm praktisch auf Null (siehe Abb.3). Umgibt der Absorber jedoch Brennstoff (hier als 1 mm Nickelhülle um den Brennstab SS8), so erzeugt er auch bei großen Wasserzonen einen deutlichen Reaktivitätswert durch Schwächung des auf den Stab auffallenden Neutronenflusses. Dieser berechnete asymptotische Wert ist als gestrichelte Gerade in Abb.3 eingezeichnet. Daher lohnt es sich nicht, die Wasserzone sehr groß zu machen. Ein Radius von 8 cm ist ausreichend. Damit wird ein Unterschied um den Faktor 4 in  $\frac{\Delta \rho_{\text{Absorber}}}{\Delta \rho_{\text{Spaltstoff}}}$  gegenüber der Anordnung ohne Wasserzone erreicht, was zum Entdecken einer gleichzeitigen Entnahme oder Zugabe von Absorber und Spaltstoff genügt.

4. Die Genauigkeit in der Bestimmung des Spaltstoffgehalts beträgt etwa 1%. Dies ergibt sich aus folgenden Zahlen: 1) Die gemessene Reaktivitätsänderung mit dem Spaltstoffgehalt der Teststäbe lag bei etwa 1  $\epsilon$ /g und könnte bei einer speziell für solche Messungen errichteten Anlage sicher noch um einen Faktor 2 erhöht werden. Z.B. betrug die Höhe des Reaktorkerns hier 60 cm und die Länge der Teststäbe 100 cm. 2) Der Spaltstoffgehalt von Brennstäben thermischer Reaktoren liegt zwischen 10 g und 20 g. 3) Eine Meßgenauigkeit von 0,1  $\epsilon$  bis 0,2  $\epsilon$  sollte möglich sein. Bei den durchgeführten Messungen betrug die Genauigkeit in der Bestimmung des Spaltstoffgehalts 2% bis 3%, was bei dem orientierenden Charakter dieser Messungen völlig ausreichend war.

#### 5. Messung verzögerter Neutronen

Bei den Reaktivitätsmessungen beruhte die Unterscheidung von Plutonium und Uran auf der Pu-Resonanz bei 0,3 eV, die aber bei höherer Plutoniumkonzentration so stark selbstabgeschirmt ist, daß sie nicht verwendet werden kann. Diese Schwierigkeit umgeht man, wenn man einen anderen Unterschied zwischen Uran und Plutonium heranzieht, nämlich den geringeren Anteil verzögerter Neutronen bei der Spaltung von Pu<sup>239</sup>.

Mißt man anschließend an eine kurze Bestrahlung mit einem empfindlichen Detektor die von einem Brennstab emittierten verzögerten Neutronen, so erhält man bei gleichem integrierten Neutronenfluß bei Plutonium eine geringere Zählrate als bei Uran, obwohl in Plutonium mehr Spaltungen erzeugt werden. Die Bestrahlung könnte man mit einer Reaktivitätsmessung verbinden, welche, wie oben gezeigt, für Plutonium einen größeren Effekt als für Uran ergibt.

Die Schwierigkeit bei dieser Methode liegt darin, daß zwischen Ende der Bestrahlung und Beginn der Zählung nur eine kurze und genau definierte Zeit (ca. 40 Sekunden) vergehen darf. Dies war aus betrieblichen Gründen an der ANEX nicht möglich. Daher wurden die Messungen verzögerter Neutronen am Argonaut-Reaktor in Karlsruhe durchgeführt.

Für die Bestrahlung wurde ein Stab langsam in den vertikalen Kanal auf der Achse der inneren thermischen Säule des Argonaut-Reaktors eingefahren. Die Reaktivität wurde nachgeregelt, so daß der Neutronenfluß konstant blieb. Die Leistung betrug 1 Watt. Nach 100 Sekunden wurde der Stab gezogen und vor den Detektor gestellt. Als Detektor diente eine zufällig verfügbare Zählrohrbank, die in der speziellen Anordnung eine Empfindlichkeit von ca. 4% der vom Stab emittierten Neutronen besaß. Es dauerte 40 Sekunden vom Ende der Bestrahlung bis zum Beginn der Zählung. Die Zählzeit betrug 100 Sekunden. Die in dieser Zeit registrierten Impulse lagen zwischen  $0,6 \cdot 10^5$  und  $1,0 \cdot 10^5$ . Der Nulleffekt war vernachlässigbar. Die Zählrate durch Spontanspaltung und  $(\alpha, n)$ -Reaktionen betrug etwa 10% des Meßeffectes. Die dafür korrigierten Zählraten sind in Tab.3 aufgeführt.

Tab.3 Zählraten verzögerter Neutronen (Z = Impulse/sec)

Stab	Z	Stab	Z
SS1	619	ST1	702
SS2	737	ST2	805
SS3	868	ST3	875
SS4	1108	ST4	851
SS5	571	ST5	928
SS6	612	ST6	989
SS7	666		
SS8	755		

Ähnlich wie bei den Reaktivitäten handelte es sich um orientierende Messungen. Die Reproduzierbarkeit lag bei 1% bis 2%.

Abb.4 zeigt die Variation der Zählraten mit dem Spaltstoffgehalt. Der Unterschied von  $U^{235}$  und  $Pu^{239}$  ist nicht sehr groß. Dies liegt zum Teil daran, daß bevorzugt die Gruppe verzögerter Neutronen mit  $T_{1/2} = 22$  sec gemessen wird, bei der der Unterschied geringer als bei der Summe aller Gruppen ist.

Eine interessante Größe ist für jeden Stab das Verhältnis

$$\frac{\text{Zählrate verzögerter Neutronen}}{\text{Reaktivität im FRG-O}} = \frac{Z}{\rho} .$$

Diese Größe hängt nur vom  $U^{235}/Pu^{239}$ -Verhältnis ab, und die Selbstabschirmung  $f$  geht nicht ein. Mit den Bezeichnungen

$$\begin{aligned} g^U, g^{Pu} &= \text{Gewicht von } U^{235} \text{ bzw. } (Pu^{239} + Pu^{241}) \text{ im Stab,} \\ Z^U, Z^{Pu} &= \text{Zählrate verzögerter Neutronen pro Gramm } U^{235} \text{ bzw. } (Pu^{239} + Pu^{241}), \\ \delta k^U, \delta k^{Pu} &= \text{Reaktivitätswert in der Kernladung } 10a \text{ pro Gramm } U^{235} \text{ bzw.} \\ &\quad (Pu^{239} + Pu^{241}) \end{aligned}$$

ist

$$\begin{aligned} Z &= f (g^U Z^U + g^{Pu} Z^{Pu}), \\ \rho &= f (g^U \delta k^U + g^{Pu} \delta k^{Pu}) - f g^8 \delta k^8 . \end{aligned}$$

$g^8$  und  $\delta k^8$  beziehen sich auf  $U^{238}$ . Es zeigte sich, daß  $f \cdot g^8 \delta k^8 = 5 \text{ ¢}$  (unabhängig von  $f$ ) eine gute Näherung darstellt. Die Auswertung mit den SS-Stäben ergab:

$$\begin{aligned} Z^U &= 65,7 \text{ Imp/g} , & \delta k^U &= 1,35 \text{ ¢/g} , \\ Z^{Pu} &= 49,5 \text{ Imp/g} , & \delta k^{Pu} &= 1,81 \text{ ¢/g} , \end{aligned}$$

d.h. den Diskriminierungsfaktor  $(Z/\delta k)^U / (Z/\delta k)^{Pu} = 1,78$  .

Mit diesen Werten und  $\rho^* = \rho + 5$  wurde  $Z/\rho^*$  als Funktion von  $x = g^U / (g^U + g^{Pu})$  berechnet und zusammen mit den Werten für die Stäbe in Abb.5 aufgetragen. Aus dieser Auftragung kann man sehen, wie weit es möglich ist, kleinere Mengen  $U^{235}$  neben  $Pu^{239}$  zu erkennen: Bei einer Meßgenauigkeit in  $Z/\rho^*$  von 1% läßt sich der Anteil von  $U^{235}$  am Spaltmaterial  $\Delta(g^U / (g^U + g^{Pu}))$  auf etwa 2% genau bestimmen.

Obwohl die verzögerten Neutronen nur eine mäßige Diskriminierungsfähigkeit zwischen  $U^{235}$  und  $Pu^{239}$  besitzen, kann man sie also als redundante Messung oder in Fällen, wie hier bei den SS-Stäben, verwenden, wo die 0,3 eV-Resonanz zu stark selbstabgeschirmt ist. Sonst ist die Reaktivitätsmessung mit dem Stab im Gadoliniumrohr günstiger.

Für einen quantitativen Vergleich wurde analog zu den Messungen verzögerter Neutronen die Größe

$$\frac{\rho^*}{\rho_{Gd}^*} = \frac{\text{Reaktivitätswert im Kern 10a}}{\text{Reaktivitätswert im Kern 12b mit Gd}}$$

als Funktion von  $x = g^U / g^U + g^{Pu}$  aus den Messungen mit ST-Stäben berechnet und in Abb.6 aufgetragen.  $\rho^*$  sind die Reaktivitätswerte nach Korrektur für die  $U^{238}$ -Absorption.

Aus Abb.6 kann man folgendes entnehmen: Mißt man für einen Stab das Verhältnis der Reaktivitäten im Reaktor ohne Gadolinium zu der im Reaktor mit Gadolinium auf 1%, so läßt sich der Anteil an  $U^{235}$  im Spaltmaterial  $\Delta \left( g^U / g^U + g^{Pu} \right)$  auf 1,5 % genau bestimmen, wenn  $g^U / g^U + g^{Pu} \ll 1$  und auf 1,0 % wenn  $g^U / g^U + g^{Pu} \approx 1$ . Die Vergleichszahlen bei den verzögerten Neutronen sind 2,0 % bzw. 1,5 %.

## 6. Grundsätzliches zum Aufbau einer Anordnung für Routinemessungen

Bei einer praktischen Anwendung von Reaktivitätsmessungen zur Spaltstoffflußkontrolle wird man weder drei verschiedene Kernanordnungen nacheinander aufbauen noch drei kritische Anordnungen parallel betreiben, sondern eine Anordnung mit drei Positionen für die drei verschiedenen Messungen ausrüsten. Dazu könnte man z.B. an einen länglichen Kernaufbau denken, der auf der längeren Mittelachse drei vertikale Kanäle zum Einsetzen von Brennstäben besitzt, und zwar einen mit Brennstoffumgebung, einen, der mit Gadolinium ausgekleidet ist, und einen im Zentrum einer zylindrischen Wasserzone von 16 cm Durchmesser. Die Messung würde dann so erfolgen, daß ein an einem Kran hängender Brennstab hintereinander über die drei Positionen gefahren und dort jeweils abgesenkt und wieder herausgezogen wird. Der Neutronenfluß als Funktion der Zeit wird mit einem empfindlichen Detektor registriert, und nach der Methode der inversen Kinetik wird der Reaktivitätswert der Stäbe an den einzelnen

Positionen bestimmt. Durch das Ein- und Ausfahren hat man je zwei Meßwerte. Eine Schwierigkeit besteht darin, daß die Reaktivitätswerte bei der Position in der Wasserzone sehr viel größer sind als beim Stab im Gadoliniumrohr (siehe Tab.2). Man kann dies teilweise durch die Ortsabhängigkeit von  $\rho/\beta^+$  über die Lage der Positionen in der Anordnung ausgleichen.

Eine andere Möglichkeit besteht darin, durch automatische Regelung den Reaktor ständig genau kritisch zu halten und aus den Regelstabbewegungen die Reaktivitätswerte der Stäbe zu ermitteln. Dies wäre vorteilhaft, wenn man die verzögerten Neutronen mit zur Messung heranziehen will, da eine Bestrahlung in konstantem Fluß die Auswertung vereinfacht.

In jedem Fall sollte es möglich sein, etwa einen Stab pro Minute auszumessen und die Anlage weitgehend zu automatisieren.

## 7. Schlußfolgerungen

Die Bestimmung des Spaltstoffgehalts von Brennstäben thermischer Reaktoren mit Hilfe von Reaktivitätsmessungen in einer kritischen Anordnung ist möglich, und man kann eine Genauigkeit von 1% im Spaltstoffgehalt bei einer Meßzeit von etwa einer Minute erreichen. Betrug durch Entnahme oder Zugabe von Absorbern sowie durch Vertauschung von  $U^{235}$  und  $Pu^{239}$  kann erkannt werden, wenn drei Messungen in verschiedenen Positionen der entsprechend aufgebauten kritischen Anordnung durchgeführt werden.

Wie bei der Verwendung thermischer Neutronen nicht anders zu erwarten, spielt die Selbstabschirmung eine erhebliche Rolle. Bei Stäben schneller Reaktoren ist die 0,3 eV-Resonanz so stark selbstabgeschirmt, daß sie nicht mehr zur Unterscheidung von  $U^{235}$  und  $Pu^{239}$  herangezogen werden kann. In diesem Fall kann man durch eine zusätzliche Messung der von den Stäben emittierten verzögerten Neutronen die Unterscheidung erreichen.

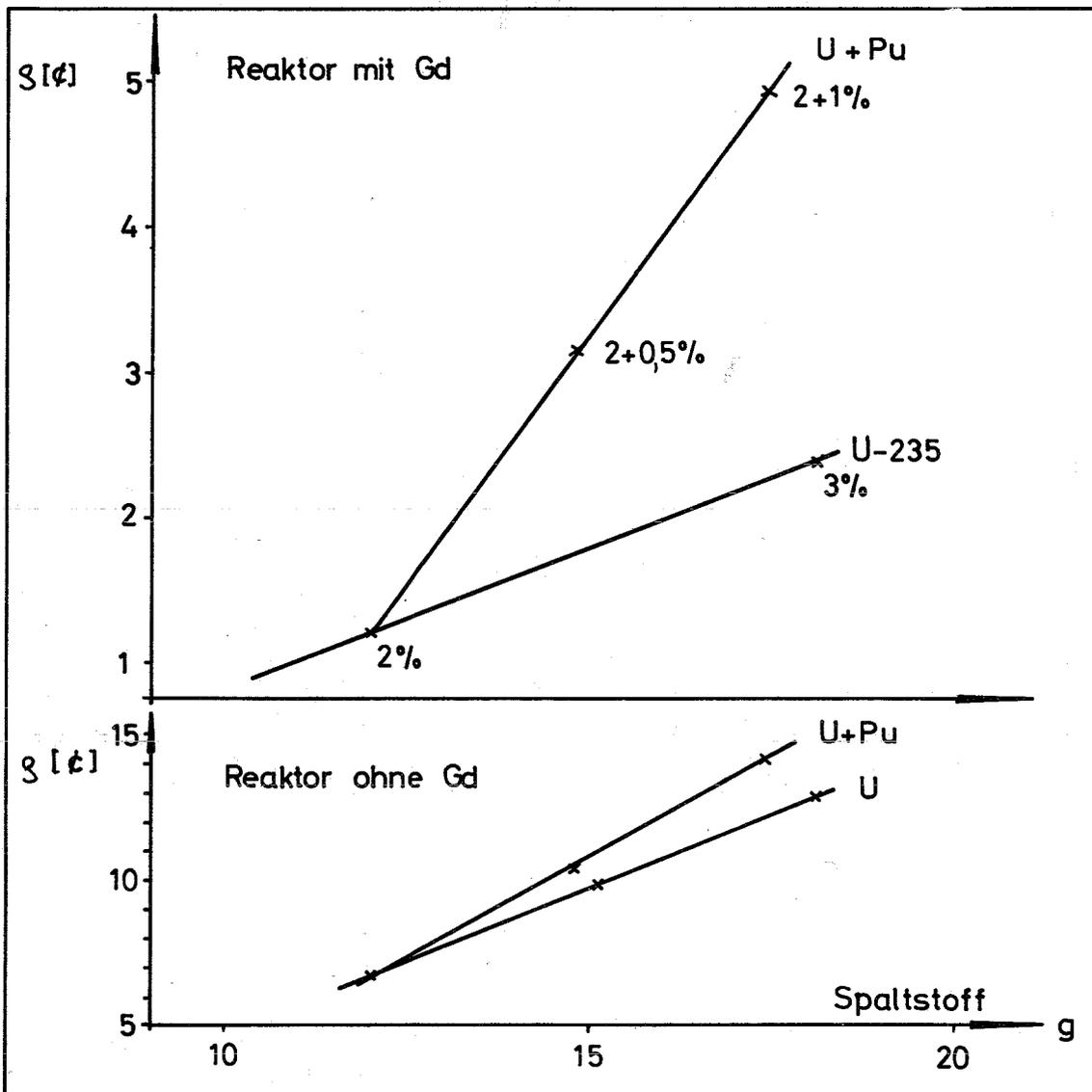
Auch bei den Stäben thermischer Reaktoren ist die Flußdepression im Stab nicht vernachlässigbar (siehe Tab.1). Dies bietet die Möglichkeit eines Betruges durch Änderung der Radialverteilung des Spaltstoffs im Stab. Wird z.B. beim Stab ST2 aller Spaltstoff in einer zentralen Zylinderzone vom halben Pelletdurchmesser konzentriert, so verstärkt sich die Flußdepression im Stab, der gemessene Reaktivitätswert wird kleiner und man schließt auf einen um 8% zu kleinen Spaltstoffgehalt, wenn man homogene Spaltstoffverteilung im Stab voraussetzt.

---

Der Betriebsmannschaft der ANEX, aber insbesondere den Herren Dr. H. Wrobel und Dipl.Phys. W. Krull, danke ich für die ausgezeichnete Durchführung der Reaktivitätsmessungen, Herrn Dipl.Phys. K.H. Blank bin ich für die Durchführung der nuklearen Rechnungen zu großem Dank verpflichtet.

Literatur

- [/1/] GUPTA, D. and W. HÄFELE: Das Prinzip eines instrumentierten Systems zur Überwachung des Spaltstoffflusses auf dem friedlichen Sektor der Kernenergie. Atomkernenergie 4/13 (1968).
- [/2/] GUPTA, D.: Die Überwachung der friedlichen Atomtechnik. Nichtverbreitung von Kernwaffen. Eckert-Verlag Witten (1968).
- [/3/] GMELIN, W., D. GUPTA und W. HÄFELE: On Modern Safeguard in the Field of Peaceful Application of Nuclear Energy. KFK 800 (1968).
- [/4/] SOODAK, H.: Reactor Handbook, Vol.III, Part A, Physics Interscience Publishers, p.181 (1962).



**Abb.1** Gemessene Reaktivität  $\rho$  als Funktion des Spaltstoffgehalts für Brennstäbe thermischer Reaktoren

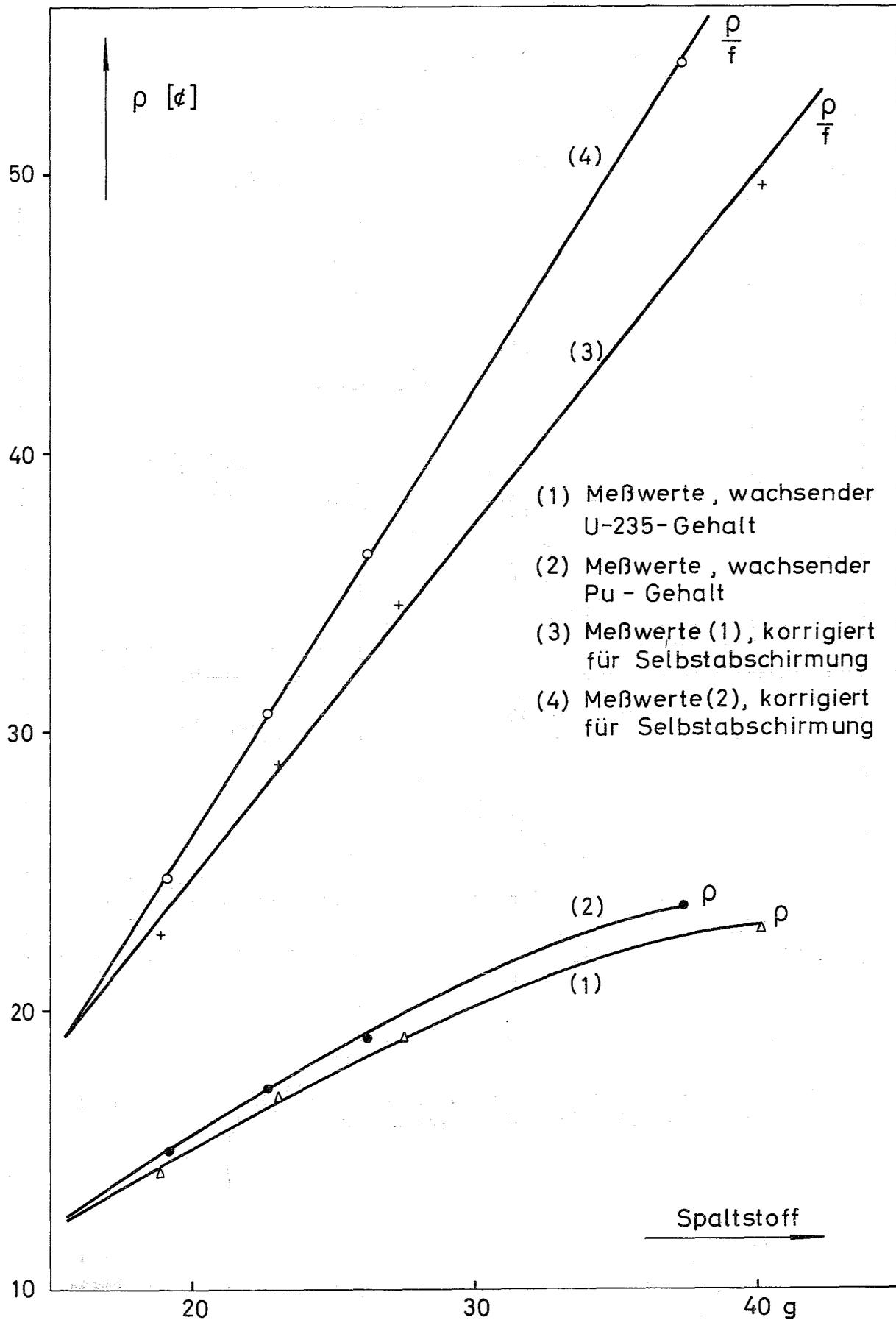
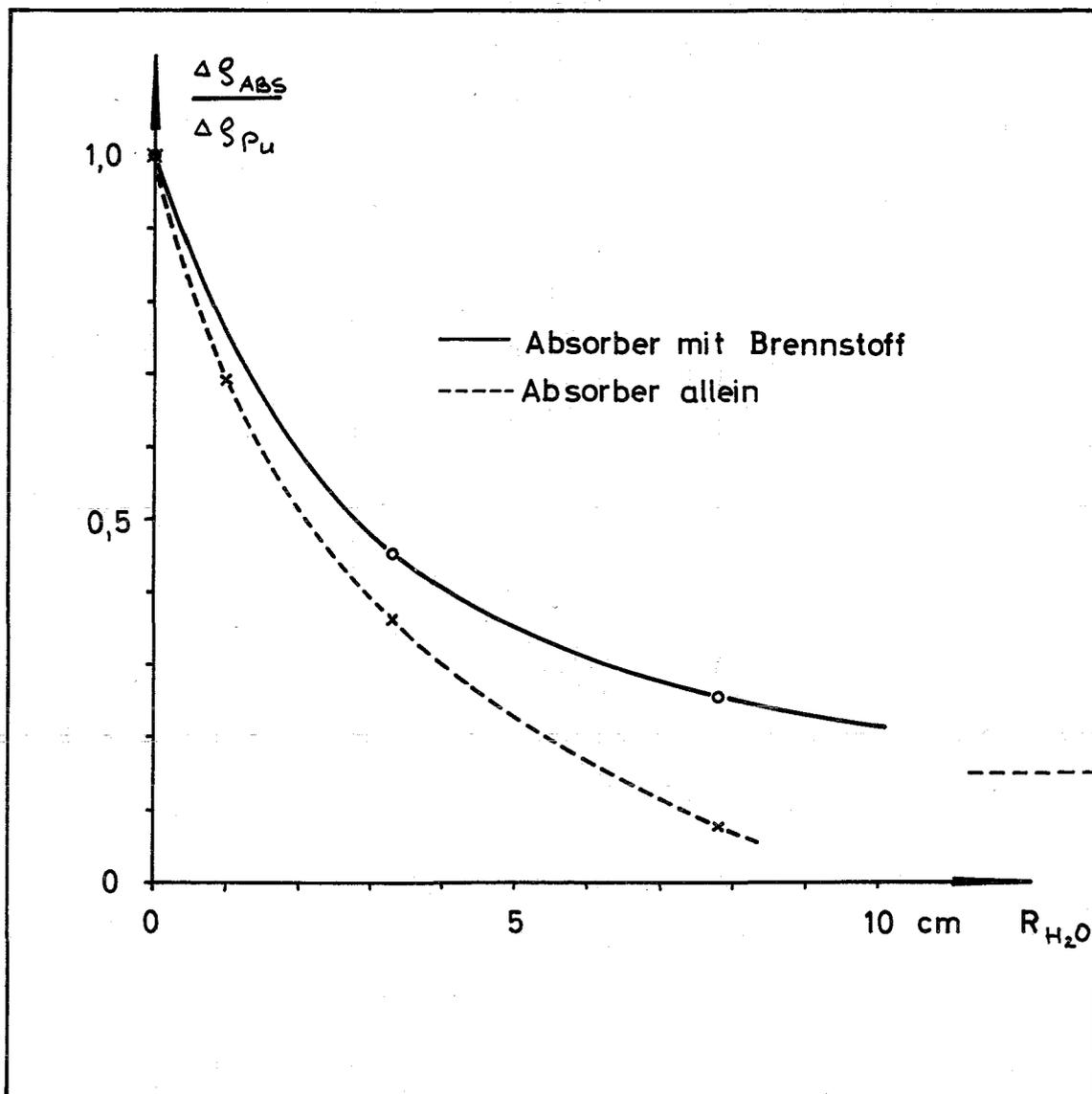


Abb.2 **Reaktivität  $\rho$  als Funktion des Spaltstoffgehalts für Brennstäbe schneller Reaktoren**



**Abb.3** Reaktivität von Absorbern in Reaktoren mit zentraler  $H_2O$ -Zone

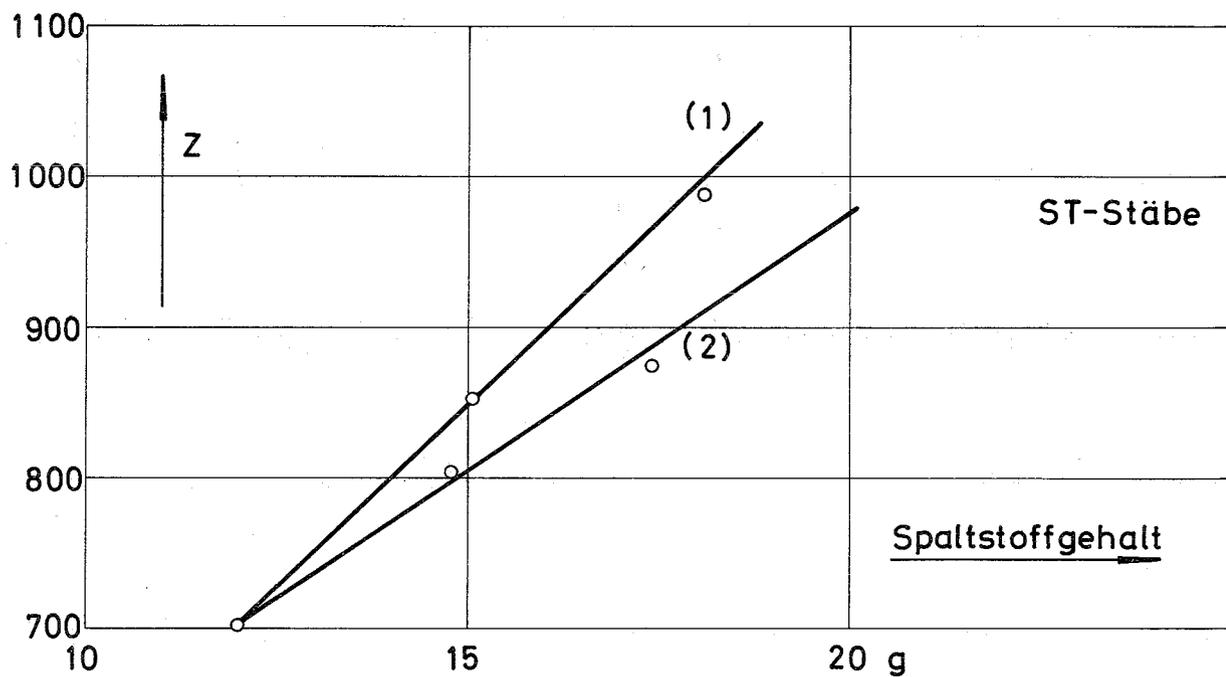
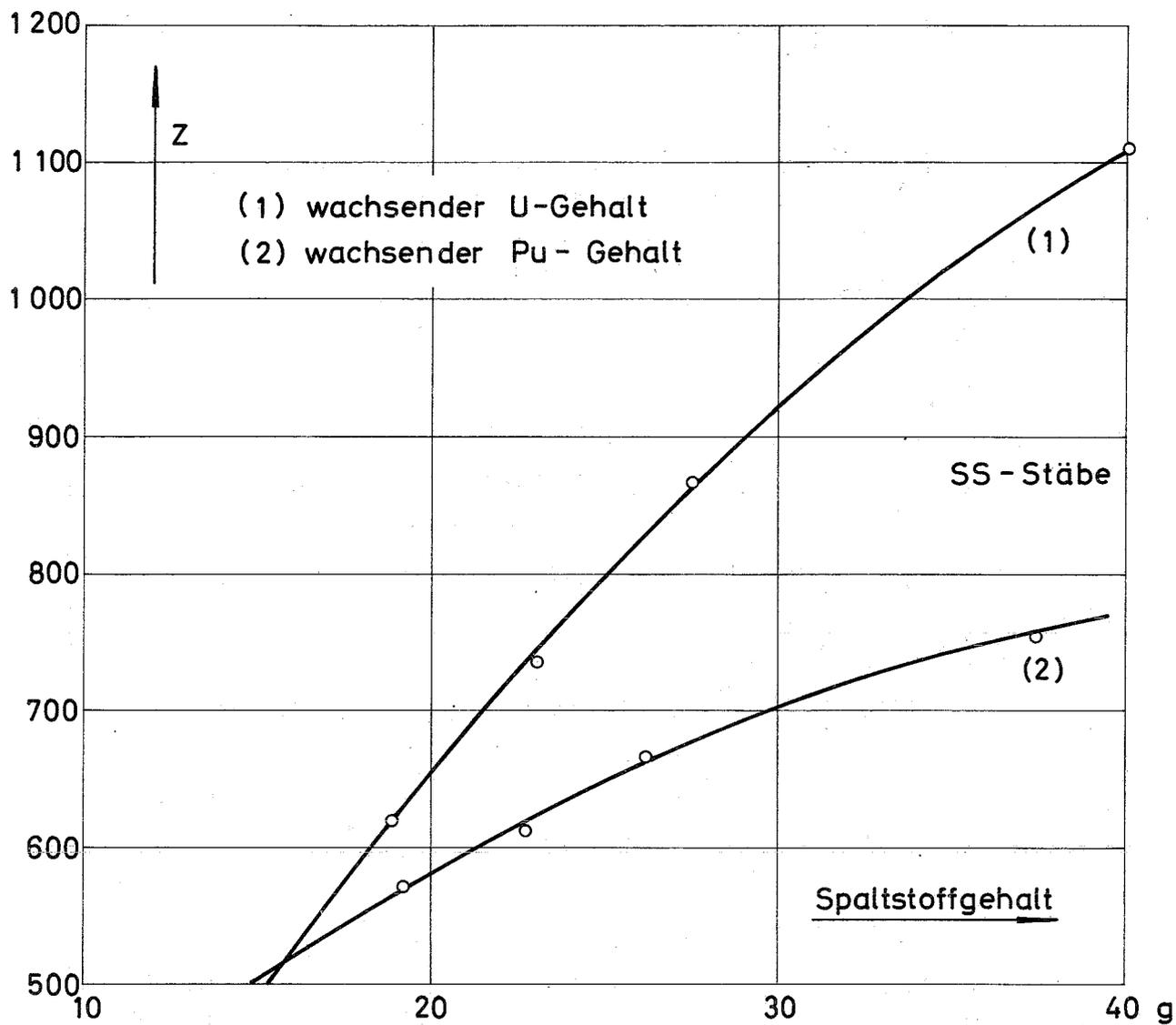


Abb.4 Zählrate verzögerter Neutronen als Funktion des Spaltstoffgehalts

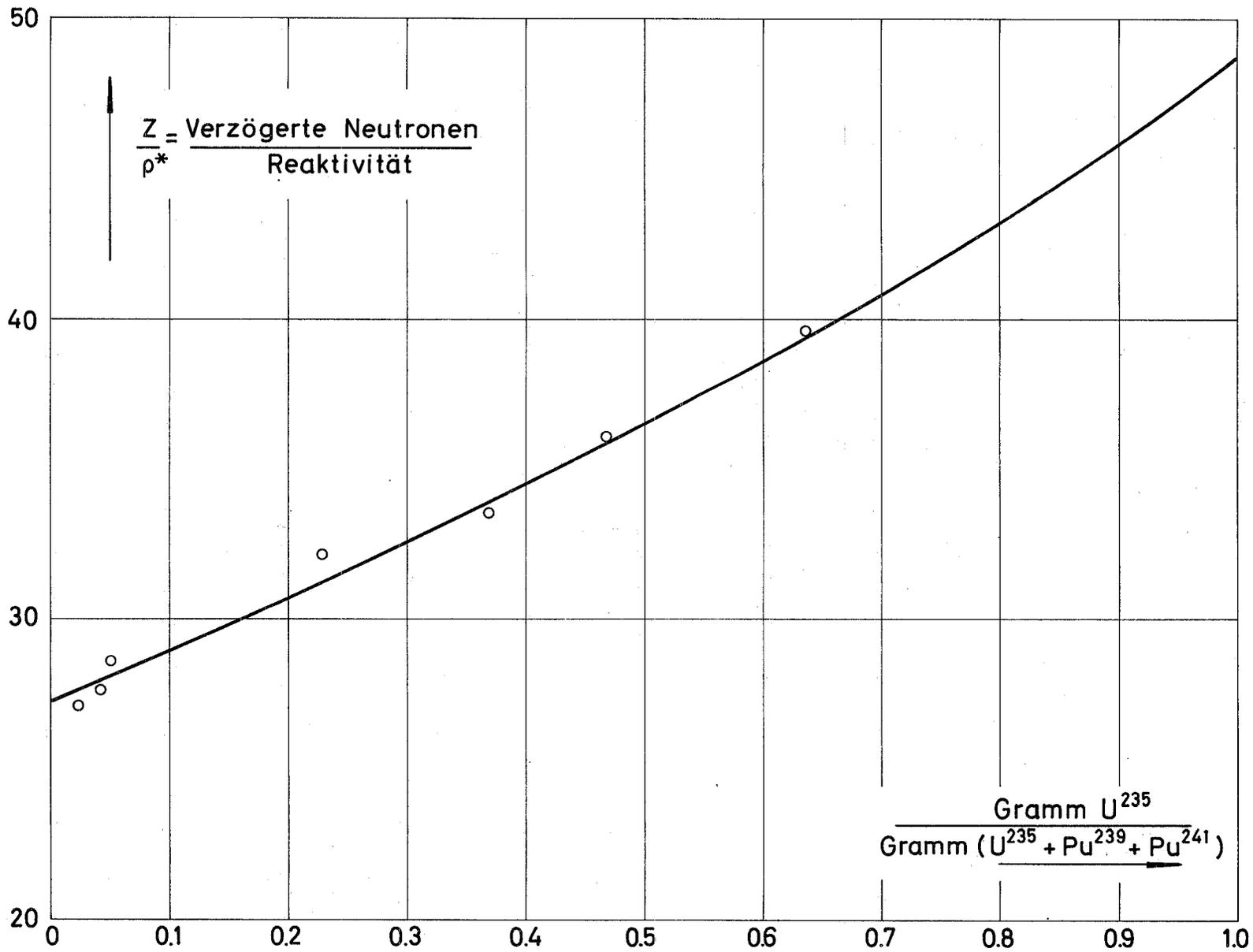


Abb.5 Abhängigkeit der Zählrate verzögerter Neutronen von der Spaltstoffzusammensetzung

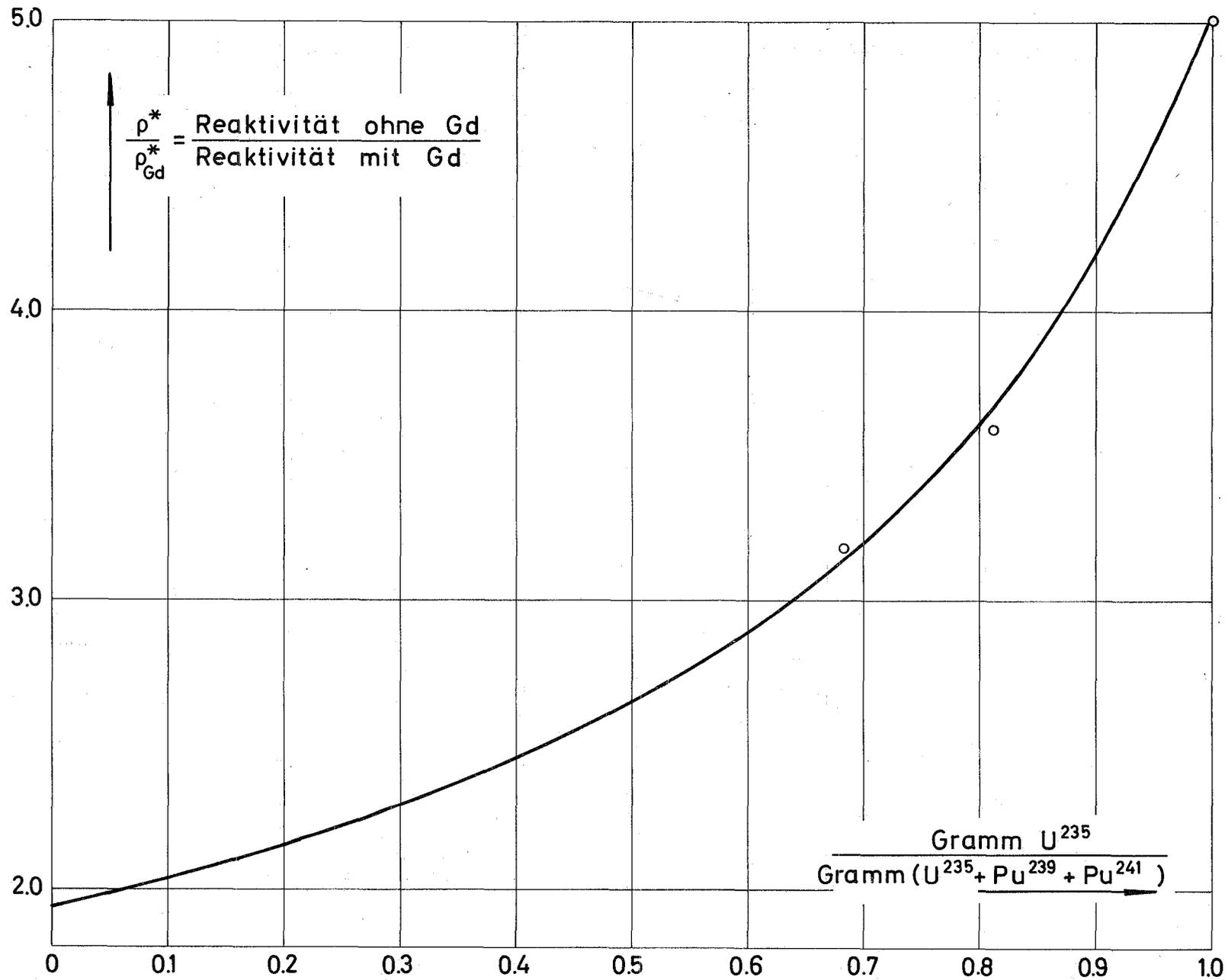


Abb.6 Abhängigkeit des Reaktivitätseffekts unter Gadolinium von der Spaltstoffzusammensetzung