

**EUR 4690 d**

KOMMISSION DER EUROPÄISCHEN GEMEINSCHAFTEN

**NACHBESTRAHLUNGSUNTERSUCHUNGEN  
EINES Brennelementbündels des VAK-Reaktors  
UND VERGLEICH MIT RECHNUNGEN**

von

L. KOCH  
(Euratom)

P. HOCHSTEIN, P. POHL und U. WOLFF  
(AEG-Telefunken, Frankfurt)

1971



**Gemeinsame Kernforschungsstelle  
Forschungsanstalt Karlsruhe — Deutschland**

**Europäisches Institut für Transurane**

## HINWEIS

Das vorliegende Dokument ist im Rahmen des Forschungsprogramms der Kommission der Europäischen Gemeinschaften ausgearbeitet worden.

Es wird darauf hingewiesen, daß die Kommission der Europäischen Gemeinschaften, ihre Vertragspartner und die in deren Namen handelnden Personen:

keine Gewähr dafür übernehmen, daß die in diesem Dokument enthaltenen Informationen richtig und vollständig sind, oder daß die Verwendung der in diesem Dokument enthaltenen Informationen, oder der in diesem Dokument beschriebenen technischen Anordnungen, Methoden und Verfahren nicht gegen gewerbliche Schutzrechte verstößt;

keine Haftung für die Schäden übernehmen, die infolge der Verwendung der in diesem Dokument enthaltenen Informationen, oder der in diesem Dokument beschriebenen technischen Anordnungen, Methoden oder Verfahren entstehen könnten.

Dieser Bericht wird in den auf der vierten Umschlagseite genannten Vertriebsstellen

zum Preise von DM 5,10	FF 7,75	FB 70,—	Lit. 870	Fl. 5,10
------------------------	---------	---------	----------	----------

verkauft.

**Es wird gebeten, bei Bestellungen die EUR-Nummer und den Titel anzugeben, die auf dem Umschlag jedes Berichts aufgeführt sind.**

Gedruckt von Van Muysewinkel, Brüssel  
Luxemburg, September 1971

Das vorliegende Dokument wurde an Hand des besten Abdruckes vervielfältigt, der zur Verfügung stand.

## EUR 4690 d

NACHBESTRAHLUNGSUNTERSUCHUNGEN EINES BRENNELEMENT-BÜNDELS DES VAK-REAKTORS UND VERGLEICH MIT RECHNUNGEN von L. KOCH\*, P. HOCHSTEIN\*\*, P. POHL\*\* und U. WOLFF\*\*

\*(Euratom) \*\*(AEG-Telefunken, Frankfurt)

Kommission der Europäischen Gemeinschaften  
Gemeinsame Kernforschungsstelle - Forschungsanstalt Karlsruhe (Deutschland)  
Europäisches Institut für Transurane  
Luxemburg, September 1971 - 52 Seiten - 21 Abbildungen - BF. 70,—

Ein BE Bündel des VAK-Reaktors mit einem mittleren Abbrand von 14 GWD/MTU wurde intensiver Nachbestrahlungsuntersuchungen unterzogen, deren Resultate mit Berechnungen verglichen wurden.

Von zwei Stäben wurden Gammascans aufgenommen und danach mittels destruktiver Methoden der Abbrand durch Nd-148, der Gehalt an schweren

## EUR 4690 d

POSTIRRADIATION EXAMINATIONS OF A FUEL BUNDLE OF THE VAK-REACTOR AND COMPARISON WITH CALCULATIONS by L. KOCH\*, P. HOCHSTEIN\*\*, P. POHL\*\* and U. WOLFF\*\*

\*(Euratom) \*\*(AEG-Telefunken, Frankfurt)

Commission of the European Communities  
Joint Nuclear Research Centre - Karlsruhe Establishment (Germany)  
European Institute for Transuranium Elements  
Luxembourg, September 1971 - 52 Pages - 21 Figures - B.Fr. 70.—

A fuel assembly of the VAK-reactor with an averaged burn up of 14 GWD/MTU was subjected to intensive postirradiation examinations. The results were compared with those obtained by calculations.

Gammascans of two rods were taken and afterwards the burn up by Nd-148, the content of heavy isotopes and the fission gas isotope ratios determined by

## EUR 4690 d

POSTIRRADIATION EXAMINATIONS OF A FUEL BUNDLE OF THE VAK-REACTOR AND COMPARISON WITH CALCULATIONS by L. KOCH\*, P. HOCHSTEIN\*\*, P. POHL\*\* and U. WOLFF\*\*

\*(Euratom) \*\*(AEG-Telefunken, Frankfurt)

Commission of the European Communities  
Joint Nuclear Research Centre - Karlsruhe Establishment (Germany)  
European Institute for Transuranium Elements  
Luxembourg, September 1971 - 52 Pages - 21 Figures - B.Fr. 70.—

A fuel assembly of the VAK-reactor with an averaged burn up of 14 GWD/MTU was subjected to intensive postirradiation examinations. The results were compared with those obtained by calculations.

Gammascans of two rods were taken and afterwards the burn up by Nd-148, the content of heavy isotopes and the fission gas isotope ratios determined by

## EUR 4690 d

POSTIRRADIATION EXAMINATIONS OF A FUEL BUNDLE OF THE VAK-REACTOR AND COMPARISON WITH CALCULATIONS by L. KOCH\*, P. HOCHSTEIN\*\*, P. POHL\*\* and U. WOLFF\*\*

\*(Euratom) \*\*(AEG-Telefunken, Frankfurt)

Commission of the European Communities  
Joint Nuclear Research Centre - Karlsruhe Establishment (Germany)  
European Institute for Transuranium Elements  
Luxembourg, September 1971 - 52 Pages - 21 Figures - B.Fr. 70.—

A fuel assembly of the VAK-reactor with an averaged burn up of 14 GWD/MTU was subjected to intensive postirradiation examinations. The results were compared with those obtained by calculations.

Gammascans of two rods were taken and afterwards the burn up by Nd-148, the content of heavy isotopes and the fission gas isotope ratios determined by

Isotopen und die Spaltgasisotopenhäufigkeit bestimmt. Die Methoden werden ausführlich beschrieben. Zwischen einigen Isotopen-verhältnissen und Abbrandgrößen wurden lineare Korrelationen aufgedeckt. Die Bestrahlungsgeschichte des BE wurde rechnerisch erfasst und mit beschriebenen Rechenprogrammen der Abbrand und die Verteilung der schweren Isotope berechnet. Die Übereinstimmung zwischen Messung und Rechnung ist zufriedenstellend.

---

destructive methods. Between some isotope ratios and burn up parameters linear correlations were observed. Burn up and distribution of heavy isotopes were calculated from the irradiation history by means of computer codes, which are described. The agreement between measurement and calculation is sufficient.

---

destructive methods. Between some isotope ratios and burn up parameters linear correlations were observed. Burn up and distribution of heavy isotopes were calculated from the irradiation history by means of computer codes, which are described. The agreement between measurement and calculation is sufficient.

---

destructive methods. Between some isotope ratios and burn up parameters linear correlations were observed. Burn up and distribution of heavy isotopes were calculated from the irradiation history by means of computer codes, which are described. The agreement between measurement and calculation is sufficient.

**EUR 4690 d**

KOMMISSION DER EUROPÄISCHEN GEMEINSCHAFTEN

**NACHBESTRAHLUNGSUNTERSUCHUNGEN  
EINES BRENNELEMENTBÜNDELS DES VAK-REAKTORS  
UND VERGLEICH MIT RECHNUNGEN**

von

L. KOCH  
(Euratom)

P. HOCHSTEIN, P. POHL und U. WOLFF  
(AEG-Telefunken, Frankfurt)

1971



**Gemeinsame Kernforschungsstelle  
Forschungsanstalt Karlsruhe — Deutschland**

**Europäisches Institut für Transurane**

## ZUSAMMENFASSUNG

Ein BE Bündel des VAK-Reaktors mit einem mittleren Abbrand von 14 GWD/MTU wurde intensiver Nachbestrahlungsuntersuchungen unterzogen, deren Resultate mit Berechnungen verglichen wurden.

Von zwei Stäben wurden Gammascans aufgenommen und danach mittels destruktiver Methoden der Abbrand durch Nd-148, der Gehalt an schweren Isotopen und die Spaltgasisotopenhäufigkeit bestimmt. Die Methoden werden ausführlich beschrieben. Zwischen einigen Isotopen-verhältnissen und Abbrandgrößen wurden lineare Korrelationen aufgedeckt. Die Bestrahlungsgeschichte des BE wurde rechnerisch erfasst und mit beschriebenen Rechenprogrammen der Abbrand und die Verteilung der schweren Isotope berechnet. Die Übereinstimmung zwischen Messung und Rechnung ist zufriedenstellend.

## SCHLAGWORTE

VAK  
FUEL ELEMENT CLUSTERS  
BURNUP  
GAMMA FUEL SCANNING  
NEODYMIUM 148  
FISSION PRODUCTS  
GASES  
HEAVY NUCLEI  
ISOTOPE RATIO  
COMPUTER CALCULATIONS  
PROGRAMMING

	Seite
<u>Inhaltsverzeichnis</u>	
1. Zusammenfassung	4
2. Vorwort	5
3. Methoden	5
3.1. Brennelementgeschichte	5
3.2. Abbrandrechnung	6
3.3. Nachbestrahlungsuntersuchungen	7
3.3.1. Gammascanning	7
3.3.2. Probennahme	9
3.3.3. Analyse schwerer Isotope	10
3.3.4. Abbrandbestimmungen	12
3.3.5. Korrelation	12
4. Ergebnisse und Diskussionen	13
4.1. Abbrand	13
4.1.1. Konsistenz der experimentellen Werte	14
4.1.2. Vergleich zwischen experimentell bestimmten und berechneten Werten	18
4.2. Uran- und Plutoniumisotopenverteilung	19
4.2.1. Konsistenz der experimentellen Ergebnisse	19
4.2.2. Vergleich zwischen experimentell bestimmten und berechneten Werten	20
4.3. Mikroproben	23
5. Schlussfolgerungen	25
6. Literaturverzeichnis	28
7. Anhang	29
7.1. Daten des Reaktors und des Elements A-49	29
7.2. Berechnungsverfahren	33
7.3. Analysenverfahren	37
7.3.1. Gammascanning	37
7.3.2. Probennahme	39
7.3.3. Lösen der Probe und Analyse der Spaltgase	39
7.3.4. Isotopenverdünnungsanalyse	42
7.3.5. Uran- und Plutoniumisotopenkonzentration	42
7.3.6. Bestimmung der seltenen Transuranisotope	45
7.3.7. Abbrandbestimmung durch <sup>148</sup> Nd-Analyse	46
7.4. Analysenresultate	48

Zusammenfassung \*)

Ein BE Bündel des VAK-Reaktors mit einem mittleren Abbrand von 14 GWD/MTU wurde intensiver Nachbestrahlungsuntersuchungen unterzogen, deren Resultate mit Berechnungen verglichen wurden.

Von zwei Stäben wurden Gammascans aufgenommen und danach mittels destruktiver Methoden der Abbrand durch Nd-148, der Gehalt an schweren Isotopen und die Spaltgasisotopenhäufigkeit bestimmt. Die Methoden werden ausführlich beschrieben. Zwischen einigen Isotopenverhältnissen und Abbrandgrößen wurden lineare Korrelationen aufgedeckt. Die Bestrahlungsgeschichte des BE wurde rechnerisch erfasst und mit beschriebenen Rechenprogrammen der Abbrand und die Verteilung der schweren Isotope berechnet. Die Übereinstimmung zwischen Messung und Rechnung ist zufriedenstellend.

---

\*) Manuskript erhalten am 21. Juni 1971

## 2. Vorwort

Gegenstand des Berichtes sind Nachbestrahlungsuntersuchungen an abgebrannten Brennstoffstäben des Versuchsatomkraftwerks Kahl und der Vergleich der erhaltenen Resultate mit Abbrandrechnungen.

Die Nachbestrahlungsuntersuchungen wurden im Europäischen Institut für Transurane in Karlsruhe und die Abbrandrechnungen von der Allgemeinen Elektrizitätsgesellschaft (AEG), Fachbereich Kernenergieanlagen, Frankfurt, ausgeführt.

## 3. Methoden

Methoden, die sich für Nachbestrahlungsuntersuchungen und die Abbrandrechnungen eignen, sind bekannt. Während der Untersuchungen stellte es sich jedoch heraus, dass geänderte oder neue Verfahren für die vorliegende Problemstellung geeigneter waren. Im folgenden werden daher die angewandten Messprinzipien kurz beschrieben und in einem technischen Anhang (Kapitel 7) die Messverfahren ausführlich dargelegt.

### 3.1. Brennelementgeschichte

Das Element A49 gehört zur Erstkernausrüstung des Versuchsatomkraftwerks Kahl (VAK). Dieser Kern (s. Abb. 7.1.1. im Anhang) besteht aus 88 Brennelementen und hat eine thermische Leistung von 60,4 MW. Das Element A49 zusammen mit 44 weiteren Elementen besaß eine Anfangsanreicherung von 2,3 % U-235. Die übrigen 44 Elemente waren auf 2,6% angereichert. Jedes Element besteht aus 36 Brennstoffstäben, die in einem 6 x 6 Gitter angeordnet sind (s. Abb. 7.1.2. im Anhang). Aus dem Element A-49 wurden 2 Stäbe zur Nachbestrahlungsuntersuchung ausgewählt.

Ab Inbetriebnahme (Nov. 1960) bis zum Ende des zweiten Zyklus (Jan. 1966) befand sich das Element im Kern. Im ersten Zyklus wurde es in der Kernposition 05-16 bestrahlt. Das Element hatte zunächst einen Stahlkasten, der im Sept. 1964 gegen einen Zirkaloy-Kasten ausgetauscht wurde. Zu Beginn des zweiten Zyklus (Juni 1965) wurde das

Element A49 auf die Kernposition 05-19 umgesetzt, von wo es am Ende des zweiten Zyklus endgültig aus dem Kern entladen wurde.

Während der Einsatzzeit des Elements A49 wurde der Reaktor 1064 äquivalente Vollasttage betrieben. In dieser Zeit erreichte A49 einen mittleren Elementabbrand von 14,02 Gwd/t.

Eine detaillierte Beschreibung des Elements, des Reaktors und der Betriebsweise während der ersten beiden Zyklen ist im Anhang 7 zu finden.

### 3.2. Abbrandrechnung

Eine Kurzbeschreibung der Abbrandrechnung und der dazu verwendeten Programme ist im Anhang 7 gegeben. Die Berechnungen wurden nur für den Mittelwert des Elements A 49 durchgeführt, sodass Korrekturen für die aus diesem Element untersuchten Stäbe anzubringen waren.

Mit den in Anhang 7 beschriebenen Programmsystemen ZELL und FLARE wurde die Geschichte des Elementes A49 nachgerechnet, als deren wesentliche Ergebnisse die erreichten mittleren Abbrände sowie die Isotopengehalte an Uran und Plutonium für 6 axiale Punkte eines Zentralstabes (III) des A49 angegeben werden.

Von der Unterkante der aktiven BE-Zone haben die Punkte folgende Abstände : 11.2, 33.6, 56.0, 108.8, 123.2 und 145.6 cm. Tabelle 3.2.1. enthält die mittleren Abbrände und Tabelle 3.2.2. den örtlichen Abbrand der einzelnen axialen Punkte sowie die auf den Anfangswert aller schweren Isotope bezogene Konzentrationsverhältnisse von U-235, Pu-239, Pu-240, Pu-241, und Pu-242.

#### Tabelle 3.2.1.: Nachrechnung der Geschichte des A49

Mittlerer Kernabbrand am Ende des 1.Zyklus	9.73 Gwd/tr
Mittlerer Kernabbrand zu Beginn des 2.Zyklus	8.02 Gwd/tr
Mittlerer Kernabbrand am Ende des 2.Zyklus	9.78 Gwd/tr
Mittlerer Elementabbrand (A49) EOC 1	12.40 Gwd/tr
Mittlerer Elementabbrand (A49) EOC 2	14.02 Gwd/tr

Punkt	Abstand von unten (cm)	örtlicher Abbrand (GWd/t)	U-235	Pu-239	Pu-240	Pu-241	Pu-242
1	11.2	9.20	1.42	0.324	0.066	0.027	0.0034
2	33.6	13.10	1.14	0.368	0.104	0.047	0.0086
3	56.0	13.50	1.12	0.384	0.111	0.052	0.0096
4	108.8	14.50	1.10	0.412	0.125	0.061	0.0118
5	123.2	13.35	1.17	0.410	0.115	0.055	0.0100
6	145.6	8.90	1.49	0.361	0.071	0.029	0.0033

Tabelle 3.2.2.: Berechnete örtliche Abbrand- und Isotopenwerte in Atomprozent (a/o)

### 3.3. Nachbestrahlungsuntersuchungen

Die zwei ausgewählten Stäbe des Brennelementbündels wurden einer Nachbestrahlungsuntersuchung unterzogen, deren hauptsächliches Ziel die experimentelle Bestimmung des Abbrandes und der Konzentration der Uran- und Plutoniumisotope war. Aus dem Flusschema der Nachbestrahlungsuntersuchung (Abb.3.3.1.) ist die Aufeinanderfolge der einzelnen Analysen ersichtlich. Nach dem Gammascanning werden an definierten Stellen Proben herausgeschnitten. Beim Auflösen der Tabletten werden die Spaltgase analysiert. Die Lösung wird soweit verdünnt, dass sie gefahrlos ausserhalb der Zellen gehandhabt werden kann. Mit Hilfe der Isotopenverdünnungstechnik werden die Konzentrationen der schweren Isotope und des Nd-148 bestimmt, dessen gebildete Menge direkt dem Abbrand proportional ist.

#### 3.3.1. Gamma-scanning

Von den zwei Brennstäben, an denen später die chemischen Analysen ausgeführt wurden, wurde die axiale Verteilung des Ce-144 und Cs-137 (+134) bestimmt.

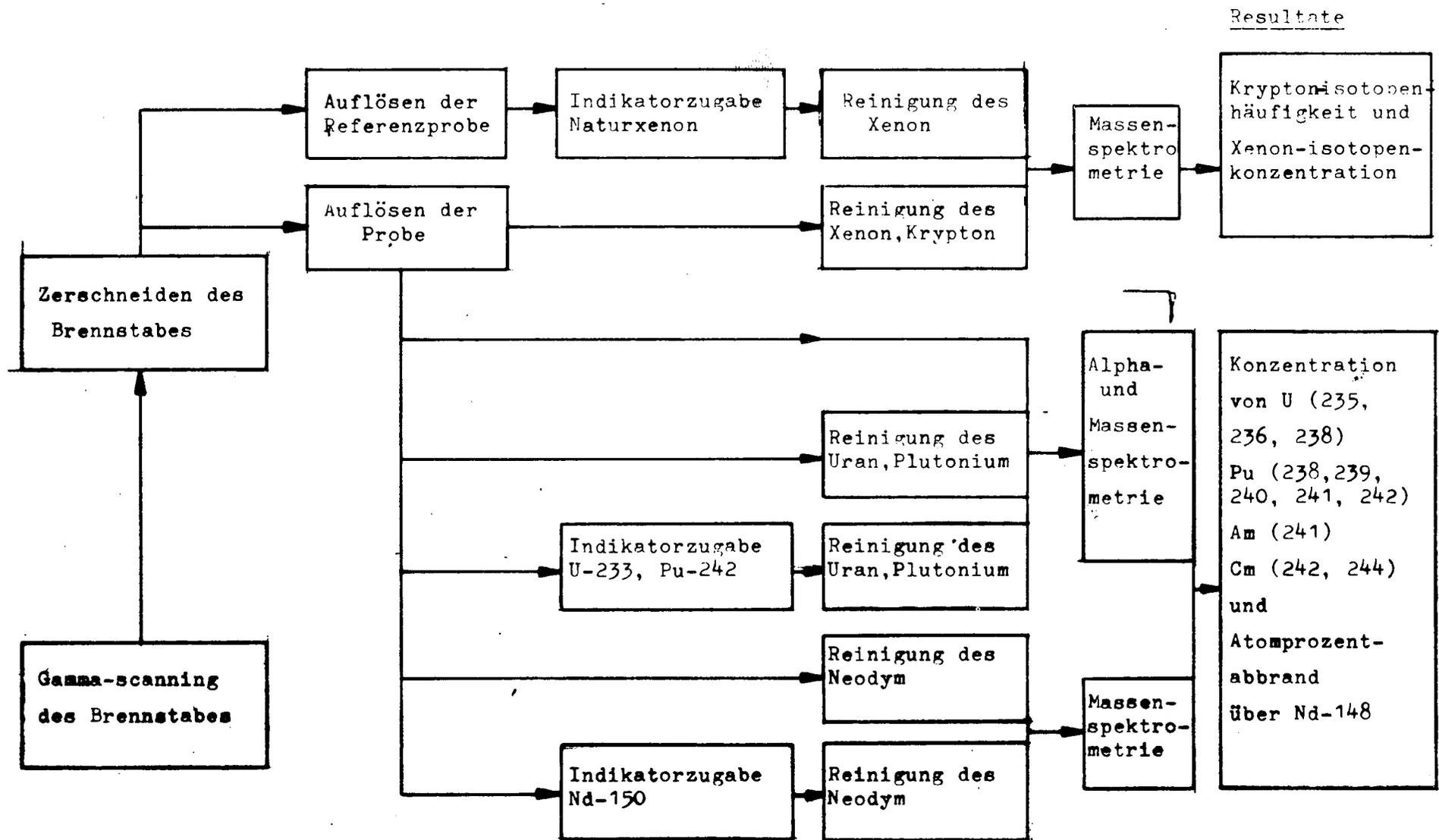


Abb. 3.3.1. Fließschema der Nachbestrahlungsuntersuchung



### 3.3.3. Analyse schwerer Isotope

Die Analyse der schweren Isotope wurde ausserhalb der heissen Zellen an verdünnten Proben (ca. 0,2 mg U/g Lösung) durchgeführt.

#### Massenspektrometrie

Durch Massenspektrometrie kombiniert mit der Isotopenverdünnungstechnik (1) wurden die Konzentrationen an U-235, U-236, U-238, Pu-239, Pu-240, Pu-241, Pu-242 bestimmt. Dazu wurden Uran und Plutonium gemeinsam als Nitratkomplexe an Anionenaustauschern sorbiert und von störendem Begleitmaterial durch Waschen mit 8 M HNO<sub>3</sub> getrennt. Überschüssiges Uran lässt sich derart ebenfalls entfernen, sodass die Probe letztlich ungefähr gleiche Mengen an Uran und Plutonium enthält und die Isotope beider Elemente auf einmal bestimmt werden konnten (2). Die Analysenverfahren werden ausführlich unter 7.3. dargelegt.

Zur Isotopenverdünnung wurden U-233 und Pu-242 als Indikatoren benutzt, die gegen Standardpräparate des National Bureau of Standards (NBS), USA, doppelt geeicht waren.

	: Atome U-233/g Lösung:	: Atome Pu-242/g Lösung:
1. Eichung	:(4,976 ±0,009) · 10 <sup>17</sup>	:(2,848 ±0,004) · 10 <sup>16</sup>
2. Eichung	:(4,969 ±0,005) · 10 <sup>17</sup>	:(2,843 ±0,002) · 10 <sup>16</sup>
Mittelwert	4,972 · 10 <sup>17</sup>	2,845 · 10 <sup>16</sup>

Der Fehler der Massendiskriminierung bei der Massenspektrometrie wurde ebenfalls durch NBS-Standards ermittelt und berichtet.

Jede massenspektrometrische Analyse wurde im allgemeinen **dreifach** (mindestens jedoch zweifach) durchgeführt. Der experimentelle Fehler, als Abweichung vom Mittelwert, ist für jede einzelne Analyse dem Anhang 7.4. zu entnehmen.

### Alphaspektrometrie

Von der aufgelösten Probe wurden ohne jegliche chemische Vorbehandlung ca. 0,01 mg U auf ein Zählplättchen aufgetropft und ein Alphaenergiespektrum aufgenommen. Es überlagern sich teilweise die Alphazerfallsenergien, sodass nur das Aktivitätsverhältnis  $\text{Pu}(239+240) / (\text{Pu}-238 + \text{Am}-241) / \text{Cm}-244 / \text{Cm}-242$  bestimmt werden kann. Durch Messung des  $\text{Pu}(239+240) / \text{Pu}-238$  Aktivitätsverhältnisses in der für die Massenspektrometrie abgetrennten Plutoniumprobe und unter Einbeziehung des massenspektrometrisch bestimmten  $\text{Pu}-239/\text{Pu}-240$  Verhältnisses lassen sich die Konzentrationen der einzelnen Nuklide errechnen.

Die Genauigkeit der Methode liegt bei 2-5 %.

Die Analysenverfahren und Analysenresultate sind im Anhang unter 7.3. und 7.4. angeführt.

### Datenreduzierung

Um die experimentellen Daten der Isotopenanalyse mit denen einer Vorausberechnung zu vergleichen, wurden sie auf die Ausgangsmenge des Brennstoffes bezogen. In Kapitel 4 wird das Verhältnis eines schweren Isotops,  $N_i$ , zur Gesamtheit aller schweren Isotope  $\sum N_i^\circ$ , d.h. Uranatome, vor der Bestrahlung angegeben. Die Reduzierung der Messdaten auf diese Angabe geschieht ohne Zuhilfenahme irgendwelcher Vorbestrahlungsdaten, denn nach Gleichung (3.3.1.) gilt :

$$\frac{N_i}{\sum N_i^\circ} = \frac{R_i}{\sum R_i + \sum \Delta} \quad (3.3.1.)$$

(Es bedeuten :  $R_i = N_i/\text{U}-238$ , Atomverhältnis nach Bestrahlung

$$\sum \Delta = (\sum N_i^\circ - \sum N_i) / \text{U}-238, \text{ Atomverhältnis}).$$

Die Substitution von  $N_i$  durch  $R_i$  ist eine Vereinfachung der Analyse, weil nur relative Isotopenhäufigkeit bestimmt zu werden brauchen. (siehe 7.3.)

$\sum \Delta$  ist das Verhältnis aller gespaltenen Atome zu den U-238 Atomen nach der Bestrahlung. Dieser Wert folgt aus der Abbrandbestimmung durch Nd-148.

### 3.3.4. Abbrandbestimmung

Die Abbrandbestimmung erfolgte durch das stabile Spaltprodukt Nd-148, dessen Vorteile als Abbrandmonitor allgemein anerkannt sind (3). Es wurde auch hier eine Isotopenverdünnungsanalyse mit dem Indikator Nd-150 angewandt. Die chemische Abtrennung des Neodym geht von der Selektivität seiner Komplexe mit  $\alpha$ -Hydroxyisobuttersäure an Kationenaustauschern aus und wird ausführlich unter 7.3. beschrieben. Die unvermeidliche Kontamination der Proben mit natürlichem Neodym wurde anhand des Nichtspaltproduktes Nd-142 bestimmt ; die Messresultate wurden entsprechend korrigiert. Die Eichung des Nd-150 Indikators erfolgte gegen einen Naturneodymstandard, der vom Zentralbüro für Kernmessungen, Geel, Euratom, hergestellt worden war. Der Eichfehler für Nd-150 betrug 0,6 %.

Jede Analyse wurde mindestens zweimal ausgeführt. Der Fehler der Einzelanalyse ist dem Anhang 7.4. zu entnehmen. Die Berechnung des Abbrandes  $F_T$  (prozentualer Abbrand an schweren Metallatomen) folgt der Gleichung :

$$F_T = 100 \cdot \frac{R_{148} / Y_{148}}{\sum R_i + R_{148} / Y_{148}} \quad (3.3.2.)$$

Es bedeuten :  $R_{148} = \text{Nd-148} / \text{U-238}$ , Atomverhältnis

$R_i = N_i / \text{U-238}$ , Atomverhältnis

$Y_{148} = \text{Spaltausbeute des Nd-148}$

Als Wert der Spaltausbeute des Nd-148 wurde 1.695 % genommen. Er beruht auf Angaben von  $(1,69 \pm 0.01\%)$  für U-235 und  $(1,70 \pm 0.03\%)$  für Pu-239 (11). Der Fehler in der Bestimmung der Spaltausbeute dominiert andere Fehlergrößen und begrenzt die Genauigkeit der Abbrandanalyse.

### 3.3.5. Korrelation

Die Konsistenz der experimentellen Resultate und der Berechnungen lässt sich durch Korrelationen überprüfen, die zwischen einigen Abbrandparametern und Isotopenverhältnissen bestehen. Da sich das Isotopenverhältnis eines Elementes, z.B. U-235/U-236, sehr einfach und genau messen lässt, besitzen die Korrelationen fast

den Wert, der einer **zweiten** unabhängigen Analysenmethode zukommt. Besonders die Beziehung zwischen Abbrandparametern und Isotopenverhältnissen der Spaltgase, die während dieser Arbeit erstmals aufgedeckt wurden (4, 5), zeichnen sich durch die Einfachheit der Gasanalyse (6) aus.

Von den bekannten Korrelationen wurden im einzelnen ausgewählt :

- Totaler Abbrand  $F_T$ , und U-235-Abbrand  $F_5$  gegen das Isotopenverhältnis U-236/U-238.
- $F_T$ ,  $F_5$  und U-235-Abreicherung,  $D_5$  gegen Kr-83/86
- $F_T$  und  $D_5$  gegen Kr-84/83
- Pu-240/239 gegen U-235/238

Die Resultate und die Diskussion sind dem folgenden Kapitel zu entnehmen.

#### 4. Ergebnisse und Diskussion

Die Ergebnisse sollen aufgeteilt in drei Gruppen diskutiert werden, und zwar die Abbranddaten als Funktion der Position der Brennstabachse, die Isotopenverteilung der Uran- und Plutoniumisotope ebenfalls in axialer Abhängigkeit und die radiale Verteilung von Abbrand und Isotopen. Bevor der Vergleich zwischen Rechnung und Experiment erfolgt, wird die Konsistenz der experimentellen Daten untereinander geprüft.

##### 4.1. Abbrand

Der Abbrand wurde allein über Nd-148 absolut gemessen (s.Tab.4.1.) Diese Werte lassen sich zu den Gamma-Scans und den Isotopenanalysen in Beziehung setzen. Die Genauigkeit jeder Einzelbestimmung ist im Anhang 7.4. wiedergegeben.

Probe	$F_T$
	a/o
13.1.III.B	1,436
6.6.III.B	1,472
14.2.III.B	1,617
10.1.III.B	1,451
8.1.III.B	1,296
18.3.III.A	0,835
15.2.III.A	1,155
10.2.III.A	1,456
2.1. I B	1,896
2.2. I A	1,627

Tab.4.1. : Abbrand,  $F_T$  nach Nd-148 Analyse

#### 4.1.1. Konsistenz der experimentellen Werte

Im Rahmen dieser Arbeit konnten erstmals Korrelationen zwischen Isotopenverhältnissen und Abbrandparametern für Brennstabproben bewiesen werden, die im erreichten Abbrandintervall linear sind (4).

Diese Korrelationen sind zum Teil vorhergesagt worden (7) und beruhen auf der Tatsache, dass sowohl der Neutroneneinfangsprozess, z.B. U-235  $\rightarrow$  U-236 oder Kr-83  $\rightarrow$  Kr-84, als auch die von Neutronen induzierte Spaltung dem integrierten Neutronenfluss proportional ist. So ist z.B. das Isotopenverhältnis U-236/U-238 sowohl dem U-235-Abbrand,  $F_5$ , als auch den gesamten Spaltungen von U-235 und Pu-239 (241),  $F_T$ , proportional (s.Abb. 4.1.1.). Die theoretische Begründung dieser Korrelationen würde den Rahmen der Arbeit übersteigen. Es scheint, dass die Linearität der erwähnten Korrelationen eine Besonderheit der Leichtwasserreaktoren ist. Wie unter 3.3. bereits erwähnt, wurden die im Brennstoff zurückgehaltenen Spaltgas-

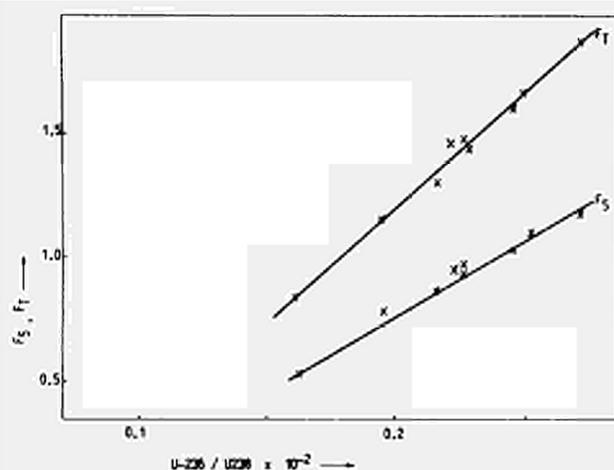


Abb.4.1.1. Korrelation zwischen U-236/U-238 Isotopenverhältnis und dem U-235 Abbrand  $F_5$ , bzw. dem gesamten Abbrand  $F_t$ .

isotope bestimmt. Ihre Analyse zeichnet sich aus durch hohe Genauigkeit im Vergleich zum experimentellen Aufwand, deshalb wurden die Krypton-83, 84, 86 - Isotope aus solchen Spaltprodukten ausgewählt, die sich mit dem gesamten und fraktionellen Abbrand,  $F_T$ ,  $F_5$  und natürlich auch mit der Abreicherung des U-235,

$D_5$ , korrelieren lassen (Abb. 4.1.2. und 4.1.3.). Durch Vergleich

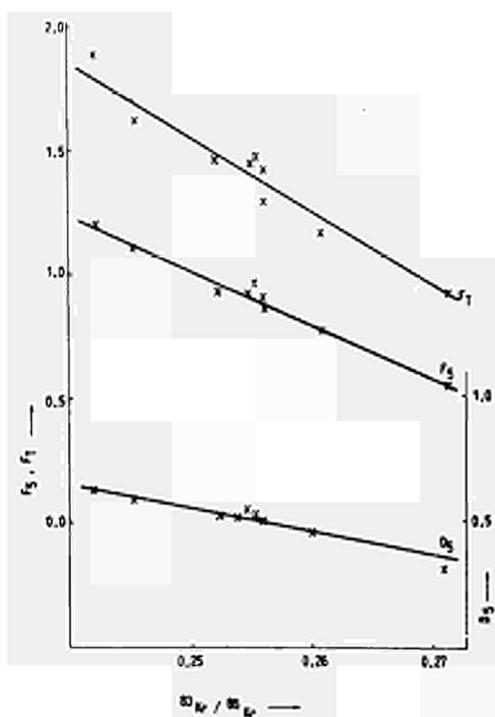


Abb.4.1.2. Korrelation zwischen  $^{83}\text{Kr}/^{86}\text{Kr}$  Isotopenverhältnis und den Abbränden  $F_5, F_T$  bzw. der U-235 Abreicherung  $D_5$ .

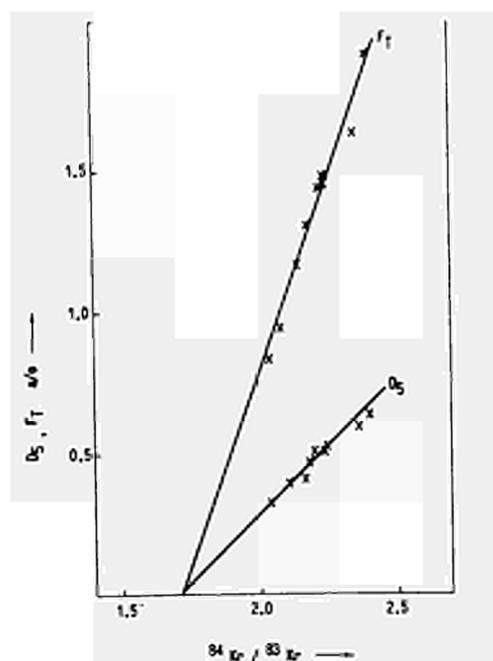


Abb.4.1.3. Korrelation zwischen  $^{84}\text{Kr}/^{86}\text{Kr}$  Isotopenverhältnis und  $F_t, D_5$

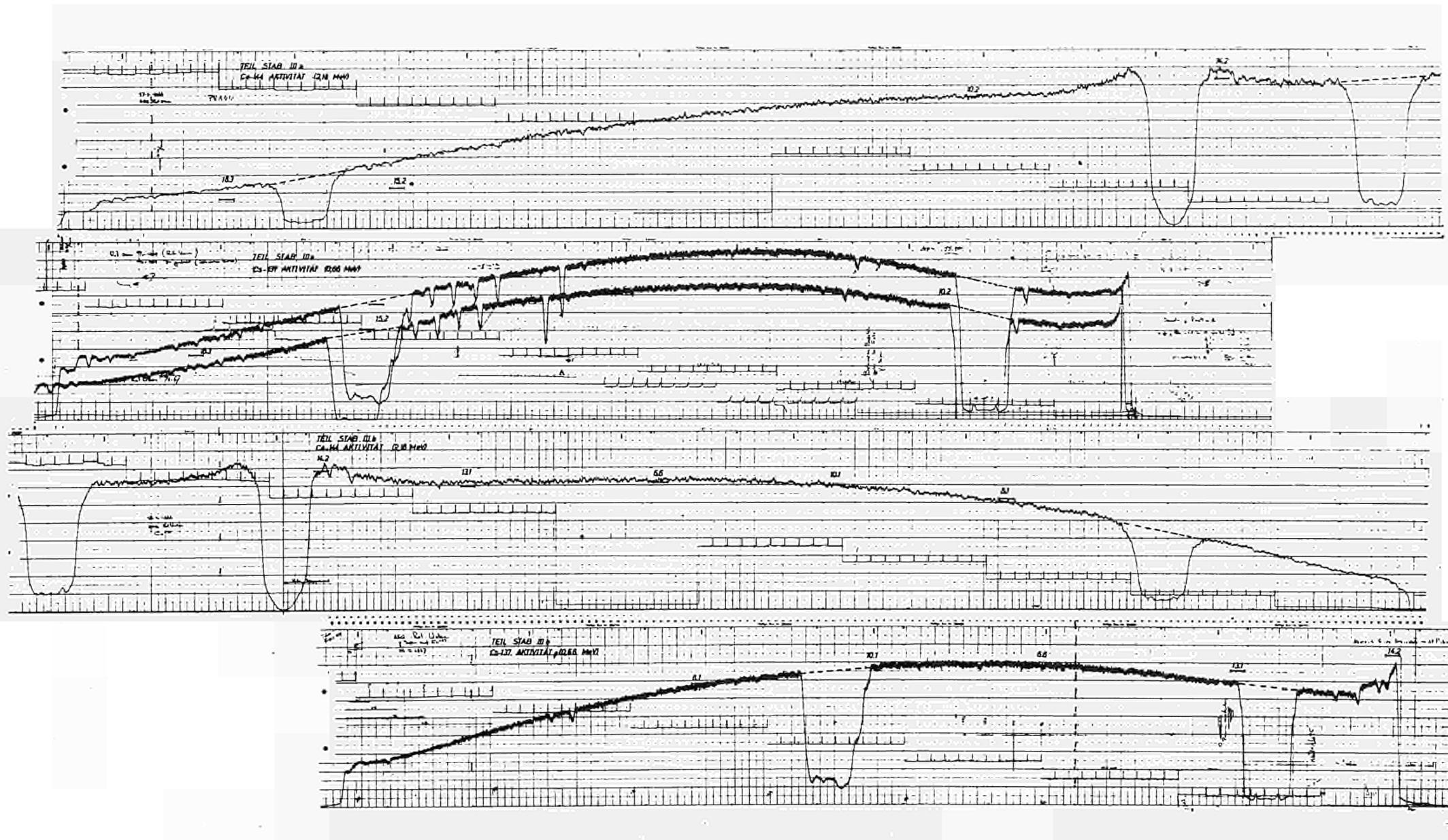


Abb. 4.1.4. - Cs-137 und Ce-144

$\gamma$ -scans der Teilstäbe III a + b

der drei beschriebenen Korrelationen kann man erkennen, dass Analysefehler ausserhalb der angegebenen Messgenauigkeit nicht vorliegen, und dass grössere Abweichungen (ca.5%) spezifisch für eine Korrelation sind und sich durch die Empfindlichkeit der Korrelation gegenüber Änderungen des Neutronenspektrums (für die verschiedenen Proben) erklären lassen. Dieser Vergleich wurde ausführlich behandelt, da die korrelierten Grössen unabhängig voneinander gemessen wurden, so dass eine Konsistenz der Daten gleichbedeutend mit einer zusätzlichen Abbrandanalyse ist.

Für jeden Teilstab, der einem halben Brennstab entspricht, wurde sowohl die Cs-137 Aktivität bei 0.66 MeV als auch die Ce-144 Aktivität bei 2.18 MeV entlang des Brennstabes gemessen. (Die 2.18 MeV Strahlung ist dem mit Ce-144 im Gleichgewicht stehenden Pr-144 mit 17.3 min. Halbwertszeit zuzuordnen). Die in Abb.4.1.4. für den inneren Stab III und in Abb. 7.3.2. für den Eckstab I wiedergegebenen Kurven weisen eine Anzahl von Minima auf. Von den grossen breiten Minima sind zwei bedingt durch Absorption der Gammastrahlen in den Haltern des Stabes auf der Messbank (der wahre Kurvenverlauf ist gestrichelt nachgezeichnet). Ein drittes Minimum liegt in der Stabmitte, die frei von Brennstoff ist, da hier die beiden Stabhälften zusammengeschraubt waren. Die mitunter beobachteten kleinen Minima entstehen an den Grenzen von Tabletten, die nicht dichtgepackt zusammenliegen. Um die durch Nd-148 bestimmten Abbrandwerte mit den Gamma-scans zu vergleichen, wurden die Messkurven jeweils auf einen Messpunkt normiert (Teilstab IIIa mit 10.2, Teilstab IIIb mit 10.1). Innerhalb der experimentellen Grenzen der Gammaskopimetrie mit einem NaI-Kristall liegt eine gute Übereinstimmung der Nd-148 Analyse mit den Gamma-scans vor, mit Ausnahme der Ce-144 Verteilung des Teilstabes IIIa. Hier täuscht die Ce-144 Aktivität (Halbwertszeit 284 d) verglichen mit der Nd-148 Analyse und der Cs-137 Verteilung (Halbwertszeit 30 a) einen höheren Abbrand vor. Hervorgerufen wird dieser Effekt dadurch, dass in der letzten Betriebsperiode des Brennelements die benachbarten Steuerstäbe D2 und D4 (siehe Kapitel 7.1.) eingefahren waren. Das hatte zur Folge, dass in dieser Periode die Leistung der oberen Stabhälfte grösser wurde als sie im Mittel während der gesamten Betriebszeit war. Demnach gibt Ce-144 mit seiner Halbwertszeit von nur 284 d vorwiegend die Leistungsverteilung der

letzten Betriebsperiode wieder. Die Cs-137-Verteilung des Teilstabes IIIb wurde nach Drehen des Stabes um 90° wiederholt. Aus den Abweichungen beider Kurven, insbesondere in der Nähe des Messpunktes 18.3, lässt sich die radiale Asymmetrie der Abbrandverteilung erkennen.

#### 4.1.2. Vergleich zwischen experimentell bestimmten und berechneten Werten.

Der Vergleich zwischen Experiment und Rechnung ist anschaulich der Abb. 4.1.5 zu entnehmen. Die ausgezogene Kurve verbindet die berechneten Werte. Die Messpunkte sind als Kreise gekennzeichnet.

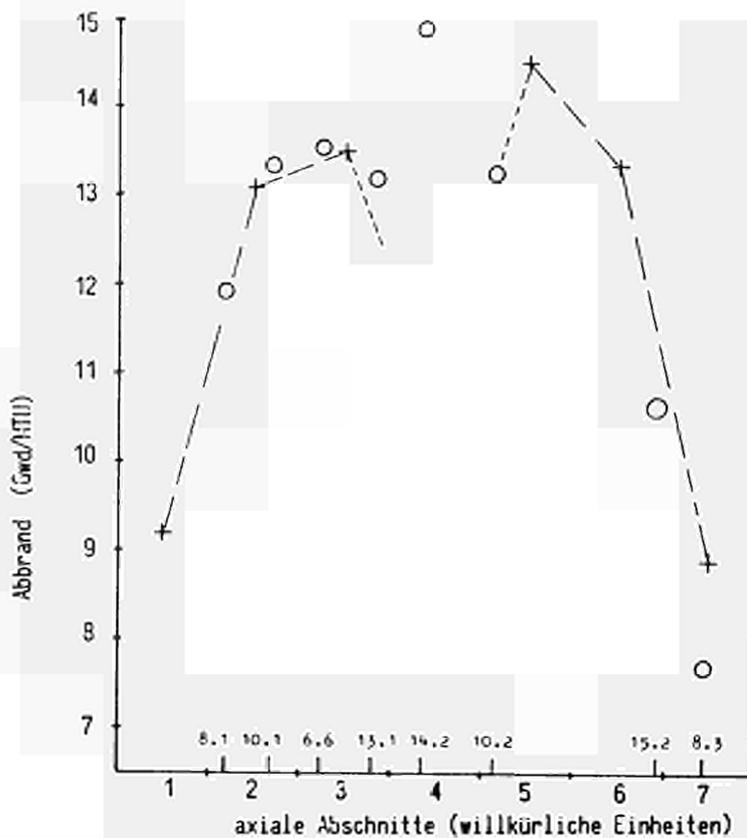


Abb.4.1.5. Vergleich zwischen berechneten (+) und experimentell (o) bestimmten Abbränden.

Um Leistungsspitzen an den brennstofffreien Verschraubungen der Teilstäbe zu unterdrücken, waren die jeweiligen Endtabletten mit Dysprosium vergiftet. Den Einfluss des Dysprosium erfasst die Rechnung nicht, sodass der Messpunkt 14.2 in der Stabmitte nicht verglichen werden kann. Die Dy-Vergiftung bewirkte in der ersten Zeit der Bestrahlung eine starke Flussdepression, um das Auftreten einer

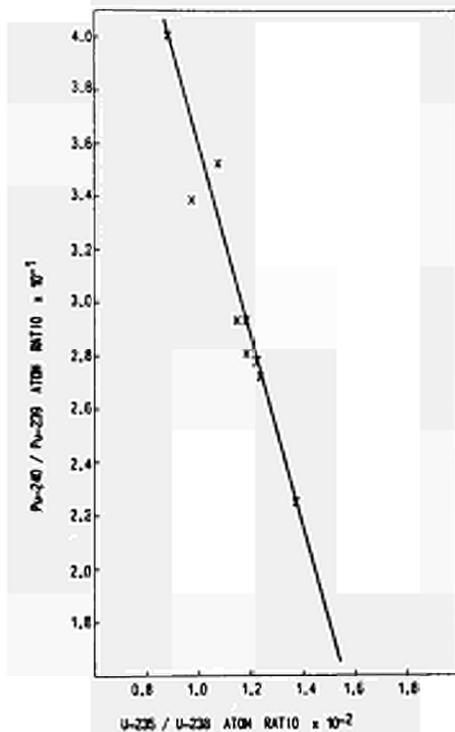
Heissquelle zu vermeiden. Nach dem Herausbrennen des Dy trat eine Flussüberhöhung auf, jedoch war inzwischen die Stabileistung aufgrund des akkumulierten Abbrandes kleiner geworden, sodass eine kritische

Heissflächenbelastung nicht erreicht wurde. Die Messpunkte 18.3 und 15.2 liegen bereits in einem starken Abbrandgradienten, sodass hier sehr stark die axiale Positionierung sowohl der Messpunkte als auch der Rechenpunkte eingeht. Trotzdem beträgt die maximale Abweichung nur 5 %.

#### 4.2. Uran- und Plutoniumisotopenverteilung

Es wurden mehr schwere Isotopen analysiert als für einen Vergleich mit den Rechnungen erforderlich sind (Tab. 7.4.1.f). Die Nuklide Pu-238, Am-241, Am-243, Cm-242, Cm-244, wurden mit der Absicht bestimmt, mögliche einfache Beziehungen aufzudecken, ähnlich der Art wie sie für die Spaltprodukte gefunden wurden. Wie sich jedoch herausstellte, sind die Relationen zwischen diesen Nukliden und Abbrandparametern zu komplex. Die Resultate (Tab. 4.1.) sind erwähnt, weil für andere Zwecke z.B. der Herstellung von Transplutoniumelementen die Angaben von Interesse sind.

##### 4.2.1. Konsistenz der experimentellen Ergebnisse



Neben der bereits erwähnten Korrelation zwischen Abbrand und U-236 / U-238 -Verhältnis existieren ebenfalls lineare Beziehungen zwischen den Verhältnissen der Uran- und Plutoniumisotope. Als Beispiel ist die Korrelation zwischen Pu-240 / Pu-239 und U-235 / U-238 angeführt (Abb.4.2.1) Die für einen Messpunkt zu beobachtende Abweichung von ca. 5 % ist unter Berücksichtigung der anderen Resultate dieser Probe eher auf die Empfindlichkeit der Korrelation gegenüber Änderungen des Neutronenenergiespektrums zurückzuführen als auf die Genauigkeit der Analysen (siehe Tab.7.4.1f)

Abb.4.2.1 Korrelation zwischen Pu-240/Pu-239 und U-235/U-238 Isotopenverhältnisse.

4.2.2. Vergleich zwischen experimentell bestimmten und berechneten Werten

Die experimentellen Werte der Konzentration der schweren Isotope sind in Tabelle 4.2.1. angeführt. Auf die anfängliche Menge aller

schweren Kerne,  $\sum_1 N_i^0$  wurden die Mengen der Isotope U-235, U-236, U-238, Pu-238, Pu-239, Pu-240, Pu-241, Pu-242, nach der Bestrahlung bezogen. Der Vergleich mit den berechneten Werten ist aus den Abbildungen 4.2.2. bis 4.2.6. zu ersehen. Wie im vorhergehenden Abschnitt werden auch hier der Messpunkt 14.2. und ausserdem der benachbarte 10.2. nicht

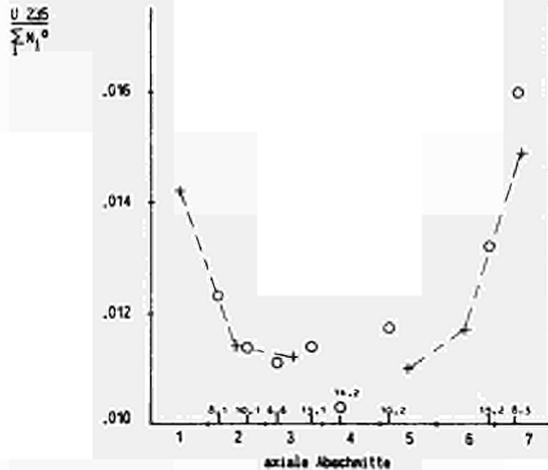


Abb.4.2.2. Vergleich zwischen berechneten (+) und experimentell bestimmten (o) U-235 Werten

verglichen, da die für das Dysprosiumpellet nötigen speziellen Rechnungen im Rahmen dieses Vergleiches nicht durchgeführt wurden. Für die übrigen Messpunkte ist in Tabelle 4.2.1. die relative Abweichung und die mittlere Abweichung zu den berechneten Isotopen-Konzentrationen angegeben.

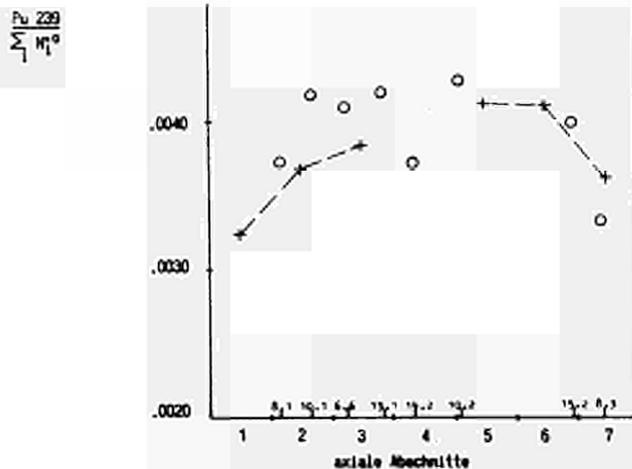


Abb.4.2.3. Vergleich zwischen berechneten (+) und experimentell bestimmten (o) Pu-239 Werten.

PROBE	URANIUM			PLUTONIUM				
	$\frac{235}{\sum N_i}$	$\frac{236}{\sum N_i}$	$\frac{238}{\sum N_i}$	$\frac{238}{\sum N_i}$	$\frac{239}{\sum N_i}$	$\frac{240}{\sum N_i}$	$\frac{241}{\sum N_i}$	$\frac{242}{\sum N_i}$
13.1.III B	0,01140	0,00213	0,9620	0,02886	4,199	1,180	0,4728	0,0865
6.6.III B	0,01110	0,00221	0,9619	0,02944	4,093	1,201	0,4822	0,0975
4.2.III B	0,01031	0,00238	0,9617	0,02500	3,721	1,313	0,4742	0,1154
10.1.III B	0,01137	0,00225	0,9617	0,02952	4,185	1,229	0,4818	0,0929
8.1.III B	0,01231	0,00209	0,9637	0,02149	3,729	1,016	0,3831	0,0659
18.3.I I A	0,01600	0,00157	0,9666	0,00899	3,326	0,578	0,1991	0,0203
15.2.III A	0,01324	0,00189	0,9640	0,01966	3,989	0,897	0,3496	0,0486
10.2.III A	0,01217	0,00224	0,9653	0,03361	4,266	1,187	0,4980	0,0880
2.1. I B	0,00848	0,00264	0,9603	0,03630	3,614	1,450	0,5684	0,1730
2.2. I A	0,00937	0,00246	0,9626	0,03321	3,688	1,249	0,5062	0,1205

+ ) Korrigierte Werte für Cm-242  $\xrightarrow{\alpha}$  Pu-238

\* ) Korrigierte Werte für Pu-241  $\xrightarrow{\beta}$  Am-241

Tab. 4.1. : Experimentell bestimmte Uran- und Plutoniumisotopkonzentrationen

$\frac{M_{Pu-240}}{V \cdot \rho}$

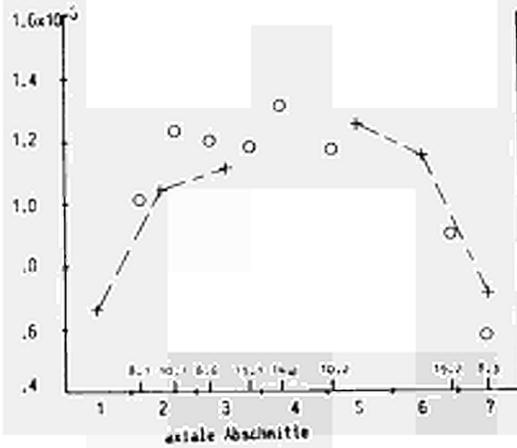


Abb.4.2.4. Vergleich zwischen berechneten (+) und experimentell (o) bestimmten Pu-240 Werten.

$\frac{M_{Pu-241}}{V \cdot \rho}$

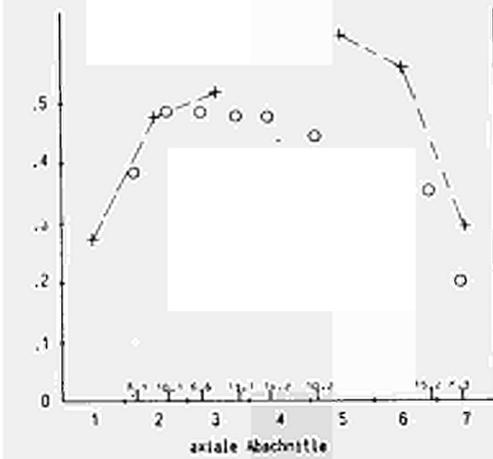


Abb.4.2.5. Vergleich zwischen berechneten (+) und experimentell (o) bestimmten Pu-241 Werten.

$\frac{M_{Pu-242}}{V \cdot \rho}$

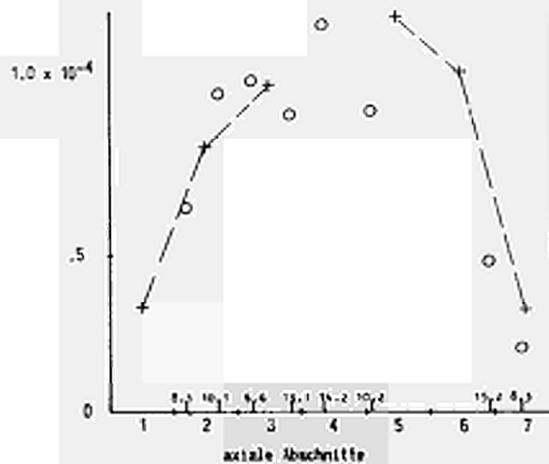


Abb.4.2.6. Vergleich zwischen berechneten (+) und experimentell (o) bestimmten Pu-242 Werten.

Tabelle 4.2.1. Abweichungen zwischen berechneten und gemessenen Isotopenkonzentrationen (in Prozent)

Proben-Nr.:	U-235	Pu-239	Pu-240	Pu-241	Pu-242
8.1.	0	+ 5	+ 8	- 7	- 7
10.1.	0	+11	+15	0	+14
6.6.	-2	+ 7	+ 9	- 5	+ 9
13.1.	+3	+ 7	+ 5	-10	-14
15.2.	0	+ 3	- 5	-20	-34
18.3.	+7	- 8	-18	-33	- 9
Mittelwert:	<u>+3.2</u>	<u>+7.3</u>	<u>+11.2</u>	<u>+16.7</u>	<u>+17.1</u>

Da in der Berechnung aus den Mittelwerten des Elements auf den einzelnen Stab extrapoliert wurde und nicht die örtlichen Spektrums- und Flussverhältnisse berücksichtigt wurden, ergeben sich zum Teil beträchtliche Abweichungen für einzelne Isotope. Unter Berücksichtigung der vereinfachenden Annahmen der Rechnungen ist das Ergebnis dennoch zufriedenstellend.

#### 4.3. Mikroproben

Die Resultate für 6 Messpunkte entlang eines Tablettendurchmessers sind in Tabelle 4.3.1. angeführt. Die Angaben sind unvollständig, da die Mikrobohrung von ca. 0.1 mm sehr wenig Material für die Analyse brachte. In Abb. 4.3.1. wurden die Messpunkte für den Abbrand, U-235 und Pu-239 in Abhängigkeit vom Tablettendurchmesser aufgetragen. Die Spiegelung der Messpunkte zeigt, dass für diesen Tablettendurchmesser innerhalb der Messfehler eine isotrope Abbrandverteilung vorliegt.

Für den unabgebrannten Brennstoff mit homogener Isotopenverteilung wurde mit dem eindimensionalen Transportcode THERMOS die radiale Leistungsverteilung innerhalb des Stabes berechnet (Abb.4.3.2.). Mitangeführt sind die Abbrandmesspunkte der Mikroproben. Die Berechnung der zeitabhängigen Isotopen- und Abbrandverteilung ist nur mit sehr kosten- und zeitaufwendigen Verfahren möglich, die den

PROBE	$F_T$	URANIUM			PLUTONIUM ( $\times 10^{-3}$ )				
		$\frac{235}{\sum N_i^o}$	$\frac{236}{\sum N_i^o}$	$\frac{238}{\sum N_i^o}$	<sup>+</sup> $\frac{238}{\sum N_i^o}$	$\frac{239}{\sum N_i^o}$	$\frac{240}{\sum N_i^o}$	<sup>*</sup> $\frac{241}{\sum N_i^o}$	$\frac{242}{\sum N_i^o}$
1	1.402								
2	1.344	0.01182	0.00228	0.9534	0.02460	3.249	0.9519	0.3068	0.0656
3	1.346	0.01191	0.00210	0.9528	0.02429	3.179	0.9194	0.2916	0.0609
4	1.330	0.01211	0.00210	0.9540	0.02433	3.184	0.9205	0.2919	0.0610
5	1.349	0.01193	0.00229	0.9545	0.02463	3.253	0.9531	0.3072	0.0656
6	1.395	0.01096	0.00229	0.9530	0.02869	4.128	1.2133	0.4562	0.1039

+) )

\* )

Tabelle 4.3.1. Abbrand und Isotopenkonzentrationen der Mikroproben



Reduzierung des Analysenaufwands führen.

Die Gegenüberstellung von Experiment und Rechnung brachte zufriedenstellende Ergebnisse, wenn man die vereinfachten Annahmen der Rechnung in Betracht zieht. Die Abbrände stimmen besser als fünf Prozent überein. Für U-235 weichen die Werte im Mittel 3,1 % und für Pu-239 7,3% voneinander ab, was den Erwartungen entspricht. Die grösser werdenden Differenzen der höheren Pu-Isotope erklärt sich aus der Ungenauigkeit der bekannten Wirkungsquerschnitte und den Vereinfachungen der Rechnung.

Ferner zeigt der Vergleich der experimentellen und berechneten Daten, dass die Anzahl der analysierten Proben ausreicht, um die axiale Verteilung des Abbrandes und der Isotopen für einen Stab zu beschreiben. Um die mittlere axiale Verteilung eines BE-Bündels zu untersuchen, sollte man mindestens drei Stäbe mit entsprechender Probenanzahl analysieren. Von weiterem Interesse ist die radiale Verteilung innerhalb eines Bündels, um die lokalen Stabileistungsfaktoren zu bestimmen. In solch eine Untersuchung sollte mindestens ein Viertel der Stäbe einbezogen werden. Die radiale Verteilung innerhalb eines Stabes ist im Hinblick auf die mechanische Auslegung, z.B. Berechnung der Brennstofftemperaturen von Interesse.

Um verbesserte nukleare Bibliotheken und verfeinerte Rechenmethoden zu erhalten, sind weitere Experimente vonnöten, die für die nahe Zukunft bereits geplant sind.

Danksagung

Den Herren Th. MOY und H. LOHNER danken wir für ihre  
Hilfe bei den chemischen Analysen  
Für die Durchführung der massenspektrometrischen Messungen  
gilt unser Dank den Herren C.RIJKEBOER und M.ROMKOWSKI.  
Frau MOLINET und Herrn KAMMERICHS danken wir für die  
Zusammenstellung der Analysen für diesen Bericht.

6. Literaturverzeichnis

- (1) L.KOCH, Atompraxis 15, 27 (1969)
- (2) L.KOCH, Radiochim. Acta 12, 160 (1969)
- (3) . L.KOCH, G.COTTONE und M.W.GEERLINGS, Radiochim. Acta 10  
122 (1968)
- (4) L.KOCH, H.BRAUN, A.CRICCHIO, Symp.Safeguards Techniques  
IAEA-SM-133/25
- (5) L.KOCH, Post irradiation isotopic analysis of reactor fuels  
IAEA Panel on the Analytical Chemistry, July 1970
- (6) L.KOCH und R.DE MEESTER, Radiochim. Acta, 15, 133 (1971)
- (7) W.J.MAECK, IDO-14642 (1965)
- (8) G.G.BILODEAU, W.R.CADWELL, J.P.DORSEY, J.G.GAIREY,  
R.S.VARGA, WAPD-TM-70 (1967)
- (9) D.L.DELP, D.L.FISCHER, J.M.HARRIMAN, M.J.STEDWELL  
GEAP 4598 (1964)
- (10) M.COQUERELLE, EUR-3619 (1967)
- (11) F.L.LISMAN et al. IN 1277 (1969)

## 7. Anhang

### 7.1. Daten des Reaktors und des Elements A 49

#### 7.1.1. Der VAK-Reaktor

Das Element A 49 gehörte zur Erstkernbeladung des Versuchsatomkraftwerkes Kahl (VAK). Die wichtigsten Auslegungsdaten dieses Reaktors sind in der Tabelle 7.1.1. zusammengestellt. Ein Querschnitt durch den Reaktorkern ist in Abb. 7.1.1. gegeben.

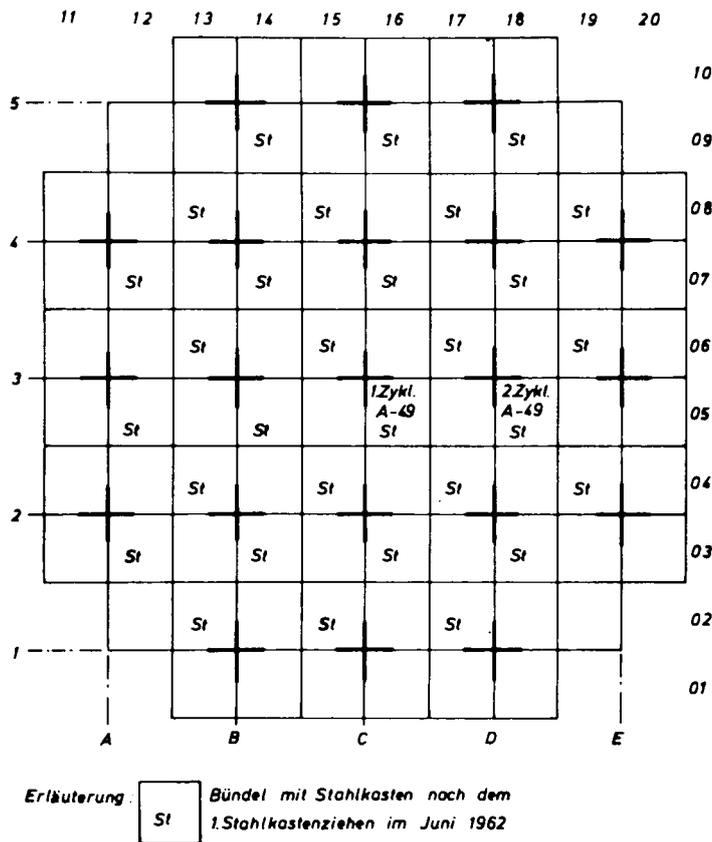


Abb. 7.1.1.  
VAK-Kernschema

Tabelle 7.1.1. Auslegungsdaten des Reaktors VAK

Anzahl der Brennelemente im Kern	88
Anzahl der Steuerstäbe im Kern	21
Äquivalenter Kernradius	72,19 cm
aktive Kernhöhe	151,8 cm
Uraneinsatz (1.Kern)	5,566 t
Thermische Reaktorleistung	60.4 MW
Mittlere Leistungsdichte	24.3 kW/l
Mittlere spezifische Leistung	10.8 kW/kg U
Druck (über Wasserspiegel)	70.3 ata
Sättigungstemperatur des Wassers	285.8°C
Gesamtkerndurchsatz	2434.5 t/h
Primärdampfmenge	122.5 t/h
Enthalpie am Kerneintritt	299.5 kcal/kg
Mittlerer Dampfblasengehalt in Kühlkanälen	27 %
Gesamt-Kern-Druckverlust	19 kp/cm <sup>2</sup>
Mittlere Brennstofftemperatur	649°C

7.1.2. Auslegungsdaten der Erstkernelemente

Im Erstkern befanden sich 44 mit 2.3 % U-235 angereicherte Elemente und 44 Elemente mit 2.6 % U-235 Anreicherung. Das in diesem Programm untersuchte Element A-49 hatte eine Anreicherung von 2.3 % an U-235. Die Elemente der 1. Nachladung hatten 2.5 % U-235 Anreicherung.

Mit Ausnahme der Anreicherung sind alle anderen Auslegungsdaten für sämtliche Elemente identisch. Die Hauptdaten gibt die Tabelle 7.1.2., und ein Querschnitt durch eine Brennelementzelle ist in Abb. 7.1.2. gegeben.

Tabelle 7.1.2. Daten der Brennelemente

Brennstoff	UO <sub>2</sub>
Anzahl der Stäbe pro Element	36
Brennstoffdichte	10.4 g/cm <sup>3</sup>
Stabmittenabstand	1.956 cm
Tablettenradius	.635 cm
Hüllwandstärke	.085 cm
Aussenradius der Hülle	.725 cm
	11.9 cm



Um die Neutronenflussspitze in der Verbindungszone abzuflachen, wurden die beiden Endpellets am Verbindungsstück mit 7000 ppm Dy in Form von  $Dy_2O_3$  vergiftet.

Ein schematischer Längsschnitt durch einen nominellen Brennstoffstab ist in Abb. 7.1.3. gegeben.

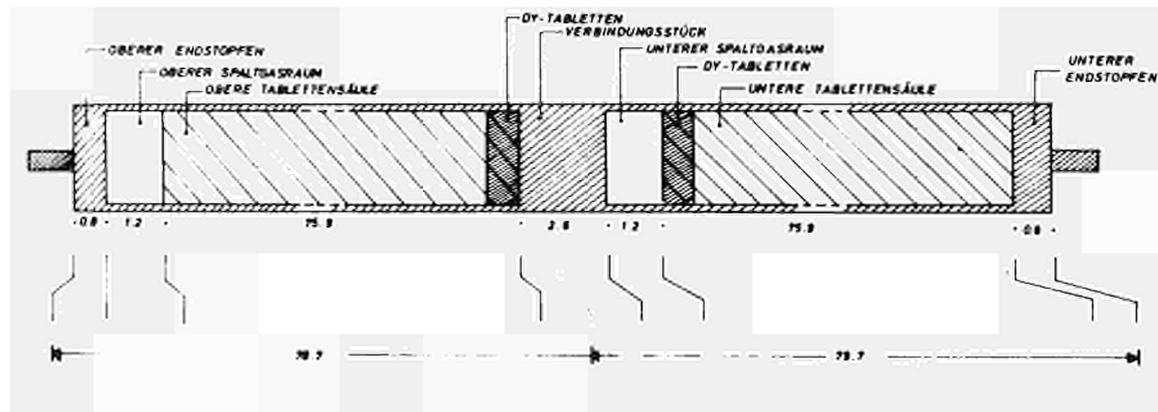


Abb. 7.1.3. Längsschnitt durch einen Brennstoffstab (nominal)

### 7.1.3. Der Betrieb des Reaktors während der Bestrahlungszeit des Elementes A 49

Der VAK-Reaktor wurde im November 1960 zum ersten Mal kritisch beladen. Die wichtigsten Zeitangaben während der Bestrahlungszeit des A-49 sind in Tabelle 7.1.3. gegeben :

Tabelle 7.1.3. Wichtige Zeitangaben im Reaktorbetrieb

Erste Kritikalität	November 1960
Beginn Leistungsbetrieb (45 MW)	Juli 1961
Beginn Leistungsbetrieb (Vollast)	Januar 1962
Erstes Stahlkastenziehen	August 1962
Einbau eines Versuchskreislaufs	April-Oktober 1963
Zweites Stahlkastenziehen	Oktober 1964
Ende des ersten Zyklus	Juni 1965
Beginn des zweiten Zyklus	Juli 1965
Ende des zweiten Zyklus	Januar 1966

Die verschiedenen Kernzusammensetzungen sind in der folgenden Tabelle 7.1.4. zusammengestellt. Das Element A-49 befand sich im 1. Zyklus in der Kernposition 05-16 und hatte bis September 1964 einen Stahlkasten, später einen Zircaloykasten. Zum zweiten Zyklus wurde A-49 in die Kernposition 05-19 umgeladen (siehe auch Abb.7.1.1) Der Betrieb des Kerns in den ersten beiden Zyklen, speziell die Ausfahrfolge der Steuerstäbe, ist in Tabelle 7.1.5. in stark verkürzter Form angegeben. Für die Berechnungen wurden wesentlich feiner unterteilte Abbrandschritte verwendet. Die Steuerstabstellungen sind in cm Ausfahrlänge angegeben und die Steuerstäbe werden nach unten aus dem Kern ausgefahren, so dass die Angabe 150 cm einen voll ausgefahrenen Steuerstab beschreibt.

## 7.2. Berechnungsverfahren

### 7.2.1. Kurzbeschreibung der Programme

Das von AEG benutzte und zum Teil selbst entwickelte Standardprogrammsystem ZELL zur Auslegung und Berechnung von Siedewasserelementen besteht im wesentlichen aus den Programmen ESG, TG, PDQ und GEFU. Eine Kurzbeschreibung dieser Programme wird im folgenden gegeben :

#### ESG

Das Programm ESG berechnet schnelle und epithermische Gruppenkonstanten für die verschiedenen Zonen einer Brennelementzelle. Zur Berechnung des schnellen und epithermischen Spektrums wird die ganze Brennelementzelle herangezogen. In der schnellen Gruppe werden nur die Transport- und Bremsquerschnitte berechnet. Die Schnellspaltungen in U-238 werden durch einen Schnellspaltfaktor beschrieben. Die epithermische Gruppe wird in drei Untergruppen unterteilt. Innerhalb der Untergruppen wird ein  $1/E$ -Spektrum angenommen. In der Berechnung der Resonanzintegrale wird die Selbstabschirmung, die Dopplerverbreiterung sowie die Dancoffkorrektur berücksichtigt.

#### TG

Das Programm dient zur Berechnung ersthomogenisierter thermischer Gruppenkonstanten von Brennstabzellen bzw. von beliebigen Materialmischungen.

Tabelle 7.1.4. Kernzusammensetzung und -statistik

Zyklus Nr. 2

Zeitraum von-bis	Nov.60	Aug.62	Dez.63	Okt.64	Juli 65
	Juni 62	Dez.63	Sept.64	Juni 65	Jan. 66
	a	b		c	d
erzeugte Energie MWd th	12635	—29650—		11879	10183
Anzahl der Elemente im Kern mit :					
2.3 % Stahlkasten	16	8	8	-	-
2.3 % Zr-Kasten	28	36	36	44	29
2.6 % Stahlkasten	44	22	22	-	-
2.6 % Zr-Kasten	-	22	20	42	44
2.5 % (1.Nachladung)	-	-	-	-	12
Versuchselemente	-	-	2	2	3

- a) Erstes Ziehen der Stahlkästen
- b) Einsatz von 2 Versuchselementen
- c) Zweites Ziehen der Stahlkästen
- d) Erste Nachladung

Zeitintervall	erzeugte Energie MWh <sub>th</sub>	Aufteilung der Energie	Steuerabstellungen (cm Ausfahrlänge)					
			C 3	B 3 D 3	C 2 C 4	B 2 D 4	B 4 D 2	
<u>1. Zyklus</u>	Aug. 61- Juni 62	12238	4135 MWh <sub>th</sub> bei 62,2 % der Vollastleistung	60		60		100
			8103 MWh <sub>th</sub> 84,8 % bei Vollast 15,2 % bei Teillast (66,5 % der Vollast)	60		60-86		150
	Juni 62- Sept. 64	29650	88,7 % bei Vollast	100-150		150		10-138
			11,3 % bei Teillast (66,9 % der Vollastleistung)	150		50-89		150
	Sept. 64- Juni 65	11879	95,5 % bei Vollast	150		150		30-138
			4,5 % bei Teillast 64 % Vollastleistung	150		48-78		150
<u>2. Zyklus</u>	Juni 65- Jan. 66	10183	98,5 % bei Vollast 1,5 % bei Teillast	150 150		150 56-150		50-129 150

Tabelle 7.1.5. Betriebsweise des Kernes

Es können wahlweise quadratische oder hexagonale Brennstabgitter in Voll- oder Hohlzylindergeometrie berechnet werden. Bei den Materialmischungen wird keine bestimmte Geometrie zugrundegelegt. Neben den thermischen Gruppenkonstanten für die gesamte Brennstabzelle gibt das Programm auf Wunsch die folgenden Größen aus : Thermisches Spektrum (109 thermische Untergruppen), mikroskopische spektrumsgemittelte Wirkungsquerschnitte, makroskopische Wirkungsquerschnitte für die einzelnen Zonen der Brennstabzelle, thermische Flussverhältnisse in diesen Zonen.

#### PDQ-N

Die bei AEG benutzte Programmversion PDQ-N ist eine Weiterentwicklung dieses 2-dimensionalen Diffusionsprogramms (8).

#### GEFU

Das Programm wurde von GE entwickelt. Es berechnet die Isotopenkonzentrationen von 30 verschiedenen Isotopen (Brennstoffe, Brutstoffe, brennbare Gifte und andere Spaltprodukte) nach jedem Abbrandschritt. Man kann wählen zwischen Zeit- oder MWD/t-Schritten. Die Schrittweiten müssen eingegeben werden.

Ausserdem werden der Abfall von k und die makroskopischen Wirkungsquerschnitte nach jedem Abbrandschritt bestimmt.

Als Ausgangsdaten werden neben den Daten über Brennstoffzusammensetzung, Hüllenmaterialien und Volumenverhältnisse die mikroskopischen Wirkungsquerschnitte, Resonanzintegrale, Zerfallskonstanten, Spaltausbeuten u.a. benötigt. Diese können wahlweise mit einem Rechenfall eingegeben oder aus der Programmbibliothek (falls die dortigen Daten noch stimmen) übernommen werden.

Normalerweise wird der Abbrand eines Bündels berechnet, das maximal noch in 25 Mikrobereiche unterteilt werden kann. Die Flussverhältnisse für den Abbrandbeginn können eingegeben oder vom Programm selbst berechnet werden. Während des Abbrands hält das Programm wahlweise entweder die Flüsse konstant oder berechnet sie mit Hilfe von Diffusionsgleichungen nach jedem Abbrandschritt neu, wobei die Leckagen durch gruppenabhängige  $B^2$  berücksichtigt werden. Die jetzige Version beschränkt sich auf die 3 üblichen Neutronengruppen und unterteilt dabei die 2. Gruppe noch in 3 Untergruppen.

Steuerstäbe oder Vergiftungsbleche brauchen nicht berücksichtigt zu werden, vielmehr werden vom Programm selbst für die Kontrolle die thermischen und epithermischen Absorptionsquerschnitte berechnet, die  $k_{\text{eff}}$  auf 1 abgleichen. Wird  $k_{\text{eff}} = 1$  unterschritten, findet ein solcher Abgleich nicht mehr statt.

Zur Beschreibung eines 3-dimensionalen Reaktorkerns wird das SWR-Simulationsprogramm FLARE benutzt (9).

Zur Lösung spezieller Probleme und zu Vergleichszwecken wurden Programme des Typs MUFT und THERMOS herangezogen.

### 7.2.2. Durchführung der Rechnungen

Mit dem Programmsystem ZELL werden die nuklearen Parameter für verschiedene Betriebszustände berechnet. Die Berücksichtigung der Änderung des Neutronenspektrums im Laufe des Abbrandes wird durch wiederholte Anwendung von ESG, TG während einer Abbrandrechnung mit GEFU erreicht. Die derart erstellten nuklearen Parameter umfassen Gruppenkonstanten, Eigenwerte, Wanderflächen und Isotopenzusammensetzungen. Diese Daten dienen zur Eingabe in Programme für die Kernberechnungen (PDQ bzw. FLARE) und zur Interpretation der Ergebnisse.

## 7.3. Analysenverfahren

### 7.3.1. Gammascanning

Zur Bestimmung des axialen Abbrandprofils wurde der BE-Stab in horizontaler Lage auf dem Schlitten einer Messbank (Abb.7.3.1.) innerhalb einer heissen Zelle an einer Kollimatoröffnung mit konstanter Geschwindigkeit (2mm/min) vorbeigefahren (10). Der Kollimator bestand aus zwei senkrecht aufeinanderstehenden Schlitzen zwischen Bleiklötzen, deren Abstand verändert werden konnte. Für die Messungen wurden Schlitzweiten von je 1-3 mm benutzt. Der ausserhalb der Zelle am Kollimatorende aufgebaute Zähler war ein NaI(Tl)-Kry stall, der mit einem Einkanalanalysator verbunden war. Das Messsignal wurde analog auf Messstreifen aufgezeichnet. Die Scans des Stabes I sind in Abb.7.3.2. wiedergegeben. Die Erklärung und Diskussion der Scans ist bereits in Kapitel 4 anhand der Abb. 4.1.4. erfolgt.

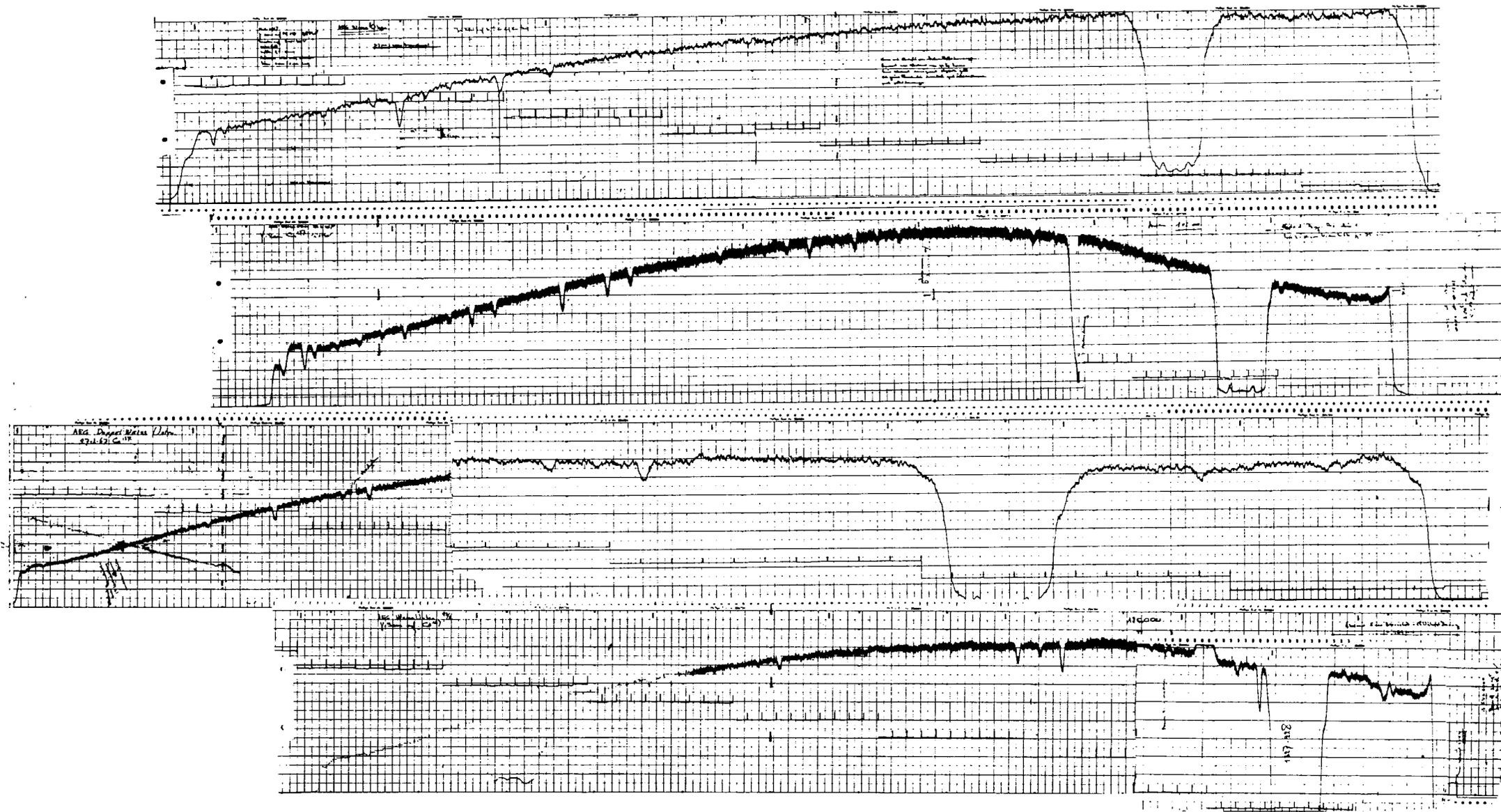


Abb. 7.3.2. J-Scans 1a + b

### 7.3.2. Probenahme

An verschiedenen Stellen zweier Brennstäbe wurden Probenpaare von 1 cm und 0,5 cm (Referenzprobe) mit einer Diamanttrennschleifscheibe herausgeschnitten (Abb.3.3.2.)

Von einer dieser Proben wurden radial Mikroproben entnommen, die, um eine Crosscontamination zu vermeiden, mit einer durch Ultraschall angetriebenen Hohlzylinder ausgebohrt wurden. Der im Innern der Zylinder gebildete Bohrkern wurde analysiert.

### 7.3.3. Lösen der Probe und Analyse der Spaltgase (6)

#### Apparaturen und Reagenzien

Es wurde ein Massenspektrometer vom Typ CH-4, Varian MAT benutzt. Druckmessgeräte und Pumpenstand waren von Leybold-Heraeus. Alle Reagenzien sind Merck-Präparate mit Ausnahme des Titanschwammes (Serva) und des Helium von 99,95 % Reinheit (Messer-Griesheim),

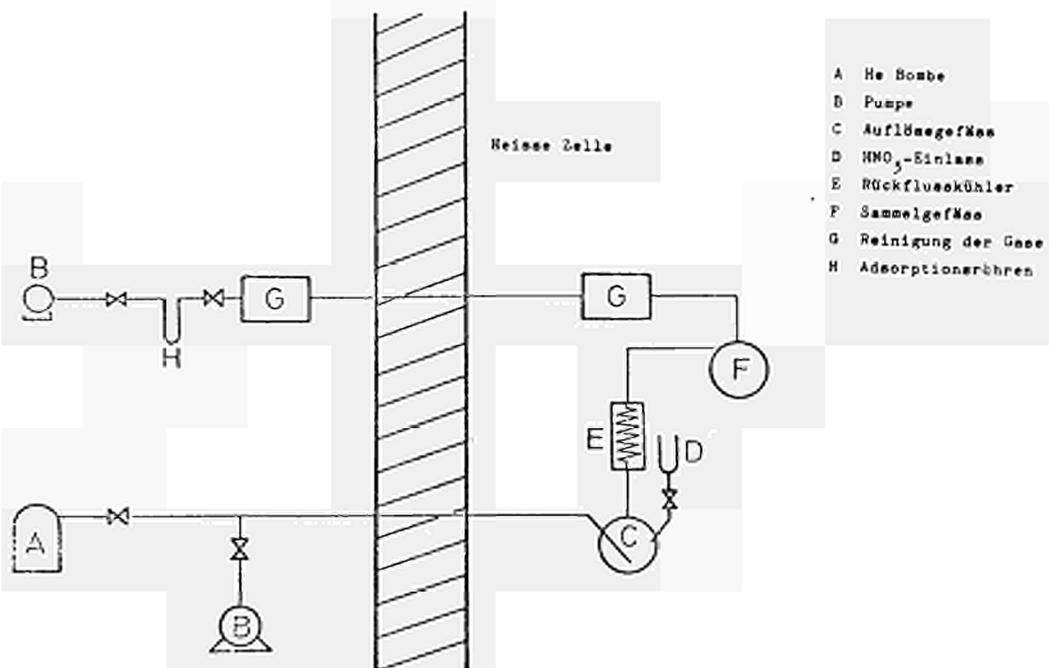


Abb.7.3.3. Apparatur zum Lösen der Proben und Sammeln der Spaltgase

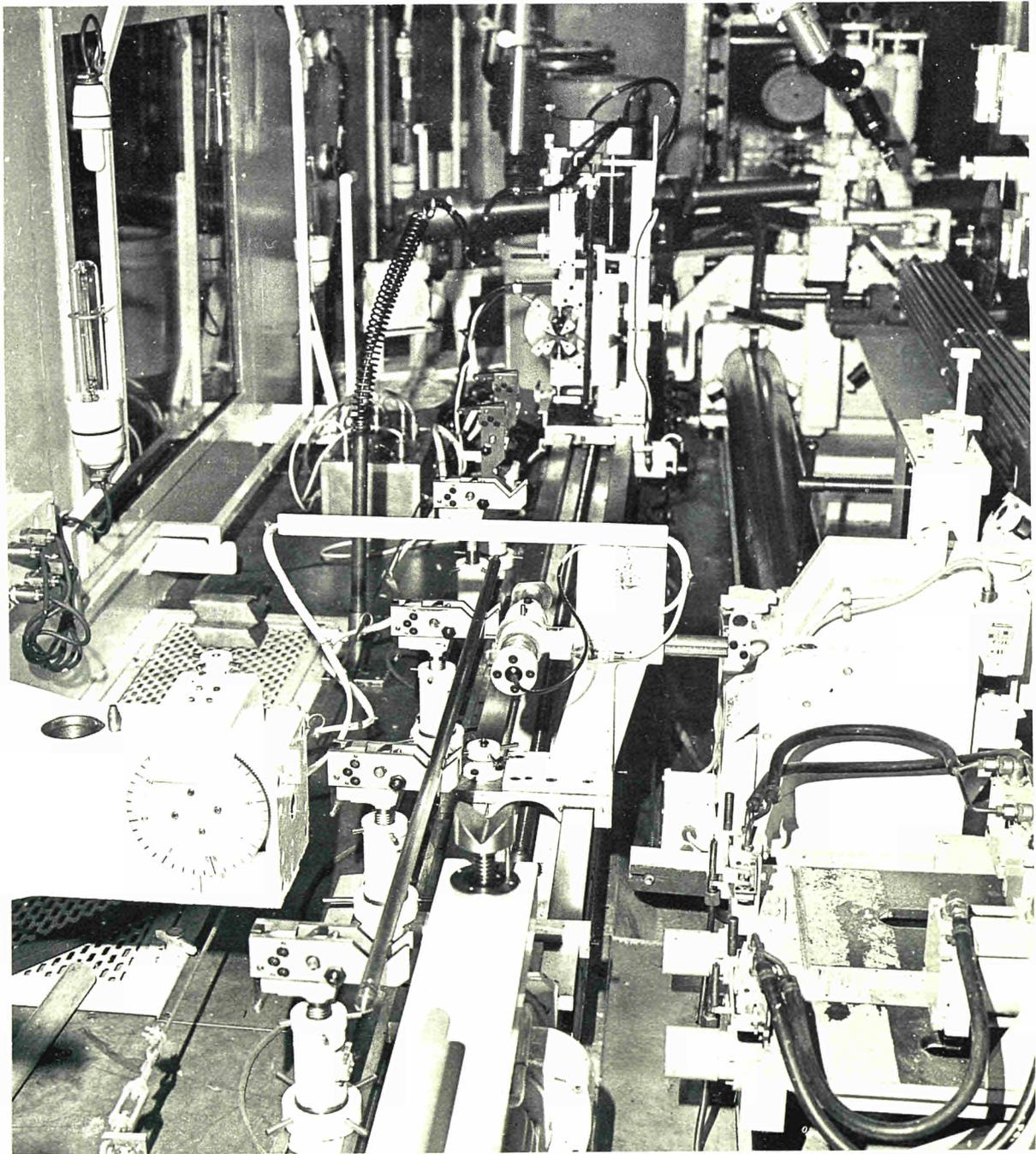


Abb.7.3.1. Messbank für  $\gamma$ -Spektrometrie

### Arbeitsvorschrift

(Die Apparatur ist in Abb. 7.3.3. erklärt)

1. Gewogene Probe  $G_1$  in das Lösegefäss (7) einbringen und Apparatur mit He spülen.
2. Sammelgefäss (T) auf 1 Torr evakuieren.
3. 100 ml konz.  $\text{HNO}_3$  in (F) einlassen und zum Sieden erhitzen.
4. Im He-Strom werden die Spaltgase nach (T) gespült (Um Leckverluste zu vermeiden, darf sich kein Überdruck in der Apparatur bilden).
5. Nach vollständigem Auflösen der Probe (Lösegeschwindigkeit ca.  $12 \text{ mg/min.cm}^2$ ) werden die Spaltgase mit He durch die Waschgefässe ( $\text{KMnO}_4$ -Lösung,  $\text{NaHSO}_3 + \text{NaOH}$ ,  $\text{CaCl}_2$ , CuO-Ofen,  $\text{Mg}(\text{ClO}_4)_2 + \text{Natronasbest}$ , Titanschwammofen) in die mit flüssigem Stickstoff gekühlten Absorptionsrohre gedrückt.
6. Die Probe wird am Molekularsieb von He getrennt. Am Massenspektrometer werden das Xenon- und Kryptonspektrum aufgenommen.
7. Die Lösung der aufgelösten Probe wird in eine Wägeflasche überführt und das Gewicht der Lösung,  $G_2$ , bestimmt.
8. Der nicht aufgelöste Ring der Brennelementhülle wird getrocknet und das Gewicht,  $G_3$ , bestimmt.
9. Ein Aliquot der Lösung wird auf ca. 0,2 mg/g Lösung verdünnt und der Verdünnungsfaktor f bestimmt.

### Messdatenerfassung

Die Massenspektren von je 5 Scans der Krypton- und Xenon-Isotopen werden ausgemessen und das Isotopenverhältnis R (Xe, Kr) berechnet.

$$R(\text{Xe}) = \frac{{}^{131}\text{Xe}}{{}^{134}\text{Xe}}, \frac{{}^{132}\text{Xe}}{{}^{134}\text{Xe}}, \frac{{}^{136}\text{Xe}}{{}^{134}\text{Xe}}$$
$$R(\text{Kr}) = \frac{{}^{83}\text{Kr}}{{}^{86}\text{Kr}}, \frac{{}^{84}\text{Kr}}{{}^{86}\text{Kr}}, \frac{{}^{85}\text{Kr}}{{}^{86}\text{Kr}}$$

Das Gewicht der gelösten Probe, G, berechnet sich :  $G = G_1 - G_3$  ;  
die Konzentration der Probenlösung, C, ist :  $C = G/G_2$ .

### Bemerkung

Versuchsweise wurde die Xenonmenge im Brennstoff bestimmt.

Die Methode ist veröffentlicht (6).

#### 7.3.4. Isotopenverdünnungsanalysen (1)

Die Isotopenverdünnungstechnik wurde in der massenspektrometrischen Analyse angewandt, um Isotopenkonzentrationen zu messen. Deswegen wird kurz das Prinzip gesondert erwähnt.

Im Idealfall ist diese Analyse sehr einfach. Es sei A das Isotop, dessen Menge bestimmt werden soll, und I die bekannte Menge des Indikatorisotops i, das der zu analysierenden Probe zugesetzt ist.

Wird nach Abtrennung des Elements aus der Analysenprobe, ohne dass die Trennausbeute bestimmt werden muss, das Isotopenverhältnis A/I gemessen, so ist die Menge des Isotops A gleich I A/I. Häufig jedoch enthält die Analysenprobe bereits das Indikatorisotop in der Menge I<sub>p</sub> und bzw. oder das zu bestimmende Isotop A der Analysenprobe ist bereits in dem Indikator mit der Menge A<sub>i</sub> enthalten, so dass zuerst das Isotopenverhältnis R in der Probe (A/I<sub>p</sub> = R<sub>p</sub>) und im Indikator (A<sub>i</sub>/i = R<sub>i</sub>) bestimmt werden muss. Eine Mischung der Lösungen des Indikators und der Analysenprobe enthält demnach die Menge des Indikatorisotops I<sub>m</sub> = I<sub>p</sub> + I und die Menge des zu bestimmenden Isotops A<sub>m</sub> = A<sub>i</sub> + A. Für das Isotopenverhältnis in der Mischung R<sub>m</sub> = A<sub>m</sub>/I<sub>m</sub> ergibt sich somit unter Berücksichtigung von R<sub>p</sub> und R<sub>i</sub>

$$R_m = \frac{A + I \cdot R_i}{A/R_p + I}, \quad \text{bzw.} \quad A = I \cdot \frac{R_m - R_i}{1 - R_m/R_p} \quad (7.3.1.)$$

d.h., auch in diesem Fall müssen nur die Isotopenverhältnisse ermittelt werden. Mit der Verdünnungsanalyse wird meist nur die Isotopenkonzentration eines einzigen Nuklids, und zwar zweckmässigerweise die des häufigsten, bestimmt. Die Konzentrationen der anderen Isotope in der Probe ergeben sich dann aus den jeweiligen Isotopenverhältnissen.

#### 7.3.5. Uran- und Plutoniumisotopenkonzentration (2)

##### Apparaturen und Reagenzien

Zur Trennung des Urans vom Plutonium wurden der Austauschere Dowex 1 x 8, 200 - 400 mesh und quarzdestillierte Salpetersäure verdünnt mit bidestilliertem Wasser benutzt. Uran- und Plutonium-

standards wurden vom NBS und die Indikatoren  $^{233}\text{U}$  und  $^{242}\text{Pu}$  vom Isotope Sales Department ORNL erhalten. Als Massenspektrometer wurde ein Modell CH-4 (Varian, Bremen) verwendet. Die Proben wurden nach der Zweibandtechnik als  $\text{Me}^+$ -Ionen gemessen.

#### Arbeitsvorschrift

1. Ca. 0,25 g des Austauschers werden mit 1 ml 8 M  $\text{HNO}_3$  in eine mit wenig Glaswolle unten verschlossene Wegwerfpipette ( $\varnothing$  5 mm) eingeschwenkt und mit 1 ml der Säure nachgewaschen.
2. Die Probe, gelöst in 8 M  $\text{HNO}_3$  und 0,1 - 1  $\mu\text{g}$  Pu enthalten, wird auf Säule gegeben. Entsprechend des U-Gehaltes wird mit n ml 8 M  $\text{HNO}_3$  gewaschen (s. Abb. 7.3.4.) Man eluiert mit 3 ml 0,35 M  $\text{HNO}_3$ .
3. Die Pu-Konzentration im Eluat wird bestimmt. Man trocknet es im gefilterten Luftstrom bei 80 - 100°C und löst den Rückstand in 1 M  $\text{HNO}_3$  zu einer Pu-Konzentration von ca. 1 ng/ $\mu\text{l}$ .

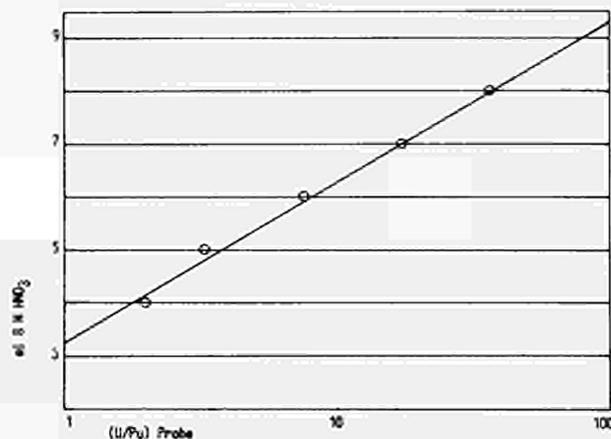


Abb.7.3.4. Abhängigkeit des Volumens der Waschlösung (8 M  $\text{HNO}_3$ ) vom U/Pu Verhältnis der Probe.

4. 1-5 ng Pu werden in der Mitte des Verdampferbandes aufgetragen und mit dem Massenspektrometer das Spektrum der U- und Pu-Isotope aufgenommen.
5. Zu einer gleichen Probemenge - wie unter 2. erwähnt - wird eine geeichte Indikatormischung aus  $^{233}\text{U}$  und  $^{242}\text{Pu}$  gegeben. Die Menge an U, Pu und das U/Pu-Verhältnis der Indikatormischung müssen

ungefähr denjenigen der Probe entsprechen.

6. Zur Lösung von Indikator und Probe werden 0,3 ml 1 M  $\text{NH}_2\text{OH}\cdot\text{HCl}$  zugesetzt. Man erwärmt auf  $80^\circ\text{C}$ , lässt 5 min. abkühlen und setzt 0,7 ml 1 M  $\text{NaNO}_2$  zu. Nachdem die Entwicklung der nitrosen Gase nachgelassen hat, wird gemischt und leicht erwärmt.
7. Entsprechend 2. bis 4. wird die Lösung weiterbehandelt.

#### Messdatenerfassung

Die Massenspektren von 8 Scans werden, nachdem durch Interpolation eine eventuelle Änderung der Ionenstromstärke korrigiert wurde, mit einem Lineal ausgemessen und aus den Peakhöhen das Isotopenverhältnis  $R$  berechnet. Es wird auf das jeweils häufigste Isotop bezogen :

$$\begin{aligned}R_5 &= {}^{235}\text{U}/{}^{238}\text{U} \\R_6 &= {}^{236}\text{U}/{}^{238}\text{U} \\R'_0 &= {}^{240}\text{Pu}/{}^{239}\text{Pu} \\R'_1 &= {}^{241}\text{Pu}/{}^{239}\text{Pu} \\R'_2 &= {}^{242}\text{Pu}/{}^{239}\text{Pu}\end{aligned}$$

Durch Isotopenverdünnungsanalyse gemäss Gleichung (7.3.1.) lässt sich die Konzentration der Probe an Pu-239 und U-238 bestimmen und über das Verhältnis  ${}^{239}\text{Pu}/{}^{238}\text{U} = R_9$  die entsprechenden Verhältnisse  $R_i = i\text{N}/{}^{238}\text{U}$  ( $i = 240, 241, 242$ ) berechnen. Die weitere Reduzierung der Daten auf Vorbestrahlungsbedingungen ist unter 3.3.3. beschrieben.

- \* Die Pu-Konzentration kann durch Messung der Gesamtalphazählrate und durch Alphaspektrometrie annähernd bestimmt werden.
- \*\* Sollen U- und Pu-Menge absolut bestimmt werden, so muss die Probemenge,  $W_p$  und die Indikatormenge  $W_i$  bekannt sein. Für die Berechnung des U/Pu-Isotopenverhältnisse ist dies nicht nötig.

### 7.3.6. Bestimmung der seltenen Transuranisotope

#### Apparaturen und Reagenzien

Reagenzien entsprechen 7.3.5. Das Alphaspektrometer bestand aus einem ORTEC-Halbleiterzähler, Typ SBBJ 025, verbunden mit ORTEC-Verstärkern 103, 203 und einem RIDL-400-Kanalanalysator, Modell 3412 B.

#### Arbeitsvorschrift

1. Ca. 50 ul der verdünnten Probelösung werden auf ein Zählplättchen aus rostfreiem Stahl aufgetropft und getrocknet. Das Plättchen wird bei ca. 800°C geglüht.
2. Es wird ein Alphaspektrum aufgenommen. Die Messzeit sollte so gewählt sein, dass das Nuklid der geringsten Häufigkeit mit mindestens 10.000 ipm gemessen wird.
3. Von der nach 7.3.5. gereinigten Uran- und Plutonium-Lösung wird in gleicher Weise ein Alphaspektrum aufgenommen.

#### Messdatenerfassung

Der prozentuale Anteil I der Zerfälle einer Alphazerfallsenergie zugehörig wird berechnet. I (64) und I (62) die Anteile des Cm-244 und Cm-242 lassen sich dieserart berechnen, für die Bestimmung des Pu-238 (8) und Am-241 (51) ist eine chemische Trennung nötig. Durch Vergleich der Anteile I (8 + 51) vor der Trennung und I (8)' nach der Trennung, die auf die entsprechenden Anteile des Pu-239 + 240 - I (9+0), I (9+0) '- bezogen sind, folgt :

$$I (8) = I (9+0) \cdot I (8)' / I (9+0)' \quad (7.3.2.)$$

$$I (51) = I (8+51) - I (8) \quad (7.3.3.)$$

Zur Aufspaltung des Anteils I (9+0) muss das Isotopenverhältnis Pu-240/Pu-239 = R<sub>9</sub>' bekannt sein :

$$I (9) = I (9 + 0) / 1 + (R_9' \cdot A_9/A_0)$$

A<sub>i</sub> sind die spezifischen Aktivitäten der Nuklide.

$A_i$	dpm/mol
$^{238}\text{Pu}$	$9,19 \cdot 10^{15}$
$^{239}\text{Pu}$	$3,25 \cdot 10^{13}$
$^{240}\text{Pu}$	$1,20 \cdot 10^{14}$
$^{241}\text{Am}$	$1,83 \cdot 10^{15}$
$^{242}\text{Cm}$	$1,77 \cdot 10^{18}$
$^{244}\text{Cm}$	$4,47 \cdot 10^{16}$

Die Umrechnung in  $R_i$ -Werte ( $R_i = N_i/\text{U-238}$ -Isotopenmassenverhältnis) folgt der Beziehung :

$$R_i = \frac{A_g}{I(9)} \cdot \frac{I(i)}{A(i)} \cdot R_g \quad (7.3.4.)$$

Die weitere Reduzierung der Messdaten auf Vorbestrahlungsbedingungen ist unter 3.3.3. beschrieben.

### 7.3.7. Abbrandbestimmung durch $^{148}\text{Nd}$ -Analyse (3)

#### Apparaturen und Reagenzien

Die Abtrennung des Neodym wurde durch chromatographische Elution mit  $\alpha$ -HIBS ( $\alpha$ -Hydroxisobuttersäure, reinst, Serva-Entwicklungslabor) an Dowex 50X8, 200-400 mesh durchgeführt. Alle Reagenzien wurden mit quarzdestilliertem Wasser angesetzt.  $^{150}\text{Nd}$  wurde vom Isotope Sales Department, ORNL, erhalten. Die Versuchsanordnung wurde einfach gehalten, um mit Neodym kontaminierte Teile leicht auswechseln zu können. In den aus der Säule austretenden Tropfen wurde mittels eines Halbleiterzählers die Alphaaktivität des Am-241 verfolgt. Das Massenspektrometer war ein Modell CH-4 (Varian, Bremen). Die Proben wurden nach der Einbandtechnik als  $\text{MeO}^+$ - und  $\text{Me}^+$ -Ionen gemessen.

### Arbeitsvorschrift

1. Ca. 0,5 g des Harzes werden in 12 M HCl in eine Säule eingeschwenkt (Austauscherbett 6,5 cm x 0,3 cm). Aufeinanderfolgend wird gewaschen mit 3 ml 12 M HCl, 3 ml H<sub>2</sub>O, 1 ml 12 M NH<sub>4</sub>OH, mit H<sub>2</sub>O bis zur Neutralität des Austauschers und mit 2 ml 0,24 M  $\alpha$ -HIBS, pH = 4,6 (eingestellt mit NH<sub>4</sub>OH).
2. Die von Uran und Plutonium gereinigte Probenlösung wird zur Trockne gebracht und in 100  $\mu$ l 0,05 M HCl gelöst. Auf die Säule werden nacheinander aufgegeben : 200  $\mu$ l 0,05 M HCl, die Probenlösung, 300  $\mu$ l 0,05 M HCl.
3. Mit 0,25 M  $\alpha$ -HIBS, pH = 4,6 wird bis zum Verschwinden der <sup>241</sup>Am-Aktivität eluiert. Danach wird eine Neodymfraction von 0,75 ml genommen.
4. Die Neodymfraction wird verdünnt mit 70  $\mu$ l 15 M HNO<sub>3</sub> + 1 ml H<sub>2</sub>O und auf eine zweite Säule mit gleichem Austauscher aufgegeben. (Das Harz ist zuvor mit 0,5 M HNO<sub>3</sub> zu waschen). Die  $\alpha$ -HIBS wird mit 3 ml 0,5 M HNO<sub>3</sub> und das Neodym mit 2 ml 6 M HNO<sub>3</sub> eluiert. Die Neodymlösung wird zur Trockne gebracht und in 50  $\mu$ l 1 M HNO<sub>3</sub> gelöst und auf Verdampfer-Ionisierungsband eines Probenhalters für die Massenspektrometrie aufgetragen.
5. Zu einer bekannten Menge der Probenlösung wird eine bekannte Menge an <sup>150</sup>Nd Indikatorisotop gegeben. Diese Mischung wird entsprechend Schritt 2 bis 4 behandelt.
6. Im Massenspektrometer werden die Proben vorsichtig aufgeheizt, bis die Neodymisotopen als NdO<sup>+</sup>-Ionen zu messen sind. Gleichzeitig ist die Abwesenheit von CeO<sup>+</sup>- und SmO<sup>+</sup>-Ionen der Massen 156 (<sup>140</sup>Ce <sup>16</sup>O), 168 (<sup>152</sup>Sm <sup>16</sup>O) und 170 (<sup>154</sup>Sm <sup>16</sup>O) zu überprüfen.

### Messdatenerfassung

Die Massenspektren von 8 Scans werden ebenfalls auf etwaige Änderungen der Ionenstromstärke korrigiert und ausgemessen. Aus den Peakhöhen wird das Isotopenverhältnis R'' berechnet, indem auf <sup>150</sup>Nd bezogen wird :

$$R''_{42} = {}^{142}\text{Nd}/{}^{150}\text{Nd}$$

$$R''_{48} = {}^{148}\text{Nd}/{}^{150}\text{Nd}$$

Obgleich  $\text{NdO}^+$ -Ionen gemessen werden, entfällt eine Korrektur des Beitrags der Sauerstoffisotope, da die Neodymisotope in nahezu gleicher Häufigkeit vorliegen. Eine andere Korrektur jedoch ist unumgänglich. Es lässt sich nicht vermeiden, dass während der Analyse Naturneodym eingeschleppt wird. Diese Neodymmenge kann über die natürliche Häufigkeit  ${}^i\text{H}$  ( $i = 142, 148, 150$ ) und Nd-142 berechnet werden, da das Isotop bei der Spaltung nicht entsteht. Das korrigierte Verhältnis  $R'_{48} = {}^{148}\text{Nd}/{}^{150}\text{Nd}$  erhält man nach :

$$R'_{48} = \frac{{}^{142}\text{H} - {}^{148}\text{H} R''_{42} / R''_{48}}{{}^{142}\text{H}/R''_{48} - {}^{150}\text{H} R''_{42}/R''_{48}} \quad (7.3.5.)$$

Durch Isotopenverdünnungsanalyse lässt sich gemäss Gleichung (7.3.1) die Konzentration der Probe an  ${}^{148}\text{Nd}$  bestimmen und mittels der  ${}^{238}\text{U}$ -Konzentration das Verhältnis  $R_{48} = {}^{148}\text{Nd}/{}^{238}\text{U}$  berechnen.

Die Berechnung des Abbrand ist unter 3.3.4. bereits beschrieben.

#### 7.4. Analysenresultate

Die Analysenwerte der alpha- und massenspektrometrischen Messungen sind in den folgenden Tabellen angegeben.

Die Tabellen 7.4.1. und 7.4.2. geben die Isotopenverhältnisse für die Uran-, Plutonium-, Americium-, Neodym- und Spaltgasisotope an. Für verschiedene wiederholte Messungen der einzelnen Proben wird der Mittelwert und die einfache Standardabweichung angegeben. Das gleiche gilt für die alphaspektrometrisch bestimmten Isotopenverhältnisse (Tabelle 7.4.3.) und für die durch massenspektrometrische Isotopenverdünnungsanalyse gemessenen Isotopenkonzentrationen von U-238, Pu-239 und Nd-148 (Tabelle 7.4.4.).

PROBE	U R A N		P L U T O N I U M			A M E R I C I U M		N E O D Y M
	R <sub>5</sub>	R <sub>6</sub>	R <sub>0</sub>	R <sub>1</sub>	R <sub>2</sub>	R <sub>242<sup>+</sup></sub>	R <sub>243<sup>+</sup></sub>	R <sub>48</sub>
	(U 235/238)	(U 236/238)	(Pu 240/239)	(Pu 241/239)	(Pu 242/239)	(Am 242/241)	(Am 243/241)	(Korr. Nd-150/148)
13.I.III B	0,01185 +0,83%	0,00221 +0,27%	0,2811 +0,08%	0,1059 +0,26%	0,0206 +0,03%	0,0064	0,129	0,4517 +0,40%
6.6.III B	0,01154 +0,80%	0,00230 +1,79%	0,2936 +1,06%	0,1104 +0,20%	0,0238 +4,3%	0,0058	0,136	0,4484 +0,30%
14.2.III B	0,01072	0,00248	0,3527	0,1187	0,0310	-	-	0,4565 <sup>+</sup> )
10.1.III B	0,01184 +0,50%	0,00230 +0,70%	0,2937 +0,12%	0,1081 +0,05%	0,0222 +0,45%	0,0060	0,118	0,4542 +1,7%
8.1.III B	0,01277 +1,3%	0,00217 +2,3%	0,2724 +0,07%	0,0961 +0,35%	0,0177 +0,68%	-	-	0,4424 +1,1%
18.3.III A	0,01655 +0,45%	0,00162 +1,57%	0,1737 +1,93%	0,0547 +0,44%	0,0061 +12,6%	0,0046	0,0353	0,4459 +1,0%
15.2.III A	0,01374 +0,07%	0,00196 +0,20%	0,2250 +0,26%	0,0812 +1,25%	0,0122 +0,62%	0,0055	0,0766	0,4527 +1,6%
2.1. I B	0,00883 +0,34%	0,00275 +0,54%	0,4012 +0,09%	0,1469 +0,66%	0,0479 +0,21%	-	0,211	0,4485 +1,6%
2.2. I A	0,00974 +0,49%	0,00256 <sup>+</sup> )	0,3388 <sup>+</sup> )	0,1245 <sup>+</sup> )	0,0327 <sup>+</sup> )	0,0057	0,134	0,4467 <sup>+</sup> )
10.2.III A	0,01217 +0,9%	0,00224 +0,32%	0,2782 +0,43%	0,1039 +0,30%	0,0207 +0,23%	0,0061	0,118	0,4625 +0,78%

+) Einzelbestimmung

Tabelle 7.4.1. Isotopenverhältnisse von U, Pu, Am, Nd (massenspektrometrisch bestimmt).

Probe	Kr 83/86	Kr 84/86	Kr 85/86	Xe 131/134	Xe 132/134	Xe 136/134
13.1.III B	0,2559	0,5692	0,1147	0,3417	0,6637	1,358
6.6.III B	0,2553	0,5729	0,1159	0,3403	0,6661	1,369
4.2.III B	0,2660	0,5554	0,1171	0,3608	0,6275	1,274
10.1.III B	0,2547	0,5701	0,1159	0,3425	0,6624	1,375
8.1.III B	0,2599	0,5675	0,1167	0,3469	0,6506	1,354
18.3.III A	0,2711	0,5540	0,1127	0,3693	0,6414	1,191
15.2.III A	0,2608	0,5616	0,1122	0,3433	0,6490	1,288
2.1. I B	0,2419	0,5819	0,1158	0,3328	0,6665	1,467
2.2. I A	0,2455	0,5793	0,1085	0,3331	0,6668	1,413
10.2.III A	0,2527	0,5656	0,1107	0,3279	0,6570	1,342

Tabelle 7.4.2. Isotopenverhältnisse von Kr, Xe, (massenspektrometrisch bestimmt)

Probe	Vor der Trennung				Nach der Trennung	
	Pu 239+240	Pu238 + Am241	Cm 242	Cm 244	Pu 239 + 240	Pu 238
13.1.III B	25,2	34,7	36,4	3,7	49,9	50,1
13.11.67	+1,6 %	+3,2%	+4,7%	+9,0%	+1,1%	+1,1%
6.6.III B	22,2	36,4	37,5	3,9	49,1	50,9
16.11.67	+4,4%	+1,1%	+3,1%	+18%	+1,3%	+1,2%
4.2.III B	44,9	36,3	16,7	2,1	67,5	32,5
15.2.68	+1,6%	+1,6%	+3,3%	+3,0%	+0,8%	+1,7%
14.2.III B	30,4	42,3	21,6	5,8	53,8	46,2
25.4.68	+1,0%	+1,1%	+0,1%	+2,0%	+1,9%	+0,1%
10.1.III B	27,1	36,1	32,8	4,0	50,0	49,9
5.10.67	+0,9%	+1,1%	+1,8%	+6,0%	+1,3%	+0,7%
8.1.III B	31,6	37,1	27,7	3,6	54,1	45,9
28.11.67	+1,4%	+2,4%	+1,4%	+3,0%	+1,0%	+1,2%
18.3.III A	43,9	36,2	17,8	2,1	66,7	33,3
13.12.67	+0,01%	+1,5%	+0,6%	+15%	+0,15%	+0,3%
15.2.III A	28,0	38,1	31,6	2,3	54,9	45,1
19.10.67	+1,9%	+3,0%	+3,2%	+7%	+0,8%	+1,0%
2.1. I B	23,3	40,3	28,6	7,8	45,5	54,5
5.2.68	+0,4%	+0,4%	+0,25%	+2,0%	+0,7%	+0,6%
2.2. I A	26,0	46,3	21,0	6,6	46,1	53,9
17.4.68	+1,0%	+0,3%	+1,5%	+1%	+0,8%	+0,7%
10.2.III A	31,9	46,5	15,6	6,0	47,7	52,3
6.6.68	+1,2%	+0,7%	+1,8%	+4,5%	+0,8%	+1,0%

Tabelle 7.4.3. Isotopenverhältnisse Pu, Am, Cm (alphaspektrometrisch bestimmt)

Probe	A (U-238) x10 <sup>17</sup>	A (Pu-239) x10 <sup>14</sup>	A (Nd-148) x10 <sup>14</sup>
13.1.III B	14,17 ±0,45%	61,87 ±0,81%	3,583 ±0,01%
6.6.III B	5,410 ±0,15%	23,02 ±0,65%	1,401 ±0,50%
14.2.III B	5,339 ±0,30%	20,77 ±0,28%	1,520 ±0,00%
10.1.III B	5,379 ±0,58%	23,41 ±0,34%	1,376 ±0,39%
8.1.III B	5,429 ±0,42%	21,01 ±0,27%	1,237 ±0,79%
18.3.III A	5,313 ±0,80%	18,28 <sup>+) )</sup> -	0,7777 ±0,04%
15.2.III A	5,423 ±0,10%	22,44 ±0,36%	1,105 <sup>+) )</sup> -
2.1. I B	5,277 ±0,53%	19,86 ±0,34%	1,764 ±0,38%
2.2.I A	5,472 ±0,70%	20,96 ±1,30%	1,567 <sup>+) )</sup> -
10.2.III A	5,418 ±0,52%	23,94 ±0,90%	1,389 ±0,58%

+ ) Einzelbestimmung

Tabelle 7.4.4. Isotopenkonzentration von U-238, Pu-239, Nd-148

**AN UNSERE LESER**

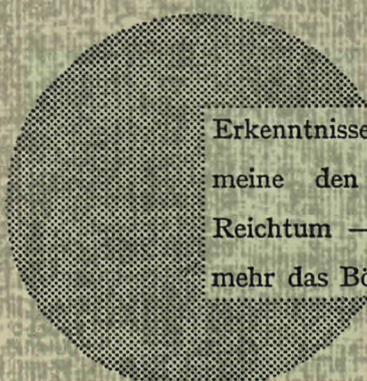
Alle von der Kommission der Europäischen Gemeinschaften veröffentlichten wissenschaftlichen und technischen Berichte werden in der Monatszeitschrift „euro-abstracts“ angezeigt.

Abonnements (1 Jahr : DM 60,— Bfrs 820,—) und Probehefte sind erhältlich bei :

**Handelsblatt GmbH**  
**„euro-abstracts“**  
D-4 Düsseldorf 1  
Postfach 1102  
Deutschland

oder

**Amt für ämtliche Veröffentlichungen**  
**der Europäischen Gemeinschaften**  
Postfach 1003 - Luxemburg 1



Erkenntnisse verbreiten ist soviel wie Wohlstand verbreiten — ich meine den allgemeinen Wohlstand, nicht den individuellen Reichtum — denn mit dem Wohlstand verschwindet mehr und mehr das Böse, das uns aus dunkler Zeit vererbt ist.

Alfred Nobel

## VERTRIEBSSTELLEN

Alle von der Kommission der Europäischen Gemeinschaften veröffentlichten Berichte sind bei folgenden Stellen zu den auf der ersten Rückseite des Umschlags angegebenen Preisen erhältlich. Bei schriftlicher Bestellung bitte die EURO-Nummer und den Titel, die beide auf der ersten Umschlagseite jedes Berichts stehen, deutlich angeben.

### AMT FÜR ÄMTLICHE VERÖFFENTLICHUNGEN DER EUROPÄISCHEN GEMEINSCHAFTEN

Postfach 1003 - Luxemburg 1  
(Compte chèque postal N° 191-90)

#### BELGIQUE — BELGIË

MONITEUR BELGE  
Rue de Louvain, 40-42 - B-1000 Bruxelles  
BELGISCH STAATSBAD  
Leuvenseweg 40-42 - B-1000 Brussel

#### LUXEMBOURG

OFFICE DES  
PUBLICATIONS OFFICIELLES DES  
COMMUNAUTÉS EUROPÉENNES  
Case Postale 1003 - Luxembourg 1

#### DEUTSCHLAND

VERLAG BUNDESANZEIGER  
Postfach 108 006 - D-5 Köln 1

#### NEDERLAND

STAATSDRUKKERIJ  
en UITGEVERIJBEDRIJF  
Christoffel Plantijnstraat - Den Haag

#### FRANCE

SERVICE DE VENTE EN FRANCE  
DES PUBLICATIONS DES  
COMMUNAUTÉS EUROPÉENNES  
rue Desaix, 26 - F-75 Paris 15°

#### ITALIA

LIBRERIA DELLO STATO  
Piazza G. Verdi, 10 - I-00198 Roma

#### UNITED KINGDOM

H. M. STATIONERY OFFICE  
P.O. Box 569 - London S.E.1

Kommission der  
Europäischen Gemeinschaften  
G.D. XIII - C.I.D.  
29, rue Aldringen  
L u x e m b o u r g

CDNA04690DEC