



**KERNFORSCHUNGSANLAGE JÜLICH GmbH**

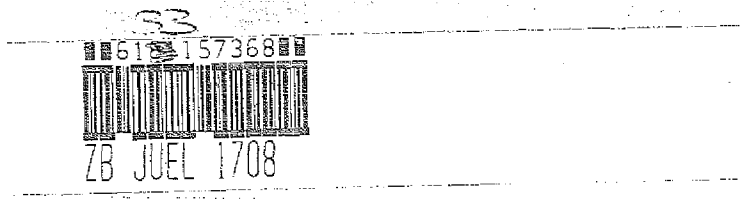
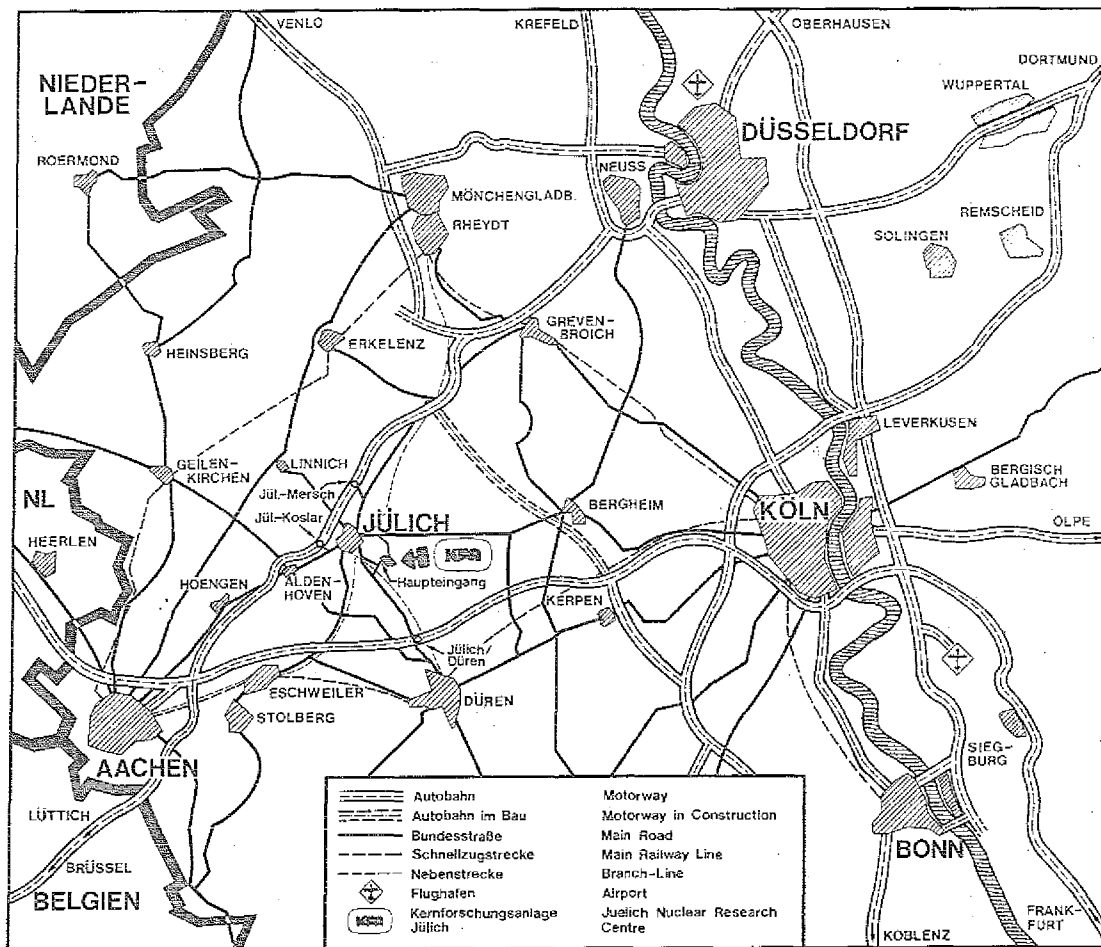
Institut für Reaktorentwicklung

**Isotopenkorrelation  
in bestrahltem HTR-Brennstoff**

von

B. Hagmann

Jül - 1708  
März 1981  
ISSN 0366-0885



Als Manuskript gedruckt

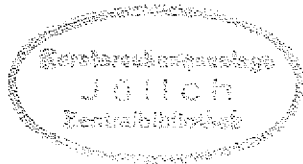
**Berichte der Kernforschungsanlage Jülich – Nr. 1708**

Institut für Reaktorentwicklung Jüli – 1708

Zu beziehen durch: ZENTRALBIBLIOTHEK der Kernforschungsanlage Jülich GmbH

Postfach 1913 · D-5170 Jülich (Bundesrepublik Deutschland)

Telefon: 02461/610 · Telex: 833556 kfa d



# Isotopenkorrelation in bestrahltem HTR-Brennstoff

von

B. Hagmann

Die vorliegende Arbeit ist das Ergebnis der Untersuchungen über die Isotopenkorrelation in bestrahltem HTR-Brennstoff, die im Rahmen des Projektes "Isotopenkorrelation in bestrahltem HTR-Brennstoff" durchgeführt wurden. Die Untersuchungen wurden im Institut für Kernphysik der RWTH Aachen durchgeföhrt.

Die Untersuchungen wurden im Institut für Kernphysik der RWTH Aachen durchgeföhrt. Die Ergebnisse sind in dieser Arbeit dargestellt. Die Untersuchungen wurden im Institut für Kernphysik der RWTH Aachen durchgeföhrt.

D 82 (Diss. T. H. Aachen)

Rep. 157368  
ZUSATZ-Nr. \_\_\_\_\_

# ISOTOPIC-CORRELATION IN IRRADIATED HTR-FUEL

by

Berthold Hagmann

## ABSTRACT

This work deals with the experimental and calculational determination of fission-product and heavy metal content in irradiated HTR-fuel for the purpose of obtaining useful data for reprocessing and waste management.

The investigation methods are presented and the used computer codes are described. The data delivered from the experimental investigations serve for verification of the computed results which are presented in form of isotopic correlations.

ISOTOPENKORRELATION  
IN BESTRAHLEM HTR-BRENNSTOFF

von  
Berthold Hagmann

KURZFASSUNG

Die vorliegende Arbeit befaßt sich mit der experimentellen und rechnerischen Bestimmung von Spaltprodukt- und Schwermetallgehalten in bestrahltem HTR-Brennstoff unter dem Aspekt, brauchbare Daten für Wiederaufarbeitung und waste management zu erhalten.

Die angewandten Untersuchungsmethoden werden vorgestellt, und die benötigten Rechenprogramme beschrieben. Die Daten der experimentellen Untersuchungen dienen zur Verifizierung der rechnerischen Ergebnisse, die in Form von Isotopenkorrelationen dargestellt werden.

CONFIDENTIAL

... ..  
... ..  
... ..  
... ..

... ..  
... ..  
... ..  
... ..

... ..  
... ..  
... ..

... ..  
... ..  
... ..

... ..  
... ..  
... ..

... ..  
... ..  
... ..

... ..  
... ..  
... ..

# I n h a l t s v e r z e i c h n i s

	Seite	
1.	EINLEITUNG UND ZIELSETZUNG	1
2.	EXPERIMENTELLER TEIL	4
2.1	Auswahl der Bestrahlungsexperimente	4
2.2	Beschreibung der Bestrahlungsexperimente	5
2.2.1	DIDO-Experimente	5
2.2.2	DRAGON-Experimente	6
2.3	Nachuntersuchung der Experimente	7
2.3.1	Alpha-Spektroskopie	8
2.3.1.1	Probenherstellung	8
2.3.1.2	Beschreibung der Anlage	9
2.3.1.3	Durchführung und Auswertung der Messungen	14
2.3.1.3.1	Eichung	14
2.3.1.3.2	Ermittlung der Materialverteilung auf dem Alpha-Präparat	17
2.3.1.3.3	Aufnahme der Spektren	20
2.3.1.3.4	Auswertung der Spektren	23
2.3.1.3.5	Fehlerbetrachtung	32
2.3.1.3.6	Schwermetallkonzentration im HTR-Partikel in Abhängigkeit vom Radius	34
2.3.1.3.7	Ergebnisse der Alpha-Spektroskopie bezüglich der ausgewählten Bestrahlungsexperimente	38
2.3.2	Gamma-Spektroskopie	40
2.3.3	Massenspektroskopie	41
2.3.4	Zusammenstellung der Nachuntersuchungsergebnisse	42

	Seite	
3.	THEORETISCHER TEIL	44
3.1	Isotopenkorrelation	44
3.2	Beschreibung des Rechenprogramms ORIGEN	45
3.3	Nachrechnung der Bestrahlungs- experimente	49
3.3.1	Ermittlung der Wirkungsquerschnitte	50
3.3.2	Gegenüberstellung der gemessenen Daten mit der Rechnung	55
3.4	Ermittlung linearer Korrelationen	57
3.5	Darstellung der gefundenen Korrelationen	60
3.5.1	$U-236 = f(Cs-137)$	60
3.5.2	$1/U-235 = f(Cs-134/U-236)$	61
3.5.3	$Pu-240/U-236 = f(U-236)$	61
3.5.4	$Pu-240/Cs-137 = f(Pu-239)$	62
3.5.5	$Cs-134/U-236 = f(Pu-238/Cs-134)$	62
4.	ZUSAMMENFASSUNG	64
5.	LITERATURVERZEICHNIS	66
6.	ANHANG	70

Liste der verwendeten Symbole, Abkürzungen und Fachausdrücke

- $\sigma_k$  : Wirkungsquerschnitt des Isotops k für Absorption
- $\phi$  : Neutronenfluß (thermisch)
- $\sigma_{kf}$  : Wirkungsquerschnitt des Isotops k für n,f-Reaktion
- $\sigma_{kc}$  : Wirkungsquerschnitt des Isotops k für n, $\gamma$ -Reaktion
- $\lambda_k$  : Zerfallskonstante des Isotops k
- $N_k(0)$  : Menge des Isotops k zum Zeitpunkt t=0
- BE : Brennelement
- HTR : Hoch-Temperatur-Reaktor
- LWR : Leicht-Wasser-Reaktor
- HEU : High-Enriched-Uranium
- MEU : Medium-Enriched-Uranium
- LEU : Low-Enriched-Uranium
- HDI : High Dense Isotropic
- WA : Wiederaufarbeitungsanlage
- WQ : Wirkungsquerschnitt
- FRJ2 : Forschungsreaktor Jülich 2 (DIDO)  
FRJ2-P16 : Partikelbestrahlungsexperiment Nr.16 im DIDO
- DR : DRAGON-Reaktor  
DR-P(K)4 : Partikel (Kugel) Bestrahlungsexperiment im  
DRAGON-Reaktor
- Input : Eingabe für Rechenprogramme
- Output : Ausgabe der Rechenprogramme
- Library : Datensammlung für Rechenprogramme
- Abbrandcode : Computerprogramm zur Berechnung von Abbränden
- Charge : Beladungseinheit
- Coated Particle : Beschichtetes Brennstoffteilchen
- Peak : Linie in einem Spektrum
- Singlet-Peak : Einzellinie

Area : Fläche eines Peaks

Counts : Anzahl der registrierten Ereignisse (= Area)

Waste : Abfall

## 1. EINLEITUNG UND ZIELSETZUNG

Auf dem Gebiet der Kernreaktorentwicklung rücken neben wirtschaftlichen und sicherheitstechnischen Aspekten immer mehr die Probleme des Umweltschutzes, d.h. auch Fragen nach der Beseitigung des radioaktiven waste in den Vordergrund. Von großem Interesse für die Auslegung von kerntechnischen Anlagen, sowohl für Kernreaktoren als auch für Wiederaufarbeitungsanlagen, sind daher Aussagen über die während des Reaktorbetriebs erzeugten Mengen an Spaltprodukten und Schwermetallen.

Die im Reaktor eingebauten Instrumentierungen liefern zusammen mit den Beladungsdaten des Reaktors Informationen, die als Input für Computerprogramme dienen, mit denen Spaltprodukt- und Schwermetallkonzentrationen in Abhängigkeit von der Bestrahlungsgeschichte berechnet werden. Bedingt durch die Komplexität der sich im Kernreaktor abspielenden physikalischen Prozesse, bieten Rechenprogramme nur die Möglichkeit, diese Vorgänge modellhaft nachzuvollziehen. Eine experimentelle Kontrolle der berechneten Nuklidkonzentrationen ist daher erforderlich und eventuelle Abweichungen zwischen Meßdaten und Rechenergebnissen müssen durch Korrekturen der Programme oder der verwendeten Libraries verbessert werden. Diese Methode erlaubt es, das Verhalten der Aktiniden und Spaltprodukte während der Bestrahlungsperioden als Funktion der Zeit, des Abbrandes oder der Fluenz darzustellen, mit der Möglichkeit nach Beziehungen zu suchen zwischen leicht meßbaren  $\gamma$ -strahlenden Spaltprodukten und einzelnen Schwermetallnukliden. Werden solche eindeutigen Beziehungen, auch Isotopenkorrelationen genannt, gefunden, kann durch zerstörungsfreie, routinemäßige  $\gamma$ -Spektroskopie der Schwermetallvektor bestrahlter Brennelemente bestimmt werden.

Ziel dieser Arbeit war es, Korrelationen für Hochtemperatur-Reaktor-Brennelemente (HTR-BE) nachzuweisen; d.h. Abhängigkeiten zwischen  $\gamma$ -Aktivitäten bestimmter Spaltprodukte und Schwermetall-Nukliden aufzuzeigen und darzustellen. Die Spaltprodukte müssen folgenden Anforderungen genügen /1/:

- Die Halbwertszeit des Spaltproduktes muß groß sein gegen den Bestrahlungszeitraum, damit sich das betrachtete Spaltprodukt nicht in andere Spaltprodukte umwandelt.
- Die Spaltausbeute muß genügend groß sein, damit sich die  $\gamma$ -Linien deutlich von der Untergrundintensität abheben und so eine eindeutige Auswertung erlauben.

Zwei Spaltprodukte erfüllen diese Bedingungen und finden in den weiteren Untersuchungen Verwendung: die beiden Caesium-Isotope 134 und 137 mit Halbwertszeiten von zwei bzw. 30 Jahren und Spaltausbeuten von jeweils ca. 6 %.

Durch einfache Messungen der  $\gamma$ -Aktivitäten mit Ge(Li)-Detektoren und Auswertung der erzeugten Spektren mit Computerprogrammen kann das Caesium-Inventar von zu untersuchenden Proben auf 10 % Genauigkeit bestimmt werden /2/, /3/.

Die Schwermetallinventare der BE werden durch Massen- und alpha-Spektroskopie ermittelt. Das Analyseverfahren zur Bestimmung der Uranisotope U-235, U-236 und U-238 ist die Thermionen-Massenspektroskopie, die Ergebnisse mit einem statistischen Fehler kleiner zwei Prozent liefert /4/.

Der Nachweis des Plutoniums im bestrahlten BE erfolgt durch  $\alpha$ -Spektroskopie. Ein am Institut für Reaktorentwicklung der KFA-Jülich entwickeltes Verfahren zur Herstellung von  $\alpha$ -Präparaten erlaubt in Verbindung mit hochauflösender  $\alpha$ -Spektroskopie die eindeutige Identifizierung der Plutonium-Isotope Pu-238, Pu-239 und Pu-240 im aufgenommenen Spektrum und deren quantitative Auswertung /5/. In Abhängigkeit von Brennstoffzusammensetzung und Bestrahlungsgeschichte schwankt der statistische Fehler für die Auswertung dieser Isotope zwischen drei und 17 %.

Das Verhalten der o.g. experimentell bestimmten Isotope während der Bestrahlzeit wird mit dem Abbrandcode ORIGEN /6/ errechnet. Bei bekannter Bestrahlungsgeschichte der untersuchten Experimente werden an der Wirkungsquerschnittslibrary des Programms Korrekturen vorgenommen, so daß Meßwerte und Rechenergebnisse zum Bestrahlungsende übereinstimmen. Zur Analyse des Verhaltens

der Nuklide im Reaktor wurde das ORIGEN-Programm so erweitert, daß alle Kombinationen zwischen den betrachteten Nukliden bzw. Nuklidverhältnissen berechnet und grafisch dargestellt werden /7/. Die Auswertung der Bilder wird mit dem Ziel vorgenommen, lineare Korrelationen zu ermitteln, die es erlauben, durch  $\gamma$ -Messung von Cs-134 und Cs-137 das Plutonium- und Uran-Inventar bestrahlter Brennelemente abzuschätzen und für unterschiedliche Abbrände vorherzusagen.

Für die Endlagerung ist die Kenntnis des vorhandenen Schwermetallvektors von großem Interesse, da bereits nach ca. 400 Jahren die Aktivität der Aktiniden die der Spaltprodukte übertrifft. Überlegungen gehen deshalb in die Richtung, eine Abtrennung der Aktiniden zu fordern und eine Rezyklierung im Reaktor zu ermöglichen. Für den Betreiber einer Wiederaufbereitungsanlage bedeutet das, daß er für den vorhandenen Materialstrom Bilanzen erstellen muß, um so (auch im Rahmen von Safeguard) genaue Aussagen über das wiederverwertbare Material machen zu können.

Routinemäßige Untersuchungen in WA haben eine große Anzahl von Korrelationsdaten für LWR-BE gebracht, so wurde z.B. ein linearer Zusammenhang zwischen der U-235-Abreicherung und dem Uran/Plutonium-Verhältnis ermittelt /8/, /9/. Über HTR-BE existieren diesbezüglich nur geringe Informationen. Hier werden deswegen an Beispielen von Brennelementen unterschiedlicher Anreicherung und unterschiedlichen Abbrandes lineare Korrelationen für die o.g. Isotope dargestellt und analytisch verifiziert.

## 2. EXPERIMENTELLER TEIL

### 2.1 Auswahl der Bestrahlungsexperimente

Die Entwicklung des HTR-Konzepts erfordert die Untersuchung unterschiedlicher Brennstoffzyklen. Als Auslegungsvarianten stehen Brennelemente mit hochangereichertem, mittel- und niedrigangereichertem Uran zur Diskussion. Für den Thorium-Uran-Brennstoffkreislauf ist hochangereichertes Uran (HEU) als frischer Brennstoff vorgesehen, als zusätzliche Variante mittelanreichertertes Uran (MEU). Neben den HEU- und MEU-Referenzzyklen wird unter dem Aspekt der Proliferation der HTR-Zyklus mit niedrigangereichertem URAN (LEU) untersucht /10/. \*

Im Rahmen dieser Untersuchungen und zur Erprobung geeigneter Brennelemente wurden Bestrahlungsexperimente in verschiedenen Reaktoren durchgeführt mit dem Ziel, das Bestrahlungsverhalten von Coated Particles zu ermitteln, wie z.B. die Rückhaltung fester und gasförmiger Spaltprodukte etc., um zu einer Eingengung der verwendeten Materialien und Varianten für Partikel bzw. Brennelemente zu kommen /11/.

Keines dieser Experimente war dazu ausgelegt, die Zusammensetzung der Brennelemente in Abhängigkeit vom Abbrand zu untersuchen, d.h. Partikel gleicher Anreicherung im Reaktor zu bestrahlen und nach vorher festgelegten Zeitpunkten zu entladen, um so die vorhandenen Mengen bestimmter Spaltprodukte und Schwermetalle zu bestimmen. Solche Vorgehensweise hätte es erlaubt, den Aufbau einzelner Nuklide experimentell zu überwachen. Mangels dieser Möglichkeit wurden Experimente ausgewählt, die sich in folgenden Parametern unterscheiden:

- Anreicherung
- Abbrand
- Bestrahlungszeitraum
- thermischer Neutronenfluß

Diese vier Größen beeinflussen die einzelnen Nuklidkonzentra-

---

\*Die Aussagen gelten für den Zeitraum bis 1978. Marktpolitische Überlegungen haben einen Strategiewandel erforderlich gemacht; für die momentan geplanten HTR-Anlagen sind Partikelvarianten mit niedrig angereichertem Uran vorgesehen.

tionen in unterschiedlicher Art und Weise. Als Parameter in Abbrandrechnungen mit experimenteller Kontrolle der Nuklidzusammensetzung bei Bestrahlungsende, kann so das Verhalten der Nuklide während der Bestrahlung im Reaktor nachvollzogen werden.

Zur Nachrechnung kommen nur solche Experimente in Betracht, bei denen die o.g. Parameter einen möglichst großen Bereich überdecken, und bei denen die Bestrahlungsgeschichte, die Information über diese Parameter beinhaltet, gut dokumentiert ist.

Unter Berücksichtigung dieser Kriterien werden Partikel aus folgenden Bestrahlungsexperimenten ausgewählt:

FRJ2-P16

FRJ2-P18

DR-P4

DR-K5

DR-P6

## 2.2 Beschreibung der Bestrahlungsexperimente

### 2.2.1 DIDO-Experimente

Der FRJ2 (DIDO) ist ein mit Schwerwasser moderierter und gekühlter Forschungsreaktor u.a. für die Bestrahlung von Kernbrennstoffproben in Form von Coated Particles. Bei thermischen und schnellen Neutronenflüssen von  $10^{12}$  bis  $3 \cdot 10^{14} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{sec}^{-1}$  und Fluenzwerten von max.  $10^{22}$  nvt liegen die Bestrahlungstemperaturen zwischen  $500^{\circ}\text{C}$  und  $2000^{\circ}\text{C}$ . Die eingesetzten Brennelemente dürfen bis zu 50 % fima abgebrannt werden und als Bestrahlungspositionen stehen Experimentierkanäle zur Verfügung, die unterschiedliche Bestrahlungsbedingungen gewährleisten /12/, /13/.

Die für die Nachrechnung notwendigen Bestrahlungsdaten sind in Bestrahlungsberichten enthalten. Sie enthalten Angaben über:

- Bestrahlungstemperatur
- thermische und schnelle Fluenz

- Bestrahlungszeitraum mit Abschaltphasen
- Beladungsdaten (Partikelzusammensetzung, Herstellungsverfahren, Beschichtung, U-235-Anreicherung)
- Flußprofile

Die für die ausgewählten Bestrahlungsexperimente FRJ2-P16 und FRJ2-P18 relevanten Daten sind /14/ und /15/ entnommen und in der folgenden Tabelle zusammengestellt:

	Anreicherung %	Abbrand % fima	Bestr.-dauer Tage	therm. Fluß $\text{cm}^{-2} \cdot \text{sec}^{-1}$
FRJ2-P16	11	5.4	207	9.3 E+13
FRJ2-P18	90	27.5	59	1.1 E+14

Tab. 1: Versuchsbedingungen der DIDO-Experimente

## 2.2.2 DRAGON-Experimente

Der DRAGON-Reaktor (Winfrith, England) war ein Helium gekühlter, grafit-moderierter Hochtemperatur-Versuchsreaktor. Ebenso wie bei DIDO-Experimenten wurde in DRAGON-Untersuchungen die Leistungsfähigkeit von Coated Particles getestet, jedoch unter den Bedingungen eines HTR-Spektrums. Es konnten Langzeittests an bis zu 25 Kugel-Brennelementen gleichzeitig durchgeführt werden, die anstelle eines Reaktor-brennelementes eingesetzt waren. Die Versuchsbedingungen konnten weitgehend vom Experimentator vorgegeben werden /16/.

Bei den für diese Arbeit ausgesuchten DRAGON-Bestrahlungsexperimenten handelt es sich um drei Partikel- und ein Kugel-experiment. Die in Tabelle 2 zusammengestellten Daten sind /17/, /18/, /19/, /20/ entnommen.

	Anreicherung %	Abbrand % fima	Bestr.-dauer Tage	therm. Fluß $\text{cm}^{-2} \cdot \text{sec}^{-1}$
DR-K5,21	9.5	4	377	4.2 E+13
DR-P4,34	20	4.6	180	5.2 E+13
DR-P4,11	40	15.5	270	5.8 E+13
DR-P6,A3	90	27.5	124	3.2 E+13

Tab. 2: Versuchsbedingungen der DRAGON-Experimente

Aus den in den Tabellen beschriebenen Bestrahlungsexperimenten stehen Partikel zur Verfügung, an denen Nachuntersuchungen vorgenommen werden, die, in Verbindung mit den in Kapitel 3 durchgeführten Rechnungen, die in der Einleitung definierte Zielsetzung beantworten.

Jeweils fünf Partikel aus jedem Experiment werden  $\gamma$ -spektrometrisch untersucht, und so das Cs-134 und Cs-137 Inventar bestimmt. Von den beiden Partikeln mit den geringsten Unterschieden in der Caesium-Konzentration wird bei einem der Gehalt der Uran-Isotope U-235, U-236 und U-238 massenspektrometrisch analysiert, aus dem zweiten Partikel werden Präparate hergestellt, die durch  $\alpha$ -Spektroskopie eine Bestimmung der Plutonium-Isotope Pu-238, Pu-239 und Pu-240 ermöglichen.

Bei der  $\gamma$ - und Massenspektroskopie handelt es sich um routinemäßige Nachbestrahlungsuntersuchungen. Die  $\alpha$ -Spektroskopie von Präparaten, die mit Hilfe der Laser-Mikro-Bohr-Technik hergestellt werden, ist eine neue Methode zur qualitativen und quantitativen Auswertung von  $\alpha$ -aktiven Aktiniden in bestrahlten Reaktor-Brennstoffen.

Im folgenden Kapitel wird auf die zur  $\alpha$ -Spektroskopie notwendige Präparatherstellung eingegangen, das  $\alpha$ -spektrometrische Meßverfahren beschrieben, und die Auswertung der vorgenommenen Untersuchungen dargestellt.

### 2.3 Nachuntersuchung der Experimente

Bei der Bestrahlung von Kernbrennstoffen im Reaktor entstehen neben den Spaltprodukten eine Reihe von Aktiniden, die durch  $\alpha$ -Zerfall zerfallen. Die Spaltprodukte werden hauptsächlich durch  $\gamma$ -Spektroskopie nachgewiesen /21/, für die Aktiniden bietet sich neben der Massenspektroskopie /22/ und chemischer Analyse /23/ die  $\alpha$ -Spektroskopie an.

Zur Produktion dieser sich durch Neutroneneinfang und radioaktiven Zerfall bildenden  $\alpha$ -Strahler tragen beide Uran-Isotope eines frischen HTR-Partikels bei:

U-235 und seine Nachfolger:

U-235, U-236, Np-237, Pu-238

U-238 und seine Nachfolger:

U-238, Pu-239, Pu-240, Am-241, Am-243, Cm-244

Bei Mischoxidpartikeln sind neben U-235 und U-238 noch Th-232 und seine Nachfolger Emitter von  $\alpha$ -Teilchen:

Th-232, Pa-231, U-232, U-233, U-234 und Th-228, Ra-224, Rn-220, Po-216, Bi-212 als Mitglieder der natürlichen Zerfallsreihe des Th-232.

Zum Nachweis der Nuklide auch innerhalb langer Meßzeiten müssen zwei Voraussetzungen erfüllt sein:

- ausreichende Menge des Nuklids auf dem Präparat
- kurze Halbwertszeit des Nuklids

Nicht alle aufgeführten  $\alpha$ -Strahler erfüllen beide Bedingungen, so daß der  $\alpha$ -spektroskopische Nachweis nicht für alle Isotope gelingt.

### 2.3.1 Alpha-Spektroskopie

Die von den Aktiniden ausgesandten  $\alpha$ -Teilchen haben Energien im Bereich von 4 bis 10 MeV. Bedingt durch hohen Energieverlust der  $\alpha$ -Teilchen bereits in dünnen Schichten, was eine Energieverschiebung und eine Verbreiterung der  $\alpha$ -Linien verursacht, ist die Voraussetzung für den Nachweis der im Partikel vorhandenen Aktiniden die Herstellung von Präparaten mit Flächendichten kleiner  $10 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ . Der in solchen Präparaten auftretende Energieverlust ist vernachlässigbar klein /5/. Zur Anwendung kommt deswegen ein Verfahren, das die Produktion von  $\alpha$ -Präparaten zu der genannten Bedingung erlaubt.

#### 2.3.1.1 Probenherstellung

Die Forderung, aus bestrahlten Partikeln einen definierten, reproduzierbaren Materialanteil zu entnehmen, hat zu der Ent-

wicklung eines speziellen Laser-Systems geführt. Mit der in /24/ beschriebenen Apparatur werden auf eine äquatorial geschliffene und polierte Oberfläche eines Partikels Laser-Impulse fokussiert und so Löcher gebohrt, die in Abhängigkeit von der Impulsenergie unterschiedliche Durchmesser und Tiefen besitzen /25/. Das verdampfende Material wird auf einem Glasplättchen aufgefangen und bildet das zu untersuchende Präparat. Abb. 1 zeigt einen äquatorial geschliffenen Kern eines Coated Particles mit jeweils 5 Löchern am Rand des Kerns, auf dem halben Radius und im Zentrum des Kerns.

### 2.3.1.2 Beschreibung der Anlage

Neben der Herstellung dünner  $\alpha$ -Präparate ist das Vorhandensein guter Halbleiterdetektoren die Voraussetzung hochauflösender  $\alpha$ -Spektroskopie. Weitere Bausteine des  $\alpha$ -Meßstandes sind Vakuumkammer, Verstärker und Vielkanalanalysator.

Die Anordnung der Meßapparatur ist in der Skizze schematisch dargestellt und wird im folgenden kurz beschrieben.

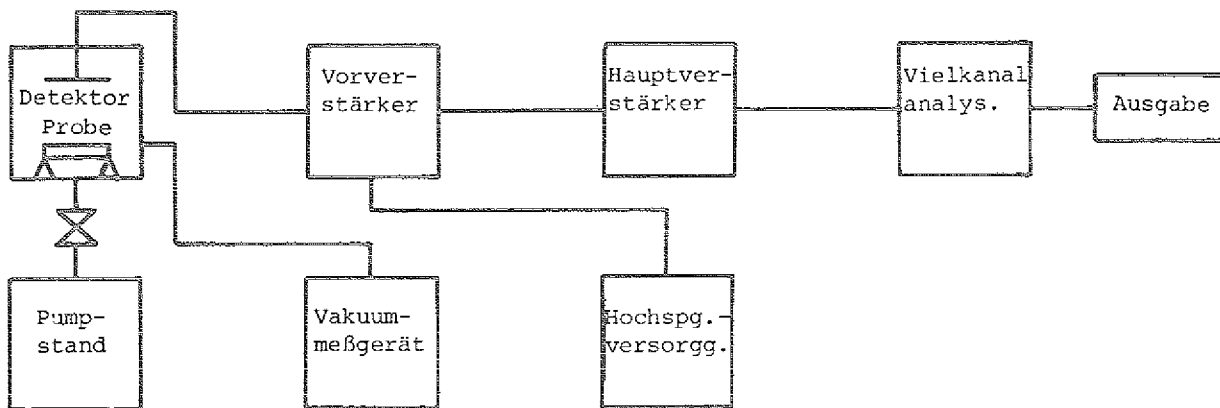


Abb. 2: Schematische Darstellung des  $\alpha$ -Meßstandes

Vakuumkammer mit Pumpstand

Wegen der begrenzten Reichweite von 3-6 cm von  $\alpha$ -Teilchen in Luft und bei Normaldruck /26/ und des dadurch bedingten Energieverlustes, werden alle Messungen im Vakuum durchgeführt.

In der Vakuumkammer ist der Detektor senkrecht über der zu messenden Probe angeordnet. Die Probe liegt auf einem Meßtisch, der vertikal zu verschieben ist, so daß der Abstand zwischen Detektor und Probe stufenlos variiert werden kann.

Für das Betreiben des  $\alpha$ -Meßstandes ist ein ölfreies Hochvakuum erforderlich, um den Zähler sowie das Präparat sauber zu halten. Als Pumpstand, der diese Bedingung erfüllt, wird eine Turbo-Molekularpumpe vom Typ TPU271 mit Vorpumpe UNO 012 A der Firma Balzers eingesetzt, die die Erzeugung eines kohlenwasserstoff-freien Hochvakuums garantiert.

### Halbleiterdetektor

Als Halbleiterdetektor wird ein Silizium-Oberflächen-Sperrschicht-Zähler verwendet. Damit Proportionalität zwischen der Höhe des Ausgangsimpulses und der Einfallenergie des geladenen Teilchens besteht, muß die empfindliche Detektorzone mindestens so tief sein, daß das eingedrungene geladene Teilchen innerhalb dieser Zone vollständig abgebremst wird /27/. Die Dicke der Detektorzone für geladene Teilchen kann dem Diagramm entnommen werden:

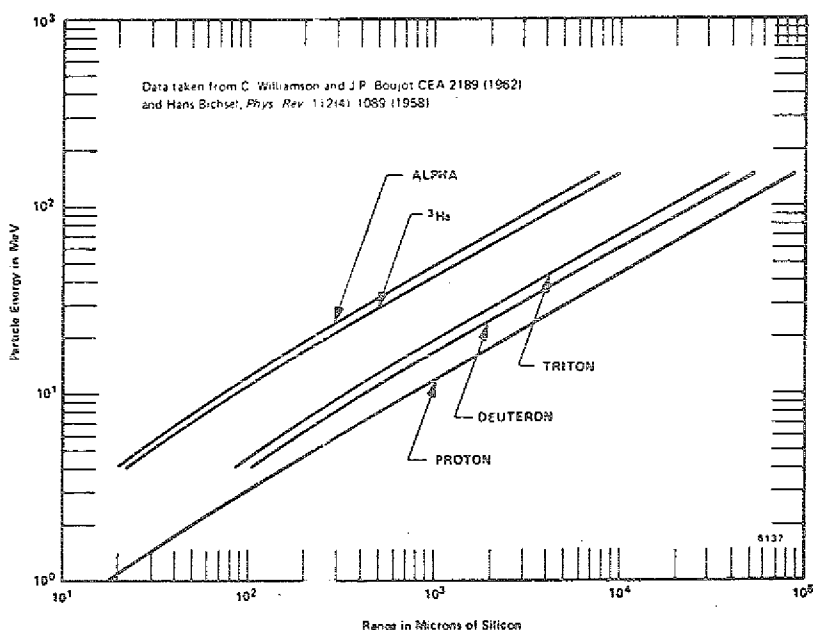


Abb. 3: Eindringtiefe von geladenen Teilchen in Silizium in Abhängigkeit von der Energie der Teilchen /ORTEC Manual/

Die an den Detektor anzulegende Spannung wird aus dem abgebildeten Nomogramm abgelesen:

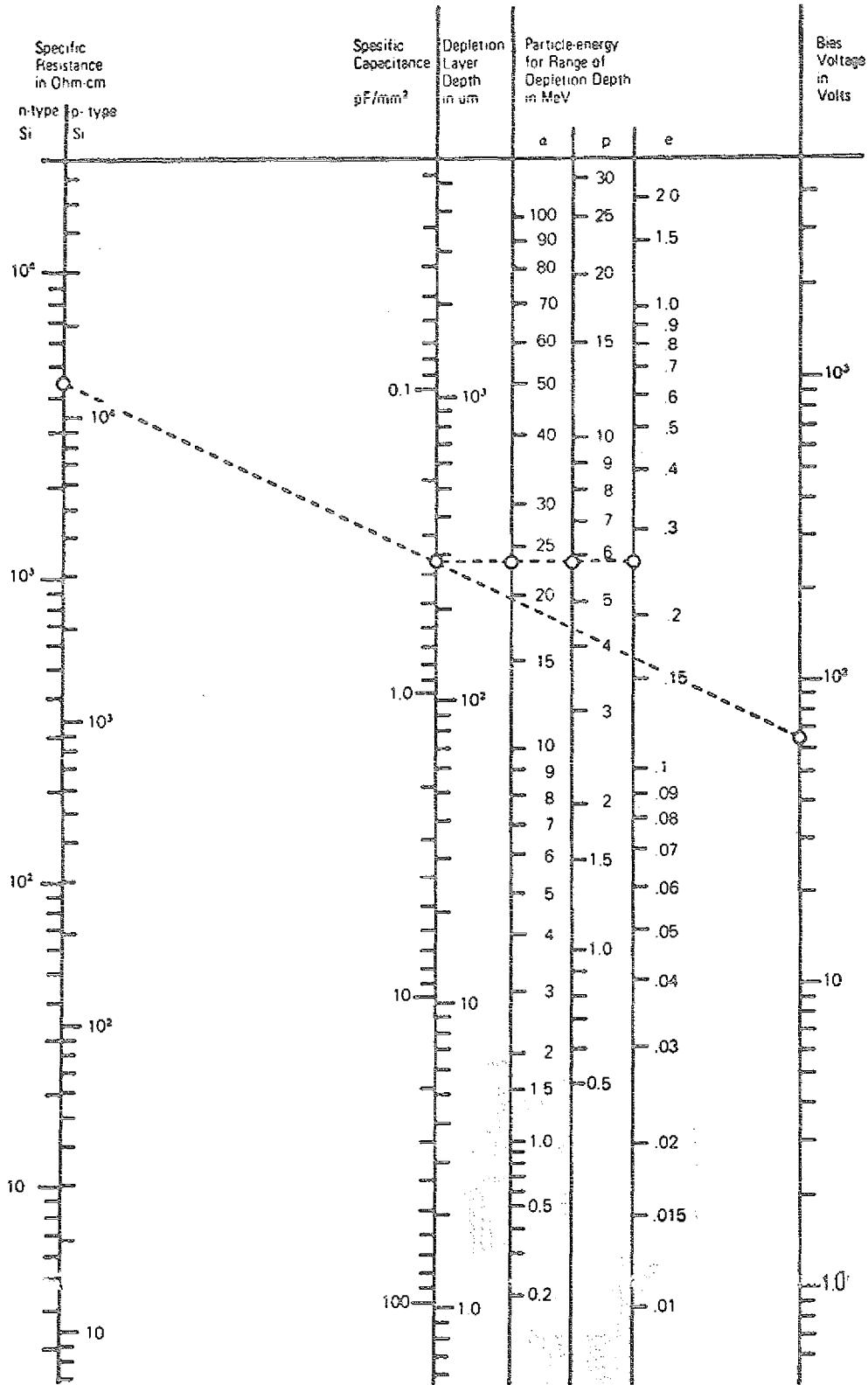


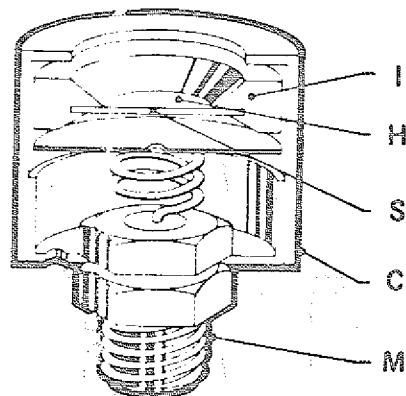
Abb. 4: Nomogramm für Si-Detektoren zur Ermittlung der Detektorspannung

Das Beispiel in der Abbildung (gestrichelte Linie) ergibt für  $\alpha$ -Teilchen mit einer Energie von 23 MeV (oder Protonen mit 6 MeV oder Elektronen mit 250 keV Energie), die eine Eindringtiefe von 290  $\mu\text{m}$  in die Sperrschicht besitzen, für einen Si-Detektor des n-Typs mit einem spezifischen Widerstand von 4500  $\Omega\text{cm}$  (oder p-Typ mit 13000  $\Omega\text{cm}$ ) eine anzulegende Detektorspannung von 63 Volt.

Der eingesetzte Silizium-Oberflächen-Sperrschicht-Zähler des n-Typs hat einen spezifischen Widerstand von 3800  $\Omega\text{cm}$ . Um das spannungsabhängige Vorverstärkerrauschen zu unterdrücken, wurde eine Detektorspannung von 100 Volt gewählt. Damit lassen sich laut Nomogramm  $\alpha$ -Teilchen mit einer Energie von 25 MeV nachweisen. Die erforderliche Dicke der Sperrschicht müßte 320  $\mu\text{m}$  betragen.

Die beim Aktinidenzerfall ausgesandten  $\alpha$ -Teilchen besitzen Energien von maximal 10 MeV. Für den oben beschriebenen Si-Detektor würde das bei einer Eindringtiefe von 70  $\mu\text{m}$  in die Sperrschicht eine Detektorspannung von 5 Volt bedeuten. Die vom Hersteller (Firma ORTEC) garantierte empfindliche Detektorzone von 100  $\mu\text{m}$  Dicke und die angelegte Spannung von 100 Volt lassen erwarten, daß alle auftreffenden  $\alpha$ -Teilchen ein ihrer Einfallenergie proportionales Ausgangssignal erzeugen.

Den Querschnitt eines Oberflächen-Sperrschicht-Zählers zeigt das folgende Bild.



/ORTEC-Manual/

Abb. 5: Querschnitt eines Oberflächen-Sperrschicht-Zählers

Im Keramikring (I) ist die kreisförmige Si-Scheibe (S) befestigt. Die empfindliche Detektorzone (H) ist mit einer dünnen Goldschicht bedampft. Zwischen der metallischen Außenschicht des Keramikringes und dem metallischen Gehäuse (C) besteht eine leitende Verbindung, so daß der Keramikring über das Detekorgehäuse und über den Abschirmteil des Signalsteckers (M) geerdet ist. Die mit Aluminium bedampfte Rückseite des Detektorkristalls ist mit der Mittelelektrode verbunden, über die das Ausgangssignal abgenommen wird.

Die Qualität eines Zählers hängt außer von der Güte des Kristalls noch von der Dicke der aufgedampften Goldschicht ab, die als Frontelektrode dient. Je dünner dieses für  $\alpha$ -Teilchen unempfindliche Eintrittsfenster hergestellt wird, um so geringer ist der Energieverlust, den die  $\alpha$ -Teilchen hier erleiden.

Bei unterschiedlichem Einfallswinkel der  $\alpha$ -Teilchen auf den Zähler ergeben sich Wege unterschiedlicher Länge durch die unempfindliche Schicht, das bedeutet, daß die  $\alpha$ -Teilchen einen von ihrer Einfallrichtung abhängigen Teil ihrer Energie innerhalb dieser Schicht verlieren. Mit geringer werdendem Abstand zwischen der  $\alpha$ -Teilchen aussendenden Quelle und dem Detektor vergrößert sich der Anteil der  $\alpha$ -Teilchen, die einen von ihrem Einfallswinkel abhängigen Energieverlust erleiden. Um das Auflösungsvermögen eines Detektors voll auszunutzen, ist deswegen ein großer Abstand zwischen Quelle und Zähler zu wählen.

#### Vorverstärker und Hauptverstärker

Die dritte zur Spektroskopie benötigte Komponente neben dem Präparat und dem Detektor ist die Impuls-Elektronik, bestehend aus Vor- und Hauptverstärker. Von der Auswahl geeigneter Geräte hängt die Qualität des erzeugten Spektrums entscheidend ab, denn das Rauschen der Elektronik führt zur Linienverbreiterung im Spektrum, d.h. zur Verschlechterung der Energieauflösung.

Der Vorverstärker ist für das Rauschen des Gesamtsystems verantwortlich. Seine Aufgabe besteht darin, einen dem im Detektor erzeugten Ladungsimpuls proportionalen Spannungsimpuls zur Verfügung zu stellen. Zur Verminderung des Rauschens werden Feld-

effekttransistor bestückte Vorverstärker verwendet, deren Signal-Rausch-Verhältnis noch das von Röhrenverstärkern übertrifft /27/.

An den Vorverstärker schließt sich der Hauptverstärker an. Hier werden die vom Vorverstärker gelieferten Spannungsimpulse über Differentiator und Integrator in dem Eingangssignal proportionale Impulse umgewandelt. Durch die Wahl geeigneter Differentiations- und Integrationszeitkonstanten läßt sich das Verstärkerrauschen weitgehend unterdrücken. Durch diese Impulsformung wird das Signal-Rausch-Verhältnis weiter verbessert.

#### Vielkanalanalysator

Die so erzeugten und verstärkten Impulse werden dem Vielkanalanalysator zugeführt. Das Kernstück des Gerätes ist der Analog-Digital-Wandler, der die Eingangsimpulse nach ihrer Höhe sortiert und ihnen Kanäle zuweist, so daß ein sogenanntes Impulshöhen-Diagramm entsteht. Wird die x-Achse nach Energie geeicht, so läßt sich aus dem Diagramm entnehmen, welche Energie den gebildeten peaks zuzuordnen ist. In dem Impulshöhen-Diagramm läßt sich ebenfalls anhand der Eichung eine Identifizierung der  $\alpha$ -Strahler vornehmen, da die  $\alpha$ -Energien und die Intensitätsverhältnisse der Energien für einzelne Nuklide charakteristisch sind.

### 2.3.1.3 Durchführung und Auswertung der Messungen

#### 2.3.1.3.1 Eichung

Die Eichung des  $\alpha$ -Meßstandes wird mit einem Am-241 Eichpräparat durchgeführt. Sie dient dazu, das Auflösungsvermögen der Meßanordnung zu überprüfen und einen optimalen Abstand zwischen Zähler und Präparat zu ermitteln, d.h., es wird der Abstand gesucht, der eine minimale Meßzeit erlaubt, ohne das Auflösungsvermögen herabzusetzen.

Mit zunehmendem Abstand Präparat-Zähler verbessert sich zwar das Auflösungsvermögen wie in 2.3.1.2 beschrieben, die Anzahl der vom Zähler registrierten Teilchen pro Zeiteinheit ver-

ringert sich aber, da die Zähleroberfläche einen kleineren Teil des Raumwinkels erfaßt, in den das Präparat die Teilchen aussendet. Die Meßzeit muß, um den gleichen statistischen Fehler wie bei kleinem Abstand Präparat-Zähler zu erhalten, verlängert werden.

In Tabelle 3 sind in Abhängigkeit vom Abstand Präparat-Zähler folgende Größen aufgeführt:

- die Meßzeit ( $t$ ) bei Normierung der registrierten Ereignissen auf 10000
- die Zählrate ( $\Omega$ ) als das Verhältnis von registrierten Teilchen pro Zeiteinheit zu den von der Eichquelle ausgesandten Teilchen pro Zeiteinheit
- das Auflösungsvermögen ( $A$ ) in %, definiert als das Verhältnis aus Halbwertsbreite und Maximalenergie der jeweils betrachteten Linie

Die Eichversuche wurden an der oben beschriebenen Anlage durchgeführt. Als Detektor wurde ein Silizium-Oberflächen-Sperrschicht-Zähler eingesetzt mit einer Fläche von  $450 \text{ mm}^2$  und einem Auflösungsvermögen von 25 keV. Die in der Tabelle 3 dargestellten Versuchsergebnisse sind /28/ entnommen.

Abstand Zähler Präparat (mm)	registrierte Ereignisse	Meßzeit t (sec)	Zählrate $\Omega$ (%)	Auflösungs- vermögen A (%)
4	10000	10,5	91,6	0,87
9		18,6	52,3	0,61
14		29,3	33	0,5
19		47	20,6	0,44
24		71,5	13,5	0,45
29		100	9,7	0,42
34		131	7,4	0,44
39		172	5,6	0,43
44		212	4,6	0,42
49		268	3,6	0,43
54		326	3	0,40
59		389	2,5	0,43
64		447	2,2	0,41

Tab. 3: Ergebnisse der Eichmessungen mit einem Am-241 Eichpräparat

Die Bestimmung der Halbwertsbreite erfolgt mit Hilfe eines Pulsers (siehe Abb. 6). Die erzeugten Impulse werden auf die Hauptlinie des Eichspektrums (5,486 MeV in Kanal 1235) gesetzt; sodann wird die Impulsenergie halbiert. Der 2,743 MeV-peak liegt in Kanal 566,5, womit sich 4,1 keV pro Kanal ergeben. In dem gezeigten Beispiel in Abbildung 6 beträgt die Halbwertsbreite der Hauptlinie 22,5 keV.

Die Abhängigkeit des Auflösungsvermögens vom Abstand Präparat-Zähler ist in Abb. 7 grafisch aufgetragen. Es ist ersichtlich,

daß für den beschriebenen Zähler eine Vergrößerung des Meßabstandes über 24 mm hinaus keine Erhöhung des Auflösungsvermögens bringt. Bei gleicher Anzahl der registrierten Ereignisse ergibt sich aber eine Verkürzung der Meßzeit um ca. 68 %, wenn der Abstand Präparat-Zähler von 64 auf 24 mm reduziert wird. In Abbildung 8 ist gezeigt, wie sich die Verringerung des Meßabstandes auf die Form des erzeugten Spektrums auswirkt. Die Anzahl der registrierten Ereignisse beträgt jeweils ca. 10000.

Die durchgeführten Meßreihen ergeben, daß der optimale Abstand zwischen Präparat und Zähler der Größe des Detektordurchmessers entspricht.

### 2.3.1.3.2 Ermittlung der Materialverteilung auf dem $\alpha$ -Präparat

Von einem bestrahlten Partikelkern wurde die Masse von fünf Lasergebohrten Löchern auf einem Glasplättchen aufgefangen. Durch Vergleich der Cs-137  $\gamma$ -Aktivitäten des ganzen Kerns mit der des Präparates von  $9,9 \text{ E} + 1 \text{ } \mu\text{Ci}$  bzw.  $7,5 \text{ E} - 2 \text{ } \mu\text{Ci}$  und unter der Voraussetzung, daß die Masse des Kerns vor und nach Bestrahlung identisch ist, berechnet sich die auf das Glasplättchen aufgedampfte Masse zu  $2,36 \text{ E} - 1 \text{ } \mu\text{g}$ .

Mit der in der folgenden Abbildung skizzierten Vorrichtung wurde die Verteilung dieser Masse auf dem Glasplättchen ausgemessen.

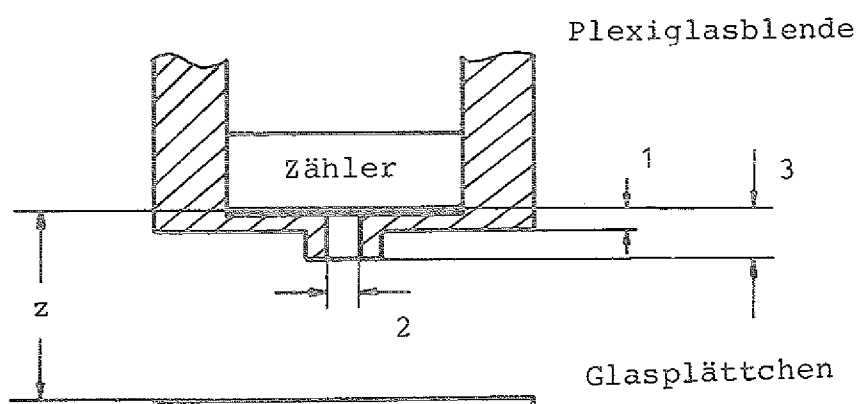


Abb. 9: Meßvorrichtung zur Bestimmung der Massenverteilung auf einem durch Laser-Mikro-Bohren hergestellten Präparat

Das Glasplättchen kann auf einem Meßtisch in x- und y-Richtung in definierte Positionen gebracht werden. Die Höhenverstellung in z-Richtung ermöglicht, bedingt durch die Geometrie der Plexiglasblende, den auszumessenden Sektor auf dem Glasplättchen vorzugeben.

Bei einem Abstand von 6 mm zwischen Präparat und Zähler ergeben sich für das 9 cm<sup>2</sup> große quadratische Glasplättchen insgesamt 25 Regionen mit auszumessenden Kreisflächen von je 6 mm Durchmesser. Für jede Messung wird die Peakhöhe der stärksten  $\alpha$ -Linie auf dem Display eines Vielkanalanalysators ausgewertet. Abbildung 10 zeigt den Vergleich der Messungen. Die Zahlenwerte stellen eine der gemessenen Aktivität proportionale Größe dar.

0.05	0.15	0.1	0.1	0.1
0.05	0.3	0.4	0.3	0.2
0.2	0.25	4.4	0.4	0.2
0.1	0.35	0.4	0.4	0.15
0.05	0.2	0.1	0.1	0.05

Abb. 10:  $\alpha$ -Aktivität der Materialverteilung eines Laser-Präparates

Für die zweidimensionale Darstellung errechnen sich aus der gemessenen  $\alpha$ -Aktivität (Abb. 10) die folgenden Koordinaten:

x	0	0.6	0.85	1.2	1.34	1.7
y	4.4	0.36	0.34	0.15	0.13	0.06

Abb. 11: Koordinaten für die x-, y-Darstellung der  $\alpha$ -Aktivität eines Laser-Präparates

In Abbildung 12 ist die Materialverteilung eines durch Laser-Mikro-Bohren hergestellten Präparates ermittelt durch Messung der  $\alpha$ -Aktivität, dargestellt. Die aufgetragene Kurve läßt sich analytisch durch die Summe einer e-Funktion und einer Kosinusfunktion beschreiben:

$$\begin{aligned}
 y_1 &= A \cdot \cos^3 Bx \\
 y_2 &= C \cdot \exp\left(-\frac{x^2}{2\sigma^2}\right) \\
 y &= y_1 + y_2 = A \cdot \cos^3 Bx + C \cdot \exp\left(-\frac{x^2}{2\sigma^2}\right)
 \end{aligned}
 \tag{Gl. 1}$$

Für die Kosinusfunktion ergibt sich mit den Koordinaten (1,7/0,06) und (1,2/0,15) die Gleichung:

$$y_1 = 0,31 \cos^3 \cdot \frac{\pi}{5,66} x
 \tag{Gl. 2}$$

Aus der Summenkurve an der Stelle  $x = 0$  berechnet sich die Konstante C und mit diesem Wert die Standardabweichung  $\sigma$ , so daß für die e-Funktion gilt:

$$y_2 = 4,09 \cdot \exp\left(-\frac{x^2}{0,098}\right)
 \tag{Gl. 3}$$

In Abbildung 13 sind die Abzissenwerte der analytischen Funktionen denen der experimentell ermittelten gegenübergestellt und die prozentuale Abweichung eingetragen:

x	0	0.6	0.85	1.2	1.34	1.7
$y_{\text{exp.}}$	4.4	0.36	0.34	0.15	0.13	0.06
$y_{\text{anal.}}$	4.4	0.36	0.22	0.15	0.12	0.06
Fehler %	0	0	35	0	6.3	0

Abb. 13: Abzissenwerte der Verteilungsfunktion, experimentell und analytisch ermittelt

Der Vergleich der Koordinaten zeigt, daß die gemessene Funktion in guter Näherung durch die oben beschriebene Summenfunktion dargestellt werden kann.

Um ausreichenden Materialabtrag von einer zu untersuchenden Probe zu erhalten, wird eine größere Anzahl Laser-Impulse auf die gleiche Stelle appliziert. Die ersten Impulse treffen auf eine plan-geschliffene Fläche und verursachen eine Muldenbildung; das bedeutet, daß das verdampfende Material sich zunächst über einen Raumwinkel von annähernd  $180^\circ$  verteilt. Mit zunehmender Impulszahl vertieft sich das Bohrloch rasch, so daß, bedingt durch den "Self-Channeling-Effekt" /25/, das abzutragende Material gerichtet aus dem Bohrloch geschleudert wird und sich auf ein immer kleiner werdendes Gebiet des Glasplättchens niederschlägt.

Aus der analytischen Beschreibung der Verteilungsfunktion wird das Volumen des aus der Probe verdampften Materials berechnet. Die Tatsache, daß ein Teil des Materials sich über einen Raumwinkel von  $180^\circ$  verteilt wird dadurch berücksichtigt, daß in Gleichung 1 die e-Funktion in den Grenzen von 0 bis  $\infty$  integriert wird. Eine Iteration der Gleichung ergibt, daß 95 % des verdampften Materials sich auf dem Glasplättchen befinden /29/.

#### 2.3.1.3.3 Aufnahme der Spektren

Die im bestrahlten Kernbrennstoff in unterschiedlichen Konzentrationen vorhandenen Aktiniden besitzen, vor allem bedingt durch ihre unterschiedlichen Halbwertszeiten,  $\alpha$ -Aktivitäten, die sich um Größenordnungen unterscheiden. Bei nur geringer Aktivität senden die Aktiniden nicht genügend Teilchen aus, um einen sich deutlich vom Untergrund abhebenden Peak zu erzeugen, oder um eine eigene Linie im Spektrum eines Nuklids mit größerer Aktivität zu bilden.

Eine Abschätzung über die Nachweismöglichkeit durch  $\alpha$ -Spektroskopie für die vorhandenen  $\alpha$ -Strahler (siehe Kap. 2.3) bringt

ein Vergleich ihrer spezifischen Aktivitäten.

Nuklid $T_{1/2}$	Energie (MeV)	Intensität (%)	spez. Aktiv. (1g)
U-235 7,04 E+8 Y	4,217	5,7	2,3
	4,325	4,6	2,2
	4,364	11	2,6
	4,370	6	2,3
	4,396	55	3,3
	4,556	4,2	2,2
	4,598	5	2,2
U-236 2,34 E+7 Y	4,445	26	4,4
	4,494	74	4,9
Np-237 2,14 E+6 Y	4,638	6,18	4,8
	4,663	3,32	4,6
	4,766	16,9	5,3
	4,771	19,4	5,3
	4,788	51,3	5,8
Pu-238 87,7 Y	5,456	28,3	9,9
	5,499	71,6	10,3
Pu-239 24104 Y	5,105	11,5	7,1
	5,143	15,1	7,2
	5,155	73,3	7,9
Pu-240 6569 Y	5,123	26,5	8,0
	5,168	73,4	8,4
Am-241 432,2 Y	5,443	12,8	8,8
	5,486	85,2	9,7

Nuklid $T_{1/2}$	Energie (MeV)	Intensität (%)	spez. Aktiv. (1g)
Am-243	5,233	10,7	7,5
7380 Y	5,275	87,8	8,4
Cm-244	5,763	23,6	10,5
18,1 Y	5,806	76,4	11,0
Th-232	3,953	23	1,6
1,4 E+10 Y	4,010	77	2,1
Pa-231	4,736	8,4	6,8
	4,950	22,8	7,2
32760 Y	5,011	25,4	7,3
	5,028	20,0	7,2
	5,057	11	6,9
U-232	5,263	31,7	10,0
71,7 Y	5,320	68	10,4
U-233	4,783	13,2	6,3
1,59 E+5 Y	4,824	84,4	7,1
U-234	4,724	27,5	6,4
2,45 E+5 Y	4,776	72,5	6,9
Th-228	5,339	27	11,6
1,91 Y	5,423	72,4	12,0
Ra-224	5,445	5	13,1
3,67 d	5,685	95	14,4
Rn-220	6,288	99,9	18,2
55,6 s			

Nuklid $T_{1/2}$	Energie (MeV)	Intensität (%)	spez. Aktiv. (lg)
Po-216 150 ms	6,778	100	23,1
U-238	4,147	23	2,1
4,47 E+9 Y	4,196	77	2,6

Tab.4: Spezifische Aktivitäten der im bestrahlten Kernbrennstoff enthaltenen Nuklide

Die Aktivitäten sind für 100 %-ige Anreicherung der einzelnen Nuklide berechnet. Zu entnehmen ist der Tabelle, daß z.B. die U-234 Linie mit 27,5 % Häufigkeit eine höhere spezifische Aktivität besitzt als die Hauptlinie des U-236 mit einer Häufigkeit von 74 %. Erst bei einer 36-fachen Menge des U-236 im Präparat würden beide Linien im Spektrum gleich stark erscheinen. Trotz eines hohen Anteils im Präparat wird der Nachweis aller vorhandenen Nuklide  $\alpha$ -spektroskopisch nicht gelingen.

Auch ist eine unbegrenzte Verlängerung der Meßzeit nicht möglich, da einerseits die Untergrundintensität ebenfalls ansteigt, andererseits die maximale Peakhöhe des aufzuzeichnenden Spektrums durch den zur Verfügung stehenden Speicherplatz der Rechenanlage begrenzt ist.

Die vorbereiteten Präparate wurden zwischen 3 und 14 Tagen gemessen. Ein Vergleich der Lage und der Breite der einzelnen Linien innerhalb kurzer Zeitabstände (1/2 Tag) ergab keine Veränderung während der Meßzeit, so daß das Summenspektrum der gesamten Meßzeit ausgewertet werden konnte.

#### 2.3.1.3.4 Auswertung der Spektren

Am Beispiel je einer Probe aus einem Mischoxidkern (Anreicherung: 93 %, Th-232: U-235 = 5) und einem niedrig angereicherten Kern (9,5 %) wird die Auswertung der  $\alpha$ -Spektren gezeigt.

Nach Meßzeiten von 14 bzw. 6,6 Tagen wurden die in Abbildung 14 und 15 dargestellten Spektren aufgezeichnet.

Zum Identifizieren der erzeugten Peaks muß die Zusammensetzung des frischen Brennelements bekannt sein. Anhand der Nuklidkarte /30/ kann verfolgt werden, welche Nuklide durch Neutroneneinfang oder radioaktiven Zerfall während der Bestrahlung gebildet werden und demnach im  $\alpha$ -Präparat vorhanden sein müssen.

Eine  $\alpha$ -Energietabelle /31/ gibt die Intensitätsverhältnisse der einzelnen Linien jedes Nuklids an. Mit der durch die Eichung (Kap. 2.3.1.3.1) ermittelte Kanal-Energie-Zuordnung kann so für jeden Peak die Anzahl der tatsächlich vorhandenen Linien bestimmt werden.

Zum Auswerten der Spektren stehen die beiden Rechenprogramme SAMPO /32/ und ALFUN /33/ zur Verfügung.

1. SAMPO ist ein interaktiv arbeitendes Programm, bei dem an einem Graphic-Terminal das  $\alpha$ -Spektrum stückweise analysiert wird.

Zunächst werden zwei Singlet-Peaks zur Eichung des Spektrums ausgewählt. Durch diese beiden Peaks sind Energieeichung und Peakparameter (Halbwertsbreite und Gauss-Tail) festgelegt. In jedem zu untersuchenden Teilspektrum wird nun die Anzahl der vorhandenen Peaks durch Markierung des Peak-Anfangs und -Endes bestimmt.

SAMPO löst das Spektrum nun so auf, daß die Summe der Einzelpeaks das gemessene  $\alpha$ -Spektrum ergibt. Die richtige Analyse ist dann gefunden, wenn außer dem Summenspektrum auch die Energien und Intensitätsverhältnisse der einzelnen Peaks korrekt berechnet werden.

Dies sei an zwei Beispielen gezeigt. Im Bereich von 4,7-5 MeV des in Bild 14 gezeigten Spektrums befinden sich augenscheinlich nur zwei Peaks. Eine Analyse mit zwei Peaks ergibt (Abb. 16):

	Energie in keV	Area
Peak 1	4780,7	815
Peak 2	4823,8	2923

Für den genannten Bereich weist die  $\alpha$ -Energietabelle folgende Nuklide auf (Energie, Intensität):

U-234:	4776 keV	72,5 %
U-233:	4783 keV	13,2 %
U-233:	4824 keV	84,4 %

Die Berechnung der Intensitätsverhältnisse der von SAMPO ermittelten Peaks ergibt für Peak 1 21,8 % und für Peak 2 78,2 %.

Eine Übereinstimmung mit den Werten aus der Literatur ist nicht gegeben.

Werden dem oben genannten Energiebereich 3 Peaks zugeordnet, sieht die Analyse mittels SAMPO folgendermaßen aus (Abb. 17):

	Energie in keV	Area
Peak 1	4775,5	255
Peak 2	4782,7	563
Peak 3	4824,0	2991

Energie und Intensitätsverhältnisse (für Peak 2 und Peak 3 15,7 % bzw. 81,9 %) entsprechen den aus der Literatur bekannten Werten, das Summenspektrum hat die Form des gemessenen  $\alpha$ -Spektrums.

Das zweite Beispiel zeigt die Analyse der Pu-238, Am-241 Linien aus Abb. 15. Es gelingt die saubere Trennung in vier Einzelpeaks (Abb. 18) mit folgenden Energien und Intensitätsverhältnissen, in Klammern die Literaturwerte:

Am-241:	5443,9 (5443) keV	16 (12,8) %
Pu-238:	5456,5 (5456) keV	28,6 (28,3) %

Am-241:	5485,2	(5486) keV	84	(85,2) %
Pu-238:	5498,9	(5499) keV	71,4	(71,6) %

2. Im Gegensatz zu SAMPO bietet ALFUN nicht die Möglichkeit, für einen Energiebereich eine feste Anzahl Peaks vorzugeben. ALFUN sucht die Peaks selbständig und berechnet für jeden ermittelten Peak die zugehörige Energie, die Peakhöhe und -fläche, sowie einen Fehler, der prozentual die Differenz zwischen Meßdaten und Fittspektrum angibt. Dazu werden die Peakparameter Halbwertsbreite, HTAIL und DECAY ebenso wie die Kanal-Energie-Zuordnung als Inputgrößen angegeben (HTAIL und DECAY sind Faktoren, die die Abweichung in der Kurvenform des gemessenen Spektrums von einem rein gaussförmigen Peak berücksichtigen).

Das selbständige Ermitteln der Peakanzahl führt dazu, daß ALFUN weit mehr Peaks findet, als im Spektrum tatsächlich vorhanden, z.B. wird jede statistische Schwankung des Untergrunds als Peak definiert.

Die Ergebnisse der ALFUN-Analysen für die ausgewählten Energiebereiche (4,7-5 MeV, bzw. 5,4-5,5 MeV) zeigen die beiden Ausrisse aus den entsprechenden ALFUN-Outputs:

	FWHM=	4.500 ( 4.50)	HTAIL=	0.2275 ( 0.158)	DECAY=	0.507 ( 0.70)
KAN	0	CHANNEL	ENERGY	PKHT	PKCNT	-ERRDR
	1	367.8+- 1.4	4652.1+- 4.8	16.0	91.2	41.0
	2	371.0+- 2.5	4673.0+- 8.5	7.4	42.3	83.7
	3	375.2+- 1.2	4687.2+- 4.0	12.1	69.3	41.0
	4	376.5+- 1.6	4691.4+- 5.3	8.7	50.0	55.9
	5	381.2+- 1.7	4707.2+- 5.6	10.2	58.7	53.5
	6	385.7+- 0.8	4722.3+- 2.4	36.1	207.4	25.5
	7	388.9+- 0.8	4733.2+- 2.8	26.9	154.2	30.5
	8	394.4+- 2.8	4751.5+- 9.5	9.9	56.8	91.7
	9	397.4+- 4.5	4761.7+-15.2	10.1	57.8	139.1
	10	400.1+- 3.7	4770.6+-12.5	14.8	84.8	124.1
	11	403.3+- 0.3	4781.2+- 1.2	148.6	852.6	13.1
	12	405.3+- 5.2	4788.2+-17.4	8.7	49.6	188.7
	13	416.2+- 0.2	4824.8+- 0.7	553.5	3204.4	9.7
	14	424.5+- 2.1	4852.6+- 7.0	14.8	84.6	59.9
	15	425.4+-33.5	4855.6+-****	0.9	5.0	1086.8
	16	429.2+- 1.4	4870.5+- 4.6	18.3	104.8	48.1

Tab. 5: ALFUN-Analyse für den Energiebereich 4,7 bis 5 MeV

```

SERJ2-P15 COUP 023 3X ZENTRUM T: 157 H 38 MIN ZAEHLER: 300,100,20 (PGT)
FIT= 7.41 SP.
FWHM= 5.550 ( 5.55) HTAIL= 0.0576 ( 0.072) DECAY= 0.625 ( 0.50)
0
0 CHANNEL ENERGY PKHT PKCNT -ERROR
1 552.6+- 1.1 5392.5+- 3.9 896.7 5694.7 23.3
2 556.2+- 9.2 5405.3+-33.0 84.2 538.5 258.5
3 560.4+- 0.9 5420.6+- 3.3 1108.5 7040.0 26.6
SAM 4 567.2+- 0.1 5444.7+- 0.5 17220.4 109366.4 4.7
5 575.0+- 0.2 5472.3+- 3.0 4751.3 30238.7 24.7
6 579.5+- 0.1 5489.0+- 0.5 42643.9 270831.4 5.0
7 590.5+- 1.2 5528.4+- 4.4 477.9 3035.5 34.0
8 597.5+- 1.0 5553.5+- 3.5 551.5 3566.1 26.1
0
*** COMMAND *** END 0 0 0 0 0 0

```

Tab. 6: ALFUN-Analyse für den Energiebereich von 5,4 bis 5,6 MeV

Tabelle 5 zeigt, daß die Hauptlinie des U-233 gefunden wird. Die Trennung der U-233 Nebenlinie (4,783 MeV) von der U-234 Hauptlinie (4,776 MeV) gelingt nicht. Die Fläche des U-233 Peaks bei 4,824 MeV zeigt gute Übereinstimmung mit dem durch SAMPO ermittelten Wert.

Eine Trennung von Doppelpeaks, deren Linienabstand kleiner ist als die doppelte Halbwertsbreite eines Peaks, ist nicht möglich. Eine Auflösung des Energiebereiches 5,4-5,6 MeV in vier Einzelpeaks (wie bei SAMPO, Abb. 18) gelingt nicht. Aus den gefundenen Linien können keine Nuklide identifiziert werden. Weder in den Energien noch in den zugehörigen Intensitäten gibt es eine Übereinstimmung mit bekannten  $\alpha$ -Energien.

In den beiden folgenden Tabellen sind die SAMPO- und ALFUN-Analysen der in den Abbildungen 14 und 15 gezeigten Spektren gegenübergestellt. Die Abbildungen 19 bis 29 zeigen die zugehörigen SAMPO-Plots.

Literatur /31/			SAMPO			ALFUN		
Nuklid	Energie(keV)	Intens.(%)	Energie(keV)	Area	Intens.(%)	Energie (keV)	Area	Intens.(%)
U-234	4776	72,5	4775,5	255	-	-	-	-
U-233	4783	13,4	4782,7	563	15,7	-	-	-
U-233	4824	84,4	4824,0	2991	81,9	4823,8	3204	-
Pu-239	5105	11,5	5103,4	65	10,1	-	-	-
Pu-240	5123	26,5	5125,9	160	27,6	-	-	-
Pu-239	5143	15,1	5143,7	123	19,1	-	-	-
Pu-239	5155	73,3	5159,5	457	70,8	-	-	-
Pu-240	5168	73,4	5170,2	420	72,4	-	-	-
U-232	5263	31,7	5264,8	958	28,4	5263,7	1134	30,4
U-232	5320	68,0	5320,6	2416	71,6	5320,4	2605	69,6
Pu-238	5456	28,3	5456,6	72624	29,2	5455,6	70100	29,1
Pu-238	5499	71,6	5499,0	176429	70,8	5497,6	171087	70,9
Ra-224	5685	95,0	5685,8	1875	-	5685,1	1850	-
Cm-244	5763	23,6	5764,4	3308	24,2	5764,3	3210	24,2
Cm-244	5806	76,4	5806,2	10344	75,8	5806,4	10092	75,8
Rn-220	6288	99,9	6287,5	1564	-	6389,1	1520	-
Po-216	6778	100	6778,1	1684	-	6777,9	1358	-

Tab. 7: Gegenüberstellung der SAMPO-ALFUN-Analyse des  $\alpha$ -Spektrums eines Mischoxidpartikels

Literatur			SAMPO			ALFUN		
Nuklid	Energie(keV)	Intens.(%)	Energie(keV)	Area	Intens.(%)	Energie(keV)	Area	Intens.(%)
Pu-239	5105	11,5	5105,2	1842	13,2	-	-	-
Pu-240	5123	26,5	5123,4	5650	26,4	-	-	-
Pu-239	5143	15,1	5141,1	2140	15,3	-	-	-
Pu-239	5155	73,3	5154,6	9978	71,5	-	-	-
Pu-240	5168	73,4	5167,4	15786	73,6	-	-	-
Am-243	5233	10,7	5232,4	567	12,2	-	-	-
Am-243	5275	87,8	5274,7	4062	87,8	-	-	-
Am-241	5443	12,8	5443,9	7106	16,0	-	-	-
Pu-238	5456	28,3	5456,5	103228	28,6	-	-	-
Am-241	5486	85,2	5485,2	37347	84,0	-	-	-
Pu-238	5499	71,6	5498,9	258210	71,4	-	-	-
Cm-244	5763	23,6	5763,6	207559	23,7	5764,6	197260	23,1
Cm-244	5806	76,4	5806,3	668960	76,3	5807,1	656400	76,9
Cm-242	6070	25,9	6070,6	1076	28,1	6072,0	1041	27,0
Cm-242	6113	74,1	6114,2	2750	71,9	6113,5	2808	73,0

Tab. 8: Gegenüberstellung der SAMPO-ALFUN-Analyse des  $\alpha$ -Spektrums eines niedrig angereicherten Partikels

Zur quantitativen Bestimmung der  $\alpha$ -Aktivitäten der ermittelten Nuklide wurde das Spektrum einer Am-241 Eichquelle aufgenommen (Abb. 30). Bei einer Meßzeit von 7218 sec entsprechen der Aktivität von 0,0817  $\mu$ Ci insgesamt 421157 registrierte Ereignisse. Daraus berechnet sich die Aktivität jedes Nuklids im Präparat, und durch Vergleich der Cs-137  $\gamma$ -Aktivität des ganzen Kerns mit der des Präparates werden die Konzentrationen der  $\alpha$ -Emitter im bestrahlten Partikel bestimmt.

Für das Mischoxidpartikel bzw. den niedrig angereicherten Kern ergeben sich folgende Werte:

Nuklide	Fläche	Aktivität ( $\mu$ Ci)		Masse (Mol)
		Präparat	Kern	Kern
U-234	352	7,8 E-7	8,2 E-3	5,6 E-9
U-233	3576	7,9 E-6	8,3 E-2	3,7 E-8
Pu-239	646	1,4 E-6	1,5 E-2	1,0 E-9
Pu-240	581	1,3 E-6	1,4 E-2	2,6 E-10
U-232	3384	7,5 E-6	7,8 E-2	1,6 E-11
Pu-238	249302	5,5 E-4	5,8 E 0	1,4 E-9
Ra-224	1884	4,2 E-6	4,4 E-2	1,2 E-15
Cm-244	13652	3,0 E-5	3,2 E-1	1,6 E-11
Rn-220	1566	3,5 E-6	3,6 E-2	1,8 E-19
Po-216	1684	3,7 E-6	3,9 E-2	5,2 E-22
Cs-137		1,0 E-2	1,1 E+2	

Tab. 9:  $\alpha$ -spektroskopisch gemessenes Inventar eines bestrahlten Mischoxidpartikels aus DR-K4

Nuklid	Fläche	Aktivität ( $\mu\text{Ci}$ )		Masse (Mol)
		Präparat	Kern	Kern
Pu-239	14030	2,9 E-5	1,0 E 0	6,9 E-8
Pu-240	21436	4,5 E-5	1,5 E 0	2,9 E-8
Am-243	4629	9,7 E-6	3,3 E-1	7,1 E-9
Am-241	44453	9,3 E-5	3,2 E 0	3,9 E-9
Pu-238	361438	7,5 E-4	2,6 E+1	7,2 E-9
Cm-244	876519	1,8 E-3	6,3 E+1	3,2 E-9
Cm-242	3846	8,0 E-6	2,8 E-1	3,5 E-13
Cs-137		8,3 E-3	2,9 E+2	

Tab. 10:  $\alpha$ -spektroskopisch gemessenes Inventar eines bestrahlten Kerns mit niedrig angereichertem Uran (aus FRJ2-P15)

Der Nachweis der restlichen im Partikel vorhandenen  $\alpha$ -Strahler (siehe Tab. 4, Kap. 2.3.1.3.3) gelingt  $\alpha$ -spektroskopisch nicht. Obwohl der Massenanteil des U-235 über dem der anderen Uran-nuklide liegt (für den Mischoxidern: U-235 : 1,4 E-3  $\mu\text{g}$ , U-234: 1,3 E-4  $\mu\text{g}$ ) ergibt sich wegen der langen Halbwertszeit von 7,04 E+8 Jahren nur eine  $\alpha$ -Aktivität von 3,0 E-9  $\mu\text{Ci}$ , was einer Fläche von ca. 2 counts entspräche, über einen Untergrund von 8 Teilchen pro Kanal. Das gleiche gilt für Th-232, dessen Zerfallszeit noch eine Zehnerpotenz über der des U-235 liegt.

Die im frischen Partikel vorhandene U-238 Menge von 7,3 E 0  $\mu\text{g}$  erzeugt mit  $T_{1/2} = 4,47 \text{ E}+9$  Jahren eine Aktivität von 2,4 E-12  $\mu\text{Ci}$ . Sie liegt damit ebenfalls unter der Nachweisgrenze von ca. 2,3 E-7  $\mu\text{Ci}$ , die sich ergibt, wenn die Peakhöhe des zu analysierenden Peaks mindestens das 2,5-fache des Mittelwertes des Untergrundes betragen muß.

Für das durch Aktivierung von U-235 erzeugte U-236 müßte, um einen  $\alpha$ -spektroskopischen Nachweis zu erbringen, die im Präparat vorhandene Masse 3,6 E-3  $\mu\text{g}$  betragen. Eine massenspektroskopische Analyse zeigt, daß mit 7,7 E-4  $\mu\text{g}$  der Anteil zu

gering ist, so daß auch Np-237, das durch Neutroneneinfang des U-236 mit anschließendem  $\beta$ -Zerfall des U-237 entsteht, mit  $T_{1/2} = 2,14 \text{ E}+6$  Jahren im gemessenen Spektrum nicht nachgewiesen werden kann.

Pa-231 entsteht durch Neutroneneinfang des Th-230, das zwischen 0,1 und 100 ppm in natürlichem Thorium enthalten ist und durch (n,2n)-Reaktion des Th-232 /43/. Bei einem effektiven (n,2n)-Wirkungsquerschnitt von  $4,7 \text{ E}-3$  barn reicht die erzeugte Menge nicht aus, trotz der relativ kurzen Halbwertszeit von  $3,25 \text{ E}+4$  Jahren, einen  $\alpha$ -spektroskopischen Nachweis zu erbringen.

Die Hauptlinien der Isotope Th-228 und Am-241 liegen mit 5,423 bzw. 5,486 MeV im Bereich des Pu-238, das mit  $5,5 \text{ }\mu\text{Ci}$  die absolut stärkste Aktivität im Mischoxidkern besitzt. Th-228 hat, wie die anderen Mitglieder der Th-232 Zerfallsreihe, eine Aktivität von ca.  $3,7 \text{ E}-6 \text{ }\mu\text{Ci}$ . Das bedeutet, daß Th-228 nur 0,7 % der Peakfläche des Pu-238 ausmacht; eine Trennung ist nicht möglich.

Das Mutternuklid des Pu-238 ist U-235. Wegen des hohen U-235 Anteils im Mischoxidkern (93 % Anr.) ist die erzeugte Pu-238 Konzentration nicht klein, so daß, auch als Folge der kurzen Halbwertszeit von Pu-238 (87,7 Jahre), die Am-241 Aktivität ebenfalls überlagert wird. Bei Kernen mit niedrig angereicherem Uran gelingt wegen des geringeren Pu-238 Gehaltes der Nachweis von Am-241 (siehe Tab. 10).

#### 2.3.1.3.5 Fehlerbetrachtung

Ein Maß für die Aktivität in der  $\alpha$ -Spektroskopie ist die Anzahl der Impulse, die beim Eindringen der  $\alpha$ -Teilchen in den Detektor ausgelöst werden, und dann als Peak im Spektrum erscheinen. Die Aktivitäten der einzelnen Nuklide im bestrahlten Partikel unterscheiden sich um bis zu drei Größenordnungen, je nach Abhängigkeit von der Zusammensetzung des frischen Brennelements und der Bestrahlungsgeschichte.

Für die Auswertung der Spektren durch Rechenprogramme ergeben sich dadurch Probleme, vor allem bezüglich der Genauigkeit

der Berechnung der Peakflächen.

Am Beispiel der Hauptlinien von sechs Isotopen mit ausgewerteten Flächen und ermitteltem Fehler sei dies gezeigt:

Isotop	Energie (MeV)	Intensität (%)	Fläche	Fehler	Fehler (%)
U-233	4,824	84,4	2991	63	2,0
U-234	4,776	72,5	255	32	12,5
Pu-238	5,499	71,6	176429	405	0,2
Pu-239	5,155	73,3	457	40	8,8
Pu-240	5,168	73,4	420	43	10,2
Cm-244	5,806	76,4	10344	99	1,0

Tab. 11: Fehler bei der Flächenberechnung der  $\alpha$ -Peaks

Die Berechnung zeigt bei der U-234 Hauptlinie den größten Fehler. Die 13,2%-Linie des U-233 bei 4,783 MeV überlagert mit einer ca. doppelt so großen Aktivität den U-234 Peak bei 4,776 MeV. Bei einer Energie-Differenz von 7 keV (weniger als die Hälfte des Auflösungsvermögens des Zählers) und einer Gesamtfläche von 818 counts beider Peaks, wird der berechnete Fehler groß, und die Grenzen des Auswerteprogramms werden erreicht.

Zur Überprüfung der  $\alpha$ -Messung und -Auswertung wird das Uranisotopenverhältnis massenspektroskopisch bestimmt. Die Analyse ergibt für U-233/U-234 den Wert 6,3. Das bedeutet für den durch  $\alpha$ -Spektroskopie ermittelten Wert von 6,6 eine Abweichung von 4,2 %. Die Auswertung der Fläche der U-234 Hauptlinie liefert also trotz des errechneten Fehlers von 12,5 % ein gutes Ergebnis für die tatsächlich vorhandene Menge.

Wie aus Abbildung 14 und 19 zu ersehen ist, hat der Untergrund des Pu-239-Pu-240 Peaks eine starke Neigung, verursacht durch die Flanke des Pu-238 Peaks zu niedrigeren Energien hin. Bei größeren Verhältnissen Pu-238/(Pu-239+Pu-240) als im gezeigten

Beispiel wird der Neigungswinkel des Untergrunds ebenfalls größer, und ein Auflösen des Summenspektrums in Einzelpeaks innerhalb tolerierbarer Fehlergrenzen ist nicht mehr möglich.

In der Literatur /34/ werden für Analysen des Pu-238/(Pu-239+Pu-240)-Verhältnisses Fehler von einem bis drei Prozent angegeben. Das scheint wenig im Vergleich zu einem Fehler von 10.4 % im ausgewerteten Spektrum. Die Verhältnisse der Aktivitäten Pu-238 zu Pu-239+Pu-240 für die in /34/ beschriebenen Proben betragen aber maximal 4 zu 1, wohingegen das Verhältnis der hier untersuchten Proben bei 200 zu 1 liegt. Wenn, wie oben gezeigt, mit einem Fehler von 12.5 % die vorhandene Menge korrekt wiedergegeben wird, so kann dem auf die gleiche Art und Weise analysierten Pu-239+Pu-240 Inventar trotz großem Pu-238 Anteil das gleiche Vertrauen entgegengebracht werden.

Im Gegensatz zu  $\alpha$ -Linien, die sich nur wenig vom Untergrund abheben, oder die durch Linien höherer Aktivität überlagert werden, bereitet die Auflösung und Auswertung von Peaks mit einer großen Anzahl counts keine Probleme. So liegt z.B. der berechnete Fehler für die Auswertung der beiden Pu-238 Peaks und der Cm-244 Peaks innerhalb des statistischen Fehlers.

Obwohl SAMPO (und auch ALFUN) nicht speziell für die Auswertung von  $\alpha$ -Spektren bestrahlter HTR-Brennelemente entwickelt wurde, zeigt der Vergleich mit Ergebnissen aus der Massenspektroskopie und der Vergleich der  $\alpha$ -Energien und Intensitäten der ermittelten Nuklide mit den Werten aus der Literatur, daß zuverlässige Ergebnisse erzielt werden.

#### 2.3.1.3.6 Schwermetallkonzentration im HTR-Partikel in Abhängigkeit vom Radius

Durch Materialabtrag mittels Laser-Mikro-Bohren ist es möglich, Proben aus definierten Gebieten eines äquatorial geschliffenen Partikels zu entnehmen. Für die Untersuchung der Schwermetallkonzentration in Abhängigkeit vom Kerndurchmesser werden Präparate aus dem Zentrum des Kerns, dem halben Radius und dem Rand des Kerns hergestellt (siehe Abb.1) und  $\alpha$ -spektroskopisch

ausgewertet.

Die Werte der ermittelten  $\alpha$ -Aktivitäten von vier Nukliden (Fehler bei der Auswertung der Spektren kleiner als 8 %) für zwei untersuchte Kerne sind in der folgenden Tabelle aufgelistet:

	Pu-239	Pu-240	Am-241	Cm-244
Zentrum	3.4 E-1	3.5 E-1	9.4 E-1	2.5 E-2
1/2 Radius	3.7 E-1	3.7 E-1	1.1 E 0	2.3 E-2
Umfang	4.7 E-1	5.2 E-1	1.3 E 0	2.6 E-2
Zentrum	9.5 E-1	9.9 E-1	2.4 E 0	3.3 E-1
1/2 Radius	1.1 E 0	1.0 E 0	2.4 E 0	3.4 E-1
Umfang	1.5 E 0	1.3 E 0	3.5 E 0	4.9 E-1

Tab. 12:  $\alpha$ -Aktivität in  $\mu\text{Ci}$  von Präparaten aus dem Zentrum, dem halben Radius und dem Umfang zweier Kerne (aus DR-P4 und FRJ2-P16)

Wird der Wert der Aktivitäten der gemessenen Nuklide im Zentrum des Kerns auf eins normiert, so ergibt sich folgende Darstellung:

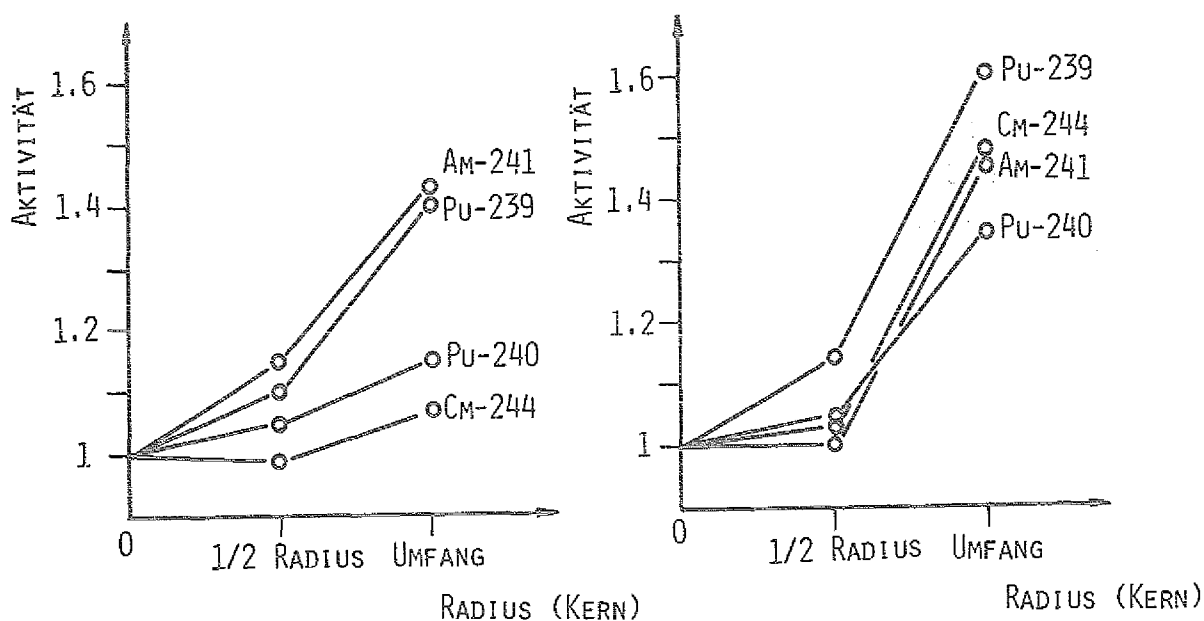


Abb. 31: Radienabhängigkeit der Nuklidkonzentration im Kern zweier bestrahlter LEU-Partikel

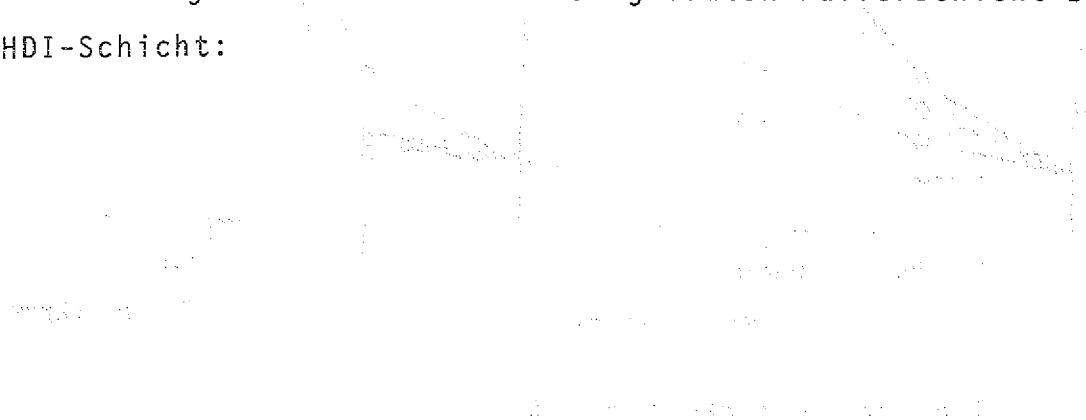
Eine zweite Untersuchung hat die Abschätzung über den Schwermetallgehalt im coating von HTR-Partikeln zum Inhalt. Dazu werden Präparate aus der Puffer- und HDI-Schicht eines bestrahlten Partikels hergestellt, und um einen Vergleich mit dem Inventar des Kerns zu erhalten, eine Probe aus dem Kern des gleichen Partikels genommen. Die Auswertung der  $\alpha$ -Spektren ergibt folgendes Ergebnis (alle Werte in  $\mu\text{Ci}$ ):

	Kern	Pufferschicht	HDI-Schicht
Pu-239	1.8 E-5	1.9 E-6	-
Pu-240	2.4 E-5	1.9 E-6	-
Am-241	6.3 E-5	7.2 E-6	5.3 E-7
Pu-238	8.6 E-5	6.9 E-6	1.4 E-6
Cm-244	1.8 E-5	2.2 E-6	-
Cm-242	1.2 E-6	-	-

Tab. 13:  $\alpha$ -Aktivität von Präparaten aus Kern-, Puffer-, und HDI-Schicht eines bestrahlten Coated Particles

Für die Probe, die das Kernmaterial repräsentiert, wurde auf dem Glasplättchen die Masse von drei Laser-Bohrungen aufgefangen, während die beiden anderen Proben jede das Material von 50 Löchern besitzt.

Über das Verhältnis der Cs-137 Aktivität Kern/Präparat bzw. über die Verhältnisse der verdampften Masse zur Gesamtmasse der einzelnen Schichten /35/ ergeben sich folgende  $\alpha$ -Aktivitäten des gesamten Kerns und der gesamten Pufferschicht bzw. HDI-Schicht:



	Kern	Pufferschicht	HDI-Schicht
Pu-239	8.6 E-1	6.4 E-4	-
Pu-240	1.2 E 0	6.4 E-4	-
Am-241	3.0 E 0	2.4 E-3	4.7 E-4
Pu-238	4.1 E 0	2.3 E-3	1.3 E-3
Cm-244	8.7 E-1	7.4 E-4	-
Cm-242	5.9 E-2	-	-

Tab. 14: Berechnete  $\alpha$ -Aktivität in  $\mu\text{Ci}$  im Kern, in der Puffer- und HDI-Schicht eines bestrahlten Coated Particles

Die Abschätzung der Aktivität der einzelnen Nuklide in der Puffer- bzw. HDI-Schicht ist mit einem Fehler behaftet. Wegen der geringen Aktivität der Präparate ergeben sich trotz langer Meßzeiten von fünf bzw. 12 Tagen kleine Peakflächen, deren Auswertung durch eine Vergrößerung der Halbwertsbreiten, bedingt durch die Dicke des Präparates, erschwert wird. Der Fehler in der Auswertung liegt bei 20 %.

Diese Untersuchungen sind natürlich nicht dazu geeignet, ein Konzentrationsprofil für Schwermetalle in bestrahlten HTR-Partikeln aufzuzeichnen. Sie zeigen aber deutlich eine Konzentrationsabnahme der Aktiniden vom Rand des Kerns zum Zentrum hin (s. Abb.31). Ein berechneter Disadvantage-Faktor von ca. 0,9 für die untersuchten Partikel /44/ weist auf eine beträchtliche Flußabsenkung im Kern hin, so daß, bedingt durch Resonanzabsorption, ein höherer Gehalt an Aktiniden in den Randzonen des Kerns zu erwarten ist. Für weitere Untersuchungen müßten Berechnungen mit Messungen verglichen werden, bei denen eine größere Anzahl Bohrungen, die über den gesamten Radius eines Partikels verteilt sind, ausgewertet werden, um so über Aktinidenkonzentrationen in Abhängigkeit vom Kerndurchmesser Rückschlüsse auf die tatsächliche Flußabsenkung in einem coated particle zuzulassen. Die Untersuchungen beweisen qualitativ o.g. Sachverhalt, eine exakte quantitative Bestimmung des Konzentrationsgefälles der einzelnen Nuklide kann, wegen der Fehler in der Auswertung, noch nicht gegeben werden. Es ist aber gezeigt, daß 99.9 % des Schwermetallinventars eines Partikels im Kern konzentriert sind.

Bei dem augenblicklichen Kenntnisstand über die Schwermetallkonzentration im Puffer kann nicht mit Sicherheit entschieden werden, ob die in der Pufferschicht nachgewiesenen Nuklide zum Teil oder ganz aus der Kontamination entstanden sind. Daher ist kein Rückschluß auf die diffusionsbedingte Kernfreisetzung abzuleiten. Wie Rechnungen /36/ zeigen, ist bei guter Rückhaltung des Kerns und normalen Kontaminationswerten etwa ein Konzentrationssprung von drei Größenordnungen zu erwarten. Die in /36/ durchgeführten Rechnungen für Plutonium zeigen gute Übereinstimmung mit den hier gewonnenen experimentellen Daten.

#### 2.3.1.3.7 Ergebnisse der $\alpha$ -Spektroskopie bezüglich der ausgewählten Bestrahlungsexperimente

Die Auswertung der in den Kapiteln 2.3.1.3.1 bis 2.3.1.3.6 beschriebenen Untersuchungen zeigt die Möglichkeit, mittels Präparatherstellung durch Laser-Mikro-Bohren und hochauflösender  $\alpha$ -Spektroskopie in Verbindung mit Computerauswertung der aufgezeichneten Spektren, das Inventar an  $\alpha$ -Strahlern (mit Ausnahme der langlebigen Isotope) von bestrahlten Partikeln sowohl qualitativ als auch quantitativ zu bestimmen. Diese Methode stellt einen Fortschritt gegenüber der bisherigen Technologie zur Isotopenhäufigkeitsanalyse dar, bei der zur Bestimmung z.B. der Uranisotope eine Aktinidentrennung durch chemische Vorbehandlung der zu untersuchenden Proben erforderlich ist /45/.

Die Tatsache, daß neben den  $\alpha$ -Strahlern auch alle Spaltprodukte auf den hergestellten Präparaten vorhanden sind, erlaubt wechselseitig sowohl die Aktinidenkonzentration im gesamten Partikel zu bestimmen, als auch die auf dem Präparat aufgedampfte Masse zu berechnen. Damit ergibt sich die Möglichkeit, die räumliche Verteilung von Schwermetallen in Partikeln experimentell zu analysieren. Ein weiterer Vorteil der hier beschriebenen Methode liegt in der Herstellung extrem dünner Präparate. In Verbindung mit Zählern hohen Auflösungsvermögens gelingt die Trennung von  $\alpha$ -Linien, deren Energien sich nur um wenige keV unterscheiden und so die eindeutige Berechnung von Isotopen ermöglichen, deren Analyse mit anderen Verfahren nur mit großem

apparativen Aufwand möglich ist.

Die Präparate aus Partikeln der ausgewählten Bestrahlungsexperimente enthalten die in Tabelle 15 aufgelisteten Anteile der  $\alpha$ -Teilchen emittierenden Isotope. Die zugehörigen  $\alpha$ -Spektren und die Zerlegung in die einzelnen Linien zeigen die Abbildungen 32 bis 55.

Handwritten text, possibly bleed-through from the reverse side of the page. The text is mostly illegible due to fading and bleed-through.

	Anreicherung %	Abbrand %	Pu-238 $\mu\text{Ci}$	Pu-239 $\mu\text{Ci}$	Pu-240 $\mu\text{Ci}$	Am-241 $\mu\text{Ci}$	Cm-242 $\mu\text{Ci}$	Cm-244 $\mu\text{Ci}$
DR-K5 Kugel 21	9.5	4	8.2 E-5	2.3 E-5	2.7 E-5	6.1 E-5	9.2 E-7	1.3 E-5
FRJ2-P16 A1/1	11	5.4	2.9 E-5	1.3 E-5	1.2 E-5	2.9 E-5	-	4.1 E-6
DR-P4 Mag.34	20	4.6	3.4 E-5	1.8 E-5	2.0 E-5	5.1 E-5	-	1.2 E-6
DR-P4 Mag.11	40	15.5	7.2 E-5	9.0 E-6	1.3 E-5	4.3 E-5	-	4.5 E-6
DR-P6 Kap. A3	90	18	7.1 E-6	2.1 E-6	9.1 E-7	-	-	-
FRJ2-P18 6/8	90	27.5	2.4 E-5	1.5 E-6	1.1 E-6	-	-	-

Tab. 15: Gemessene Aktivität der  $\alpha$ -Strahler in den untersuchten Präparaten

### 2.3.2 $\gamma$ -Spektroskopie

Die zur Zeit übliche Methode zur Bestimmung des Spaltprodukt-Inventars von bestrahlten Brennelementen oder Partikeln ist die  $\gamma$ -Spektroskopie. Das Hauptanwendungsgebiet liegt auf der zerstörungsfreien Messung des Abbrandes über Cs-137. Bei Kernbrennstoffen unterschiedlicher Zusammensetzung hat sich diese Methode bewährt. Bei Vergleichen mit massenspektrometrischen Abbrandbestimmungen wurden Abweichungen kleiner  $\pm 5\%$  festgestellt /37/.

Für die Cs-134 und Cs-137 Konzentration in den untersuchten Präparaten und Partikeln ergibt die Messung mit Ge(Li)-Detektoren und die Auswertung mit Standardprogrammen, die im Meßsystem integriert sind, folgende Werte:

		Cs-134 ( $\mu\text{Ci}$ )	Cs-137 ( $\mu\text{Ci}$ )
DR-K5,21	Präparat	-	1.4 E-2
	Partikel	1.6 E+2	1.8 E+2
FRJ2-P16	Präparat	-	2.1 E-3
	Partikel	1.7 E+2	1.8 E+2
DR-P4,34	Präparat	-	8.1 E-3
	Partikel	2.2 E+2	3.9 E+2
DR-P4,11	Präparat	-	1.6 E-2
	Partikel	1.4 E+2	1.4 E+2
DR-P6,A3	Präparat	-	2.0 E-2
	Partikel	5.4 E 0	2.1 E+1
FRJ2-P18	Präparat	-	1.9 E-2
	Partikel	1.4 E+1	3.6 E+1

Tab. 16: Cs-134 und Cs-137 Inventar der untersuchten Präparate und Partikel

### 2.3.3 Massenspektroskopie

Neben der  $\gamma$ -Spektroskopie ist die Massenspektroskopie die zweite routinemäßig eingesetzte Methode für Nachbestrahlungsuntersuchungen. Durch chemische Vorbereitung der zu analysierenden Kerne /38/ wird eine Probenlösung erhalten, die auf das Verdampfungsband einer Zweiband-Ionenquelle aufgetropft und durch Widerstandsheizung bis zur Trockne eingedampft wird. Die Isotopenverhältnismessung erfolgt in einem CH5-Massenspektrometer. Das Isotopenverhältnis einer Probe wird zehn mal gemessen und dann der Mittelwert gebildet /4/.\*

Die Ergebnisse der Analyse zur Bestimmung der Uranisotopenverhältnisse für die ausgewählten Bestrahlungsexperimente sind in der folgenden Tabelle enthalten:

	U-236/U-235	U-238/U-235
DR-K5 Kugel 21	1.7 E-1	15.9 E 0
FRJ2-P16 A1/1	3.2 E-1	21.9 E 0
DR-P4 Mag.34	9.4 E-2	5.3 E 0
DR-P4 Mag.11	1.5 E-1	2.4 E 0
DR-P6 Kap.A3	2.6 E-2	1.3 E-1
FRJ2-P18 6/8	4.5 E-2	1.2 E-1

Tab. 17: Uranisotopenverhältnisse in den bestrahlten Partikeln der ausgewählten Bestrahlungsexperimente

\* Für die sorgfältige Durchführung der massenspektrometrischen Untersuchungen am ZCH-KFA möchte ich an dieser Stelle Herrn Dr. Beske und seinen Mitarbeitern meinen Dank aussprechen.

### 2.3.4 Zusammenstellung der Nachuntersuchungsergebnisse

Die Ergebnisse der Nachbestrahlungsuntersuchungen sind in der folgenden Tabelle aufgelistet. Die Werte beziehen sich jeweils auf das Inventar eines Partikels und sind, um Vergleichsmöglichkeiten mit den durchzuführenden Rechnungen zu erleichtern, in Mol umgerechnet. Aufgeführt sind nur jene Nuklide, für die in den folgenden Rechnungen Isotopenkorrelationen dargestellt werden.

	Anr. %	Abbrand %	U-236/U-235	Pu-238 Mol	Pu-239 Mol	Pu-240 Mol	Cs-134 Mol	Cs-137 Mol
DR-K5 Kugel 21	9.5	4	1.7 E-1	2.6 E-10	2.6 E-8	6.3 E-9	9.1 E-10	1.5 E-8
FRJ2-P16 A1/1	11	5.4	3.2 E-1	6.1 E-10	7.4 E-8	2.0 E-8	9.8 E-10	1.5 E-8
DR-P4 Mag. 34	20	4.6	9.4 E-2	4.1 E-10	6.1 E-8	1.9 E-8	1.3 E-9	3.3 E-8
DR-P4 Mag. 11	40	15.5	1.5 E-1	1.6 E-10	5.5 E-9	2.3 E-9	8.1 E-10	1.2 E-8
DR-P6 Kap. A3	90	18	2.6 E-2	1.8 E-12	1.4 E-10	1.8 E-11	3.1 E-11	1.7 E-9
FRJ2-P18 6/8	90	27.5	4.5 E-2	1.2 E-11	1.9 E-10	3.8 E-11	8.1 E-11	3.0 E-9

Tab. 18: Inventar der untersuchten Partikel

### 3. THEORETISCHER TEIL

#### 3.1 Isotopenkorrelation

Unter dem Begriff Isotopenkorrelation versteht man eine "funktionelle eindeutige Abhängigkeit einiger Isotope in einer Kernanlage von einigen Prozeßparametern bzw. von anderen Isotopen in der gleichen Anlage."

Anwendung findet die Isotopenkorrelations-Technik hauptsächlich in der Spaltstoffflußkontrolle und zur Überprüfung von Nachbestrahlungsdaten, z.B. um den Aufwand von Messungen zur Kontrolle der Schwermetallzusammensetzung von bestrahlten Brennelementen so gering wie möglich zu halten /39/. Es wird also der Gehalt eines leicht meßbaren Isotops bestimmt, und über eine geeignete Korrelation die Menge des Nuklids hergeleitet, das einer einfachen experimentellen Analyse nicht zugänglich ist.

Die Isotopenkorrelations-Technik bietet außerdem die Möglichkeit, die Veränderungen von Nukliden im Reaktor zu verfolgen. Mit Hilfe von Abbrandcodes wird das Verhalten der Nuklide während der Bestrahlung beschrieben. Diese rein theoretische Behandlung erlaubt es, für alle Nuklide Korrelationen herzuleiten, und so zu jedem Zeitpunkt der Bestrahlungsperiode Angaben über das Inventar der Brennelemente zu machen.

Die Berechnungen für diese Arbeit werden mit dem Abbrandcode ORIGIN /6/ durchgeführt. Die rechnerische Gehaltsbestimmung von Spaltstoffisotopen und Spaltproduktkonzentrationen und die rechnerische Bestimmung von Korrelationen zum Ende der Bestrahlungsperiode sind experimentell überprüft.

### 3.2 Beschreibung des Rechenprogramms ORIGIN

Der Abbrandcode ORIGIN behandelt rechnerisch alle Stationen des Brennstoffkreislaufs. Für die Bestrahlung im Reaktor, die Abklingzeit nach der Endladung und die Endlagerung nach der Aufarbeitung stehen für vier Reaktortypen (LWR, HTR, LMFBR, MSBR) Libraries zur Verfügung, die je 813 Nuklide erfassen, aufgeteilt nach Strukturmaterialien, Schwermetallen und Spaltprodukten. Enthalten in den Libraries sind reaktorabhängige und -unabhängige Daten wie Halbwertszeiten, Zerfallsschemata, freigesetzte Energie pro Zerfall, Wirkungsquerschnitte und Spaltausbeuten.

ORIGIN verwendet zur Darstellung des Neutronenspektrums drei Energiegruppen: die thermische (THERM), die epithermische (RES) und die schnelle Gruppe (FAST). Für diese drei Gruppen sind die Wirkungsquerschnitte gemittelt. Zur Rechnung werden sie mit reaktorabhängigen Spektrumswichtungsfaktoren zu Ein-Gruppenquerschnitten kondensiert, wo sie als effektive Wirkungsquerschnitte für  $n,\gamma$ - und  $n,f$ -Reaktionen erscheinen:

$$\begin{aligned}(n,\gamma)\text{-}WQ_{\text{eff}} &: \text{SING} \cdot \text{THERM} + \text{RING} \cdot \text{RES} \\(n,f)\text{-}WQ_{\text{eff}} &: \text{SIGF} \cdot \text{THERM} + \text{RIF} \cdot \text{RES} + \text{SIGFF} \cdot \text{FAST}\end{aligned}$$

mit:

$$\begin{aligned}\text{SING} &= (n,\gamma)\text{-}WQ \text{ für thermische Neutronen} \\ \text{RING} &= \text{Resonanz-Integral für } (n,\gamma)\text{-Reaktionen} \\ \text{SIGF} &= (n,f)\text{-}WQ \text{ für thermische Neutronen} \\ \text{RIF} &= \text{Resonanz-Integral für Spaltung} \\ \text{SIGFF} &= (n,f)\text{-}WQ \text{ für schnelle Neutronen}\end{aligned}$$

Die effektiven Wirkungsquerschnitte bleiben für den gesamten nachzurechnenden Bestrahlungszeitraum konstant.

Die Transmutation der Nuklide wird durch folgende Gleichung beschrieben:

$$\frac{dX_i}{dt} = \sum_{j=1}^N l_{ij} \cdot \lambda_j \cdot X_j + \phi \cdot \sum_{k=1}^N f_{ik} \cdot \sigma_k \cdot X_k - (\lambda_i + \phi \cdot \sigma_i) \cdot X_i$$

mit  $X_{i,j}$  = Konzentration des Nuklids i bzw. j  
 $l_{ij}$  = Anteil von j, der durch radioaktiven Zerfall zu i führt  
 $\lambda_j$  = Zerfallskonstante des Nuklids j  
 $\phi$  = Neutronenfluß  
 $f_{ik}$  = Anteil von k, der durch Spaltung zu i führt  
 $\sigma_k$  = Absorptionsquerschnitt des Nuklids k

Zur Lösung dieser Gleichung wird der zeitabhängige Neutronenfluß  $\phi$  über kurze Zeitintervalle gemittelt, und als Konstante eingesetzt. Dadurch erhält man eine homogene Differentialgleichung erster Ordnung, die für dieses Zeitintervall analytisch zu lösen ist. Setzt man dieses Verfahren fort und betrachtet mehrere Nuklide gleichzeitig, so können alle Nuklidkonzentrationen über beliebige Zeiträume berechnet werden.

Die reaktorspezifischen Größen wie Spektrumwichtungsfaktoren, der über Zeitintervalle gemittelte thermische Neutronenfluß und die effektiven Wirkungsquerschnitte sind vom Benutzer des Programms zu ermitteln und ergeben mit den Beladungsdaten des Reaktors den Input für das Programm.

Die folgende Abbildung zeigt einen ORIGEN-Input.

In Zeile A sind in der Reihenfolge THERM, RES, FAST die Spektrumwichtungsfaktoren angegeben. Die Zeilen C enthalten für die in B aufgelisteten Nuklide die Wirkungsquerschnitte. In den Spalten 1, 2, 4, 5 und 6 stehen die Größen SING, RING, SIGF, RIF und SIGFF in barn. D gibt für die in E benannten Zeiträume (in Tagen) den gemittelten thermischen Neutronenfluß ( $\text{cm}^{-2} \cdot \text{sec}^{-1}$ ). Die Beladungsdaten in Zeile F werden in Mol angegeben

```

NUCLEAR DATA LIBRARY FOR REFERENCE HTR ( OR-P4 MAG.34 ) 1
A 0.45 0.28 0.72 1.0E-60021979 1 0 018
902320 912310 922320 922330 922340 922350 922360 922380 932370 942380 942390
942400 942410 952410 962420 541330 551330 551340
B 7.40E 00 3.31E 010.0 0.0 0.0 6.94E-02 6.50E-03.0 2.20E-041
2.00E 02 4.80E 020.0 0.0 0.0 1.38E 00 0.0 0.0 1
7.80E 01 2.80E 020.0 7.70E 01 3.20E 02 0.0 2.60E-03.0 3.00E-051
4.90E 01 1.85E 020.0 5.25E 02 8.62E 01 0.0 3.30E-03.0 6.30E-061
9.50E 01 3.40E 020.0 0.0 0.0 1.00E 00 7.20E-03.0 4.40E-051
9.90E 01 2.01E 020.0 5.21E 02 3.20E 02 0.0 1.50E-02.0 4.70E-051
6.00E 00 2.05E 020.0 0.0 0.0 3.90E-01 6.50E-03.0 7.20E-051
2.24E 00 5.29E 010.0 0.0 0.0 1.64E-01 1.50E-02.0 1.50E-041
C 2.51E 02 1.33E 030.0 1.90E-01 0.0 1.22E 00 1.30E-03.0 9.50E-061
5.60E 02 1.50E 020.0 1.65E 01 2.50E 01 0.0 2.60E-03.0 3.00E-051
1.47E 03 2.02E 020.0 2.01E 03 3.33E 02 0.0 5.00E-03.0 5.80E-051
2.47E 02 2.04E 030.0 0.0 0.0 1.23E 00 3.50E-03.0 3.50E-051
6.50E 02 1.39E 020.0 1.70E 03 5.37E 02 0.0 7.90E-03.0 7.90E-051
5.85E 02 7.00E 020.162 3.13E 00 0.0 1.10E 00 5.00E-04.0 5.00E-061
3.00E 01 0.0 0.0 5.00E 00 0.0 0.0 0.0 0.0 1
1.90E 02 9.20E 010.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 1
3.16E 01 4.60E 020.085 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 1
2.40E 03 1.00E 030.500 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 1
10 10 0 1 1 0 1 0 0 2
000 000 000 000 000 000 000 000 000
100 000 100 000 000 000 000 000 000
100 000 100 000 000 000 000 000
REFERENCE HTR EQUILIBRIUM FUEL CYCLE -- 90 % ENRICHED U
551340551370 1
942380942390942400 2
18.00 36.00 54.00 72.00 90.00 108.00 126.00 144.00 86400.
162.00 180.00 86400.
5.16E 135.16E 135.16E 135.16E 135.16E 135.16E 135.16E 135.16E 135.16E 135.16E 13
18.00 36.00 54.00 72.00 90.00 108.00 126.00 144.00 162.00 180.00
AMT OF HEAVY METAL CHARGED TO REACTOR 86400. D
1.E-9 1.E-9 1.E-9 1.E-9 1.E-9 1.E-9 1.E-9 1.E-9
922340 3.108E-8922350 2.317E-6922360 5.751E-9922380 9.153E-6 F 2

```

Abb. 56: ORIGEN-Input

Ein ORIGEN-Output hat die in Abbildung 57 gezeigte Form. Neben den in der linken Spalte aufgelisteten Nukliden (samt Beladungsdaten) werden die berechneten Nuklidkonzentrationen für die im Input eingegebenen Bestrahlungszeiträume ausgedruckt. Die in Mol angegebenen Größen können durch die in // beschriebene Erweiterung des Programms auch graphisch dargestellt werden.

Abb. 57: Ausriß aus einem ORIGEN-Output

PA234	0.0	9.38E-13	1.60E-12	2.16E-12	2.45E-12	3.23E-12	3.57E-12	3.89E-12	4.78E-12	92.0
U232	0.0	1.10E-14	4.98E-14	1.12E-13	1.83E-13	2.25E-13	3.16E-13	4.53E-13	5.37E-13	
U233	0.0	8.91E-10	3.18E-09	6.05E-09	8.86E-09	1.02E-08	1.27E-08	1.60E-08	1.76E-08	
U234	0.0	4.03E-11	1.58E-10	3.35E-10	5.28E-10	6.50E-10	8.94E-10	1.25E-09	1.47E-09	
U235	4.86E-07	4.47E-07	4.09E-07	3.76E-07	3.50E-07	3.36E-07	3.12E-07	2.85E-07	2.70E-07	
U236	0.0	6.09E-09	1.19E-08	2.10E-08	2.10E-08	2.67E-08	3.08E-08	3.08E-08	3.30E-08	
U237	0.0	9.64E-12	2.68E-11	4.52E-11	5.97E-11	7.34E-11	9.26E-11	1.12E-10	1.31E-10	
U238	5.80E-08	5.78E-08	5.76E-08	5.74E-08	5.73E-08	5.72E-08	5.70E-08	5.68E-08	5.67E-08	
U239	0.0	3.00E-13	2.99E-13	3.14E-13	3.13E-13	3.81E-13	3.80E-13	3.78E-13	4.38E-13	
U240	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	
NP236	0.0	1.95E-20	1.19E-19	3.17E-19	5.52E-19	7.93E-19	1.20E-18	1.75E-18	2.30E-18	
NP237	0.0	5.52E-12	3.38E-11	8.53E-11	1.48E-10	1.84E-10	2.63E-10	3.85E-10	4.55E-10	
NP238	0.0	2.34E-14	1.83E-13	5.24E-13	9.47E-13	1.40E-12	2.07E-12	3.07E-12	4.14E-12	
NP239	0.0	4.26E-11	4.29E-11	4.50E-11	4.49E-11	5.27E-11	5.43E-11	5.43E-11	6.13E-11	
NP240	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	
NP241	0.0	2.32E-15	2.34E-15	2.59E-15	2.58E-15	3.70E-15	3.81E-15	3.80E-15	4.99E-15	
PU236	0.0	3.07E-20	4.15E-19	1.66E-18	3.81E-18	5.44E-18	9.44E-18	1.63E-17	2.83E-17	
PU238	0.0	2.71E-14	4.69E-13	2.01E-12	4.76E-12	6.79E-12	1.19E-11	1.63E-11	2.78E-11	
PU239	0.0	1.26E-10	2.43E-10	3.15E-10	3.59E-10	3.70E-10	3.95E-10	4.18E-10	4.21E-10	
PU240	0.0	8.82E-12	3.69E-11	7.40E-11	1.09E-10	1.28E-10	1.61E-10	2.01E-10	2.22E-10	
PU241	0.0	4.02E-13	3.50E-12	1.04E-11	1.93E-11	2.52E-11	3.70E-11	5.38E-11	6.39E-11	
PU242	0.0	7.65E-15	1.46E-13	6.88E-13	1.71E-12	2.56E-12	4.67E-12	8.56E-12	1.14E-11	
PU243	0.0	3.21E-18	4.12E-17	3.04E-16	7.54E-16	1.38E-15	2.52E-15	4.61E-15	7.14E-15	
PU244	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	
PU245	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	
AM241	0.0	1.80E-16	3.39E-15	1.51E-14	3.68E-14	5.13E-14	8.68E-14	1.51E-13	1.90E-13	
AM242	0.0	3.88E-19	1.36E-17	8.37E-17	2.41E-16	3.77E-16	7.65E-16	1.33E-15	1.79E-15	
AM243	0.0	7.77E-19	1.46E-17	6.87E-17	1.68E-16	2.68E-16	4.80E-16	8.35E-16	1.17E-15	
AM244	0.0	2.93E-17	1.20E-15	8.84E-15	2.90E-14	4.95E-14	8.60E-14	1.11E-13	2.52E-13	
AM245	0.0	1.78E-21	7.28E-20	5.64E-19	1.85E-18	3.85E-18	6.60E-18	1.96E-17	3.37E-17	
AM246	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	
CM242	0.0	1.73E-16	7.02E-17	4.98E-16	1.60E-15	2.63E-15	5.55E-15	1.19E-14	1.70E-14	
CM243	0.0	9.84E-22	8.49E-20	9.34E-19	3.89E-18	7.24E-18	1.87E-17	4.88E-17	7.67E-17	
CM244	0.0	1.00E-19	1.40E-17	1.59E-16	6.87E-16	1.34E-15	3.63E-15	1.02E-14	1.69E-14	
CM245	0.0	2.24E-22	4.02E-20	6.79E-19	3.73E-18	8.10E-18	2.60E-17	8.66E-17	1.56E-16	
CM246	0.0	1.14E-24	4.43E-22	1.15E-20	8.23E-20	2.03E-19	7.90E-19	3.25E-18	6.49E-18	

### 3.3 Nachrechnung der Bestrahlungsexperimente

Für eine erste rechnerische Erfassung der sechs ausgewählten Bestrahlungsexperimente werden als Inputparameter die in /14/, /15/, /17-20/ und /40/ dokumentierten Bestrahlungsdaten eingesetzt, an der Wirkungsquerschnittslibrary werden keine Änderungen vorgenommen. Die Rechenergebnisse werden den experimentell gewonnenen Daten gegenübergestellt und sind in den Tabellen 19 bis 24 aufgelistet; alle Angaben in Mol.

	U6/U5	Pu-238	Pu-239	Pu-240	Cs-134	Cs-137
experim.	1.7 E-1	2.6 E-10	2.0 E-8	6.3 E-9	9.1 E-10	1.5 E-8
ORIGEN	1.1 E-1	2.3 E-10	1.2 E-7	3.1 E-8	9.8 E-10	1.5 E-8
Abweichg.%	-35	-11	+500	+390	+7.7	0

Tab. 19: Inventar eines Partikels aus DR-K5 Kugel 21

	U6/U5	Pu-238	Pu-239	Pu-240	Cs-134	Cs-137
experim.	3.2 E-1	6.1 E-10	7.4 E-8	2.0 E-8	9.8 E-10	1.5 E-8
ORIGEN	1.7 E-1	5.8 E-10	1.5 E-7	4.3 E-8	2.0 E-9	2.2 E-8
Abweichg.%	-47	-4.9	+103	+115	+104	+47

Tab. 20: Inventar eines Partikels aus FRJ2-P16

	U6/U5	Pu-238	Pu-239	Pu-240	Cs-134	Cs-137
experim.	9.4 E-2	4.1 E-10	6.1 E-8	1.9 E-8	1.3 E-9	3.3 E-8
ORIGEN	7.0 E-2	3.3 E-10	2.3 E-7	4.3 E-8	1.6 E-9	3.2 E-8
Abweichg.%	-25.5	-19.5	+277	+126	+23	-3

Tab. 21: Inventar eines Partikels aus DR-P4 Mag.34

	U6/U5	Pu-238	Pu-239	Pu-240	Cs-134	Cs-137
experim.	1.5 E-1	1.6 E-10	5.5 E-9	2.3 E-9	8.1 E-10	1.2 E-8
ORIGEN	1.2 E-1	2.8 E-10	1.9 E-8	5.0 E-9	8.1 E-10	9.5 E-9
Abweichg.%	-20	+75	+245	+117	0	-21

Tab. 22: Inventar eines Partikels aus DR-P4 Mag.11

	U6/U5	Pu-238	Pu-239	Pu-240	Cs-134	Cs-137
experim.	2.6 E-2	1.8 E-12	1.4 E-10	1.8 E-11	3.1 E-11	1.7 E-9
ORIGEN	2.7 E-2	2.7 E-12	5.0 E-10	4.7 E-11	3.1 E-11	1.4 E-9
Abweichg.%	+3.8	+50	+257	+161	0	-17.6

Tab. 23: Inventar eines Partikels aus DR-P6 Kap.A3

	U6/U5	Pu-238	Pu-239	Pu-240	Cs-134	Cs-137
experim.	4.5 E-2	1.2 E-11	1.9 E-10	3.8 E-11	8.1 E-11	3.0 E-9
ORIGEN	4.6 E-2	8.8 E-12	5.6 E-10	7.9 E-11	7.0 E-11	2.3 E-9
Abweichg.%	+2.2	-26.6	+195	+108	-13.5	-23.3

Tab. 24: Inventar eines Partikels aus FRJ2-P18

Die Gegenüberstellung der Ergebnisse der ORIGEN-Rechnung mit denen der experimentellen Untersuchungen zeigt zum Teil erhebliche Diskrepanzen. Die Library des ORIGEN-Programms enthält gemittelte Wirkungsquerschnitte, jeweils gültig für die Auslegung eines bestimmten Reaktortyps.

Für die Nachrechnung von Bestrahlungsexperimenten in einem definierten Reaktor muß der Einfluß den das Moderator-Brennstoff-Verhältnis, das Hüllmaterial, das Neutronenspektrum etc. auf die Transmutation der Nuklide ausübt, durch Änderung der Wirkungsquerschnitte diesem speziellen Reaktor angepaßt werden, d.h. , die Library muß für Rechnungen zu unterschiedlichen Reaktortypen jeweils neu überschrieben werden.

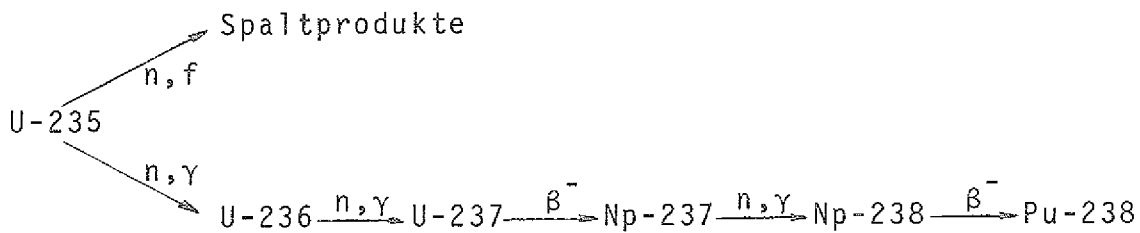
### 3.3.1 Ermittlung der Wirkungsquerschnitte

Um das Ergebnis einer berechneten Nuklidkonzentration zu korrigieren, muß auf die effektiven Wirkungsquerschnitte über die Größen SING und RING für n, $\gamma$ -Reaktionen und SIGF, RIF und SIGFF für n,f-Reaktionen Einfluß genommen werden; die Größen THERM, RES und FAST sind aus 740/ bekannt.

Am Beispiel von DR-P4 Mag.11 wird gezeigt, welchen Einfluß

Wirkungsquerschnittsänderungen auf die berechnete Nuklidkonzentration haben, und wie durch Wirkungsquerschnittsänderungen die Ergebnisse einer Abbrandrechnung mit experimentell gewonnenen Daten zur Übereinstimmung gebracht werden. Dazu werden die beiden die Ausgangsstoffe U-235 und U-238 enthaltenden Nuklidketten getrennt behandelt, und der Einfluß von Wirkungsquerschnittsänderungen eines jeden Nuklids jeder Kette auf alle anderen Nuklide untersucht.

1. Nuklidkette mit U-235 als Ausgangsstoff

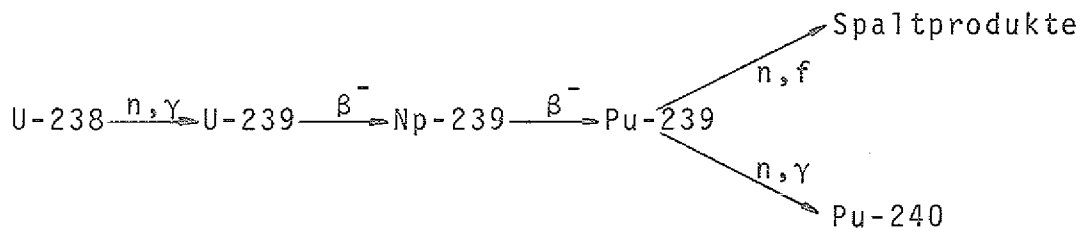


Es wird die Bestrahlung eines Brennelementes simuliert, das als Ausgangsstoff nur U-235 in der durch das Experiment vorgegebenen Menge enthält. Die folgende Tabelle zeigt die Anteile der berechneten Nuklidkonzentrationen in Abhängigkeit von den Wirkungsquerschnittsänderungen:

	$n, \gamma_{\text{eff}}$	$n, f_{\text{eff}}$	U-235	U-236	Np-237	Pu-238	Cs-134	Cs-137
U5	75.6	248	3.3 E-7	3.9 E-8	1.9 E-9	2.7 E-10	7.4 E-10	8.3 E-9
	37.8	248	3.5 E-7	2.0 E-8	1.0 E-9	1.5 E-10	7.5 E-10	8.5 E-9
	75.6	124	3.8 E-7	4.2 E-8	2.0 E-9	2.8 E-10	4.4 E-10	4.9 E-9
U6	82.5	0	3.3 E-7	3.9 E-8	1.9 E-9	2.7 E-10	7.4 E-10	8.3 E-9
	41.1	0	-	4.0 E-8	9.7 E-10	1.4 E-10	-	-
Np7	345	0	3.3 E-7	3.9 E-8	1.9 E-9	2.7 E-10	7.4 E-10	8.3 E-9
	173	0	-	-	2.0 E-9	1.4 E-10	-	-
	294	14.4	3.3 E-7	3.9 E-8	1.9 E-9	2.7 E-10	7.4 E-10	8.3 E-9
	147	14.4	-	-	-	2.8 E-10	-	-

Tab. 25: Einfluß der Wirkungsquerschnitte auf die berechnete Nuklidkonzentration (in Mol) in der U-235 Nuklidkette

2. Nuklidkette mit U-238 als Ausgangsstoff



Das Ergebnis eines "Bestrahlungsexperiments", das nur U-238 als Ausgangsstoff enthält, und der Einfluß von Wirkungsquerschnittsänderungen auf die Mitglieder der U-238-Nuklidkette zeigt die folgende Tabelle:

	$n, \gamma_{\text{eff}}$	$n, f_{\text{eff}}$	U-238	Pu-239	Pu-240	Cs-134	Cs-137
U8	58.1	0	5.8 E-7	1.9 E-8	5.0 E-9	6.9 E-11	1.2 E-9
	29.2	0	6.0 E-7	9.8 E-9	2.6 E-9	6.5 E-11	1.1 E-9
Pu9	614	998	5.8 E-7	1.9 E-8	5.0 E-9	6.9 E-11	1.2 E-9
	307	998	-	2.2 E-8	2.8 E-9	-	-
	614	501	-	2.4 E-8	5.9 E-9	6.5 E-11	1.1 E-9
Pu40	1810	0	5.8 E-7	1.9 E-8	5.0 E-9	6.9 E-11	1.2 E-9
	904	0	-	-	6.9 E-9	-	-

Tab. 26: Einfluß der Wirkungsquerschnitte auf die berechnete Nuklidkonzentration (in Mol) in der U-238 Nuklidkette

In welcher Weise die Wirkungsquerschnitte (WQ) für das Bestrahlungsexperiment DR-P4,11 geändert werden müssen, zeigt Tabelle 22:

Ein zu geringer Anteil Cs-137 bei zu kleinem Verhältnis U-236/U-235 erfordert eine Vergrößerung des  $n, \gamma$ - und  $n, f$ -WQ des Spaltstoffs U-235. Ein größerer  $n, \gamma$ -WQ bedingt eine Verringerung des verbleibenden Spaltstoffanteils und ein Anwachsen des Nachfolgeisotops. Der Einfluß auf die Spaltprodukte ist im Vergleich zu einer  $n, f$ -WQ Änderung gering, ebenso wie eine Änderung des  $n, f$ -WQ sich nur minimal auf das U-236/U-235 Verhältnis auswirkt (siehe Tabelle 25).

Die Vergrößerung der  $n, \gamma$ - und  $n, f$ -WQ von U-235 werden nun so

aufeinander abgestimmt, daß das Cs-137 Inventar (abzüglich des Anteils aus der n,f-Reaktion des Pu-239) richtig reproduziert und das Verhältnis U-236/U-235 korrekt berechnet wird.

Die Anpassung der berechneten Pu-238 Menge an die gemessene geschieht durch Änderung der n, $\gamma$ -WQ von U-236 und Np-237. Der Einfluß einer Verkleinerung des U-236 WQ auf den verbleibenden U-236 Anteil ist geringer als 3 % und wird vernachlässigt. Da die Np-237 Konzentration im Partikel experimentell nicht bestimmt werden kann, wird der WQ des Np-237 nur so geändert, daß er unter dem im BNL 325 /41/ gegebenen WQ für unendlich verdünnte Medien bleibt.

Der zu hohe Anteil Pu-239 und Pu-240 im berechneten Partikel-Inventar zeigt, daß der effektive WQ des U-238 zu einem kleineren Wert hin korrigiert werden muß. Diese Änderung wirkt sich nur geringfügig auf den verbleibenden Anteil U-238 aus, da sich wegen des kleinen U-238 WQ nur ein Bruchteil des im frischen Partikel vorhandenen U-238 durch n, $\gamma$ -Reaktion umwandelt. In einem nächsten Schritt werden der n, $\gamma$ - und n,f-WQ des Pu-239 so geändert, daß das berechnete Inventar des Pu-239 mit dem gemessenen übereinstimmt, und die verbleibende Abweichung des Pu-240 durch Korrektur des Pu-240-WQ ausgeglichen werden kann.

Durch Spaltung von U-235 und Pu-239 entsteht J-137, das sich durch radioaktiven Zerfall rasch in Xe-137 und Cs-137 umwandelt. Wegen der kurzen Halbwertszeit von J-137 und Xe-137 von 24 sec bzw. 3.8 min kann Cs-137 als direktes Spaltprodukt angesehen werden. Da es sich selber wegen einer großen Halbwertszeit (30 Jahre) und eines kleinen Wirkungsquerschnitts (0.1 barn) innerhalb der Bestrahlzeit nicht weiter umwandelt, ist die Cs-137 Konzentration proportional zur Anzahl der Spaltungen von U-235 und Pu-239 und wird bei bekannter Spaltausbeute deswegen zur Bestimmung der n,f-WQ der Spaltstoffe herangezogen.

Durch die oben beschriebene Korrektur der Wirkungsquerschnitte ergibt sich für das berechnete Cs-134 Inventar ein Wert, der von dem in Tabelle 22 aufgeführten abweicht. Da Cs-134 im Gegensatz zu Cs-137 über eine Reihe von Mutterelementen entsteht und

sich durch n,γ-Reaktion weiter umwandelt, wird über eine Änderung der n,γ-WQ von Cs-133 und Cs-134 eine Anpassung des berechneten Cs-134 Wertes an den gemessenen erreicht.

Wie bereits erwähnt, wird für die Nachrechnung eines Bestrahlungsexperiments in einem definierten Reaktor der Einfluß der Reaktorparameter auf die Transmutation der Nuklide durch eine Korrektur der Wirkungsquerschnitte berücksichtigt. Die für die untersuchten Bestrahlungsexperimente ermittelten effektiven WQ sind in den beiden folgenden Tabellen aufgelistet:

	$n, \gamma\text{-WQ}_{\text{eff}}$	$n, f\text{-WQ}_{\text{eff}}$
U-235	94 ± 7	339 ± 15
U-236	45 ± 15	-
U-238	13.8 ± 2	-
Np-237	465 ± 20	-
Pu-238	294 ± 0	14.4 ± 0
Pu-239	669 ± 49	1054 ± 56
Pu-240	716 ± 34	-
Cs-133	120 ± 20	-
Cs-134	79 ± 0	0

Tab. 27: Effektive Wirkungsquerschnitte für den DRAGON-Reaktor

	$n, \gamma\text{-WQ}_{\text{eff}}$	$n, f\text{-WQ}_{\text{eff}}$
U-235	103 ± 5	380 ± 0
U-236	50 ± 8	-
U-238	20 ± 0	-
Np-237	459 ± 22	-
Pu-238	413 ± 22	17.2 ± 0
Pu-239	482 ± 62	862 ± 44
Pu-240	482 ± 25	-
Cs-133	75 ± 5	-
Cs-134	105 ± 10	-

Tab. 28: Effektive Wirkungsquerschnitte für den DIDO-Reaktor

Aus den Tabellen ist zu entnehmen, daß für alle Bestrahlungsexperimente eines Reaktors ein gültiger Wirkungsquerschnittsdatensatz angegeben werden kann, der allerdings mit einer Streubreite behaftet ist. Der Grund liegt zum einen darin, daß sich der Gehalt aller zu einer Nuklidkette gehörenden Glieder experimentell nicht ermitteln läßt (Np-237, Cs-133), zum anderen beziehen sich die als Input benötigten Bestrahlungsdaten auf eine Charge eines Bestrahlungsexperiments und sind nur bedingt auf ein konkretes Partikel, wie es hier untersucht wird, übertragbar. Abweichungen in der tatsächlichen Zusammensetzung eines frischen Partikels von der im Datenblatt beschriebenen, und eine nicht bekannte Position des Partikels im Brennelement (was eine Aussage über den Neutronenfluß, dem das Partikel ausgesetzt war erschwert) stellen Unsicherheitsfaktoren für den Input des Rechenprogramms dar und haben demzufolge Auswirkungen auf die berechnete Zusammensetzung des bestrahlten Partikels. In dieser Ungenauigkeit bei der Erstellung der Programmeingabe liegt die Hauptursache dafür, daß für einzelne Nuklide (U-236, U-238) die Abweichung vom WQ-Datensatz nicht unerheblich ist. Da es sich aber bei beiden Isotopen um Ausgangsstoffe des frischen Brennelements handelt, ist gezeigt, daß auf die beschriebene Art für die betrachteten Nuklide ein konsistenter WQ-Datensatz für einen definierten Reaktor erstellt werden kann.

### 3.3.2 Gegenüberstellung der gemessenen Daten mit der Rechnung

Mit den ermittelten Wirkungsquerschnitten wird das Inventar je eines Partikels aus den ausgewählten Bestrahlungsexperimenten berechnet. Die folgenden Tabellen zeigen, daß gute Übereinstimmung zwischen Meßwerten und Rechenergebnissen erzielt wird.

	U6/U5	Pu-238	Pu-239	Pu-240	Cs-134	Cs-137
experim.	0.17	2.6 E-10	2.0 E-8	6.3 E-9	9.1 E-10	1.5 E-8
ORIGEN	0.16	2.8 E-10	2.2 E-8	7.4 E-9	8.9 E-10	1.4 E-8
Abweichg. %	-5.9	+7.7	+10	+17	-2.2	-6.7

Tab. 29: Inventar eines Partikels aus DR-K5 Kugel21

	U6/U5	Pu-238	Pu-239	Pu-240	Cs-134	Cs-137
experim.	0.32	6.1 E-10	7.4 E-8	2.0 E-8	9.8 E-10	1.5 E-8
ORIGEN	0.29	5.7 E-10	6.7 E-8	2.2 E-8	9.5 E-10	1.4 E-8
Abweichg.%	-9.1	-6.6	-9.5	+10	-3.1	+13

Tab. 30: Inventar eines Partikels aus FRJ2-P16

	U6/U5	Pu-238	Pu-239	Pu-240	Cs-134	Cs-137
experim.	0.09	4.1 E-10	6.1 E-8	1.9 E-8	1.3 E-9	3.3 E-8
ORIGEN	0.09	4.2 E-10	6.2 E-8	1.8 E-8	1.3 E-9	3.3 E-8
Abweichg.%	0	+2.4	+1.6	-5.5	0	0

Tab. 31: Inventar eines Partikels aus DR-P4 Mag.34

	U6/U5	Pu-238	Pu-239	Pu-240	Cs-134	Cs-137
experim.	0.15	1.6 E-10	5.5 E-9	2.3 E-9	8.1 E-10	1.2 E-8
ORIGEN	0.16	1.5 E-10	5.1 E-9	2.4 E-9	7.5 E-10	1.1 E-8
Abweichg.%	+6.7	-6.3	-7.3	+4.3	-7.4	-9.1

Tab. 32: Inventar eines Partikels aus DR-P4 Mag.11

	U6/U5	Pu-238	Pu-239	Pu-240	Cs-134	Cs-137
experim.	0.03	1.8 E-12	1.4 E-10	1.8 E-11	3.1 E-11	1.7 E-9
ORIGEN	0.03	1.9 E-12	1.4 E-10	1.7 E-11	3.1 E-11	1.8 E-9
Abweichg.	0	+5.6	0	-5.6	0	+5.9

Tab. 33: Inventar eines Partikels aus DR-P6 Kap.A3

	U6/U5	Pu-238	Pu-239	Pu-240	Cs-134	Cs-137
experim.	0.05	1.2 E-11	1.9 E-10	3.8 E-11	3.1 E-11	3.0 E-9
ORIGEN	0.06	1.1 E-11	1.9 E-10	3.6 E-11	6.9 E-11	3.3 E-9
Abweichg.%	+20	-8.3	0	-5.3	-15	+10

Tab. 34: Inventar eines Partikels aus FRJ2-P18

### 3.4 Ermittlung linearer Korrelationen

Isotopenkorrelationen geben Beziehungen wieder zwischen den während des Reaktorbetriebs sich ändernden Isotopenmengen. Es werden solche Beziehungen gesucht, in der die unbekannte Nuklidkonzentration als direkte Funktion einer meßbaren Größe erscheint, oder die Funktion einer nicht meßbaren Größe ist, die jedoch aus einer meßbaren Größe abgeleitet werden kann. Von besonderem Interesse sind lineare Korrelationen wegen ihrer Möglichkeit, durch einfache Messungen bzw. Rechnungen sowohl Abbrände wie auch Schwermetallzusammensetzungen abzuschätzen und für längere Zeiträume hochzurechnen.

Der exponentielle Aufbau höherer Isotope läßt zunächst keine lineare Abhängigkeit zwischen Isotopen oder Isotopenverhältnissen vermuten. Um das Verhalten der ausgewählten Nuklide im Reaktor neben der numerischen Rechnung mittels ORIGEN auch analytisch darzustellen, werden die Abbrandgleichungen dieser Nuklide angegeben (Herleitung im Anhang):

$$N_{Cs4}(t) = \frac{\sigma_{Cs3} \cdot \phi \cdot y_{Cs4} \cdot \sigma_{U5f} \cdot N_{U5}(0)}{(\sigma_{Cs3} - \sigma_{U5})(\lambda_{Cs4} - \sigma_{U5} \cdot \phi)} (\exp(-\sigma_{U5} \cdot \phi \cdot t) - \exp(-\lambda_{Cs4} \cdot t)) + \frac{y_{Cs4} \cdot \sigma_{U5f} \cdot N_{U5}(0) \cdot \sigma_{Cs3} \cdot \phi}{(\sigma_{Cs3} - \sigma_{U5})(\lambda_{Cs4} - \sigma_{Cs3} \cdot \phi)} (\exp(-\lambda_{Cs4} \cdot t) - \exp(-\sigma_{Cs3} \cdot \phi \cdot t))$$

$$N_{Cs7}(t) = \frac{\sigma_{U5f}}{\sigma_{U5}} y_{Cs7} \cdot N_{U5}(0) \cdot (1 - \exp(\sigma_{U5} \cdot \phi \cdot t))$$

$$N_{U5}(t) = N_{U5}(0) \cdot \exp(-\sigma_{U5} \cdot \phi \cdot t)$$

$$N_{U6}(t) = \frac{\sigma_{U5c} \cdot N_{U5}(0)}{\sigma_{U5}} (\exp(-\sigma_{U6} \cdot \phi \cdot t) - \exp(-\sigma_{U5} \cdot \phi \cdot t))$$

$$N_{Pu8}(t) = k_1 \cdot (\exp(-\sigma_{U6} \cdot \phi \cdot t) - \exp((-\lambda_{Pu8} - \sigma_{Pu8} \cdot \phi)t)) + k_2 \cdot (\exp((-\lambda_{Pu8} - \sigma_{Pu8} \cdot \phi)t) - \exp(-\sigma_{Np7} \cdot \phi \cdot t))$$

$$k_1 = \frac{\sigma_{U5c} \cdot N_{U5}(0) \cdot \sigma_{U6} \cdot \sigma_{Np7} \cdot \phi}{\sigma_{U5} \cdot (\sigma_{Np7} - \sigma_{U6}) (\lambda_{Pu8} - \sigma_{Pu8} \cdot \phi - \sigma_{U6} \cdot \phi)}$$

$$k_2 = \frac{\sigma_{U5c} \cdot N_{U5}(0) \cdot \sigma_{Np7} \cdot \phi \cdot \sigma_{U6}}{\sigma_{U5} \cdot (\sigma_{Np7} - \sigma_{U6}) (\lambda_{Pu8} + \sigma_{Pu8} \cdot \phi - \sigma_{Np7} \cdot \phi)}$$

$$N_{Pu9}(t) = \frac{\sigma_{U8} \cdot N_{U8}(0)}{\sigma_{Pu9}} (\exp(-\sigma_{U8} \cdot \phi \cdot t) - \exp(-\sigma_{Pu9} \cdot \phi \cdot t))$$

$$N_{Pu40}(t) = k_1 \cdot (\exp(-\sigma_{U8} \cdot \phi \cdot t) - \exp(-\sigma_{Pu40} \cdot \phi \cdot t)) + k_2 \cdot (\exp(-\sigma_{Pu40} \cdot \phi \cdot t) - \exp(-\sigma_{Pu9} \cdot \phi \cdot t))$$

$$k_1 = \frac{\sigma_{U8} \cdot N_{U8}(0) \cdot \sigma_{Pu9c}}{\sigma_{Pu9} \cdot \sigma_{Pu40}}$$

$$k_2 = \frac{\sigma_{U8} \cdot N_{U8}(0) \cdot \sigma_{Pu9c}}{\sigma_{Pu9} \cdot (\sigma_{Pu40} - \sigma_{Pu9})}$$

Einen optischen Eindruck des Aufbaus der Nuklide vermittelt Abbildung 58, in der die Nuklidkonzentration in Abhängigkeit von der thermischen Fluenz  $D$  aufgetragen ist. Für den Fluenzbereich von  $3 \cdot 10^{19}$  bis  $2 \cdot 10^{21} \text{ cm}^{-2}$  sind in Tabelle 35 (im Anhang) die zugehörigen Konzentrationen der Isotope und Isotopenverhältnisse, für  $D = 3 \cdot 10^{19}$  auf eins normiert, eingetragen.

Für die angegebenen  $\Delta D$  werden die Kurvenabschnitte, die einer Exponentialfunktion gehorchen, durch eine Kurve der Form  $y = a \cdot x^b + k$  angenähert. Gelten jetzt für zwei Isotope oder Isotopenverhältnisse über einen definierten Dosisbereich gleiche Exponenten, besteht zwischen beiden Isotopen oder Isotopenverhältnissen in diesem Dosisbereich eine lineare Abhängigkeit.

Isotop 1

$$y_1 = a_1 \cdot x^{b_1} + k_1$$

$$y_1' = a_1 \cdot b_1 \cdot x^{b_1-1}$$

$$y_1' \cdot \frac{1}{a_1 \cdot b_1} = x^{b_1-1}$$

für  $b_1 = b_2$

Isotop 2

$$y_2 = a_2 \cdot x^{b_2} + k_2$$

$$y_2' = a_2 \cdot b_2 \cdot x^{b_2-1}$$

$$y_2' \cdot \frac{1}{a_2 \cdot b_2} = x^{b_2-1}$$

folgt:  $y_1' = \frac{a_1}{a_2} \cdot y_2'$

$$y_1 = \frac{a_1}{a_2} \cdot y_2 + c$$

In Tabelle 35 sind für die angegebenen  $\Delta D$  die Exponenten der Ersatzfunktionen eingetragen. Der Vergleich der Exponenten ergibt lineare Abhängigkeiten für folgende Isotope bzw. Isotopenverhältnisse:

$$U-235 = f(Cs-137)$$

$$1/U-236 = f(Cs-134/U-236)$$

$$Pu-240/U-236 = f(U-236)$$

$$Pu-240/Cs-137 = f(Pu-239)$$

$$Cs-134/U-236 = f(Pu-238/Cs-134)$$

### 3.5 Darstellung der gefundenen Korrelationen

Mit der in /7/ beschriebenen Erweiterung des ORIGEN-Programms wird das Inventar der angegebenen Isotope bzw. Isotopenverhältnisse in Abhängigkeit von der Bestrahlungszeit ermittelt. Dabei wird der gesamte Bestrahlungszeitraum in zehn Perioden unterteilt, und die Nuklidkonzentration eines jeden Zeitabschnitts berechnet und grafisch aufgetragen.

Eine physikalische Interpretation der gefundenen Korrelationen ist, bedingt durch die Einschränkungen, die die Berechnung mit ORIGEN mit sich bringt, nicht möglich. Abhängigkeiten in den Korrelationen, wie sie /42/ untersucht, können hier nicht nachvollzogen werden. Der Einfluß, den die Reaktorparameter wie Moderator-Brennstoff-Verhältnis, Geometrie der Brennelemente, Strukturmaterialien etc. auf die Isotopenkorrelationen ausüben, wird bei ORIGEN durch Erstellen einer speziellen Wirkungsquerschnitts-Library berücksichtigt. Wie groß dieser Einfluß ist, und auf welche Wirkungsquerschnitte er sich in welcher Art auswirkt, kann nicht angegeben werden.

Zur analytischen Darstellung der Korrelationen werden die Steigungen der Funktionen mit Hilfe der Abbrandgleichungen berechnet (Herleitung im Anhang), und ein Vergleich der numerischen und analytischen Ergebnisse vorgenommen.

#### 3.5.1 U-236 = f(Cs-137)

Die grafische Darstellung ist in Abbildung 59 gegeben. Es ergibt sich eine Ursprungsgerade mit der Steigung 4.1 zu 1. Aus dem analytisch hergeleiteten Steigungsfaktor

$$p = \frac{\sigma_{U5c}}{\sigma_{U5f} \cdot Y_{Cs7}}$$

kann bei bekannter Spaltausbeute des U-235 für Cs-137 das Verhältnis von Einfangsquerschnitt zu Spaltquerschnitt für U-235 bestimmt werden. Mit den in 3.3.1 ermittelten Wirkungsquerschnitten berechnet sich die Steigung zu 4 zu 1.

Für die Abhängigkeit U-236 = f(Cs137) ist nur ein Beispiel ange-

geben, da bei geringen Unterschieden in den WQ sich keine gro-  
ße Änderungen in der Steigung der Geraden ergibt.

$$3.5.2 \frac{1}{U-235} = f\left(\frac{Cs-134}{U-236}\right)$$

Diese Korrelation erlaubt aus der  $\gamma$ -Messung der Cs-134 und Cs-137 (womit der U-236 Gehalt gegeben ist) die noch vorhandene U-235 Menge im Brennelement zu bestimmen. Bei bekanntem U-235 Gehalt des frischen Brennstoffs, der dem reziproken Wert des Abzissenabschnitts entspricht, ergeben sich mit Hilfe der Abbrandgleichungen für die Steigung

$$P = \frac{2 \cdot \sigma_{U5c} \cdot (\sigma_{U5} - \sigma_{U6})}{y_{Cs4} \cdot \sigma_{Cs3} \cdot \sigma_{U5f} \cdot N_{U5}(0)}$$

die folgenden Werte (ihr gegenübergestellt sind die Ergebnisse aus den numerischen Berechnungen; zugehörige Abb. 60 und 61):

	HEU-DR	HEU-DI	MEU-40	MEU-20	LEU-DR	LEU-DI
anal.	9.3 E-3	1.2 E-2	2.0 E-2	4.8 E-2	8.1 E-2	1.5 E-1
num.	9.8 E-3	1.4 E-2	2.4 E-2	5.6 E-2	9.5 E-2	1.8 E-1

$$3.5.3 \frac{Pu-240}{U-236} = f(U-236)$$

In den Abbildungen 62 und 63 ist die angegebene Korrelation dargestellt. Aus dem Steigungsfaktor

$$P = \frac{\sigma_{U8} \cdot N_{U8}(0) \cdot \sigma_{Pu9c}}{\sigma_{U5c} \cdot \sigma_{U5c} \cdot N_{U5}(0) \cdot N_{U5}(0) \cdot 2}$$

geht hervor, daß die erzeugte Pu-240 Menge nicht vom Pu-240 Wirkungsquerschnitt abhängt, sondern daß einzig der im frischen Brennelement vorhandene U-238 Gehalt und die Einfangsquerschnitte des U-238 und Pu-239 Einfluß auf das Pu-240 Inventar des bestrahlten Brennstoffs haben.

Der Vergleich der analytischen mit der numerischen Untersuchung bestätigt, wie in den anderen Fällen, die Richtigkeit der hier beschriebenen Vorgehensweise:

	HEU-DR	HEU-DI	MEU-40	MEU-20	LEU-DR	LEU-DI
anal.	2.4 E-5	1.5 E-5	4.6 E-4	2.6 E-3	6.1 E-3	7.9 E-3
num.	2.2 E-5	1.4 E-5	3.1 E-4	2.0 E-3	4.5 E-3	7.7 E-3

$$3.5.4 \frac{\text{Pu-240}}{\text{Cs-137}} = f(\text{Pu-239})$$

Die genannte Abhängigkeit kann für alle untersuchten Bestrahlungsexperimente durch eine Ursprungsgerade angegeben werden (siehe Abbildung 64 und 65). Die Steigung der Geraden, beschrieben durch

$$p = \frac{\sigma_{\text{Pu9c}}}{2 \cdot \sigma_{\text{U5f}} \cdot y_{\text{Cs7}} \cdot N_{\text{U5}}(0)}$$

hängt außer vom Anteil U-235 des unbestrahlten Brennelements nur vom Pu-239 Einfangs- und U-235 Spaltquerschnitt ab. Sowohl der Gehalt als auch der n,γ-WQ des U-238 haben, obwohl Mutterelemente von Pu-239 und Pu-240, auf die Steigung der dargestellten Korrelationen keinen Einfluß. Nachfolgend die Gegenüberstellung der analytischen und numerischen Berechnungen:

	HEU-DR	HEU-DI	MEU-40	MEU-20	LEU-DR	LEU-DI
anal.	4.7 E-3	3.1 E-3	9.0 E-3	2.2 E-2	3.1 E-2	2.2 E-2
num.	5.0 E-3	3.4 E-3	1.1 E-2	2.5 E-2	3.4 E-2	2.5 E-2

$$3.5.5 \frac{\text{Cs-134}}{\text{U-236}} = f\left(\frac{\text{Pu-238}}{\text{Cs-134}}\right)$$

Die Berechnung des Steigungsfaktors

$$p = \left( \frac{y_{\text{Cs4}} \cdot \sigma_{\text{U5f}} \cdot \sigma_{\text{Cs3}}}{\sigma_{\text{U5c}}} \right)^2 \cdot \frac{1}{\sigma_{\text{U6}} \cdot \sigma_{\text{Np7}}}$$

zeigt, wie bei allen vorher beschriebenen Untersuchungen auch, daß der Neutronenfluß auf die dargestellte Korrelation (Abb.66 und 67) keinen Einfluß hat. Für alle in dieser Korrelation verwendeten Isotope ist U-235 das Mutterelement; da zwei Isotope jeweils als Bruch erscheinen, kürzt sich der U-235 Gehalt heraus. Übrig bleibt als quadratisches Glied die für die Cs-134 Produktion verantwortlichen Größen der Spaltausbeute, des Spaltquerschnitts von U-235 und des n,γ-WQ von Cs-133. Ebenfalls

quadratisch erscheint der U-235 Einfangsquerschnitt als Einflußgröße für die U-235 und Pu-238 Produktion, während die  $n, \gamma$ -WQ von U-236 und Np-237 (beides Vorläufer des Pu-238) in der ersten Potenz erscheinen.

Abschließend der Vergleich der analytischen und numerischen Auswertung der o.g. Korrelation:

	HEU-DR	HEU-DI	MEU-40	MEU-20	LEU-DR	LEU-DI
anal.	3.3 E-2	1.6 E-2	4.3 E-2	2.6 E-2	2.0 E-2	9.4 E-3
num.	6.5 E-2	3.2 E-2	8.6 E-2	2.8 E-2	4.5 E-2	4.0 E-2

Die Übereinstimmung zwischen dem mit ORIGEN numerisch berechneten und dem durch Näherungsverfahren analytisch hergeleiteten Steigungsfaktor zeigt, daß für die dargestellten Korrelationen keine Zeitabhängigkeiten existieren. Die Formeln für die Steigung zeigen Abhängigkeiten nur von Spaltausbeuten ( $y$ ), Wirkungsquerschnitten ( $\sigma$ ) und Anfangsbeladungen ( $e$ ). Da es sich bei den drei Größen um Konstanten handelt, gelten die dargestellten Korrelationen für alle Abbrände und sind, da die Reaktorparameter in den WQ berücksichtigt werden, auf andere Reaktortypen, z.B. LWR, übertragbar.

Einen zusätzlichen experimentellen Beweis für die Richtigkeit der hier beschriebenen Vorgehensweise liefert die Möglichkeit, die für unterschiedliche Anreicherungen (bei unterschiedlichen Abbränden) dargestellten Geraden einer Korrelation auf eine Gerade zu reduzieren. Die ursprüngliche Abhängigkeit  $P = f(y, \sigma, e)$  wird auf die Anfangsbeladung normiert. Hierfür muß gelten, daß die experimentell bestimmten Isotopenverhältnisse einer Korrelation auf einer Geraden der Form  $P_e = f(y, \sigma)$  liegen.

Für die in 3.5.2 bis 3.5.4 beschriebenen Korrelationen wird diese Forderung für die DRAGON-Experimente mit LEU und Partikeln mit 20- und 40%iger Anreicherung überprüft. Die Diagramme in den Abbildungen 68 bis 70 zeigen, daß für Brennstoffe unterschiedlicher Anreicherung für alle Reaktortypen über alle Abbrände (mit Ausnahme der Anfahrphase) lineare Isotopenkorrelationen existieren. Die Streuung der Meßpunkte ist durch die Bandbreite, den die Werte eines Wirkungsquerschnittsdatensatzes für die einzelnen Nuklide überdecken, bedingt.

#### 4. ZUSAMMENFASSUNG

Zur Kontrolle des Brennstoffkreislaufs ist die Aufstellung einer Massenbilanz der während des Reaktorbetriebes erzeugten Schwermetall-Isotope erforderlich. Die Verfahren zur experimentellen Bestimmung des Nuklidgehalts bestrahlter Kernbrennstoffe erfordern einen erheblichen Aufwand in der Präparatherstellung und der Meßtechnik. Eine Erleichterung der Methode zum Erfassen der Daten bietet die Isotopenkorrelation, mit der Möglichkeit aus experimentell leicht nachweisbaren Nukliden (Spaltprodukten) Aussagen über das Schwermetallinventar der untersuchten Brennelemente zu erhalten.

Aus sechs Bestrahlungsexperimenten wurden Partikel unterschiedlicher Anreicherung und unterschiedlichen Abbrandes ausgewählt. Mit Hilfe der Alpha-, Gamma- und Massenspektroskopie wurde der während der Bestrahlung erzeugte Gehalt an Spaltprodukten und Schwermetallen gemessen. Gamma- und Massenspektroskopie sind Routineverfahren zur Nachbestrahlungsuntersuchung. Die Alpha-Spektroskopie von Präparaten, die mittels der Laser-Mikro-Bohr-Technik hergestellt wurden ist eine neue, am IRE-KFA entwickelte Methode zur Bestimmung der Gehalte an Aktiniden in bestrahltem Kernbrennstoff, ohne chemische Vorbehandlung der zu untersuchenden Proben. Die Aufnahme der Spektren mit Zählern hohen Auflösungsvermögens und deren Auswertung mit speziellen Computer-Programmen erlaubt es,  $\alpha$ -strahlende Aktiniden qualitativ und quantitativ sowohl in den hergestellten Präparaten, als auch im ganzen Partikel nachzuweisen. Darüber hinaus ergibt sich die Möglichkeit, wegen des hohen räumlichen Auflösungsvermögens der Methode, Konzentrationsprofile und Diffusionskoeffizienten von Aktiniden in bestrahlten coated particles experimentell zu ermitteln. Die Zuverlässigkeit dieser Methode wird durch Vergleich von Ergebnissen aus der Massenspektroskopie bestätigt. Damit ist sichergestellt, daß Präparatherstellung, Aufnahme und Auswertung der Spektren den an sie zu stellenden Anforderungen genügen.

Mit den Ergebnissen der experimentellen Untersuchungen sollen

Rechnungen mit dem Abbrand-code ORIGEN über den Spaltprodukt- und Schwermetallaufbau für die ausgewählten Bestrahlungsexperimente verifiziert werden. Der Einfluß der Reaktorparameter auf die Transmutation der Nuklide wird bei ORIGEN durch eine Änderung der Wirkungsquerschnitte der betreffenden Nuklide berücksichtigt. Es konnte für die beiden Reaktoren (DIDO, DRAGON) je ein WQ-Datensatz erstellt werden, der für die in diesen Reaktoren durchgeführten Bestrahlungsexperimente Gültigkeit besitzt, und so der Aufbau und die Umwandlung der Nuklide in Abhängigkeit von der Zeit beschrieben werden.

Für definierte Zeitabschnitte werden Beziehungen zwischen Isotopen oder Isotopenverhältnissen hergeleitet, die einen linearen Zusammenhang aufweisen. So gelingt es, aus der  $\gamma$ -Messung der Cs-134 und Cs-137 Aktivität direkt bzw. indirekt auf den Schwermetallgehalt bestrahlter Brennelemente zu schließen. Aus folgenden linearen Korrelationen kann die Konzentration der Isotope U-235, U-236, Pu-238, Pu-239 und Pu-240 für höhere Abbrände (d.h. nicht in der Anfahrphase des Reaktors) bestimmt werden:

$$U-236 = f(Cs-137)$$

$$1/U-235 = f(Cs-134/U-236)$$

$$Pu-240/U-236 = f(U-236)$$

$$Pu-240/Cs-137 = f(Pu-239)$$

$$Cs-134/U-236 = f(Pu-238/Cs-134)$$

Die ermittelten Korrelationen gelten für den Zeitraum während der Bestrahlung. Ihre Abhängigkeiten nur von Wirkungsquerschnitten, Spaltausbeuten und Beladungsdaten bedeutet, daß diese Korrelationen auch auf andere Reaktortypen anwendbar sind. Sie sind, dargestellt als Funktion zwischen Isotopen bzw. Isotopenverhältnissen, unabhängig vom Abbrand und behalten demzufolge eine Möglichkeit zur Kontrolle von Abbrandrechnungen. Die numerische Berechnung der Korrelationen mit ORIGEN wurde analytisch überprüft. Eine Näherung, bei der aus den Abbrandgleichungen der Steigungsfaktor der ermittelten Korrelationen abgeleitet wurde, brachte gute Übereinstimmung

The first part of the report discusses the importance of maintaining accurate records of all transactions. It emphasizes that proper record-keeping is essential for the success of any business and for the protection of the owner's interests. The report then outlines the various methods available for recording transactions, including the use of journals, ledgers, and spreadsheets. It also discusses the importance of regular audits and the role of accountants in this process.

The second part of the report focuses on the importance of maintaining accurate records of all transactions. It discusses the various methods available for recording transactions, including the use of journals, ledgers, and spreadsheets. It also discusses the importance of regular audits and the role of accountants in this process. The report concludes by emphasizing the importance of maintaining accurate records of all transactions for the success of any business.

The third part of the report discusses the importance of maintaining accurate records of all transactions. It outlines the various methods available for recording transactions, including the use of journals, ledgers, and spreadsheets. It also discusses the importance of regular audits and the role of accountants in this process. The report concludes by emphasizing the importance of maintaining accurate records of all transactions for the success of any business.

The fourth part of the report focuses on the importance of maintaining accurate records of all transactions. It discusses the various methods available for recording transactions, including the use of journals, ledgers, and spreadsheets. It also discusses the importance of regular audits and the role of accountants in this process. The report concludes by emphasizing the importance of maintaining accurate records of all transactions for the success of any business.

The fifth part of the report discusses the importance of maintaining accurate records of all transactions. It outlines the various methods available for recording transactions, including the use of journals, ledgers, and spreadsheets. It also discusses the importance of regular audits and the role of accountants in this process. The report concludes by emphasizing the importance of maintaining accurate records of all transactions for the success of any business.

mit den ORIGIN-Werten und darf als Beweis dafür gelten, daß lineare Korrelationen zwischen Isotopen bzw. Isotopenverhältnissen existieren. Um die Aussagefähigkeit der dargestellten Korrelationen zu bekräftigen bedarf es zusätzlicher experimenteller Kontrollen. Mehrere identische Partikel sind dabei einem konstanten Neutronenfluß auszusetzen und nach einem vorher festgelegten Zeitplan zu entladen und auf ihre Isotopenzusammensetzung hin zu untersuchen. Eingesetzt in die obigen Gleichungen müssen die ermittelten Isotopengehalte für unterschiedliche Abbrände diese Gleichungen erfüllen.

## 5. LITERATURVERZEICHNIS

- /1/ E. Schrüfer Strahlung und Strahlungsmeßtechnik in  
Kernkraftwerken Elitera-Verl., Berlin
- /2/ W. Kühnlein persönliche Mitteilung 1980 , HZ-KFA
- /3/ W. Amian persönliche Mitteilung 1979 , IRE-KFA
- /4/ H. Beske persönliche Mitteilung 1979 , ZCH-KFA
- /5/ M. Helmbold The Combination of Laser-Micro-Boring  
H.J. Allelein and High Resolution  $\alpha$ -Spectroscopy for  
H.R. Koch the Analysis of  $\alpha$ -Emitting Isotopes in  
Irradiated High-Temperature-Reactor  
Fuel  
Nuclear Instruments and Methods 169  
S. 235-238 (1980)
- /6/ V.J. Bell ORNL 4628 (1973)
- /7/ K. Susanti Diplomarbeit am IRE-KFA (1977)
- /8/ C. Foggi Isotope Correlations Based on Fission-  
F. Frenquellucci Product Nuclides in LWR Irradiated  
G. Perdisa Fuels  
IAEA-SM-201/44 (1976)
- /9/ R.A. Schneider The Use of Isotopic Correlations in  
K.B. Stewart Verification  
D.E. Christensen (Safeguards Application)  
BNWL-SA-4251 (1972)
- /10/ Projektbericht 1978 KFA-HBK-IB-1/79
- /11/ R. Gontard HTR-Bestrahlungsexperimente zur Erpro-  
A.-W. Mehner bung von Partikeln und Brennelementen  
1970-1978  
HBK-IB-2/79
- /12/ F. Schmidt Die Entwicklung von Brennstoff- und  
Strukturmaterial-Bestrahlungseinrichtun-  
gen unter Anwendung des Baukastenprinzips  
Jül-828-RX (1972)

- /13/ J.Faßbender Die gegenwärtige und zukünftige Nutzung  
E. Münch der Forschungsreaktoren FRJ-1 (Merlin)  
D. Nutbohm und FRJ-2 (DIDO) der Kernforschungsan-  
G. Thamm lage Jülich
- /14/ H. Euringer Bestrahlungsexperiment FRJ2-P16  
B. Hürttlen Interner Bericht  
KFA-ZBB-IB-8/74 HTR
- /15/ B. Hürttlen Bestrahlungsdaten FRJ2-P18  
Technische Notiz  
KFA-ZBB-TN-31/75 HTR
- /16/ O.E.C.D. High Temperature Reaktor Project  
A Summary & Evaluation of the Achieve-  
ments of the DRAGON Project & its Con-  
tribution to the Development of the  
High Temperature Reaktor  
DRAGON Project Report 1000
- /17/ O.E.C.D. High Temperature Reaktor Project  
Fuel Irradiation Dossier FID No: 24
- /18/ H. Hougaard DRAGON Model Particles DR-P4  
Burn-up Measurements HTRB-Project  
HTRB-TN-5/73
- /19/ M.R. Everett The Irradiation of Special Coated Par-  
L.W. Graham ticles Designed to Test Stress-Model  
H. Walter Calculated Predictions  
DRAGON Project Report 880
- /20/ P.D. God Fission Product Chemistry Experiment  
Fuel Irradiation Dossier FID No: 61
- /21/ W. Amian et al. Neuere Arbeitsergebnisse aus dem Vor-  
haben "Diffusionsdaten und Spaltpro-  
duktfreisetzung"  
Jül-1421 (1977)
- /22/ U. Wenzel J. of Radioanalytical Chem. 21 (74), 473  
D. Herz

- /23/ U. Wenzel                    Actinide Composition Studies on Thorium/  
      H.-J. Riedel                Uranium Fuel Elements with Known Irradi-  
                                  ation Data  
                                  IAEA-SM-149/59 (1972)
- /24/ A. Max                      Entwicklung und Erprobung eines Laser-  
                                  Systems zur Bestimmung der Spaltprodukt-  
                                  Freisetzung und -Verteilung beschichteter  
                                  Brennstoffteilchen  
                                  JÜ1-1496 (1978)
- /25/ Allelein et al.            Laser System for Boring and Sampling in  
                                  Coated-Particle Fuel  
                                  Journal of Applied Physics, 1979
- /26/ H. Bükér                    Theorie und Praxis der Halbleiterdetekto-  
                                  ren für Kernstrahlung  
                                  Springer-Verlag, Berlin, 1971
- /27/ H.A. Bauer                 Grundlagen der Atomphysik  
                                  Springer-Verlag, Wien
- /28/ I. Mehesz                  Wahlarbeit am IRE-KFA, 1980
- /29/ A. eSilva                  private Mitteilung 1980 , IRE-KFA
- /30/ W. Seelmann-                Nuklidkarte  
      Eggebert et al.            Gesellschaft für Kernforschung m.b.H.  
                                  Karlsruhe
- /31/ W. Westmeier                Alpha-Energy Table, 1979  
      R. A. Esterlund            unpublished
- /32/ J.T. Routti                 Nucl. Inst. Meth. 72 (1969) S.125-142  
      S.G. Prussin
- /33/ W. Wätzig                  ALFUN - A Program for the Evaluation of  
      W. Westermeier            Complex Alpha-Spectra  
                                  Nucl. Inst. Meth. 153 (1978) S.517-524
- /34/ W. Beyrich                 Performance and Results of the AS-76  
      G. Spannagel                Interlaboratory Experiment on the Alpha-  
                                  Spectrometric Determination of the Pu-238  
                                  Isotope  
                                  First Annual Symposium on Safeguards and  
                                  Nuclear Material Management, Brüssel 1979

- /35/ B. Hagmann Aktennotiz SPT/80/7 IRE-KFA
- /36/ M. Helmbold Technische Notiz TN-9/17 IRE-KFA
- /37/ R. Duwe Gamma-spektrometrische Abbrandmessung an  
W. Kühnlein kugelförmigen Brennelementen  
R. Schröder JÜl-1428 (1977)
- /38/ M. Stöppler Apparative Anordnung zur Vorbereitung  
bestrahlter Kernbrennstoffe zur massen-  
spektrometrischen Bestimmung des Uran-  
isotopenverhältnisses  
JÜl-633-CA (1969)
- /39/ D. Christensen Summary of Experience with the Use of  
R.A. Schneider Isotopic Correlation Safeguard Techniques  
K.B. Stewart BNWL-SA-4273 (1972)
- /40/ W. Scherer private Mitteilung, 1979 , IRE-KFA
- /41/ NNCSC Neutron Cross Sections BNL 325 , 1973
- /42/ C. Foggi Correlations between Heavy Isotopes in  
P. Frandoli Irradiated Fuels of Light Water Power  
Reactors  
EUR 5071 e (1974)
- /43/ N. Mirza Untersuchung zur Entstehung von Aktiniden  
im Hochtemperaturreaktor  
JÜl-1603 (1979)
- /44/ R.D. Neef private Mitteilung, 1980 , IRE-KFA
- /45/ W. Litzow Alpha-Spektrometrische Isotopenhäufigkeits-  
E. Merz analyse des Urans mit Halbleiterdetektoren  
EUR 4329 d (1969)



Tab. 35: Konzentrationen der Isotope bzw. Isotopenverhältnisse in Abhängigkeit von der Fluenz D, für  $D = 3 \cdot 10^{19}$  auf eins normiert; Exponenten der Ersatzfunktion

*(The table content is extremely faint and illegible in the provided image. It appears to be a multi-column table with several rows of data.)*

Dosis	3 E+19	6 E+19	8 E+19	1 E+20	2 E+20	4 E+20	6 E+20	8 E+20	1 E+21	2 E+21
1/U5	1	1.029	1.038	1.049	1.100	1.211	1.332	1.464	1.611	2.601
Exponent		1.157	0.939	1.139	1.029	1.077	1.118	1.164	1.23	1.39
U6	1	1.991	2.643	3.286	6.393	12.143	17.232	21.875	25.982	40.625
Exponent		0.993	0.985	0.976	0.96	0.9255	0.863	0.829	0.771	0.645
Pu8	1	23.788	83.333	215.91	3439.4	43939	1.6E+5	3.9E+5	7.5E+5	4.8E+6
Exponent		4.572	4.358	4.266	3.994	3.675	3.231	3.043	2.911	2.693
Pu9	1	2.833	4.147	5.451	11.47	21.18	28.53	34.216	38.63	55.1
Exponent		1.502	1.3245	1.225	1.073	0.885	0.735	0.632	0.543	0.512
Pu40	1	5.3	10.32	17.06	75.09	298.16	612.27	982.83	1386.5	3533.7
Exponent		2.406	2.316	2.2526	2.138	1.989	1.7746	1.645	1.542	1.35
Cs4	1	9.42	22.29	42.265	271.27	1348.1	3149.2	5524.9	8425.4	27596
Exponent		3.236	2.994	2.867	2.313	2.0925	1.954	1.891	1.711	1.603
Cs7	1	1.985	2.634	3.28	6.418	12.2	17.5	22.276	26.604	42.91
Exponent		0.989	0.9833	0.9829	0.968	0.927	0.89	0.839	0.796	0.6897
U6/U5	1	2.022	2.708	3.403	6.942	14.516	22.66	31.614	41.32	104.31
Exponent		1.016	1.015	1.024	1.028	1.064	1.1	1.16	1.2	1.33
Pu8/U5	1	24.16	85.39	223.58	3734.8	5.3E+4	2.1E+5	5.6E+5	1.2E+6	2.6E+6
Exponent		4.59	4.39	4.32	4.06	3.81	3.47	3.37	3.34	1.11

Dosis	3 E+19	6 E+19	8 E+19	1 E+20	2 E+20	4 E+20	6 E+20	8 E+20	1 E+21	2 E+21
Pu8/Pu40	1	4.49	8.075	12.656	45.80	147.37	266.03	397.74	539.84	1369.9
Exponent		2.17	2.04	2.01	1.86	1.69	1.46	1.4	1.37	1.34
Pu8/Cs4	1	2.525	3.74	5.11	12.68	32.59	51.72	70.75	88.84	175.42
Exponent		1.34	1.36	1.4	1.31	1.36	1.14	1.09	1.02	0.98
Pu8/Cs7	1	11.98	31.64	65.83	535.9	3601.6	9307.4	17548	28134	1.1E+5
Exponent		3.58	3.38	3.03	2.75	2.34	2.27	2.2	2.11	2.0
Pu40/Pu9	1	1.87	2.49	3.13	6.547	14.077	21.46	28.72	35.89	64.13
Exponent		0.90	0.99	1.025	1.06	1.10	1.04	1.01	0.99	0.837
Cs4/Pu9	1	3.325	5.375	7.75	23.65	63.65	110.38	161.47	218.1	500.85
Exponent		1.73	1.7	1.64	1.61	1.43	1.36	1.32	1.35	1.2
Pu9/Cs7	1	1.43	1.57	1.66	1.79	1.736	1.36	1.536	1.425	1.284
Exponent		0.52	0.32	0.25	0.109	-0.044	-0.155	-0.21	-0.25	-0.17
Cs4/Pu40	1	1.777	2.16	2.477	3.61	4.25	5.14	5.26	6.08	7.81
Exponent		0.83	0.68	0.61	0.54	0.24	0.47	0.31	0.35	0.36
Pu40/Cs7	1	2.67	3.92	5.20	11.7	24.44	24.99	44.12	52.116	86.35
Exponent		1.42	1.33	1.27	1.17	1.06	0.89	0.81	0.75	0.66
Cs4/Cs7	1	4.745	8.46	12.886	42.27	110.5	179.96	248.02	316.7	643.13
Exponent		2.25	2.01	1.89	1.71	1.39	1.20	1.115	1.09	1.02

Dosis	3 E+19	6 E+19	8 E+19	1 E+20	2 E+20	4 E+20	6 E+20	8 E+20	1 E+21	2 E+21
Pu9/U5	1	2.8777	4.249	5.645	12.455	25.32	37.514	49.45	61.434	141.48
Exponent		1.52	1.35	1.27	1.14	1.02	0.969	0.96	0.972	1.20
Pu40/U5	1	5.384	10.57	17.666	81.54	356.44	805.08	1420.4	2204.9	9073.3
Exponent		2.43	2.34	2.30	2.21	2.13	2.01	1.97	1.97	2.04
Cs4/U5	1	9.57	22.84	43.767	294.57	1611.6	4140.9	7984.6	13399	70857
Exponent		3.26	3.02	2.91	2.75	2.45	1.82	2.28	2.32	2.40
Cs7/U5	1	2.016	2.699	3.397	6.969	14.585	23.011	32.194	42.309	110.18
Exponent		1.011	1.014	1.03	1.037	1.065	1.12	1.17	1.22	1.38
Pu8/U6	1	11.948	31.53	65.706	538.0	3618.5	9452.2	17870	28807	1.2E+5
Exponent		3.58	3.37	3.29	3.03	2.75	2.37	2.21	2.14	2.05
Pu9/U6	1	1.42	1.57	1.66	1.79	1.74	1.655	1.56	1.478	1.46
Exponent		0.506	0.35	0.25	0.109	-0.041	-0.123	-0.205	-0.215	-0.129
Pu40/U6	1	2.66	3.90	5.19	11.745	24.55	35.53	44.93	53.36	86.98
Exponent		1.41	1.33	1.28	1.18	1.06	0.912	0.816	0.77	0.705
Cs4/U6	1	4.73	8.43	12.86	42.43	111.02	182.75	252.57	324.28	679.3
Exponent		2.24	2.01	1.89	1.72	1.39	1.23	1.125	1.12	1.07
Cs7/U6	1	0.997	0.997	0.998	1.0	1.0	1.015	1.018	1.024	1.056
Exponent		-0.004	0	0.004	0.003	0	0.037	0.026	0.038	0.044

## Verzeichnis der Abbildungen

- Abb.1: Äquatorial geschliffener Kern eines coated particles mit 3 x 5 Laser-gebohrten Löchern
- Abb.2: Schematische Darstellung des Alpha-Meßstandes (Seite 9)
- Abb.3: Eindringtiefe geladener Teilchen in Silizium in Abhängigkeit von der Energie der Teilchen (Seite 10)
- Abb.4: Nomogramm für Si-Detektoren zur Ermittlung der Detektorspannung (Seite 11)
- Abb.5: Querschnitt eines Oberflächen-Sperrschicht-Zählers (Seite 12)
- Abb.6: Bestimmung der Halbwertsbreite von Alpha-peaks
- Abb.7: Auflösungsvermögen eines Zählers als Funktion vom Abstand Zähler-Präparat
- Abb.8: Halbwertsbreite eines Am-241 peaks in Abhängigkeit vom Abstand Zähler-Präparat
- Abb.9: Meßvorrichtung zur Bestimmung der Massenverteilung auf einem durch Laser-Mikro-Bohren hergestellten Präparat (Seite 17)
- Abb.10: Alpha-Aktivität der Materialverteilung eines Laser-Präparates (Seite 18)
- Abb.11: Koordinaten für die x-, y-Darstellung der Alpha-Aktivität eines Laser-Präparates (Seite 18)
- Abb.12: Verteilung des verdampften Materials eines durch Laser-Mikro-Bohren hergestellten Alpha-Präparates
- Abb.13: Abzissenwerte der Verteilungsfunktion, experimentell und analytisch ermittelt (Seite 19)
- Abb.14: Alpha-Spektrum einer Probe aus dem Bestrahlungsexperiment DR-K4
- Abb.15: Alpha-Spektrum einer Probe aus dem Bestrahlungsexperiment FRJ2-P15
- Abb.16: SAMPO-Analyse mit zwei peaks für den Energiebereich von 4.6 bis 4.9 MeV aus Abb.14

- Abb.17: SAMPO-Analyse mit drei peaks für den Energiebereich von 4.7 bis 5 MeV aus Abb.14
- Abb.18: Auflösung der Am-241/Pu-238 peaks aus Abb.15
- Abb.19: Auflösung der Pu-239/Pu-240 peaks aus Abb.14
- Abb.20: Auflösung der U-232 peaks aus Abb.14
- Abb.21: Auflösung der Pu-238 peaks aus Abb.14
- Abb.22: Auflösung des Ra-224 peaks aus Abb.14
- Abb.23: Auflösung der Cm-244 peaks aus Abb.14
- Abb.24: Auflösung des Rn-220 peaks aus Abb.14
- Abb.25: Auflösung des Po-216 peaks aus Abb.14
- Abb.26: Auflösung der Pu-239/Pu-240 peaks aus Abb.15
- Abb.27: Auflösung des Am-243 peaks aus Abb.15
- Abb.28: Auflösung der Cm-244 peaks aus Abb.15
- Abb.29: Auflösung der Cm-242 peaks aus Abb.15
- Abb.30: Spektrum des Am-241 Eichpräparates
- Abb.31: Radienabhängigkeit der Nuklidkonzentration im Kern eines bestrahlten HTR-Partikels (Seite 35)
- Abb.32: Alpha-Spektrum einer Probe aus dem Bestrahlungsexperiment DR-K5 (Kugel 21)
- Abb.33: Auflösung der Pu-239/Pu-240 peaks aus Abb.32
- Abb.34: Auflösung der Am-241/Pu-238 peaks aus Abb.32
- Abb.35: Auflösung der Cm-242 peaks aus Abb.32
- Abb.36: Auflösung der Cm-244 peaks aus Abb.32
- Abb.37: Alpha-Spektrum einer Probe aus dem Bestrahlungsexperiment FRJ2-P16
- Abb.38: Auflösung der Pu-239/Pu-240 peaks aus Abb.37
- Abb.39: Auflösung der Am-241/Pu-238 peaks aus Abb.37
- Abb.40: Auflösung der Cm-244 peaks aus Abb.37
- Abb.41: Alpha-Spektrum einer Probe aus dem Bestrahlungsexperiment DR-P4 Mag.34

- Abb.42: Auflösung der Pu-239/Pu-240 peaks aus Abb.41
- Abb.43: Auflösung der Am-241/Pu-238 peaks aus Abb.41
- Abb.44: Auflösung der Cm-244 peaks aus Abb.41
- Abb.45: Alpha-Spektrum einer Probe aus dem Bestrahlungsexperiment DR-P4 Mag.11
- Abb.46: Auflösung der Pu-239/Pu-240 peaks aus Abb.45
- Abb.47: Auflösung der Am-241/Pu-238 peaks aus Abb.45
- Abb.48: Auflösung der Cm-244 peaks aus Abb.45
- Abb.49: Alpha-Spektrum einer Probe aus dem Bestrahlungsexperiment DR-P6 Kap. A3
- Abb.50: Auflösung der Pu-239/Pu-240 peaks aus Abb.49
- Abb.51: Auflösung der Pu-238 peaks aus Abb.49
- Abb.52: Alpha-Spektrum einer Probe aus dem Bestrahlungsexperiment FRJ2-P18
- Abb.53: Auflösung der U-234 peaks aus Abb.52
- Abb.54: Auflösung der Pu-239/Pu-240 peaks aus Abb.52
- Abb.55: Auflösung der Pu-238 peaks aus Abb.52
- Abb.56: ORIGEN-Input (Seite 47)
- Abb.57: Ausriß aus einem ORIGEN-Output (Seite 48)
- Abb.58: Nuklidkonzentration als Funktion der Dosis
- Abb.59: Isotopenkorrelation  $U-236 = f(Cs-137)$
- Abb.60: Isotopenkorrelation  $1/U-235 = f(Cs-134/U-236)$   
für LEU und MEU
- Abb.61: Isotopenkorrelation  $1/U-235 = f(Cs-134/U-236)$   
für HEU
- Abb.62: Isotopenkorrelation  $Pu-240/U-236 = f(U-236)$  für LEU  
und MEU
- Abb.63: Isotopenkorrelation  $Pu-240/U-236 = f(U-236)$  für HEU
- Abb.64: Isotopenkorrelation  $Pu-240/Cs-137 = f(Pu-239)$  für  
LEU und MEU

Abb.65: Isotopenkorrelation Pu-240/Cs-137 = f(Pu-239)  
für HEU

Abb.66: Isotopenkorrelation Cs-134/U-236 = f(Pu-238/Cs-134)  
für LEU und MEU

Abb.67: Isotopenkorrelation Cs-134/U-236 = f(Pu-238/Cs-134)  
für HEU

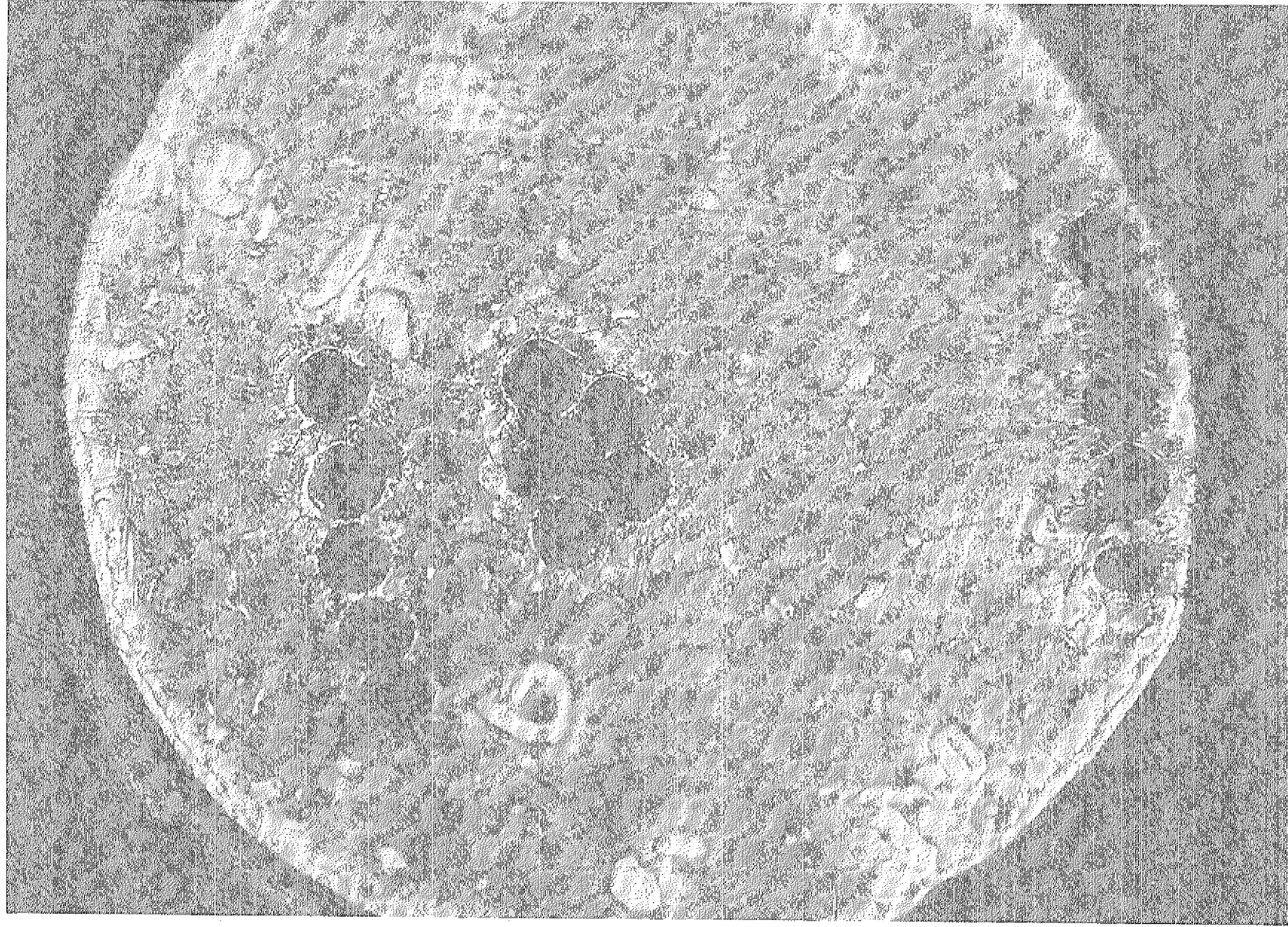


Abb. 1: Äquatorial geschliffener Kern eines coated particles  
mit 3 x 5 Laser-gebohrten Löchern

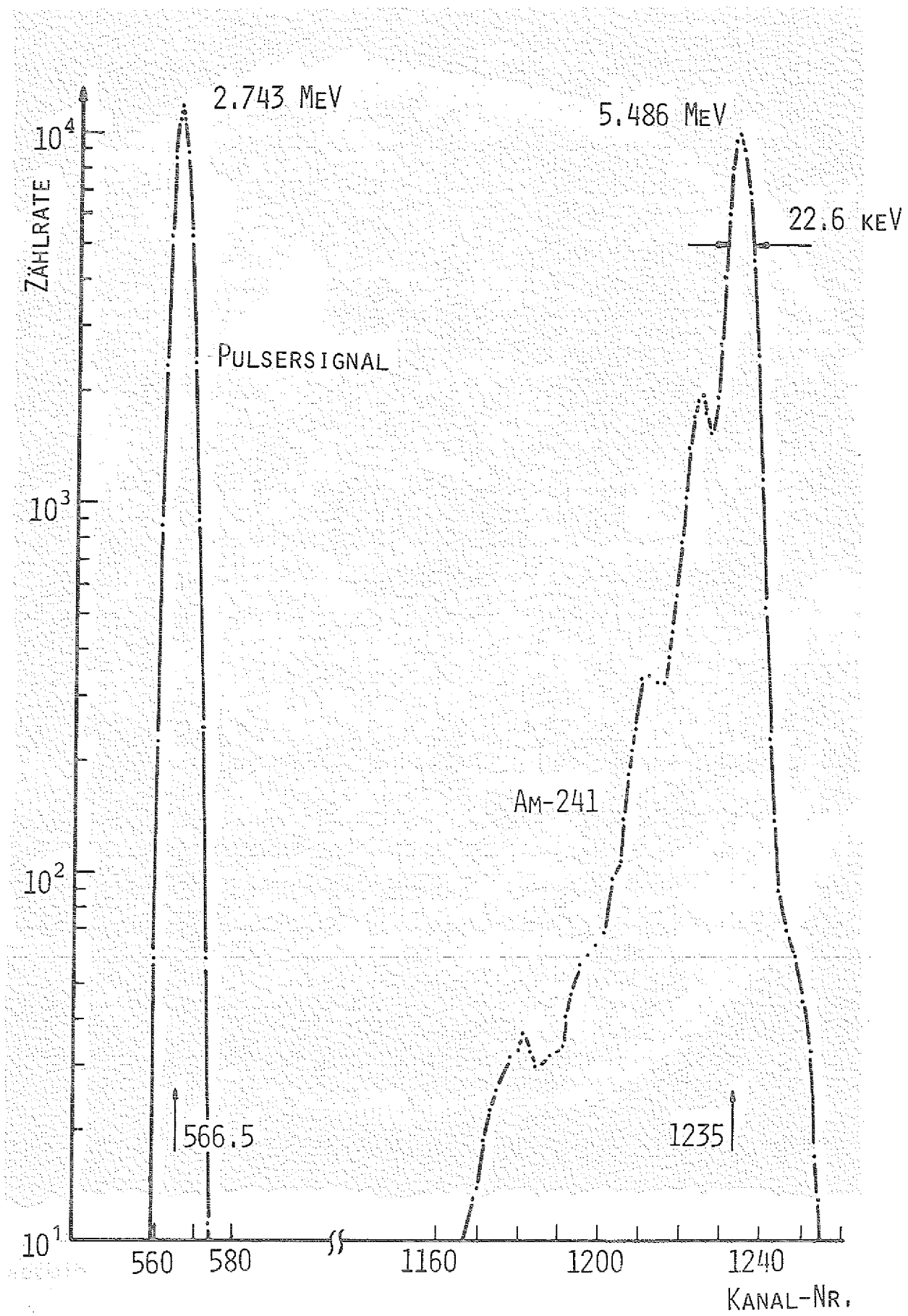
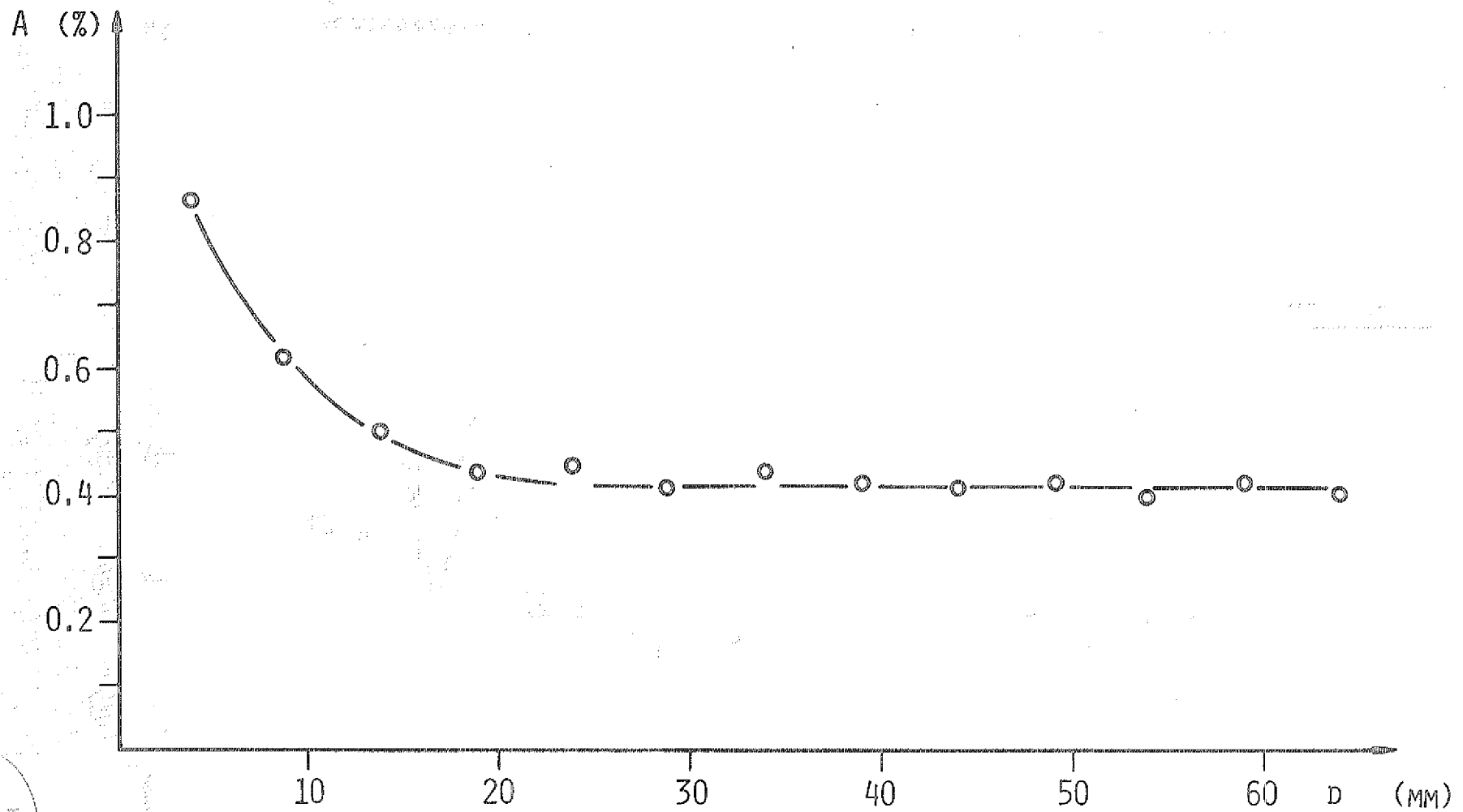


Abb. 6: Bestimmung der Halbwertsbreite von Alpha-Peaks



KFA  
 Zentralbibliothek  
 Jülich

Abb. 7: Auflösungsvermögen ( $A$ ) als Funktion vom Abstand Zähler-Präparat

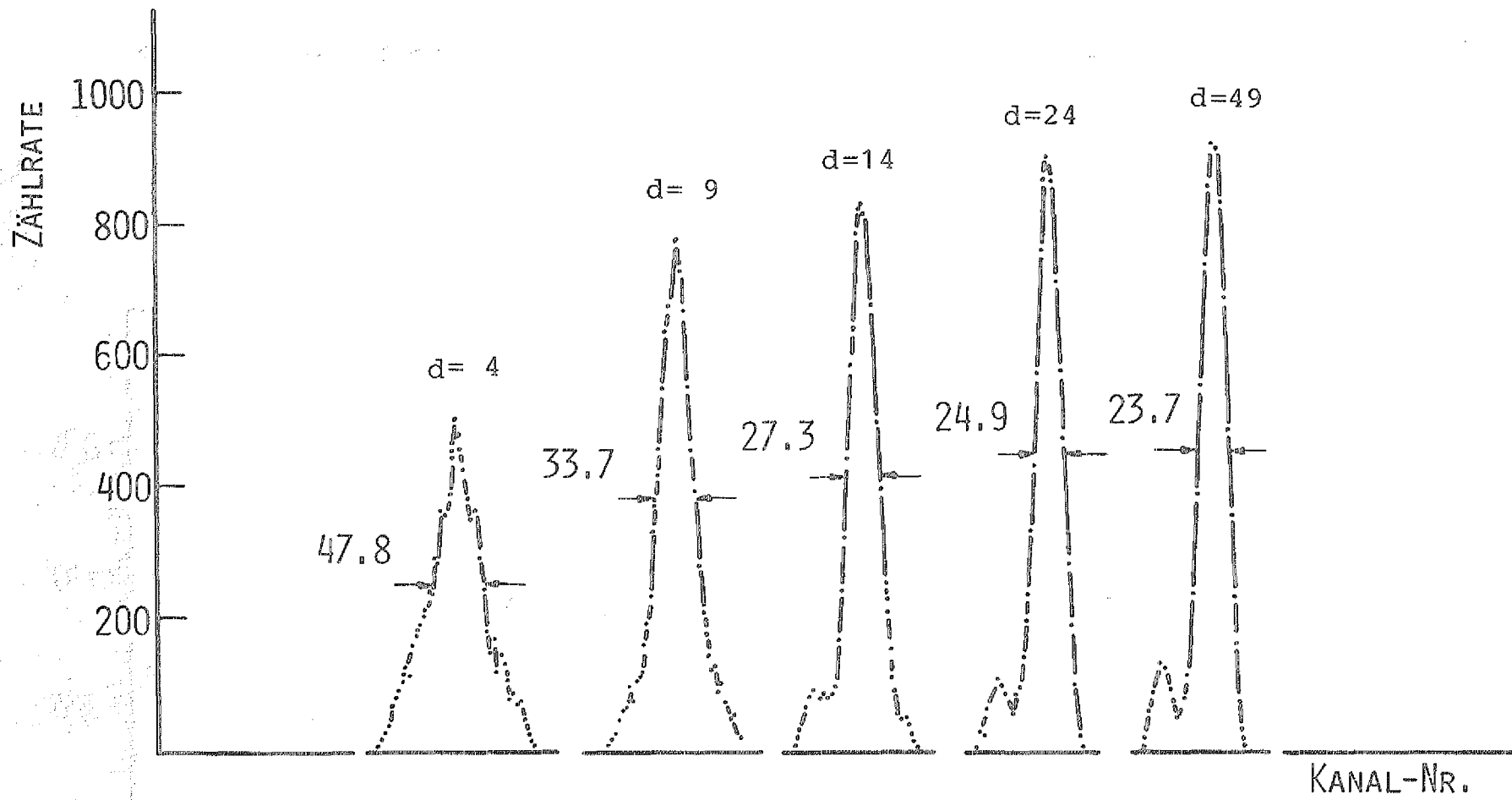


Abb. 8: Halbwertsbreite eines Am-241 peaks in Abhängigkeit vom Abstand Zähler-Präparat

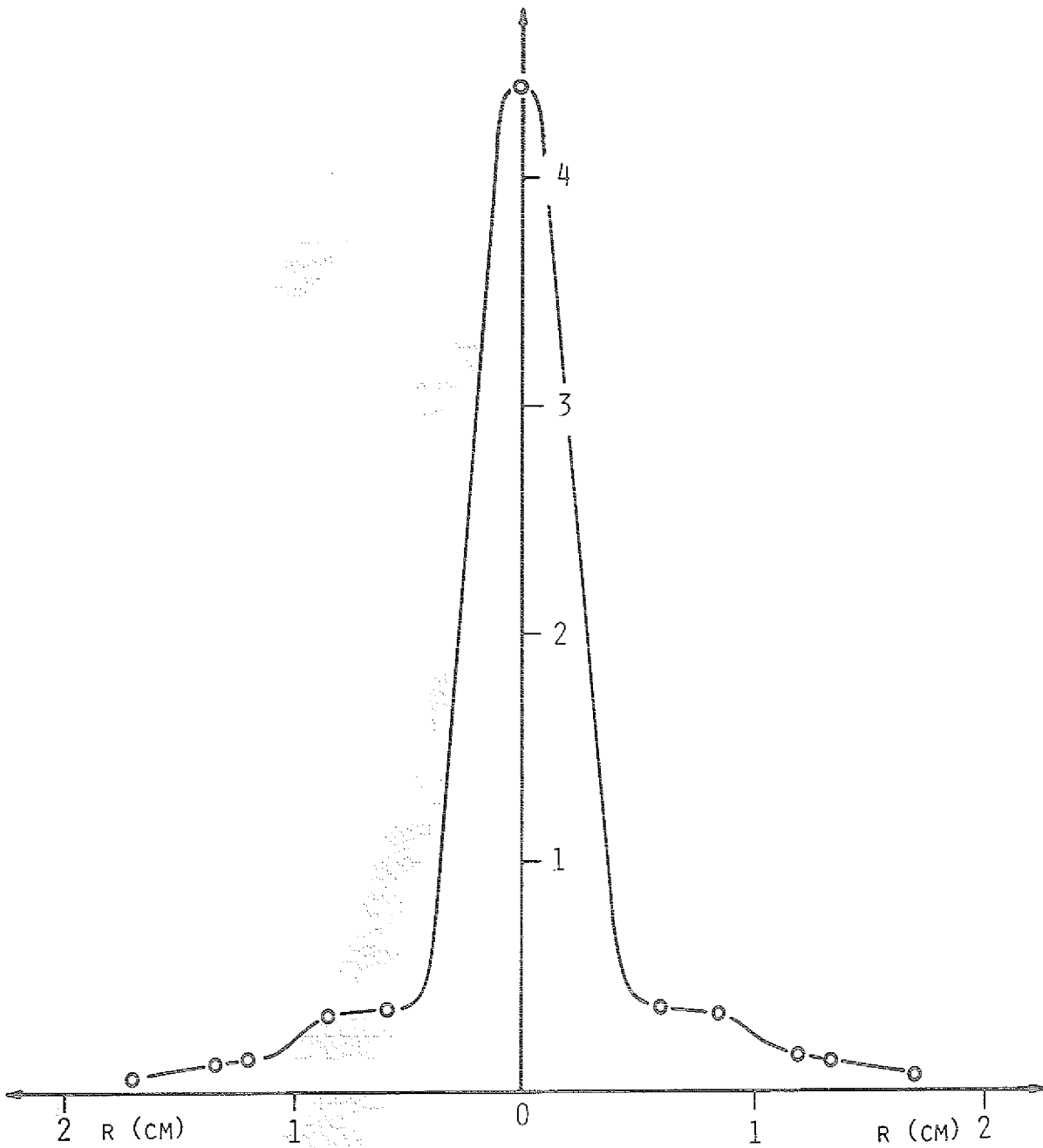


Abb. 12: Verteilung des verdampften Materials eines durch Laser-Mikro-Bohren hergestellten Alpha-Präparates

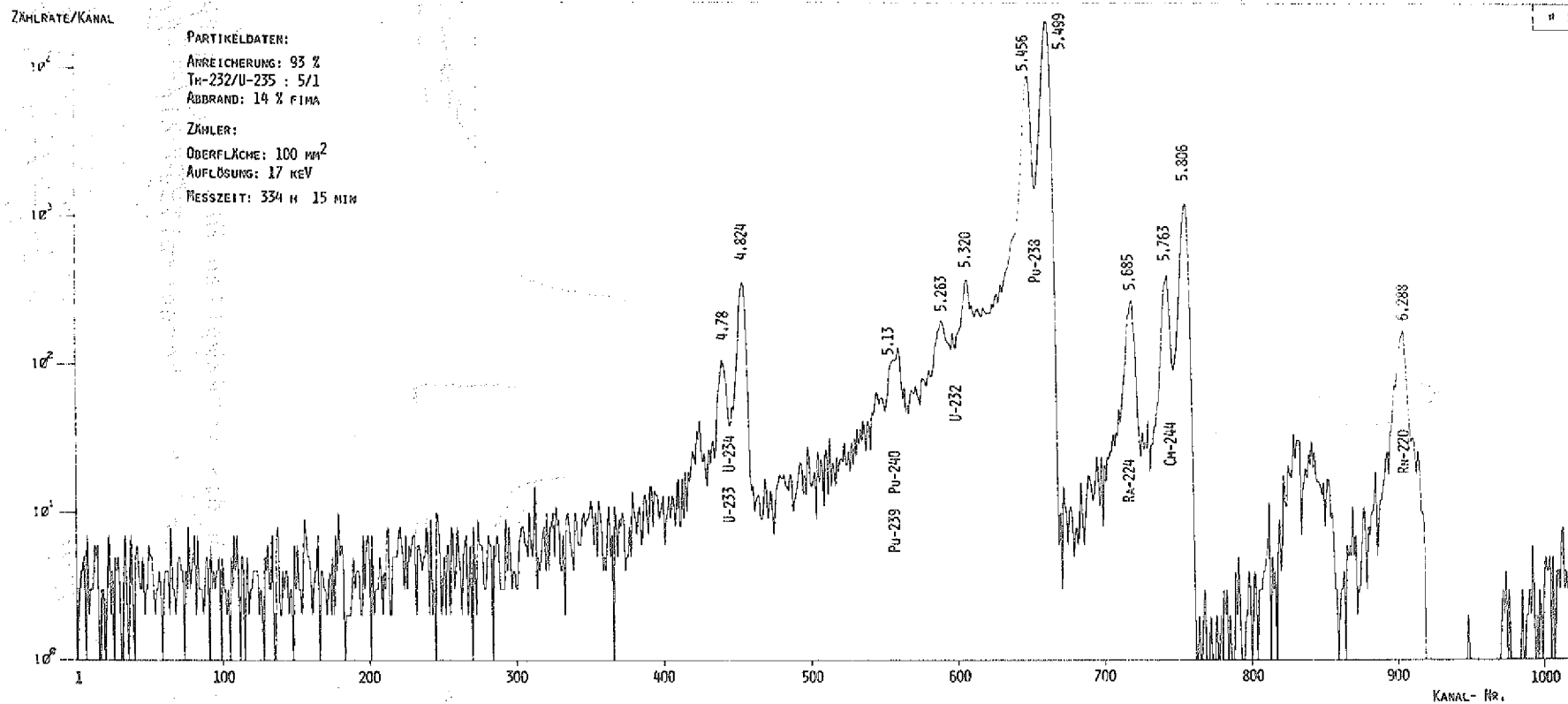


Abb. 14: Alpha-Spektrum einer Probe aus dem Bestrahlungsexperiment DR-K4

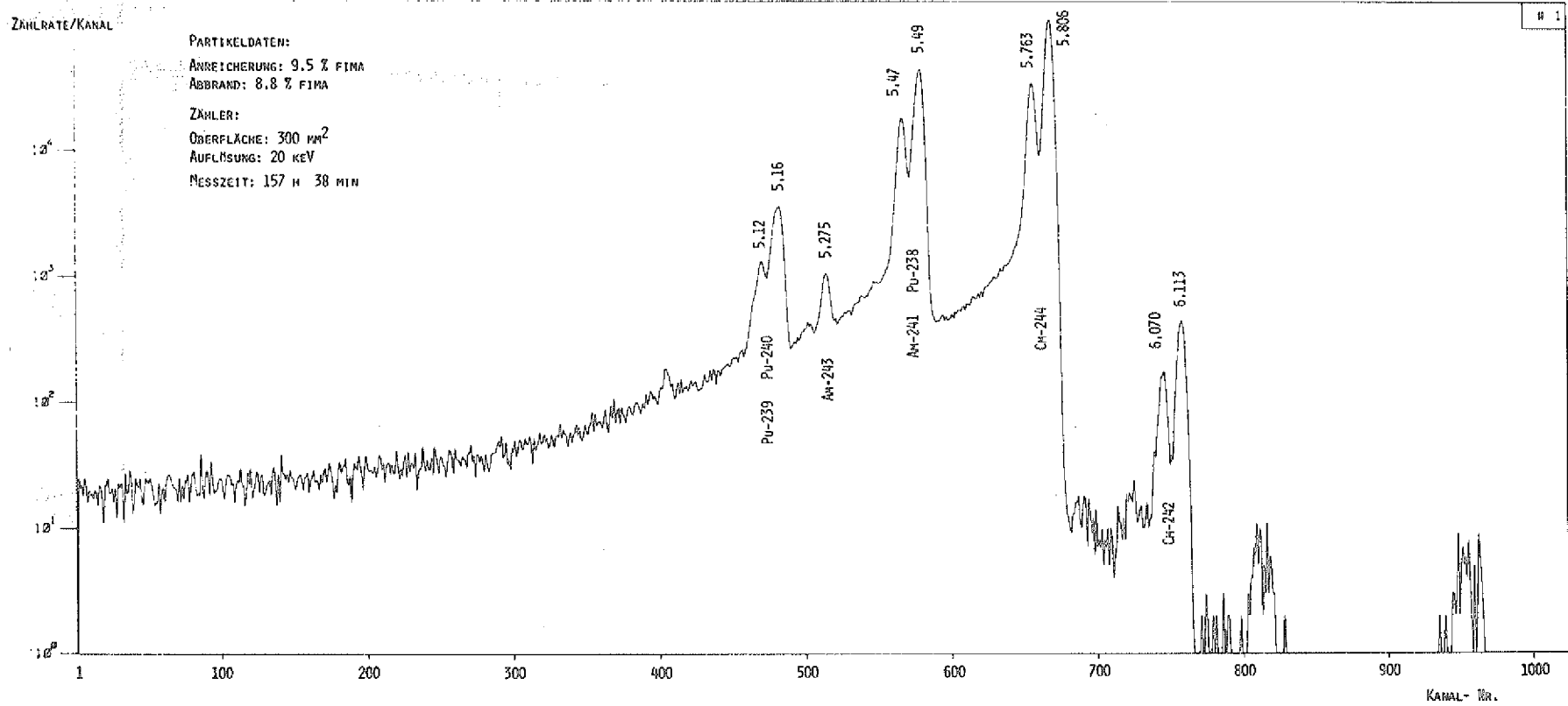


Abb. 15: Alpha-Spektrum einer Probe aus dem Bestrahlungsexperiment FRJ2-P15

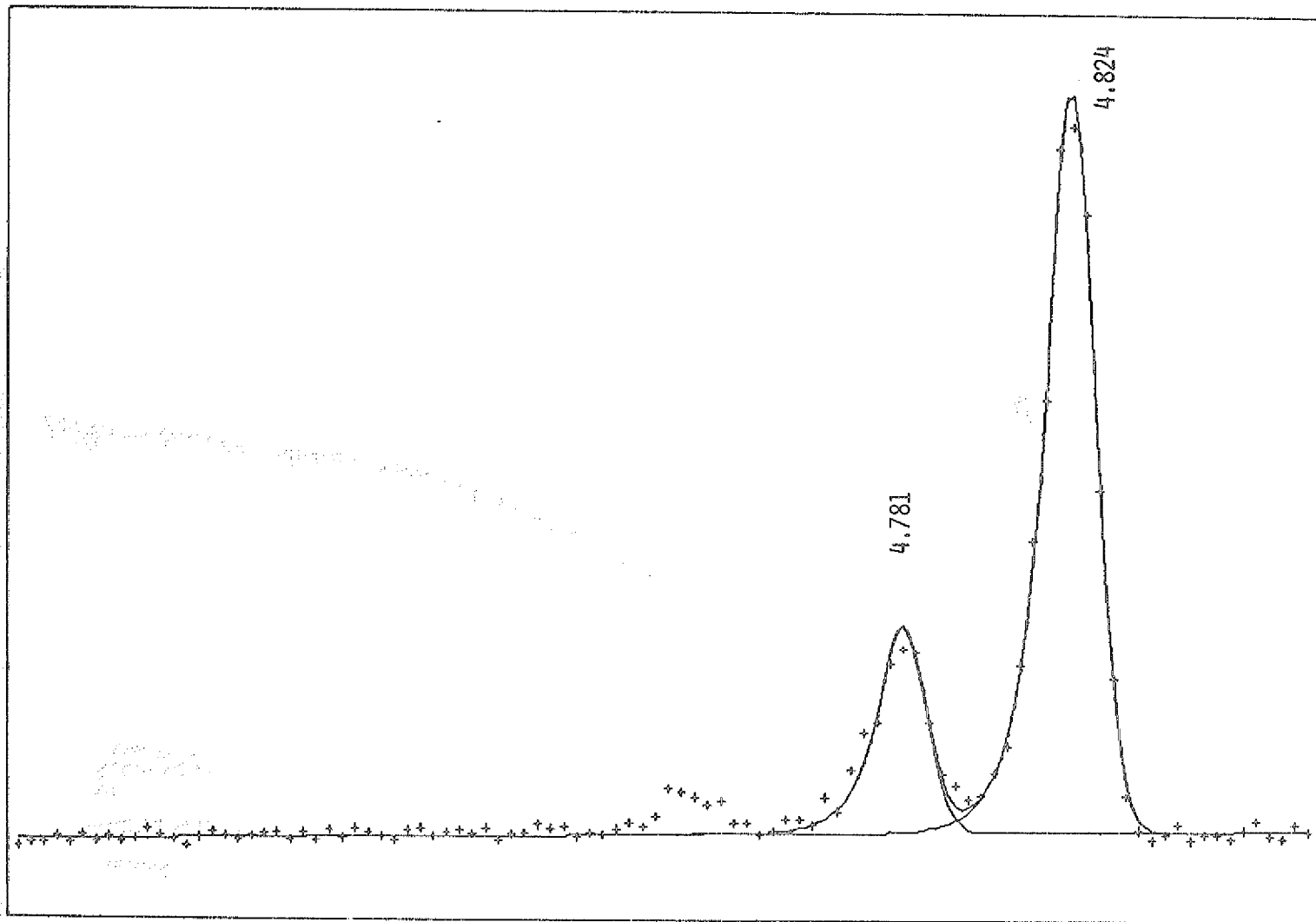


Abb. 16: SAMP0-Analyse mit zwei peaks für den Energiebereich von 4.6 bis 4.9 MeV aus Abb.14

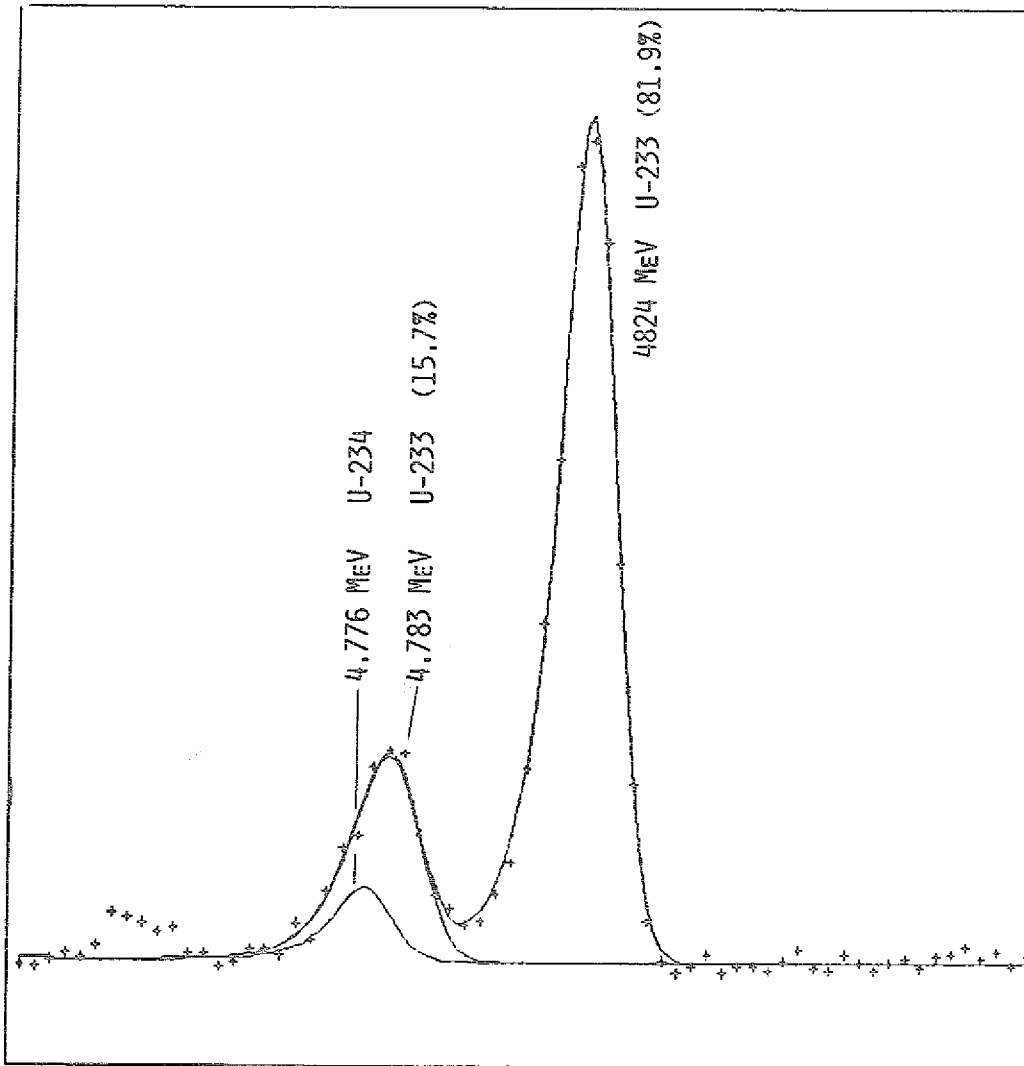
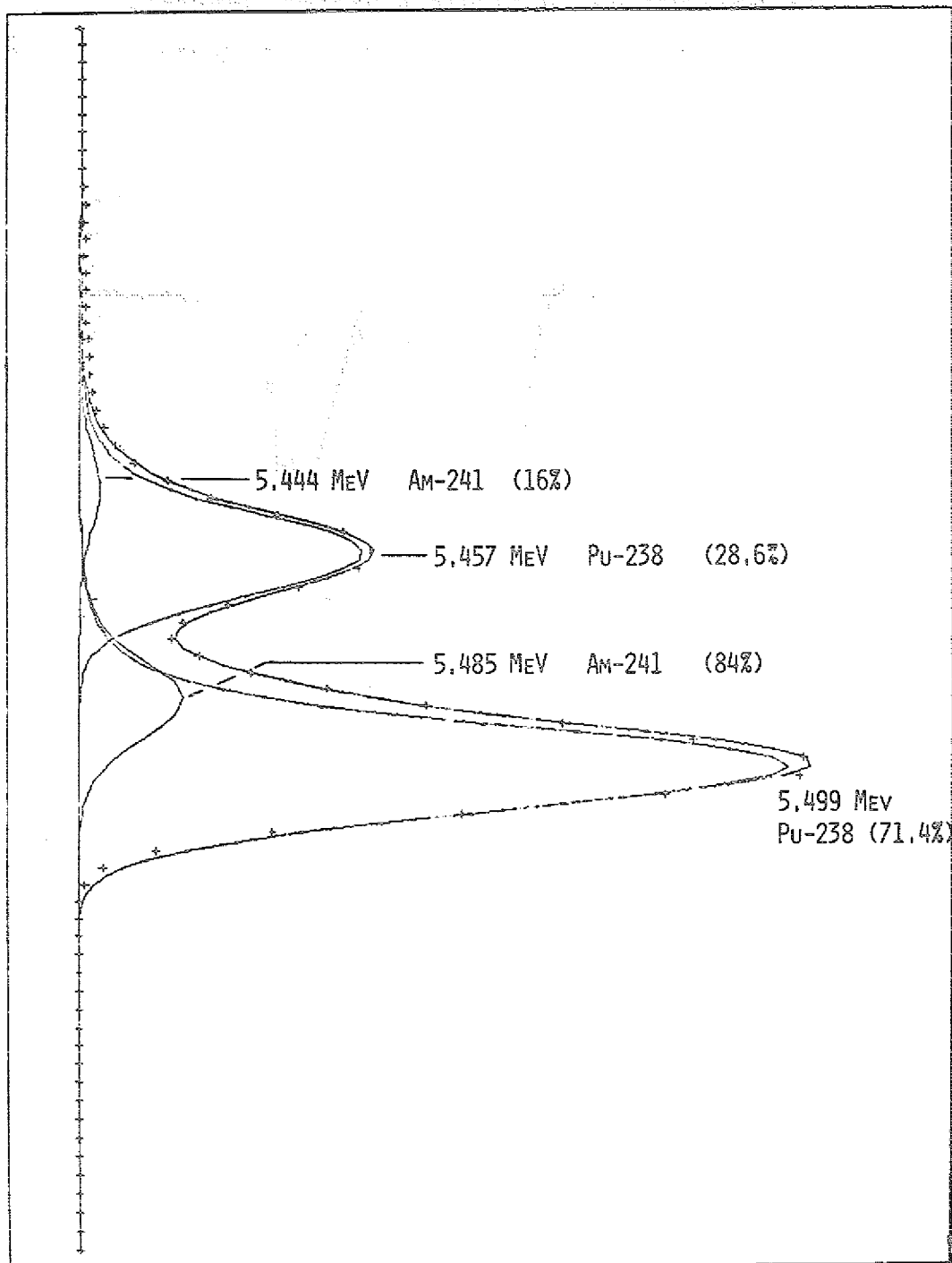


Abb. 17: SAMP0-Analyse mit drei peaks für den Energiebereich 4.6 bis 5 MeV aus Abb.14

Abb. 18: Auflösung der Am-241/Pu-238 peaks aus Abb. 15



IKP-JUELICH 28-MAR-1980 STATOS 33

IKP-JUELICH 16-R09-1979 STATOS 33

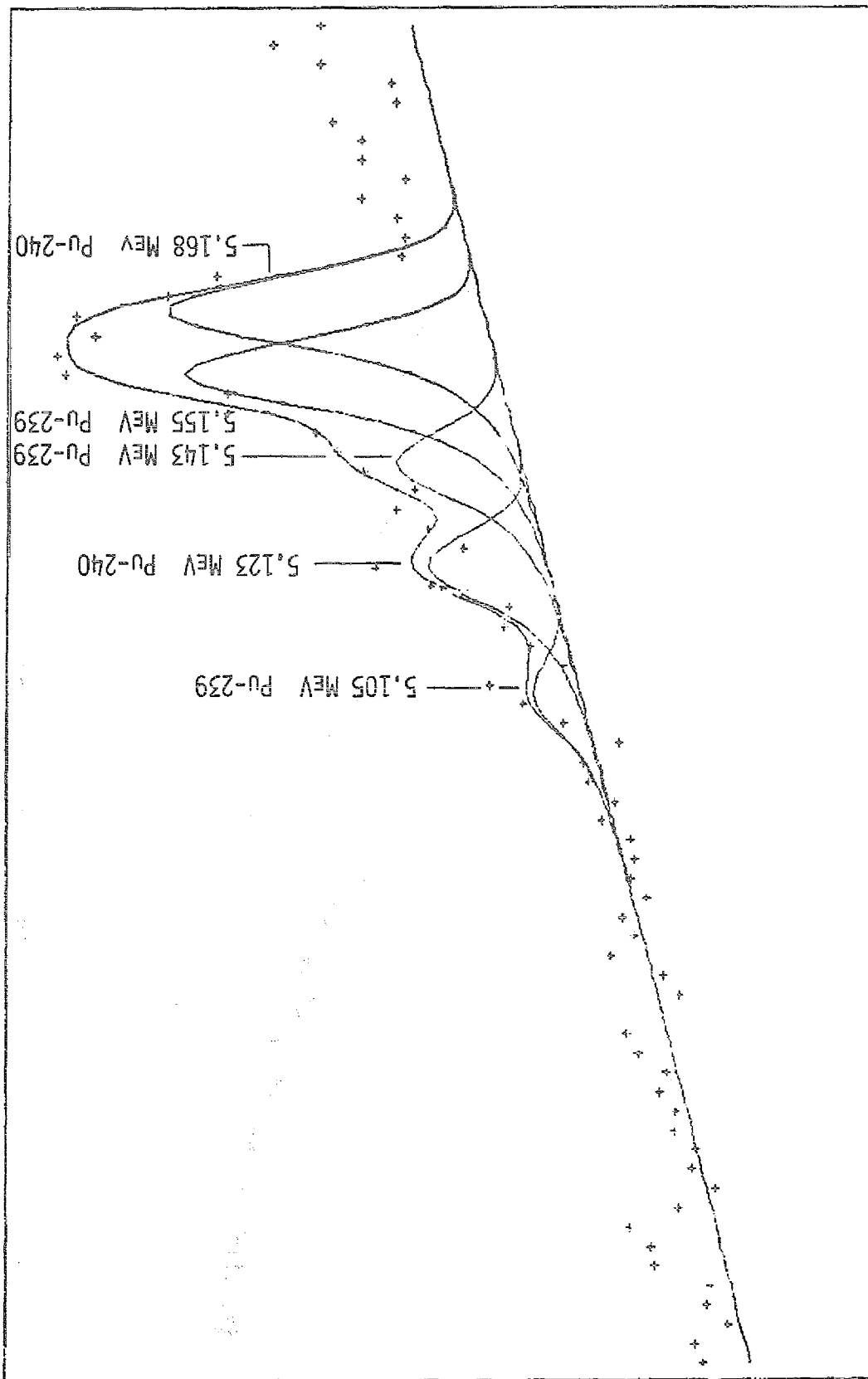
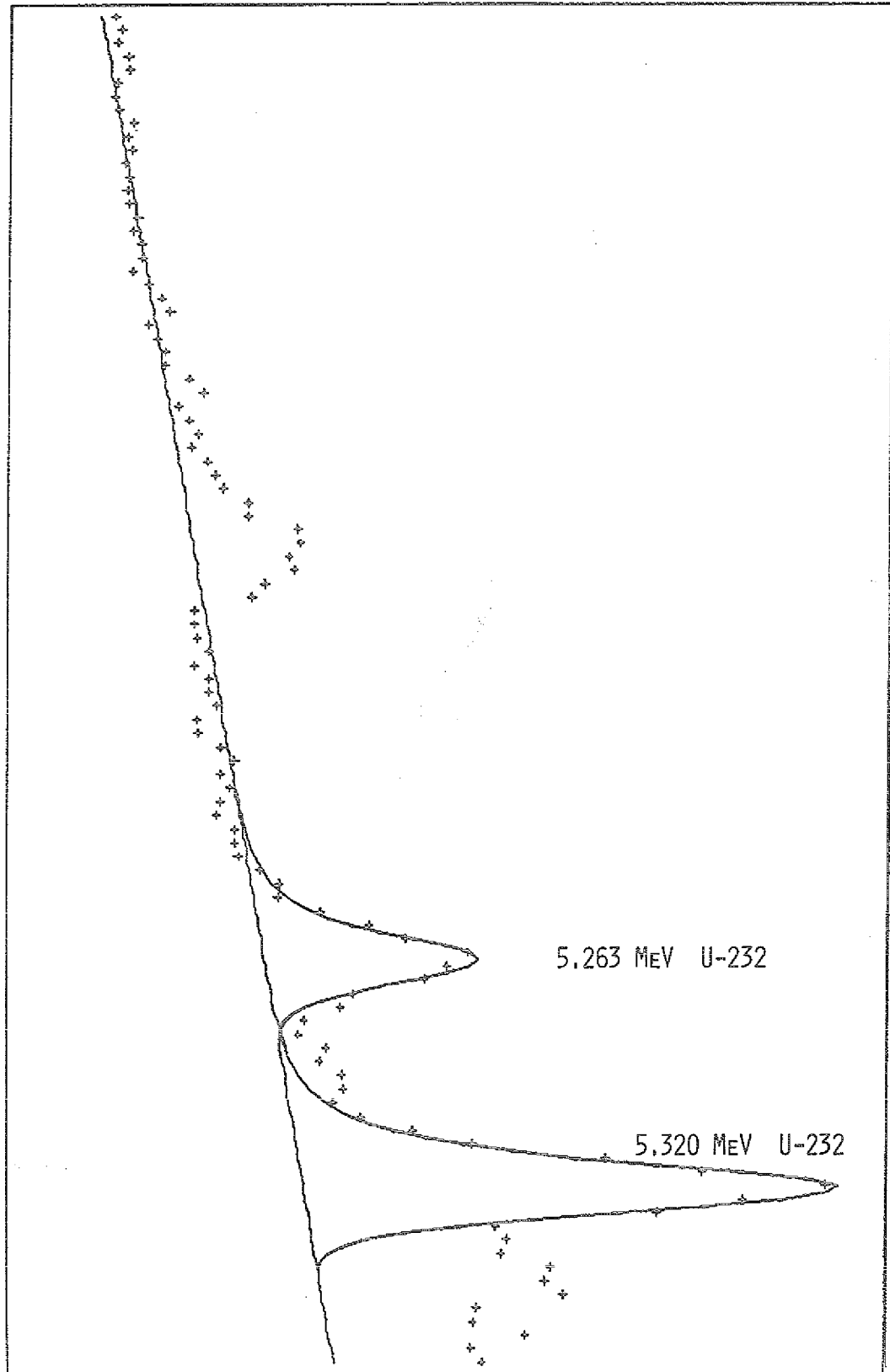


Abb. 19: Auflösung der Pu-239/Pu-240 peaks aus Abbildung 14

Abb. 20: Auflösung der U-232 peaks aus Abbildung 14



IKP-JUELICH 16-AUG-1979 STATOS 39

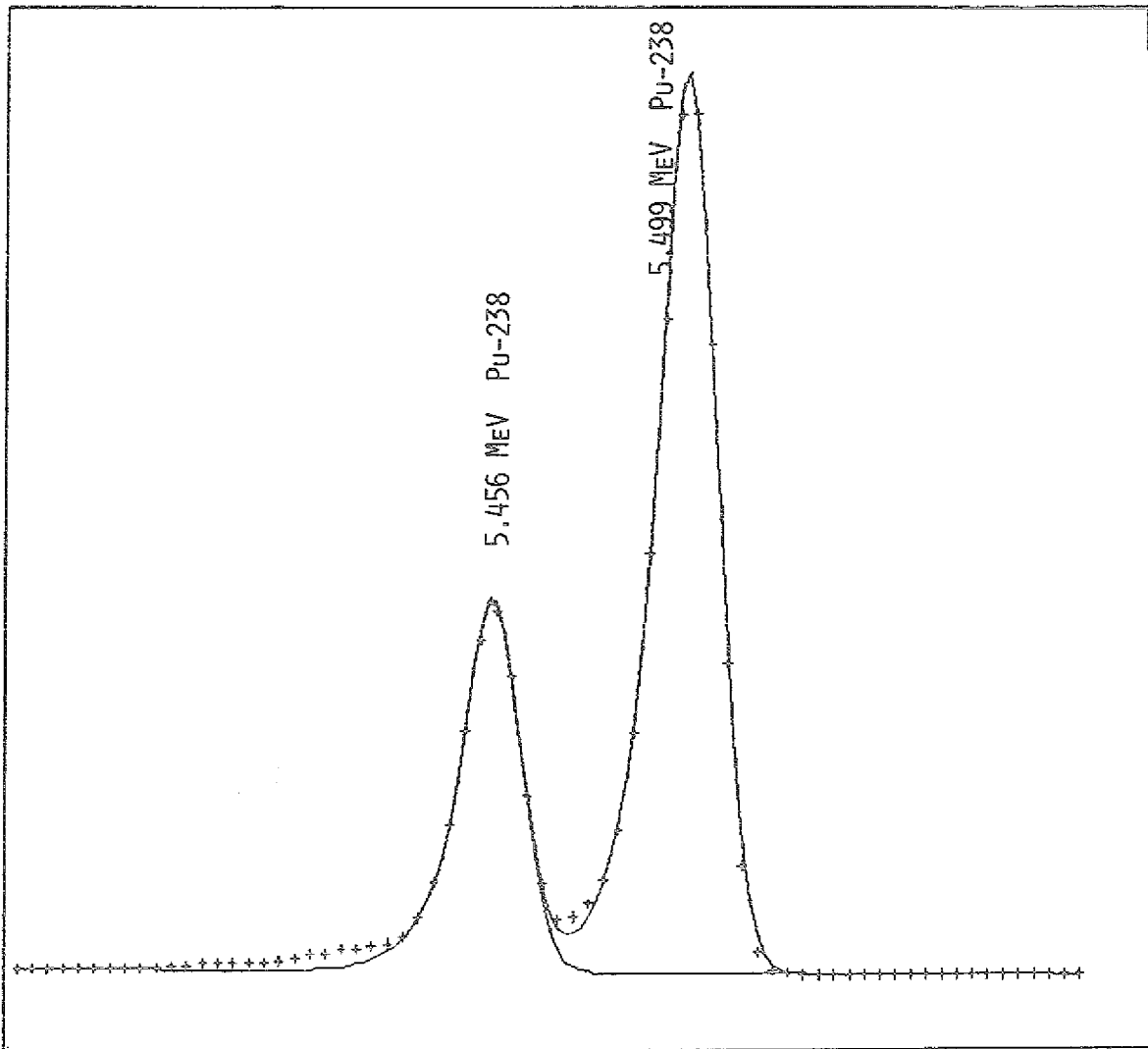
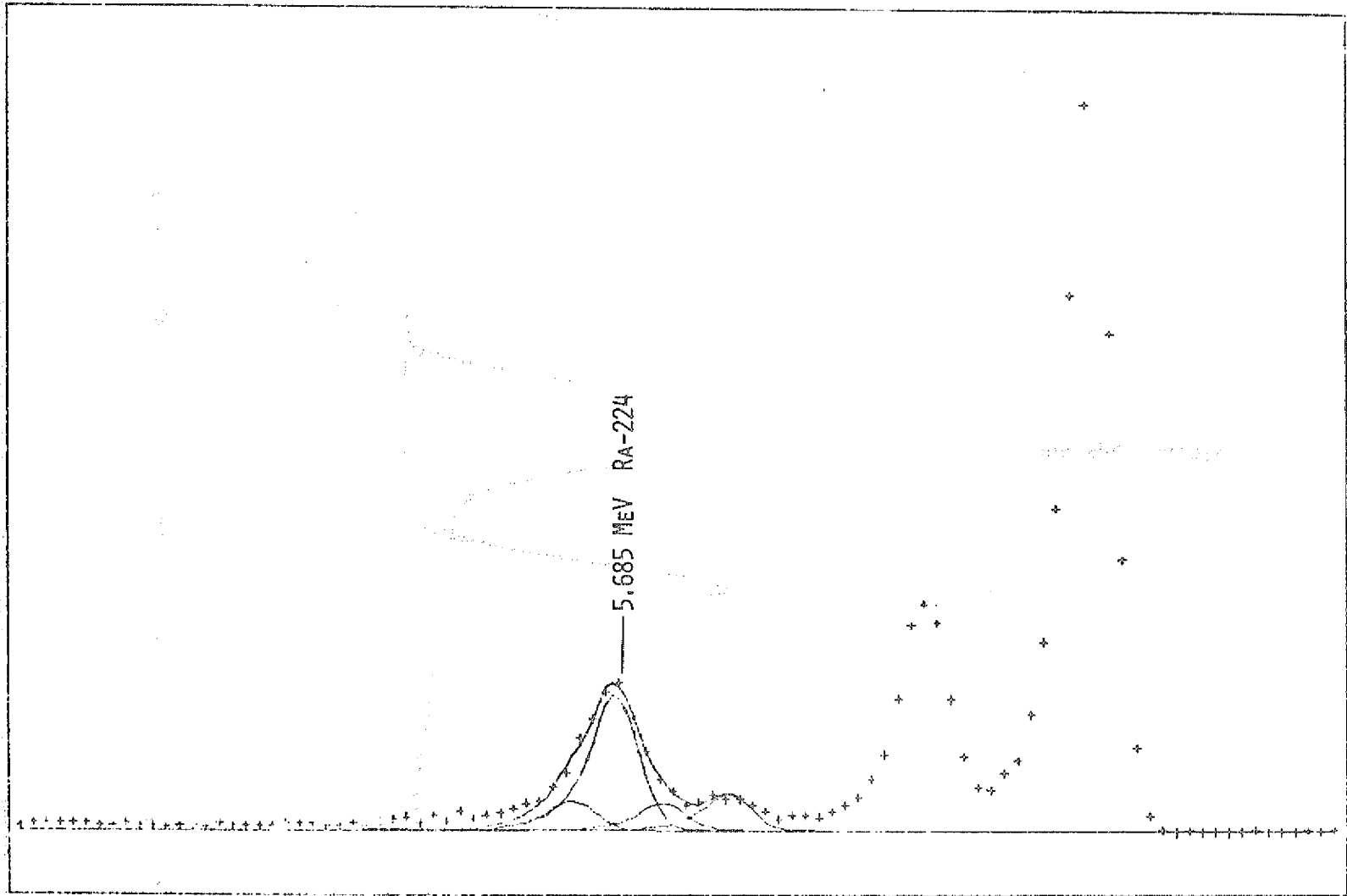


Abb. 21: Auflösung der Pu-238 peaks aus Abbildung 14



STATOS 32  
0011300-04  
25-JUL-1979

Abb. 22: Auflösung des Ra-224 peaks aus Abbildung 14

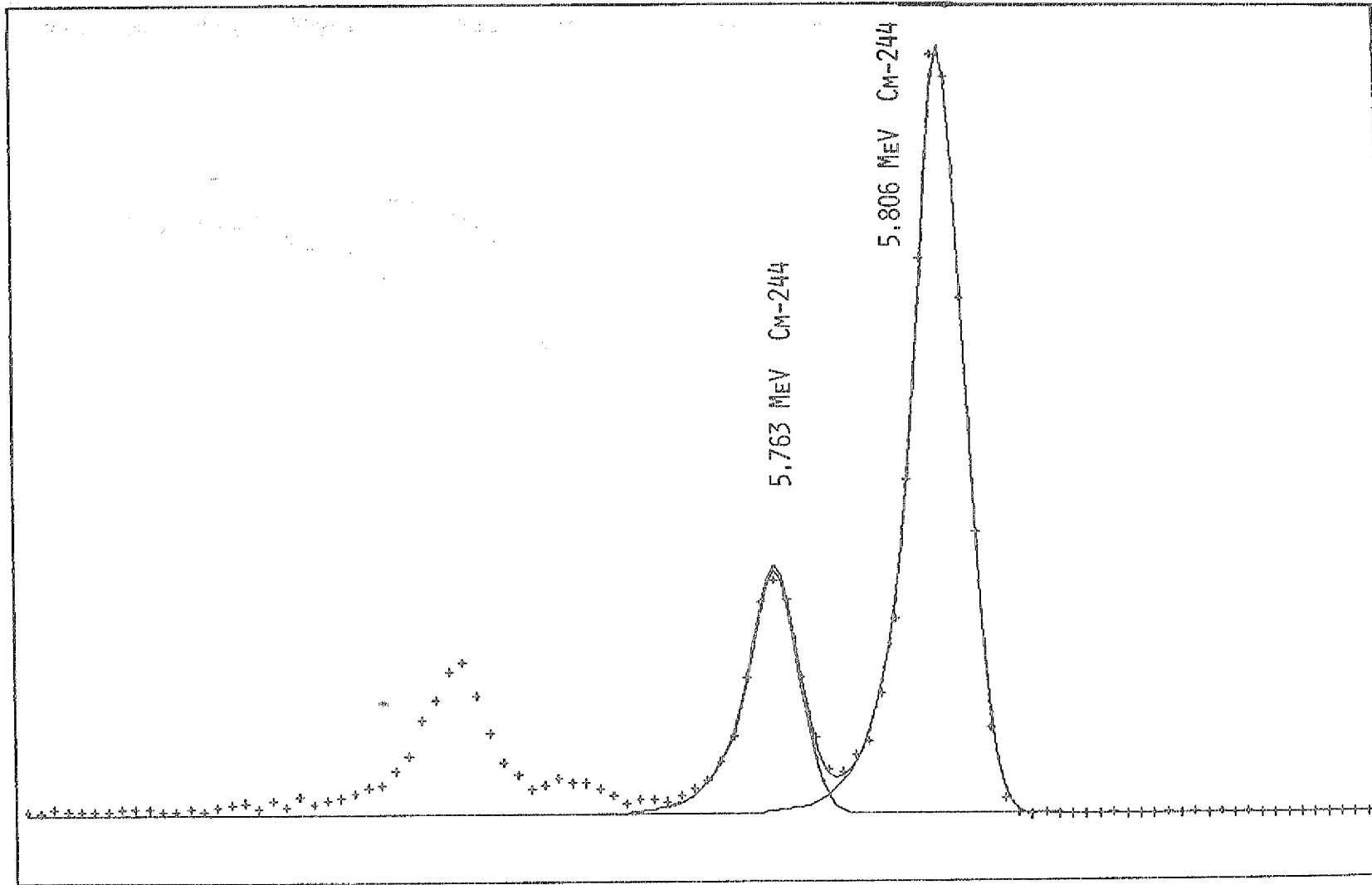


Abb. 23: Auflösung der Cm-244 peaks aus Abbildung 14

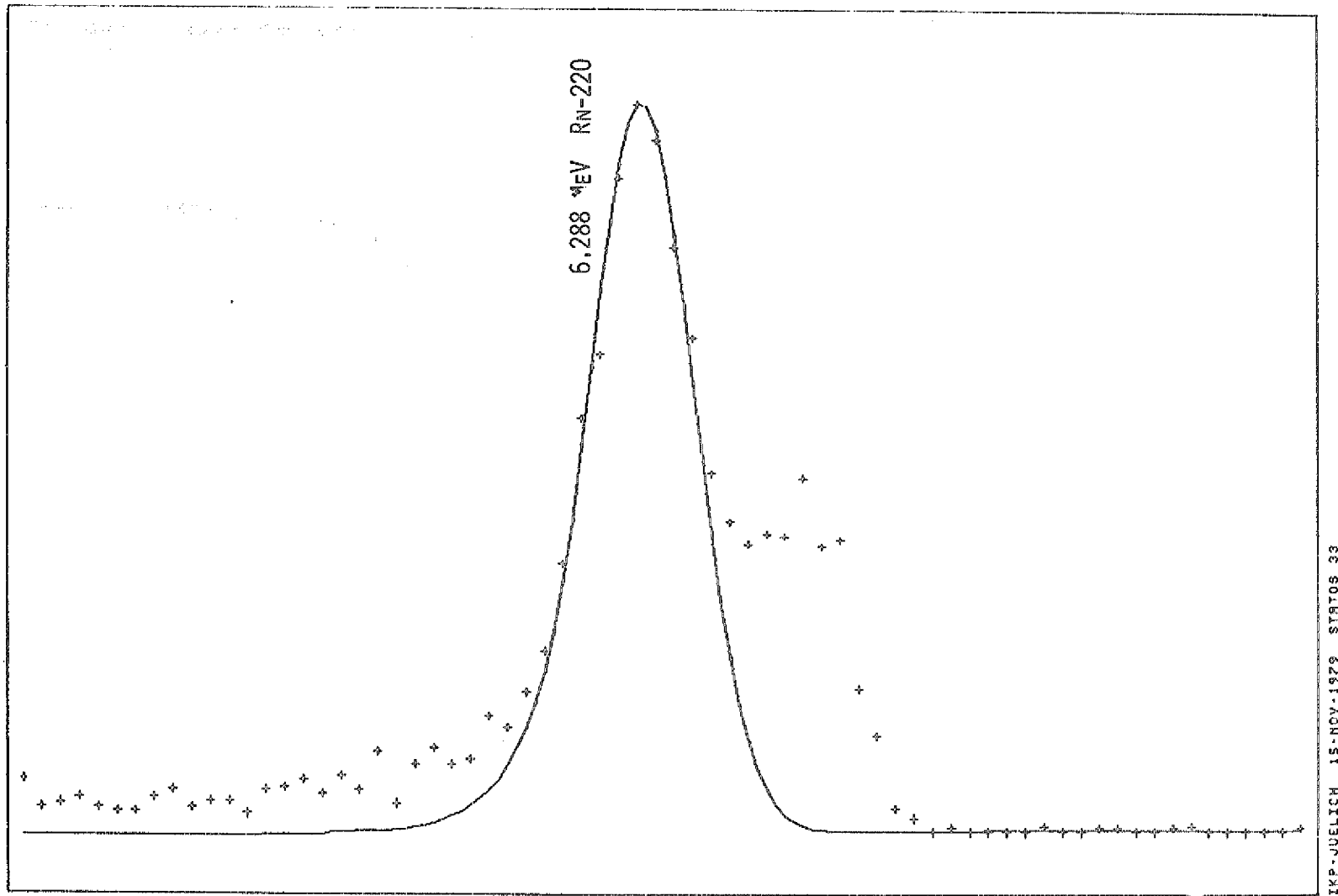
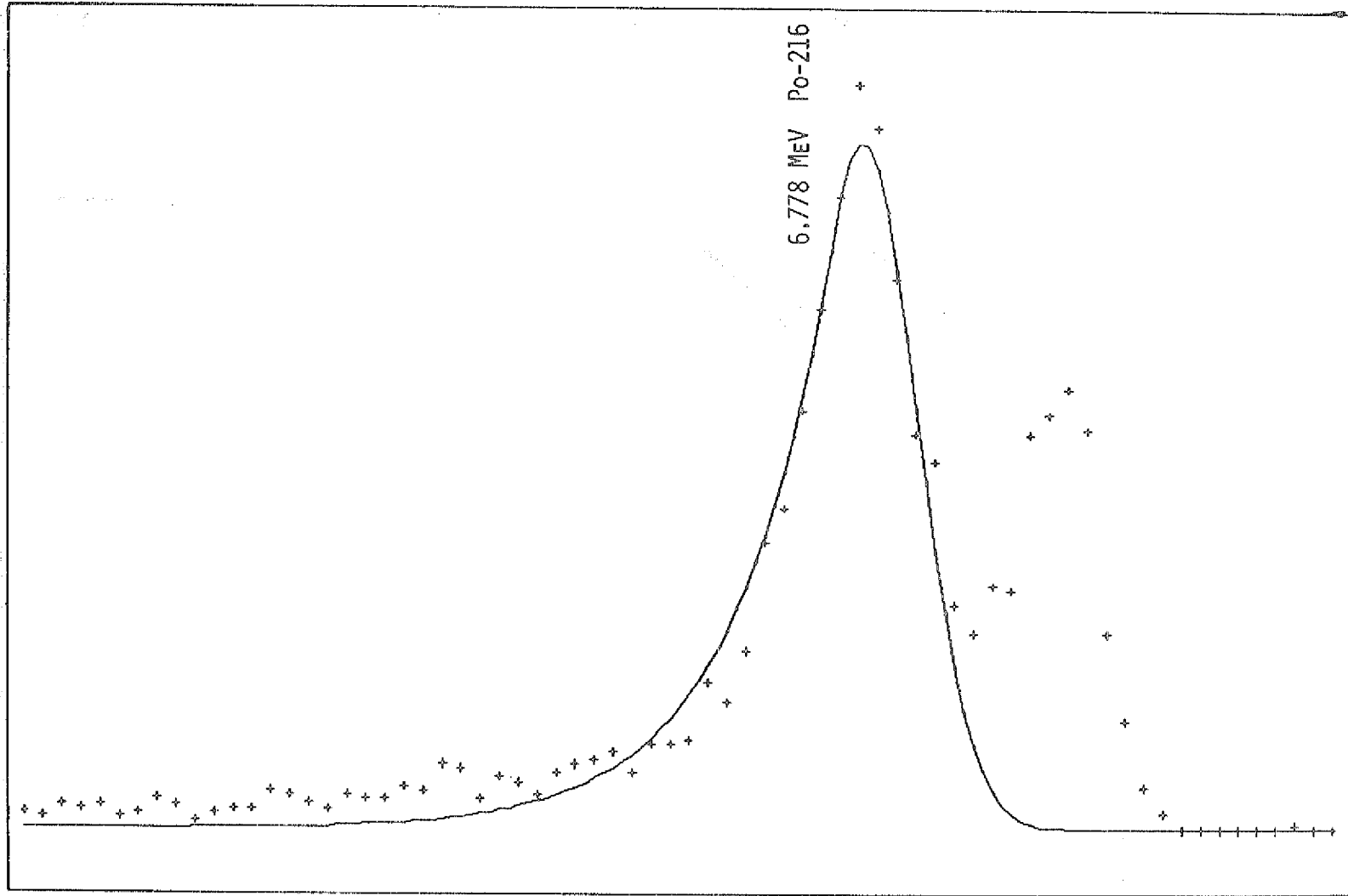


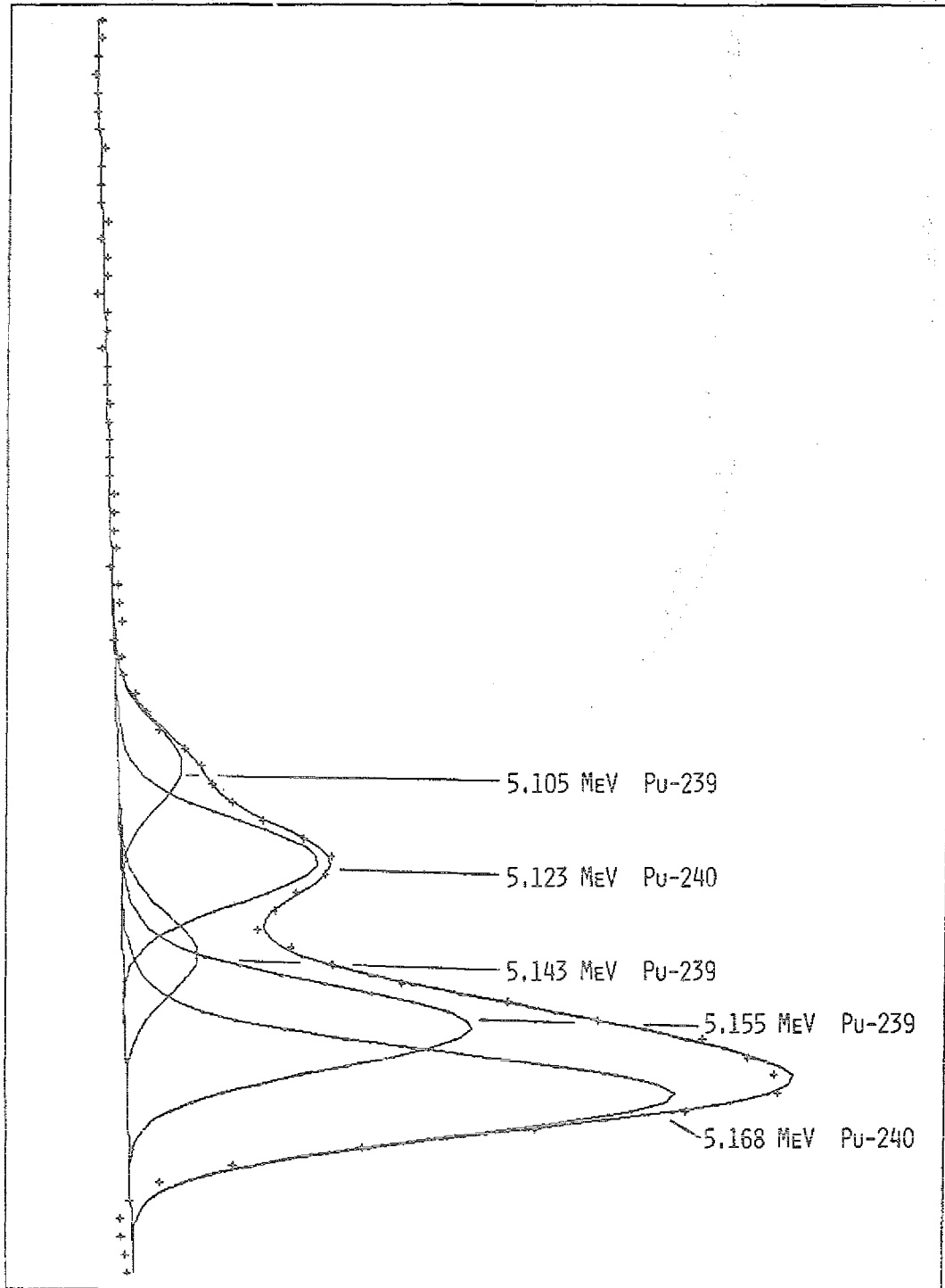
Abb. 24: Auflösung des Rn-220 peaks aus Abbildung 14



IKP-JUELICH 15-NOV-1979 STATUS 33

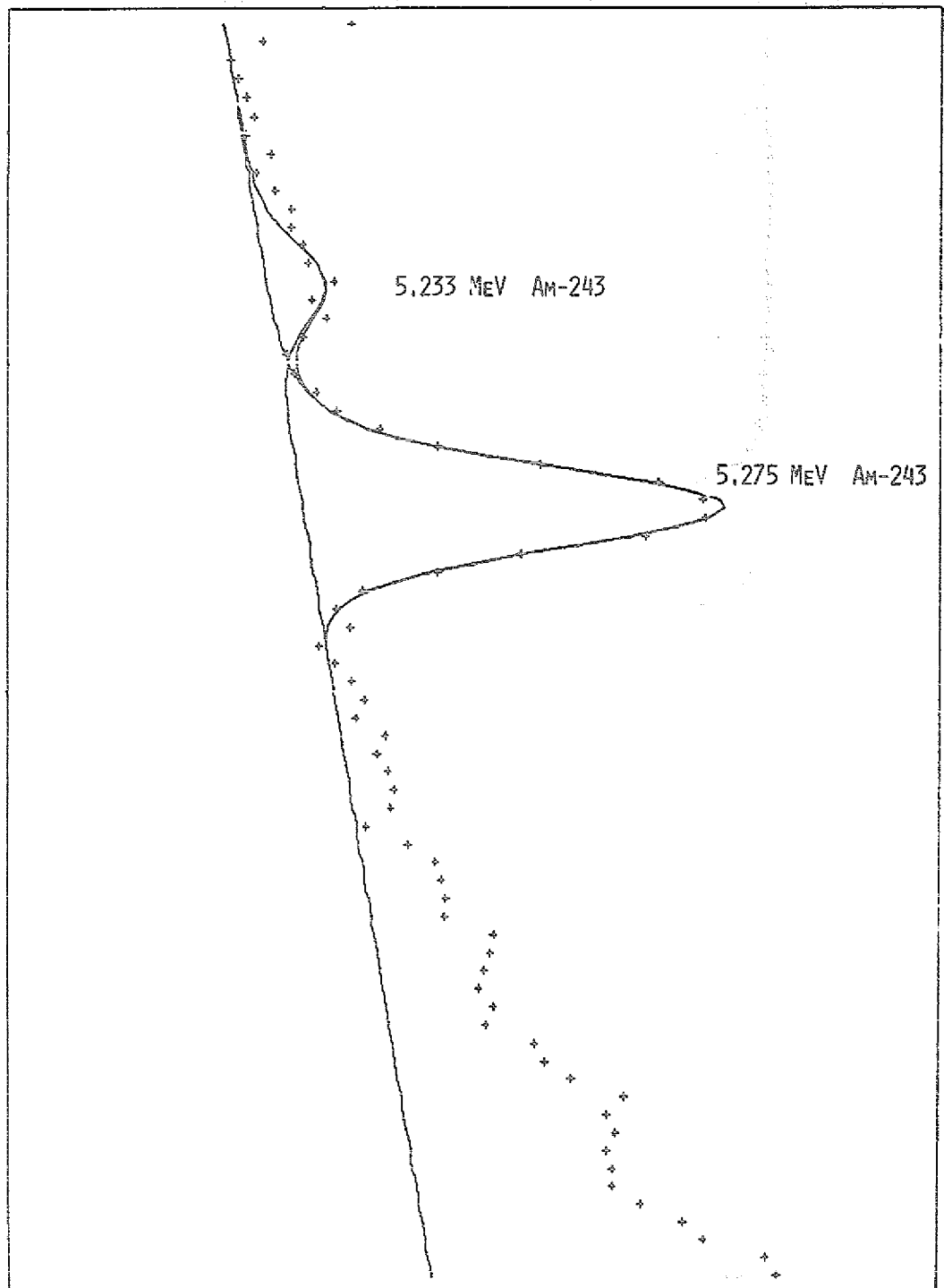
Abb. 25: Auflösung des Po-216 peaks aus Abbildung 14

Abb. 26: Auflösung der Pu-239/Pu-240 peaks aus Abbildung 15



EXP-JUELICH 15-NOV-1979 STATOS 33

Abb. 27: Auflösung der Am-243 peaks aus Abbildung 15



IKP-JUELICH 15-NOV-1979 STATOS 33

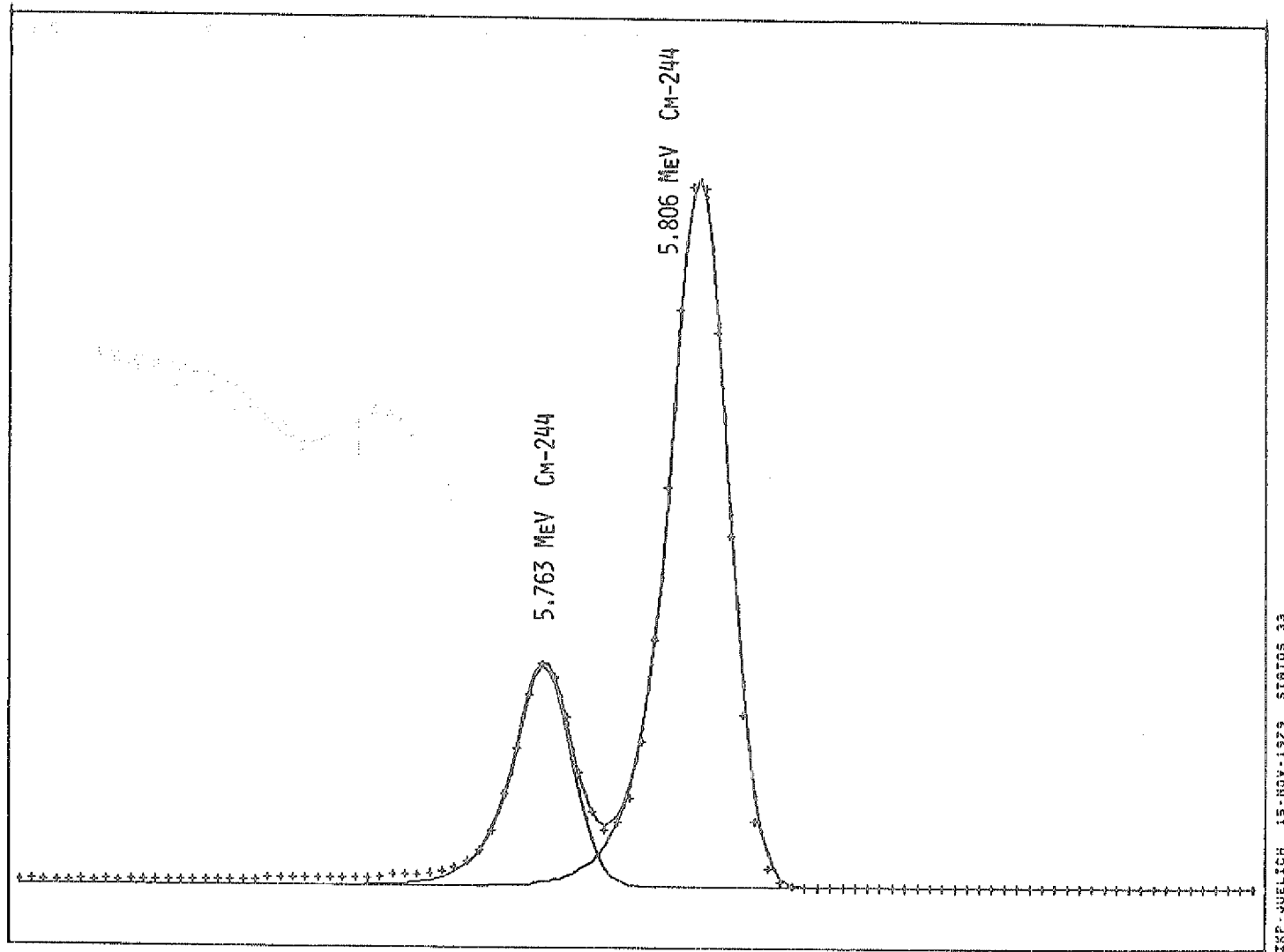


Abb. 28: Auflösung der Cm-244 peaks aus Abbildung 15

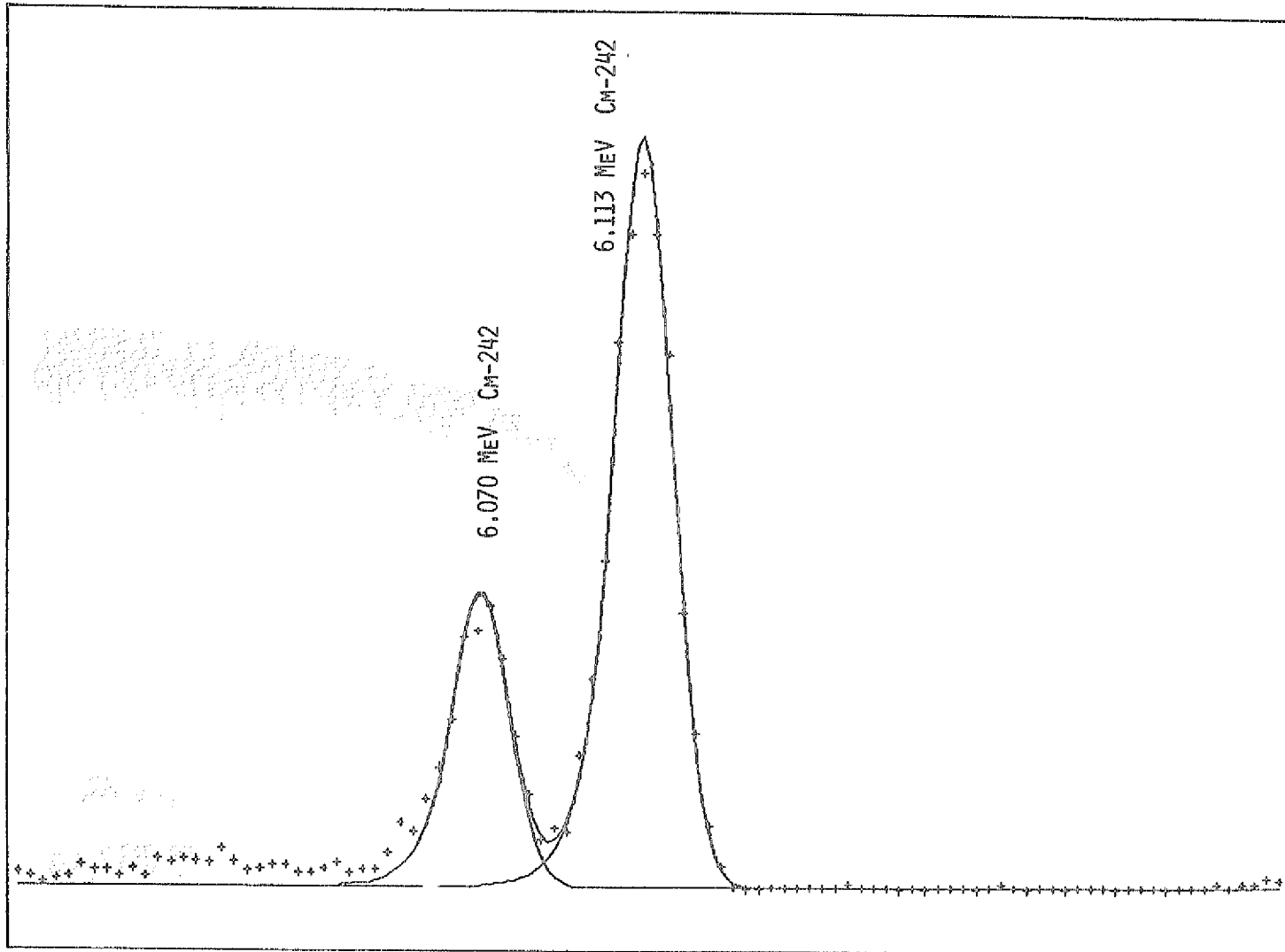


Abb. 29: Auflösung der Cm-242 peaks aus Abbildung 15

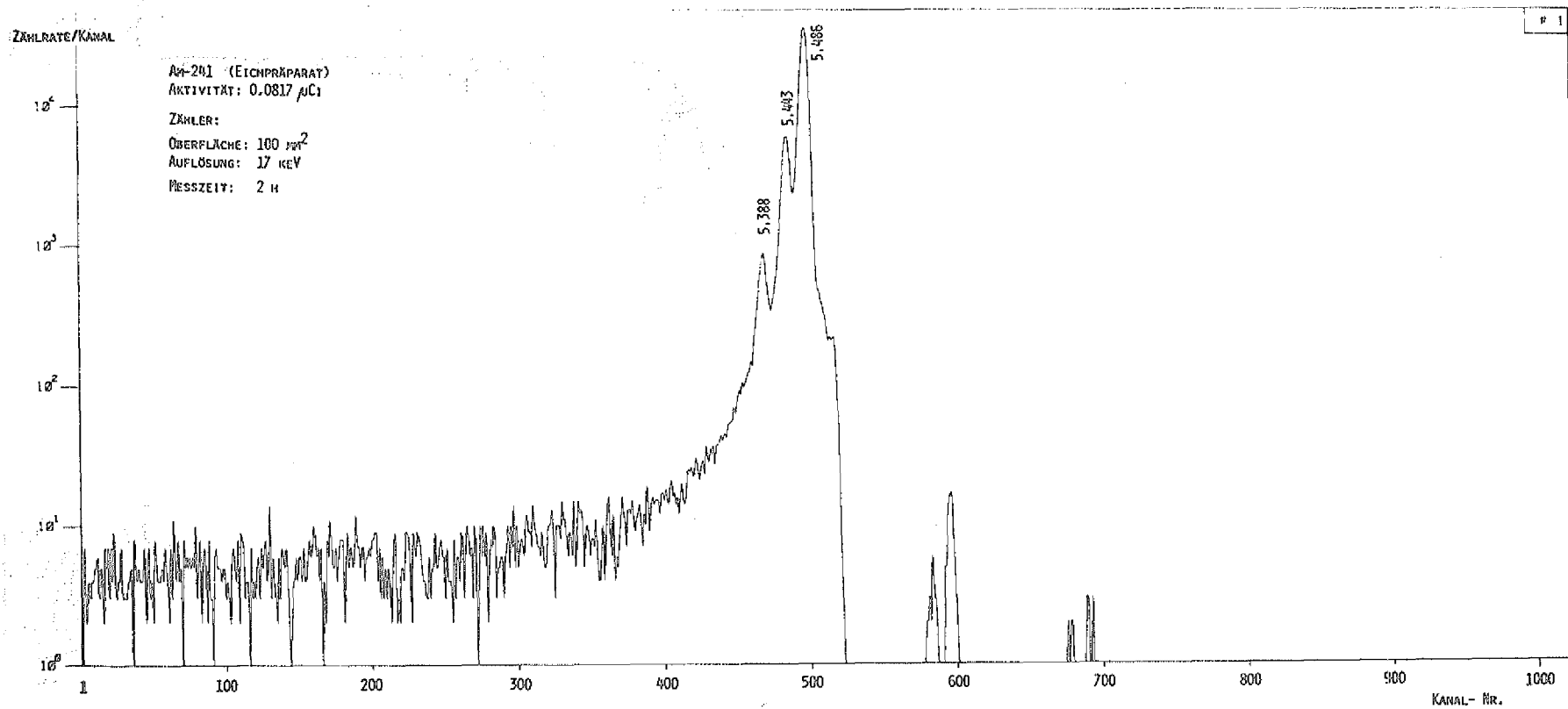


Abb. 30: Alpha-Spektrum eines Am-241 Eichpräparates

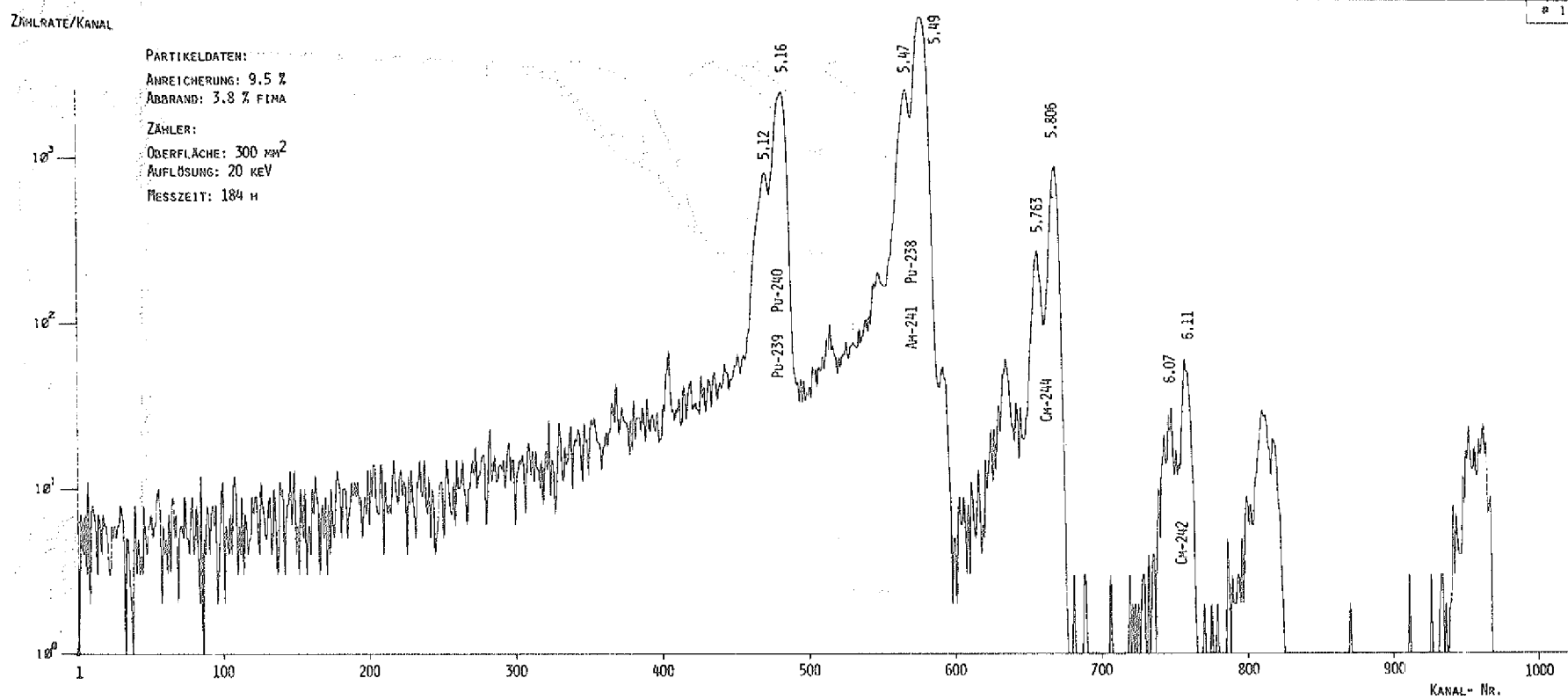
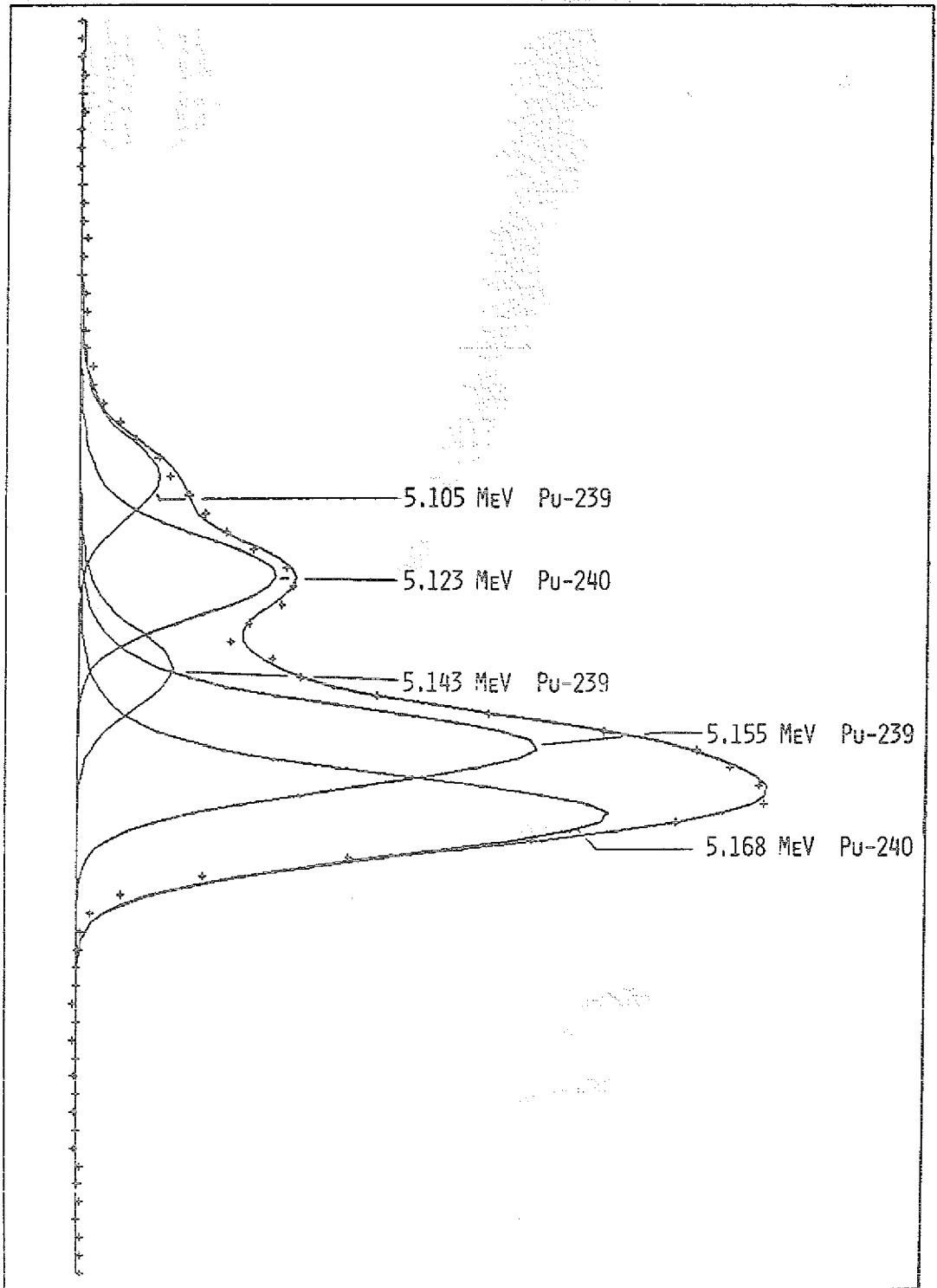


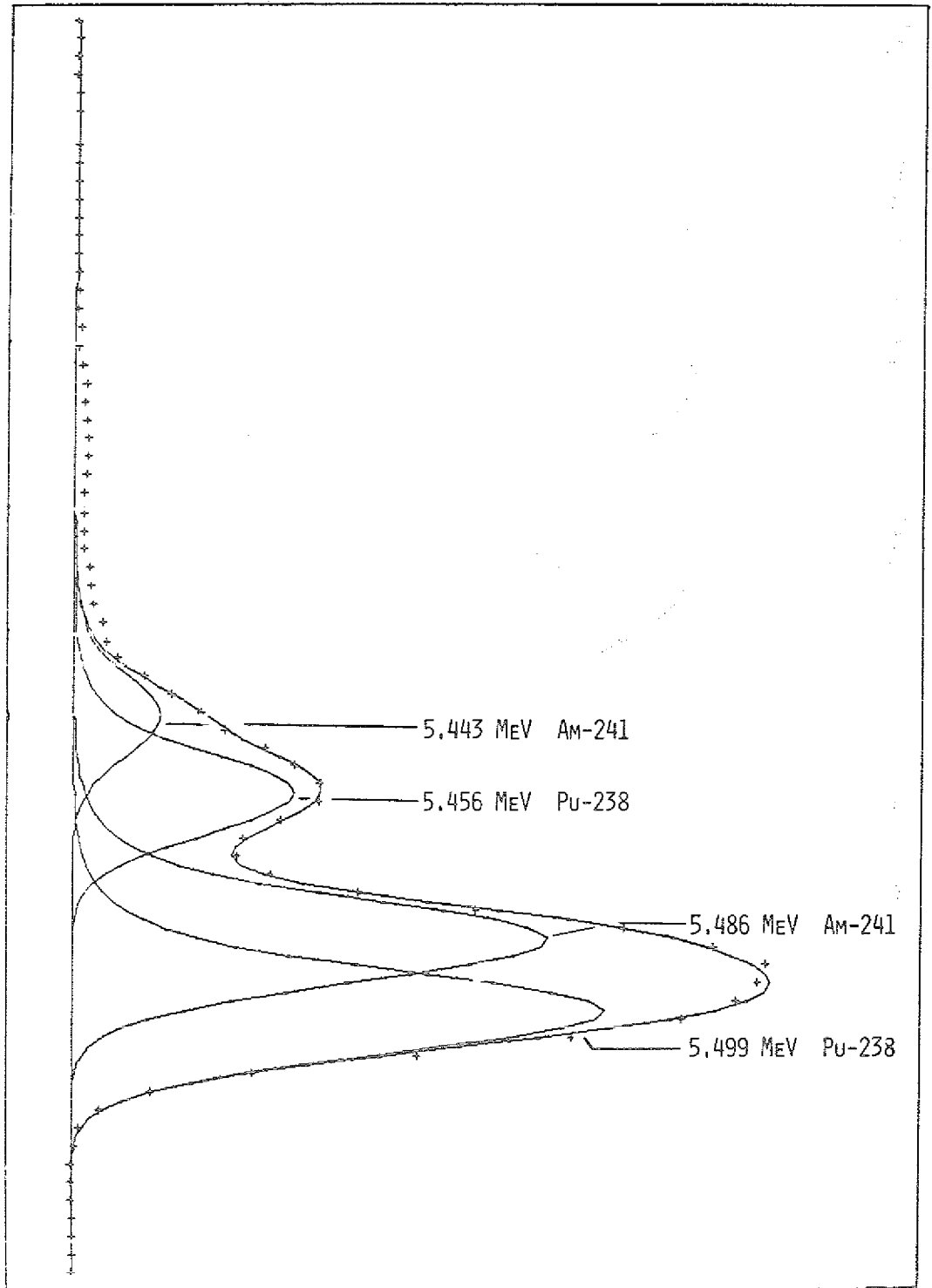
Abb. 32: Alpha-Spektrum einer Probe aus dem Bestrahlungsexperiment DR-K5

Abb. 33: Auflösung der Pu-239/Pu-240 peaks aus Abbildung 32

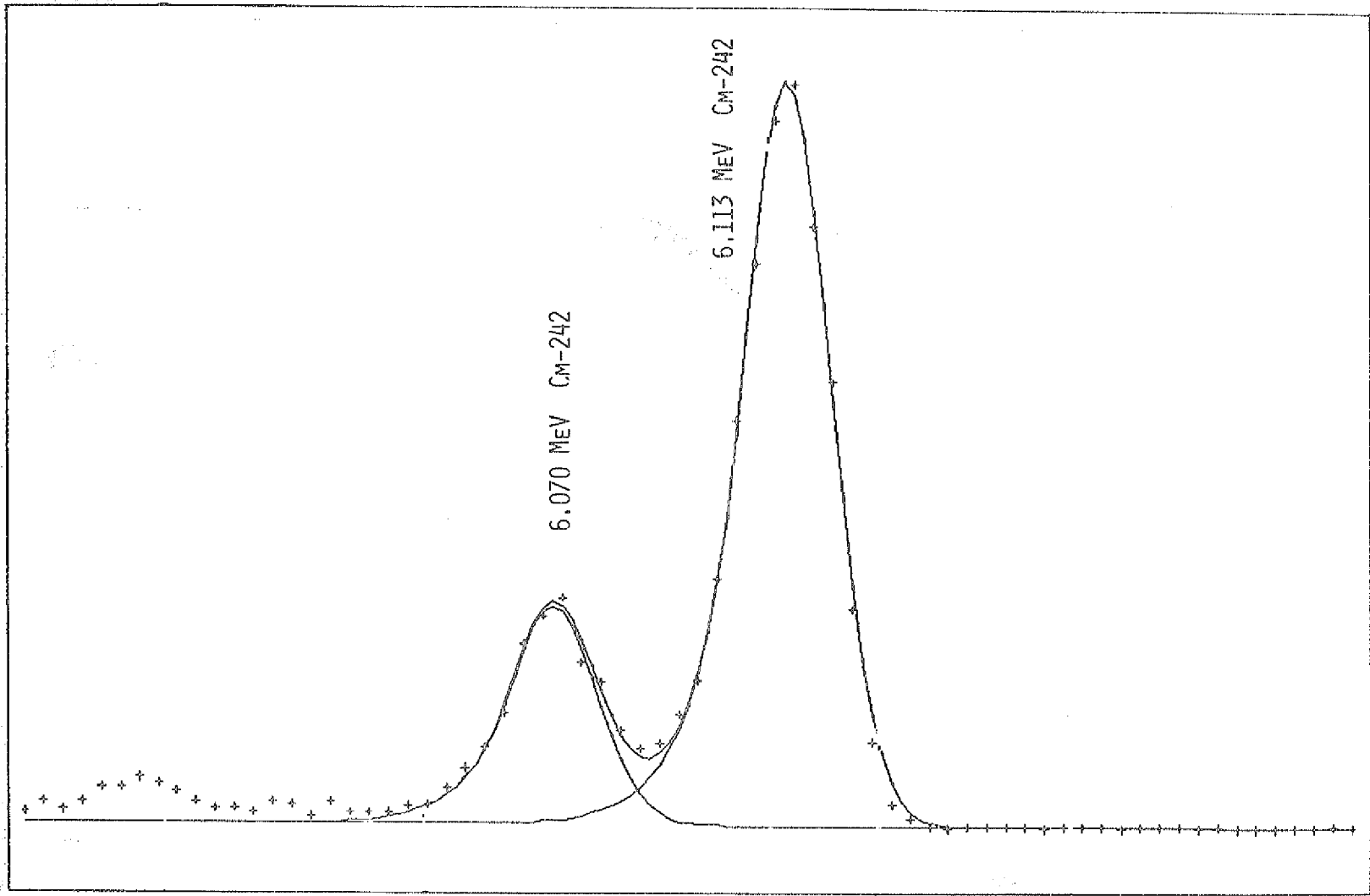


IYP-JUELICH 17-DEC-1979 STATOS 33

Abb. 34: Auflösung der Am-241/Pu-238 peaks aus Abbildung 32



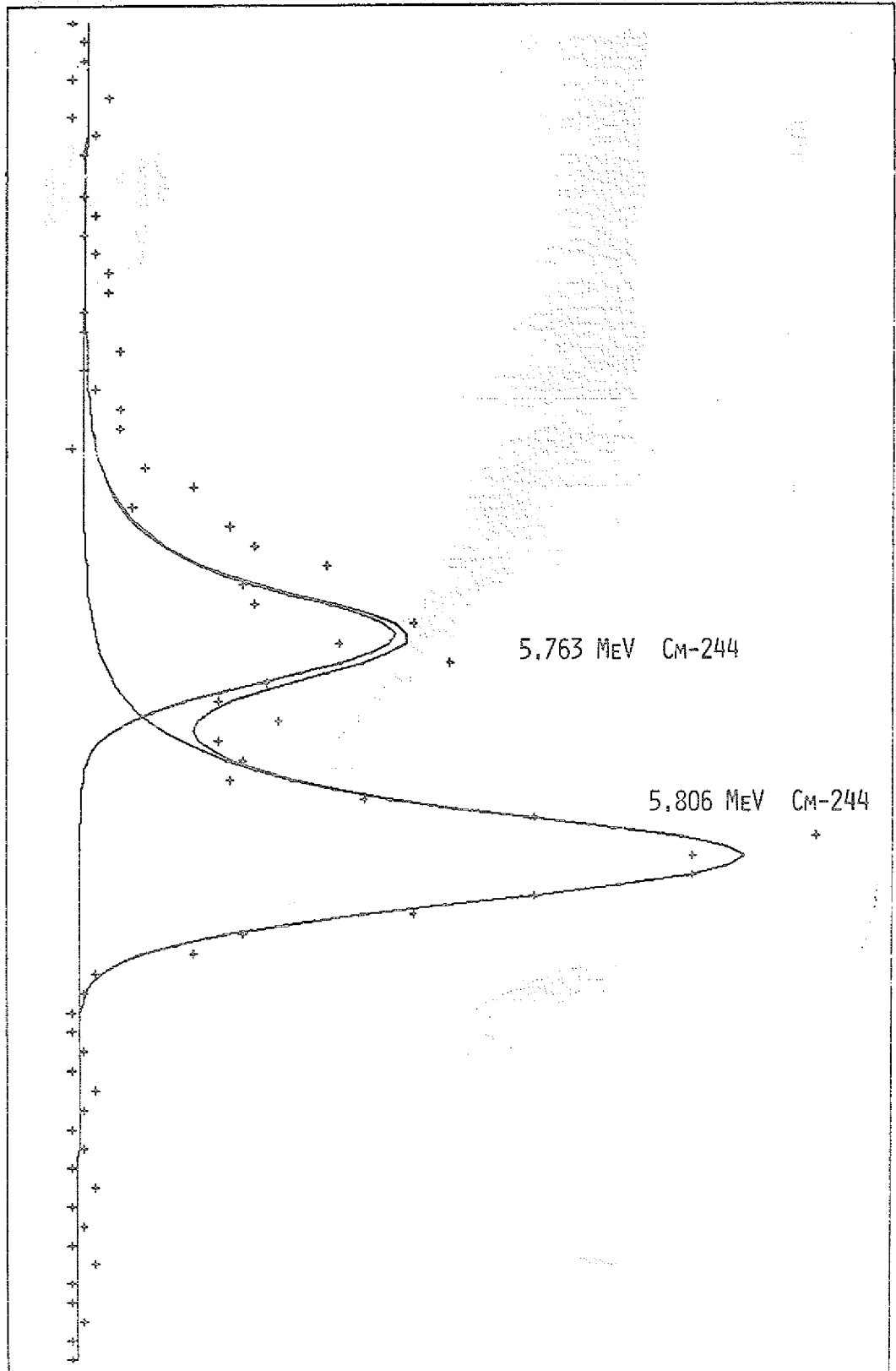
IXP-JUELICH 17-DEC-1979 STATOS 33



IKP-JUELICH 18-DEC-1979 STATOS 33

Abb. 35: Auflösung der Cm-242 peaks aus Abbildung 32

Abb. 36: Auflösung der Cm-244 peaks aus Abbildung 32



IKP-JUELICH 19-DEC-1979 STATOS 33

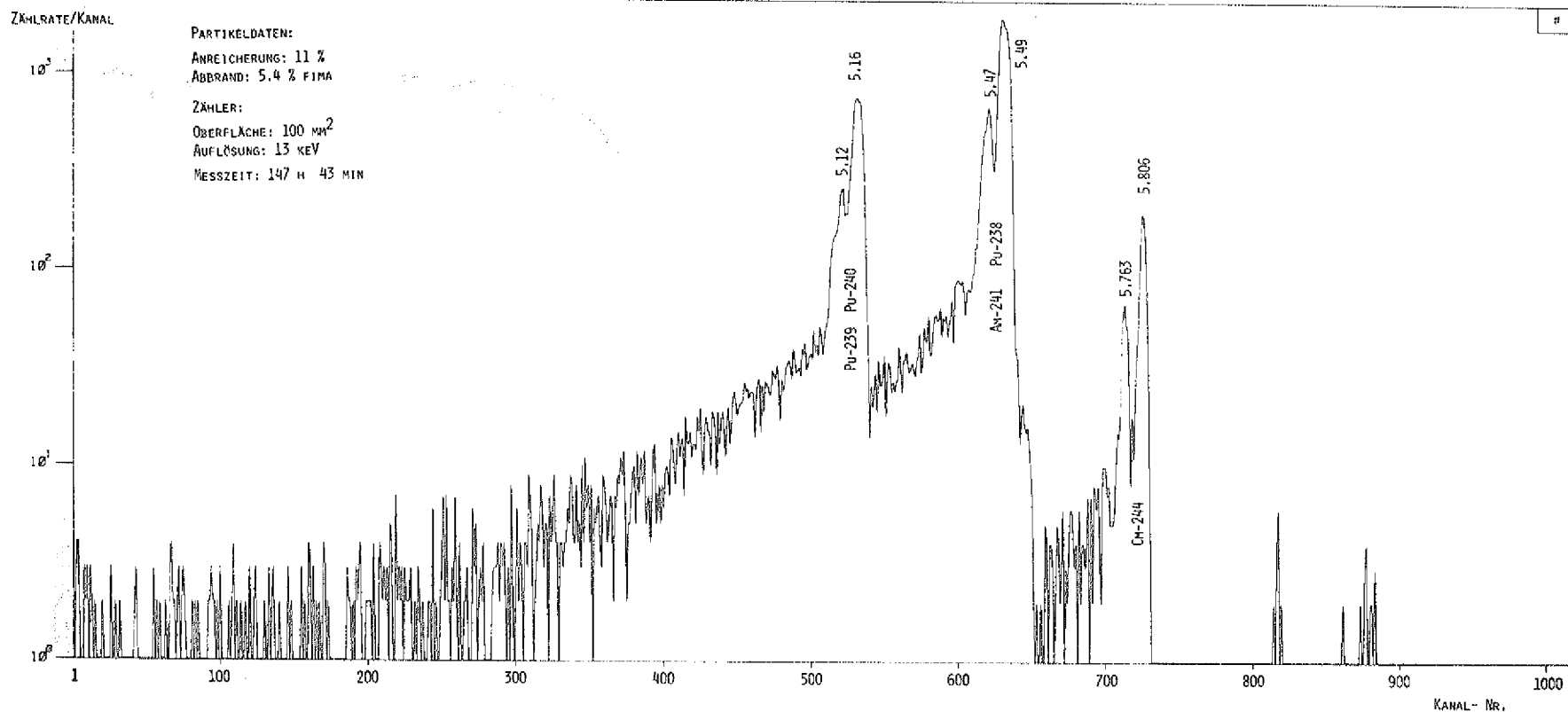
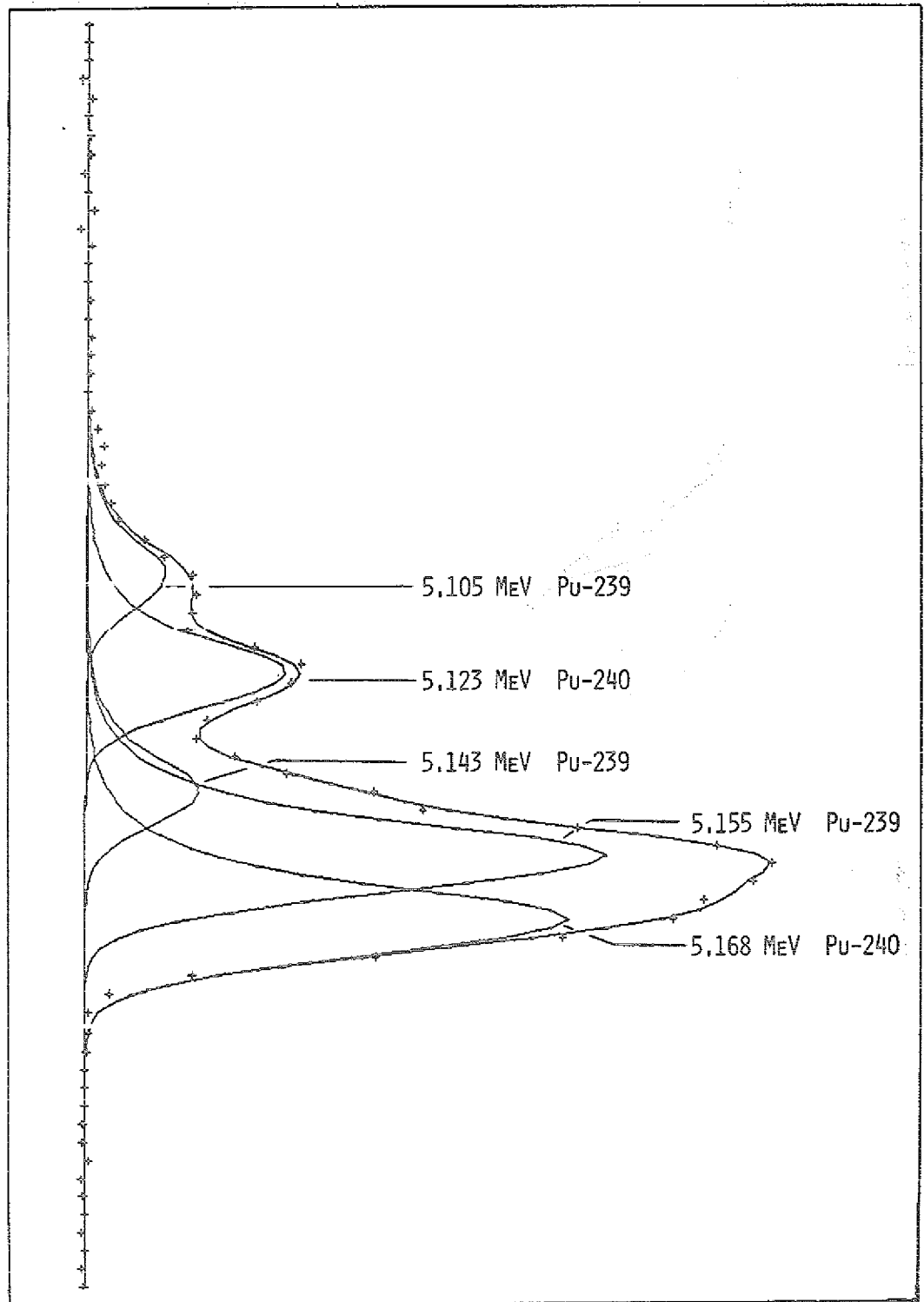


Abb. 37: Alpha-Spektrum einer Probe aus dem Bestrahlungsexperiment FRJ2-P16

Abb. 38: Auflösung der Pu-239/Pu-240 peaks aus Abbildung 37



IKP-JUELICH 17-JRH-1980 STAT08 99

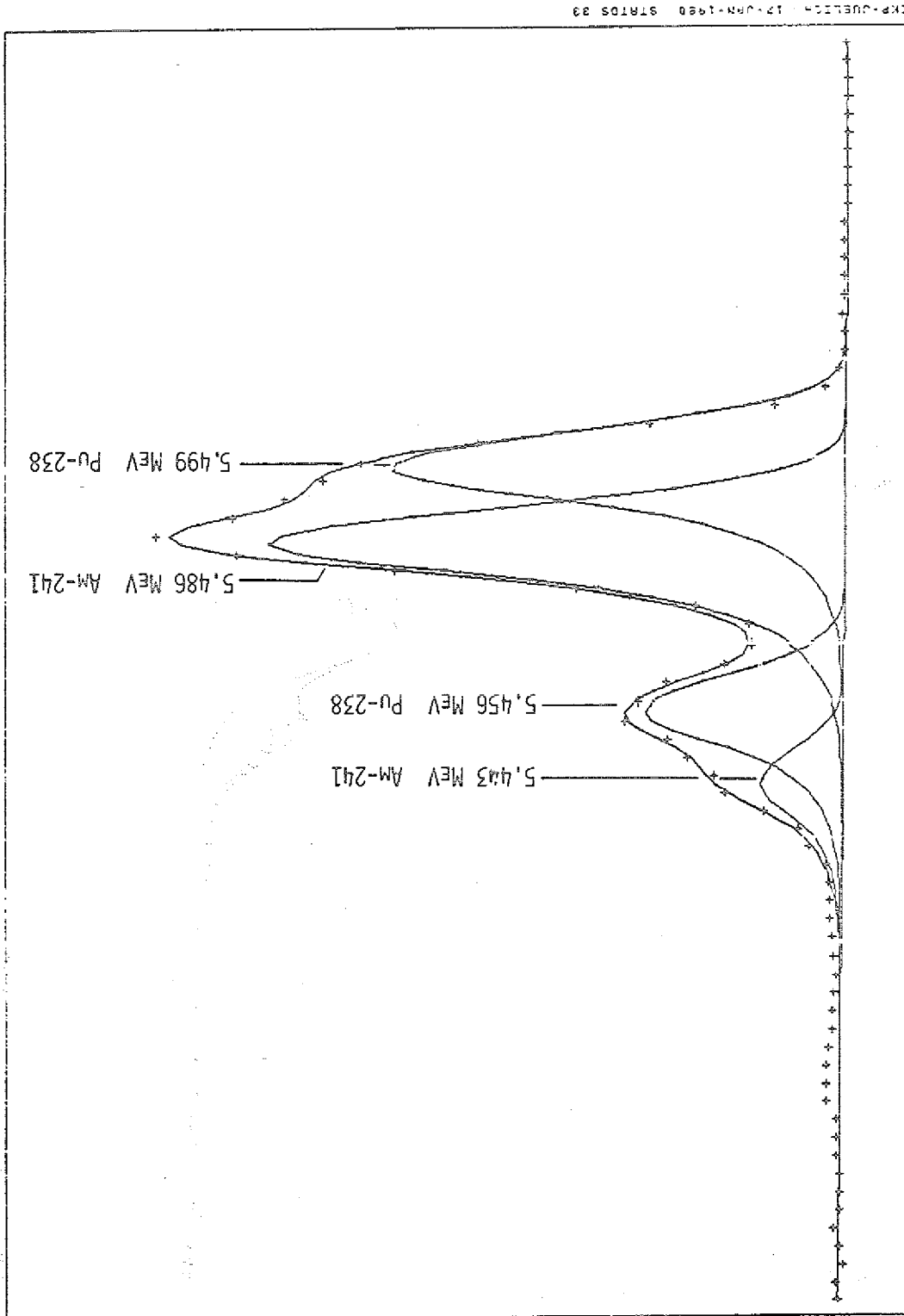
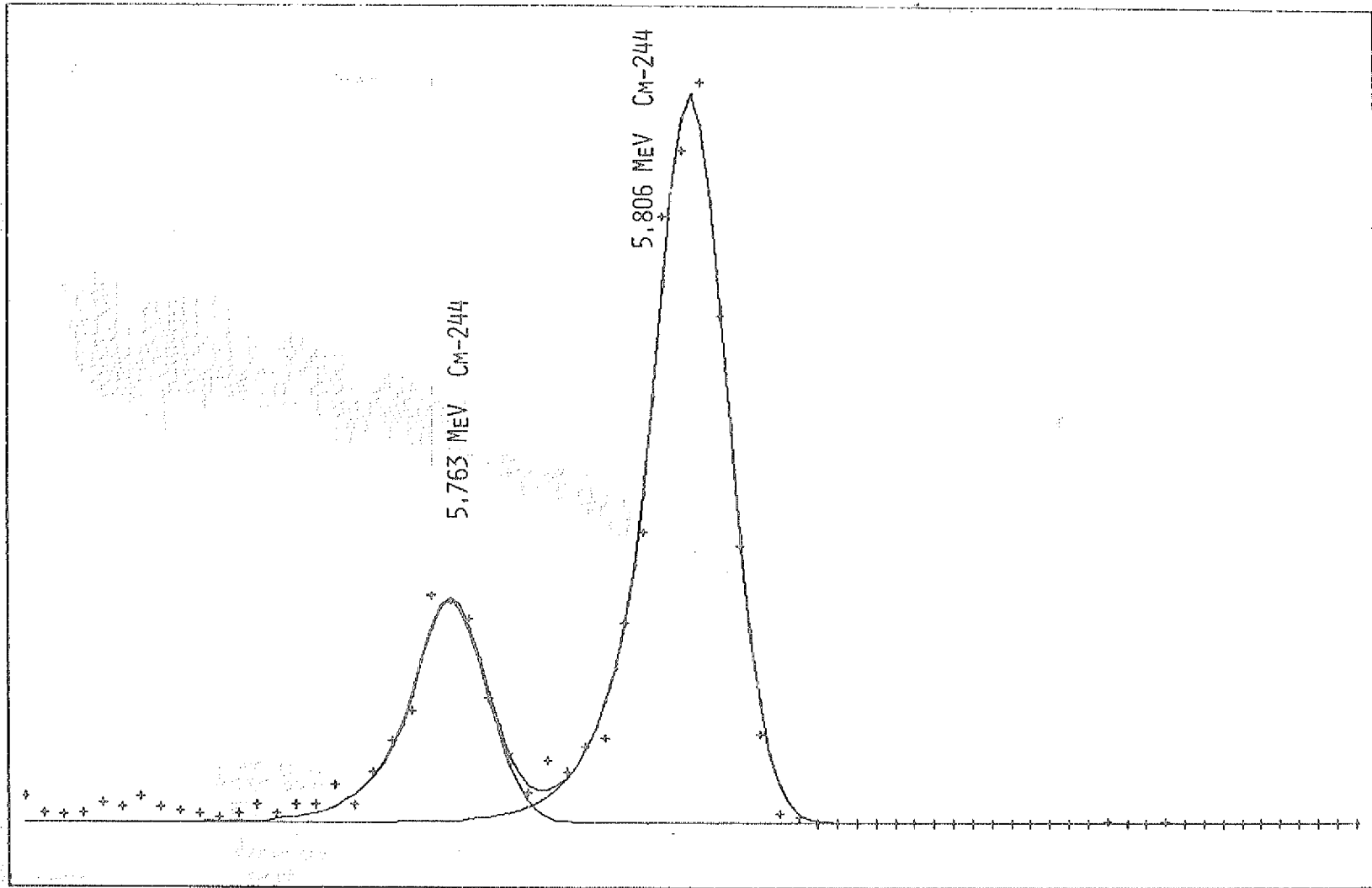


Abb. 39: Auflösung der Am-241/Pu-238 peaks aus Abbildung 37



EXP-JUELICH 17-JAN-1980 STATOS 33

Abb. 40: Auflösung der Cm-244 peaks aus Abbildung 37

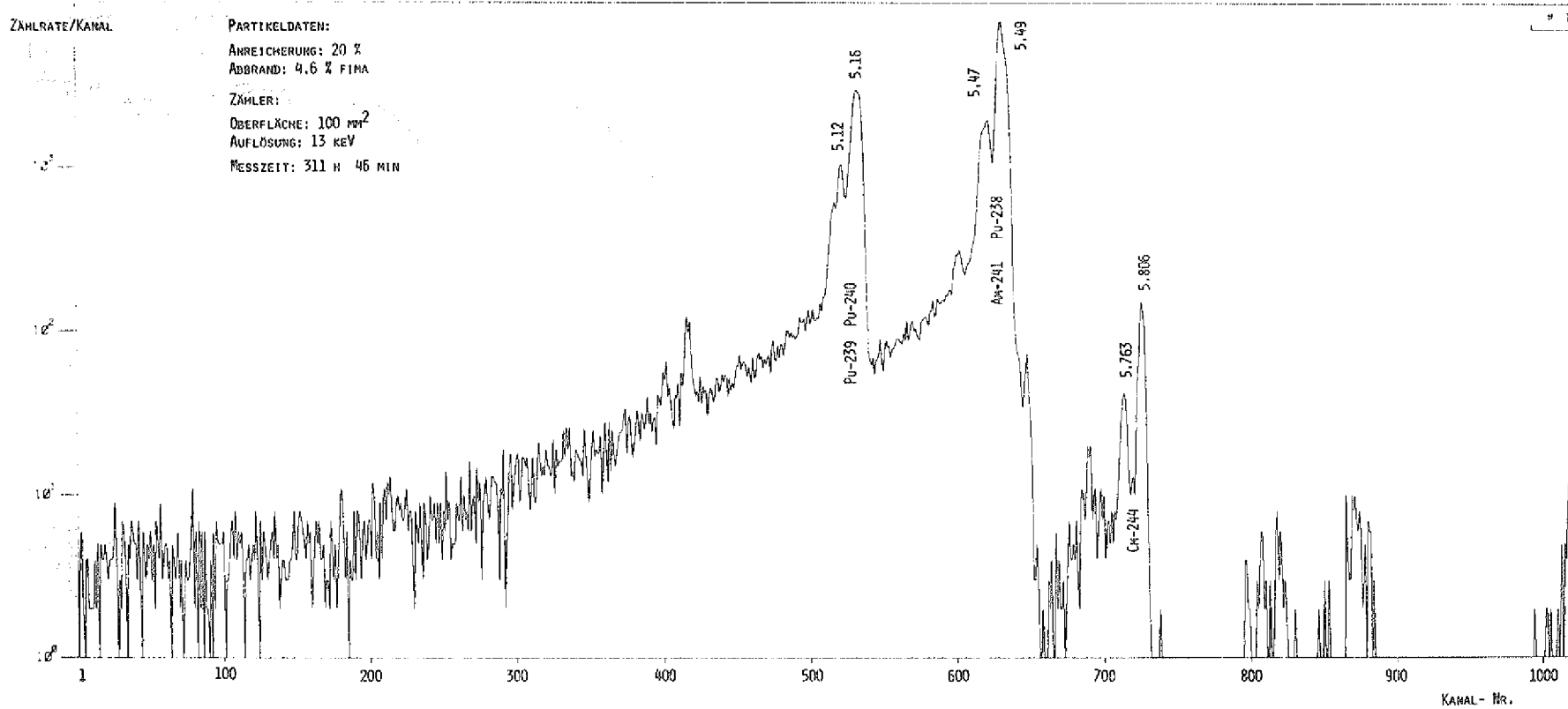
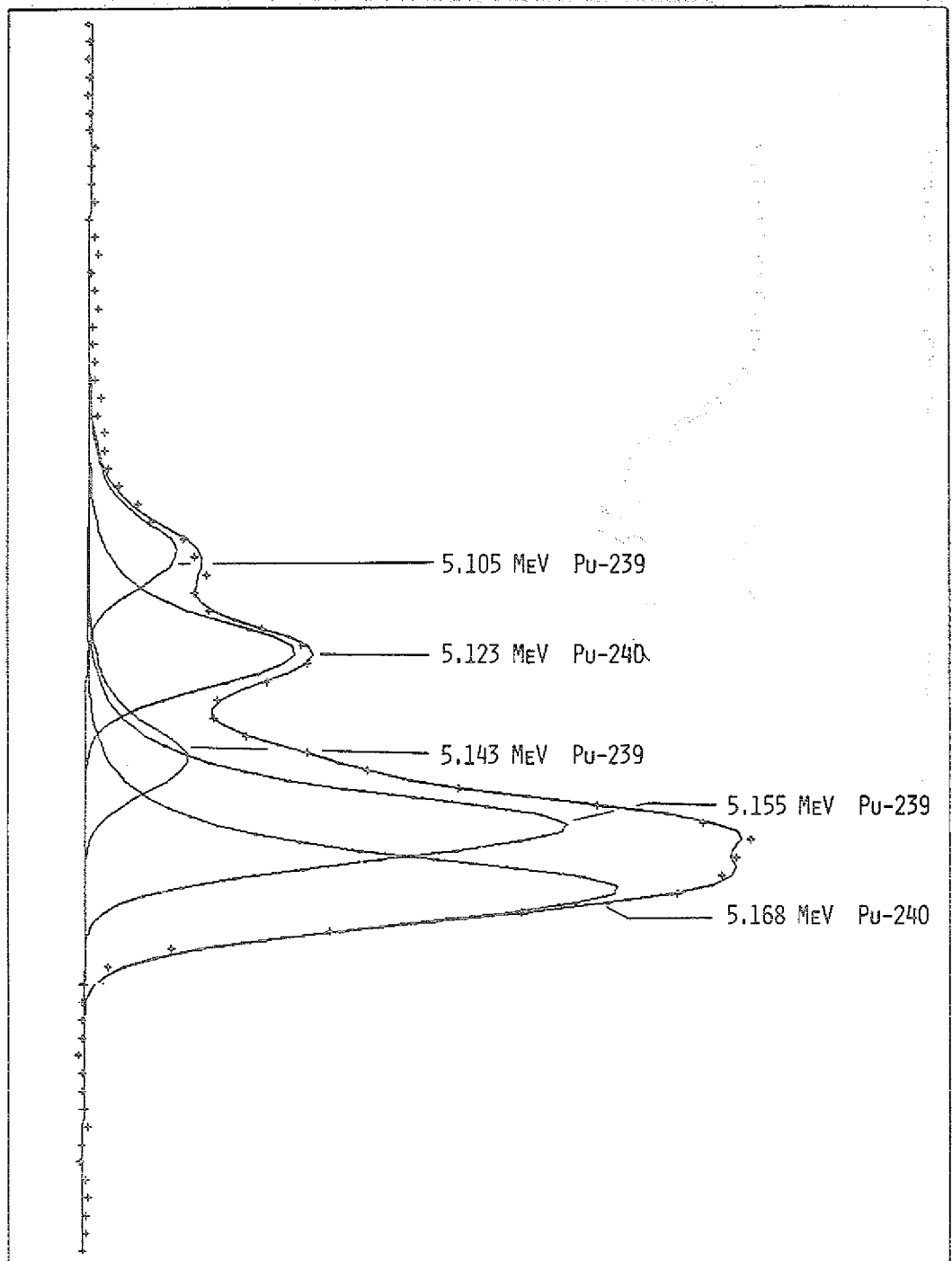


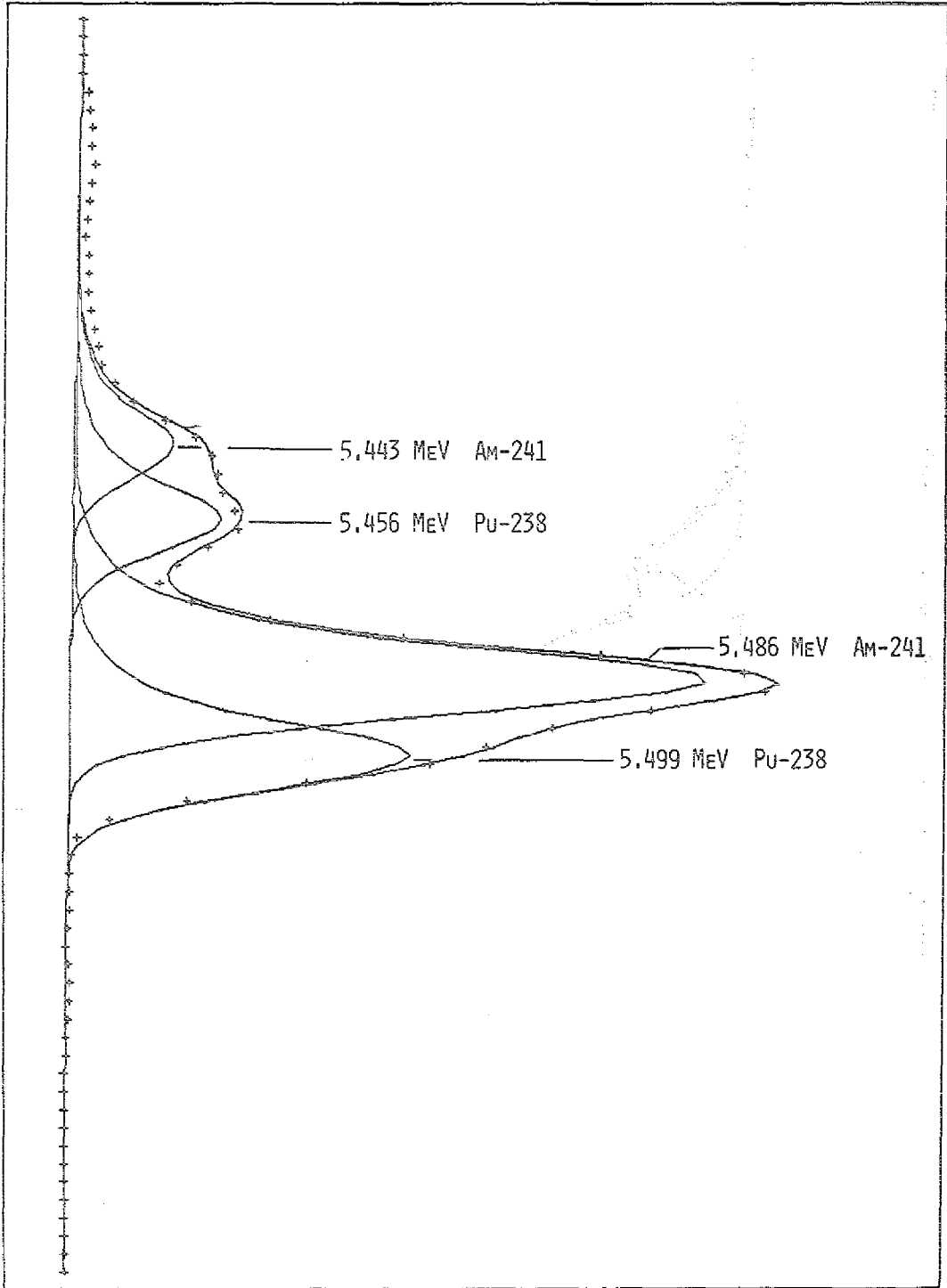
Abb. 41: Alpha-Spektrum einer Probe aus dem Bestrahlungsexperiment DR-P4 Mag.34

Abb. 42: Auflösung der Pu-239/Pu-240 peaks aus Abbildung 41



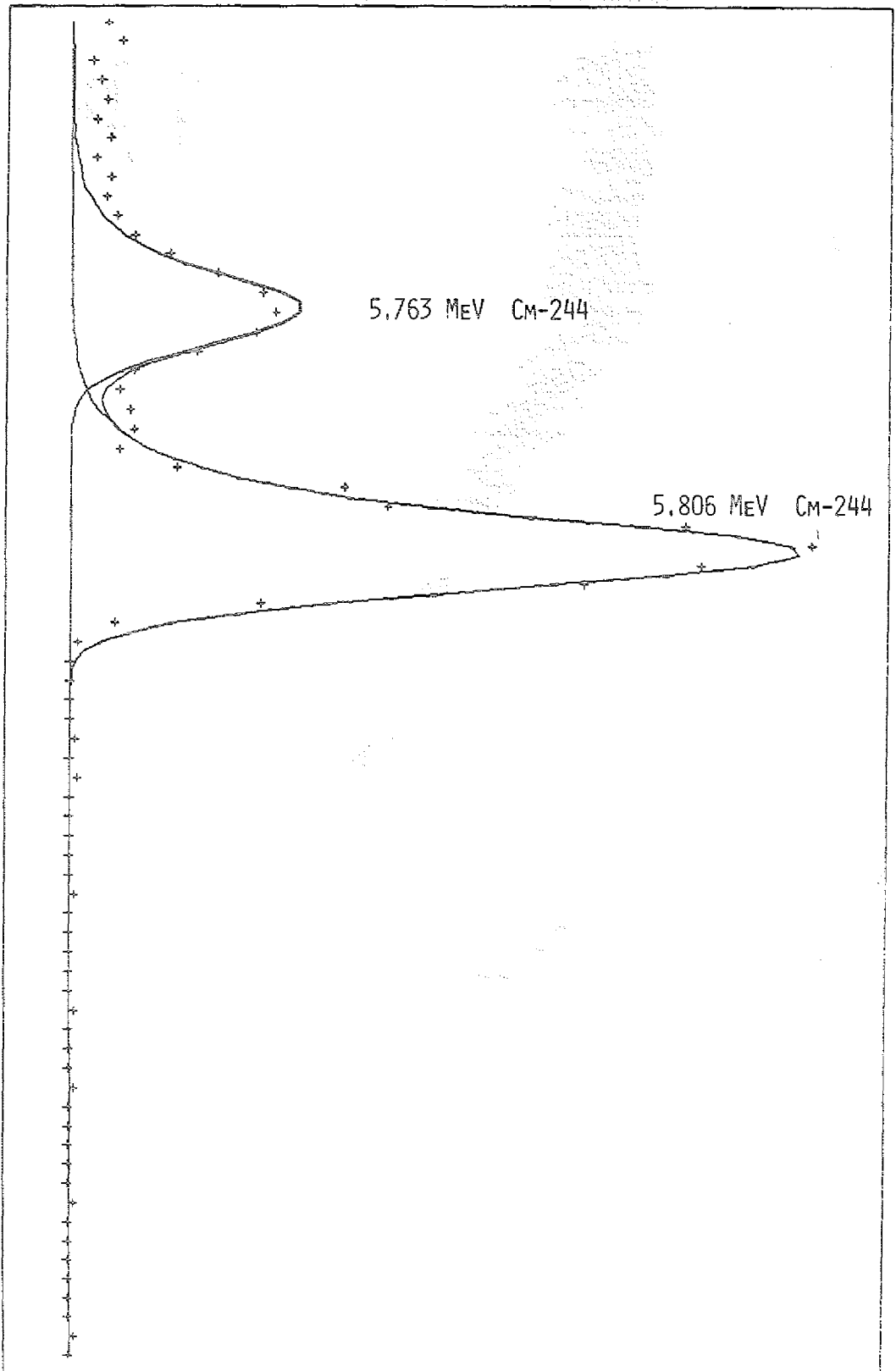
IKP-JUELICH 20-DEC-1979 STATOS 33

Abb. 43: Auflösung der Am-241/Pu-238 peaks aus Abbildung 41



IKP-JUELICH 20-DEC-1979 STATOS 33

Abb. 44: Auflösung der Cm-244 peaks aus Abbildung 41



IKP-JUELICH 20-DEC-1979 STRYOS 33

ZÄHLRATE/KANAL

PARTIKELDATEN:  
ANREICHERUNG: 40 %  
ABBRAND: 15.5 % FIMA  
ZÄHLER:  
OBERFLÄCHE: 100 mm<sup>2</sup>  
AUFLÖSUNG: 13 KEV  
MESSZEIT: 140 H 12 MIN

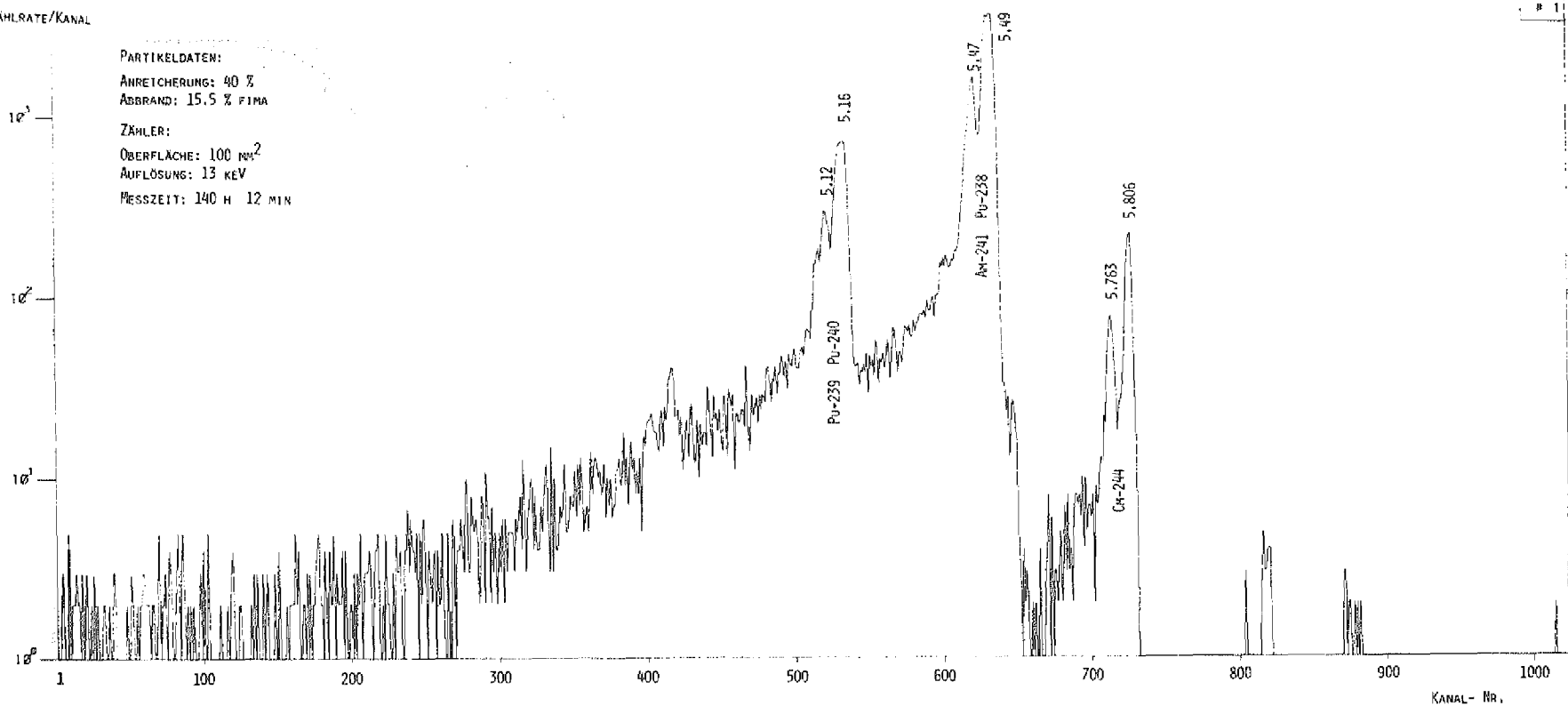
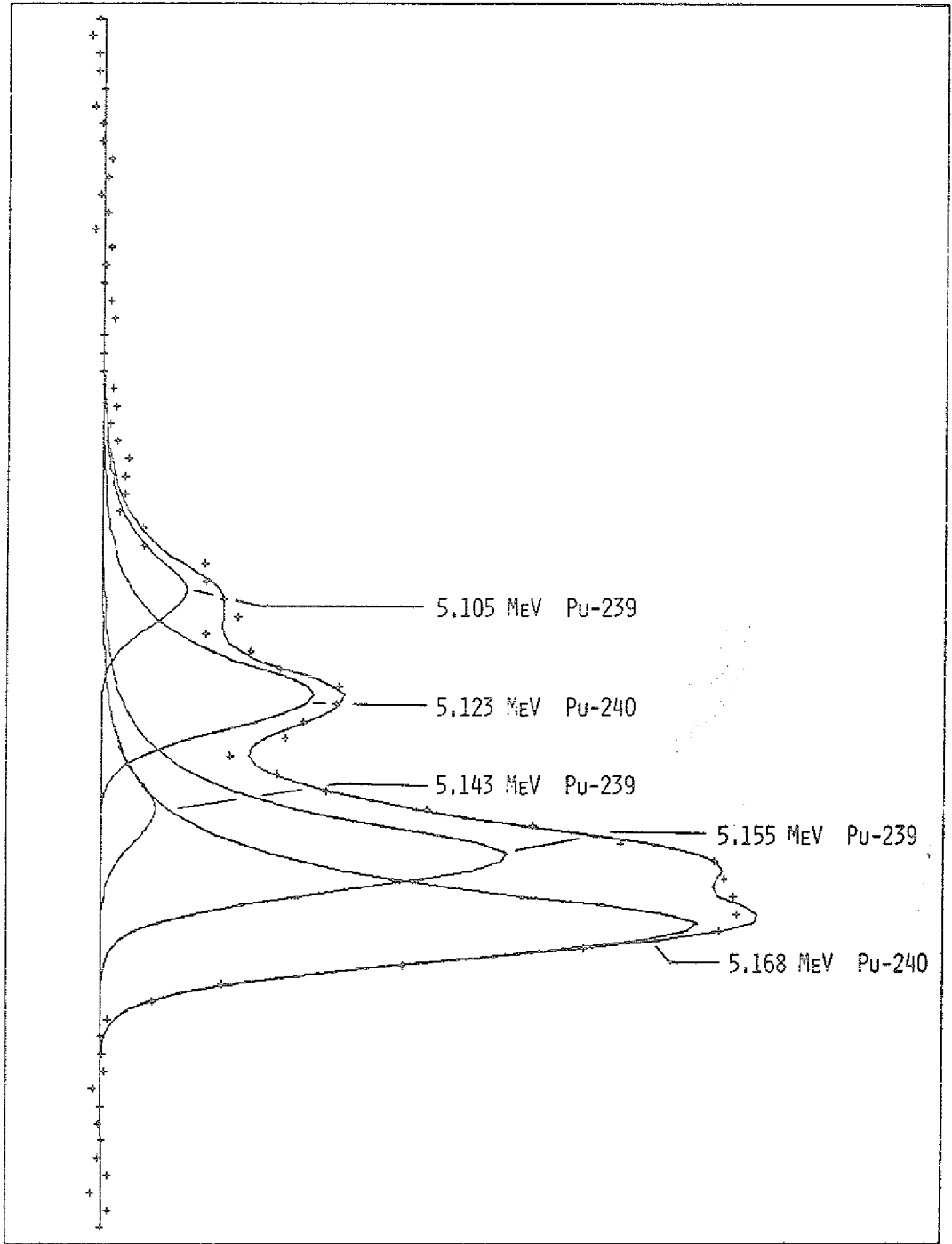


Abb. 45: Alpha-Spektrum einer Probe aus dem Bestrahlungsexperiment DR-P4 Mag.11

Abb. 46: Auflösung der Pu-239/Pu-240 peaks aus Abbildung 45



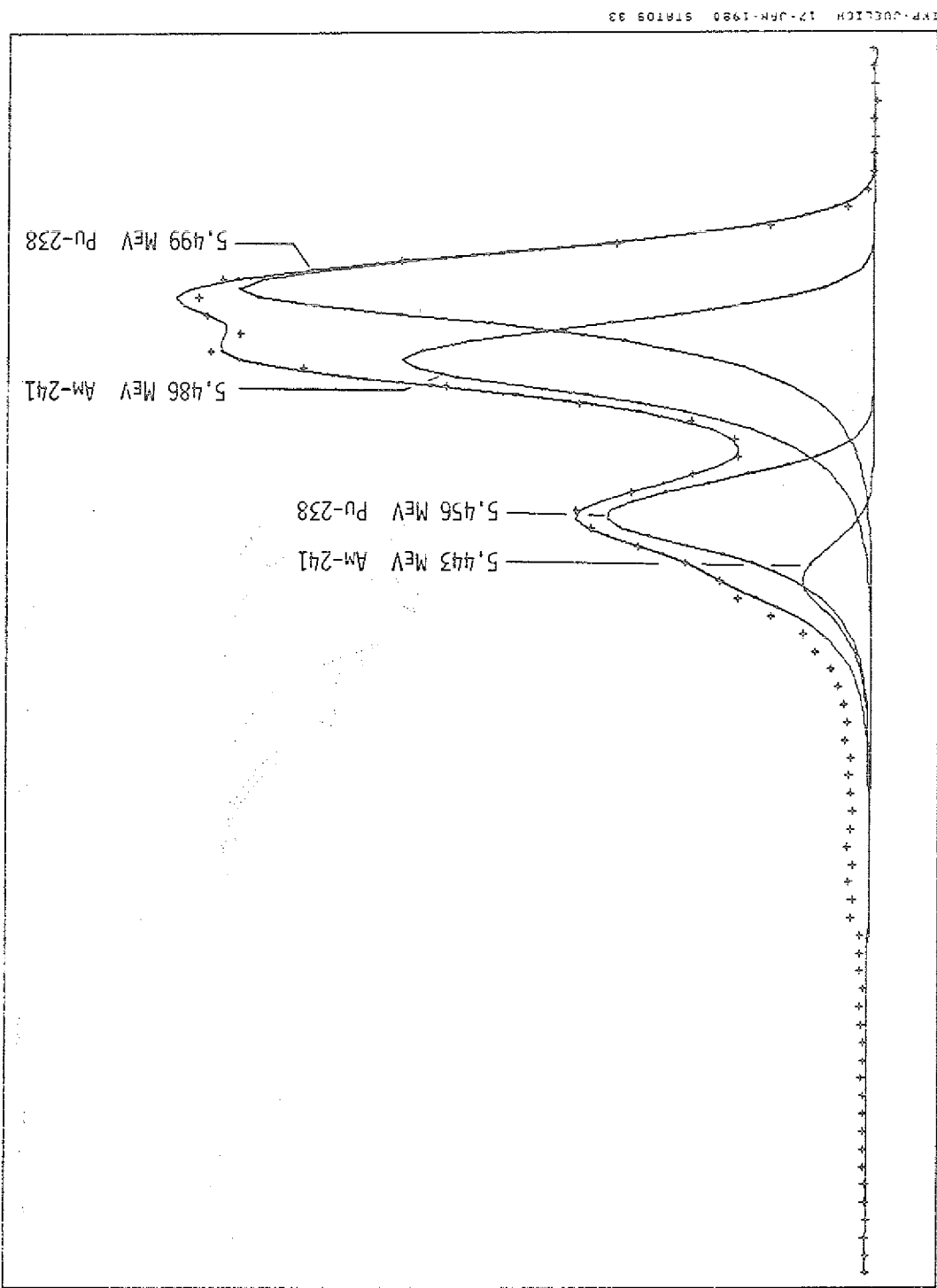
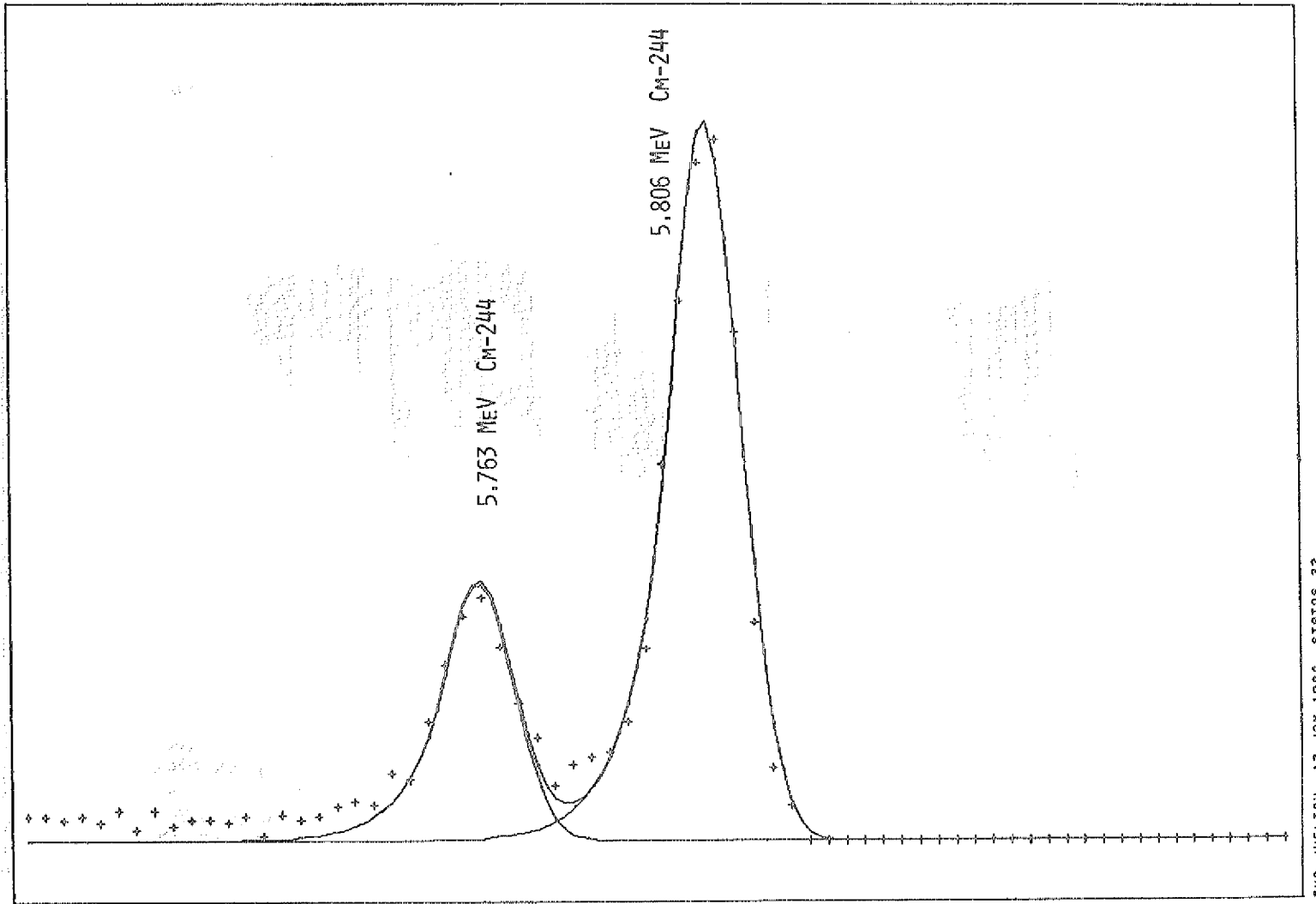


Abb. 47: Auflösung der Am-241/Pu-238 peaks aus Abbildung 45



IKP-JUELICH 17-JUN-1980 STATOS 33

Abb. 48: Auflösung der Cm-244 peaks aus Abbildung 45

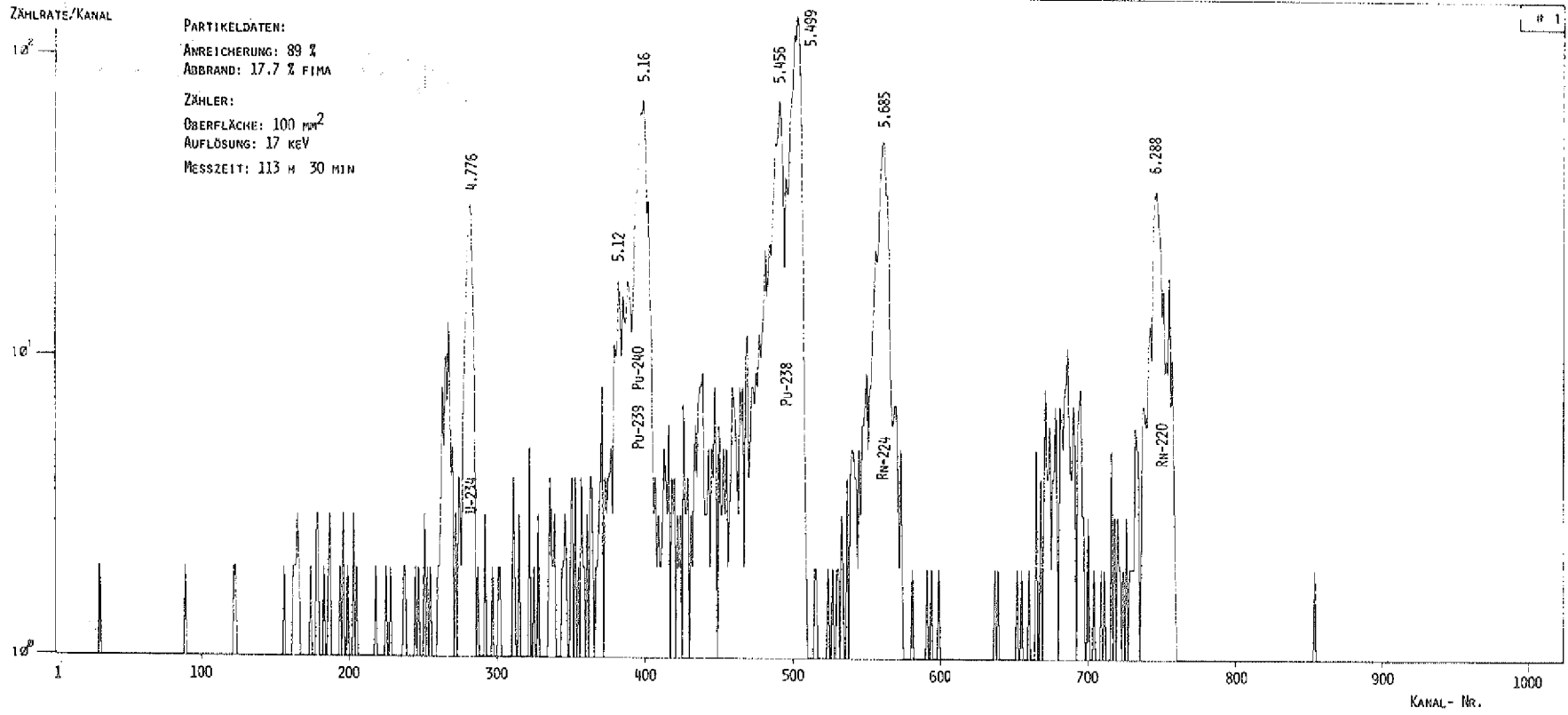
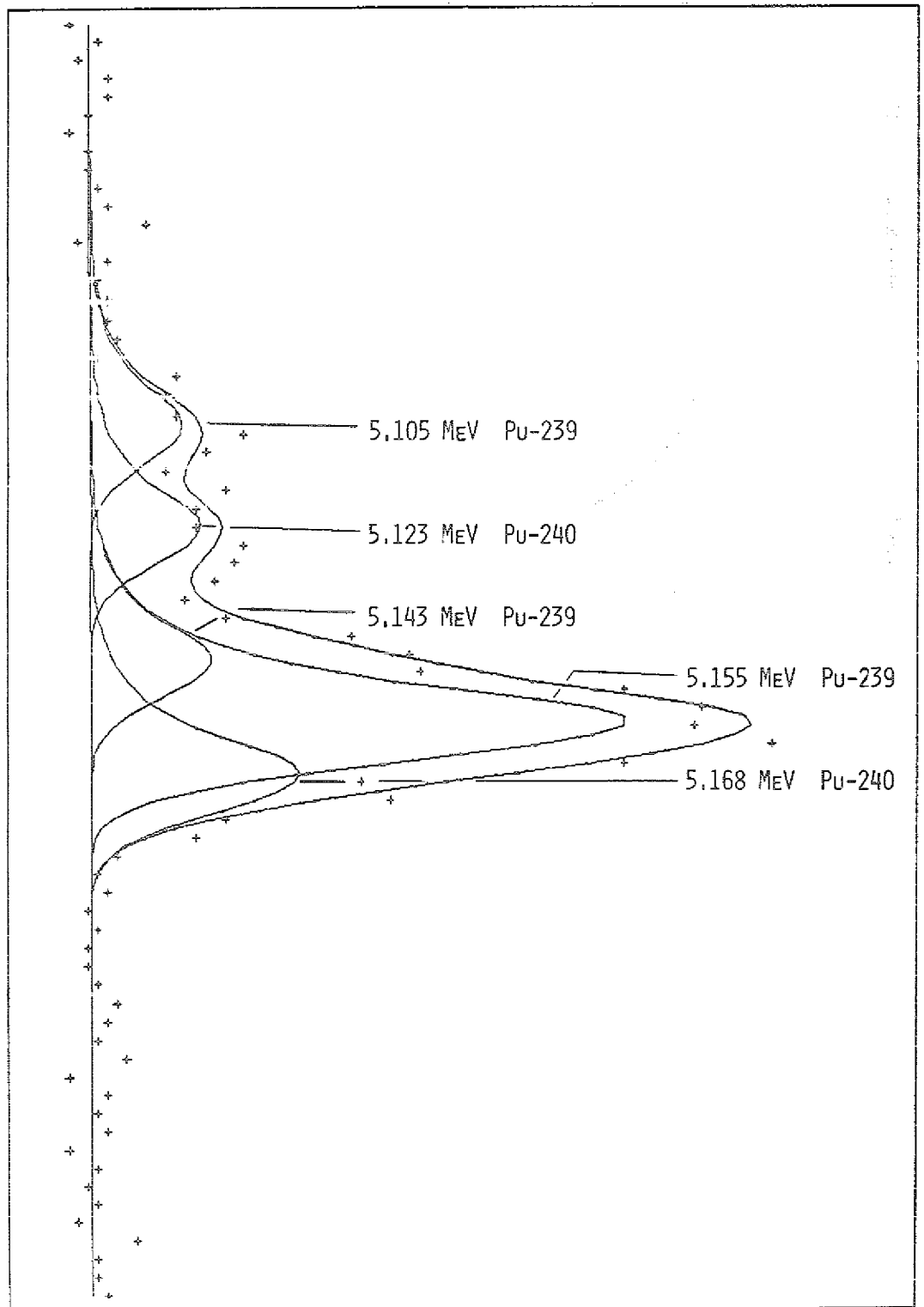


Abb. 49: Alpha-Spektrum einer Probe aus dem Bestrahlungsexperiment DR-P6

Abb. 50: Auflösung der Pu-239/Pu-240 peaks aus Abbildung 49



IKP-JUELICH 09-JAN-1980 STATOS 33

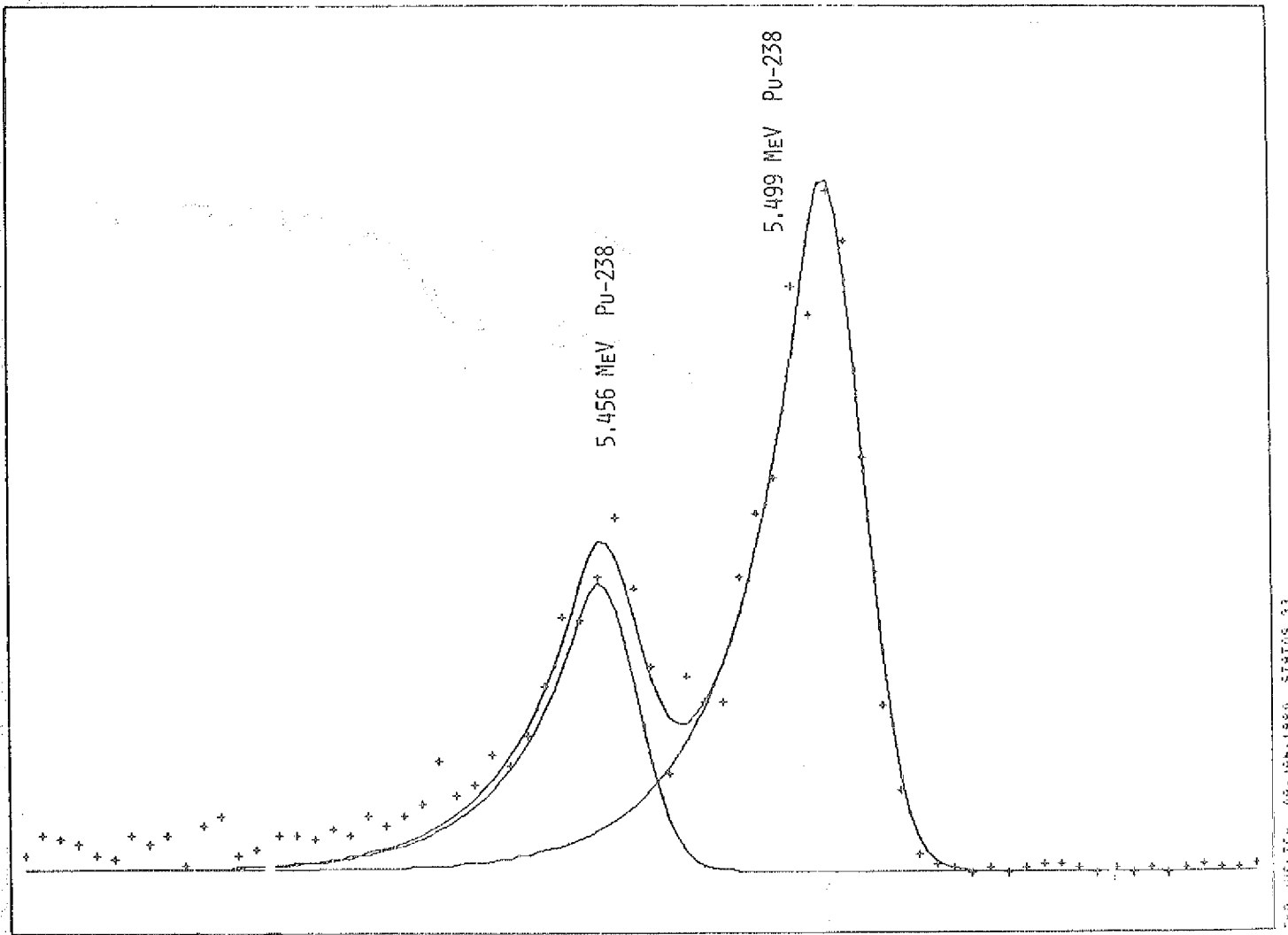


Abb. 51: Auflösung der Pu-238 peaks aus Abbildung 49

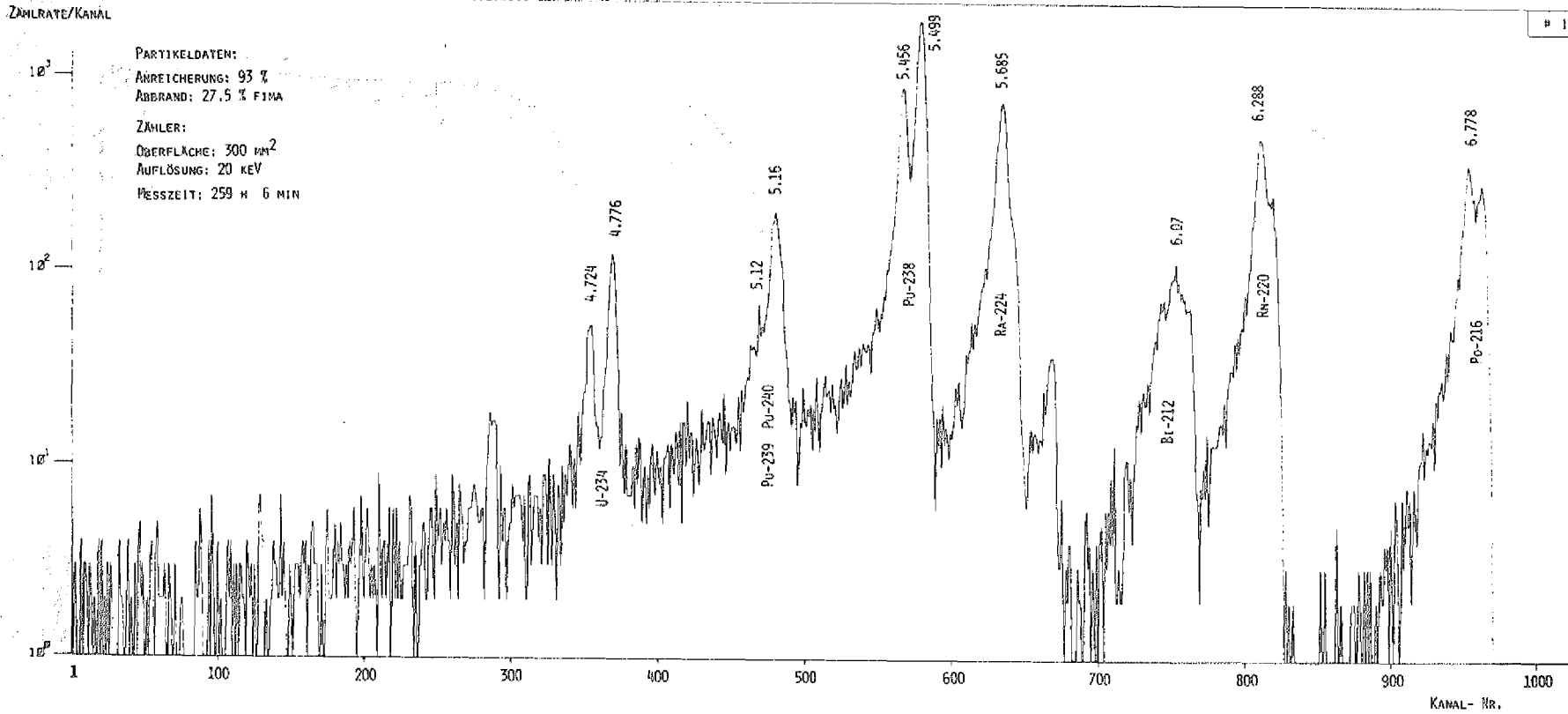


Abb. 52: Alpha-Spektrum einer Probe aus dem Bestrahlungsexperiment FRJ2-P18

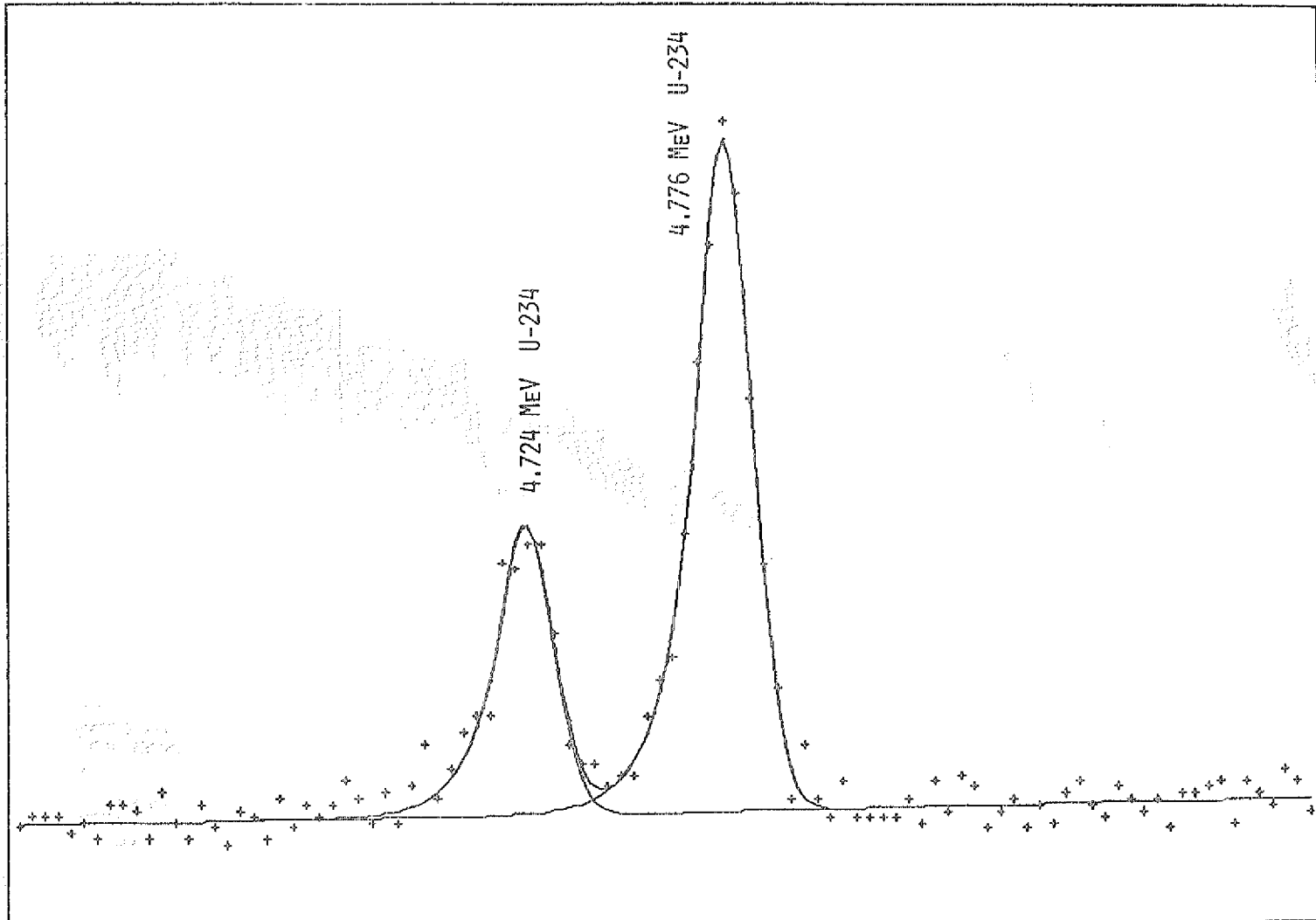
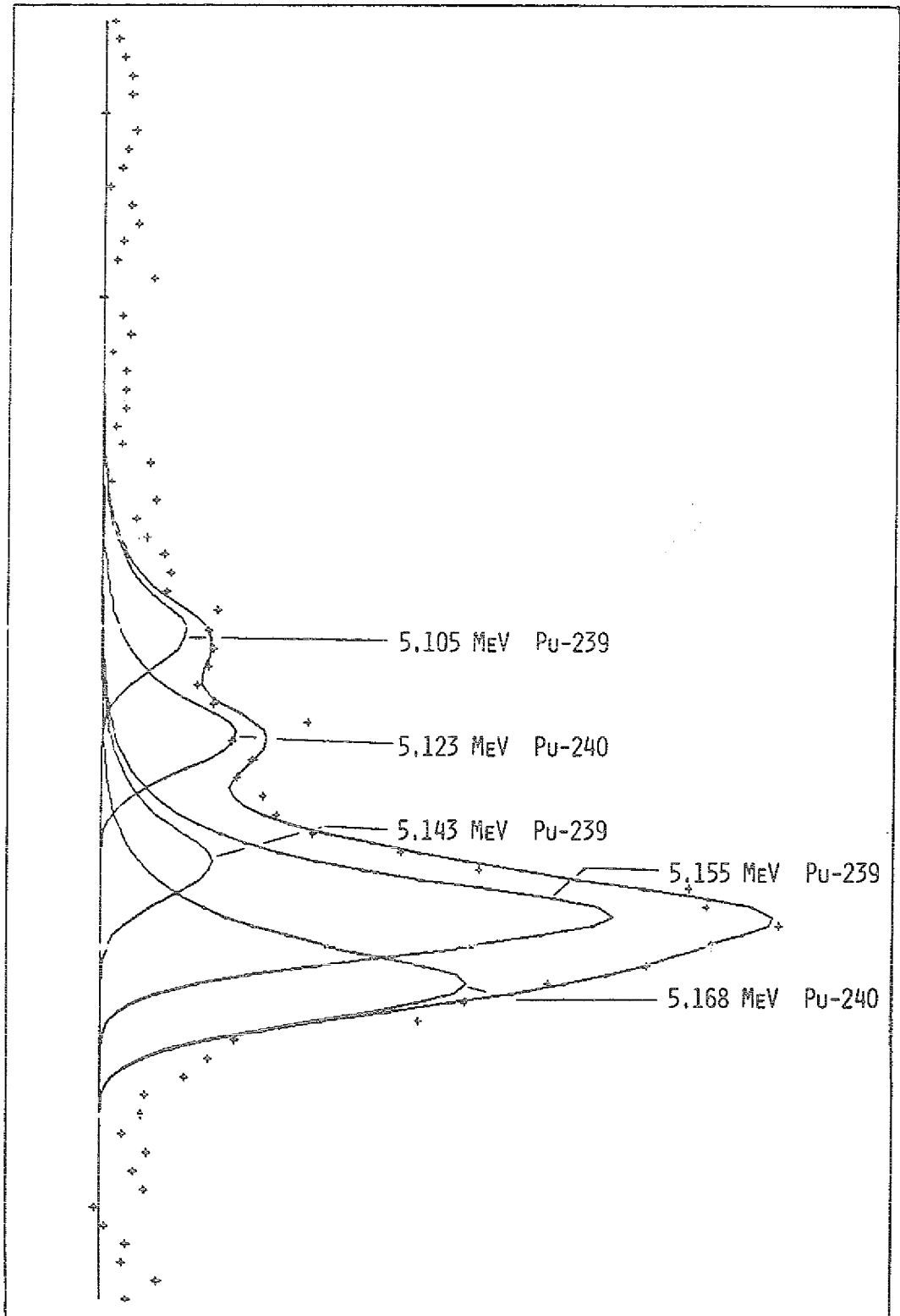


Abb. 53: Auflösung der U-234 peaks aus Abbildung 52

Abb. 54: Auflösung der Pu-239/Pu-240 peaks aus Abbildung 52



IKP-JUELICH 13-FEB-1988 STATOS 33

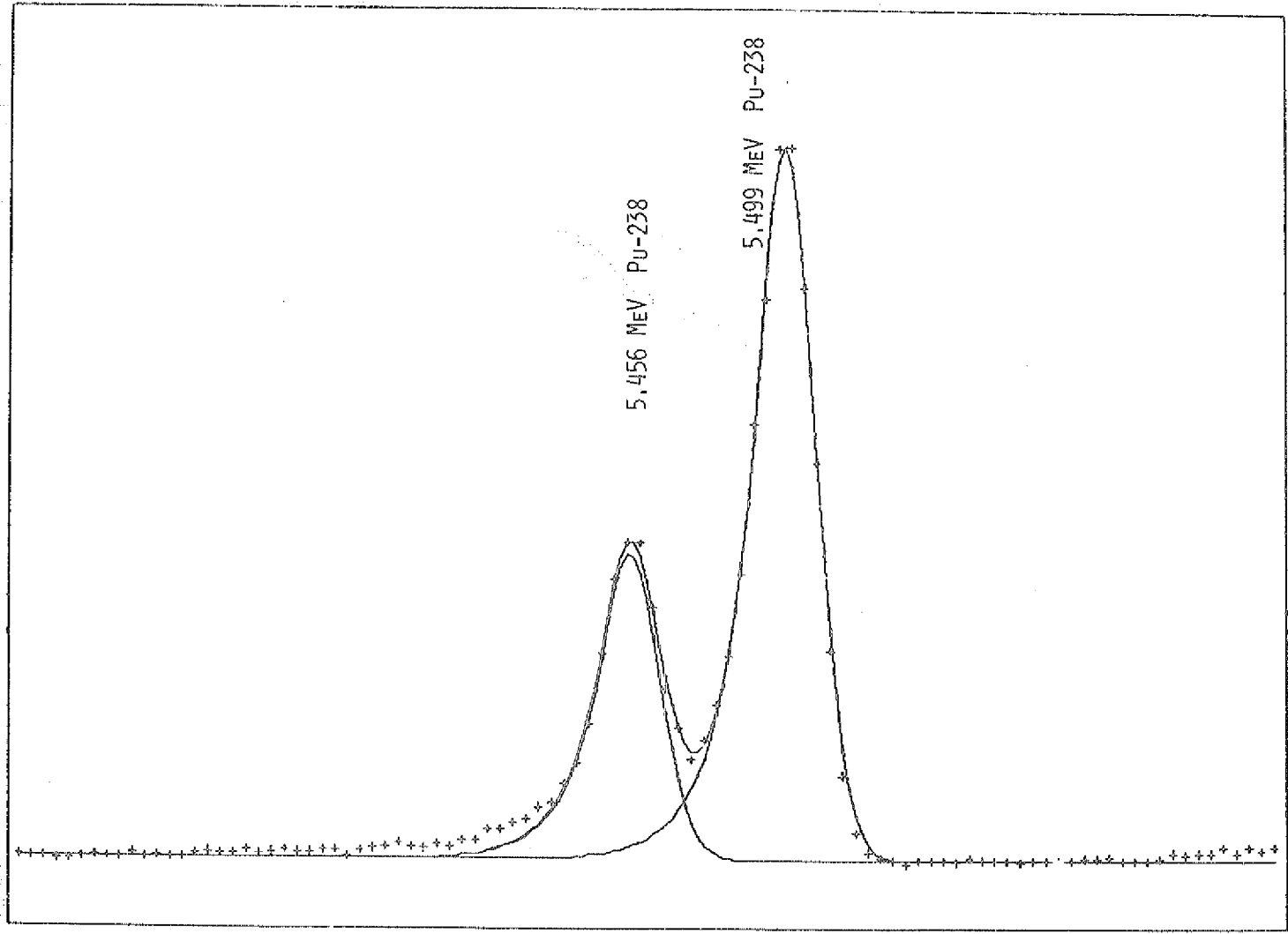


Abb. 55: Auflösung der Pu-238 peaks aus Abbildung 52

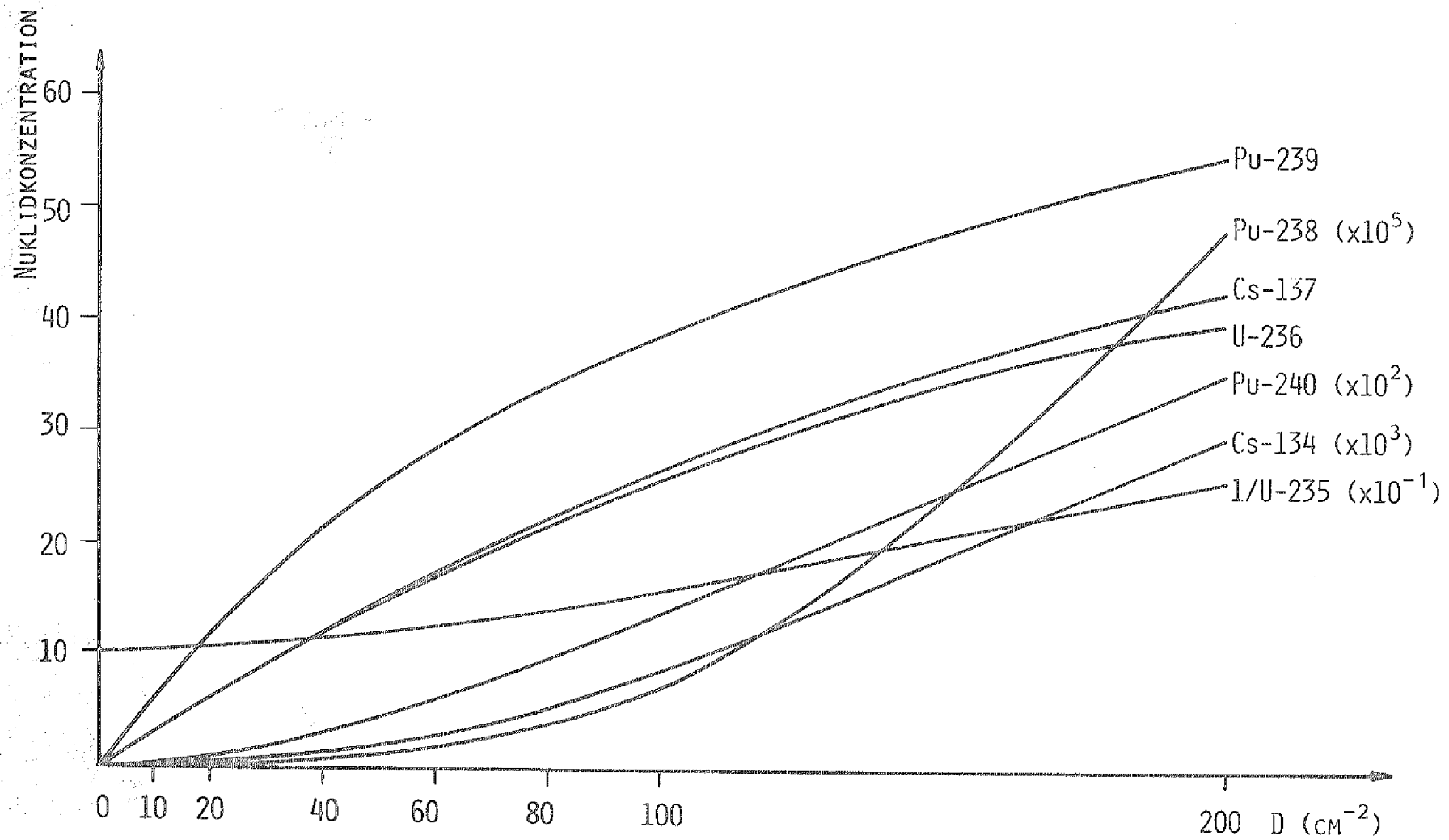


Abb. 58: Nuklidkonzentration als Funktion der Dosis

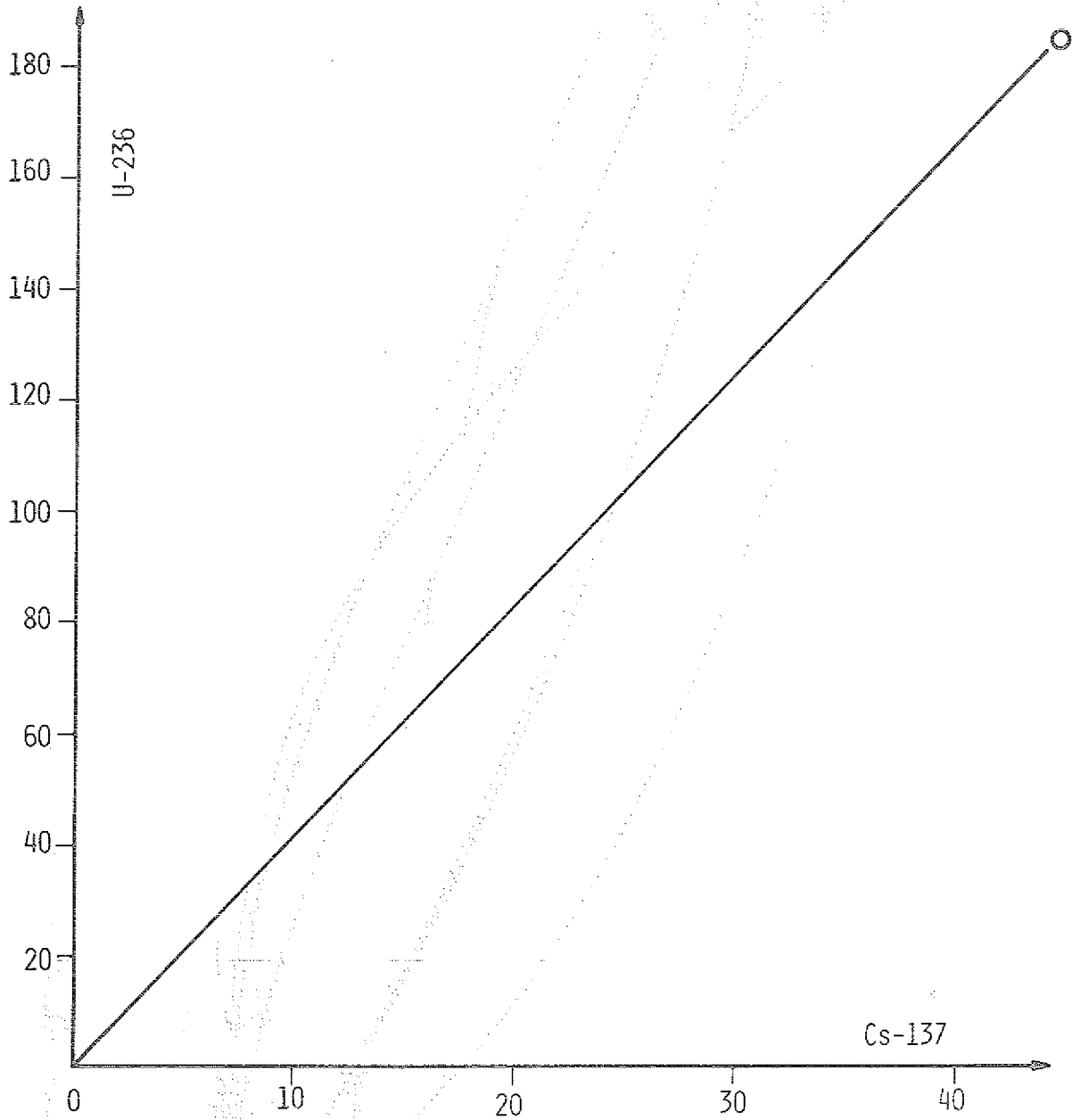


Abb. 59: Isotopenkorrelation  $U-236 = f(Cs-137)$

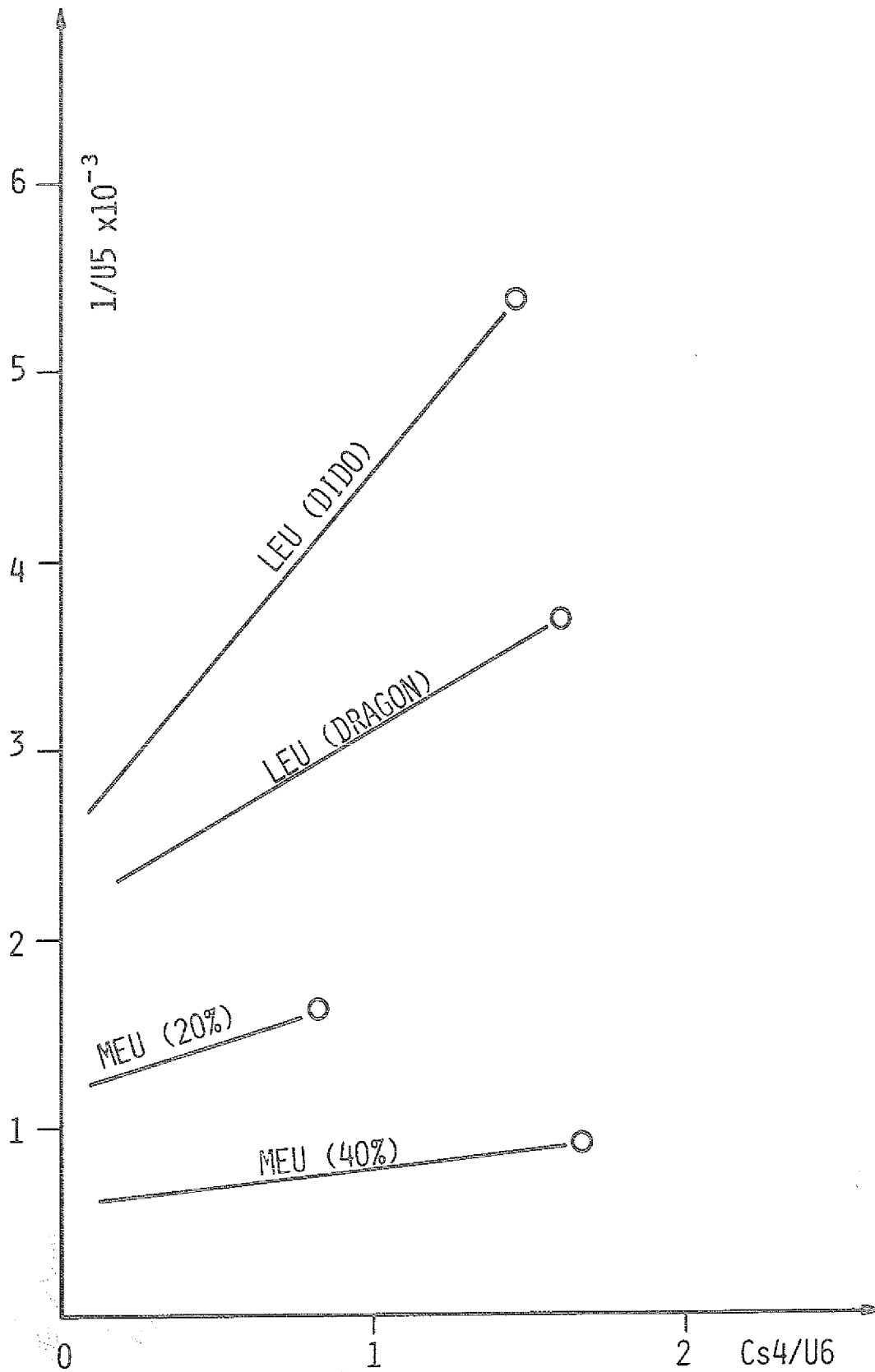


Abb. 60: Isotopenkorrelation  $1/U-235 = f(\text{Cs-134}/\text{U-236})$   
für LEU und MEU

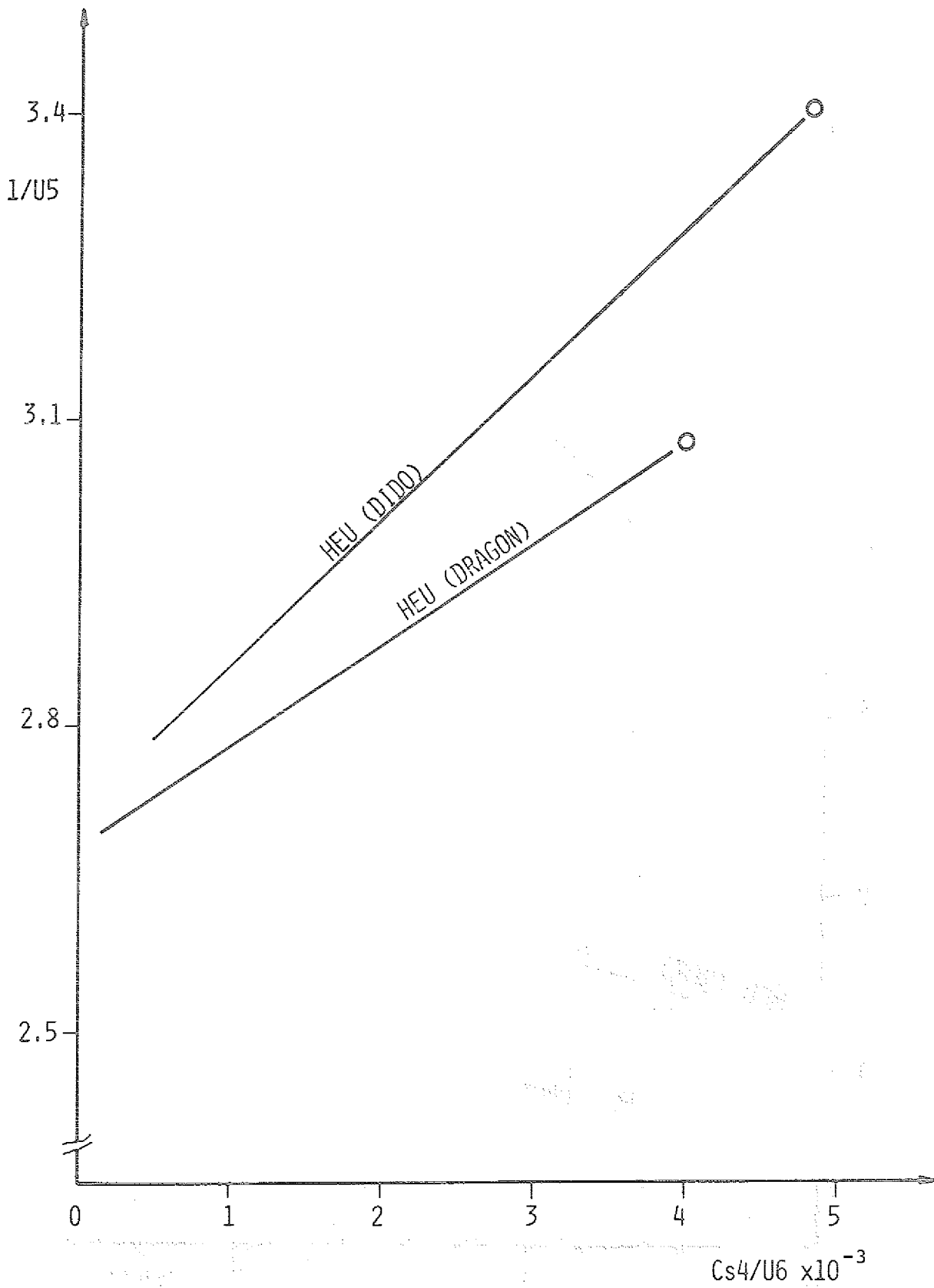


Abb. 61: Isotopenkorrelation  $1/U-235 = f(Cs-134/U-236)$  für HEU

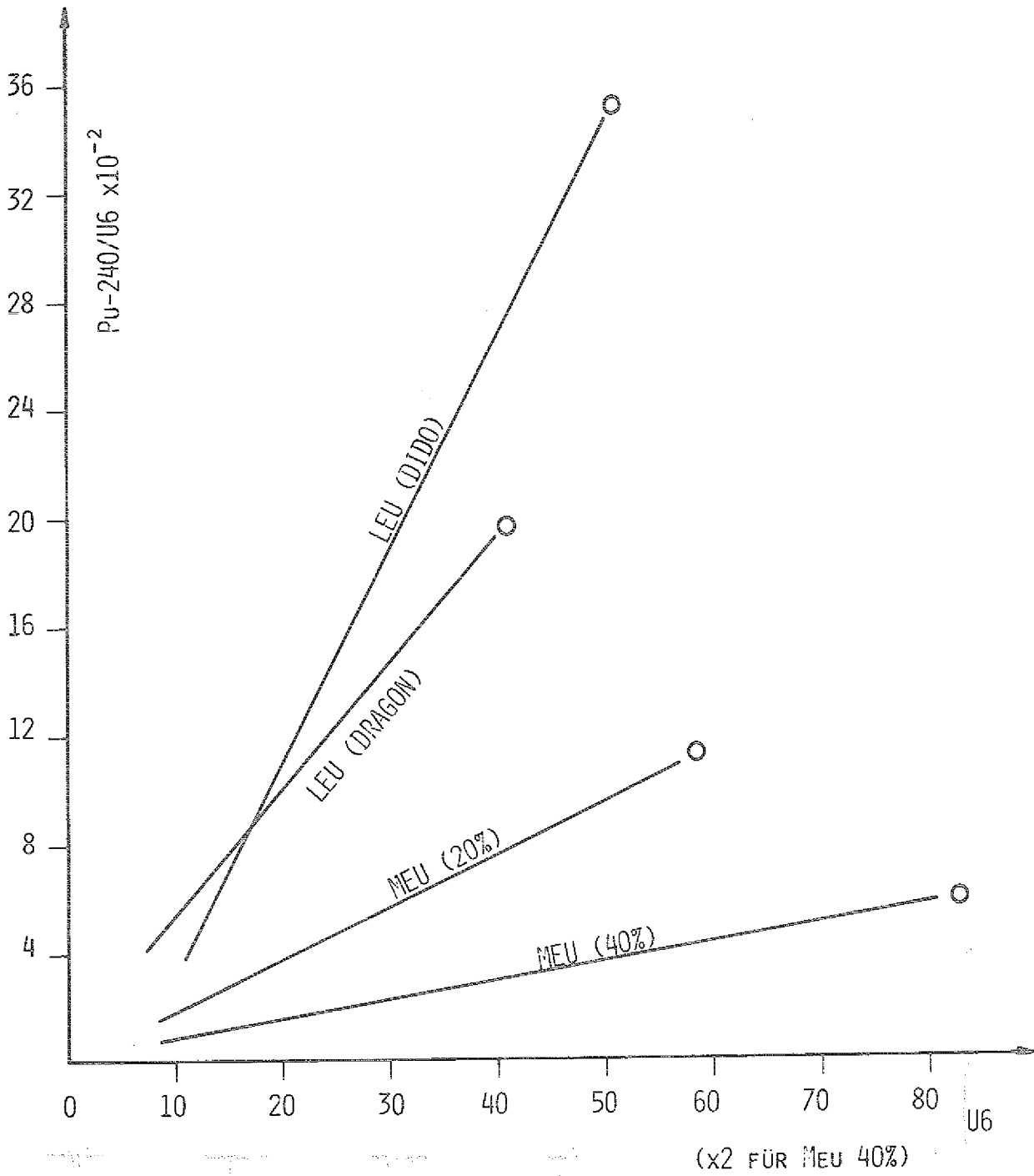


Abb. 62: Isotopenkorrelation  $\text{Pu-240/U-236} = f(\text{U-236})$  für LEU und MEU

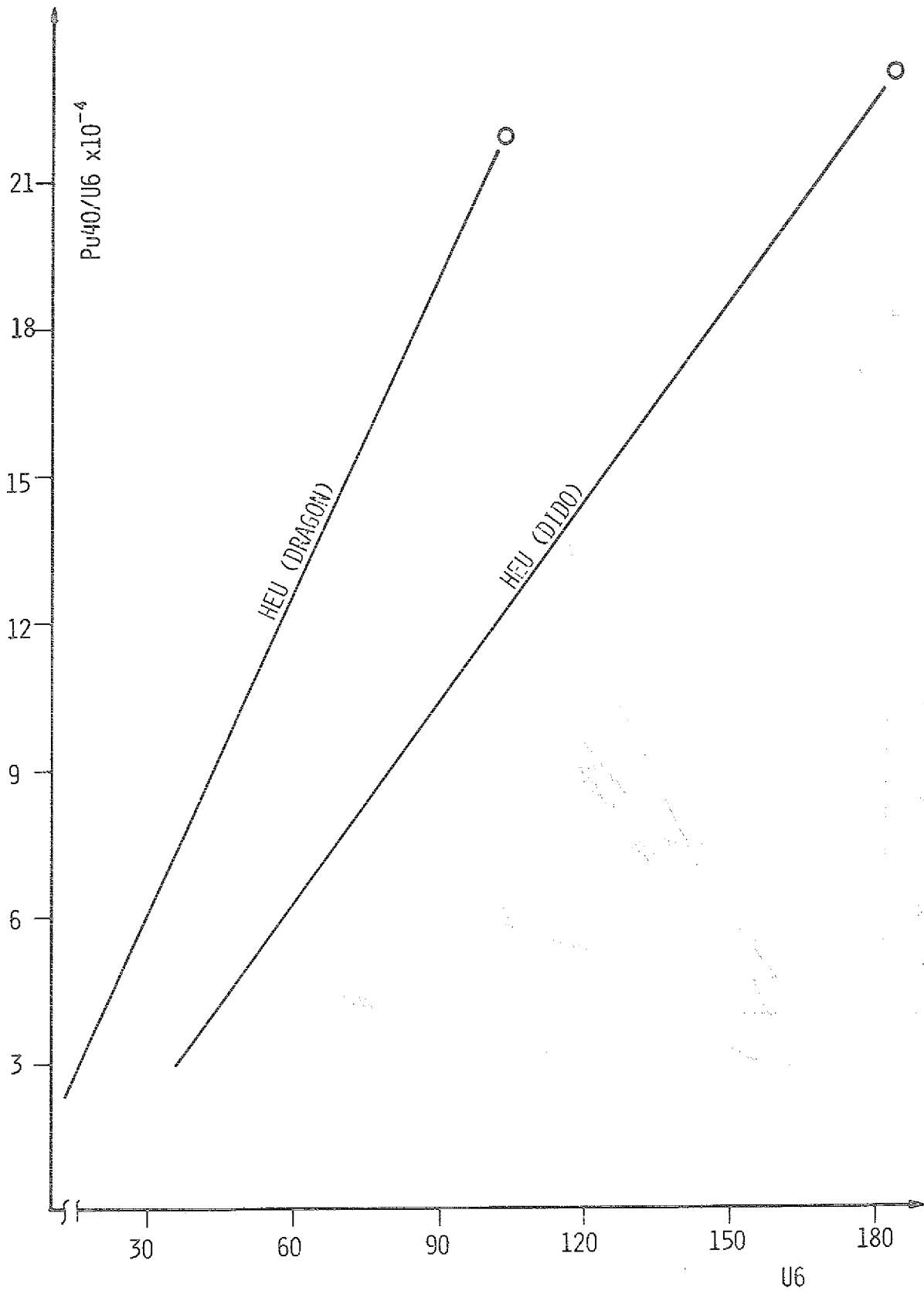


Abb. 63: Isotopenkorrelation  $\text{Pu-240}/\text{U-236} = f(\text{Pu-239})$  für HEU

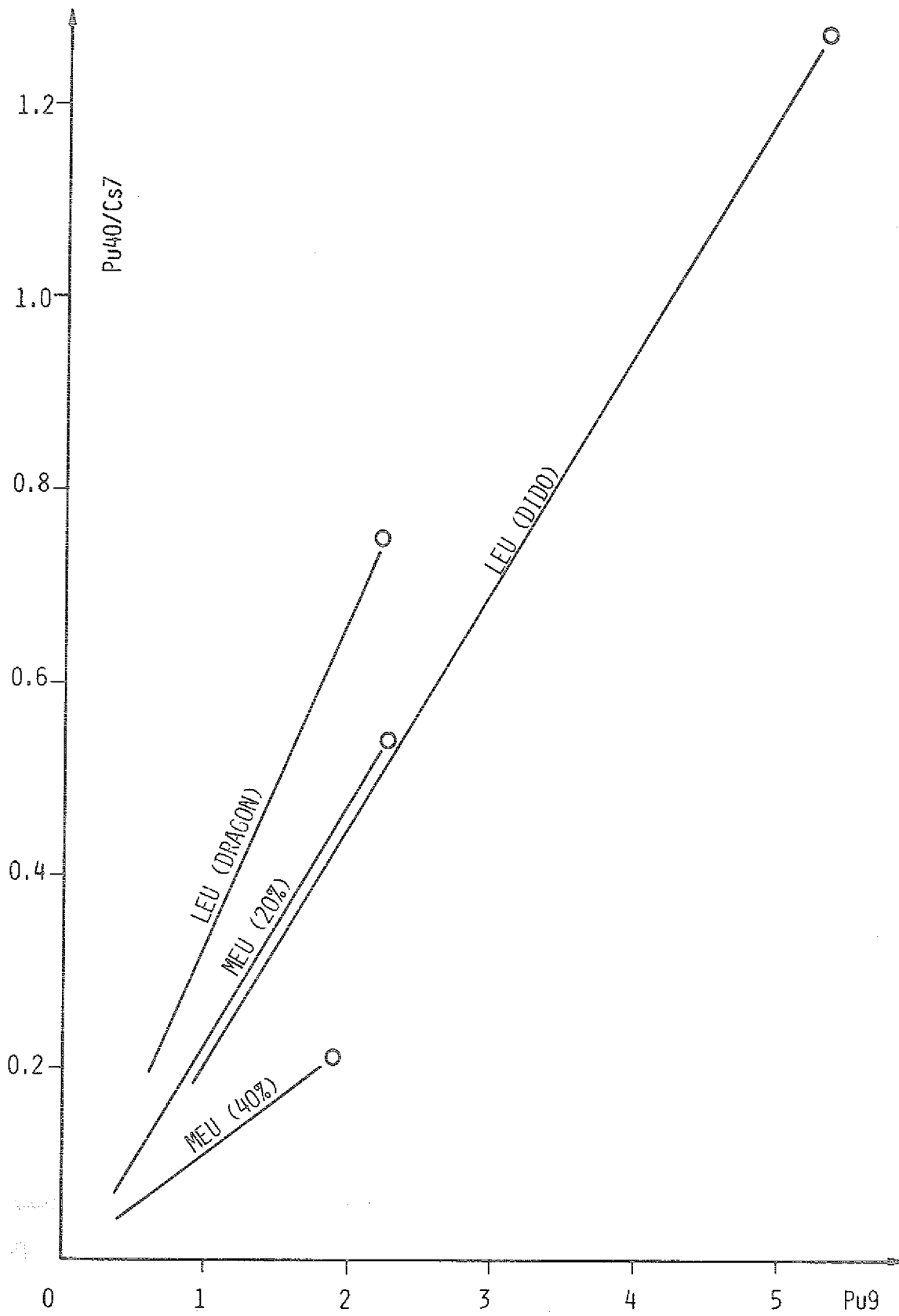


Abb. 64: Isotopenkorrelation  $\text{Pu-240/Cs-137} = f(\text{Pu-239})$  für LEU und MEU

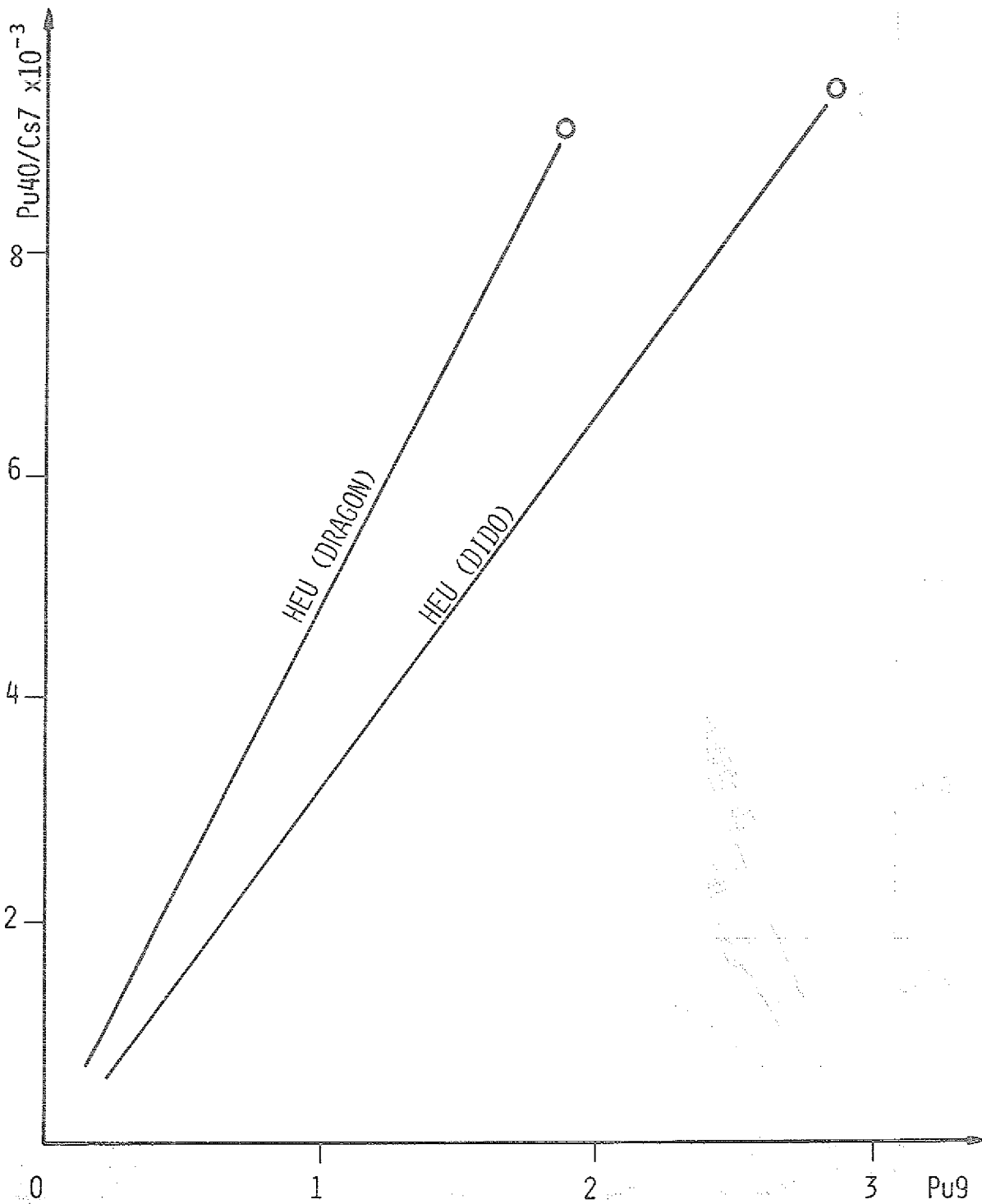


Abb. 65: Isotopenkorrelation Pu-240/Cs-137 = f(Pu-239) für HEU

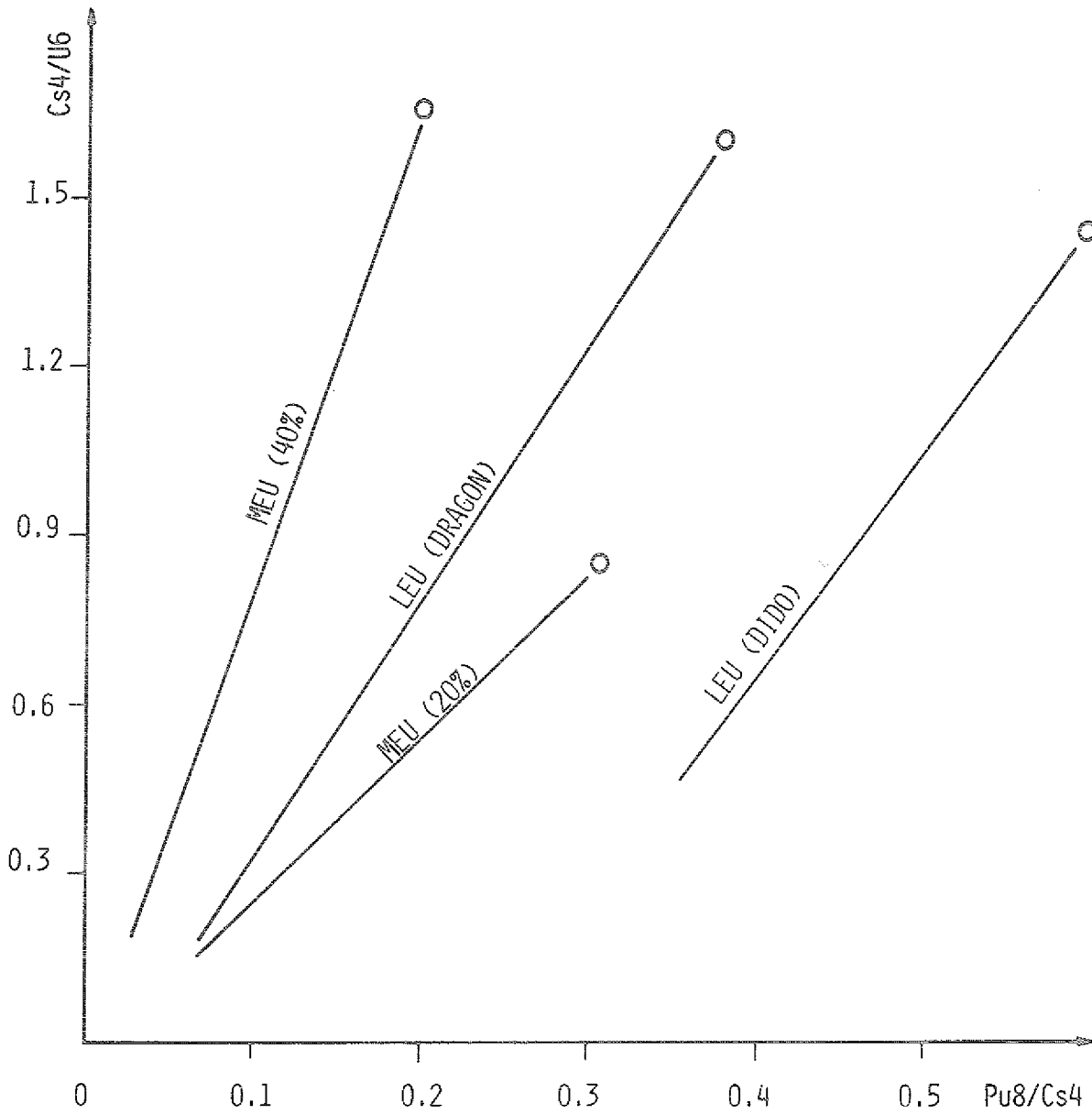


Abb. 66: Isotopenkorrelation  $Cs-134/U-236 = f(Pu-238/Cs-134)$   
für LEU und MEU

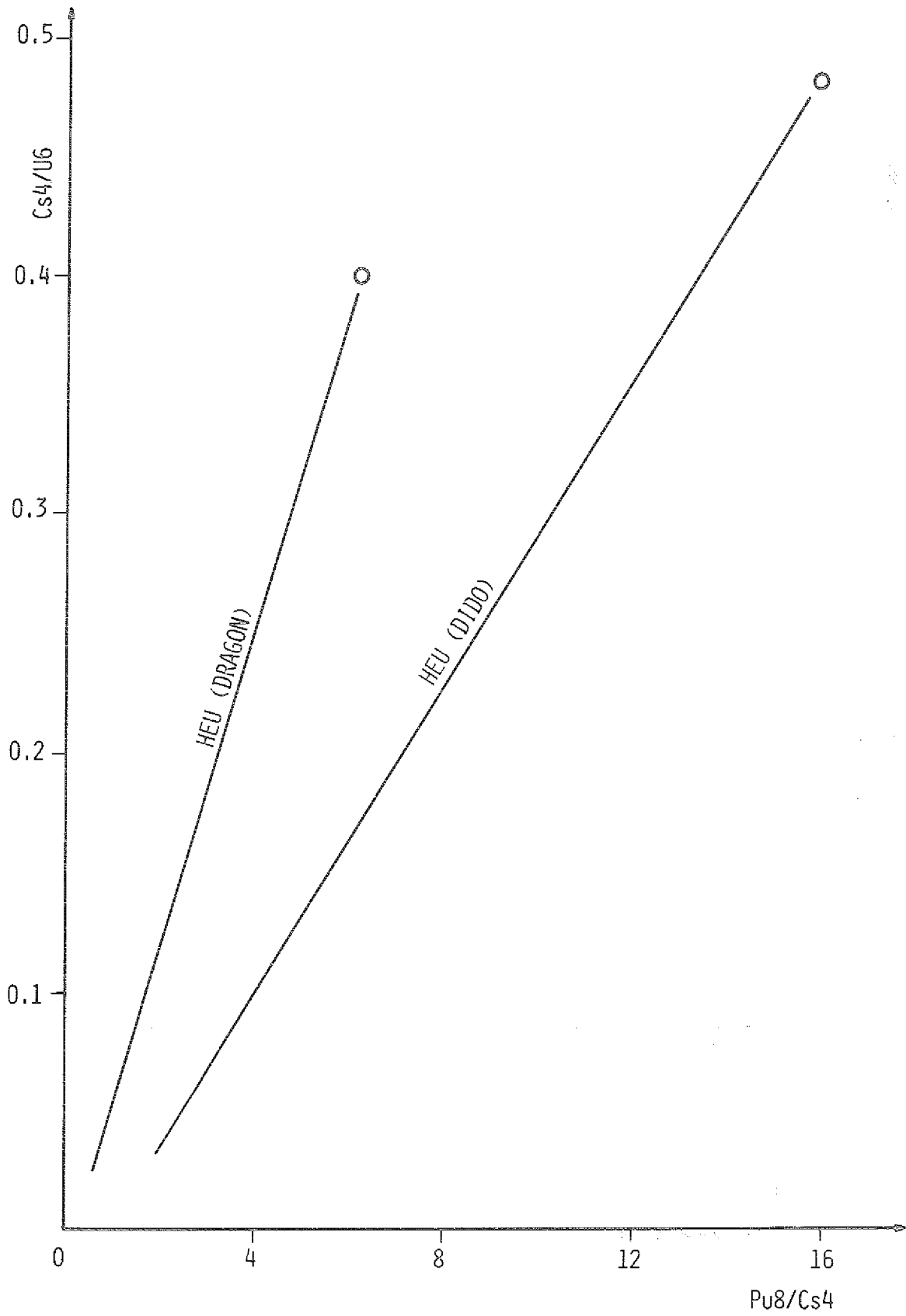


Abb. 67: Isotopenkorrelation  $Cs-134/U-236 = f(Pu-238/Cs-134)$  für HEU

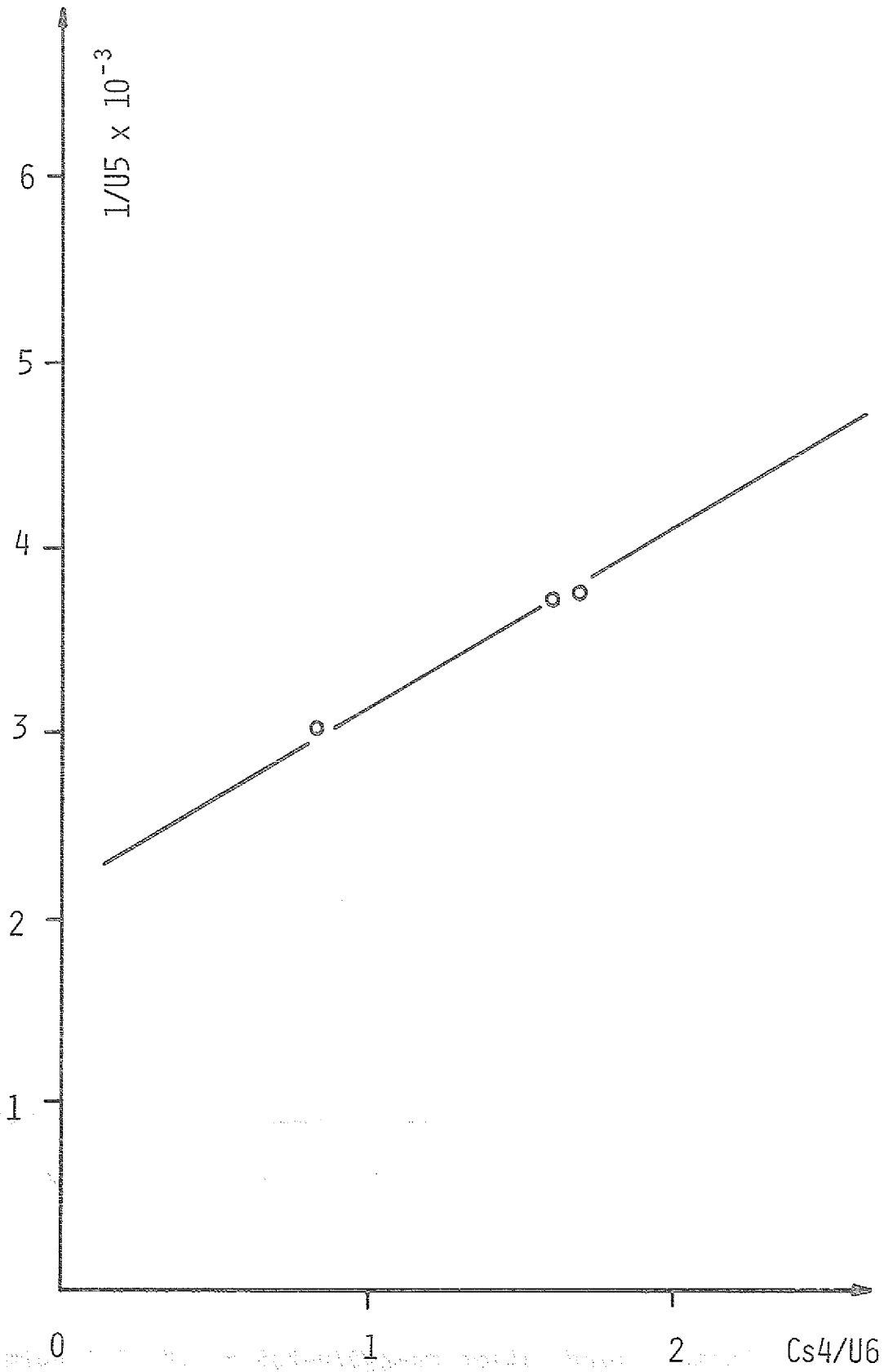


Abb. 68: Isotopenkorrelation  $1/U-235 = f(Cs-134/U-236)$   
normiert auf eine Anfangsanreicherung von  
9.5% U-235

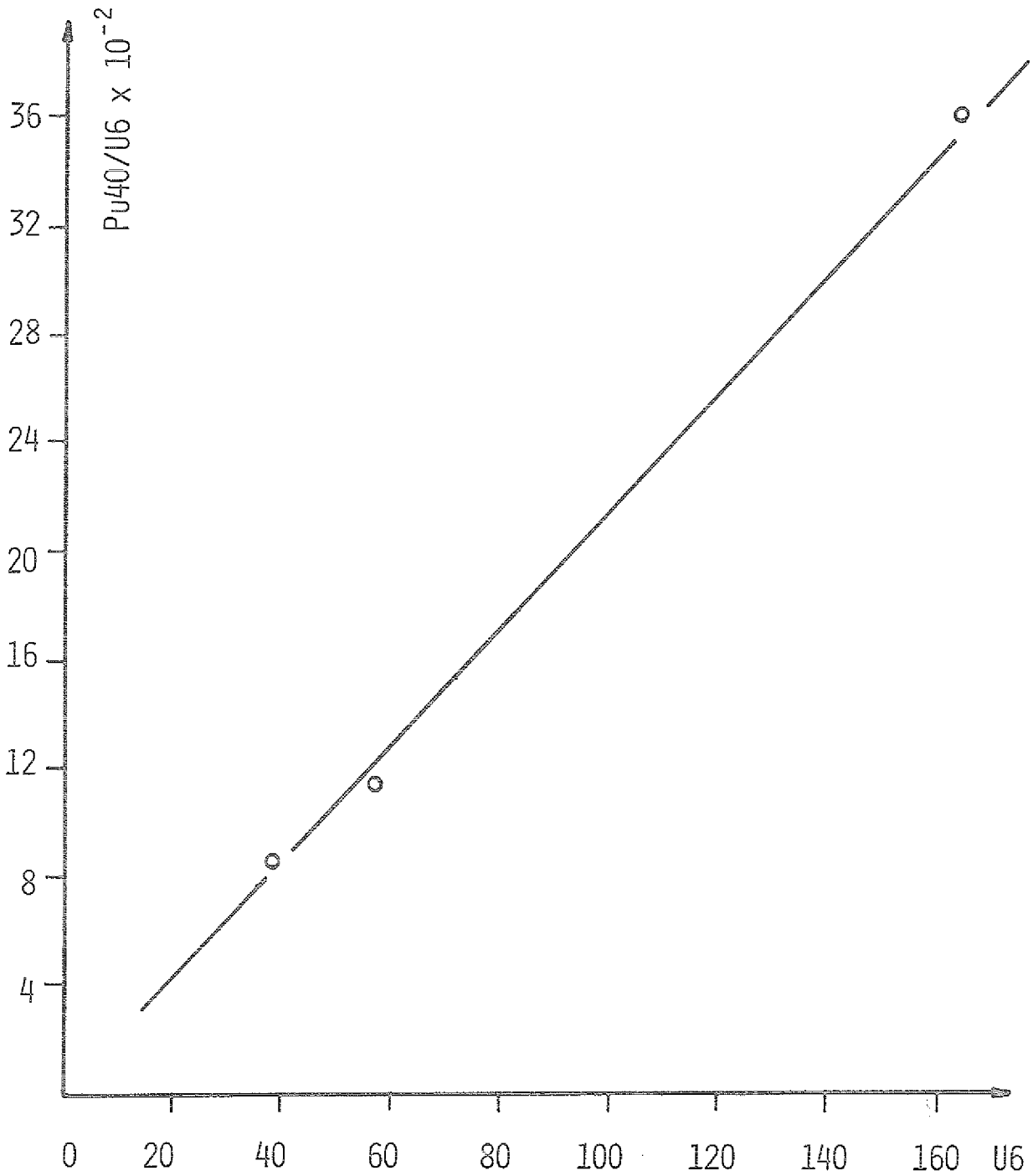


Abb. 69: Isotopenkorrelation  $\text{Pu-240/U-236} = f(\text{U-236})$  normiert auf eine Anfangsanreicherung von 20% U-235

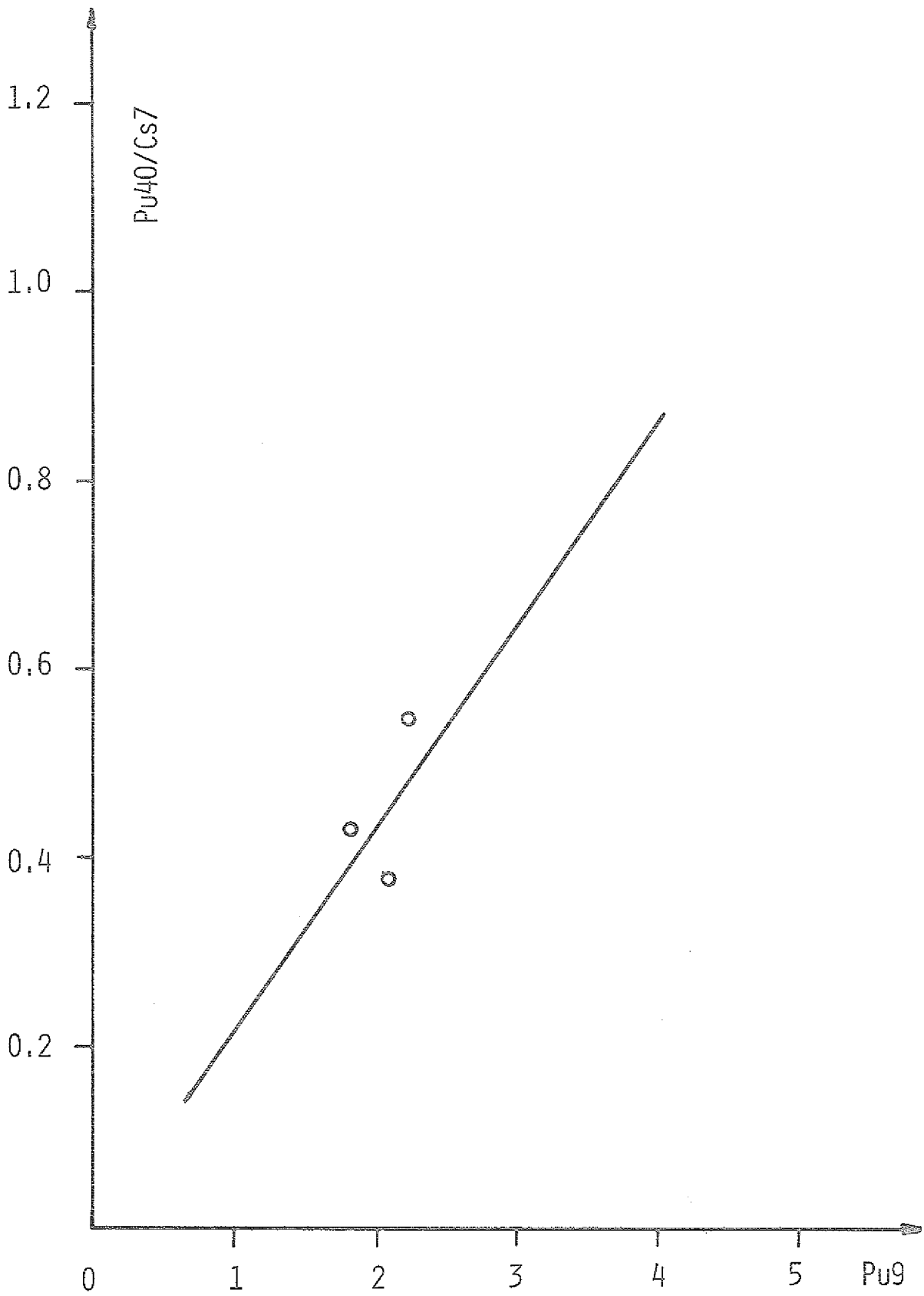


Abb. 70: Isotopenkorrelation  $\text{Pu-240/Cs-137} = f(\text{Pu-239})$   
normiert auf eine Anfangsanreicherung von 20% U-235

Herleitung der Abbrandgleichungen und der Steigungsfaktoren für die dargestellten Korrelationen, gezeigt am Beispiel der Abbrandgleichung für Pu-239 und des Steigungsfaktors für die Korrelation Pu-240/U-236 = f(U-236).

$$\frac{dN(\text{Pu-239})}{dt} = \lambda_{Np9} \cdot N_{Np9}(t) - \phi \cdot \sigma_{Pu9} \cdot N_{Pu9}(t)$$

$$N_{Pu9}(t) = C(t) \cdot \exp(-\phi \cdot \sigma_{Pu9} \cdot t)$$

$$\begin{aligned} \frac{dN(\text{Pu9})}{dt} &= C'(t) \cdot \exp(-\sigma_{Pu9} \cdot \phi \cdot t) - C(t) \cdot \exp(-\sigma_{Pu9} \cdot \phi \cdot t) \cdot \sigma_{Pu9} \cdot \phi \\ &= C'(t) \cdot \exp(-\sigma_{Pu9} \cdot \phi \cdot t) - N_{Pu9}(t) \cdot \sigma_{Pu9} \cdot \phi \end{aligned}$$

$$C'(t) \cdot \exp(-\sigma_{Pu9} \cdot \phi \cdot t) = \lambda_{Np9} \cdot N_{Np9}(t) = \lambda_{Np9} \cdot \frac{\phi \cdot \sigma_{U8} \cdot N_{U8}(0)}{\lambda_{Np9} \cdot \exp(-\sigma_{U8} \cdot \phi \cdot t)}$$

$$C'(t) = \phi \cdot \sigma_{U8}(0) \cdot \exp(\sigma_{Pu9} - \sigma_{U8}) \cdot \phi \cdot t$$

$$C(t) = \phi \cdot \sigma_{U8} \cdot N_{U8}(0) \cdot \exp(\sigma_{Pu9} - \sigma_{U8}) \cdot \phi \cdot t \cdot ((\sigma_{Pu9} - \sigma_{U8}) \cdot \phi)^{-1} + C_1$$

für  $t = 0$  ist  $N_{Pu9} = 0$  d.h.  $C(t) = 0$

$$\text{d.h. } C_1 = -\phi \cdot \sigma_{U8} \cdot N_{U8}(0) \cdot ((\sigma_{Pu9} - \sigma_{U8}) \cdot \phi)^{-1}$$

$$N_{Pu9}(t) = \exp(-\sigma_{Pu9} \cdot \phi \cdot t) \cdot (\phi \cdot \sigma_{U8}(0) \cdot \exp((\sigma_{Pu9} - \sigma_{U8}) \cdot \phi \cdot t) \cdot ((\sigma_{Pu9} - \sigma_{U8}) \cdot \phi)^{-1} - (\phi \cdot \sigma_{U8} \cdot N_{U8}(0)) \cdot ((\sigma_{Pu9} - \sigma_{U8}) \cdot \phi)^{-1})$$

$$N_{Pu9}(t) = \frac{\phi \cdot \sigma_{U8} \cdot N_{U8}(0)}{(\sigma_{Pu9} - \sigma_{U8}) \cdot \phi} \cdot (\exp(-\sigma_{U8} \cdot \phi \cdot t) - \exp(-\sigma_{Pu9} \cdot \phi \cdot t))$$

$$\sigma_{U8} \ll \sigma_{Pu9}$$

$$N_{Pu9}(t) = \frac{\sigma_{U8} \cdot N_{U8}(0)}{\sigma_{Pu9}} \cdot (\exp(-\sigma_{U8} \cdot \phi \cdot t) - \exp(-\sigma_{Pu9} \cdot \phi \cdot t))$$

$$\frac{Pu40(t)}{U6(t)} = P \cdot U6(t) + C_1$$

l'Hospitale:  $C = \frac{Pu40(t)^{(n)}}{U6(t)^{(n)}} \Big|_{t=0}$

$$C_1 = \frac{\sigma_{U8} \cdot N_{U8}(0) \cdot \sigma_{Pu9c} \cdot \sigma_{U5} \cdot \phi \cdot \frac{1}{\sigma_{Pu40} \cdot \phi} (\sigma_{Pu40} \cdot \phi - \sigma_{U8} \cdot \phi) + \frac{1}{\sigma_{Pu40} \cdot \phi - \sigma_{Pu9} \cdot \phi} (\sigma_{Pu9} \cdot \phi - \sigma_{Pu40} \cdot \phi)}{\sigma_{U5c} \cdot N_{U5}(0) \cdot \sigma_{Pu9} \cdot (\sigma_{U5} \cdot \phi - \sigma_{U6} \cdot \phi)}$$

$$C_1 = \frac{\sigma_{U8} \cdot N_{U8}(0) \cdot \sigma_{Pu9c} \cdot \sigma_{U5} \cdot \sigma_{U8}}{\sigma_{U5c} \cdot N_{U5}(0) \cdot \sigma_{Pu9} \cdot (\sigma_{U5} - \sigma_{U6}) \cdot \sigma_{Pu40}} \quad (\approx 0)$$

$$P = \frac{Pu40(t)}{U6(t) \cdot U6(t)} - \frac{C_1}{U6(t)}$$

$$P = (\sigma_{U8} \cdot N_{U8}(0) \cdot \sigma_{Pu9c} \cdot \phi \cdot \left( \frac{1}{\sigma_{Pu40} \cdot \phi} \cdot (\exp(-\sigma_{U8} \cdot \phi \cdot t) - \exp(-\sigma_{Pu40} \cdot \phi \cdot t)) + \right.$$

$$\left. \frac{1}{\sigma_{Pu40} \cdot \phi - \sigma_{Pu9} \cdot \phi} \cdot (\exp(-\sigma_{Pu40} \cdot \phi \cdot t) - \exp(-\sigma_{Pu9} \cdot \phi \cdot t)) \right) /$$

$$(\sigma_{Pu9} \cdot \sigma_{U5c} \cdot N_{U5}(0) \cdot \frac{1}{\sigma_{U5}} \cdot (\exp(-\sigma_{U6} \cdot \phi \cdot t) - \exp(-\sigma_{U5} \cdot \phi \cdot t))$$

$$- \sigma_{U5c} \cdot N_{U5}(0) \cdot \frac{1}{\sigma_{U5}} \cdot (\exp(-\sigma_{U6} \cdot \phi \cdot t) - \exp(-\sigma_{U5} \cdot \phi \cdot t)) -$$

$$(\sigma_{U5} \cdot \sigma_{U5} \cdot \sigma_{U5c} \cdot N_{U5}(0) \cdot \exp(-\sigma_{U6} \cdot \phi \cdot t) - \exp(-\sigma_{U5} \cdot \phi \cdot t) \cdot C_1) /$$

$$(\sigma_{U5c} \cdot N_{U5}(0) \cdot (\exp(-\sigma_{U6} \cdot \phi \cdot t) - \exp(-\sigma_{U5} \cdot \phi \cdot t)) \cdot \sigma_{U5c} \cdot N_{U5}(0) \cdot$$

$$(\exp(-\sigma_{U6} \cdot \phi \cdot t) - \exp(-\sigma_{U5} \cdot \phi \cdot t)) \cdot \sigma_{U5})$$

$$\sigma_{U5} \cdot \phi = A \quad \sigma_{U6} \cdot \phi = B \quad \sigma_{U8} \cdot \phi = C \quad \sigma_{Pu9} \cdot \phi = D \quad \sigma_{Pu40} \cdot \phi = E$$

$$P = \frac{\sigma_{U8} \cdot N_{U8}(0) \cdot \sigma_{Pu9c} \cdot \phi \cdot \sigma_{U5} \cdot \sigma_{U5}}{\sigma_{Pu9} \cdot \sigma_{U5c} \cdot N_{U5}(0) \cdot \sigma_{U5c} \cdot N_{U5}(0)} \cdot \left( \frac{1}{E} (\exp(-Ct) - \exp(-Et)) + \frac{1}{E-D} (\exp(-Et) - \exp(-Dt)) \right) - \frac{\sigma_{U5} \cdot C_1}{\sigma_{U5c} \cdot N_{U5}(0)} \cdot (\exp(-Bt) - \exp(-At)) \cdot \frac{(\exp(-Bt) - \exp(-At))^{-1}}{(\exp(-Bt) - \exp(-At))^{-1}}$$

$$p = \frac{C_2 \cdot \left( \frac{1}{E} (e^{-Ct} - e^{-Et}) + \frac{1}{E-D} (e^{-Et} - e^{-Dt}) \right) - C_3 (e^{-Bt} - e^{-At})}{(e^{-Bt} - e^{-At}) \cdot (e^{-Bt} - e^{-At})} \cdot \frac{e^{At}}{e^{At}}$$

$$B \ll A$$

$$C \ll A$$

Zähler (P):

$$C_2 \cdot \left( \frac{1}{E} (e^{At} - e^{(A-E)t}) + \frac{1}{E-D} (e^{(A-E)t} - e^{(A-D)t}) \right) - C_3 \cdot (e^{At} - 1)$$

$$\frac{C_2}{E} (At + \frac{1}{2} A^2 t^2 - (A-E)t - \frac{1}{2} (A-E)^2 t^2) + \frac{C_2}{E-D} ((A-E)t + \frac{1}{2} (A-E)^2 t^2 - (A-D)t - \frac{1}{2} (A-D)^2 t^2) - C_3 \cdot (At + \frac{1}{2} A^2 t^2)$$

$$\frac{C_2 A}{E} t + \frac{1}{2} \frac{C_2 A^2}{E} t^2 - C_2 \frac{A-E}{E} t - \frac{1}{2} C_2 \frac{(A-E)^2}{E} t^2 + C_2 \frac{A-E}{E-D} t + \frac{1}{2} C_2 \frac{(A-E)^2}{E-D} t^2 - C_2 \frac{A-D}{E-D} t - \frac{1}{2} C_2 \frac{(A-D)^2}{E-D} t^2 - C_3 \cdot At - \frac{1}{2} C_3 A^2 t^2$$

$$\frac{1}{2} t^2 \left( \frac{A^2}{E} - \frac{(A-E)^2}{E} + \frac{(A-E)^2}{E-D} - \frac{(A-D)^2}{E-D} \right) \cdot C_2 - 2 C_3 A \frac{1}{t} - C_3 A^2$$

für  $t = 0$  ist  $2 C_3 A \frac{1}{t}$  nicht definiert

für wachsende  $t$   $2 C_3 A \frac{1}{t} \ll \frac{A^2}{E} C_2$

$$\frac{1}{2} t^2 (D \cdot C_2 - C_3 \cdot A^2)$$

Nenner (P):

$$(e^{-B \cdot t} - e^{-At}) \cdot (e^{At} - 1)$$

$$\left(-B \cdot t + \frac{1}{2} B^2 t^2 + A \cdot t - \frac{1}{2} A^2 t^2\right) \cdot \left(A \cdot t + \frac{1}{2} A^2 t^2\right)$$

$$A \cdot (A-B) \cdot t^2 + \frac{1}{2} A^2 (A-B) \cdot t^3 + \frac{1}{2} A (B^2 - A^2) \cdot t^3 + \frac{1}{4} A^2 \cdot (B^2 - A^2) \cdot t^4$$

$$A^2 \cdot t^2 \cdot \left(1 - \frac{B}{A} + \frac{1}{2} (A-B) t + \frac{1}{2} \left(\frac{B^2}{A} - A\right) \cdot t + \frac{1}{4} (B^2 - A^2) \cdot t^2\right)$$

$$\frac{1}{4} (B^2 - A^2) \cdot t^2 \ll 1$$

$$\frac{1}{2} \left(\frac{B^2}{A} - B\right) \cdot t \ll 1$$

$$A^2 \cdot t^2 \cdot \left(1 - \frac{B}{A}\right)$$

$$P = \frac{D \cdot C_2 - C_3 \cdot A^2}{A(A-B) \cdot 2}$$

$$P = (\sigma_{Pu9} \cdot \phi \cdot \frac{\sigma_{U8} N_{U8}(0)}{\sigma_{Pu9} \sigma_{U5c} N_{U5}(0)} \frac{\sigma_{Pu9c} \phi \sigma_{U5} \sigma_{U5}}{\sigma_{U5e} N_{U5}(0)}) +$$

$$\left( \frac{\sigma_{U5} \sigma_{U8} N_{U8}(0) \sigma_{Pu9c} \sigma_{U5} \sigma_{U8}}{\sigma_{U5c} N_{U5}(0) \sigma_{U5c} N_{U5}(0) \sigma_{Pu9} (\sigma_{U5} - \sigma_{U6}) \sigma_{Pu40}} \right) /$$

$$(2 \cdot \sigma_{U5} \cdot \phi (\sigma_{U5} - \sigma_{U6}) \cdot \phi)$$

$$P = \frac{\sigma_{U8} N_{U8}(0) \sigma_{Pu9c}}{\sigma_{U5c} \sigma_{U5c} N_{U5}(0) N_{U5}(0) \cdot 2}$$

