

*Institut für Sicherheitsforschung
und Reaktortechnik*

Abbrandmessung am HTR-Modul-Reaktor

Erich Gerhards

Abbrandmessung am HTR-Modul-Reaktor

Erich Gerhards

Burn-Up Measurement in the HTR-Module-Reactor

by
Erich Gerhards

ABSTRACT

The burn-up status of spherical HTR-fuel elements is determined by a γ -spectrometric analysis of Cs-137 activity.

The γ -spectrum recorded by a semiconductor detector up to now is analyzed by complex mathematical and time-consuming methods. For the operation of the HTR-Module-Reactor, however, a fast evaluation of the burn-up status is necessary. In the present work it is shown that this can be ensured by a comparison between the measured spectra and simulation results.

Using the computer-program HTROGEN and the new program system SPECALC especially developed for this problem the γ -spectra are evaluated as a function of the burn-up status.

The new developed method is applied to results available from the operation of the AVR-reactor. The burn-up status determined with different methods corresponds very well within the limits of accuracy.

Abbrandmessung am HTR-Modul-Reaktor

von
Erich Gerhards

KURZFASSUNG

Die Bestimmung des Abbrandzustandes kugelförmiger HTR-Brennelemente erfolgt durch eine γ -spektrometrische Analyse der Aktivität des Nuklides Cs-137.

Das mit einem Halbleiterdetektor aufgenommene γ -Spektrum wird bislang durch mathematisch und zeitlich aufwendige Verfahren ausgewertet. Für den Betrieb des HTR-Modul-Reaktors ist jedoch eine schnelle Aussage bezüglich des Abbrandzustandes erforderlich. In der vorliegenden Arbeit wird gezeigt, daß diese durch einen Vergleich der gemessenen Spektren mit Simulationsergebnissen gewährleistet werden kann.

Mit dem Rechenprogramm HTROGEN und dem speziell für diese Fragestellung entwickelten Programmsystem SPECCALC werden die γ -Spektren als Funktion des Abbrandzustandes berechnet.

Die neu entwickelte Methode wird auf vorliegende Ergebnisse aus dem Betrieb des AVR-Reaktors angewendet. Die mit unterschiedlichen Methoden bestimmten Abbrandzustände stimmen im Rahmen der Genauigkeit sehr gut überein.

Vorwort

Die vorliegende Arbeit entstand während meiner Tätigkeit am Institut für Sicherheitsforschung und Reaktortechnik des Forschungszentrums KFA Jülich GmbH.

Mein besonderer Dank gilt Herrn Prof. Dr. R. Schulten für die interessante Themenstellung, die wissenschaftliche Betreuung sowie die Übernahme des Referats.

Herrn Prof. Dr. K. Kugeler, dem Leiter des Institutes für Sicherheitsforschung und Reaktortechnik, danke ich für die Übernahme des Korreferats sowie seine Unterstützung bei der Anfertigung dieser Arbeit.

Bei Herrn Prof. Dr. H. Barnert möchte ich mich für die Übernahme des zweiten Korreferats und für zahlreiche fruchtbare Anregungen bei der Durchsicht dieser Arbeit bedanken.

Zu besonderem Dank verpflichtet fühle ich mich der Firma Siemens-Interatom für die finanzielle Unterstützung während der Erstellung dieser Arbeit und die Überlassung wertvoller Unterlagen über den HTR-Modul-Reaktor. Dieser Dank gilt in besonderem Maße Herrn Dr. G. Lohnert für zahlreiche Diskussionen und Anregungen sowie seine Unterstützung bei organisatorischen Fragen.

Herrn Dr. F. Thomas danke ich für seine hilfreiche Betreuung und freundschaftliche Unterstützung, ohne die die Arbeit in dieser Form nicht hätte erstellt werden können und die kritische Durchsicht des Manuskriptes.

Herrn Dr. L. Wolf und Herrn Dr. H. Werner möchte ich für viele richtungsweisende Denkanstöße und konstruktive Kritik danken, die zum Gelingen dieser Arbeit beitrugen.

Herrn Dr. H. Werner und Herrn Dr. F. Thomas danke ich zudem für die Erlaubnis, das von ihnen entwickelte Programmsystem HTR-2000 nutzen zu dürfen.

Für viele wertvolle Informationen über die Abbrandmeßeinrichtung in den Heißen Zellen des Forschungszentrums KFA Jülich GmbH und die Überlassung wichtigen Datenmaterials möchte ich Herrn Dipl.-Ing. W. Kühnlein meinen herzlichen Dank aussprechen.

Bei meinem Bruder Herrn Dr. R. Gerhards bedanke ich mich für die Überarbeitung und Korrektur des Manuskriptes.

Nicht zuletzt gilt mein Dank auch allen Mitarbeitern des Institutes für Sicherheitsforschung und Reaktortechnik. Dieser gilt insbesondere Frau A. Kuhr, Herrn Ch. Schelthoff und Frau J. Rath.

Schließlich möchte ich auch meine Eltern mit einschließen, deren stetes Interesse und großzügige Unterstützung mein Studium erst ermöglicht hat und manche Schwierigkeit überwinden half.

Inhaltsverzeichnis

1. Einleitung und Motivation	1
2. Grundlagen der Abbrandmessung	3
2.1. Mathematische Beschreibung des Abbrandgeschehens	3
2.2. Notwendigkeit der Abbrandmessung	5
2.2. Physikalische Grundlagen der γ -Spektrometrie	8
2.2.1. Photoeffekt	9
2.2.2. Comptonstreuung	9
2.2.3. Paarbildungseffekt	10
2.2.4. Entstehung eines γ -Spektrums	10
2.3. Beschreibung einer γ -spektrometrischen Meßeinrichtung	13
2.4. Mathematische Auswertung von γ -Spektren	16
3. Beschreibung des HTR-Modul-Reaktors	25
3.1. Aufbau und Funktionsweise des HTR-Modul-Reaktors	25
3.2. Beschreibung der Primärkreiskomponenten	27
3.3. Reaktorphysikalische Auslegung	30
3.4. Aufbau der Brennelemente des HTR-Modul-Reaktors	33
3.5. Handhabung der Brennelemente im HTR-Modul-Reaktor	36
3.5.1. Brennelement-Beschickung im HTR-Modul-Reaktor	36
3.5.2. Brennelement-Entnahme aus dem Core des HTR-Modul-Reaktors	36
3.6. Abbrandmessung am HTR-Modul-Reaktor	39
3.6.1. Anordnung der Abbrandmeßanlage im HTR-Modul-Reaktor	39
3.6.2. Anforderungen an die Abbrandmeßanlage des HTR-Modul-Reaktors	40
3.6.2.1. Bestimmung des Abbrandzustandes	41
3.6.2.2. Erkennung von Moderator- und Absorberkugeln	42
3.6.2.3. Unterscheidung der Anreicherungsstufen	42
4. Beschreibung der eingesetzten Rechenprogramme	43
4.1. Das Programmsystem HTR-2000	43
4.1.1. Spektralrechnung	46
4.1.2. Diffusionsrechnung	47
4.1.3. ORIGEN-Berechnungen	47
4.2. Das Programmsystem SPECCALC	49
4.2.1. Umfang und Aufbau der verwendeten Nuklidbibliothek	50
4.2.2. Simulation der Kalibrierung	50
4.2.2.1. Energiekalibrierung	50
4.2.2.2. Halbwertsbreitenkalibrierung	51
4.2.2.3. Tailkalibrierung	51
4.2.2.4. Kalibrierung der Nachweiswahrscheinlichkeit	51
4.2.3. Berechnung der γ -Spektren	52
4.2.3.1. Berechnung des Comptonuntergrundes	52
4.2.3.2. Simulation des Raumuntergrundes	54
4.2.3.3. Konstruktion der Photopeaks	55
4.2.4. Ausgabe in graphischer und numerischer Form	56

5. Berechnungen mit den Programmen HTR-2000 und SPECCALC	57
5.1. Validierung des Programmsystems SPECCALC	57
5.2. Simulation von γ -Spektren als Funktion des Abbrandes	72
5.3. Bestimmung des Abbrandes der Validierungsbrennelemente	79
5.4. Unterscheidung von BE mit unterschiedlicher Anreicherung	82
6. Zusammenfassung	87
Literaturverzeichnis	89
Anhang A. Abbrand - Definition und Umrechnungen	95
Anhang B. Verwendete Abkürzungen	99

Abbildungsverzeichnis

Abb. 1.	Konzentrationsverläufe ausgewählter Uran- und Plutoniumisotope	5
Abb. 2.	Qualitative Änderung des Flußverlaufes in einem Nulleistungsreaktor über dem Durchmesser	7
Abb. 3.	Zerfallsschema des Nuklides J-131	8
Abb. 4.	Wirkungsbereiche von Photoeffekt, Comptoneffekt und Paarbildungseffekt.	11
Abb. 5.	Impulshöhenspektrum monoenergetischer γ -Strahlung	12
Abb. 6.	Blockschaltbild einer γ -spektrometrischen Meßeinrichtung	13
Abb. 7.	Ansprechvermögen eines Halbleiterdetektors	14
Abb. 8.	Darstellung eines Einzelpeaks	17
Abb. 9.	Darstellung eines Doppelpeaks	18
Abb. 10.	Energiekalibrierungsfunktion eines in den HZ eingesetzten Halbleiterdetektors	21
Abb. 11.	Kalibrierungsfunktion der Halbwertsbreite eines in den HZ eingesetzten Halbleiterdetektors	21
Abb. 12.	Tailkalibrierung eines in den HZ eingesetzten Halbleiterdetektors	22
Abb. 13.	Nachweiswahrscheinlichkeit eines in den HZ eingesetzten Halbleiterdetektors	23
Abb. 14.	Funktionsweise einer HTR-Modul-Kraftwerksanlage	26
Abb. 15.	Schnitt durch die Primärzelle des HTR-Modul-Reaktors	28
Abb. 16.	Axiale Leistungsdichteverteilung im Gleichgewichtskern des HTR-Modul-Reaktors	31
Abb. 17.	Aufbau der beim HTR-Modul-Reaktor zum Einsatz kommenden Brennelemente	34
Abb. 18.	Einrichtungen zur Brennelementhandhabung im HTR-Modul-Reaktor	37
Abb. 19.	Anordnung der Abbrandmeßanlage im Reaktorgebäude	40
Abb. 20.	Schematische Darstellung des Programmes HTR-2000	44
Abb. 21.	Kugelfließmodell des AVR-Reaktors mit 9 Kanälen	45
Abb. 22.	Schematische Darstellung des Programmes SPECCALC	49
Abb. 23.	Bezeichnung der Winkel bei der Comptonstreuung	52
Abb. 24.	Verlauf des Comptonuntergrundes eines γ -Spektrums	54
Abb. 25.	Berechnetes γ -Spektrum des BE-4091 nach einer Abklingzeit von 300 Tagen	60
Abb. 26.	Berechnetes γ -Spektrum des BE-4113 nach einer Abklingzeit von 300 Tagen	61
Abb. 27.	Berechnetes γ -Spektrum des BE-4118 nach einer Abklingzeit von 300 Tagen	62
Abb. 28.	Berechnetes γ -Spektrum eines BE mit einem Abbrand von 7,4 % nach 300 Tagen Abklingzeit	64
Abb. 29.	Berechnetes γ -Spektrum eines BE mit einem Abbrand von 10,5 % nach 300 Tagen Abklingzeit	65
Abb. 30.	Berechnetes γ -Spektrum eines BE mit einem Abbrand von 9,2 % nach 300 Tagen Abklingzeit	66
Abb. 31.	Dampferzeugerleistung des AVR-Reaktors im Zeitraum Januar bis Juli 1988	67

Abb. 32. Berechnetes γ -Spektrum eines BE mit einem Abbrand von 7,4 % nach 400 Tagen Abklingzeit	68
Abb. 33. Berechnetes γ -Spektrum eines BE mit einem Abbrand von 10,5 % nach 400 Tagen Abklingzeit	69
Abb. 34. Berechnetes γ -Spektrum eines BE mit einem Abbrand von 9,2 % nach 400 Tagen Abklingzeit	70
Abb. 35. Berechnetes γ -Spektrum eines BE mit einem Abbrand von 1 % fima	73
Abb. 36. Berechnetes γ -Spektrum eines BE mit einem Abbrand von 4 % fima	74
Abb. 37. Einzeldarstellung des Cs-134-Photopeaks (604,7 keV) eines BE mit einem Abbrand von 4 % fima	74
Abb. 38. Berechnetes γ -Spektrum eines BE mit einem Abbrand von 10 % fima ...	75
Abb. 39. Berechneter Aktivitätsverlauf des Nuklides Cs-134 als Funktion des Ab- brandes	76
Abb. 40. Berechneter Aktivitätsverlauf des Nuklides Ba-137m als Funktion des Ab- brandes	77
Abb. 41. Berechnetes Amplituden- und Aktivitätsverhältnis als Funktion des Ab- brandes nach 55 Stunden Abklingzeit	78
Abb. 42. Amplitudenverhältnis als Funktion des Abbrandes nach 400 Tagen Abklingzeit	80
Abb. 43. Verlauf der J-132 und Ba-137m Aktivität als Funktion des BE-Lebens ..	83
Abb. 44. Entwicklung der J-Aktivität als Funktion der Ba-Aktivität	84
Abb. 45. Vergleich der BE mit 4 % und 6 % Anreicherung bei gleicher Bestrah- lungsgeschichte	85
Abb. 46. Vergleich der BE mit 4 % und 8 % Anreicherung bei gleicher Bestrah- lungsgeschichte	86
Abb. 47. Vergleich der BE mit 6 % und 8 % Anreicherung bei gleicher Bestrah- lungsgeschichte	86

Tabellenverzeichnis

Tab. 1.	Physikalische Eigenschaften wichtiger Eichpräparate	20
Tab. 2.	Hauptauslegungsdaten der HTR-Modul-Kraftwerksanlage	26
Tab. 3.	Hauptauslegungsdaten der Kerneinbauten	29
Tab. 4.	Belastung der Brennelemente im Gleichgewichtskern	32
Tab. 5.	Auslegungsdaten der beim HTR-Modul-Reaktor verwendeten Brennelemente	33
Tab. 6.	Anforderungen an die Brennelemente während des Reaktorbetriebes	35
Tab. 7.	Auslegungsdaten der BE-Beschickungsanlage	36
Tab. 8.	Auslegungsdaten der BE-Entnahmeanlage	38
Tab. 9.	Physikalische Größen von Nukliden zur Abbrandmessung	42
Tab. 10.	Einteilung der Makro-Energiegruppen in HTR-2000	46
Tab. 11.	Auslegung des BE-Types GLE-3	57
Tab. 12.	Wichtige Daten der Validierungsbrennelemente	58
Tab. 13.	Mit HTROGEN berechnete Nuklidaktivitäten der Validierungs-BE nach 300 Tagen Abklingzeit	59
Tab. 14.	Amplitudenverhältnisse der gemessenen γ -Spektren	79
Tab. 15.	Abbrandzustände der Validierungsbrennelemente	79
Tab. 16.	Vertrauensbereich der Amplitudenverhältnisse gemessener γ -Spektren	81
Tab. 17.	Spezifikation der Kugeltypen im HTR-Modul-Reaktor	82

1. Einleitung und Motivation

In der Bundesrepublik Deutschland war die Akzeptanz der nuklearen Energieerzeugung, insbesondere aufgrund der Reaktorunfälle auf Three Miles Islands und in Tschernobyl, auf ein Minimum gesunken.

Die seit einigen Jahren aufkommende Diskussion über die umweltzerstörenden Folgen des Treibhauseffektes, der hauptsächlich durch die Emission des bei der Verbrennung fossiler Energieträger entstehenden Kohlendioxid verursacht wird, entfachte jedoch eine neuerliche Diskussion über die friedliche Nutzung der Kernenergie. In jüngster Zeit sind erste Anzeichen eines Umdenkprozesses seitens der Politik und in der Bevölkerung erkennbar.

Im Hinblick auf den ständig steigenden Energiebedarf der Welt wird die Kernenergie in der zukünftigen Energiepolitik einen bedeutenden Beitrag leisten, da der Einsatz regenerativer Energiequellen (Sonne, Wind, Wasser und Erdwärme) in den nächsten Jahrzehnten allenfalls lokale Bedeutung erlangen kann, eine industrielle Nutzung der Energieerzeugung durch Kernfusion noch nicht in Sicht ist und der Einsatz fossiler Brennstoffe (Erdgas, Erdöl und Kohle) aufgrund des Treibhauseffektes reduziert werden muß.

Der weitere Ausbau der Kernenergie wird jedoch nur möglich sein, wenn die kerntechnische Industrie von ihrer bisherigen Sicherheitsphilosophie der Minimierung der Eintrittswahrscheinlichkeit schwerer Unfälle abweicht und Reaktorkonzepte erstellt, bei denen schwere Unfälle mit katastrophalen Folgen für Mensch und Umwelt aufgrund physikalischer Systemeigenschaften ausgeschlossen sind.

Ein solches Konzept wird in der Bundesrepublik Deutschland mit dem Kugelhaufen-Hochtemperaturreaktor bereits seit mehr als 30 Jahren entwickelt. Der HTR-Modul-Reaktor der Siemens AG ist die Weiterentwicklung dieser Reaktorbaulinie, die in den sechziger Jahren mit dem AVR-Versuchsreaktor auf dem Gelände des Forschungszentrums KFA Jülich begann.

Durch die physikalische und geometrische Auslegung des Cores werden die Brennelementtemperaturen, sowohl im Normalbetrieb als auch bei Störfällen, auf Werte begrenzt, bei denen keine Freisetzung radioaktiver Spaltprodukte erfolgen kann, so daß eine unzulässige Belastung der Umgebung ausgeschlossen wird.

Ein wesentliches Merkmal dieses Reaktortypes ist die Verwendung kugelförmiger Brennelemente (BE), die sich in loser Schüttung im Core befinden (Kugelhaufen). Infolge der Schwerkraft bewegen sich die BE durch das Core und werden durch ein Kugelabzugsrohr entnommen.

Die bisher in der Bundesrepublik gebauten (AVR, THTR-300) bzw. geplanten HTR-Anlagen (HTR-Modul-Reaktor) arbeiten nach dem Prinzip des BE-Mehrfachdurchlaufes, wobei BE-Entnahme und Beschickung des Reaktors während des Leistungsbetriebes erfolgen. Die dem Core entnommenen BE müssen vor der Rezyklierung auf Beschädigungen und Abbrand bzw. Restspaltstoffgehalt untersucht werden.

Die vorliegende Arbeit beschäftigt sich mit der Abbrandmessung am HTR-Modul-Reaktor.

Die Siemens AG hat hierzu eine Methode gewählt, die durch Auswertung der γ -Spektren bestrahlter Brennelemente eine Aussage über deren Abbrandzustand ermöglicht. Diese Methode wurde am AVR-Reaktor seit 1982 erfolgreich eingesetzt und lieferte bis zu dessen Stilllegung im Dezember 1988 wertvolle Ergebnisse im Hinblick auf die Weiterentwicklung dieses Meßverfahrens.

Die Auswertung eines gemessenen γ -Spektrums erfolgt bislang mit Hilfe von Rechenprogrammen, die nach der Least-Square-Methode eine Anpassung mathematischer Funktionen an die gemessenen Daten durchführen. Die Fläche unter diesen Funktionen ist ein Maß für den erzielten Abbrand.

In der vorliegenden Arbeit wird eine neue Methode zur Auswertung der γ -Spektren vorgestellt, bei der mit Hilfe eines Simulationsprogrammes der Nuklidvektor eines BE als Funktion des Abbrandes und der Abklingzeit (Zeitspanne zwischen Bestrahlungsende und Messung) berechnet wird. In einem weiteren Schritt wird durch eine modellmäßige Abbildung des zur Messung eingesetzten Halbleiterdetektors das zu diesem Nuklidvektor gehörende γ -Spektrum konstruiert.

Es wird gezeigt, daß während des Normalbetriebes der Anlage alle seitens der Abbrandmessung zu bewältigenden Aufgaben durch einen Vergleich zwischen den gemessenen und den simulierten Spektren realisiert werden können und somit auf eine mathematisch komplizierte und zeitintensive Auswertung der γ -Spektren verzichtet werden kann. Den Schwierigkeiten bei der Abbranddetektion während der Inbetriebnahmephase und nach längeren Abschaltphasen wird besondere Beachtung geschenkt. Lösungsvorschläge hierzu werden diskutiert.

Im zweiten Kapitel werden die physikalischen Prozesse und mathematischen Methoden behandelt, die zur Entstehung eines γ -Spektrums beitragen und bei dessen Auswertung von Bedeutung sind.

Das dritte Kapitel beschreibt den Aufbau und die Funktionsweise des HTR-Modul-Reaktors und definiert die Anforderungen an die Abbrandmessung.

Das vierte Kapitel enthält die Beschreibung der eingesetzten Rechenprogramme. Der Schwerpunkt liegt hierbei auf dem im Rahmen dieser Arbeit entwickelten Programmsystem zur Simulation von γ -Spektren.

Im fünften Kapitel werden die zur Berechnung benötigten Randbedingungen festgelegt sowie deren Ergebnisse präsentiert und bewertet.

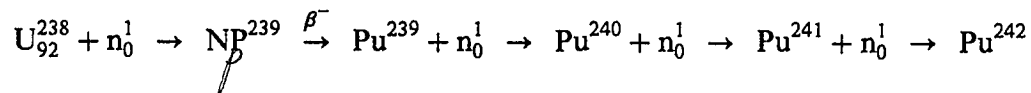
Abschließend erfolgt eine Zusammenfassung der Ergebnisse und ein Ausblick auf den Betrieb des HTR-Modul-Reaktors.

Im Anhang sind einige wichtige Definitionen und Umrechnungen aufgeführt.

2. Grundlagen der Abbrandmessung

In einem Hochtemperaturreaktor sind in Abhängigkeit vom gewählten Brennstoffzyklus die spaltbaren Isotope U-233, U-235, Pu-239 und Pu-241 sowie die mit thermischen Neutronen nicht spaltbaren Brutstoffe Th-232 bzw. U-238 in verschiedenen Konzentrationen vorhanden.

Im HTR-Modul-Reaktor wird ein Gemisch der Uranisotope U-235 und U-238 eingesetzt werden, wobei die Anreicherung des Spaltstoffes U-235 während der Inbetriebnahme-phase variiert wird. Als Folge des Neutroneneinfangs im U-238 werden die wiederum spaltbaren Plutoniumisotope Pu-239 und Pu-241 erzeugt.



Sowohl das ursprünglich als Spaltstoff eingesetzte Isotop U-235 als auch die erbrüteten Plutoniumisotope werden zu einem großen Teil im Laufe des Reaktorbetriebes gespalten. Dieser Vorgang wird auch als Abbrennen bezeichnet. Der Abbrand eines Brennelementes (BE) ist demnach ein Maß für die Anzahl der in diesem erfolgten Spaltungen und damit auch für die erzeugte Energie. In der Literatur existiert eine Reihe unterschiedlicher Definitionen, von denen die drei wichtigsten, einschließlich der zur Umrechnung erforderlichen Beziehungen, im Anhang angegeben sind.

2.1. Mathematische Beschreibung des Abbrandgeschehens

Die zeitliche Änderung der Nuklidkonzentrationen aller im Reaktor enthaltenen Isotope wird durch die folgende, allgemein gültige Differentialgleichung vollständig beschrieben:

$$\begin{aligned} \frac{dN_i(t)}{dt} = & \int_0^\infty \sum_1 \gamma_i(E) \sigma_{f,i}(E) N_i(t) \phi(E, t) dE \\ & + \int_0^\infty [\sigma_{c,i-1}(E) N_{i-1}(t)] \phi(E, t) dE + \sum_j \lambda_j N_j(t) \\ & - \int_0^\infty [\sigma_{a,i}(E) N_i(t)] \phi(E, t) dE - \lambda_i N_i(t) \end{aligned}$$

Hierin beschreibt der erste Term die Entstehung des Nuklides durch Spaltung des Isotopes X mit der Spaltausbeute γ_i , der zweite die Entstehung durch Neutroneneinfang im Isotop i-1, der dritte die Produktion durch radioaktiven α - bzw. β -Zerfall sowie der vierte und fünfte Term die Verluste durch Neutronenabsorption und radioaktivem Zerfall. Die obige Bilanzgleichung enthält Energie-, Zeit- und Ortsabhängige Faktoren, die in geeigneter Weise gemittelt werden müssen. Eine vollständige analytische Lösung der Abbrandgleichungen ist nicht möglich. Im Einzelfall sind jedoch nicht alle Parameter zu berücksichtigen, so daß sich die Gleichung erheblich vereinfacht.

Bei der Berechnung der Konzentration des Spaltnuklides U-235 können die ersten drei Terme, die die Entstehung des Isotopes beschreiben, allesamt vernachlässigt werden, da

U-235 im HTR-Modul-Reaktor nur in sehr geringem Umfang neu erzeugt wird. Auch die Verluste als Folge des radioaktiven α -Zerfalls sind im Vergleich zur auftretenden Spaltrate praktisch vernachlässigbar, so daß sich mit jeweils über den thermischen Energiebereich gemittelten Werten für Neutronenfluß und Wirkungsquerschnitt die folgende Bilanz ergibt:

$$\frac{dN_{U-235}}{dt} = - N_{U-235} \cdot \sigma_{f, \mu-235} \cdot \phi \quad \sigma_f + \sigma_a$$

Auch bei der Bilanz des Nuklides U-238 kann die Entstehung im Reaktor vollständig vernachlässigt werden. Zudem ist der Spaltquerschnitt im thermischen Bereich derart gering, daß die hierdurch entstehenden Verluste, ebenso wie die durch radioaktiven Zerfall bedingten, im Vergleich zu denen durch Neutroneneinfang ebenfalls vernachlässigbar sind. Für die Konzentration des U-238 ergibt sich somit die folgende Bilanzgleichung:

$$\frac{dN_{U-238}}{dt} = - N_{U-238} \cdot \sigma_{a, \mu-238} \cdot \phi$$

Ein Problem bei der Lösung dieser Differentialgleichung stellt in diesem Fall jedoch die Behandlung der Energieabhängigkeit der Wirkungsquerschnitte dar, da U-238 im epithermischen Bereich ausgesprochen hohe Resonanzen aufweist. Aus diesem Grunde werden der thermische, epithermische und schnelle Energiebereich mit jeweils geeigneten Mittelwerten getrennt behandelt.

Für die Konzentration der Plutoniumisotope gelten die folgenden Bilanzgleichungen, wenn man in beiden Fällen die Verluste durch radioaktiven Zerfall nicht berücksichtigt:

$$\frac{dN_{Pu-239}}{dt} = N_{U-238} \cdot \phi \cdot \sigma_{a, U-238} - N_{Pu-239} \cdot \phi \cdot \sigma_{a, Pu-239} - N_{Pu-239} \cdot \phi \cdot \sigma_{f, Pu-239}$$

$$\frac{dN_{Pu-241}}{dt} = N_{Pu-240} \cdot \phi \cdot \sigma_{a, Pu-240} - N_{Pu-241} \cdot \phi \cdot \sigma_{a, Pu-241} - N_{Pu-241} \cdot \phi \cdot \sigma_{f, Pu-241}$$

Man erhält schließlich bei Berücksichtigung aller Spalt- und Brutstoffe ein System miteinander gekoppelter Differentialgleichungen, dessen numerische Lösung zu zeitlichen Konzentrationsverläufen führt, wie sie in Abb. 1 auf Seite 5 beispielhaft gezeigt werden /26/.

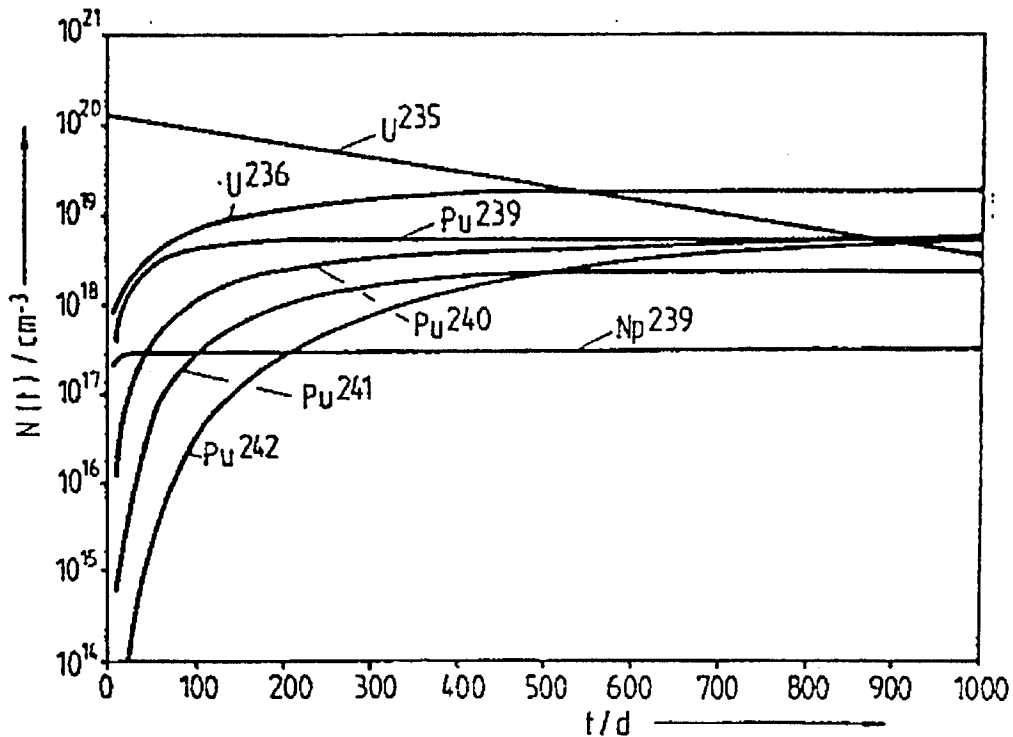


Abb. 1. Konzentrationsverläufe ausgewählter Uran- und Plutoniumisotope

2.2. Notwendigkeit der Abbrandmessung

Beim Bau und beim Betrieb von Kernreaktoren sind die zwei Gesichtspunkte wirtschaftlicher Nutzen und maximale Sicherheit von entscheidender Bedeutung. Die Aufgabe der Coreauslegung eines Kernreaktors besteht darin, diese beiden Kriterien in bestmöglicher Weise miteinander zu verknüpfen.

Die Wirtschaftlichkeit eines Reaktors ist abhängig von der Ausnutzung des eingesetzten Brennstoffes, so daß bei Berücksichtigung ausschließlich dieses Gesichtspunktes die Entnahme eines BE möglichst lange hinauszuzögern wäre.

Mit zunehmender Einsatzzeit im Reaktor werden jedoch als Folge der Neutronenbestrahlung Konzentrationsänderungen im BE hervorgerufen, für die folgende physikalische Effekte verantwortlich sind:

- Der eingesetzte Spaltstoff wird verbraucht und dessen Konzentration im BE mit zunehmendem Abbrand abgebaut.
- Neuer Spaltstoff wird durch Umwandlung nicht spaltbarer Isotope (Brutstoff) erzeugt, jedoch nicht in ausreichender Menge, um die zuvor angeführten Verluste zu decken.

- Nichtspaltbare Transurane (Aktinide) entstehen durch Neutroneneinfang im Spalt- und Brutstoff.
- Die Konzentration der Spaltprodukte erhöht sich als Folge des Spaltprozesses.

Durch die Absenkung des Spaltstoffinventars und die gleichzeitige Zunahme der Spaltproduktkonzentration sowie den damit verbundenen parasitären Neutroneneinfang wird die Neutronenbilanz wesentlich verschlechtert. Die Forderung der Kritikalität eines Kernreaktors erfordert daher eine Entnahme der BE, falls deren Abbrand einen zuvor festgelegten Grenzwert erreicht hat.

Unter sicherheitstechnischen Gesichtspunkten ist insbesondere das Inventar der Spaltprodukte von Bedeutung, das sowohl für die Nachwärmeleistung als auch für die Aktivität entscheidend ist. Zudem ist die Dichtigkeit der Barrieren gegen Spaltproduktfreisetzung bei Hochtemperaturreaktoren eine Funktion des BE-Abbrandes, da die eingesetzten Werkstoffe mit zunehmender Neutronenbestrahlung beschädigt werden. Bei extrem hohen Abbränden kann eine Freisetzung von Spaltprodukten in Störfallsituationen (Kernaufheizung) nicht mehr grundsätzlich ausgeschlossen werden.

Aus den beiden genannten Gründen ist daher die Festlegung eines Ziel- oder Entnahmeabbrandes unbedingt erforderlich. Dabei ist das entscheidende Kriterium die Verschlechterung der Neutronenbilanz, da diese lange bevor die BE einen für das Rückhaltevermögen kritischen Abbrand erreichen, nicht mehr toleriert werden kann.

Während der Abbrand bei Leichtwasserreaktoren mit Hilfe von Rechenprogrammen bestimmt werden kann, da die BE fest im Core verankert sind und die Bestrahlungswerte durch Messungen bekannt sind, ist die Berechnung des Abbrandzustandes einzelner BE beim Hochtemperaturreaktor nicht möglich. Die kugelförmigen BE bewegen sich infolge der Schwerkraft durch das Core und werden hierbei unterschiedlichen Bestrahlungsbedingungen ausgesetzt. Eine Beschreibung dieser Bewegungen kann allenfalls mit Hilfe statistischer Methoden für eine größere Anzahl BE erfolgen. Die exakte Bestrahlungsgeschichte einzelner BE, die zur Berechnung des Abbrandzustandes erforderlich ist, ist jedoch nicht bekannt.

Die BE werden deshalb nach der Entnahme aus dem Core auf Beschädigungen und Abbrandzustand untersucht und anschließend entweder rezykliert oder dem Kreislauf entnommen. Da eine direkte Messung des Abbrandzustandes nicht möglich ist, wurden unterschiedliche Methoden zur Abbranddetektion entwickelt.

Beim Thorium-Hochtemperatur-Reaktor (THTR-300) in Hamm-Uentrop wurde ein Nulleistungsreaktor eingesetzt, der die Ermittlung des Restspaltstoffgehaltes über die Flußänderung bei Zugabe eines BE gestattet /1/. Dieses Verfahren nutzt den Effekt, daß ein kleiner Kernreaktor (Nulleistungsreaktor) mit einer geringen kritischen Masse sehr empfindlich auf die Zugabe kleiner Mengen spaltbarer, absorbierender oder streuender Substanzen reagiert. Die Empfindlichkeit und damit die Meßgenauigkeit ist umso größer, je kleiner die kritischen Abmessungen des Reaktors sind. Als Meßsignal erhält man eine, für die eingebrachte Substanz charakteristische, Änderung des Neutronenflusses, die praktisch ohne Verzögerung (im Bereich von Millisekunden) auftritt.

Bringt man Spaltstoff in den Meßreaktor ein, so erhält man eine Erhöhung des Flusses mit einem Maximum in der Coremitte, in der sich das zu messende BE befindet. Für eine reine Graphitkugel ohne Spalt- und Brutstoffinventar ergibt sich ebenfalls eine Zunahme, jedoch mit einem Maximum am Rand des Cores. Absorbierende Substanzen bewirken eine Flußabsenkung mit einem Minimum in der Coremitte. Abb. 2 zeigt qualitativ die Änderung des Flußverlaufes für Spaltstoff, Graphit und Brutstoff über dem Coredurchmesser /1/.

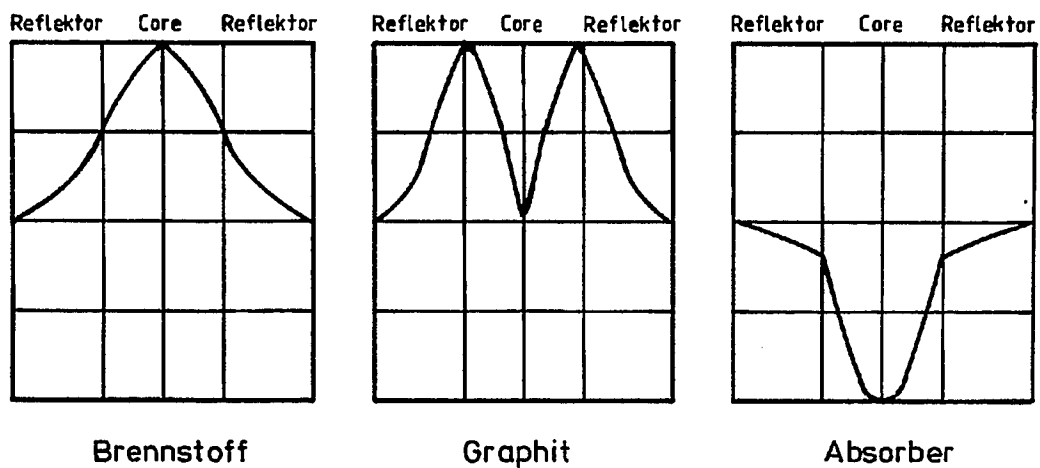


Abb. 2. Qualitative Änderung des Flußverlaufes in einem Nulleistungsreaktor über dem Durchmesser

Erste Erfahrungen mit dieser Meßmethode wurden während des Betriebes des THTR-300 in Hamm-Uentrop gesammelt. Zur Messung wurde dort ein Reaktor mit einer sehr geringen Leistung eingesetzt, so daß ein Kühlsystem zur Wärmeabfuhr nicht erforderlich war.

Die Änderung des Neutronenflusses wird mit Hilfe von Ionisationskammern gemessen. Die Höhe der Flußänderung ist hierbei ein Maß für den zugeführten Spaltstoff, so daß eine Aussage über den Restspaltstoffgehalt im BE gemacht werden kann, mit dem dann wiederum der Abbrand berechnet wird.

Ein Nachteil dieses Verfahrens liegt darin, daß eine Unterscheidung verschiedener BE-Typen nicht möglich ist. Dies bedeutet, daß lediglich eine BE-Sorte verwendet werden darf, wodurch der Reaktor unflexibel gegenüber Umstellungen im Brennstoffeinsatz wird, die reaktorphysikalisch durchaus möglich wären. Weitere Nachteile ergeben sich aus der Tatsache, daß ein Abbrandmeßreaktor relativ teuer ist und im Genehmigungsverfahren als Kernspaltungsreaktor (Sicherheitsnachweis) betrachtet werden muß.

Aus diesen Gründen hat sich der Hersteller des HTR-Modul-Reaktors, die Firma Siemens-Interatom, für das Verfahren der γ -spektrometrischen Abbranddetektion entschieden, das bereits im AVR-Reaktor erfolgreich eingesetzt wurde /2, 3, 4, 5/.

2.2. Physikalische Grundlagen der γ -Spektrometrie

Bei der γ -Strahlung handelt es sich um eine elektromagnetische Strahlung, die beim Übergang eines angeregten Kerns in seinen Grundzustand auftritt. Da bei den meisten Kernen eine Vielzahl von angeregten Zuständen bekannt ist, erhält man Zerfallsschemata, von denen das des Nuklides J-131 in Abb. 3 dargestellt ist /6/. Die emittierten γ -Strahlen (Photonen) besitzen dabei diskrete, für das jeweilige Nuklid charakteristische Energien.

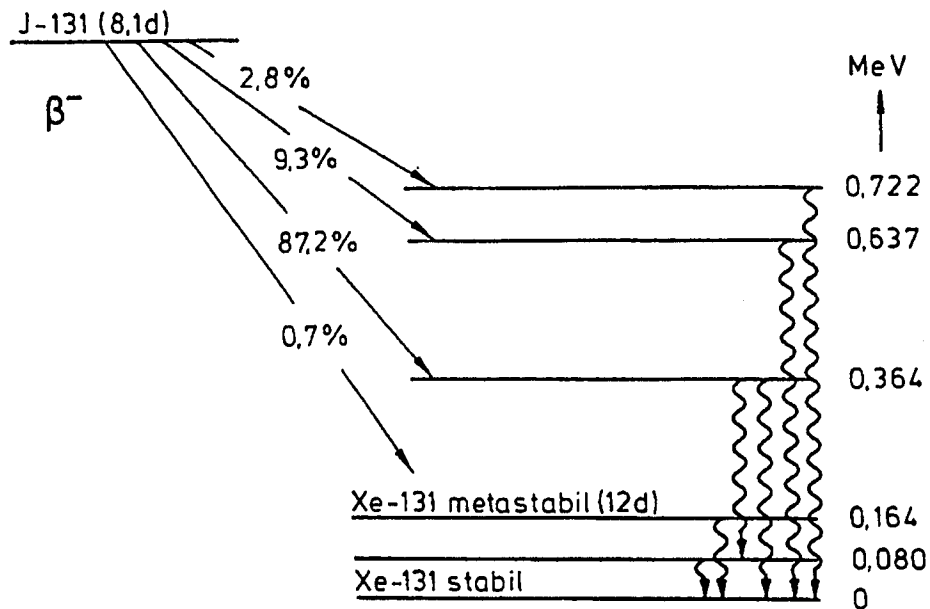


Abb. 3. Zerfallsschema des Nuklides J-131

Jod-131 zerfällt mit einer Halbwertszeit von 8,1 Tagen in vier verschiedene Energiezustände der Nuklide Xe-131 bzw. Xe-131m. Jedem dieser Übergänge kann eine bestimmte Häufigkeit zugeordnet werden, die nachfolgend als Übergangswahrscheinlichkeit bezeichnet wird. Durch Emission von Photonen definierter Energie erfolgt anschließend der Übergang der Tochternuklide in den jeweiligen Grundzustand.

In dem zur Messung verwendeten Halbleiterdetektor treten die emittierten Photonen mit dem Detektormaterial in Wechselwirkung /7-9/, wobei je nach Photonenergie die folgenden Effekte zu beachten sind:

1. Photoeffekt
2. Comptonstreuung
3. Paarbildungseffekt

2.2.1. Photoeffekt

Der Photoeffekt ist der dominante Wechselwirkungsprozeß für Photonen niedriger Energie ($< 500 \text{ keV}$). Das Photon wird hierbei in der Elektronenhülle eines Atoms vollständig absorbiert, wobei mindestens ein Elektron emittiert wird. Der Photoeffekt kann nur an gebundenen Elektronen stattfinden, da Energie- und Impulserhaltungssatz gelten müssen. Der Wirkungsquerschnitt τ für den Photoeffekt läßt sich wie folgt beschreiben /10/:

$$\tau = c_1 \cdot Z^{4,5} \cdot E_\gamma^{-3},$$

c_1 : Proportionalitätskonstante
 Z : Kernladungszahl von ? (Beispiel) (Elektron)
 E_γ : Photonenergie

Man erkennt die starke Abhängigkeit von der Photonenergie und der Kernladungszahl des Detektormaterials. Hieraus folgt erstens, daß der Photoeffekt mit steigender Energie des Photons an Bedeutung verliert, und zweitens, daß sich Materialien mit hoher Kernladungszahl besonders gut zur Abschirmung von γ -Strahlen eignen.

2.2.2. Comptonstreuung

Bei höheren Energien streut das Photon an einem freien oder nur lose gebundenen Elektron. Es überträgt dabei einen Teil seiner Energie auf das Elektron und wird um einen Winkel ϑ gestreut, wobei die Restenergie des gestreuten Photons gemäß folgender Gleichung vom Streuwinkel ϑ abhängt /10/.

$$E_\gamma^1 = \frac{E_\gamma^0}{1 + \alpha \cdot (1 - \cos \vartheta)}$$
$$\alpha = \frac{E_\gamma^0}{m_0 \cdot c^2}$$

E_γ^0 : Energie des ungestreuten Photons
 E_γ^1 : Energie des gestreuten Photons
 m_0 : Ruhemasse eines Elektrons
 c : Lichtgeschwindigkeit

Aus dieser Gleichung folgt:

1. Die Energie des gestreuten Photons kann niemals Null werden, d.h. beim Comptoneffekt wird das Photon niemals vollständig absorbiert.
2. Für kleine Streuwinkel ($\vartheta \cong 0^\circ$) ist der Energieverlust beim Stoß minimal, die Energie des gestreuten Photons daher praktisch gleich der des eintretenden Photons.
3. Bei Rückwärtsstreuung des Photons ($\vartheta \cong 180^\circ$) wird dessen Energie minimal und die Energie des Elektrons erreicht ihren Maximalwert.

4. Die Elektronenenergie kann jeden Wert zwischen Null und der Maximalenergie annehmen.

Der Wirkungsquerschnitt σ der Comptonstreuung läßt sich durch die folgende Beziehung approximieren /10/:

$$\sigma = c_2 \cdot Z \cdot E_\gamma^{-1},$$

c_2 : Proportionalitätskonstante
 E_γ : Photonenergie
 Z : Kernladungszahl

d.h. der Wirkungsquerschnitt nimmt mit steigender Photonenergie linear ab und mit steigender Kernladung linear zu.

2.2.3. Paarbildungseffekt

Bei Photonenergien oberhalb 1 MeV kann das Photon in zwei Masseteilchen, nämlich ein Elektron und ein Positron, materialisieren. Für diese Umformung von Energie in Masse muß, zur Erfüllung des Energie- und Impulserhaltungssatzes, ein weiterer Partner in Form eines Atomkerns vorhanden sein. Die minimale Energie zur Bildung eines solchen Paares entspricht der doppelten Ruhemasse eines Elektrons, d.h. 1022 keV. Nach kurzer Zeit können das Elektron und das Positron rekombinieren und dabei als sogenannte Vernichtungsstrahlung zwei Photonen mit einer Energie von jeweils 511 keV erzeugen.

Der Wirkungsquerschnitt κ ist gemäß der folgenden Gleichung /10/ proportional dem Quadrat der Kernladungszahl und nimmt mit steigender Energie linear zu:

$$\kappa = c_3 \cdot Z^2 \cdot E_\gamma.$$

c_3 : Proportionalitätskonstante
 E_γ : Photonenergie
 Z : Kernladungszahl

2.2.4. Entstehung eines γ -Spektrums

Bei der Wechselwirkung der Photonen mit dem Detektormaterial überlagern sich die zuvor beschriebenen Effekte. Dabei dominiert im unteren Energiebereich der Photoeffekt, im Energiebereich um 1 MeV der Comptoneffekt und im höheren Energiebereich der Paarbildungseffekt. In Abb. 4 auf Seite 11 /11/ sind diese Bereiche in Abhängigkeit der Photonenergie und der Ordnungszahl Z des Detektormaterials aufgetragen. Die Grenzlinien kennzeichnen die Gleichheit der Wirkungsquerschnitte.

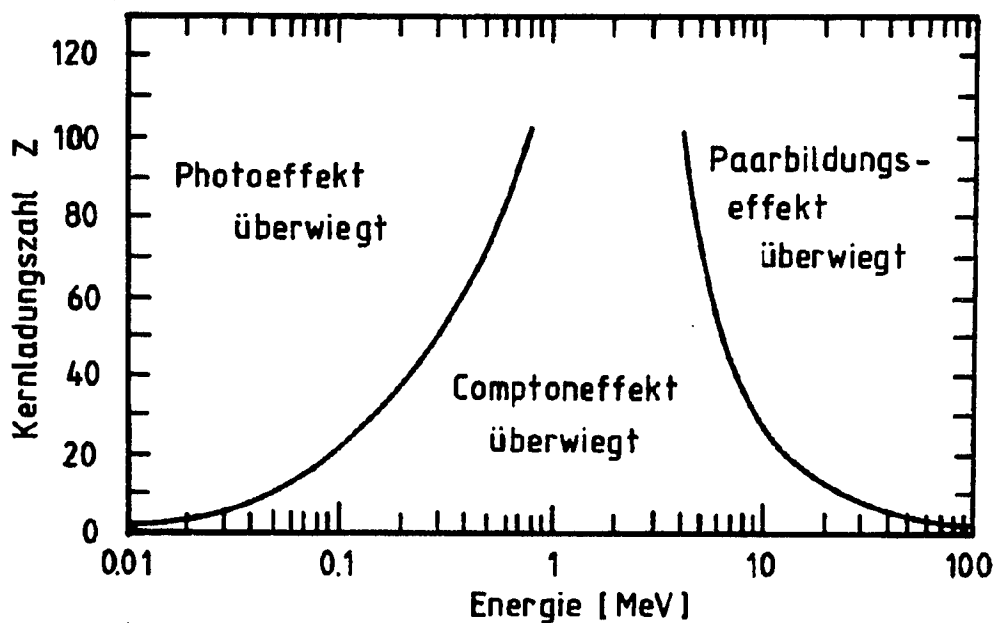


Abb. 4. Wirkungsbereiche von Photoeffekt, Comptoneffekt und Paarbildungseffekt.

Abb. 5 auf Seite 12 zeigt schematisch das mit einem typischen Halbleiterdetektor aufgenommene Impulshöhenspektrum monoenergetischer γ -Strahlung /11/.

Die Lage des Peaks (A) auf der Abszisse entspricht der Energie des einfallenden Photons. Die untergrundbereinigte Fläche ist ein Maß für die Aktivität des jeweiligen Nuklides.

Bei Verwendung einer monoenergetischen Strahlungsquelle ruft jedes emittierte Photon theoretisch einen gleich hohen Impuls im Detektor hervor. In der Praxis ist dies jedoch aus mehreren Gründen nicht der Fall. Zum einen sind alle Vorgänge statistischen Schwankungen unterworfen, so daß die Impulshöhe um einen Mittelwert streut. Die Verteilung ergibt einen sogenannten Photopeak (A), dessen Breite ein Maß für das Energieauflösungsvermögen des Detektors darstellt. Dieses wiederum ist entscheidend für die Fähigkeit, eng nebeneinander liegende Photolinien zu trennen. Ferner gibt das eintretende Photon nur beim Photoeffekt seine gesamte Energie unmittelbar ab und trägt direkt zum Photopeak bei. Beim Comptoneffekt wird das Photon lediglich gestreut, wobei es einen Teil seiner Energie verliert und weitere Wechselwirkungen (Comptonstreuung oder Photoeffekt) eingehen kann. Verläßt das Photon nach einer Comptonstreuung das Detektorvolumen, so kann die Meßapparatur nur den an das Elektron übertragenen Teil der Energie nachweisen, wodurch der Comptonuntergrund (C) entsteht. Bei der maximalen Energie des Elektrons weist das Spektrum eine Comptonkante (B) auf.

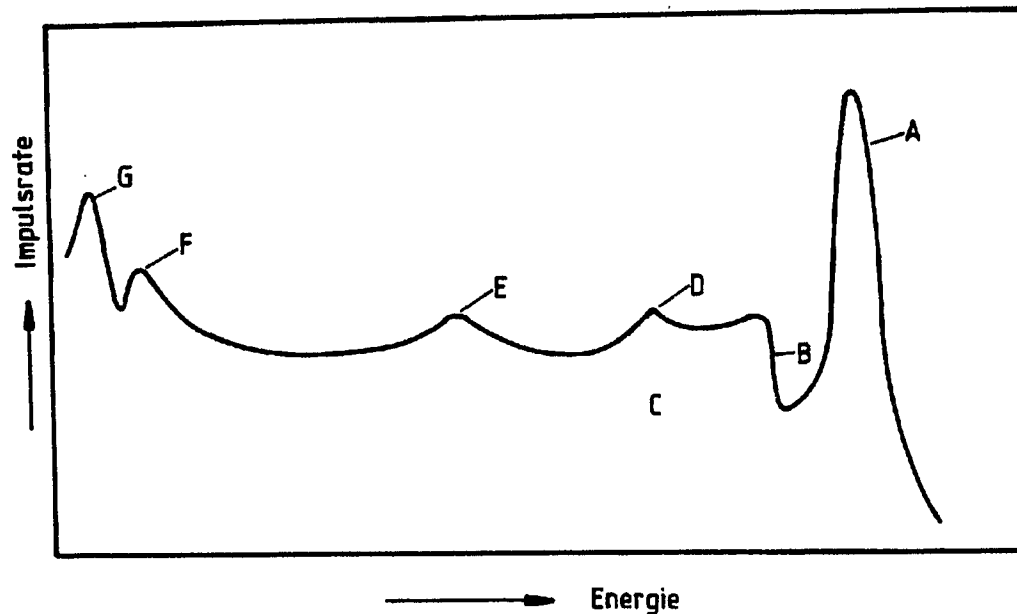


Abb. 5. Impulshöhenspektrum monoenergetischer γ -Strahlung:

A Photopeak, B Comptonkante, C Comptonkontinuum, D ein Photon der Vernichtungsstrahlung entweicht, E beide Photonen der Vernichtungsstrahlung entweichen, F Rückstreupeak - Comptonstreuung in der Abschirmung, G Bleipeak - Photoeffekt in der Abschirmung

Streuen die Photonen bereits in der den Detektor umgebenden Bleiabschirmung, so verlieren sie einen Teil ihrer Energie durch Comptonstreuung und erzeugen einen Rückstreupeak (F).

Die durch einen Photoeffekt in der Bleiabschirmung freigesetzten Elektronen verursachen nach ihrem Eintritt in den Detektor einen Bleipeak (G).

Verlassen die bei einer Elektron-Positron Annihilation entstehenden Photonen den Detektor, so geht deren Beitrag zum Photopeak verloren, wodurch im Spektrum zwei Pseudopeaks (D und E) hervorgerufen werden.

Bei der Abbrandmessung treten diese physikalischen Effekte für alle in einem BE enthaltenen Nuklide (Spaltprodukte, Brennstoff, Brutstoff, Aktinide) gleichzeitig auf und überlagern sich. Zudem ändert sich die Nuklidzusammensetzung in einem BE durch die unterschiedlichen Halbwertszeiten kontinuierlich, so daß ein γ -Spektrum als dynamisches System zu betrachten ist. Die auszuwertenden γ -Spektren sind demzufolge sehr komplexer Natur. Dies stellt hohe Ansprüche an die Meßapparatur, die im folgenden Abschnitt diskutiert wird.

2.3. Beschreibung einer γ -spektrometrischen Meßeinrichtung

Abb. 6 zeigt das typische Blockschaltbild einer γ -spektrometrischen Meßeinrichtung /4/. Durch die in den letzten 15 Jahren rasch fortschreitende Entwicklung auf dem Gebiet der Halbleiterdetektoren, konnten die Voraussetzungen für deren Einsatz in γ -Spektrometern entscheidend verbessert werden. Als Detektormaterial wird heute praktisch ausschließlich Reinstgermanium verwendet.

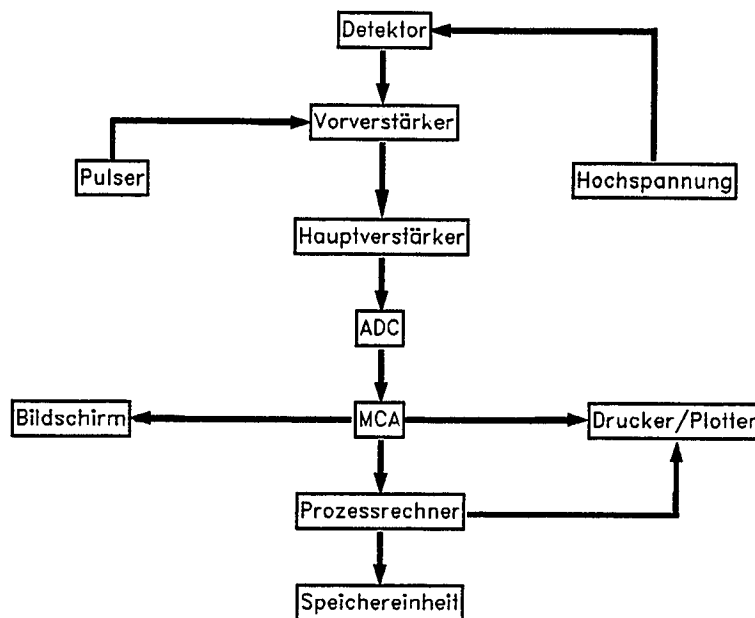


Abb. 6. Blockschaltbild einer γ -spektrometrischen Meßeinrichtung

Halbleiterdetektoren weisen, verglichen mit den früher eingesetzten Szintillationszählern, ein wesentlich besseres Energieauflösungsvermögen auf. Hierunter versteht man die Fähigkeit eines Detektorsystems, energetisch eng nebeneinanderliegende Photolinien zu trennen, wobei als Maß üblicherweise die Halbwertsbreite einer bestimmten Photolinie angegeben wird. Das gute Auflösungsvermögen eines Halbleiterdetektors beruht auf der geringen zur Bildung eines Ladungsträgerpaares (Elektronen und Defektelektronen) notwendigen Energie, z.B. 2,8 eV in Reinstgermanium. Ein eintretendes Photon erzeugt einen desto höheren Impuls, je kleiner der mittlere Energieaufwand pro Ladungsträgerpaar ist, da so eine wesentlich größere Zahl von Ladungsträgern gebildet werden kann.

Die Wirkungsweise eines Halbleiterdetektors ist vergleichbar mit derjenigen einer Gasionisationskammer. Dem Abstand der Elektroden in der Ionisationskammer entspricht die Tiefe der Raumladungszone, die das für ionisierende Strahlung empfindliche Detektorvolumen darstellt. Die gebildeten Ladungsträgerpaare werden durch ein an der Raumladungszone anliegendes elektrisches Feld getrennt, wobei die Elektronen an der positiven, die Defektelektronen an der negativen Elektrode gesammelt werden /12, 13/.

Die kumulierte Ladung wird in einen Spannungsimpuls umgewandelt, der proportional zur Energie des Photons ist, falls dieses vollständig im Detektor absorbiert wird und alle Ladungsträger an den Elektroden gesammelt werden. Die Wahrscheinlichkeit hierfür wird als Detektoransprechvermögen bezeichnet. Dieses ist abhängig vom Detektorvolumen, der Energie und dem Eintrittsort des registrierten Photons. Den prinzipiellen Verlauf des Ansprechvermögens als Funktion der Photonenergie für einen Germanium-Coaxial-Detektor zeigt Abb. 7/14/.

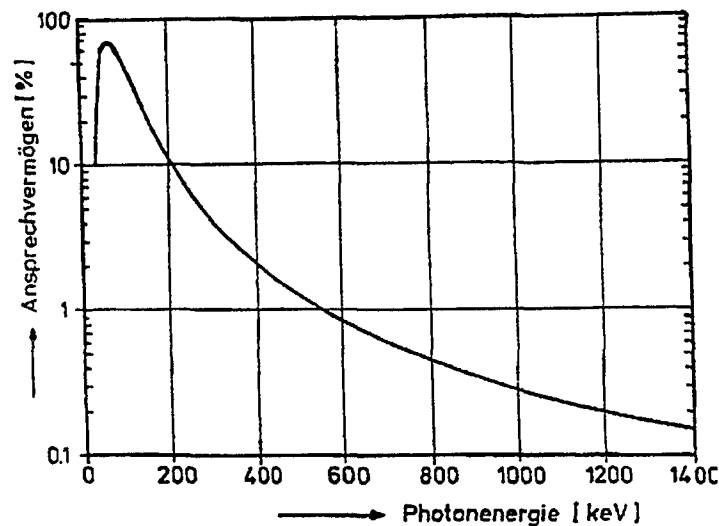


Abb. 7. Ansprechvermögen eines Halbleiterdetektors

Das Ansprechvermögen ist bei einer Energie von etwa 100 keV maximal. Der steile Abfall bei geringeren Energien entsteht durch Absorptionseffekte in den Randschichten des Detektors. Der Abfall bei Energien oberhalb des Maximums wird durch den Verlauf des Wirkungsquerschnittes für den Photoeffekt mit steigender γ -Energie hervorgerufen. Der dargestellte funktionale Zusammenhang ist für den eingesetzten Detektor charakteristisch.

Ein Vorverstärker wandelt das im Detektor erzeugte Signal in einen Spannungsimpuls um und verstärkt diesen. Der dem Detektor unmittelbar nachgeschaltete Vorverstärker besitzt keine elektronischen Glieder zur Impulsformgebung. Diese erfolgt, zusätzlich zu einer weiteren Signalverstärkung, im Hauptverstärker. Die Zeitkonstante des Verstärkers nimmt dabei mit steigender Anforderung an die Qualität der Impulsformgebung zu, so daß nur eine geringere Zählrate verarbeitet werden kann.

Vielkanalanalysator (MCA) und Analog-Digital-Wandler (ADC) werden bei der γ -Spektrometrie nur gemeinsam eingesetzt. Der ADC wandelt das analoge Verstärker-Ausgangssignal in eine digitale Größe um, die proportional zur Höhe des Impulses ist. Der MCA registriert die Häufigkeitsverteilung der vom ADC gelieferten digitalen Werte, denen bestimmte Speicheradressen (Kanäle) zugeordnet werden. Jeder Kanal entspricht somit einer definierten Energie der Photonen im Halbleiterdetektor. Stellt man die so

ermittelte Häufigkeitsverteilung graphisch als Funktion der Kanalnummer (und damit der Energie) dar, erhält man das vollständige γ -Spektrum des gemessenen BE.

Die zur Aufnahme eines γ -Spektrums erforderliche Meßzeit ist im wesentlichen eine Funktion der angestrebten Meßgenauigkeit und der Zählrate im Detektor. Die Genauigkeit steigt mit der Meßzeit und der Zählrate an, da die statistischen Unsicherheiten geringer werden. Die Zählrate im Detektor wird ihrerseits wiederum bestimmt durch die Aktivität des BE, die Geometrie der Meßanordnung und die Abklingzeit.

2.4. Mathematische Auswertung von γ -Spektren

Die Auswertung der gemessenen γ -Spektren erfolgt mit Hilfe von Rechenprogrammen, die von den Detektorherstellern gemeinsam mit der Meßeinrichtung angeboten werden /15-21/. Derartige Programme sind nicht speziell für die Abbrandmessung entwickelt worden, sondern stellen ein universelles Mittel zur Aktivitätsberechnung dar. Sie verfügen aus diesem Grunde über eine Reihe von Funktionen, die bei der Abbrandmessung nicht benötigt werden. Die Hauptaufgaben derartiger Programmsysteme kann man grundsätzlich in vier Bereiche aufteilen, die nachfolgend kurz erläutert werden.

1. Lokalisierung signifikanter Peaks im Impulshöhenspektrum

Bei den meisten Anwendungen ist die Zusammensetzung der radioaktiven Proben unbekannt. Für eine Analyse der Probe ist daher zunächst eine Peaksuche notwendig. Da der radioaktive Zerfall statistischen Gesetzmäßigkeiten folgt, ist auch das zugehörige γ -Spektrum nicht frei von statistischen Schwankungen. Die Peakerkennung muß daher statistische Pseudopeaks von den tatsächlichen Photopeaks eindeutig unterscheiden. Aus diesem Grund wird das Impulshöhenspektrum zunächst geglättet, d.h. die statistischen Schwankungen eliminiert. Anschließend wird die geglättete Verteilung numerisch differenziert und die Nullstellen der 1. Ableitung werden bestimmt. Eine Nullstelle der 1. Ableitung in Verbindung mit einer negativen 2. Ableitung an dieser Stelle ist das Kriterium für die Existenz eines Photopeaks.

Bei der Abbrandmessung ist die Peaksuche in der Regel nicht erforderlich, da die Peaklagen der interessanten Nuklide aus der Kalibrierung der Anlage exakt bekannt sind (vgl. Punkt 4).

2. Identifikation der zugehörigen Nuklide

Die meisten Analyseprogramme zur γ -Spektrometrie enthalten eine Nuklidbibliothek, die genaue Angaben über die Übergangswahrscheinlichkeit und die Energie der Photonen wichtiger Nuklide enthält. Das Auswerteprogramm vergleicht nun die Energien der nachgewiesenen Photopeaks mit denen der Nuklidbibliothek und bestimmt so die zugehörigen Nuklide. Die Nuklididentifikation wird bei der Abbrandmessung im Normalfall ebenfalls nicht durchgeführt.

3. Bestimmung der Peaknettoflächen

Die Hauptaufgabe der Rechenprogramme besteht in der Berechnung der Aktivitäten der einzelnen Nuklide. Die Meßgröße hierfür ist die Peaknettofläche. Zur Berechnung der Peakflächen wird das ursprüngliche, ungeglättete Spektrum verwendet.

Die Zielsetzung ist, die Beiträge des Untergrundes und der einzelnen Peaks getrennt zu ermitteln. Prinzipiell kann man bei der Auswertung von Peaks zwei Fälle unterscheiden:

a. Auswertung eines Einzelpeaks

Abb. 8 zeigt die Skizze eines typischen Einzelpeaks. Die Fläche eines Einzelpeaks wird berechnet durch Summation aller Kanalinhalt und Subtraktion des Untergrundbeitrages.

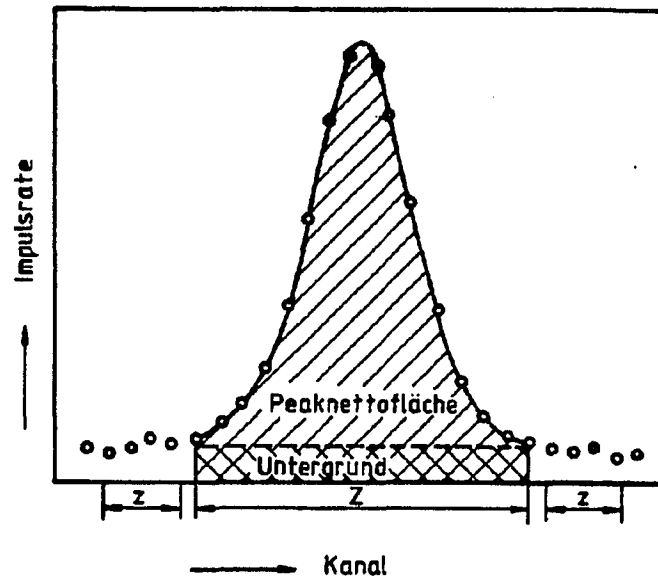


Abb. 8. Darstellung eines Einzelpeaks

Der Untergrundverlauf wird normalerweise durch Mittelwertbildung der Zählraten in einigen Kanälen links und rechts des auszuwertenden Peaks bestimmt. Die Nettozählrate F ergibt sich dann gemäß folgender Beziehung:

$$F = N - \frac{Z}{2 \cdot z} \cdot (U_L + U_R)$$

N : Summe aller Kanalinhalt unter dem Peak

Z : Anzahl der Kanäle unter dem Peak

z : Anzahl der Kanäle zur Untergrundbestimmung

U_L : Summe der Zählraten über z Kanäle links vom Peak

U_R : Summe der Zählraten über z Kanäle rechts vom Peak

Unter Vernachlässigung systematischer Fehler kann der statistische Fehler durch eine Gaußverteilung beschrieben werden. Die Standardabweichung dieser Verteilung ist die Wurzel aus dem Erwartungswert, also $\sigma = \sqrt{N}$. Nach dem Fehlerfortpflanzungsgesetz erhält man für den Fehler $\sigma(F)$ der Peaknettofläche:

$$\begin{aligned}\sigma(F) &= \sqrt{\left(\frac{\partial F}{\partial N}\right)^2 \cdot \sigma_N^2 + \left(\frac{\partial F}{\partial U_L}\right)^2 \cdot \sigma_{U_L}^2 + \left(\frac{\partial F}{\partial N_R}\right)^2 \cdot \sigma_{U_R}^2} \\ &= \sqrt{N + \left(\frac{Z}{2 \cdot Z}\right)^2 \cdot U_L + \left(\frac{Z}{2 \cdot Z}\right)^2 \cdot U_R} \\ &= \sqrt{N + \frac{Z}{2 \cdot Z} \cdot (U_L + U_R)}\end{aligned}$$

b. Auswertung von Multipletts (Peaküberlagerungen)

Bei der Überlagerung mehrerer Peaks (vgl. Abb. 9) müssen deren Anteile mit Hilfe mathematischer Verfahren getrennt werden.

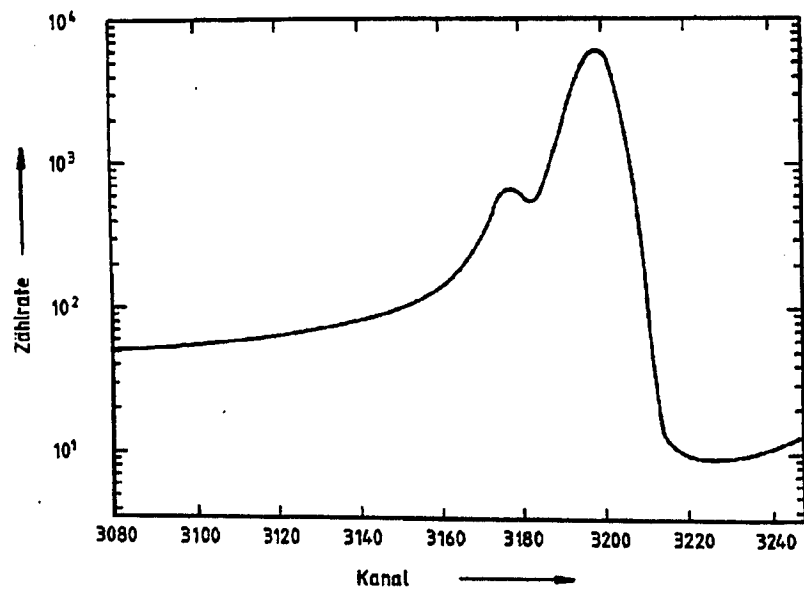


Abb. 9. Darstellung eines Doppelpeaks

Dies geschieht durch die Anpassung einer Kurve nach der Methode der kleinsten Fehlerquadrate. Für jeden Peak wird eine modifizierte Gaußverteilung an das gemessene Impulshöhenspektrum angepaßt. Die Modifikation ist erforderlich, da Photopeaks infolge unvollständiger Ladungssammlung sehr häufig eine geringe unsymmetrische Peakverbreiterung an der niederenergetischen Flanke aufweisen, die durch eine Gaußverteilung nicht beschrieben wird. Diese Verbreiterung wird durch eine Exponentialfunktion an der niederenergetischen Flanke berücksichtigt. Der Übergangspunkt dieser beiden Funktionen wird durch den Tailingparameter T beschrieben, so daß sich für jeden Peak folgende Anpassungsfunktion ergibt:

$$F(x) = \begin{cases} H \cdot \exp \left[-\frac{(x-PL)^2}{W^2} \right] & \text{für } T < x \\ H \cdot \exp \left[T \cdot \frac{(2 \cdot (x-PL) + T)}{W^2} \right] & \text{für } T > x \end{cases}$$

$$W = \frac{FWHM}{2 \cdot \sqrt{\ln 2}}$$

H : Höhe des Photopeaks

PL : Lage des Photopeaks

T : Tailingparameter

FWHM : Halbwertsbreite des Photopeaks (full width half maximum)

Durch Anpassung dieser Funktionen an ein Multiplett lassen sich die Beiträge der einzelnen Komponenten iterativ separieren.

Die Anzahl der anzupassenden Parameter ist festgelegt durch die Anzahl der Photopeaks. Eine Gaußverteilung wird durch die drei Größen Lage, Breite und Amplitude beschrieben. Für jeden Peak kommt ein weiterer Parameter für das Tailing hinzu, so daß insgesamt vier Parameter angepaßt werden müssen. Überlappen sich zwei oder mehr Peaks, so erhöht sich die Anzahl der Parameter erneut um jeweils vier.

Der Untergrundverlauf wird durch ein Polynom maximal dritten Grades, d.h. weitere vier Größen beschrieben. In einigen seltenen Fällen sind weitere Parameter (Tailing an der hochenergetischen Flanke, Stufe unter dem Peak) erforderlich.

Das Ergebnis des Iterationsprozesses ist die vollständige Information über die Gesamtheit dieser Parameter, wobei die Peakflächen, als Maß für die Aktivität, die interessanten Größen sind.

4. Berechnung der Nuklidaktivitäten

Zur Berechnung der Aktivitäten aus den ermittelten Peakflächen und zur Identifikation der Nuklide ist eine Kalibrierung des Detektors erforderlich, die nachfolgend kurz erläutert wird.

a. Kalibrierung der Energie, der Halbwertsbreite und des Tailingparameters

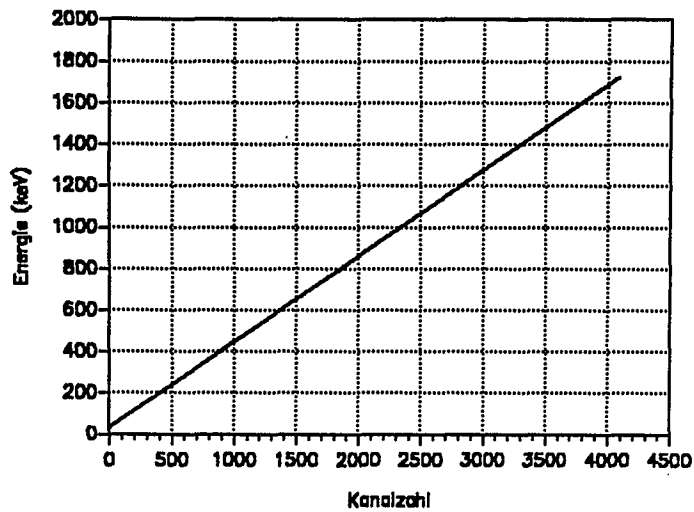
Der Zusammenhang zwischen der Energie und der Kanalnummer ist für die Identifikation der Nuklide von entscheidender Bedeutung. Mit Hilfe von Eichpräparaten, deren γ -Energien exakt bekannt sind, wird ein Spektrum aufgenommen. In Tab. 1 auf Seite 20 sind einige typische Eichpräparate und ihre physikalischen Eigenschaften angegeben /22/.

Nuklid	$T_{1/2}$	Mutter-nuklid	$T_{1/2}$	γ -Energie	Übergangswahrscheinlichkeit
Co-60	5.263 a	Fe-60	10^8 a	1173,2 keV 1332,5 keV	0,999 1,000
Ag-109m	39,6 s	Cd-109	453 d	88,03 keV	0,040
J-131	8,06 d	---	---	284,3 keV 364,5 keV 636,9 keV	0,058 0,824 0,069
J-132	2,28 h	Te-132	78 h	522,7 keV 630,2 keV 667,7 keV 772,6 keV 6954,6 keV	0,165 0,141 1,013 0,780 0,185
Ba-137m	2,55 min	Cs-137	30,05 a	661,6 keV	0,846
La-140	40,27 h	Ba-140	12,8 d	328,8 keV 487,0 keV 815,8 keV 925,3 keV 1596,0 keV	0,213 0,457 0,236 0,068 0,960
Eu-152	12,7 a	---	---	121,8 keV 344,3 keV 778,9 keV 964,0 keV 1085,8 keV 1112,1 keV 1407,9 keV	0,332 0,314 0,152 0,173 0,100 0,164 0,243
Hg-203	46,59 d	---	---	229,2 keV	0,815

Tab. 1. Physikalische Eigenschaften wichtiger Eichpräparate

Die Lage der Photopeaks (Kanalzahlen) entspricht den γ -Energien der Eichpräparate. Man erhält durch den Einsatz unterschiedlicher Präparate Meßpunkte im gesamten Bereich des Spektrums. An diese wird ein Polynom dritten Grades angepaßt, das den funktionalen Zusammenhang zwischen γ -Energie und zugehöriger Kanalzahl festlegt. Abb. 10 auf Seite 21 zeigt beispielhaft die Energiekalibrierung für ein in den Heißen Zellen (HZ) des Forschungszentrums KFA Jülich GmbH eingesetztes Detektorsystem /23/. Der Zusammenhang ist nahezu linear. Dies impliziert, daß auch die Kanalbreite (angegeben in keV) in erster Näherung konstant ist.

Mit den gleichen Eichpräparaten wird auch die Kalibrierung der Peakbreiten und der Tailingparameter durchgeführt. Man ermittelt die Breiten der Photopeaks der verwendeten Eichpräparate und beschreibt deren Energieabhängigkeit ebenfalls durch ein Polynom. In Abb. 11 auf Seite 21 ist der Verlauf einer Halbwertsbreitenkalibrierung dargestellt /23/. Die Breite der Photopeaks nimmt mit steigender Energie geringfügig zu.



Ge ?

Abb. 10. Energiekalibrierungsfunktion eines in den HZ eingesetzten Halbleiterdetektors

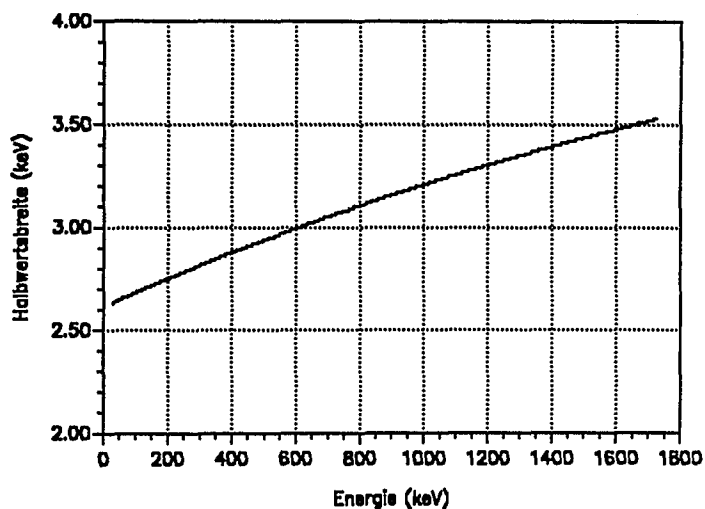


Abb. 11. Kalibrierungsfunktion der Halbwertsbreite eines in den HZ eingesetzten Halbleiterdetektors

Ge ?

Der Verlauf der Tailingparameter in Abhängigkeit von der Energie (Abb. 12 auf Seite 22) ähnelt demjenigen der Peakbreitenkalibrierung und weist einen linearen Anstieg mit der Energie auf /23/.

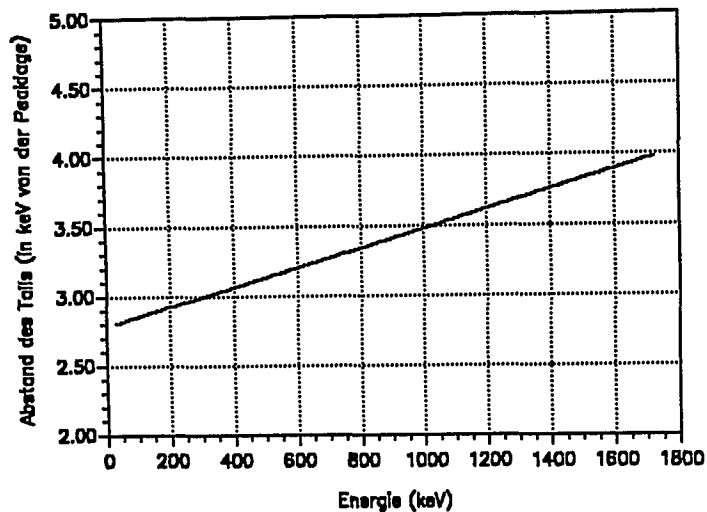


Abb. 12. Tailkalibrierung eines in den HZ eingesetzten Halbleiterdetektors

Die Kalibrierungsdaten für die Peakbreite und das Tailing dienen dem Iterationsprogramm zur Parameterbestimmung in der Regel lediglich als Startwerte. Die Peaklagen hingegen werden auch bei der Iteration nicht verändert.

b. Bestimmung der Nachweiswahrscheinlichkeit

Die Nachweiswahrscheinlichkeit (NWW) des Detektorsystems setzt sich aus dem Detektoransprechvermögen (vgl. Kapitel 2.3) und der geometrischen Akzeptanz der Meßeinrichtung zusammen. Nur ein geringer Teil der vom BE emittierten Photonen trifft auf den Detektorkristall. Die Bestimmung der NWW ist damit nur für eine bestimmte Geometrie der Meßanordnung gültig.

Der detektorspezifische Anteil der NWW ist abhängig von der Photonenergie, während der geometrische Anteil hiervon unabhängig ist. Somit wird der Verlauf des Ansprechvermögens durch die geometrische Akzeptanz lediglich um einige Größenordnungen auf der Ordinate verschoben. Die Nachweiswahrscheinlichkeit eines in den HZ verwendeten Halbleiterdetektors im Energiebereich oberhalb 300 keV zeigt Abb. 13 auf Seite 23 /23/.

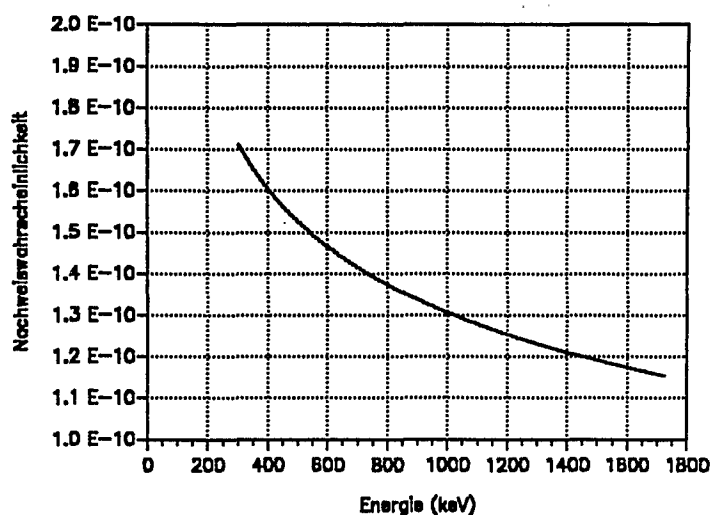


Abb. 13. Nachweiswahrscheinlichkeit eines in den HZ eingesetzten Halbleiterdetektors

Die Kenntnis der NWW des Detektorsystems ist eine wesentliche Voraussetzung, um aus den berechneten Peakflächen die gesuchte Aktivität zu ermitteln. Dies geschieht mit Hilfe der folgenden Beziehung:

$$A = \frac{F}{NWW \cdot T \cdot p_\gamma}$$

- F : Peaknettofläche
- NWW: Nachweiswahrscheinlichkeit der Meßanordnung
- T : Meßzeit
- p_γ : γ -Übergangswahrscheinlichkeit

Die Peaknettofläche F stellt die Gesamtzahl der während der Meßzeit T registrierten Zerfälle des untersuchten Nuklides dar. Durch Division durch die Nachweiswahrscheinlichkeit NWW, die γ -Übergangswahrscheinlichkeit p_γ sowie die Meßzeit, erhält man die Anzahl der tatsächlich erfolgten Zerfälle pro Sekunde, d.h. die Aktivität in der Einheit Becquerel. Die NWW berücksichtigt dabei den nicht im Detektor erfaßten Teil der Aktivität, p_γ trägt dem Umstand Rechnung, daß nicht bei jedem Zerfall eines Kerns ein Photon emittiert wird.

3. Beschreibung des HTR-Modul-Reaktors

Der HTR-Modul-Reaktor wird von der Firma Siemens als universelle Kraftwerksanlage zur Erzeugung von Strom, Prozeßdampf und Fernwärme entwickelt /24-26/.

Die für Hochtemperaturreaktoren deutscher Bauart charakteristischen kugelförmigen BE garantieren die Rückhaltung der radioaktiven Spaltprodukte bis zu ihrer Auslegungstemperatur von 1620 °C. Zielsetzung der Kernauslegung ist somit, alle Zustände des Reaktors zu vermeiden, in denen diese Temperatur überschritten wird. Im Gegensatz zu den bisher verfolgten Reaktorkonzepten (Leichtwasserreaktoren, Schnelle Brutreaktoren), sind hierzu beim HTR-Modul-Reaktor keine aktiven Maßnahmen erforderlich.

Durch die Auslegung des Reaktors wird aufgrund physikalischer Gesetzmäßigkeiten sichergestellt, daß selbst bei einem vollständigen Ausfall aller Kühlsysteme und gleichzeitigem Verlust des Kühlmittels die Auslegungstemperatur der BE nicht überschritten wird. Dies wird durch folgende Auslegungsmerkmale erreicht:

1. Die Temperaturspanne von etwa 750 °C zwischen der normalen Betriebstemperatur und der Auslegungstemperatur der BE stellt sicher, daß die im Kern vorhandene Überschußreaktivität über den negativen Temperaturkoeffizienten vollständig kompensiert wird, ohne hierbei die zulässige Temperatur der BE zu überschreiten. Die Abschaltung des Reaktors erfolgt damit im Falle einer unzulässigen Temperaturerhöhung durch das System selbst, also ohne aktive Maßnahmen seitens der Betriebsmannschaft.
2. Durch die Wahl einer niedrigen mittleren Leistungsdichte im Reaktor, einer geeigneten Kerngeometrie sowie durch den Einsatz entsprechender Werkstoffe wird die Nachwärme ohne aktive Maßnahmen, allein durch Wärmeleitung, Strahlung und Konvektion aus dem Core abgegeben.

3.1. Aufbau und Funktionsweise des HTR-Modul-Reaktors

In Abb. 14 auf Seite 26 ist die prinzipielle Funktionsweise eines HTR-Modul-Reaktors schematisch dargestellt /24/.

Der Hochtemperaturreaktor (1) bildet, zusammen mit dem Dampferzeuger (2) und dem Primärkreislaufgebläse (3) den nuklearen Primärkreis des Reaktors. Zur Kühlung der BE-Schüttung wird das chemisch inerte und neutronenphysikalisch neutrale Edelgas Helium verwendet, das den Reaktorkern von oben nach unten durchströmt und sich hierbei auf eine Temperatur von etwa 700 °C erhitzt. Von dort wird es zum Dampferzeuger geleitet, in dem die gespeicherte Wärme im Gegenstromverfahren an einen konventionellen Wasser/Dampf-Kreislauf übertragen wird. Das auf eine Temperatur von etwa 250 °C abgekühlte Helium wird anschließend vom Primärkreislaufgebläse angesaugt und in den Kern zurückgefördert. Im Gegensatz zu Leichtwasserreaktoren werden bei einem HTR die in konventionellen Kraftwerken üblichen Dampfzustände erreicht. Beim HTR-Modul-Reaktor ist dies auslegungsgemäß eine Frischdampf Temperatur von 530 °C bei einem Druck von 190 bar. Die Hauptauslegungsdaten der HTR-Modulanlage sind in Tab. 2 auf Seite 26 zusammengefaßt /24, 25/.

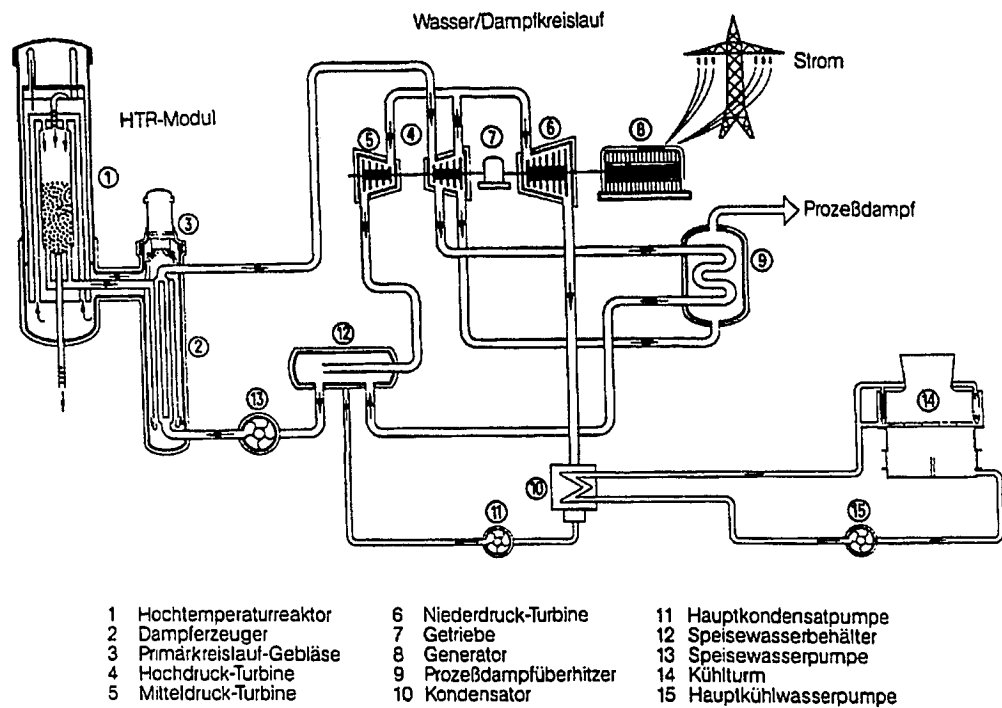


Abb. 14. Funktionsweise einer HTR-Modul-Kraftwerksanlage

Reaktorwärmeleistung	200 MW _{th}
Primärkühlmittel	Helium
Heliumdurchsatz bei Vollast	85 kg/sec
Heliumtemperaturen	250 °C / 700 °C
mittlerer Heliumdruck	60 bar
mittlere Leistungsdichte	3,0 MW/m ³
Frischdampfdruck	190 bar
Frischdampftemperatur	530 °C
Frischdampfmassenstrom	77 kg/sec
Speisewassertemperatur	170 °C

Tab. 2. Hauptauslegungsdaten der HTR-Modul-Kraftwerksanlage

Die übrigen Komponenten des HTR-Modul-Reaktors entsprechen denen konventioneller Kraftwerke, so daß hierauf in dieser Beschreibung nicht näher eingegangen wird.

3.2. Beschreibung der Primärkreiskomponenten

Abb. 15 auf Seite 28 zeigt einen Schnitt durch die Primärzelle des HTR-Modul-Reaktors /24/. Das nukleare Dampferzeugungssystem besteht aus dem Reaktordruckbehälter (5) mit Kerneinbauten, Abschalt- und Beschickungssystem, dem Dampferzeugerdruckbehälter (19) mit Dampferzeuger und Primärkreislaufgebläse sowie dem Verbindungsdruckbehälter.

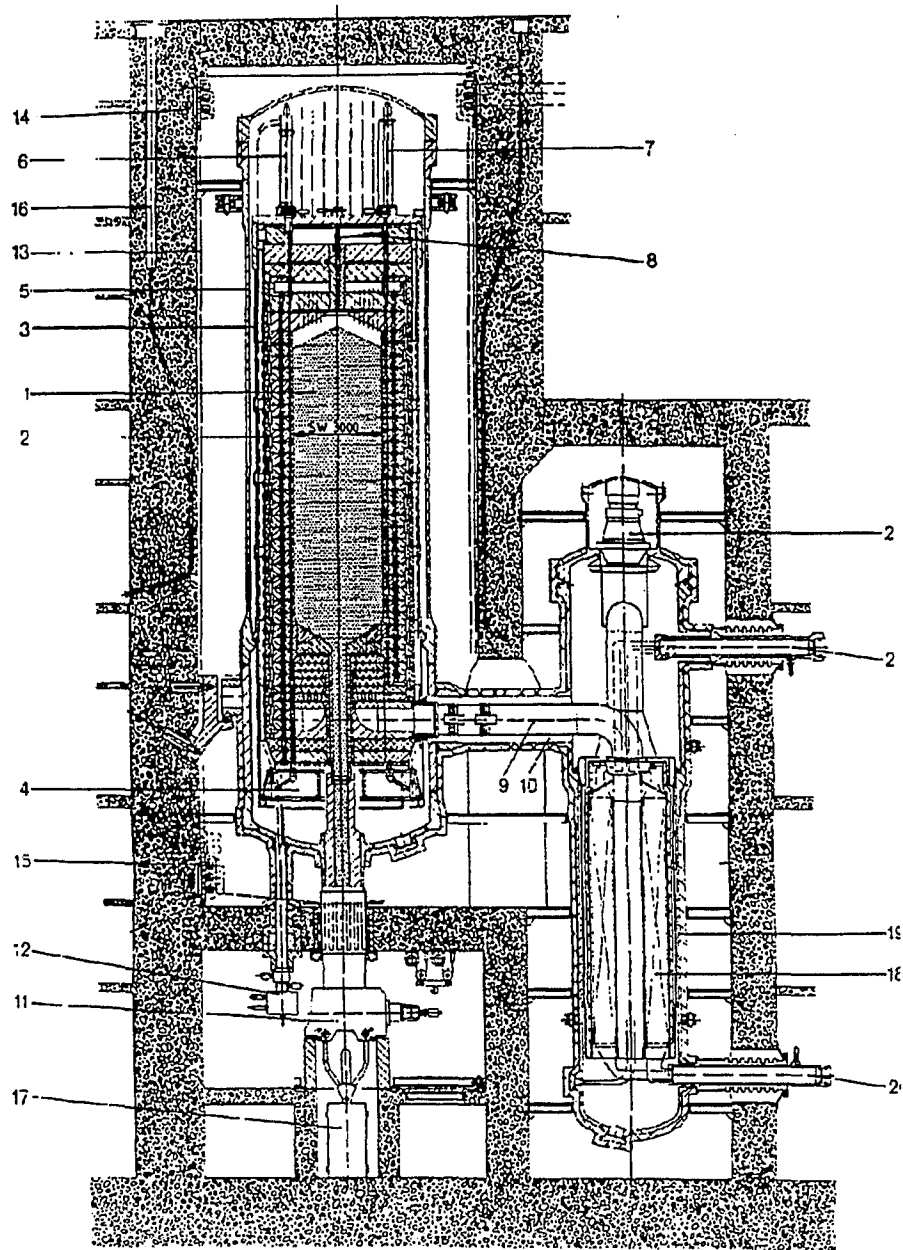
Alle Druckbehältereinheiten sind aus Stahlschmiedeteilen gefertigt und durch Schweißnähte miteinander verbunden. Der eigentliche Reaktorkern (Graphit und Kohlestein) befindet sich innerhalb des Reaktordruckbehälters und besteht ausschließlich aus keramischen Materialien, da ein Einsatz von metallischen Werkstoffen bei den vorliegenden Kerntemperaturen nicht möglich ist. Die Aufgaben der Kerneinbauten können wie folgt zusammengefaßt werden:

1. Die Kernstruktur, bestehend aus Boden-, Seiten- und Deckenreflektor, ist zylinderförmig ausgebildet und dient der Aufnahme der Kugelschüttung. Im unteren Teil des Cores verringert sich der Kerndurchmesser trichterförmig mit einer Neigung von 30 Grad und mündet im keramischen Teil des Kugelabzugsrohrs (KAZR), durch das die Entnahme der BE erfolgt.
2. Die aus dem Core entweichenden Neutronen werden durch Graphitreflektoren in den Kern zurückgestreut. Das relative Maximum des thermischen Neutronenflusses im Seitenreflektor wird zur Regelung und zur Abschaltung des Reaktors ausgenutzt. Die hierzu vorgesehenen Abschalt- und Regelsysteme werden in Bohrungen des Seitenreflektors verfahren.
3. Die keramischen Strukturmaterialien dienen auch zur Wärmeisolierung des metallischen Reaktordruckbehälters, der den hohen Kerntemperaturen nicht ausgesetzt werden darf.

Die wesentlichen Daten der Kerneinbauten sind in Tab. 3 auf Seite 29 zusammengestellt /25/.

Die Primärzelle des HTR-Modul-Reaktors ist mit einem Flächenkühlsystem ausgestattet, das den Reaktordruckbehälter in einem Abstand von etwa 1,5 Metern umgibt. Es ist etwa 10 cm von der Betonwand der Reaktorzelle entfernt als geschlossene Rohrwand angebracht und wird von Wasser mit einer Temperatur von 35 °C durchströmt, das die aufgenommene Wärme an die angeschlossenen Nebenkühlwassersysteme abführt.

Das System hat im Normalbetrieb die Aufgabe, die entstehende Verlustwärme aus der Reaktorzelle abzuführen. Bei einem Ausfall der Hauptwärmesenke besitzt der Flächenkühler jedoch auch sicherheitstechnische Bedeutung. Die im Kern entstehende Nachwärme wird ohne aktive Maßnahmen vom Kern in die Primärzelle geleitet und anschließend über das Flächenkühlsystem abgeführt. Da der Flächenkühler bereits im Normalbetrieb der Anlage die Verlustwärme aus der Reaktorzelle abführt, ist er auch in Störfallsituationen sofort einsatzbereit.



- | | | |
|--------------------------------|---|-------------------------------------|
| 1 Brennelementschüttung | 8 Brennelement-Förderleitung | 13 Vorlauf Flächenkühler |
| 2 Keramische Einbauten | 9 Heißgasleitung | 16 Neutronenflußmeßinstrumentierung |
| 3 Kornbehälter | 10 Kaltgasleitung | 17 Brennelement-Bruchkanne |
| 4 Bodenstruktur | 11 Brennelement-Abzugsblock | 18 Heizrohrbündel |
| 5 Reaktordruckbehälter | 12 Armaturenblock des
Kleinkugel abschaltellements | 19 Dampferzeugerdruckbehälter |
| 6 Kleinkugel-Abschalteneinheit | 13 Flächenkühler | 20 Speisewasserstutzen |
| 7 Reflektorstac | 14 Rücklauf Flächenkühler | 21 Frischdampfstutzen |
| | | 22 Primärkreislauf-Gebläse |

Abb. 15. Schnitt durch die Primärzelle des HTR-Modul-Reaktors

Gesamthöhe des keramischen Kernaufbaus	17 m
Außendurchmesser	5 m
Innendurchmesser	3 m
mittlere Kernhöhe	9,4 m
Wandstärke des Seitenreflektors	1 m
Höhe des Kernbodens	2,5 m
Neigung des Kernbodens	30 Grad
Höhe des Deckenreflektors	2,5 m
Gesamthöhe des Kernbehälters	19,2 m
Außendurchmesser des Kernbehälters	5,7 m
Auslegungstemperatur des Kernbehälters	500 °C
Anzahl der Reflektorstäbe	6
Anzahl der Kleinkugelabschalteneinheiten	18
Anzahl der Brennelementbeschickungsrohre	1
Anzahl der Brennelementabzugsrohre	1

Tab. 3. Hauptauslegungsdaten der Kerneinbauten

Das Flächenkühlsystem ist aus sicherheitstechnischen Gründen dreifach redundant ausgelegt, wobei jeder einzelne Strang zur Abfuhr der anfallenden Nachwärme ausreicht. Der Wasserdurchsatz ist zudem so gering, daß selbst bei einem Ausfall aller Pumpen und Rückkühlssysteme eine externe Wassereinspeisung durch die Feuerwehr nach etwa 15 Stunden ausreicht, um die Temperaturen in der Primärzelle auf zulässige Werte zu beschränken. Die entsprechenden Anschlüsse für eine externe Bespeisung sind konstruktiv vorgesehen. Ein Ausfall des Systems kann damit ausgeschlossen werden.

Der Dampferzeugerdruckbehälter ist seitlich unterhalb des Reaktordruckbehälters angeordnet. Diese Anordnung bietet wesentliche Vorteile im Normalbetrieb der Anlage und in Störfallsituationen:

1. Nach Abschaltung des Reaktors kommt es zwischen Reaktorkern und Dampferzeuger zu keinem Naturumlauf des Kühlmittels, da der Reaktor höher liegt als der Dampferzeuger mit seinem niedrigeren Temperaturniveau. Der Dampferzeuger wird damit auch in Störfallsituationen keinen unzulässigen Belastungen ausgesetzt.
2. Die Anordnung des Dampferzeugers erlaubt die thermodynamisch günstige Aufwärtsverdampfung im Wasser/Dampf-Kreislauf.
3. Die Trennung von Reaktorkern und Dampferzeuger erleichtert die Wartungs- und Reparaturarbeiten an der Dampferzeugereinheit, da das zu Wartungs- bzw. Reparaturarbeiten herangezogene Personal aufgrund der abschirmenden Wirkung der Primärzellenwände nur geringer Strahlenbelastung ausgesetzt wird.

Der Verbindungsdruckbehälter dient der Aufnahme der Heiß- und Kaltgasleitungen zwischen Reaktorkern und Dampferzeuger.

3.3. Reaktorphysikalische Auslegung

Der HTR-Modul-Reaktor ist ein graphitmoderierter Reaktor mit einem thermischen Neutronenspektrum. Die reaktorphysikalische Auslegung wird durch die geforderten Sicherheitseigenschaften weitgehend festgelegt.

1. Die Abschaltung des Reaktors soll in allen denkbaren Situationen durch die im Seitenreflektor installierten Abschaltelemente erfolgen.

Diese Bedingung erfordert eine Begrenzung des Kerndurchmessers auf maximal drei Meter. Beim HTR-Modul-Reaktor sind zwei aktive, voneinander unabhängige und diversitäre Abschalteneinrichtungen vorgesehen.

- Das sogenannte Heißabschaltsystem besteht aus insgesamt sechs im Seitenreflektor verfahrbare Stäbe und ist so ausgelegt, daß es auch bei Ausfall des wirksamsten Reflektorstabes den Reaktor abschalten kann. Darüberhinaus dienen die Reflektorstäbe zur Leistungsregelung des Reaktors im Bereich von 50 % Teillast bis Vollast. Sie sind nach dem "Fail safe"-Prinzip derart angeordnet, daß sie in Störfallsituationen allein durch die Schwerkraft in ihre wirksamste Position einfallen.
- Das Kaltabschaltsystem besteht aus 18 Kleinkugelabsorbereinheiten und dient zur Abschaltung des Reaktors aus allen normalen Betriebszuständen. Ferner kann es den Reaktor durch Kompensation der bei längeren Abschaltphasen aufgrund der Abkühlung über den negativen Temperaturkoeffizienten freigesetzten Reaktivität dauerhaft unterkritisch halten.

Die kugelförmigen Absorber befinden sich in Vorratsbehältern und fallen im Anforderungsfall durch Bohrungen im Seitenreflektor in die vorgesehenen Positionen. Ein Abzugssystem fördert die Absorberelemente beim Anfahren des Reaktors wieder zurück in die Vorratsbehälter.

Eine passive Abschaltmöglichkeit ist beim HTR-Modul-Reaktor durch die Abschaltung des Primärkreislaufgebläses gegeben. Eine Reduzierung des Kühlmitteldurchsatzes erhöht die mittlere Kerntemperatur, wodurch sich der Reaktor über den negativen Temperaturkoeffizienten (Doppler-Effekt) selbsttätig abschaltet.

2. Sowohl im bestimmungsgemäßen Betrieb der Anlage, als auch in allen denkbaren Störfallsituationen, soll die Nachwärmeabfuhr allein über natürliche Mechanismen (Leitung, Strahlung, Konvektion) erfolgen.

Diese Bedingung führt, bei vorgegebenem Durchmesser des Cores, zu einer Limitierung der mittleren Leistungsdichte auf 3 MW/m^3 .

Bei einer vorgesehenen thermischen Reaktorleistung von 200 MW ergibt sich mit diesen Randbedingungen eine Kernhöhe von 9,4 m. Das hieraus resultierende und für den HTR-Modul-Reaktor charakteristische lange, schlanke Core gewährleistet die inhärenten Sicherheitseigenschaften des Reaktors, besitzt jedoch einen ungünstigen Einfluß auf die axiale Leistungsdichteverteilung.

kreislauf freiwerdende Reaktivität kleiner ist als diejenige, die beim versehentlichen Ausfahren aller Reflektorstäbe auftritt. Da dieser Störfall dem Genehmigungsverfahren zugrunde gelegt ist, ist gleichzeitig auch die Beherrschung eines Wassereintruchs in das Core nachgewiesen. Die aus der physikalischen Coreauslegung resultierenden Belastungen der BE im Gleichgewichtskern sind in Tab. 4 enthalten /25/.

BE-Einsatzdauer	~1000 VLT
Anzahl der Kerndurchläufe	15
Zielabbrand	80000 MWd/t
Entladefluenz (E > 0,1 MeV)	$2,1 \cdot 10^{21}$ Neutronen/cm ²
mittlere BE-Leistung	0,6 kW
Umwälzrate der BE	~5400 BE/Tag

Tab. 4. Belastung der Brennelemente im Gleichgewichtskern

3.4. Aufbau der Brennelemente des HTR-Modul-Reaktors

Der HTR-Modul-Reaktor verwendet kugelförmige Brennelemente mit einem Außendurchmesser von 60 mm. In der inneren Kugelzone mit einem Durchmesser von 50 mm ist der Brennstoff in Form von beschichteten Teilchen (coated particles) enthalten. Jedes BE enthält etwa 11600 dieser Brennstoffpartikeln, die einen Durchmesser von 1 mm aufweisen und homogen in eine Graphitmatrix eingebettet sind. Um diese Graphitmatrix ist eine brennstofffreie, 5 mm dicke Graphitschale aufgepreßt, um die brennstoffhaltige Zone vor mechanischen Einwirkungen zu schützen. Die Auslegungsdaten der eingesetzten BE können Tab. 5 entnommen werden, der Aufbau der BE ist in Abb. 17 auf Seite 34 dargestellt /24, 25/.

Brennstoff	UO ₂
Anreicherung	8 %
Brennstoffdichte	10,4 g/cm ³
Durchmesser des Brennstoffkerns	0,5 mm
Matrixdichte	1,75 g/cm ³
Wärmeleitfähigkeit bei 1000 °C	~ 25 W/(m · K)
Schwermetallbeladung	7 g/BE
Anzahl coated particles	~ 11600
Brennelementgewicht	204 g
Druckfestigkeit	18 kN
Dicke der brennstofffreien Schale	5 mm
Außendurchmesser	60 mm

Tab. 5. Auslegungsdaten der beim HTR-Modul-Reaktor verwendeten Brennelemente

Die Brennstoffpartikeln enthalten das spaltbare Material in Form von Urandioxid (UO₂). Eingesetzt wird ein Gemisch der Uranisotope Uran-235 und Uran-238, wobei die Uran-235-Anreicherung etwa 8 % beträgt. Beim Übergang vom Erstkern zum Gleichgewichtskern sollen auch BE mit einer Anreicherung von 4 % bzw. 6 % eingesetzt werden. Dies ist notwendig, um die beim Erstkern fehlende Absorption von Neutronen in den Spaltprodukten zu kompensieren.

Die coated particles werden mit einer dreifachen Beschichtung umgeben, um die Rückhaltung der Spaltprodukte zu gewährleisten. Der brennstoffhaltige Kern ist von einer Pufferschicht aus Kohlenstoff umgeben, die der Aufnahme gasförmiger Spaltprodukte dient. Die innere Kohlenstoffschicht und insbesondere die sich hieran anschließende Schicht aus Siliziumcarbid bilden druckdichte Barrieren gegenüber einer Freisetzung von Spaltprodukten. Die äußere Pyrokohlenstoffschicht schützt die Siliziumcarbidschicht vor mechanischen Beschädigungen.

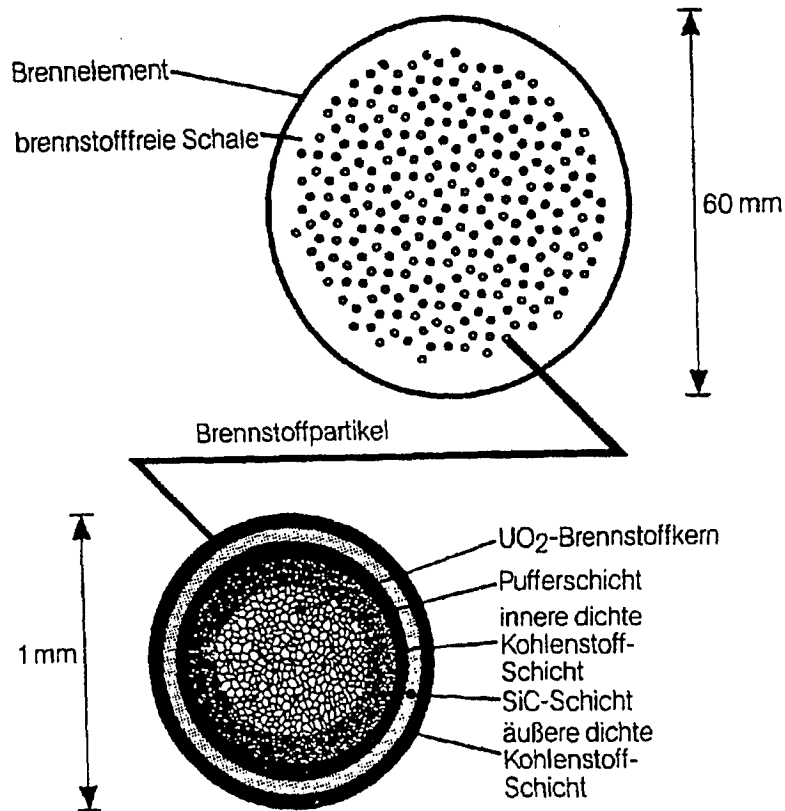


Abb. 17. Aufbau der beim HTR-Modul-Reaktor zum Einsatz kommenden Brennelemente

Die BE-Matrix besteht aus Graphit und dient gleichzeitig zur Moderation (Abbremsung durch Stoßprozesse) der bei der Spaltung entstehenden schnellen Neutronen und zur Übertragung der in den coated particles erzeugten Wärme an das Kühlmittel.

Auch die, ebenfalls aus Graphit bestehende, brennstofffreie Schale dient zur Moderation und zur Wärmeübertragung. Sie hat jedoch zusätzlich die Aufgabe, den brennstoffhaltigen Kern vor Beschädigungen zu schützen.

BE der beschriebenen Art haben, bedingt durch den über 20-jährigen Betrieb des AVR-Reaktors und durch zahlreiche Bestrahlungsexperimente, einen sehr hohen Entwicklungsstand erreicht. Die für den Modulbetrieb geforderten Eigenschaften konnten in allen Fällen nachgewiesen werden. Tab. 6 auf Seite 35 gibt einen Überblick über die an die BE zu stellenden Anforderungen während des Modulbetriebes und die bisher erreichten Grenzwerte /25/.

Kriterium	Anforderung	erreichte Höchstwerte
Abbrand	80000 MWd/t	> 120000 MWd/t
Fluenz (E > 0,1 MeV)	$2,1 \cdot 10^{21}$	$8 \cdot 10^{21}$
maximale Brennelement-Leistung	1,4 kW	4 kW
Brennstofftemperatur	837 °C	1300 °C

Tab. 6. Anforderungen an die Brennelemente während des Reaktorbetriebes

Die in den Bestrahlungsexperimenten verwendeten Proben erfüllten bis zu diesen Grenzwerten auch die Forderungen nach Dimensionsstabilität und mechanischer Festigkeit unter Neutronenbestrahlung, die zur Sicherstellung der Handhabung in der Beschickungsanlage und zur Vermeidung der Spaltproduktfreisetzung erfüllt sein müssen.

3.5. Handhabung der Brennelemente im HTR-Modul-Reaktor

Die kontinuierliche Umwälzung der BE während des Leistungsbetriebes erfordert Einrichtungen zur Entnahme, Überprüfung und Zugabe von BE. Im Vollastbetrieb werden täglich 5360 BE umgewälzt. Der größte Teil (~ 5000) dieser BE hat den vorgesehenen Zielabbrand noch nicht erreicht und wird unmittelbar rezykliert. Die verbleibenden BE werden dem Kreislauf entnommen und durch eine entsprechende Anzahl neuer ersetzt. In Abb. 18 auf Seite 37 ist eine Prinzipskizze der Einrichtungen zur BE-Handhabung bei einer Doppel-Modul-Anlage dargestellt /25/. Die wesentlichen Komponenten dieser Anlage und die an sie zu stellenden Forderungen werden nachfolgend näher erläutert.

3.5.1. Brennelement-Beschickung im HTR-Modul-Reaktor

Die Beschickungsanlage übernimmt die Versorgung des Kerns mit BE. Die Auslegungsdaten dieser Anlage sind in Tab. 7 zusammengefaßt /25/.

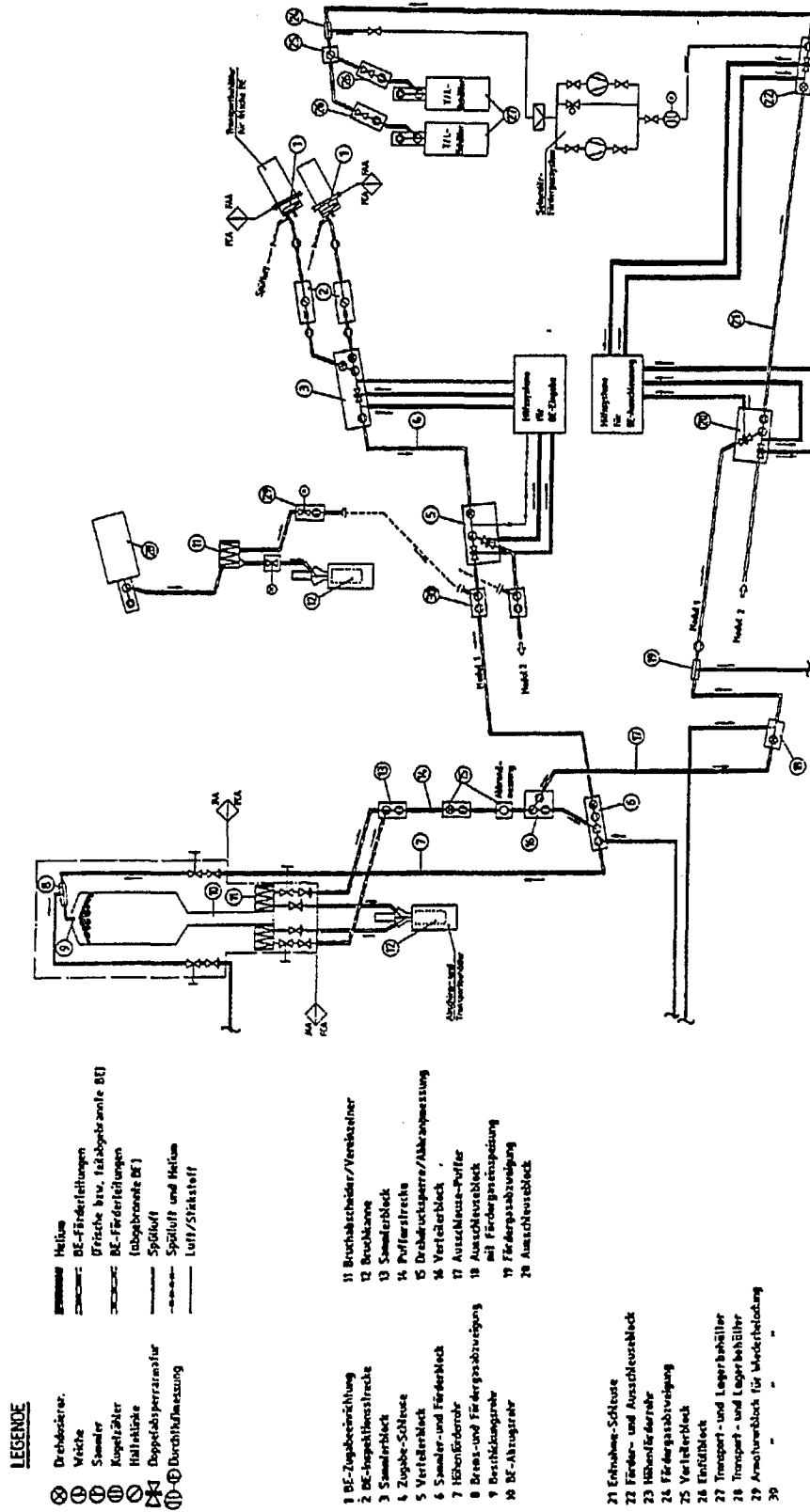
Anzahl der pro Tag die Beschickungsanlage durchlaufenden BE	5360
Anteil frischer BE pro Tag	360
Taktzeit der BE im Förderblock	16 sec
Kapazität der Zugabeschleuse	360 BE
Anzahl der Beschickungsrohre	1

Tab. 7. Auslegungsdaten der BE-Beschickungsanlage

Frische BE werden durch aus Verfügbarkeitsgründen zweifach vorhandenen Zugabeeinrichtungen (1) eingeschleust. In einer Inspektionsstrecke (2) werden die zugegebenen BE auf ihren Durchmesser untersucht, um BE mit Übermaß auszusortieren. Der tägliche Bedarf an frischen BE (~360) wird im Sammlerblock (3) gespeichert. Über ein Schleusensystem (4), das den Druckunterschied zum Primärkreis überwindet, werden die BE in den Förderblock (6) transportiert, in dem sie mit den aus dem Kern entnommenen teilabgebrannten BE durchmischt werden. Von dort erfolgt die eigentliche Beschickung über den Höhenförderer (7) und das zentral ins Core mündende Beschickungsrohr (9). Die Anzahl der zugegebenen BE wird aus Bilanzierungsgründen kurz vor der Zugabe durch eine Zähleinrichtung detektiert und gespeichert. Zur Förderung der Kugeln wird das Primärkühlmittel Helium verwendet, das dem Heliumkreislauf vor dem Eintritt in das Core entnommen wird.

3.5.2. Brennelement-Entnahme aus dem Core des HTR-Modul-Reaktors

Die BE bewegen sich nach der Zugabe infolge ihrer Schwerkraft durch das Core und werden nach etwa 67 Tagen durch das KAZR (10) entnommen. Von dort rollen sie zum Bruchabscheider (11), in dem beschädigte BE aussortiert und über eine Schleuse in Kannen (12) abgefüllt werden.



LEGENDE

- ⊗ Drehschleifer
- ⊙ Weiche
- ⊕ Sammelröhre
- ⊖ Kugelhahn
- ⊗ Hähnhahn
- ⊕ Doppelabsperrventil
- ⊖ Durchflußmessung
- ⊗ Heilm
- ⊕ BE-Frühleitungen
- ⊖ Frische bzw. Isotopkanäle BE
- ⊗ BE-Frühleitungen (abgebrannte BE)
- ⊕ Spülloft
- ⊖ Spülloft und Heilm
- ⊗ Luft/Stickstoff

- 1 BE-Zugbeeinrichtung
- 2 BE-Isolierblock
- 3 Sammelblock
- 4 Zugbo-Schleuse
- 5 Verteilerblock
- 6 Sammel- und Förderblock
- 7 Höhenförderer
- 8 Bren- und Förderabreinigung
- 9 Beschleuniger
- 10 BE-Aktuator
- 11 Bruchschneider/Ventilzeiler
- 12 Bruchkanne
- 13 Sammelblock
- 14 Pufferfritte
- 15 Drehabschleuse/Abgasreinigung
- 16 Verteilerblock
- 17 Ausschleus-Puffer
- 18 Ausschleusblock mit Förderabreinigung
- 19 Förderabreinigung
- 20 Ausschleusblock

- 21 Entnahme-Schleuse
- 22 Fördere- und Ausschleusblock
- 23 Höhenförderer
- 24 Förderabreinigung
- 25 Verteilerblock
- 26 Endfördere
- 27 Transport- und Lagerbehälter
- 28 Transport- und Lagerbehälter
- 29 Antriebsblock für Wiederbeladung
- 30

Abb. 18. Einrichtungen zur Brennelementhandhabung im HTR-Modul-Reaktor

Unbeschädigte Kugeln werden in einen Sammlerblock (13) gefüllt und von dort über eine Pufferstrecke einzeln der Abbrandmeßanlage (vgl. Kapitel 3.5.3.) zugeführt. Abgebrannte BE werden dem Kreislauf über ein spezielles Ausschleusesystem entnommen, während die teilabgebrannten BE dem Förderblock (6) zugeführt und von dort in den Kern rezykliert werden.

Im gesamten Entnahmesystem herrscht Primärkreisdruck. Erst wenn die Pufferstrecke (17) die täglich durchschnittlich anfallende Anzahl von 360 BE enthält, erfolgt im Ausschleuseblock (20) eine Druckreduzierung und die BE können entnommen werden. Die dem Kreislauf entnommenen BE werden, wie die beschädigten, in Kannen gefüllt und gelagert. Die Hauptdaten des Entnahmesystems sind in Tab. 8 aufgeführt /25/.

Anzahl der pro Tag entnommenen BE	5360
Anteil abgebrannter BE pro Tag	360
erwarteter BE-Bruch pro Jahr	90
BE-Kapazität der Bruchkanne	2000 BE
BE-Kapazität der Entnahmeschleuse	360 BE

Tab. 8. Auslegungsdaten der BE-Entnahmeanlage

3.6. Abbrandmessung am HTR-Modul-Reaktor

Für den Betrieb eines HTR-Modul-Reaktors ist es aus physikalischen, wirtschaftlichen und sicherheitstechnischen Gründen erforderlich, die BE nach der Entnahme aus dem Core hinsichtlich ihres Abbrandzustandes zu untersuchen. Vom Hersteller wurde hierzu ein Verfahren ausgewählt, das mit Hilfe eines Halbleiterdetektors das γ -Spektrum der zu untersuchenden BE aufnimmt und auswertet. Über die Konzentrationen geeigneter Spaltprodukte läßt sich dann der Abbrandzustand der BE bestimmen.

Die Form des Modulreaktors (langes, schlankes Core) erfordert eine sehr schnelle Umwälzung der BE. Für die Abbrandmessung ergeben sich hieraus sehr restriktive Randbedingungen. Bei etwa 5400 täglich umzuwälzenden BE erhält man für die Abbrandmessung eine Taktzeit von 16 Sekunden. Für die Aufnahme des γ -Spektrums steht hierbei lediglich ein Zeitraum von 10 Sekunden zur Verfügung, da die restlichen 6 Sekunden für Transport und Positionierung des BE, zur Auswertung des Spektrums und für die Entscheidung über Entnahme oder Rezyklierung benötigt werden.

Um die Größe des Pufferspeichers vor der Meßeinrichtung in akzeptablen Grenzen zu halten, werden die BE nach einer relativ kurzen Abklingzeit (Zeitspanne zwischen Bestrahlungsende und Messung) von lediglich 55 Stunden der Abbrandmessung zugeführt. Daher wird eine Reihe von kurzlebigen Spaltprodukten im Spektrum erfaßt und dessen Auswertung deutlich erschwert.

3.6.1. Anordnung der Abbrandmeßanlage im HTR-Modul-Reaktor

Die Abbrandmessung erfolgt im BE-Abzugsraum, wobei das BE während der Aufnahme des Spektrums in einer Drehdrucksperr mit einer Genauigkeit von 5 mm positioniert ist.

Abb. 19 auf Seite 40 zeigt die Anordnung der Abbrandmeßanlage im Reaktorgebäude /27/.

Der Halbleiterdetektor mit zugehöriger Elektronik ist etwa 6 Meter vom BE entfernt im Meßumformerraum angeordnet. Zur Abschirmung der Umgebungsstrahlung wird er von einem 10 cm dicken Bleimantel umgeben. In die Betonwand zwischen Meßumformerraum und BE-Abzugsraum wird ein optischer Strahlengang eingearbeitet, so daß die vom BE ausgehende γ -Strahlung ohne Schwächung auf den Detektor treffen kann. Da die Anzahl der Impulse, die vom Detektorsystem pro Zeiteinheit verarbeitet werden kann, begrenzt ist, muß die BE-Strahlung um mehrere Größenordnungen reduziert werden. Daher wird unmittelbar vor dem Detektor ein Kollimator eingebaut, der neben der notwendigen Reduzierung durch seine doppeltkonische Form dafür sorgt, daß alle Bereiche des brennstoffhaltigen BE-Kern gleichmäßig auf den Detektor abgebildet werden.

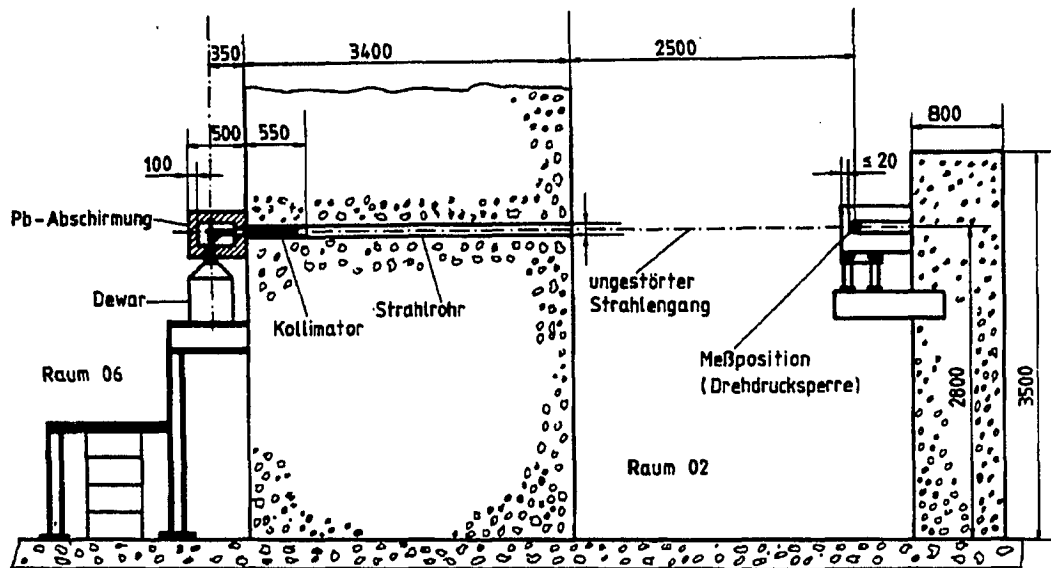


Abb. 19. Anordnung der Abbrandmeßanlage im Reaktorgebäude

3.6.2. Anforderungen an die Abbrandmeßanlage des HTR-Modul-Reaktors

Von Seiten der Brennstoffeinsatzplanung sind für die Abbrandmessung folgende Anforderungen ermittelt worden:

1. Detektion des Abbrandzustandes mit einer Ungenauigkeit von maximal 5 %.
2. Erkennung von Moderator- und Absorberelementen.

Der Einsatz solcher Kugeln ist hauptsächlich im Erstkern vorgesehen, in dem die noch fehlende Neutronenabsorption durch Spaltprodukte kompensiert werden muß.

3. Unterscheidung von Anreicherungsstufen.

Beim Übergang vom Erstkern zum Gleichgewichtskern werden beim HTR-Modul-Reaktor BE mit drei unterschiedlichen U-235 Spaltstoffanreicherungen eingesetzt. Zu Beginn des Reaktorbetriebes werden BE mit einer geringen Anreicherung von 4 % eingesetzt. In der Übergangsphase zwischen Erst- und Gleichgewichtskern wird eine zweite Anreicherungsstufe von 6 % eingesetzt, im Gleichgewichtskern wird dann ein standardisierter BE-Typ mit 8 % Anreicherung verwendet.

Eine eindeutige Trennung dieser unterschiedlichen Anreicherungen muß sichergestellt werden, um eine vorzeitige Entnahme von BE mit höherer Anreicherung und damit auch höherem Restspaltstoffgehalt zu vermeiden und andererseits BE mit niedrigerem U-235-Inventar frühzeitig dem Core entnehmen zu können. Letzteres ist aus folgenden Gründen unabdingbar:

- Aufgrund des geringen Spaltstoffinventars tragen diese BE nur noch wenig zur Leistungsproduktion bei.

- Die Neutronenbilanz wird durch den höheren U-238-Gehalt verschlechtert.
- Die BE erreichen den vorgesehen Zielabbrand von 80000 MWd/t sehr spät oder gar nicht.

3.6.2.1. Bestimmung des Abbrandzustandes

Nuklide zur Bestimmung des Abbrandzustandes müssen die folgenden Eigenschaften aufweisen:

- Die Nuklide besitzen eine möglichst lange Halbwertszeit, da sich dann, unter Vernachlässigung des radioaktiven Zerfalls, die Konzentrationen im BE etwa linear mit dem Abbrand erhöhen.
- Für eine exakte Detektion eines Peaks im γ -Spektrum muß eine Mindestanzahl von Impulsen erfaßt werden. Je länger die Halbwertszeit eines Nuklides ist, desto geringer ist folglich dessen Aktivität. Um dennoch in der beim Modul vorgegebenen kurzen Meßzeit (10 Sekunden) genügend Impulse zu erfassen, muß die Konzentration des Nuklides im BE ausreichend hoch sein. Diese ist direkt abhängig von der Spaltausbeute des ausgewählten Nuklides, aber auch von den Halbwertszeiten und Spaltausbeuten der Mutternuklide. Optimal wäre eine lange Halbwertszeit des Nuklides selbst sowie kurze Halbwertszeiten aller Vorläufer, bei gleichzeitig hohen Spaltausbeuten. In diesem Fall können die Spaltausbeuten der gesamten radioaktiven Zerfallskette unmittelbar dem betrachteten Nuklid zugeordnet werden.
- Die Wahrscheinlichkeit für die Emission eines Photons (Übergangswahrscheinlichkeit) muß hoch sein. Je größer diese ist, desto höher ist die Zahl der auf das empfindliche Detektorvolumen auftreffenden Photonen.
- Die zur Auswertung vorgesehene Photolinie darf nicht durch Photolinien anderer Nuklide verfälscht werden. Bei der Überlagerung mehrerer Photolinien müssen die einzelnen Anteile getrennt ermittelt werden, was den rechnerischen Aufwand erhöht.

Die Ermittlung des Abbrandzustandes erfolgt bislang über die Bestimmung der Konzentration des radioaktiven Spaltproduktes Cs-137 bzw. über den Zerfall des Tochter-nuklides Ba-137m. Das Nuklid Cs-137 erfüllt hierbei die Forderungen nach einer langen Halbwertszeit (30,1 Jahre) und einer hohen Spaltausbeute, emittiert jedoch selbst keine Photonen. Durch den β -Zerfall entsteht das Tochternuklid Ba-137m, das mit einer Halbwertszeit von 2,6 Minuten in den Grundzustand übergeht und dabei, mit einer Wahrscheinlichkeit von 90 %, Photonen mit einer Energie von 661,6 keV aussendet. Ein Problem stellt bei dieser Nuklidkombination die bei einer Abklingzeit von 55 Stunden auftretende Überlagerung des Photopeaks durch die Photolinien der Nuklide J-132, Ce-143 und Nb-97 dar.

Durch die kurze Abklingzeit beim HTR-Modul-Reaktor ist zudem der Comptonuntergrund unter dem Cs-137-Peak sehr hoch, so daß bei niedrig abgebrannten BE die Trennung des Photopeaks vom Comptonuntergrund schwierig ist. Die Eigenschaften aller für die Abbrandmessung wichtigen Nuklide sind in Tab. 9 auf Seite 42 zusammengestellt.

Nuklid	Halbwertszeit	Energie (keV)	Übergangswahrscheinlichkeit (%)
Cs-137	30,1 a	---	---
Ba-137m	2,6 min	661,6	90
Cs-134	2,1 a	604,7 759,8	98,0 89,0
Hf-175	70 d	343,0	85,0
J-132	2,4 h	667,7	98,7
Te-132	72 h	772,6 ---	76,2 ---
Nb-97	72 min	657,9	98,2
Zr-97	16,8 h	743,4	94,0
Ce-143	1,4 d	293,3 664,0	43,4 5,8

Tab. 9. Physikalische Größen von Nukliden zur Abbrandmessung

3.6.2.2. Erkennung von Moderator- und Absorberkugeln

Die Detektion dieser Kugeln stellt in der Abbrandmessung aus folgenden Gründen kein Problem dar:

- Moderatorelemente können aufgrund ihrer geringen Gesamtaktivität eindeutig detektiert werden. In den aus reinem Graphit bestehenden Kugeln sind keinerlei Spaltprodukte enthalten. Die meßbare Aktivität entsteht durch Verunreinigungen bzw. einer geringen Aktivierung.
- Absorberelemente enthalten das neutronenabsorbierende Nuklid Hf-174, das durch Neutroneneinfang in Hf-175 umgewandelt wird. Letzteres wiederum zerfällt mit einer Halbwertszeit von etwa 70 Tagen unter Aussendung von Photonen mit Energien von 343 keV in das Nuklid Lu-175. Die emittierten Photonen erzeugen im γ -Spektrum einen Einzelpeak, der die Erkennung der Absorberkugeln ermöglicht.

3.6.2.3. Unterscheidung der Anreicherungsstufen

Durch die Bestimmung der Cs-137-Aktivität wird eine Aussage über die Anzahl der erfolgten Spaltungen ermöglicht. Bei Einsatz eines einzigen BE-Types ist die Zuordnung eines bestimmten Abbrandes daher eindeutig. Werden hingegen BE gleicher Schwermetalleinwaage, jedoch unterschiedlicher Anreicherung eingesetzt, so können diese bei verschiedenem Restspaltstoffgehalt gleiche Cs-Aktivitäten aufweisen. Eine Trennung dieser Anreicherungen ist somit über die Messung der Cs-137-Aktivität nicht möglich. Um die Unterscheidung dieser BE sicherzustellen, muß die Konzentration weiterer Nuklide bestimmt werden. Diese müssen vom Restspaltstoffgehalt abhängig sein, da in diesem Fall durch die gleichzeitige Erfassung der Cs-137-Aktivität und einer oder mehrerer weiterer Nuklidaktivitäten eine Aussage über Anreicherung und Abbrandzustand gemacht werden kann. Voraussetzung hierfür ist, daß die ausgewählten Nuklide eine Halbwertszeit im Bereich von einigen Stunden aufweisen, damit die Nuklide nach 55 Stunden noch nachweisbar sind. In dieser Arbeit wird zur Unterscheidung der Anreicherung das Nuklid J-132 verwendet.

4. Beschreibung der eingesetzten Rechenprogramme

Bei der Simulation von γ -Spektren, wie sie während des Leistungsbetriebes eines Hochtemperaturreaktors zu erwarten sind, werden mit Hilfe von Rechenprogrammen die Konzentrationsänderungen der Nuklide im Brennelement als Funktion der Bestrahlungsdaten, der Geometrie und der Zeit ermittelt, mit denen dann das zugehörige γ -Spektrum zu jedem beliebigen Zeitpunkt konstruiert werden kann.

Im Rahmen dieser Arbeit wurden mehrere Programmsysteme eingesetzt, die im folgenden kurz vorgestellt werden.

4.1. Das Programmsystem HTR-2000

Das Programmsystem HTR-2000 /28, 29/ wurde entwickelt am Institut für Sicherheitsforschung und Reaktortechnik des Forschungszentrums KFA Jülich GmbH durch H. Werner und F. Thomas. Die Motivation für die Entwicklung dieses Programmsystems bestand darin, alle aus dem Betrieb des AVR-Reaktors und den daran durchgeführten Experimenten gewonnenen Erfahrungen zu vereinen, um den Betrieb eines Hochtemperaturreaktors mittels mathematischer Verfahren zu begleiten.

Zur umfassenden Beschreibung des corephysikalischen Verhaltens von Kugelhaufenreaktoren ist es erforderlich, das kontinuierliche Umwälzen der BE und das Abbrandgeschehen zu simulieren, um das hieraus resultierende Neutronenspektrum sowie die Neutronenfluß, Leistungs- und Temperaturverteilung in dreidimensionaler Darstellung berechnen zu können.

Die logische Struktur des Programmsystems HTR-2000 wird in Abb. 20 auf Seite 44 schematisch skizziert /28/.

Das Programmsystem HTR-2000 ist aus zwei Blöcken aufgebaut, wobei im ersten die Simulation des Kugelfließens und die Abbrandrechnung, im zweiten die Spektral-, Diffusions- und Temperaturrechnung durchgeführt wird. Zum Abschluß beider Blöcke, die durch gemeinsame Dateneinheiten miteinander verbunden sind, werden RESTART-Files erstellt, die es ermöglichen, zu jedem Zeitpunkt die Rechnungen neu aufzusetzen.

Zur Simulation des kontinuierlich ablaufenden Kugelfließens wurde ein Modell entwickelt /30/, das beispielhaft für den AVR-Reaktor in Abb. 21 auf Seite 45 dargestellt ist /28, 29/.

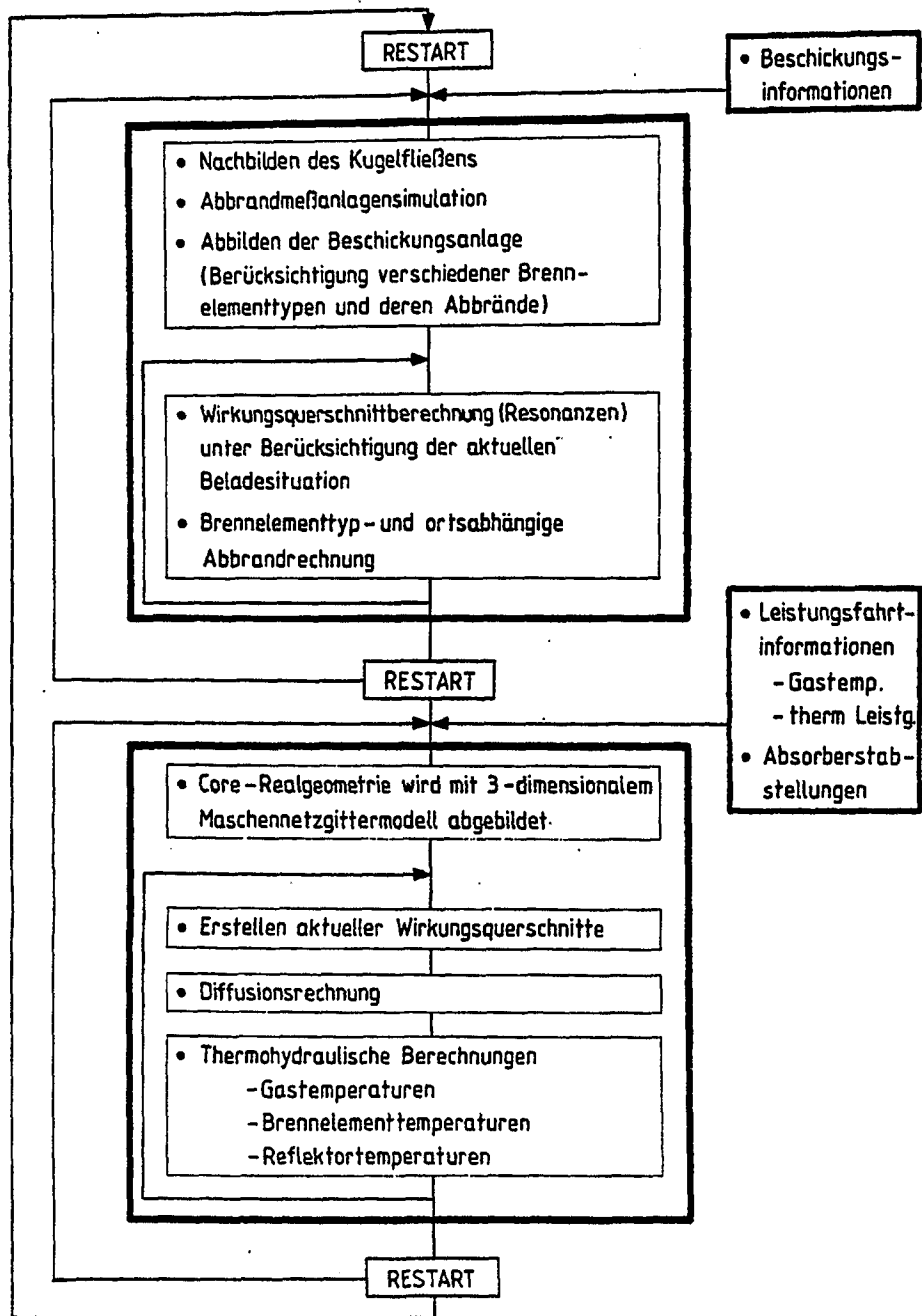


Abb. 20. Schematische Darstellung des Programmes HTR-2000

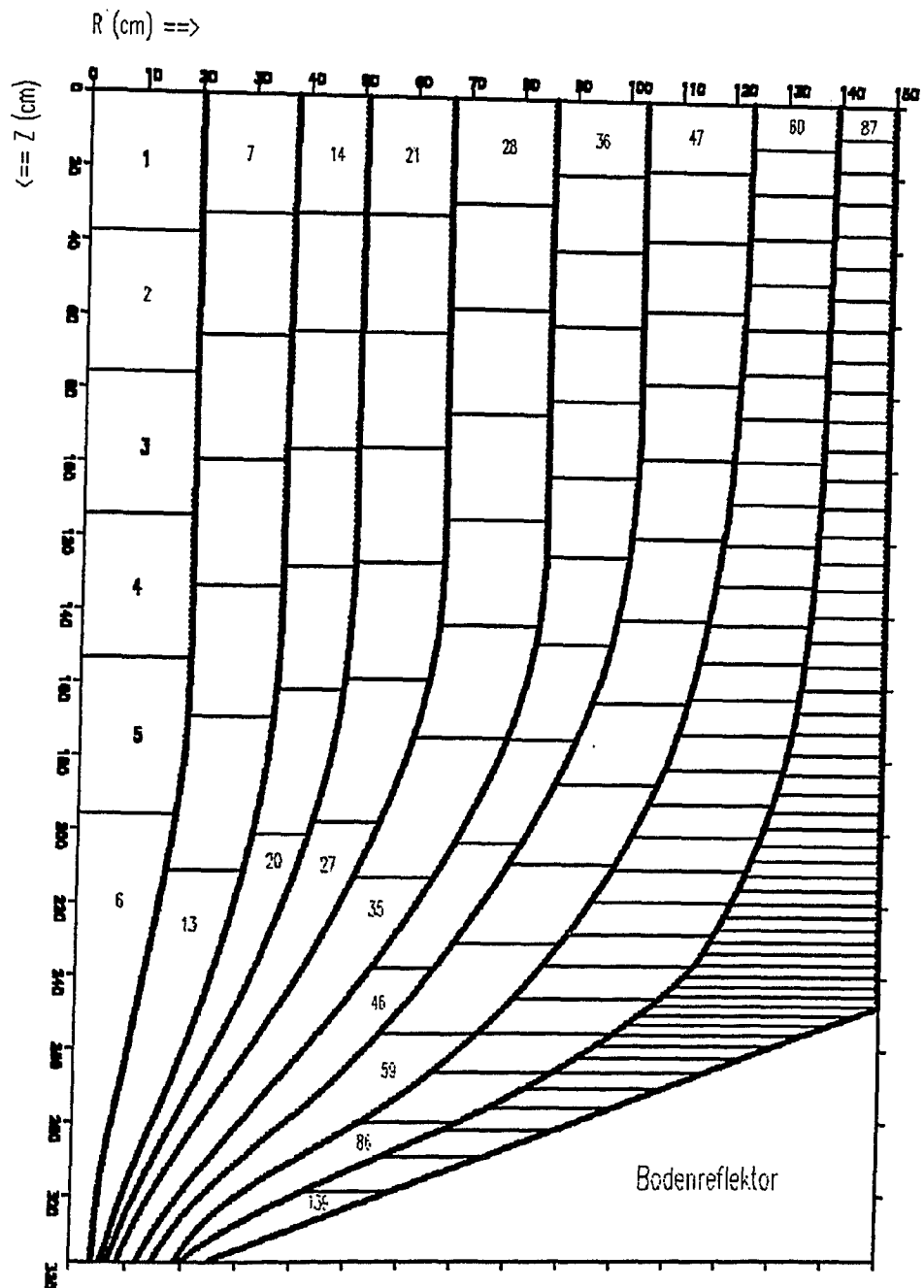


Abb. 21. Kugelfließmodell des AVR-Reaktors mit 9 Kanälen

Eine Einteilung des AVR-Cores in 9 Fließkanäle erwies sich bei der Nachrechnung der Leistungsfahrt als zweckmäßig und hinreichend exakt /29, 31/. Die Umwälzung der Kugeln wird beschrieben durch die gleichzeitige Umsetzung aller Kugeln in die nächste Abbrandregion, wobei durch Verwendung kleiner Zeitschritte eine nahezu kontinuierliche Umwälzung der BE simuliert wird. Im vorliegenden Fall wurde als Zeitschrittlänge

die Dauer einer Wiederbeladung gewählt, die beim AVR-Reaktor 7200 umgewälzte Kugeln umfaßt.

4.1.1. Spektralrechnung

Die Spektralrechnung liefert, für die durch Zusammenfassen mehrerer Abbrandregionen gebildeten Spektralzonen, repräsentative mittlere Wirkungsquerschnitte in den gewählten Energiebereichen.

Für die Berechnung von Hochtemperaturreaktoren hat sich eine Unterteilung des Energiespektrums in insgesamt vier Makro-Energiegruppen, deren Grenzen in Tab. 10 /31/ angegeben sind, als zweckmäßig erwiesen. Prinzipiell jedoch ist die Energiegruppeneinteilung und damit auch die Zahl der Energiegruppen frei wählbar und nur durch den rechnerischen Aufwand begrenzt.

Gruppe	Bereich	Energiebereich [eV]
1	schnell	$748,52 < E \leq 10^7$
2	epithermisch	$17,60 < E \leq 748,52$
3	epithermisch	$1,90 < E \leq 17,60$
4	thermisch	$0,025 < E \leq 1,90$

Tab. 10. Einteilung der Makro-Energiegruppen in HTR-2000

Auch die Berechnung von mittleren Gruppenwirkungsquerschnitten für alle im Fließmodell eingezeichneten Abbrandregionen, ist im Hinblick auf die hierzu notwendige Rechenzeit nicht gerechtfertigt. Aus diesem Grunde erfolgt eine Reduktion der insgesamt 139 Abbrandregionen auf 25 Spektralzonen, wobei Abbrandregionen mit nahezu gleichen Temperaturen und Nuklidkompositionen zusammengefaßt werden. Der Berücksichtigung der Temperaturen ist hierbei im Hinblick auf die stark temperaturabhängige Resonanzabsorption besondere Aufmerksamkeit zu schenken.

Die beschriebenen Berechnungen werden wahlweise mit den Programmen DITO /49/ bzw. WIMS-HTR /32,50/ durchgeführt, in dem mathematisch aufwendige Verfahren, die auch eine Behandlung der doppelt-heterogenen Brennstoffanordnung im AVR-Reaktor (HEU-LEU-BE) ermöglichen, zusammengefaßt sind. Das Rechenprogramm benötigt detaillierte Informationen über die aktuelle Zusammensetzung der einzelnen Spektralzonen und eine umfangreiche Datenbank, in der die energieabhängigen Wirkungsquerschnitte aller relevanten Nuklide als Feingruppenwirkungsquerschnitte in sehr schmalen Energieintervallen approximiert und zusammengefaßt sind.

Mit diesen Daten werden zunächst für jede Spektralzone die zugehörigen Feingruppenwirkungsquerschnitte unter Berücksichtigung der aktuellen Zusammensetzung berechnet. In einem zweiten Schritt erfolgt die Reduktion auf die vorgegebene Anzahl von vier Makroenergiegruppen. Die derart berechneten mittleren Gruppenwirkungsquerschnitte werden an das sich anschließende Diffusionsprogramm übergeben.

4.1.2. Diffusionsrechnung

Zur Lösung des Eigenwertproblems der sowohl raum- als auch energiediskretisierten Diffusionsgleichung ist das Programm CITATION /33/ in den Rechenzyklus HTR-2000 eingebunden worden.

Es liefert mit den in der Spektralrechnung gebildeten makroskopischen Gruppenwirkungsquerschnitten die Neutronenfluß- und Leistungsdichteverteilung in dreidimensionaler Geometrie sowie die zugehörigen Buckling-Terme.

Aus der orts- und energieabhängigen Neutronenflußverteilung werden in einem weiteren Schritt die hieraus resultierenden Temperaturfelder unter Berücksichtigung der Wärmeleitung im Graphit und des Wärmetransportes durch das Kühlmittel bestimmt.

In einer Iterationsschleife werden Diffusions-, Temperatur- und Spektrumsrechnung miteinander verknüpft. Die Buckling-Terme, Brennstoff- und Moderatortemperaturen werden bei der Wiederholung der Spektrumsrechnung berücksichtigt. Diese Prozedur wird bis zur Konvergenz der Multiplikationskonstante fortgesetzt.

Abschließend werden in der Abbrandrechnung die zeitabhängigen Isotopenkonzentrationen in den Brennelementen berechnet.

4.1.3. ORIGIN-Berechnungen

Werden detaillierte Daten über die Bestrahlungsgeschichte einzelner Brennelementtypen während des Coredurchlaufes gefordert, so wird dies mit einer Einkopplung des Codes ORIGIN erreicht, in dem die Abbrandgleichungen für 1156 Nuklide gelöst werden. Für die Rechnung benötigt der Code neben dem zeitlichen Verlauf des thermischen Neutronenflusses Spektrumwichtungsfaktoren, mit denen die Wirkungsquerschnittsdaten der umfangreichen Datenbibliothek dergestalt gewichtet werden, daß die Reaktionsraten korrekt erfaßt werden.

Während die Reaktionsrate in HTR-2000 (R_{2000}) sich aus den Beiträgen der vier Makroenergiegruppen zusammensetzt,

$$R_{2000} = (\Phi_1\sigma_1 + \Phi_2\sigma_2 + \Phi_3\sigma_3 + \Phi_4\sigma_4)$$

wobei Φ_i , σ_i die Gruppenflüsse und Gruppenwirkungsquerschnitte in den vier Makroenergiegruppen repräsentieren, bildet sich die Reaktionsrate im ORIGIN Code (R_{OR}) nach der Gleichung

$$R_{OR} = N (THERM \cdot \sigma_{2200} + RES \cdot RI + FAST \cdot \sigma_s) \Phi_4$$

wobei der mikroskopische Wirkungsquerschnitt bei Neutronengeschwindigkeiten von 2200 m/s

$$\sigma_{2200} = \sigma_{2200}(n, \gamma) + \sigma_{2200}(n, f) + \sigma_{2200}(n, \alpha)$$

sich aus den Anteilen für Spaltung (n,f), Absorption (n, γ) sowie (n, α)-Prozessen zusammensetzt.

Die Resonanzintegrale sind gegeben durch

$$RI = RI(n, \gamma) + RI(n, \alpha).$$

Die Wirkungsquerschnitte im schnellen Bereich der ORIGEN-Library sind durch folgende Gleichung bestimmt:

$$\sigma_S = \sigma_S(f) + \sigma_S(n,2n) + \sigma_S(n,3n) + \sigma_S(n,p) + \sigma_S(n, \alpha).$$

Unter der Bedingung gleicher Reaktionsraten $R_{2000} = R_{RO}$ erhält man für die zu ermittelnden Spektrumwichtungsfaktoren

$$THERM = \frac{\sigma_4}{\sigma_{2200}} \quad RES = \frac{\Phi_2 \sigma_2 + \Phi_3 \sigma_3}{\Phi_4 RI} \quad FAST = \frac{\Phi_1 \sigma_1}{\Phi_4 \Sigma_5}.$$

Mit dieser Anpassung lassen sich γ -Aktivität, Nachwärme und der Aufbau der Transuranisotope in einzelnen Brennelementen in Abhängigkeit des Abbrandes bestimmen. Zudem ist es möglich, die Konzentrationen aller berücksichtigten Nuklide als Funktion der Brennelementabklingzeit zu bestimmen.

4.2. Das Programmsystem SPECCALC

Das im Rahmen dieser Arbeit entwickelte Programmsystem SPECCALC erlaubt die universelle Berechnung von γ -Spektren unter nahezu beliebigen Randbedingungen. Der logische Aufbau des Programmes ist in Abb. 22 schematisch skizziert.

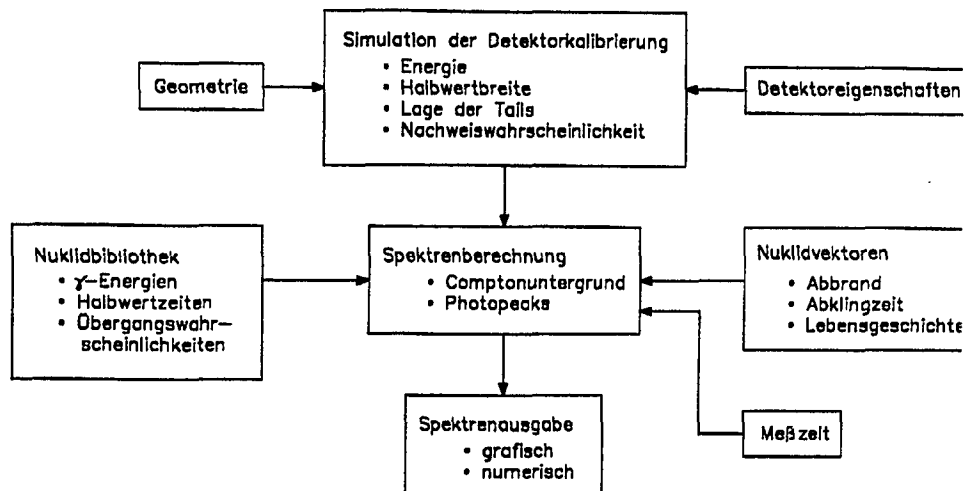


Abb. 22. Schematische Darstellung des Programmes SPECCALC

Die für die Berechnungen notwendigen nuklearen Daten für maximal 150 Nuklide sind in einer umfangreichen Bibliothek zusammengefaßt.

Das Programm erhält die mittels der Rechencodes HTR-2000 und ORIGEN berechneten Nuklidaktivitäten als Eingabedatensatz, wodurch der Abbrand und die Abklingzeit der Brennelemente bereits eindeutig definiert sind.

Mit den eingelesenen Aktivitäten berechnet SPECCALC für einen bestimmten Detektortyp und einer definierten Anordnung der Meßapparatur für eine frei wählbare Meßzeit das zugehörige γ -Spektrum. Die hierzu benötigten Kalibrierungsdaten für die Energie, die Halbwertsbreite, die Taillagen und die Nachweiswahrscheinlichkeit müssen entweder der Gerätespezifikation entnommen oder in eigens durchgeführten Messungen bestimmt werden.

Nach der Simulation der Detektorkalibrierung berechnet das Programm für alle Isotope die Beiträge zum Comptonuntergrund sowie die Photopeaks und summiert die zugehörigen Werte in maximal 8192 Kanälen.

Nach Abschluß der Berechnungen wird das Spektrum graphisch ausgegeben.

Das Programmsystem besteht demnach aus den vier Blöcken Nuklibibliothek, Simulation der Kalibrierung, Berechnung der Spektren und Ausgabe in numerischer und graphischer Form.

4.2.1. Umfang und Aufbau der verwendeten Nuklidbibliothek

Zur Berechnung eines γ -Spektrums werden detaillierte Daten für nahezu alle Isotope benötigt, die γ -Quanten emittieren. Die in SPECCALC implementierte Nuklidbibliothek enthält für derzeit 106 Nuklide bis zu jeweils 32 verschiedene γ -Energien mit den zugehörigen Übergangswahrscheinlichkeiten.

Um den Umfang der Bibliothek in vertretbaren Grenzen zu halten, sind nur Isotope berücksichtigt, die nach einer beim HTR-Modul vorgesehenen Abklingzeit von 55 Stunden noch in ausreichender Konzentration im Brennelement enthalten sind. Dies bedeutet, daß Isotope mit einer Halbwertszeit von weniger als 5 Stunden nicht berücksichtigt werden müssen, sofern sie nicht durch radioaktiven Zerfall neu produziert werden.

Da zudem für die Abbrandmessung nur Photonen mit Energien von mehr als 300 keV von Interesse sind, werden alle γ -Linien unterhalb dieser Energie vernachlässigt.

Bei den Werten der Übergangswahrscheinlichkeit wird für Energien unterhalb von 661,6 keV (dies ist die Energie des Abbrandindikators Cs-137, Ba-137m) eine minimale Intensität von 5 % gefordert. Um den Comptonuntergrund im Bereich des Cs-137-Peaks möglichst exakt simulieren zu können, wird bei höheren Energien dagegen eine minimale Intensität von 1 % gefordert.

Für andere Aufgabenstellungen kann die Nuklidbibliothek mit geringen Aufwand erweitert oder geändert werden. Alle in der Bibliothek enthaltenen Daten wurden der Literatur entnommen /22/.

4.2.2. Simulation der Kalibrierung

Alle durchzuführenden Kalibrierungen wurden im zweiten Kapitel bereits erläutert, so daß nachfolgend lediglich die mathematische Umsetzung beschrieben wird. Alle Kalibrierungen gelten nur für die jeweilige Meßanordnung. Aus diesem Grunde müssen die notwendigen Kalibrierungsdaten während des Betriebes der Abbrandmeßanlage regelmäßig mit Eichpräparaten neu bestimmt werden.

Die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Berechnungen erfolgten für eine in den HZ des Forschungszentrums KFA Jülich GmbH eingesetzte Abbrandmeßeinrichtung. Die Kalibrierung erfolgt dort mit Hilfe des Programmes SPECTRAN-F /15/. Die zur Simulation der Kalibrierungen notwendigen mathematischen Funktionen wurden aus diesem Programmsystem übernommen, da nur bei Zugrundelegung der gleichen Kalibrierungsdaten ein direkter Vergleich zwischen berechneten und gemessenen Spektren möglich ist.

4.2.2.1. Energiekalibrierung

Die Energiekalibrierung legt den Zusammenhang zwischen der Kanalnummer (X) im Vielkanalanalysator und der zugehörigen Energie (E) fest, der durch ein Polynom 3. Grades beschrieben wird.

$$E(X) = C_0 + C_1 \cdot X + C_2 \cdot X^2 + C_3 \cdot X^3 ,$$

wobei die Koeffizienten C_0 bis C_3 durch die Eichung experimentell bestimmt werden. Auf diese Weise wird den berechneten Spektren der real in der Meßanordnung vorliegende funktionale Zusammenhang zugrundegelegt.

4.2.2.2. Halbwertsbreitenkalibrierung

Die Halbwertsbreite der Photopeaks bestimmt das mit der Meßapparatur zu erreichende Auflösungsvermögen. Die in der Gerätespezifikation angegebenen Werte wurden unter idealen Versuchsbedingungen ermittelt und sind im kontinuierlichen Detektorbetrieb meist nicht zu erreichen. Die tatsächliche Halbwertsbreite ist größer, so daß eine experimentelle Ermittlung der Halbwertsbreite (FWHM) als Funktion der Energie notwendig ist. Die im Rechenprogramm implementierte Gleichung /15/ lautet:

$$\text{FWHM} (E) = \frac{\sqrt{B_1 \cdot E + B_2 \cdot E^2 + B_3 \cdot E^3}}{C_1}$$

Auch hier werden die experimentell bestimmten Koeffizienten B_1 bis B_3 und C_1 (dieser wird aus der Energiekalibrierung übernommen) vom Rechenprogramm eingelesen und mit diesen nach obiger Funktion die Halbwertsbreitenkalibrierung simuliert.

4.2.2.3. Tailkalibrierung

Um Abweichungen von der Gaußverteilung aufgrund unvollständiger Ladungssammlung zu berücksichtigen, wird ein Teil der niederenergetischen Flanke des Photopeaks durch eine Exponentialfunktion beschrieben. Der Übergangspunkt von der Gaußverteilung zur Exponentialfunktion wird durch den Tailingparameter festgelegt, dessen Energieabhängigkeit in einer Kalibrierungsmessung bestimmt wird. Die ermittelten Parameter T_0 bis T_3 und C_1 werden dem Rechenprogramm übergeben, welches dann die Lage der Tailparameter (TAIL) gemäß der folgenden Funktion /15/ berechnet:

$$\text{TAIL} (E) = \frac{1}{C_1} \cdot (T_0 + T_1 \cdot E + T_2 \cdot E^2 + T_3 \cdot E^3)$$

4.2.2.4. Kalibrierung der Nachweiswahrscheinlichkeit

Eine wesentliche Voraussetzung für die Berechnung der Photopeaks ist die exakte Kenntnis der Nachweiswahrscheinlichkeit der gesamten Detektoranordnung als Funktion der Energie. Auch diese wird anhand von Kalibrierungsmessungen für die jeweilige Detektoranordnung ermittelt. Da die geometrische Anordnung der Meßapparatur und der zu messenden Brennelemente einen entscheidenden Einfluß auf die Nachweiswahrscheinlichkeit besitzt, muß sichergestellt sein, daß diese auch über einen längeren Zeitraum beibehalten wird. Somit muß auch die Positionierung der Brennelemente mit größter Sorgfalt vorgenommen werden. Die Funktion zur Beschreibung der Nachweiswahrscheinlichkeit (NWW) in Abhängigkeit von der Energie lautet /15/:

$$\ln (NWW) = \sum_{k=1}^8 C(k) \cdot (\ln E)^k$$

Die Koeffizienten $C(k)$ werden wiederum aus den Kalibrierungsmessungen gewonnen. Dieser funktionale Zusammenhang zwischen Energie bzw. Kanal und der Nachweiswahrscheinlichkeit beschreibt den Anteil der vom Brennelement ausgehenden Strahlung, der im Vielkanalanalysator erfaßt wird. Mit Hilfe der Nachweiswahrscheinlichkeit werden, ausgehend von den mit HTROGEN berechneten Aktivitäten, die zu erwartenden Impulsraten der verschiedenen Isotope berechnet. Die Nachweiswahrscheinlichkeit wird in dieser Arbeit nur für Energien oberhalb 300 keV berechnet, da geringere Energien für die Abbrandmessung nicht in Frage kommen.

4.2.3. Berechnung der γ -Spektren

Die Berechnung eines γ -Spektrums besteht aus den beiden Teilbereichen Simulation der Comptonstreuung und Konstruktion der Photopeaks. Jedes Nuklid produziert einen oder mehrere Photopeaks und trägt gleichzeitig zum Comptonuntergrund bei /37-41/. In SPECCALC sind beide Teilbereiche nahezu vollständig voneinander getrennt, wodurch auch eine Aussage ausschließlich über den bei der Messung zu erwartenden Comptonuntergrund möglich ist.

4.2.3.1. Berechnung des Comptonuntergrundes

Das Unterprogramm COMPTON berechnet für jede berücksichtigte γ -Linie die zugehörige Verteilung des Comptonuntergrundes.

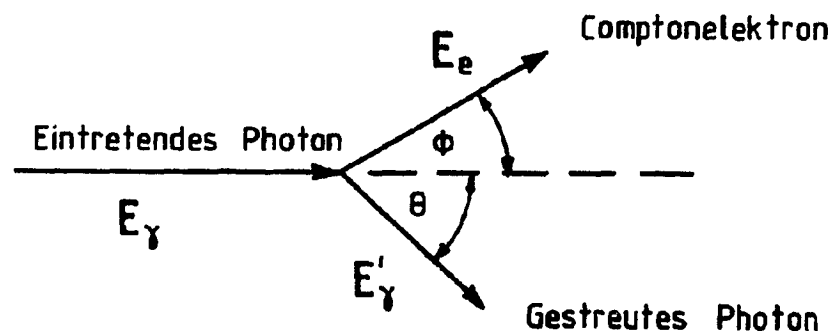


Abb. 23. Bezeichnung der Winkel bei der Comptonstreuung

Zunächst wird die Lage der Comptonkante berechnet. Verläßt ein Photon nach einer Comptonstreuung das Detektorvolumen, so kann nur der an das Detektormedium übertragene Teil der Photonenergie nachgewiesen werden. Bei einer Rückstreuung des Photons ist der Energieübertrag maximal, wodurch die gesuchte Comptonkante festgelegt ist. Legt man die Bezeichnungen der Abb. 23 zugrunde, so läßt sich die Energie der Comptonkante E_{Compton} nach folgender Gleichung ermitteln:

$$E_{\text{Compton}} = E_\gamma \cdot \left[1 - \frac{1}{1 + 2\alpha} \right]$$

$$\alpha = \frac{E_\gamma}{m_0 \cdot c^2}$$

α : Energie des ungestreuten Photons bezogen auf die Ruheenergie des Elektrons
 E_γ : Energie des ungestreuten Photons

Nach der Bestimmung der Lage der Comptonkante erfolgt in einem zweiten Schritt die Simulation der zum jeweiligen Photopeak gehörenden Verteilungsfunktion des Comptonuntergrundes.

Die bei der Comptonstreuung an das Elektron übertragene Energie ist eine Funktion des Streuwinkels. Die Wahrscheinlichkeit der Streuung um einen bestimmten Winkel wird durch den differentiellen Wirkungsquerschnitt beschrieben, d.h. der Anzahl der mit einer bestimmten Energie gestreuten Elektronen. Die Wirkungsquerschnitt kann mittels der Quantenelektrodynamik berechnet und durch folgende Gleichung beschrieben werden /37/ :

$$\frac{d\sigma}{dE_{\text{Elektron}}} = \frac{2 \cdot \pi}{\alpha \cdot E_\gamma} \cdot k(\theta) \cdot \left[\frac{(1 + \alpha)^2 - \alpha^2 \cdot \cos^2 \phi}{(1 + \alpha)^2 - \alpha \cdot (2 + \alpha) \cdot \cos^2 \phi} \right]^2$$

Hierin ist α die auf die Ruheenergie eines Elektrons bezogene Photonenenergie, r_0 der Elektronenradius und $k(\theta)$ der Wirkungsquerschnitt für die Anzahl der Photonen, die um den Winkel θ gestreut werden:

$$k(\theta) = \frac{r_0^2}{2} \cdot \left[\frac{1}{[1 + \alpha \cdot (1 - \cos \theta)]^2} \cdot \left[1 + \cos^2 \theta + \frac{\alpha^2 \cdot (1 - \cos \theta)^2}{[1 + \alpha \cdot (1 - \cos \theta)]} \right] \right]$$

Abb. 24 auf Seite 54 zeigt den Verlauf der mit diesen Gleichungen berechneten Energieverteilung der Elektronen für verschiedene Energien des eintretenden Photons.

Mit Hilfe dieser Funktion berechnet SPECCALC für jede γ -Linie den Verlauf des zugehörigen Comptonuntergrundes. Um den einzelnen Kanälen hierbei absolute Impulszahlen zuordnen zu können, muß mindestens ein Punkt der Verteilungsfunktion bekannt sein. Aus diesem Grunde wird die Verteilungsfunktion zunächst so normiert, daß der Wirkungsquerschnitt bei der Energie der Comptonkante gleich eins ist. Die zugehörige Zählrate wird mit Hilfe des Peak/Compton-Verhältnisses berechnet. Dieses kann der Gerätespezifikation entnommen werden und gibt das Verhältnis der Höhe eines Photopeaks und der zugehörigen Comptonkante an.

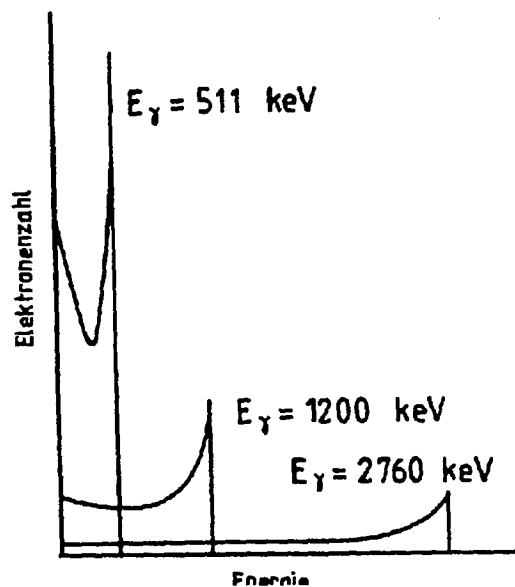


Abb. 24. Verlauf des Comptonuntergrundes eines γ -Spektrums

Durch Multiplikation der berechneten Höhe der Comptonkante mit der Verteilungsfunktion erhält man den zum Photopeak gehörenden Comptonuntergrund. Durch die Addition der Beiträge aller Nuklide in den einzelnen Kanälen entsteht somit der Comptonuntergrund eines γ -Spektrums.

Mit Hilfe der zuvor aufgeführten Verteilungsfunktion kann nur eine einfache Comptonstreuung beschrieben werden. Durch Mehrfachstreuung entsteht zwischen dem Photopeak und der zugehörigen Comptonkante ein weiteres Kontinuum, welches mit Hilfe einer zusätzlichen Exponentialfunktion berücksichtigt wird /42-44/.

4.2.3.2. Simulation des Raumuntergrundes

Unter dem Begriff Raumuntergrund werden in dieser Arbeit die folgenden Effekte zusammengefaßt, die sich bei der Aufnahme eines γ -Spektrums störend bemerkbar machen:

1. Auch im bestimmungsgemäßen Betrieb eines HTR erfolgt eine geringfügige Freisetzung von Spaltprodukten, insbesondere Edelgasen, in den Primärkreis. Von dort wird ein Teil der Spaltprodukte in den Meßraum gelangen.
2. Aufgrund der vielfältigen Abschirmungen kommt es zum Auftreten von Streustrahlungseffekten.
3. Beim HTR-Modul beträgt die Taktzeit bei der Abbrandmessung etwa 16 Sekunden, das bedeutet alle 16 Sekunden rollt ein BE in Meßposition. Die BE befinden sich vor der Zugabe in die Meßposition in einer Pufferstrecke, die in unmittelbarer Nähe des Meßraumes angeordnet ist. Die von dort ausgehende Strahlung trägt ebenfalls zum Raumuntergrund bei.

Es ist zu erwarten, daß alle diese Effekte beim Betrieb des HTR-Modul-Reaktors nur eine untergeordnete Rolle spielen, da bauliche Maßnahmen zur Minimierung vorgesehen sind (z.B. geeignete Abschirmungen und Anordnung eines Kollimators zwischen Detektor und BE). Dennoch ist in SPECALC ein Unterprogramm implementiert, daß den Raumuntergrund prozentual zu den Aktivitäten aller berücksichtigten Nuklide berechnen kann. Hierbei wird davon ausgegangen, daß im gesamten Energiebereich unterhalb des betreffenden Photopeaks eine konstante Impulsrate als Raumuntergrund vorhanden ist.

4.2.3.3. Konstruktion der Photopeaks

Zur Konstruktion der Photopeaks, die durch eine modifizierte Gaußverteilung beschrieben werden, benötigt das Programmsystem für jedes Nuklid alle möglichen Photonenergien mit den zugehörigen Übergangswahrscheinlichkeiten (diese sind in der Nuklidbibliothek zusammengefaßt), alle mit HTROGEN berechneten Aktivitäten (diese sind für einen bestimmten Abbrandzustand und eine festgelegte Abklingzeit charakteristisch) und die gesamten Kalibrierungsdaten.

Für die Lage jedes einzelnen Peaks wird dann zunächst mit Hilfe der Energiekalibrierungsfunktion die zugehörige Kanalzahl ermittelt. Die Peaknettofläche wird durch Multiplikation der eingelesenen Nuklidaktivität mit den zur entsprechenden Photolinie gehörenden Werten für die Übergangs- und Nachweiswahrscheinlichkeit sowie mit der zu simulierenden Meßzeit nach folgender Gleichung berechnet:

$$F = A \cdot p_{\gamma} \cdot NWW \cdot t$$

A : *Nuklidaktivität*
 p_{γ} : *Gammaübergangswahrscheinlichkeit*
 NWW : *energieabhängige Nachweiswahrscheinlichkeit*
 t : *simulierte Meßzeit*

Die Peaknettofläche entspricht der Fläche unterhalb der modifizierten Gaußverteilung und damit gleichzeitig auch der im Detektor in der vorgegebenen Meßzeit zu erwartenden Impulsrate.

Die mathematische Erfassung der Photopeaks erfolgt somit durch die beiden folgenden Verteilungsfunktionen:

$$f(x) = \begin{cases} H \cdot \exp \left[-\frac{1}{2} \cdot \frac{(x - L)^2}{\sigma^2} \right] & \text{für } x > T \\ H \cdot \exp \left[\frac{T}{\sigma^2} \cdot (x - L + 0.5 \cdot T) \right] & \text{für } x \leq T \end{cases}$$

H : *Höhe des Photopeaks*
 L : *Lage des Photopeaks*
 T : *Lage des Tailingparameters*
 σ : *Standardabweichung*

Alle Parameter mit Ausnahme der Peakhöhe sind bekannt. Da aber die Peakfläche unter der modifizierten Gaußverteilung der berechneten Peaknettofläche entsprechen muß, wird bei der Simulation der zu den AVR-BE gehörenden γ -Spektren ausgehend von einem Startwert die Höhe des Photopeaks iterativ bestimmt. Als Konvergenzkriterium dient hierbei die Abweichung der Fläche unter dem Photopeak von der berechneten Peaknettofläche.

Das Ergebnis des Iterationsprozesses ist die vollständige Beschreibung der Photopeaks. Die Werte dieser Verteilungsfunktion werden in einem weiteren Schritt den einzelnen Kanälen zugeordnet. Wiederholt man dieses Schema für alle Nuklide, so erhält man die gesuchte rechnerische Simulation des γ -Spektrums.

4.2.4. Ausgabe in graphischer und numerischer Form

Zur Kontrolle der Berechnungen erfolgt standardmäßig die Ausgabe der wichtigsten Eingabedaten. Im einzelnen sind dies die mit HTROGEN berechneten Nuklidaktivitäten mit dem zugehörigen theoretischen Abbrandzustand des fiktiven BE, die gesamten Kalibrierungsdaten, die vorgegebene Abklingzeit und die simulierte Meßzeit. Ebenfalls angegeben werden in einem weiteren Protokoll die Lagen und Höhen aller berücksichtigten Photopeaks.

Im graphischen Ausgabeteil wird das gesamte konstruierte Spektrum oberhalb einer Energie von 300 keV ausgegeben. Das Programmsystem SPECCALC ist derart ausgelegt, daß bei Zugrundelegung einer anderen Aufgabenstellung auch der Energiebereich unterhalb 300 keV simuliert werden kann. Da dies jedoch insbesondere bei der Kalibrierungssimulation mit einem erheblichen Mehraufwand verbunden und dieser Energiebereich für die Abbrandmessung nicht von Bedeutung ist, wurde auf diese Möglichkeit bewußt verzichtet.

5. Berechnungen mit den Programmen HTR-2000 und SPECALC

Alle in der vorliegenden Arbeit durchgeführten Berechnungen mit dem Programmsystem HTR-2000 erfolgten unter Zugrundelegung der AVR-Corekonfiguration, da die Modellierung des HTR-Modul-Reaktors bislang noch nicht erfolgt ist.

Der AVR diente u.a. als Testbett für neu entwickelte Brennelemente. Daher wurde im Laufe seiner Betriebszeit eine Reihe unterschiedlicher BE-Typen eingesetzt. Dem Modul-BE sehr ähnlich ist ein BE-Typ (GLE-3), der dem AVR-Reaktor von Mitte 1982 bis Ende 1983 zugegeben wurde. In diesem Zeitraum wurden insgesamt 24611 BE /45/ dieses Typs, dessen Daten in Tab. 11 aufgeführt sind, eingesetzt.

Anzahl zugegebener Brennelemente	24611
Datum der Erstzugabe	28.7.1982
Brennstoff	UO ₂
Anreicherung	10,0 %
Masse Uran ₂₃₅	1 g
Masse Uran ₂₃₈	10 g

Tab. 11. Auslegung des BE-Types GLE-3

Die BE besitzen bei einer Schwermetalleinwaage von 11 g eine U₂₃₅-Anreicherung von 10 %. Als Brennstoff wurde gesintertes UO₂ eingesetzt. Für diesen BE-Typ wurde eine charakteristische Lebensgeschichte unter Berücksichtigung der Reaktorlastzustände, Kühlgastemperaturen usw. nachvollzogen /46/ und in HTR-2000 simuliert, wobei auch die Aufenthaltszeiten im Kugelabzugsrohr, in dem keine Bestrahlung erfolgt, berücksichtigt wurden.

5.1. Validierung des Programmsystems SPECALC

Die Validierung des Programmsystems SPECALC erfolgt durch Simulation der γ -Spektren dreier in den Heißen Zellen (HZ) des Forschungszentrums KFA Jülich GmbH gemessenen BE des AVR-Reaktors, deren Daten in Tab. 12 auf Seite 58 aufgeführt sind /25/.

Während des Betriebes des AVR-Reaktors wurden nach der Abbrandmessung stichprobenartig BE ausgeschleust und zu Kontrollmessungen in die HZ transportiert. Die zur Validierung ausgewählten BE stammen aus der AVR-Stichprobe 85. Als Coreaustrittsdatum wird seitens des Reaktorbetreibers der 15. Juli 1988 angegeben. Die Messungen in den HZ erfolgten im Mai des Jahres 1989.

Von den HZ wurden den BE über die Aktivität des Nuklides Ba-137m Abbrandzustände von 6,50 %, 8,00 % und 9,15 % fima zugeordnet.

Brennelement-Kennzeichnung	BE-4091	BE-4113	BE-4118
AVR-Stichprobe	85	85	85
Datum der Coreentnahme (AVR-Angabe)	15.7.88	15.7.88	15.7.88
Zeitpunkt der Messung (HZ)	9.5.89	12.5.89	16.5.89
Abklingzeit	298 Tage	301 Tage	305 Tage
Messzeit	5022 sec	5033 sec	5026 sec
Aktivität Ba-137m	$7,65 \cdot 10^{10}$ Bq	$1,07 \cdot 10^{11}$ Bq	$9,39 \cdot 10^{10}$ Bq
Aktivität Cs-134	$5,05 \cdot 10^{10}$ Bq	$9,03 \cdot 10^{10}$ Bq	$7,45 \cdot 10^{10}$ Bq
Aktivität Zr-95	$2,91 \cdot 10^{11}$ Bq	$2,16 \cdot 10^{11}$ Bq	$2,48 \cdot 10^{11}$ Bq
Aktivität Ru-106	$1,59 \cdot 10^{11}$ Bq	$1,77 \cdot 10^{11}$ Bq	$1,73 \cdot 10^{11}$ Bq
Aktivität Ce-144	$4,03 \cdot 10^{11}$ Bq	$2,61 \cdot 10^{11}$ Bq	$3,25 \cdot 10^{11}$ Bq
Aktivität Eu-154	$1,88 \cdot 10^{09}$ Bq	$3,22 \cdot 10^{09}$ Bq	$2,91 \cdot 10^{09}$ Bq
zugeordneter Abbrand (HZ)	6,50 % fima	9,15 % fima	8,00 % fima

Tab. 12. Wichtige Daten der Validierungsbrennelemente

Basierend auf der charakteristischen Lebensgeschichte wurden mit HTR-2000 Datensätze erstellt, die den Nuklidvektor der BE als Funktion des Abbrandes beschreiben. Da es nicht möglich ist, eine lückenlose Information bereitzustellen und zu speichern, wurden für bestimmte Abbrandzustände Datensätze erstellt (RESTART-Dateien), von denen eine neue Berechnung ausgehen kann und die Nuklidvektoren zum Zeitpunkt der Entnahme berechnet werden können.

Das Abklingen der BE wurde mit dem Programm ORIGEN simuliert. Durch die vergleichsweise lange Abklingzeit von etwa 300 Tagen sind kurzlebige Spaltprodukte bereits weitgehend zerfallen, so daß das γ -Spektrum einen einfachen und übersichtlichen Aufbau zeigt, der für die Validierung des Programmsystems von Vorteil ist. Eine Auswahl der mit HTROGEN berechneten Nuklidaktivitäten nach 300 Tagen Abklingzeit ist in Tab. 13 auf Seite 59 zusammengestellt.

In einem weiteren Schritt werden mittels des Programmes SPECCALC unter Zugrundelegung der Kalibrierungsdaten der Meßeinrichtung in den HZ die γ -Spektren der BE konstruiert.

Einen Vergleich der simulierten und in den HZ gemessenen Spektren zeigen Abb. 25 auf Seite 60, Abb. 26 auf Seite 61 und Abb. 27 auf Seite 62 für den Energiebereich von 600 keV bis 900 keV.

Nuklidaktivität	BE-4091	BE-4113	BE-4118
Kr-85	$7,25 \cdot 10^{09}$ Bq	$9,33 \cdot 10^{09}$ Bq	$8,55 \cdot 10^{09}$ Bq
Sr-89	$9,95 \cdot 10^{09}$ Bq	$8,60 \cdot 10^{09}$ Bq	$5,95 \cdot 10^{09}$ Bq
Y-90	$6,31 \cdot 10^{10}$ Bq	$8,43 \cdot 10^{10}$ Bq	$7,61 \cdot 10^{10}$ Bq
Y-91	$1,98 \cdot 10^{10}$ Bq	$1,72 \cdot 10^{10}$ Bq	$1,26 \cdot 10^{10}$ Bq
Zr-95	$3,52 \cdot 10^{10}$ Bq	$3,15 \cdot 10^{10}$ Bq	$2,38 \cdot 10^{11}$ Bq
Nb-95	$6,55 \cdot 10^{10}$ Bq	$6,55 \cdot 10^{10}$ Bq	$5,01 \cdot 10^{10}$ Bq
Nb-95m	$4,47 \cdot 10^{08}$ Bq	$4,00 \cdot 10^{08}$ Bq	$3,02 \cdot 10^{08}$ Bq
Ru-103	$3,21 \cdot 10^{09}$ Bq	$3,15 \cdot 10^{09}$ Bq	$1,60 \cdot 10^{09}$ Bq
Ru-106	$9,71 \cdot 10^{10}$ Bq	$1,19 \cdot 10^{11}$ Bq	$1,08 \cdot 10^{11}$ Bq
Ag-110m	$1,06 \cdot 10^{08}$ Bq	$3,68 \cdot 10^{06}$ Bq	$1,82 \cdot 10^{08}$ Bq
Sn-126	$2,73 \cdot 10^{05}$ Bq	$4,28 \cdot 10^{05}$ Bq	$3,61 \cdot 10^{05}$ Bq
Sb-124	$1,71 \cdot 10^{06}$ Bq	$3,77 \cdot 10^{06}$ Bq	$1,80 \cdot 10^{06}$ Bq
Sb-125	$3,42 \cdot 10^{09}$ Bq	$4,53 \cdot 10^{09}$ Bq	$4,08 \cdot 10^{09}$ Bq
Sb-126	$3,82 \cdot 10^{04}$ Bq	$6,60 \cdot 10^{04}$ Bq	$5,05 \cdot 10^{04}$ Bq
Sb-126m	$2,73 \cdot 10^{05}$ Bq	$4,28 \cdot 10^{05}$ Bq	$3,61 \cdot 10^{05}$ Bq
Cs-134	$2,83 \cdot 10^{10}$ Bq	$5,95 \cdot 10^{10}$ Bq	$4,49 \cdot 10^{10}$ Bq
Ba-137m	$6,68 \cdot 10^{10}$ Bq	$9,35 \cdot 10^{10}$ Bq	$8,26 \cdot 10^{10}$ Bq
Ba-140	$9,49 \cdot 10^{04}$ Bq	$7,23 \cdot 10^{04}$ Bq	$1,03 \cdot 10^{04}$ Bq
Ce-141	$1,42 \cdot 10^{09}$ Bq	$1,23 \cdot 10^{09}$ Bq	$5,63 \cdot 10^{08}$ Bq
Ce-144	$3,93 \cdot 10^{11}$ Bq	$3,12 \cdot 10^{11}$ Bq	$3,44 \cdot 10^{11}$ Bq
Pr-144	$3,93 \cdot 10^{11}$ Bq	$3,21 \cdot 10^{11}$ Bq	$3,44 \cdot 10^{11}$ Bq
Pm-148	$8,44 \cdot 10^{06}$ Bq	$8,46 \cdot 10^{06}$ Bq	$4,19 \cdot 10^{06}$ Bq
Pm-148m	$1,22 \cdot 10^{08}$ Bq	$1,23 \cdot 10^{08}$ Bq	$6,08 \cdot 10^{07}$ Bq
Eu-152	$3,44 \cdot 10^{06}$ Bq	$3,04 \cdot 10^{06}$ Bq	$2,80 \cdot 10^{06}$ Bq
Eu-154	$1,88 \cdot 10^{09}$ Bq	$4,25 \cdot 10^{09}$ Bq	$3,15 \cdot 10^{09}$ Bq

Tab. 13. Mit HTROGEN berechnete Nuklidaktivitäten der Validierungs-BE nach 300 Tagen Abklingzeit

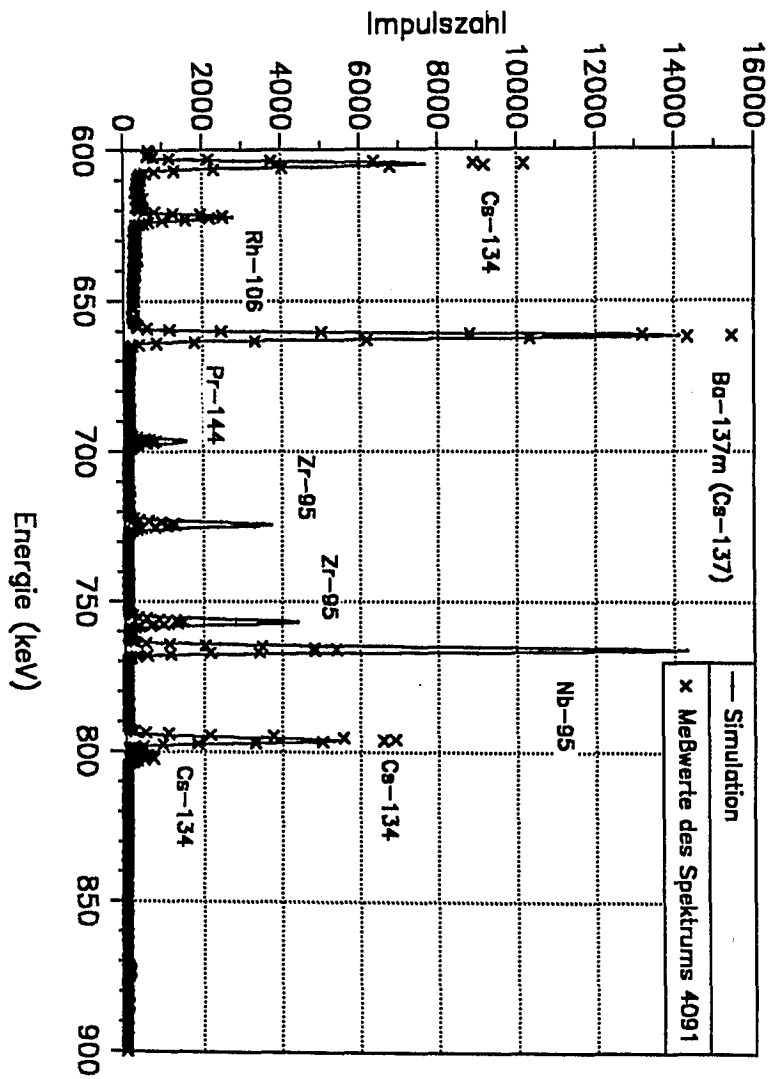


Abb. 25. Berechnetes γ -Spektrum des BE-4091 nach einer Abklingzeit von 300 Tagen

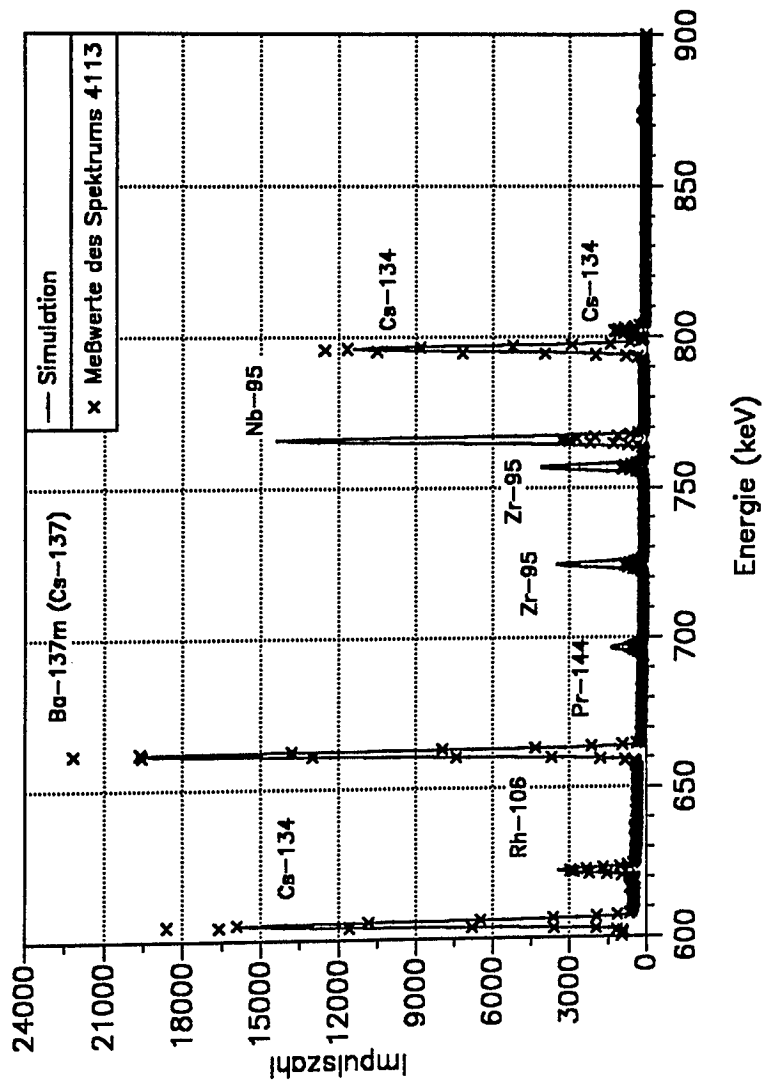


Abb. 26. Berechnetes γ -Spektrum des BE-4113 nach einer Abklingzeit von 300 Tagen

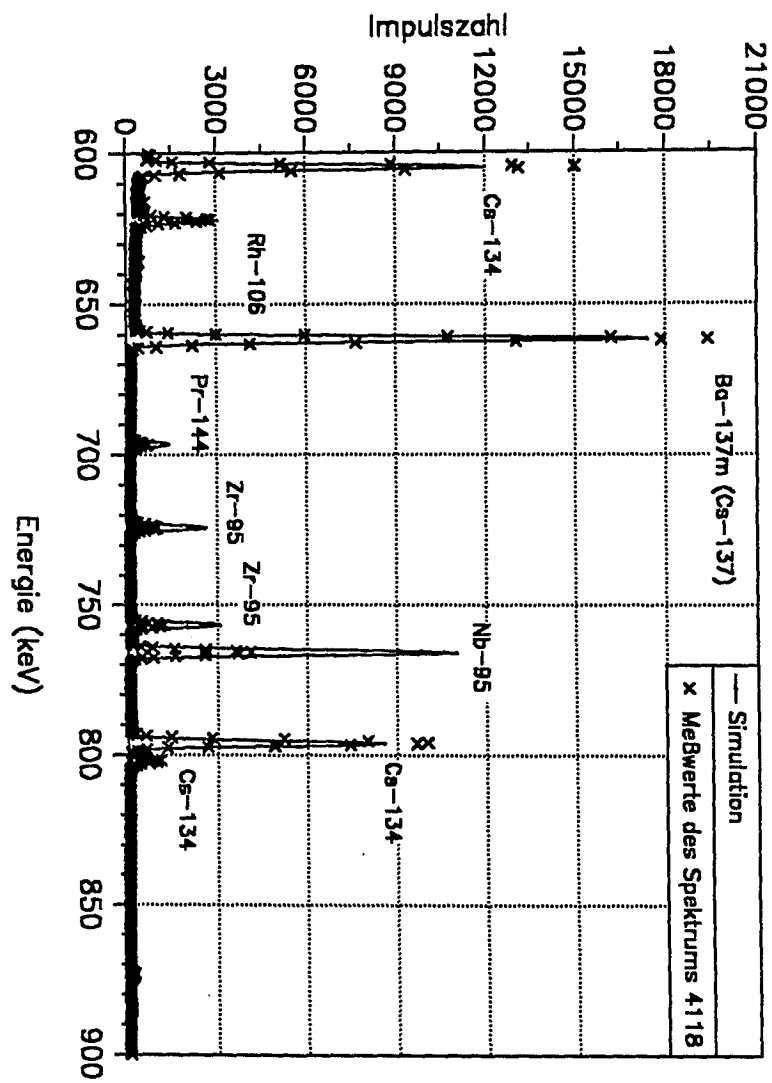


Abb. 27. Berechnetes γ -Spektrum des BE-4118 nach einer Abklingzeit von 300 Tagen

In allen drei Abbildungen ist zu erkennen, daß die gemessenen Spektren durch die Simulation nur unzureichend beschrieben werden. Die Photopeaks der Nuklide Ba-137m und Cs-134 sind in der Simulation zu klein, die der Nuklide Pr-144, Zr-95 und Nb-95 weisen hingegen deutlich überhöhte Werte auf.

Eine genauere Untersuchung der Ergebnisse zeigt, daß die mittels HTROGEN für die vorgegebenen Abbrandzustände berechneten Aktivitäten des Nuklides Ba-137m geringer sind als gemessen. Dies läßt den Schluß zu, daß die Zuordnung von Abbrand und Ba-137m-Aktivität in den HZ und in HTR-2000 nach verschiedenen Methoden erfolgt. In HTR-2000 werden den jeweiligen BE-Abbränden offensichtlich geringere Ba-Aktivitäten zugeordnet.

Unter der Voraussetzung, daß die Erfassung der Aktivitäten in den Heißen Zellen fehlerfrei erfolgte (dies ist unter Berücksichtigung der langjährigen Erfahrung als gesichert anzusehen), werden die simulierten Abbrände derart erhöht, daß die gemessenen und rechnerisch bestimmten Ba-137m-Aktivitäten übereinstimmen. Hieraus folgt, daß die Validierungsbrennelemente höhere Abbrände aufweisen als die in den HZ ermittelten.

Bei sonst unveränderten Randbedingungen wurden die Berechnungen für Abbrandzustände von 7,4 % (BE-4091), 9,2 % (BE-4118) und 10,5 % (BE-4113) wiederholt. Die zugehörigen Spektren zeigen Abb. 28 auf Seite 64, Abb. 29 auf Seite 65 und Abb. 30 auf Seite 66.

Man erkennt in allen drei Fällen eine deutlich bessere Übereinstimmung der Simulationsergebnisse und der gemessenen Spektren für das Nuklid Ba-137m. Auch die Werte des Nuklides Cs-134 werden in dieser Rechnung bereits besser erfaßt, sind jedoch noch nicht ausreichend. Die Simulation aller übrigen Nuklide ist weiterhin unbefriedigend.

Die Nuklide Cs-134 und Ba-137m weisen beide, entweder direkt (Cs-134) oder über ihr Mutternuklid (Ba-137m) eine sehr große Halbwertszeit auf, während die übrigen Nuklide eine, verglichen mit der angegebenen Abklingzeit, kurze Halbwertszeit besitzen.

Dies läßt darauf schließen, daß die angegebene Abklingzeit der BE zu gering ist. Eine Überprüfung der AVR-Betriebsdaten /47/ zeigt, daß unmittelbar vor dem angegebenen Coreaustritt der BE eine mehrmonatige Abschaltpause zu verzeichnen war, die lediglich durch einen kurzen Teillastbetrieb (etwa 10 % Dampferzeugerleistung) zur Durchführung einer Störfallsimulation unterbrochen wurde. Abb. 31 auf Seite 67 zeigt den zeitlichen Verlauf der Dampferzeugerleistung in den Monaten Januar bis Juli 1988.

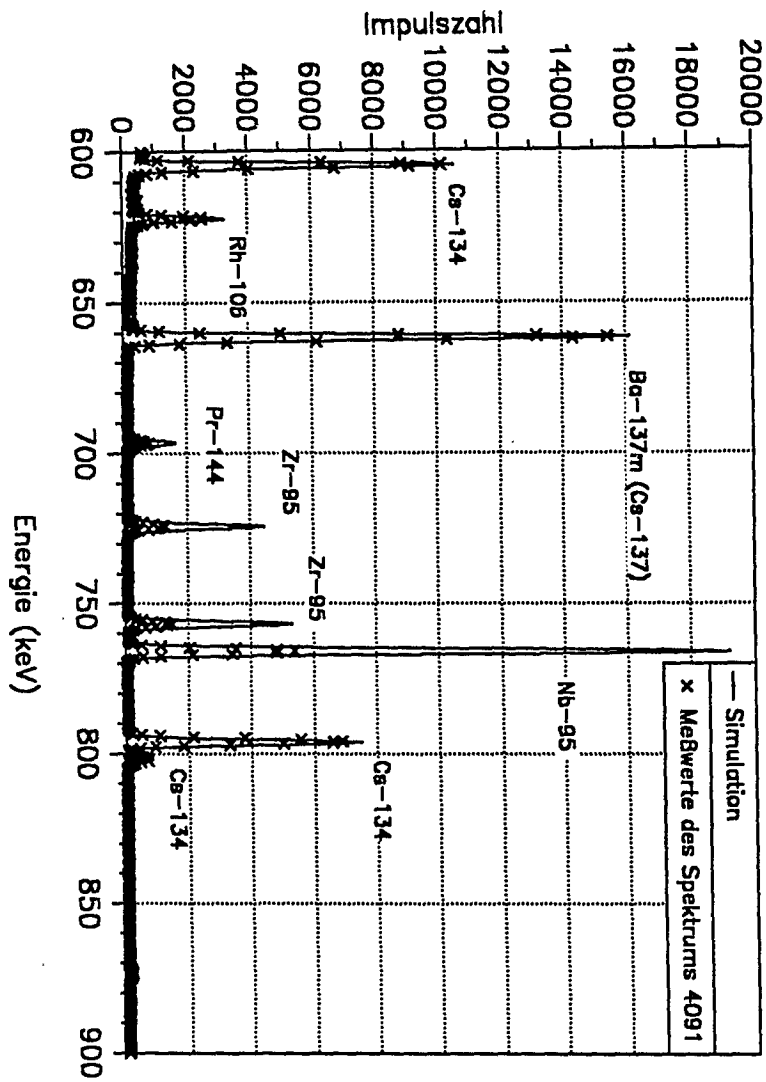


Abb. 28. Berechnetes γ -Spektrum eines BE mit einem Abbrand von 7,4 % nach 300 Tagen Abklingzeit

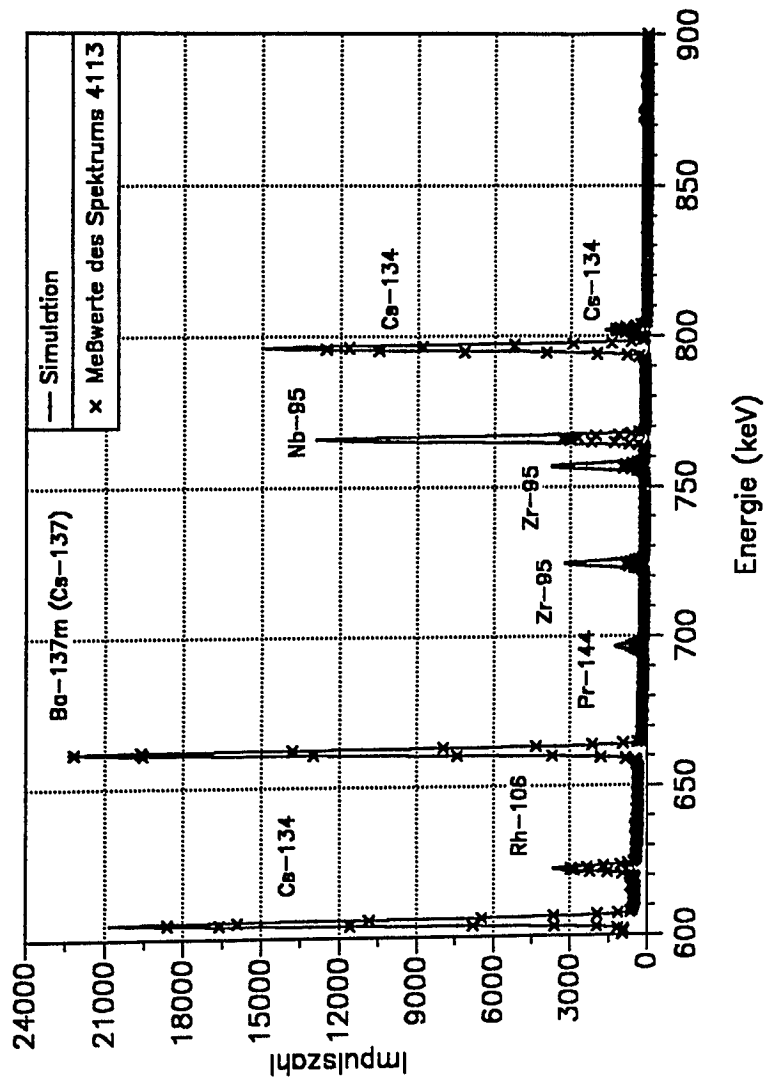


Abb. 29. Berechnetes γ -Spektrum eines BE mit einem Abbrand von 10,5 % nach 300 Tagen Abklingzeit

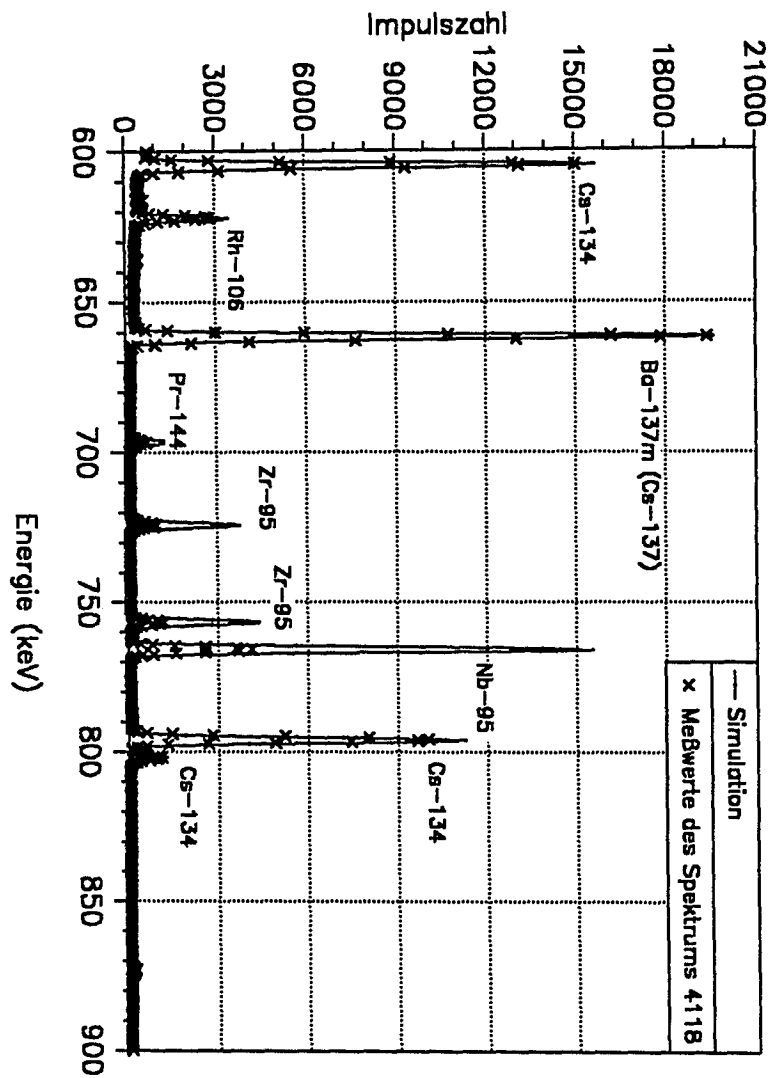


Abb. 30. Berechnetes γ -Spektrum eines BE mit einem Abbrand von 9,2 % nach 300 Tagen Abklingzeit

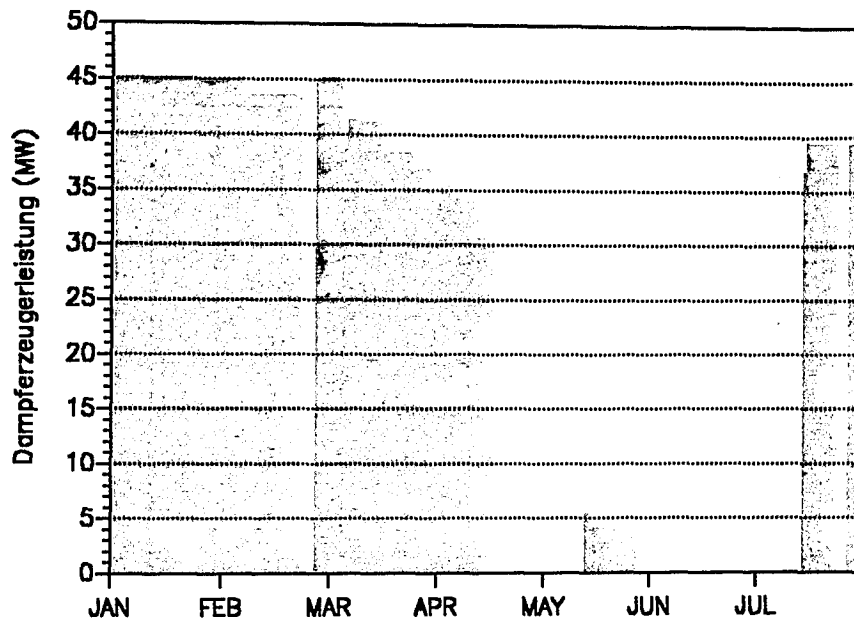


Abb. 31. Dampferzeugerleistung des AVR-Reaktors im Zeitraum Januar bis Juli 1988

Der AVR-Reaktor ging am 13.7.1988, also zwei Tage vor dem angegebenen Coreaustrittsdatum der BE, wieder in Leistungsbetrieb. Berücksichtigt man, daß der Coreaustritt einzelner BE anhand der täglich umgewälzten Kugelzahlen nur ungenau bestimmt werden kann, so ist zu vermuten, daß die BE sich zum Zeitpunkt des Wiederanfahrens des Reaktors bereits im Kugelabzugsrohr befanden und folglich dem Neutronenfluß nicht mehr ausgesetzt waren. Unter Vernachlässigung des zweiwöchigen Teillastbetriebes im Mai 1988 ergibt sich somit eine Verlängerung der BE-Abklingzeit um 87 Tage.

Aus diesem Grunde wurde die Simulation mit einer Abklingzeit von 400 Tagen wiederholt. Die Ergebnisse dieser Berechnungen zeigen Abb. 32 auf Seite 68, Abb. 33 auf Seite 69 und Abb. 34 auf Seite 70.

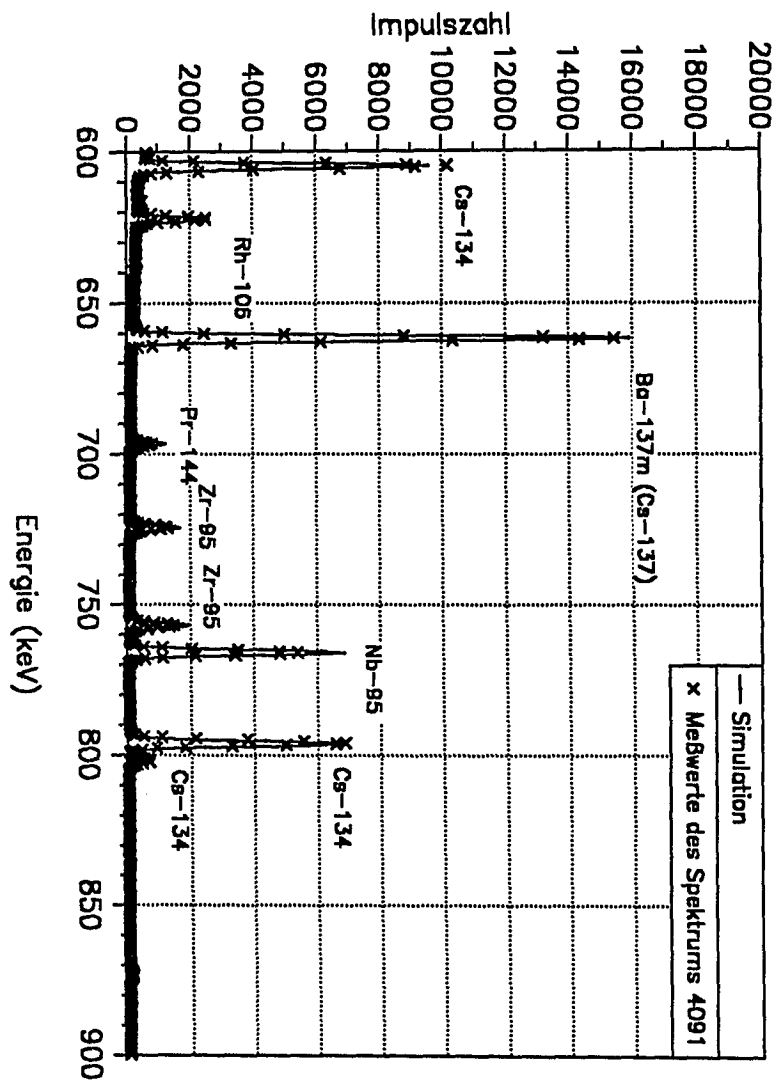


Abb. 32. Berechnetes γ -Spektrum eines BE mit einem Abbrand von 7,4 % nach 400 Tagen Abklingzeit

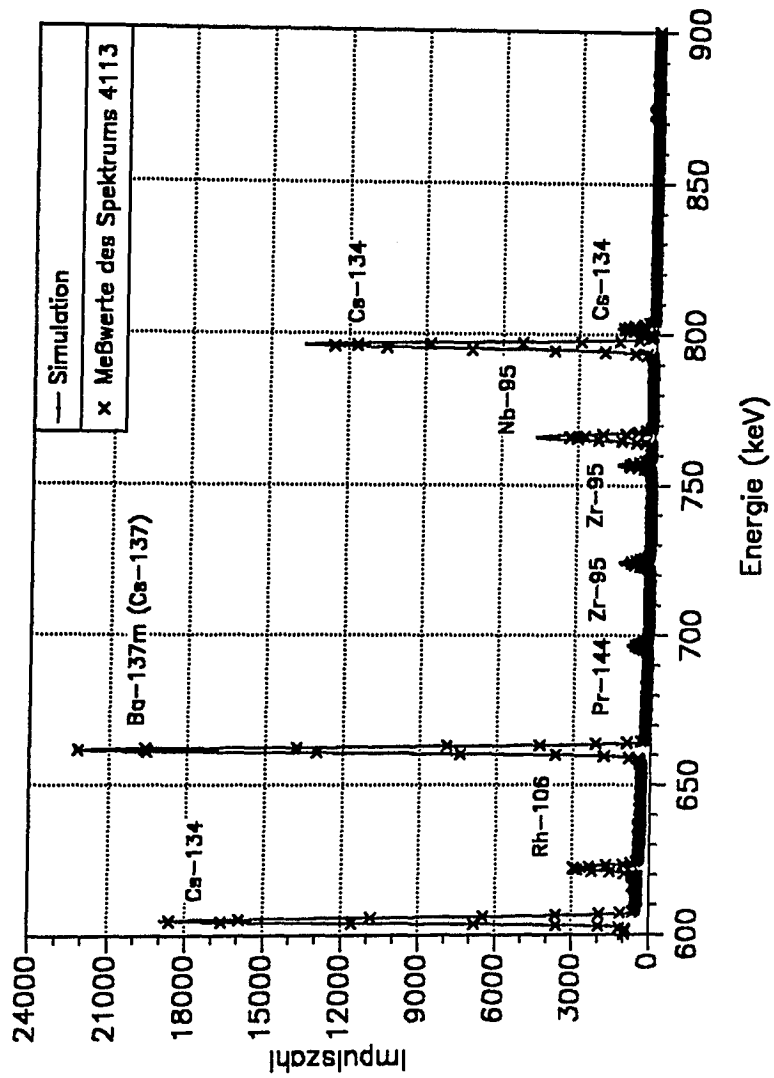


Abb. 33. Berechnetes γ -Spektrum eines BE mit einem Abbrand von 10,5 % nach 400 Tagen Abklingzeit

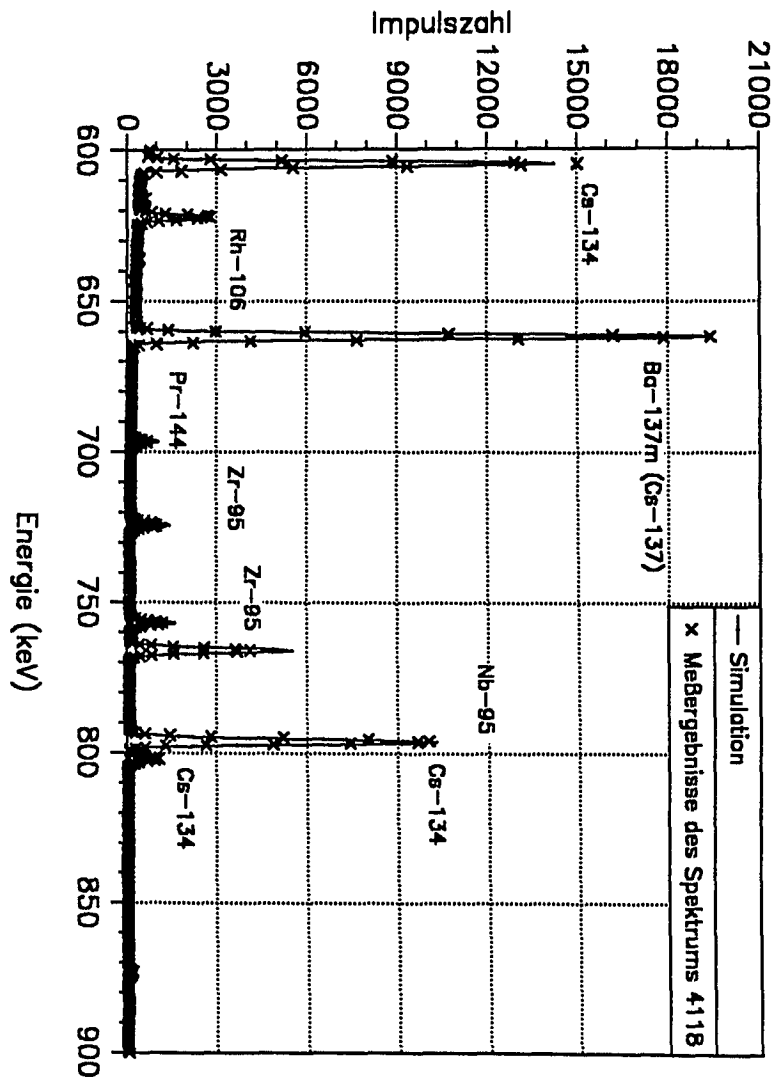


Abb. 34. Berechnetes γ -Spektrum eines BE mit einem Abbrand von 9,2 % nach 400 Tagen Abklingzeit

BE-4091 und BE-4118 weisen nun in der Simulation sehr gut übereinstimmende Ba-137m sowie etwas zu geringe Cs-134-Aktivitäten auf (die tatsächliche Abklingzeit ist demzufolge etwas kleiner als 400 Tage). Dies zeigt deutlich, daß die Verlängerung der Abklingzeit um nahezu 100 Tage beim Nuklid Cs-134 nicht vernachlässigt werden kann, während sie sich beim Ba-137m kaum bemerkbar macht. Dies zeigt sich in noch stärkerem Maße bei den vergleichsweise kurzlebigen Nukliden Pr-144, Zr-95 und Nb-95, die nun wesentlich besser beschrieben werden.

Bei der Simulation des Spektrums 4113 wurde der Abbrand über die Ba-137m-Aktivität sehr gut beschrieben, während die Abklingzeit des BE größer als 400 Tage zu sein scheint, da die Aktivität des Nuklides Cs-134 zu hoch ist. Dies bestätigt erneut, daß die exakte Bestimmung des BE-Coreaustrittsdatums nicht möglich ist. Vielmehr sollte man sich darauf beschränken, Angaben bezüglich der BE-Entnahme aus dem Kugelabzugsrohr (KAZR) zu machen, da lediglich dieser Zeitpunkt dem Betreiber bekannt ist.

Insgesamt ist die Übereinstimmung zwischen Simulation und Messung äußerst zufriedenstellend. Dies gilt sowohl für kurzlebige Nuklide als auch für die bei der Detektion des Abbrandzustandes wichtigen Nuklide Ba-137m und Cs-134. Die Kombination der Rechenprogramme HTR-2000, ORIGEN und SPECCALC ist somit in der Lage, die während des Betriebes eines Hochtemperaturreaktors in den BE auftretenden Veränderungen der Nuklidzusammensetzung zu beschreiben und die zugehörigen γ -Spektren zu konstruieren.

Die durch die Konstruktion der Spektren nachgewiesene Abschaltpause, die zuvor nicht berücksichtigt wurde, beweist die Leistungsfähigkeit und die Empfindlichkeit dieses Programmpaketes.

5.2. Simulation von γ -Spektren als Funktion des Abbrandes

Im Anschluß an die Validierung des Programmsystems wurde in einem zweiten Berechnungsgang eine Parameterstudie durchgeführt, mit der die Nuklidkonzentrationen in einem GLE-3-BE als Funktion des Abbrandzustandes detailliert betrachtet wurden.

Da eine Simulation der beim HTR-Modul zu erwartenden Spektren beabsichtigt war, wurden alle übrigen Parameter weitestgehend den Verhältnissen am HTR-Modul-Reaktor angepaßt.

Der Zielabbrand der BE beträgt dort 80000 MWd/t ($\sim 9\%$ fima). Pro Coredurchlauf (insgesamt 15) nimmt der Abbrand somit im Mittel um etwa 5000 MWd/t zu. Die Berechnung erfolgte für BE mit Abbränden von 0,5 MWd/t bis 10 MWd/t mit einer Schrittweite von 0,5 MWd/t, so daß insgesamt 20 Abbrandzustände in der Simulation erfaßt wurden.

Die dem Programm ORIGEN vorgegebene Abklingzeit der BE nach der Entnahme aus dem Core wurde auf 55 Stunden festgelegt, was exakt dem Modulkonzept entspricht. Aus diesem Grunde müssen alle Nuklide mit Halbwertszeiten von mehr als fünf Stunden berücksichtigt werden, sofern sie über γ -Linien ausreichender Intensität im Energiebereich oberhalb von 300 keV verfügen.

Die Simulation der Detektorkalibrierung erfolgte mit den aus den Validierungsrechnungen bekannten Daten der Meßeinrichtung in den HZ. Der Berechnung wurde eine Meßzeit von zehn Sekunden zugrundegelegt, was in etwa der beim HTR-Modul-Reaktor zu erwartenden Meßzeit entspricht.

Als nachteilig erwies sich, daß aufgrund der in HTR-2000 implementierten, für den AVR-Betrieb charakteristischen, Lebensgeschichte der BE, die Simulation eines kontinuierlichen Abbrennens nicht möglich war. Die wesentlich langsamere Umwälzung der BE im AVR und die damit verbundene längere Aufenthaltszeit im Kugelabzugsrohr verursacht bei einigen Nukliden starke Schwankungen im Aktivitätsverlauf, die auch in den Spektren zu erkennen sind und in dieser Form beim Betrieb eines Modulreaktors nicht auftreten werden.

Ein wesentliches Problem bei der Detektion des Abbrandzustandes am HTR-Modul-Reaktor stellt die kurze Zeitspanne zwischen Coreentnahme und Messung dar. Das γ -Spektrum ist gekennzeichnet durch eine Reihe kurzlebiger Spaltprodukte, die neben einer direkten Überlagerung der zur Messung ausgewählten Photopeaks auch eine deutliche Erhöhung des Comptonuntergrundes bewirken. Aus diesem Grunde sind die Photopeaks der Nuklide Cs-134 und Ba-137m insbesondere bei geringen Abbränden gar nicht oder nur sehr schwer detektierbar. Abb. 35 auf Seite 73, Abb. 36 auf Seite 74 und Abb. 38 auf Seite 75 zeigen die für drei verschiedene Abbrandzustände berechneten Spektren im Energiebereich zwischen 600 keV und 800 keV.

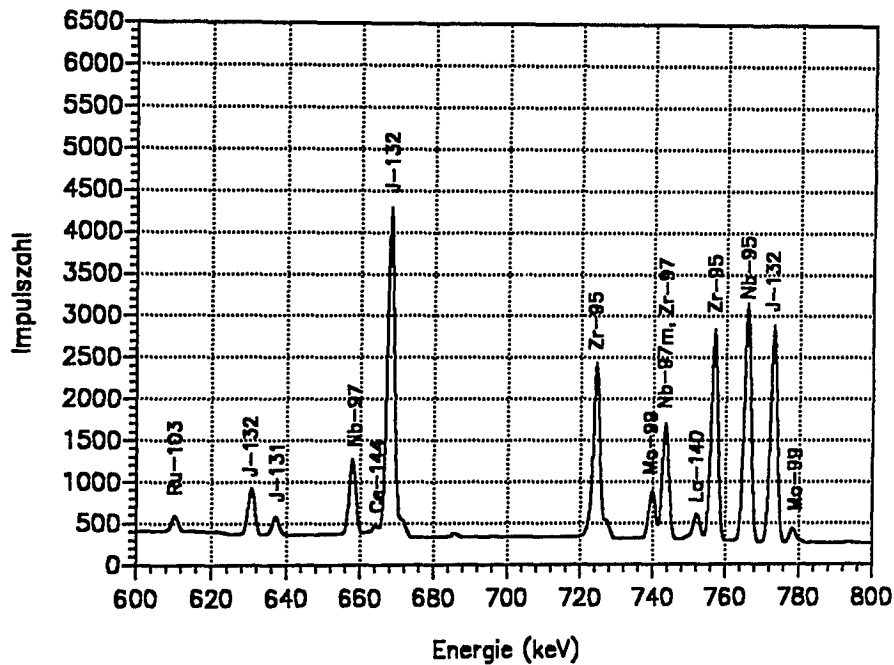


Abb. 35. Berechnetes γ -Spektrum eines BE mit einem Abbrand von 1 % fima

Bei einem Abbrand von 1 % fima sind die für die Abbrandmessung interessanten Photopeaks der Nuklide Cs-134 und Ba-137m noch nicht zu erkennen. Das Spektrum ist geprägt durch verschiedene Isotope der Nuklide Zirkon und Niob sowie durch mehrere γ -Linien des Isotopes J-132.

Bei einem Abbrand von 4 % fima sind die interessierenden Nuklide zwar erkennbar, jedoch nicht besonders stark ausgeprägt. Abb. 37 auf Seite 74 zeigt eine Einzeldarstellung des Cs-134-Photopeaks bei einer Energie von 604,7 keV, aus der zu erkennen ist, daß eine mathematische Bestimmung der Peakfläche zwar prinzipiell möglich ist, jedoch nur mit Hilfe von mathematisch aufwendigen Verfahren. Zudem verursacht das sehr kleine Signal-zu-Untergrund Verhältnis einen großen statistischen Fehler.

Der Photopeak des Ba-137m wird zudem durch die Überlagerung der Nachbarpeaks J-132, Nb-97 und Ce-144 beeinflusst, so daß eine quantitative Aussage mit hinreichender Genauigkeit nicht möglich ist.

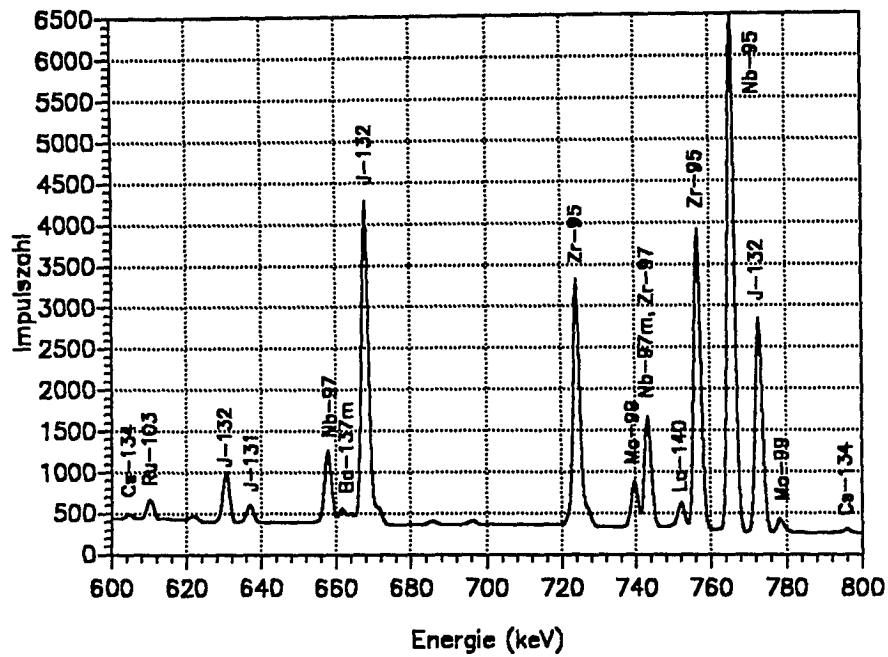


Abb. 36. Berechnetes γ -Spektrum eines BE mit einem Abbrand von 4 % fima

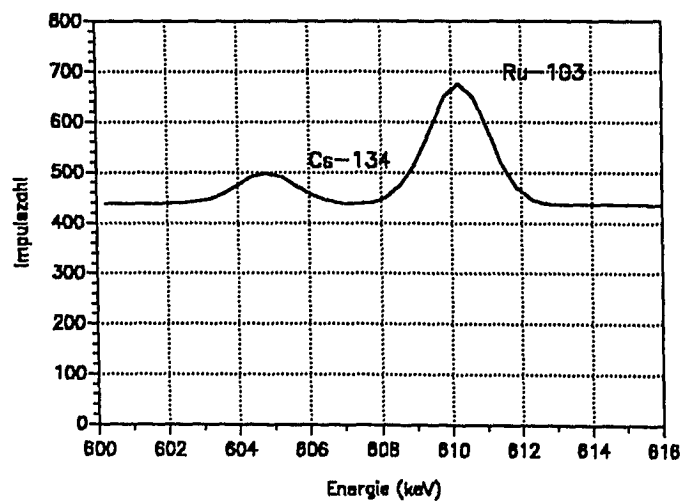


Abb. 37. Einzeldarstellung des Cs-134-Photopeaks (604,7 keV) eines BE mit einem Abbrand von 4 % fima

Beim angestrebten Entnahmeabbrand ist die Detektion und die Auswertung aller Photopeaks dagegen sehr gut möglich. Berücksichtigt man, daß beim HTR-Modul keine Einordnung der BE in bestimmte Abbrandklassen vorgesehen ist, sondern lediglich eine Überprüfung auf den vorgesehenen Zielabbrand von etwa 9 % fima, so kann diese Aufgabe sowohl mit Hilfe des Nuklides Cs-134 als auch über das Nuklid Ba-137m erfüllt werden. Bei beiden Nukliden ist ein kontinuierlicher Anstieg der Aktivität mit dem Abbrand zu verzeichnen.

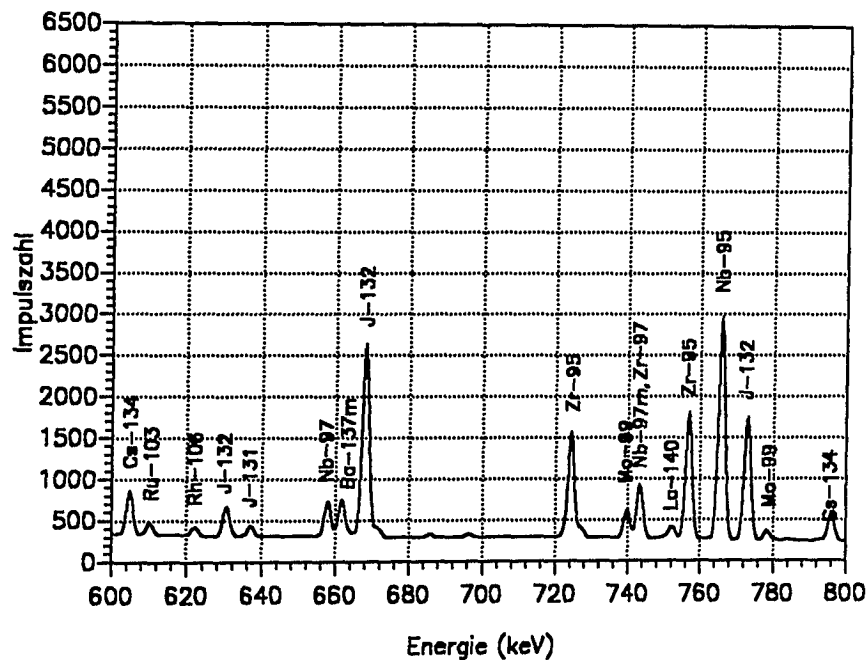


Abb. 38. Berechnetes γ -Spektrum eines BE mit einem Abbrand von 10 % fima

Abb. 39 auf Seite 76 zeigt den Aktivitätsverlauf des Nuklides Cs-134 als Funktion des Abbrandes. Hierbei ist zu beachten, daß dieses Nuklid hauptsächlich durch Neutroneneinfang im Cs-133 gebildet und nur zu einem sehr geringen Teil durch andere Mechanismen produziert wird. Dies hat zur Folge, daß der Aktivitätsanstieg bei geringen Abbränden zunächst nur langsam, mit steigendem Abbrand dagegen schneller erfolgt. Hierdurch ist Cs-134 zur Messung hoher Abbrandzustände besonders geeignet.

Durch längere Abklingzeiten erfolgt zwar eine Reduzierung der Aktivität (bei Abbränden von 4,5 % fima und 7,5 % fima), jedoch ist der Anstieg der Kurve im vorliegenden Fall monoton steigend. Da zudem längere Abklingzeiten beim HTR-Modul-Reaktor im Normalbetrieb nicht zu erwarten sind und somit der Verlustterm infolge radioaktiven Zerfalls vernachlässigbar ist, kann das Nuklid Cs-134 dort zur Abbranddetektion herangezogen werden.

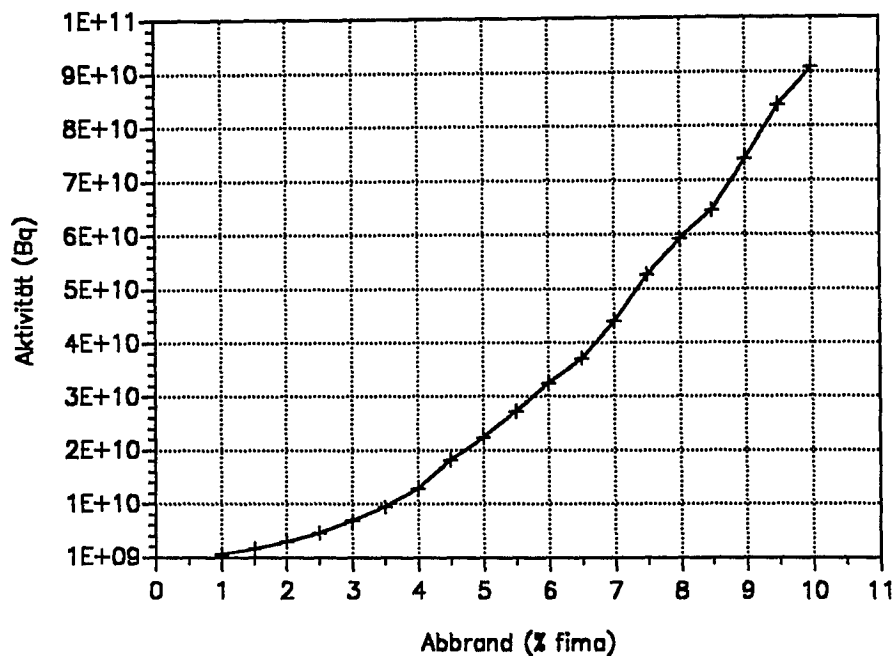


Abb. 39. Berechneter Aktivitätsverlauf des Nuklides Cs-134 als Funktion des Abbrandes

Dies gilt in noch stärkerem Maße für das Nuklid Ba-137m, welches aufgrund der langen Halbwertszeit des Mutternuklides Cs-137, das direkt als Spaltprodukt gebildet wird, einen nahezu linearen Anstieg der Aktivität mit dem Abbrand aufweist (vgl. Abb. 40 auf Seite 77) und deshalb bereits am AVR-Reaktor als Abbrandindikator verwendet wurde. Sehr gute Voraussetzungen für die Abbrandmessung bietet das Verhältnis beider Nuklidaktivitäten (vgl. Abb. 41 auf Seite 78), da es unabhängig von Einflußgrößen wie Meßzeit und Impulsrate im Detektor ist.

Ebenso wie das Aktivitätsverhältnis ist auch das Amplitudenverhältnis der Photopeaks von Cs-134 und Ba-137m eine Funktion des Abbrandes. Berücksichtigt man nur die beiden intensivitätsstärksten Photolinien des Nuklides Cs-134 und setzt deren Amplituden ins Verhältnis mit der Amplitude des Ba-137m, so ergibt sich der in Abb. 41 auf Seite 78 dargestellte funktionale Zusammenhang.

Ein Nachteil dieser Methode ist die Abhängigkeit der Verhältnisse von der BE-Abklingzeit. Aufgrund der unterschiedlichen Halbwertszeiten nimmt die Aktivität des Cs-134 sehr viel schneller ab als die des Ba-137m, das durch den Zerfall des Mutternuklides Cs-137 permanent neu produziert wird.

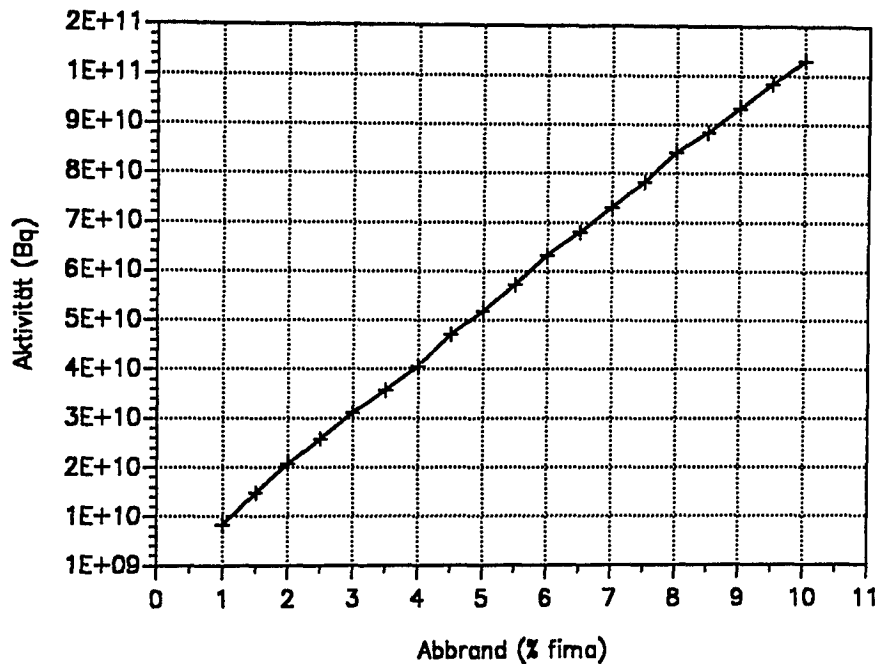


Abb. 40. Berechneter Aktivitätsverlauf des Nuklides Ba-137m als Funktion des Abbrandes

Die zeitliche Abnahme der Aktivität wird durch das Zerfallsgesetz

$$A(t) = A_0 \cdot e^{-\lambda \cdot t}$$

beschrieben, woraus für den zeitlichen Verlauf des Aktivitätsverhältnisses zweier Nuklide mit unterschiedlichen Halbwertszeiten folgt:

$$\frac{A_1(t)}{A_2(t)} = \frac{A_{01}}{A_{02}} \cdot e^{-\lambda_1 \cdot t + \lambda_2 \cdot t}$$

$$\lambda_1 = \frac{\ln 2}{T_1}$$

$$\lambda_2 = \frac{\ln 2}{T_2}$$

- T_1 : Halbwertszeit des ersten Nuklides
- T_2 : Halbwertszeit des zweiten Nuklides
- t : Abklingzeit der Brennelemente
- A_{01} : Anfangskonzentration des ersten Nuklides
- A_{02} : Anfangskonzentration des zweiten Nuklides

Multipliziert man die Amplitudenverhältnisse mit dem aus obiger Gleichung resultierenden Zeitfaktor, so erhält man für die jeweilige Abklingzeit den Verlauf der Amplitudenverhältnisse als Funktion des Abbrandes.

Im Normalbetrieb des HTR-Modul-Reaktors, in der die Abklingzeit der BE etwa 55 Stunden betragen wird, kann dieser Effekt aufgrund der wesentlich längeren Halbwertszeiten der betrachteten Nuklide vernachlässigt werden. Nach längeren Abschaltphasen muß jedoch eine Korrektur nach obiger Formel vorgenommen werden.

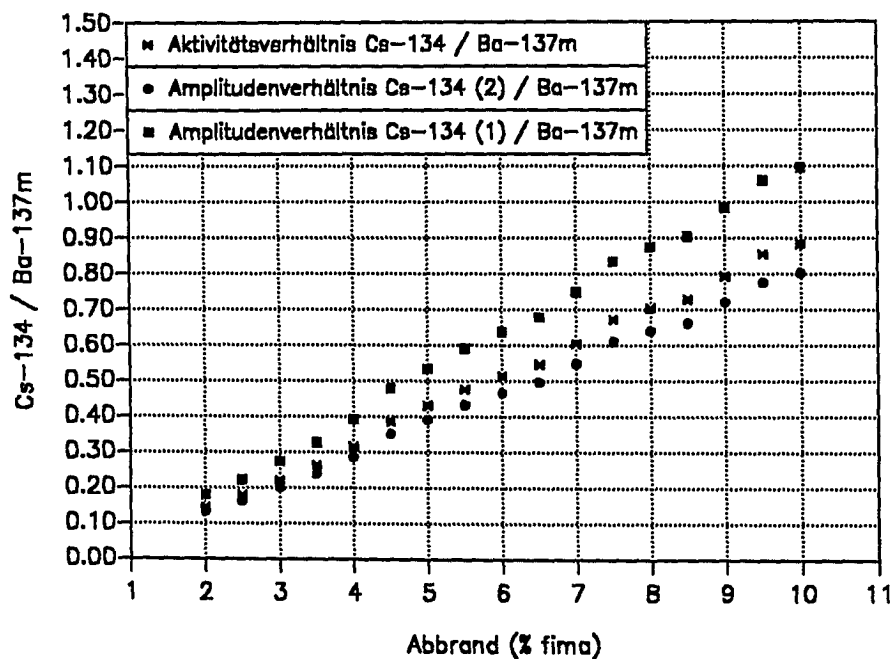


Abb. 41. Berechnetes Amplituden- und Aktivitätsverhältnis als Funktion des Abbrandes nach 55 Stunden Abklingzeit

5.3. Bestimmung des Abbrandes der Validierungsbrennelemente

Um die Möglichkeit der Abbranddetektion über das Amplitudenverhältnis zu demonstrieren, wurden zunächst aus den Daten der gemessenen Spektren die untergrundbereinigten Amplituden bestimmt und deren Verhältnisse berechnet. Die Ergebnisse sind in Tab. 14 zusammengefaßt.

Brennelement-Kennzeichnung	BE-4091	BE-4113	BE-4118
Untergrund Cs-134 (604,7 keV)	542	738	649
Untergrund Cs-134 (795,8 keV)	83	137	116
Untergrund Ba-137m (661,6 keV)	247	308	265
Amplitude Cs-134 (604,7 keV)	9634	17863	14395
Amplitude Cs-134 (795,8 keV)	6802	12403	9918
Amplitude Ba-137m (661,6 keV)	15195	21870	19149
Verhältnis Cs-134 (604,7) / Ba-137m	0,63	0,82	0,75
Verhältnis Cs-134 (795,8) / Ba-137m	0,45	0,57	0,52

Tab. 14. Amplitudenverhältnisse der gemessenen γ -Spektren

Da die BE eine Abklingzeit von etwa 400 Tagen aufweisen, wurden die berechneten Amplitudenverhältnisse entsprechend korrigiert. Abb. 42 auf Seite 80 zeigt die für diese Abklingzeit bestimmten Kurven.

Die mit dieser Methode bestimmten Abbrandzustände der Validierungsbrennelemente sind in Tabelle Tab. 15 zusammengestellt.

Brennelement-Kennzeichnung	BE-4091	BE-4113	BE-4118
Abbrand nach Kurve 1	8,20 %	10,30 %	9,50 %
Abbrand nach Kurve 2	8,00 %	10,00 %	9,20 %
Abbrand Heiße Zellen	6,50 %	9,15 %	8,00 %
Abbrand HTROGEN	7,40 %	10,50 %	9,20 %

Tab. 15. Abbrandzustände der Validierungsbrennelemente

Die mit den beiden unterschiedlichen γ -Linien des Cs-134 berechneten Abbrandzustände stimmen bei einer Abweichung von maximal 0,3 % fima sehr gut überein.

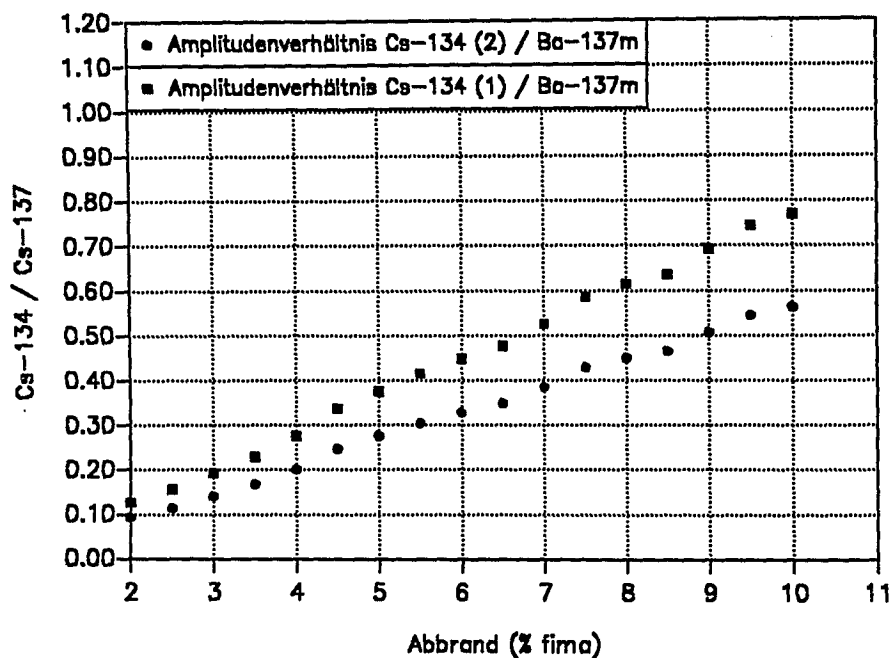


Abb. 42. Amplitudenverhältnis als Funktion des Abbrandes nach 400 Tagen Abklingzeit

Es zeigt sich jedoch wiederum, daß die Zuordnung von Abbrandzustand und Ba-137m-Aktivität in den HZ und in HTROGEN mit unterschiedlichen Methoden erfolgt, die innerhalb der Fehler nicht übereinstimmen. Darauf wurde bereits im letzten Kapitel hingewiesen, in dem die mittels HTROGEN für die gegebenen Abbrände berechneten Aktivitäten des Nuklides Ba-137m geringer waren als die Meßwerte. Geht man davon aus, daß die Zuordnung von Abbrand und Ba-Aktivität mit einem umfangreichen Rechenprogramm wie HTR-2000 exakter beschrieben werden kann als mit Hilfe einfacher Verfahren, so sind die mit HTR-2000 ermittelten Abbrände vorzuziehen.

Ein Vergleich dieser Abbrände mit den über die Amplitudenverhältnisse bestimmten zeigt beim BE-4091 deutliche Abweichungen, während die Werte der BE-4113 und -4118 gut übereinstimmen. Bei genauerer Betrachtung der Abb. 42 erkennt man, daß bei Abbränden von 4,5 % und 7,5 % fima eine Abflachung der Kurven als Folge des Zerfalls des Nuklides Cs-134 erfolgt. Daraus folgt, daß in der mit HTR-2000 simulierten Lebensgeschichte der BE ein längerer Aufenthalt im Kugelabzugsrohr oder in Gebieten mit vergleichsweise geringem Neutronenfluß programmiert wurde. Eine Korrektur dieses Effektes hat eine Verschiebung der Kurve zu höheren Verhältniswerten zur Folge, wodurch der zugehörige Abbrandzustand der BE wie erwartet geringer wird.

Die Lebensdauer der BE betrug im AVR 5-6 Jahre, so daß insbesondere bei hohen Abbränden der Zerfall des Nuklides Cs-134 während der Bestrahlung im Reaktor nicht vernachlässigt werden darf. Dies macht sich durch eine Abflachung des Kurvenverlaufes bei hohen Abbränden bemerkbar, die dem zuvor erwähnten Effekt entgegensteuert. Es

ist demnach nicht zulässig, die Kurven aufgrund der Aufenthaltszeiten der BE im Kugelabzugsrohr ausgehend von den Werten bei niedrigen Abbränden exponentiell zu extrapolieren. Vielmehr muß bei höheren Abbränden eine erneute Reduktion erfolgen, da anderenfalls die Detektion hoher Abbrände verfälscht wird.

Übertragen auf die Verhältnisse beim HTR-Modul, bei dem sowohl die Einsatzzeit der BE im Reaktor mit etwa drei Jahren, als auch die Abklingzeit zwischen Coreentnahme und Messung mit 55 Stunden deutlich geringer sind, zeigt sich, daß dort eine Bestimmung des Abbrandes mit Hilfe der Amplitudenverhältnisse möglich sein wird. Dies gilt auch nach Abschaltphasen, wobei jedoch gegebenenfalls eine Korrektur der Kurven hinsichtlich des unterschiedlichen Zerfalls von Barium und Cäsium notwendig ist. Unter der Annahme, daß systematische Fehler infolge einer nicht optimal arbeitenden Abbrandmeßeinrichtung oder einer fehlerhaften Auswertung im Modulbetrieb ausgeschlossen werden können, ist lediglich der statistische Fehler zu berücksichtigen. Um den Einfluß dieses Fehlers auf die Abbranddetektion abzuschätzen, wurde ein Vertrauensbereich ermittelt, in dem die Amplituden mit den größtmöglichen Abweichungen ins Verhältnis gesetzt wurden. Die nach dieser Methode bestimmten maximalen Abweichungen sind in Tab. 16 zusammengestellt.

Brennelement-Kennzeichnung	BE-4091	BE-4113	BE-4118
Amplitude Cs-134 (604,7 keV)	9536 - 9732	17729 - 17997	14275 - 14515
Amplitude Cs-134 (795,8 keV)	6720 - 6885	12292 - 12514	9818 - 10018
Amplitude Ba-137m (661,6 keV)	15071 - 15318	21722 - 22018	19011 - 19287
Verhältnis Cs-134 (604,7) / Ba-137m	0,61 - 0,65	0,81 - 0,83	0,74 - 0,76
Verhältnis Cs-134 (795,8) / Ba-137m	0,44 - 0,46	0,56 - 0,58	0,51 - 0,53

Tab. 16. Vertrauensbereich der Amplitudenverhältnisse gemessener γ -Spektren

Die Abweichungen sind außerordentlich gering und haben bei der Abbranddetektion eine Abweichung von weniger als 0,2 % fima zur Folge. Diese liegt innerhalb der Schwankungsbreite, die bereits durch die Verwendung zweier unterschiedlicher γ -Linien des Nuklides Cs-134 vorgegeben ist und wird als tolerierbar angesehen.

5.4. Unterscheidung von BE mit unterschiedlicher Anreicherung

Beim Übergang vom Erstkern zum Gleichgewichtskern werden beim HTR-Modul-Reaktor BE mit drei unterschiedlichen U-235-Spaltstoffanreicherungen eingesetzt. Zu Beginn des Reaktorbetriebes muß die Anreicherung wegen der fehlenden neutronenabsorbierenden Spaltprodukte geringer gewählt werden. Aus dem gleichen Grund werden zusätzlich Absorber- und Graphitkugeln homogen mit den Erstkernelementen vermischt. Beim Übergang zum Gleichgewichtskern soll ein zweiter BE-Typ mit gleicher Schwermetalleinwaage, jedoch höherer U-235 Anreicherung eingesetzt werden. Zur Kompensation des zunehmenden Spaltproduktinventars wird die Anreicherung im Gleichgewichtskern noch einmal erhöht.

Für die Abbrandmessung bedeutet dies, daß insgesamt fünf Kugeltypen zu unterscheiden sind, deren Spezifikationen in Tab. 17 aufgelistet sind (geringe Mengen Uran-234 sind in dieser Tabelle nicht enthalten).

Kennziffer	BE - Typ	Masse U-235	Masse U-238	Anreicherung
1	BE 7 g Uran	0,28 g	6,72 g	4 %
2	BE 7 g Uran	0,42 g	6,58 g	6 %
3	BE 7 g Uran	0,56 g	6,44 g	8 %
4	Graphitelement	---	---	---
5	Absorberelement	---	---	---

Tab. 17. Spezifikation der Kugeltypen im HTR-Modul-Reaktor

Bei der Unterscheidung der BE von den Absorber- bzw. Graphitkugeln sind keine meßtechnischen Schwierigkeiten zu erwarten, da einerseits die Graphitkugeln aufgrund ihrer sehr geringen Gesamtaktivität und andererseits die Absorberkugeln durch eine spezielle Gammalinie eindeutig detektiert werden können.

Probleme sind hingegen bei der Unterscheidung der drei Anreicherungsstufen zu erwarten. Die Messung der Barium bzw. Cäsium-Aktivitäten erlaubt die Bestimmung des BE-Abbrandes, ermöglicht jedoch keine Aussage über die Anreicherungsstufe und damit auch nicht über den Restspaltstoffgehalt im BE.

Für die oben definierten BE wird nachfolgend anhand von HTROGEN-Berechnungen gezeigt, daß durch die gleichzeitige Bestimmung der Aktivitäten der Nuklide Ba-137m und J-132 eine eindeutige Erkennung von BE-Typ und Abbrand gewährleistet ist, da sich die BE bei gleicher Ba-Aktivität und verschiedener Anreicherung hinsichtlich ihrer J-132 Aktivität unterscheiden.

Speziell für diese Aufgabenstellung wurde ein für Modulverhältnisse als typisch angesehener Lebenslauf entwickelt, der eine Rezyklierung ausschließlich in Kanal 8 des in HTR-2000 implementierten 9-Kanal-AVR-Fließlinienmodells (vgl. Abb. 21 auf Seite 45) vorsieht. Die BE werden in Abbrandregion 60 zugegeben und kontinuierlich umgewälzt. Die Zeitschrittlänge (2,3 Tage) wurde hierbei so gewählt, daß sie der Abklingzeit der BE im Kugelabzugsrohr (KAZR) entspricht. Pro Durchlauf (67 VLT) eines BE müssen demnach 30 Zeitschritte, inklusive der Verweilzeit im KAZR, angesetzt

werden. Kanal 8 enthält jedoch nur 27 Abbrandregionen, so daß bei zwei Zeitschritten keine Umsetzung erfolgte. Damit erhält man folgenden fiktiven Durchlauf der BE:

- Zugabe in Abbrandregion 60
- Umwälzen und Abbrennen von Abbrandregion 60 - 75
- Abbrennen in Abbrandregion 75 ohne Umwälzen
- Umwälzen und Abbrennen von Abbrandregion 75 - 86
- Abklingen im KAZR
- Rezyklierung in Abbrandregion 60

Dieses BE-Leben wurde bei allen drei Anreicherungsstufen zugrundegelegt und unverändert beibehalten, so daß sich die Ergebnisse unmittelbar miteinander vergleichen lassen.

Das Ergebnis dieser Berechnungen ist eine nahezu lückenlose Information über die Veränderungen der BE-Zusammensetzung in Abhängigkeit von der oben festgelegten Lebensgeschichte. Abb. 43 zeigt den Verlauf der Ba-137m und J-132 Aktivität in insgesamt 420 Zeitschritten. Man erkennt, daß die Ba-137m-Aktivität kontinuierlich zunimmt, was mit steigendem Abbrand auch zu erwarten ist, während die J-132 Aktivität starken Schwankungen unterworfen ist.

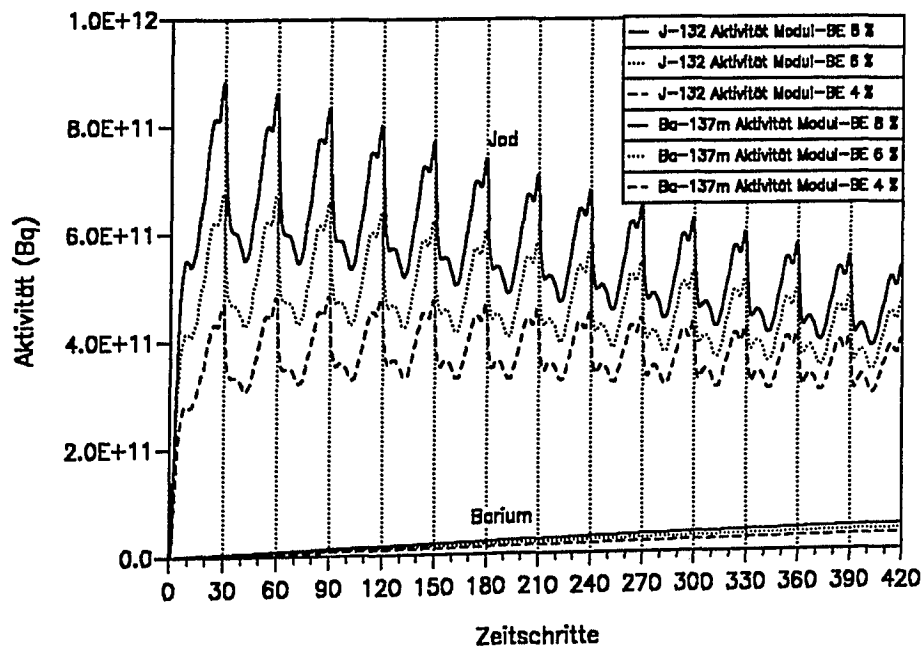


Abb. 43. Verlauf der J-132 und Ba-137m Aktivität als Funktion des BE-Lebens

Diese Schwankungen entstehen durch den örtlich unterschiedlichen Neutronenfluß im AVR-Reaktor, dem die BE während ihres fiktiven Durchlaufes ausgesetzt werden. Der steile Abfall der Jod-Aktivität nach jeweils 30 Zeitschritten ist durch die Verweilzeit im KAZR zu erklären, in dem kein nennenswerter Neutronenfluß herrscht.

In Abb. 44 ist der Verlauf der J-132 Aktivitäten als Funktion der Ba-137m-Aktivität dargestellt. Man erkennt, daß die Ba-137m-Aktivität bei höherer Anreicherung schneller ansteigt.

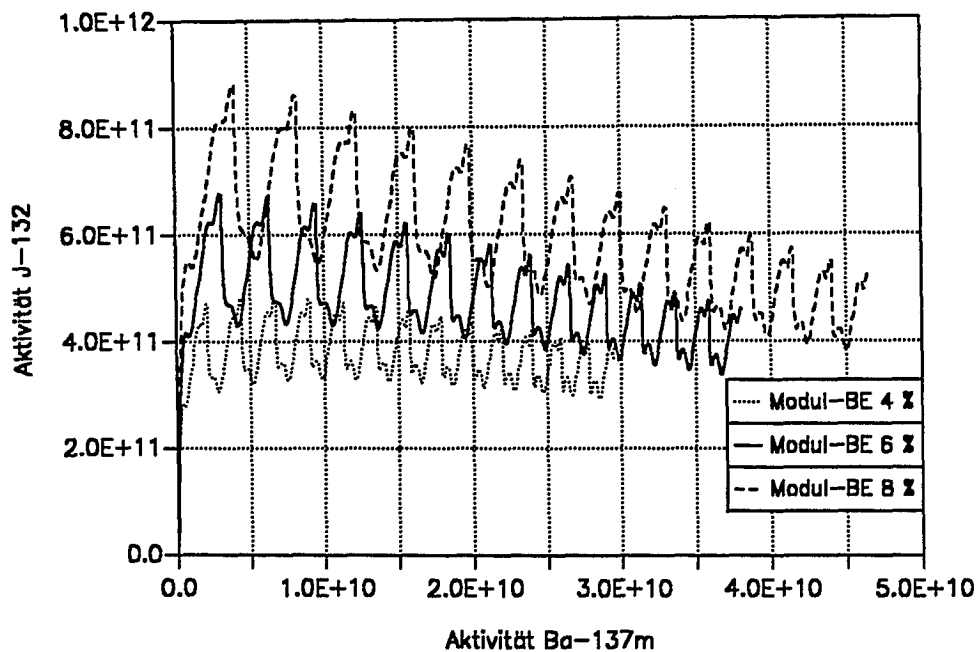


Abb. 44. Entwicklung der J-Aktivität als Funktion der Ba-Aktivität

Die Jod-Aktivitäten können auch hier nicht miteinander verglichen werden, da die Bestrahlungsdaten zum Zeitpunkt der Betrachtung nicht bekannt sind. BE mit gleicher Ba-Aktivität können sich in unterschiedlichen Abbrandregionen befinden und waren demnach einem unterschiedlichen Neutronenfluß ausgesetzt, der einen entscheidenden Einfluß auf die Jod-Aktivität besitzt.

Um die Jod-Aktivitäten miteinander vergleichen zu können, müssen die BE folglich über eine längere Zeitspanne hinweg einem identischen Neutronenfluß ausgesetzt sein. Hieraus ergibt sich die Bedingung, daß sich die BE in der gleichen Abbrandregion befinden. Diese Forderung ist in den Abb. 45 auf Seite 85 bis Abb. 47 auf Seite 86 berücksichtigt, in denen jeweils zwei BE aus derselben Abbrandregion miteinander verglichen werden, falls sich deren Ba-Aktivität um weniger als 5 % unterscheidet (dies entspricht dem maximal zulässigen Meßfehler bei der Abbrandbestimmung).

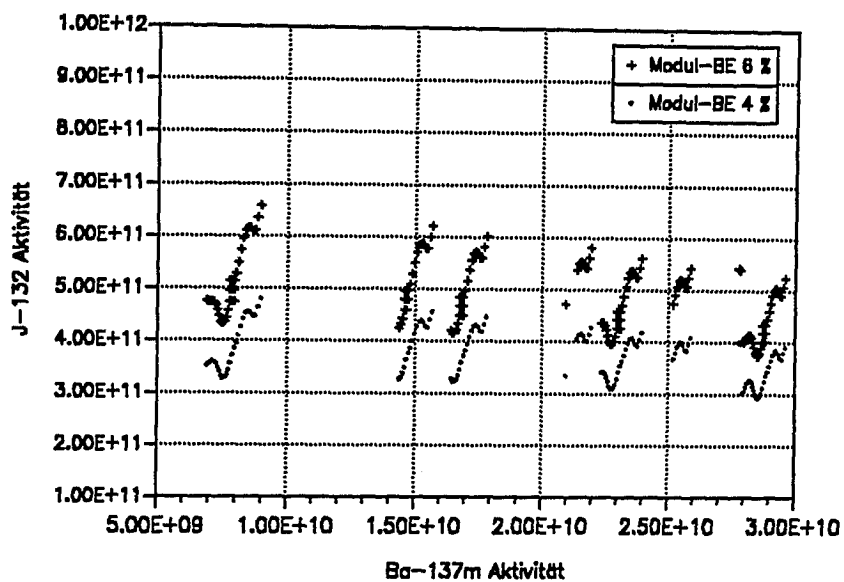


Abb. 45. Vergleich der BE mit 4 % und 6 % Anreicherung bei gleicher Bestrahlungsgeschichte

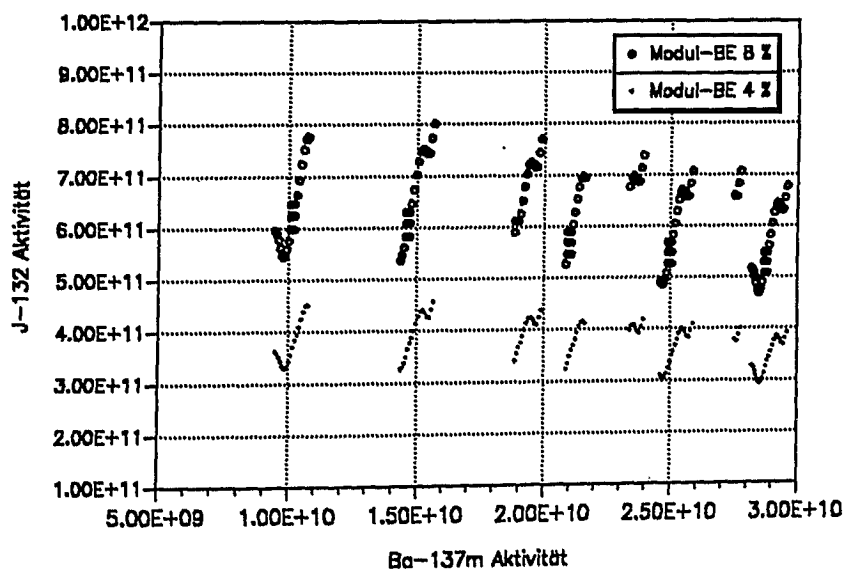


Abb. 46. Vergleich der BE mit 4 % und 8 % Anreicherung bei gleicher Bestrahlungsgeschichte

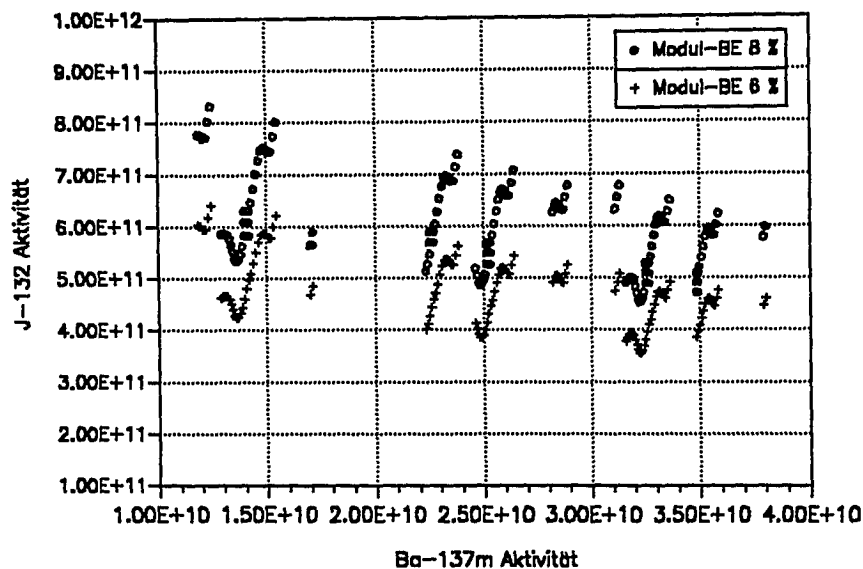


Abb. 47. Vergleich der BE mit 6 % und 8 % Anreicherung bei gleicher Bestrahlungsgeschichte

Für diese BE ist nun ein direkter Vergleich der Jod-Aktivitäten möglich. Man sieht sofort, daß - abgesehen von wenigen Ausnahmen - die geforderte eindeutige Trennung der Anreicherungsstufen möglich ist. Die diesen Abbildungen zugrundegelegte Forderung einer vergleichbaren Bestrahlungsgeschichte ist auch im realen Modulbetrieb zu erwarten, da dort mehrere hintereinander zu messende BE für einen längeren Zeitraum dem gleichen Neutronenfluß ausgesetzt sind.

Anstelle der Ba-Aktivität lassen sich auch die Cs-134-Aktivität bzw. die Amplituden- und Aktivitätsverhältnisse dieser Nuklide heranziehen, die ebenfalls aus der gleichzeitig erfolgenden Abbranddetektion bekannt sind. Da der Jod-132-Peak jedoch in jedem Fall quantitativ ausgewertet werden muß (eine Detektion über die Amplitude ist aufgrund der starken Schwankungen hier nicht möglich), ist die Abbrandmessung in der Phase bis zur Einstellung des Gleichgewichtszustandes über die quantitative Bestimmung der Aktivitäten Ba-137m, Cs-134 und J-132 zu empfehlen.

6. Zusammenfassung

Bei dem in der Bundesrepublik Deutschland entwickelten Hochtemperaturreaktor mit Mehrfachdurchlauf der kugelförmigen Brennelemente müssen diese nach der Entnahme aus dem Core hinsichtlich ihres Abbrandzustandes untersucht werden.

Als Indikator für den Abbrandzustand der Brennelemente wird bislang die Aktivität des Nuklides Ba-137m herangezogen. Für Verweilzeiten, die kurz im Vergleich zur Halbwertszeit des Mutternuklides Cs-137 sind, ist diese Aktivität direkt proportional zum erreichten Abbrand.

Die Aktivität wird bestimmt durch Auswertung der mit einem Halbleiterdetektor aufgenommenen γ -Spektren der Brennelemente, in denen die emittierten Photonen als Photopeaks abgebildet werden. Der Aufbau der γ -Spektren ist abhängig von den Bestrahlungsdaten und der Zeitspanne zwischen Bestrahlungsende und Messung. Aufgrund des radioaktiven Zerfalls der erfaßten Nuklide ändern sich γ -Spektren kontinuierlich, wodurch deren Auswertung erschwert wird. Diese erfolgt durch Anpassung einer mathematischen Hüllkurve an die Meßdaten, durch die eine Trennung der Beiträge einzelner Nuklide zum γ -Spektrum und die Subtraktion des Comptonuntergrundes ermöglicht wird.

Beim dieser Arbeit zugrundeliegenden HTR-Modul-Reaktor beträgt die Zeitspanne zwischen Bestrahlungsende und Messung auslegungsgemäß etwa 55 Stunden. Hierdurch werden im γ -Spektrum eine Reihe kurzlebiger Nuklide nachgewiesen, wodurch die Auswertung des Ba-137m-Photopeaks infolge Erhöhung des Comptonuntergrundes und direkter Überlagerung mit weiteren Photopeaks erschwert wird.

Aufgrund von Berechnungen mit einem eigens für diese Aufgabenstellung entwickelten Programmsystem, das die zu den jeweiligen Abbrandzuständen gehörenden γ -Spektren simuliert, zeigt sich, daß die Detektion des Abbrandzustandes bei geringen Abbränden nicht mit hinreichender Genauigkeit möglich ist. Die für den Betrieb des HTR-Modul-Reaktors unbedingt erforderliche Entscheidung über das Erreichen des vorgesehenen Zielabbrandes von 80000 MWd/t ist hingegen sichergestellt.

Weitergehende Untersuchungen ergeben, daß die Abbranddetektion am HTR-Modul-Reaktor auch durch die Bestimmung der Aktivität des Nuklides Cs-134 möglich ist. Besonders günstige Voraussetzungen bietet zudem eine Kombination der Aktivitäten der Nuklide Ba-137m und Cs-134, die unabhängig von detektorspezifischen Einflußgrößen und der Meßzeit ist. Es wird gezeigt, daß das Aktivitätsverhältnis beider Nuklide und damit auch der Abbrandzustand der Brennelemente über die Amplituden der zugehörigen Photopeaks bestimmt werden kann.

Da beim HTR-Modul-Reaktor während der Inbetriebnahmephase Brennelemente unterschiedlicher Anreicherung zur Kompensation des fehlenden Neutroneneinfangs in den Spaltprodukten eingesetzt werden sollen, ist deren Unterscheidung durch die Abbrandmeßanlage sicherzustellen. Es wird nachgewiesen, daß diese Forderung durch zusätzliche Messung der Aktivität des Nuklides J-132 erfüllt wird, da sich Brennelemente mit gleicher Ba-137m-Aktivität, jedoch unterschiedlicher Anreicherung bei gleichen Bestrahlungsdaten hinsichtlich ihrer Jod-132-Aktivität unterscheiden. Aufgrund der geringen

Halbwertszeit ist jedoch eine Bestimmung über die Amplitudenverhältnisse nicht möglich, da diese starken Schwankungen unterworfen sind.

Somit ist während der Inbetriebnahmephase bis zur Einstellung des Gleichgewichtszustandes die Abbrandmessung über die Messung der Aktivitäten Ba-137m, Cs-134 und J-132 zu empfehlen.

Zusammenfassend bleibt festzuhalten, daß die beim HTR-Modul-Reaktor vorgesehene Abbrandmeßeinrichtung in der Lage ist, alle seitens des Reaktorbetriebes gestellten Anforderungen zu erfüllen.

Literaturverzeichnis

- /1/ Brown-Boveri/Krupp Reaktorbau GmbH
THTR - Referenzentwurf 300 MW_{el} - Prototypanlage
Kernforschungsanlage Jülich GmbH
- /2/ M. Wimmers, et.al.
Inbetriebnahme der neuen Abbrandmeßanlage
AVR-Bericht, Jülich, 1982
- /3/ R. Duwe, W. Kühnlein, R. Schröder
Gamma-spektrometrische Abbrandmessung an kugelförmigen Brennelementen
Kernforschungsanlage Jülich GmbH
Institut für Reaktorwerkstoffe/Heiße Zellen
Jül-1428, Juni 1977
- /4/ E. Gerhards, F. Thomas, H. Werner
Gammaspectrometrische Ermittlung des Abbrandes kugelförmiger Brennelemente - Eine Analyse der Betriebsergebnisse der AVR-Abbrandmeßanlage
Kernforschungsanlage Jülich
Interner Bericht KFA-IRE-IB-5/89
- /5/ E. Gerhards, H. Werner, F. Thomas
Vergleich der während des AVR-Leistungsbetriebes gemessenen BE-Abbrandspektren mit den mittels des Programmsystems HTR-2000 berechneten Verteilungen
Interner KFA-Bericht, IRE-IB-5/88
Jülich, Mai 1988
- /6/ A. Ziegler
Lehrbuch der Reaktortechnik
Band 1 - Reaktortheorie
Springer Verlag 1983
- /7/ R. Schulten
Manuskript zur Vorlesung Kernphysik
RWTH Aachen 1987
- /8/ G. Dearnley, D.C. Northrop
Semiconductor Counters for Nuclear Radiations
E. & F.N. Spon Limited, London, 1966
- /9/ W.D. Hamilton
The Electromagnetic Interaction in Nuclear Spectroscopy
North Holland Publishing Company, 1975

- /10/ K. Debertin, R.G. Helmer
Gamma- and X-ray spectrometry with semiconductor detectors
North Holland, 1988
- /11/ Fachhochschule Aachen, Abteilung Jülich
Unterlagen zum kernphysikalischen Praktikum
Jülich 1990
- /12/ G.F. Knoll
Radiation Detection and Measurement
John Wiley & Sons
- /13/ F. Adams, R. Dams
Applied Gamma-Ray Spectrometry
Pergamon Press, 1970
- /14/ H. Büker
Die Messung des Abbrandzustandes kugelförmiger Brennelemente mit
Hilfe eines hochauflösenden Halbleiter - Gamma - Spektrometers
Dissertation, RWTH Aachen 1966
- /15/ Canberra Elektronik GmbH
SPECTRAN - F
Gamma Analyse Software, 1987/88
- /16/ Lieferkatalog CANBERRA
Edition seven
Canberra Industries 1988
- /17/ Nuclear instruments and systems
Lieferkatalog ORTEC
EG & G, ORTEC 1988
- /18/ Catalog of scientific instrumentation
Lieferkatalog TENNELEC
Mai 1988
- /19/ ZARDOZ - Programmsystem zur Auswertung von γ -Spektren
Institut für Kernphysik der Universität Köln
- /20/ P.R. Bevington
Data Reduction and Error Analysis for the Physical Sciences
Mc Graw - Hill Book Company
- /21/ S. Brandt
Datenanalyse
Bibliographisches Institut, 1975

- /22/ G. Erdtmann, W. Soyka
Die γ -Linien der Radionuklide, Band 1-3
Kernforschungsanlage Jülich GmbH
Jül - 1003 - AC, September 1973
- /23/ W. Kühnlein
AVR - Stichprobe 85
Gammaskopimetrische Abbrandbestimmung
Kernforschungsanlage Jülich GmbH
persönliche Mitteilung, 1991
- /24/ Siemens - Interatom
Hochtemperaturreaktor - Modul - Kraftwerksanlage
Kurzbeschreibung
November 1988
- /25/ Siemens - Interatom
Hochtemperaturreaktor - Modul - Kraftwerksanlage
Sicherheitsbericht
- /26/ K. Kugeler, R. Schulten
Hochtemperaturreaktortechnik
Springer Verlag 1989
- /27/ Siemens - Interatom
Interner Bericht, Februar 1988
- /28/ F. Thomas, H. Werner
Kurzbeschreibung des Programmzyklus HTROGEN
Persönliche Mitteilung, 1989
- /29/ F. Thomas
HTR-2000 - Programmcode zur rechnerischen Betriebsbegleitung von
HTR's
Kernforschungsanlage Jülich GmbH
Jül. - 2261, Jan. 1989
- /30/ H. Werner, F. Thomas
Erstellung eines 9-Kanal-AVR-Fließmodelles für den
Rechenzyklus HTR-2000
AVR-AN Dezember 1987

- /31/ F. Thomas, H. Werner
Nachrechnung der AVR-Leistungsfahrt 1982-1988 mit dem Programmsystem HTR-2000 (unveröffentlicht)
Jülich, Februar 1988
- /32/ J.R. Askew et al.
A general description of the lattice code WIMS
Journal of the British Nuclear Energy Society
Vol. 5, No.4, p.564 (1966)
- /33/ T. Fowler et al.
Nuclear Reactor Core Analysis Code CITATION
ORNL-TM-2496, Rev.2, Oak-Ridge 1971
- /34/ Bell
ORIGEN - the ORNL Isotope Generation and Depletion Code
ORNL - 4628 - 73
- /35/ ORIGEN-Library NEA-Datenbank (Stand 1976)
- /36/ E. Gerhards
Description of ORIGEN Computer Code
Argonne National Laboratory
Internal Report
- /37/ C.M. Davisson, R.D. Evans
Gamma-Ray Absorption Coefficients
Reviews of Modern Physics, Volume 24, No.2, 1952
- /38/ A. Proykova
Determination of detecting system response function
Nuclear Instruments and Methods in Physics Research,
A254 (1987), 611-615
- /39/ Y. Jin, R.P. Gardner, K. Verghese
A semi-empirical model for the gamma-ray response function of germanium detectors based on fundamental interaction mechanisms
Nuclear Instruments and Methods in Physics Research,
A242 (1986), 416-426
- /40/ D.J. Mitchell, H.W. Sanger, K.W. Marlow
Gamma-ray response functions for scintillation and semiconductor detectors
Nuclear Instruments and Methods in Physics Research,
A276 (1989), 547-556

- /41/ B. Jäckel, W. Westmeier, P. Patzelt
On the photopeak efficiency of germanium gamma-ray detectors
Nuclear Instruments and Methods in Physics Research,
A261 (1987), 543-548
- /42/ D.C. Radford et al.
A prescription for the removal of compton-scattered gamma rays from
gamma-ray spectra
Nuclear Instruments and Methods in Physics Research,
A258 (1987), 111-118
- /43/ T. Pitkanen, D. Laundy, R.S. Holt, M.J. Cooper
The multiple scattering profile in gamma ray compton studies
Nuclear Instruments and Methods in Physics Research,
A251 (1986), 536-544
- /44/ T. Pitkanen, D. Laundy, R.S. Holt, M.J. Cooper
The characterisation of multiple scattering in compton profile
measurements
Nuclear Instruments and Methods in Physics Research,
A257 (1987), 384-390
- /45/ H. Werner, F. Thomas, A. Bergerfurth, B. Geskes
Zusammenstellung der Reaktorphysikalischen Daten des AVR-Atomver-
suchskraftwerkes für das Jahr 1983
AVR, Hauptabteilung T-1
Jülich, 1985
- /46/ F. Thomas
Persönliche Mitteilung 1991
- /47/ Arbeitsgemeinschaft Versuchsreaktor GmbH
AVR-Betriebsdaten, Jülich 1988
- /48/ G. Ballensiefen
persönliche Mitteilung, Jülich 1991
- /49/ F. Woloch
Abschlußbericht der Validierung neuer Methoden für den HTR (DITO)
OEFZS-A-1957, 1991
- /50/ M.J. Halsall, C.J. Taubmann
The 1981 WIMS Nuclear Data Library
AEEW-R 1442, 1983

Anhang A. Abbrand - Definition und Umrechnungen

Bezieht man die Anzahl der erfolgten Spaltungen auf die Summe aller Schwermetallatome im unbestrahlten BE, so erhält man den Abbrand in der Einheit "FIMA" (fissions per initial metal atoms). Diese Größe kann nach folgender Formel /48/ berechnet werden:

$$\text{FIMA} = \frac{\sum_i N_i^0 - \sum_i N_i(t)}{\sum_i N_i^0}$$

$\sum_i N_i^0$: Summe aller Schwermetallatome vor der Bestrahlung

$\sum_i N_i(t)$: Summe aller Schwermetallatome zum Zeitpunkt t

Bezieht man die Anzahl der erfolgten Spaltungen hingegen auf die spaltbaren Atome im unbestrahlten BE, so erfolgt die Angabe des Abbrandzustandes in "FIFA" (fissions per initial fissionable atoms), was durch folgende Gleichung ausgedrückt wird:

$$\text{FIFA} = \frac{\sum_i N_i^0 - \sum_i N_i(t)}{\sum_i N_{i,f}^0}$$

$\sum_i N_{i,f}^0$: Summe der spaltbaren Atome vor der Bestrahlung

Die Summe aller spaltbaren Atome in einem BE ist mit der Zahl aller Schwermetallatome über den Anreicherungsgrad ε wie folgt verknüpft:

$$\varepsilon = \frac{\sum_i N_{i,f}^0}{\sum_i N_i^0}$$

Mit Hilfe dieser Beziehung lassen sich die Abbrandangaben 'FIFA' und 'FIMA' unmittelbar ineinander umrechnen, und es gilt:

$$\text{FIMA} = \frac{\sum_i N_i^0 - \sum_i N_i(t)}{\sum_i N_{i,f}^0}$$

$$\text{FIMA} = \frac{\sum_i N_i^0 - \sum_i N_i(t)}{\sum_i N_{i,f}^0} \cdot \frac{\sum_i N_{i,f}^0}{\sum_i N_i^0}$$

$$\text{FIMA} = \text{FIFA} \cdot \varepsilon$$

Eine dritte häufig verwendete Definition des Abbrandes ist die Angabe der erzeugten Energie bezogen auf die Masse des eingesetzten Schwermetalls (SM).

Die bei einer Spaltung im Mittel freigesetzte Energie beträgt:

$$E = 3,48 \cdot 10^{-22} \text{ MWd}$$

Die Masse der Schwermetallbeladung kann über folgende, aus der Chemie bekannte, einfache Gleichung berechnet werden:

$$G [\text{g}] = \sum_i \frac{N_i^0 \cdot A_i}{L}$$

$\sum N_i^0$: *Summe aller Schwermetallatome vor der Bestrahlung*
 A_i : *Atomgewicht g/mol*
 $L = 6,023 \cdot 10^{23}$ *Atome/mol*

Mit der Definition des mittleren Atomgewichtes

$$\bar{A} = \frac{\sum_i N_i^0 \cdot A_i}{\sum_i N_i^0}$$

ergibt sich hieraus folgender Zusammenhang:

$$G [\text{t}] = \frac{\bar{A}}{L} \cdot 10^{-6} \cdot \sum_i N_i^0$$

Die Anzahl der erfolgten Spaltungen beträgt aber, wie oben gezeigt,

$$z = \sum_i N_i^0 - \sum_i N_i(t)$$

so daß für den Abbrand folgende Beziehung gilt:

$$A \left[\frac{\text{MWd}}{t_{\text{SM}}} \right] = \frac{z \cdot \bar{E}}{G}$$

Durch Einsetzen erhält man:

$$A \left[\frac{\text{MWd}}{t_{\text{SM}}} \right] = \frac{z \cdot \bar{E}}{\frac{\bar{A}}{L} \cdot 10^{-6} \cdot \sum_i N_i^0} = \frac{z}{\sum_i N_i^0} \cdot \frac{\bar{E} \cdot L}{\bar{A} \cdot 10^{-6}}$$

und hieraus schließlich:

$$A \left[\frac{\text{MWd}}{t_{\text{SM}}} \right] = \frac{2,096 \cdot 10^6}{\bar{A}} \cdot \text{FIMA}$$

Anhang B. Verwendete Abkürzungen

ADC	Analog Digital Converter
AVR	Arbeitsgemeinschaft VersuchsReaktor
BE	BrennElement
FIFA	Fissions per Initial Fissionable Atoms
FIMA	Fissions per Initial Metal Atoms
FWHM	Full Width HalfMaximum
GLE	Gepreßt Low Enriched
HTR	Hoch TemperaturReaktor
HZ	Heiße Zellen
KAZR	Kugel AbZugsRohr
KFA	Kern ForschungsAnlage Jülich
LEU	Low Enriched Uranium
MCA	Multi Channel Analyser
NWW	Nach WeisWahrscheinlichkeit
SM	SchwerMetall

Jül-2775

Mai 1993

ISSN 0944-2952