



November 1973

KFK 1879

Institut für Neutronenphysik und Reaktortechnik Projekt Spaltstoffflußkontrolle

Spaltstoffbestimmung an Reaktorbrennstäben mit dem Bremszeitspektrometer

J. Klunker





Als Manuskript vervielfältigt

Für diesen Bericht behalten wir uns alle Rechte vor

GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M.B.H. KARLSRUHE

#### KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

KFK 1879

Institut für Neutronenphysik und Reaktortechnik Projekt Spaltstoffflußkontrolle

> Spaltstoffbestimmung an Reaktorbrennstäben mit dem Bremszeitspektrometer

> > J. Klunker

Dissertation genehmigt von der Fakultät für Maschinenbau der Universität Karlsruhe

Gesellschaft für Kernforschung mbH., Karlsruhe

.

#### Zusammenfassung

Das Bremszeitspektrometer bietet die Möglichkeit, Spaltstoffmengen in Reaktorbrennstäben zerstörungsfrei zu messen. Dazu werden die nach einem Neutronenimpuls im Brennstoff induzierten Spaltungen als Funktion der Zeit registriert. Wegen des unterschiedlichen Verlaufs der Wirkungsquerschnitte mit der Neutronenenergie lassen sich dabei U-235 und Plutonium getrennt und gleichzeitig bestimmen. Diese Methode wurde hinsichtlich ihrer Durchführbarkeit und Genauigkeit experimentell und theoretisch untersucht.

Es werden optimale Zeitintervalle für den Meßzyklus vorgeschlagen, analytische Formeln und empirische Konstanten zur Korrektur der Resonanz-Selbstabschirmung angegeben und verschiedene Fehlerquellen und Korrekturen diskutiert. Die erreichbare Meßgenauigkeit beträgt 2% in 2 Minuten Meßzeit.

Ergänzend werden Formeln mit empirischen Parametern zur Berechnung der effektiven Resonanzintegrale von Stäben mit gemischtem Brennstoff angeführt.

# Determination of fissile material in fuel rods by the slowing down time spectrometer

#### Abstract

The slowing down time spectrometer offers the capability for nondestructive measurements of the fissile content in reactor fuel rods. The measurement is based on counting after a neutron burst injection the time dependent fission rate of the fuel rod. The difference in cross section shape allows the separate and simultaneous determination of the U-235 and Plutonium contents. This method was investigated theoretically and experimentally with respect to feasibility and accuracy.

Optimum time intervals for the measurement are proposed, analytical expressions with empirical constants are given to correct for resonance self shielding, and different error sources and corrections are discussed. The accuracy obtainable is 2% for two minutes measuring time.

In addition analytical expressions with empirical parameters are given to calculate effective resonance integrals of fuel rods with mixed fuel.

1.	Ein	leitun	g	1				
2.	Physik des Bremszeitspektrometers							
	2.1 Allgemeine Beschreibung des Bremszeitspektrometers							
	2.2 Experimentelle Bestimmung der charakteristischen Größen des Bremszeitspektrometers							
		2.2.1	Die Konstanten der Energie-Zeit-Relation	9				
		2.2.2	Die zeitliche Abnahme der Neutronendichte	11				
		2.2.3	Das Auflösungsvermögen	12				
	2.3	Ergeb	nisse der Monte Carlo-Rechnungen	15				
		2.3.1	Berechnung der Neutronenenergie in Abhängig- keit von der Zeit	15				
		2.3.2	Breite und Form des Neutronenspektrums	16				
		2.3.3	Räumliche und energetische Verteilung der Neutronen in der Anfangsphase des Brems- prozesses	16				
		2.3.4	Einfluß der Abschirmung des Bleipiles	18				
3.	Spal Bren 3.1	ltstof: nszeit: Fests	fmessungen an Reaktorbrennstäben mit dem spektrometer tellung der Bestimmungsgrößen einer Spalt-	20				
		STOLL	Negehötzung den minimelen Größe deg Blei	20				
		J.1.1	piles	21				
		3.1.2	Messungen im Resonanzbereich	24				
		3.1.3	Auswahl der Energieintervalle	25				
	3.2	Aufbau	ı und Durchführung der Experimente	27				
		3.2.1	Beschreibung der Anlage	27				
		3.2.2	Protonenrückstoßzählrohre und Vorverstärker	28				
		3.2.3	Spaltstoff-Teststäbe	30				
		3.2.4	Durchführung der Messungen	30				
	3.3	Meßfel	nler	34				
		3.3.1	Meßfehler hinsichtlich der Größe der Meßwerte	34				
		3.3.2	Meßfehler hinsichtlich der Lage der Meßzeit- intervalle	35				

Seite

	3.4	Meßer	gebnisse	36
4.	Res abs	onanzs chirmu	elbstabschirmung und wechselseitige Resonanz- ng in analytischer Darstellung	39
	4.1	Besch: Letha: schni	reibung der Selbstabschirmung durch das rgieintegral des effektiven Spaltquer- tts	39
	4.2	Einfa Resona	ches Modell zur Behandlung der wechselseitigen anzabschirmung	41
	4.3	Anwend stoff	dung der analytischen Ausdrücke zur Spalt- bestimmung	43
5.	Aust	wertun	g der Meßergebnisse	47
	5.1	"Rein	e" Spaltstoffstäbe	47
		5.1.1	Uran- und Plutoniumstäbe mit konstantem Durchmesser	47
		5.1.2	Uran- und Plutoniumstäbe mit unterschied- lichem Durchmesser	49
		5.1.3	Uran- und Plutoniumstäbe mit ungesintertem Brennstoff	52
	5.2	Brenn	stäbe mit gemischtem Spaltstoff	54
6.	Nume Real	erische ktorbre	e Berechnung der Spaltneutronenzahlen von ennstäben im Bleipile	57
	6.1	Das Pi	rogramm RABBLE und seine Anwendung	57
		6.1.1	Kurzbeschreibung des Programms	57
		6.1.2	Multiniveaudarstellung des U-35-Querschnitts	59
		6.1.3	Berücksichtigung der mittleren Spaltneu- tronenzahlen v und des Effekts der Spalt- spektren	60
		6.1.4	Berücksichtigung des Neutronenspektrums im Bleipile	61
		6.1.5	Anwendung des Programms	62
	6.2	Prüfun kungso	ng des Programms und der verwendeten Wir- querschnittsdaten	63
		6.2.1	Vergleich von gemittelten Wirkungs- querschnitten	63
		6.2.2	Vergleich von Resonanzintegralen	64
		6.2.3	Berechnung des effektiven Resonanzintegrals einer Resonanz	65

	6.3 Fehler bei der Berechnung der Spaltneutronen- zahlen mit RABBLE	66				
	6.3.1 Programmbedingte Fehler	66				
	6.3.2 Fehler durch Unsicherheit in den Kern- daten und in den Bleipilespektren	67				
	6.4 Ergebnisse der Brennstabrechnungen mit RABBLE	68				
	6.4.1 Spaltneutronenzahlen der "reinen" Stäbe	68				
	6.4.2 Spaltneutronenzahlen der gemischten Stäbe	69				
7.	<ol> <li>Berechnung der effektiven Absorptionsquerschnitte von Uran-235, Uran-238 und Plutonium-239 in einem 1/E-Spektrum</li> </ol>					
	7.1 Berechnung der Abschirmungsparameter	74				
	7.2 Anwendbarkeit der analytischen Methode zur Berechnung der effektiven Absorptionsquerschnitte	78				
8.	Zusammenfassung	78				
Literaturverzeichnis 80						

## Anhang

1.	Theorie des Bremszeitspektrometers	86
	1.1 Energie-Zeit-Relation	86
	1.2 Fokussierungseffekt	87
	1.3 Zeitliche Abnahme der Neutronendichte	88
2.	Theorie der Resonanzabsorption	93

#### 1. Einleitung

Die Resonanzselbstabschirmung spielt sowohl in der Reaktorphysik als auch bei einigen neutronenphysikalischen Methoden der Spaltstoffflußkontrolle eine wichtige Rolle. So wird die Resonanzentkommwahrscheinlichkeit, eine der Größen, von denen die Neutronenbilanz in einem Reaktor abhängt, ganz entscheidend durch die Resonanzselbstabschirmung beeinflußt.

In den grundlegenden Darstellungen von Weinberg und Wigner  $\sqrt{17}$ , von Dresner  $\sqrt{27}$  und von Nordheim  $\sqrt{37}$  sowie in zahlreichen weiteren Arbeiten wurden die Effekte der Flußabsenkung durch Resonanzabsorption untersucht. So ist z.B. die Behandlung der Selbstabschirmung der Resonanzen von Uran-238 theoretisch und experimentell abgesichert  $\sqrt{2}, 4, 5\sqrt{2}$ . Bei den spaltbaren Isotopen ist die Beschreibung der Resonanzselbstabschirmung schwieriger, da die Wirkungsquerschnitte eine viel größere Zahl von Resonanzen aufweisen. Andererseits sind die Abschirmungseffekte der Spaltstoffe in thermischen Reaktoren klein, sie werden aber in aufwendigen numerischen Rechencodes berücksichtigt. Bei den zerstörungsfreien Methoden der Spaltstoffflußkontrolle, die die Spaltstoffmenge über den Spaltprozeß selbst nachweisen, ist eine genauere Untersuchung dieser Effekte notwendig, da der Zusammenhang zwischen einer gemessenen Reaktionsrate und der daraus zu bestimmenden Spaltstoffmenge durch Resonanzabschirmungseffekte nicht linear ist. In rezykliertem Brennstoff tritt abhängig vom Mischungsverhältnis von Uran-235 und Plutonium neben der Selbstabschirmung auch merkliche wechselseitige Abschirmung der Spaltstoffe auf.

Die Resonanzselbstabschirmung besteht darin, daß in einer Resonanz die Reaktionsrate nicht dem Produkt aus Wirkungsquerschnitt und Fluß außerhalb der Resonanz proportional ist, da wegen der Größe der Reaktionsrate in der Resonanz eine entsprechend starke Rückwirkung auf den Fluß eintritt.

Zum Druck eingereicht am 8.10.1973

Diese Resonanzselbstabschirmung ist selbstverständlich energieabhängig, sie hängt für heterogene Medien im Bereich der Grenzflächen aber auch vom Ort ab. Für einen zylindrischen Stab läßt sich eine mittlere Flußabsenkung über eine Resonanz hinweg und über den Stab gemittelt durch das effektive Resonanzintegral dieser Resonanz definieren, wenn außerhalb des Stabs und außerhalb der Resonanz der ungestörte Fluß herrscht  $/\overline{27}$ .

Die Berechnung der effektiven Resonanzintegrale aus den Wirkungsquerschnitten ist gerade für die spaltbaren Isotope U-35 und Pu-39 schwierig und mit Unsicherheiten behaftet, da die Querschnitte eine hohe Resonanzdichte aufweisen.

Bei der Auslegung von Kernreaktoren wird daher in der Praxis die Resonanzentkommwahrscheinlichkeit für einzelne Reaktorkonfigurationen in kritischen Experimenten adjustiert. In der Spaltstoffflußkontrolle können mit Hilfe von geeichten Teststäben mit verschiedenen Anreicherungen, Dimensionen und Isotopenmischungen Eichkurven aufgestellt werden, die den Zusammenhang zwischen der Spaltstoffmenge in einem Reaktorbrennstab und einer entsprechenden Reaktionsrate beschreiben. Dabei entstehen jedoch wegen der begrenzten Zahl der Eichstäbe bei Interpolationen systematische Fehler, wenn über den Verlauf der Resonanzselbstabschirmung keine oder ungenügende Annahmen gemacht wurden. Eine experimentelle Untersuchung der verschiedenen Abschirmungseffekte in Reaktorbrennstäben mit gemischtem Brennstoff erscheint daher wünschenswert.

Für diese Untersuchungen ist das Bremszeitspektrometer  $\langle \bar{6}, \bar{2} \rangle$ ein geeignetes Instrument. Es bietet eine gute Intensität bei isotropem Einfall der Neutronen in den Stab und ein ausreichendes Auflösungsvermögen im Resonanzbereich. Da es außerdem als Instrument der Spaltstoffflußkontrolle zur Messung von Spaltstoffmengen in Reaktorbrennstäben vorgesehen ist  $\langle \bar{8}-14 \rangle$ , können die Ergebnisse der Untersuchung unmittelbar

- 2 -

für diese Anwendung benutzt werden.

Zur genauen Interpretation der experimentellen Daten müssen zuvor einige Unsicherheiten in den charakteristischen Größen des Bremszeitspektrometers hinsichtlich des Zusammenhangs zwischen Bremszeit und mittlerer Neutronenenergie sowie des Auflösungsvermögens aufgeklärt werden.

Weiterhin sind für die Anwendung in der Spaltstoffflußkontrolle die optimalen Meßbedingungen im Hinblick auf die Auslegung der Anlage und die Auswahl geeigneter Energieintervalle zu ermitteln.

Unter diesen Voraussetzungen können mit dem Bremszeitspektrometer gemessene Reaktionsraten von Testbrennstäben auf Selbstabschirmung und wechselseitige Abschirmung hin untersucht werden. Dazu ist es erforderlich, zur Darstellung der verschiedenen Abschirmungseffekte analytische Ausdrücke zu entwickeln, mit denen die Meßergebnisse verglichen werden können. Eine solche analytische Darstellung bedeutet eine wesentliche Vereinfachung der Spaltstoffbestimmung aus den Spaltneutronenzählraten unbekannter Stäbe und bietet weiterhin die Möglichkeit einer Abschätzung der effektiven Resonanzintegrale und damit der Resonanzentkommwahrscheinlichkeit in Reaktorbrennstäben.

Schließlich sind die Meßergebnisse zu vergleichen mit Ergebnissen von numerischen Rechnungen, in denen die Abschirmungseffekte mit Hilfe einer sehr feinen Energiegruppenstruktur und einer räumlichen Zoneneinteilung näherungsweise richtig behandelt werden. Der Grad der Übereinstimmung zwischen Messung und Rechnung läßt eine Aussage zu über die Anwendbarkeit des numerischen Programms zur Berechnung von selbstabgeschirmten Reaktionsraten.

3 -

#### 2.1 Allgemeine Beschreibung des Bremszeitspektrometers

Das Bremszeitspektrometer (BZS) ist eine Anlage, mit der Neutronen definierter mittlerer Energie im Energiebereich unterhalb etwa 100 keV erzeugt werden können. In Kombination mit einer Probe und einem geeigneten Detektor kann es daher zur Untersuchung der Energieabhängigkeit von Neutronenreaktionen verwendet werden  $\langle \bar{1}5-24\bar{4}\rangle$ .

Das Bremszeitspektrometer besteht aus einem Bleiquader mit einer Kantenlänge von 1 bis 2 m und einer gepulsten Neutronenquelle, die periodisch im Abstand von einigen Millisekunden mit Pulsbreiten von einigen Mikrosekunden 14 MeV-Neutronen durch die  $T(d,n)\alpha$ -Reaktion erzeugt. Die Quelle befindet sich aus Intensitätsgründen normalerweise im Zentrum des Bleipiles. Die Neutronen durchlaufen während ihrer Lebensdauer im Blei einen Bremsprozeß, dessen Charakteristika gerade die wesentlichen Eigenschaften des BZS ausmachen. Nach anfänglichen inelastischen Stößen, bei denen die Neutronen sehr schnell auf Energien unterhalb 0,57 MeV, entsprechend dem niedrigsten Anregungsniveau in Blei, abgebremst werden, setzt der rein elastische Streuprozeß ein. Dieser bewirkt eine "Fokussierung" der Neutronenenergie, die dazu führt, daß die Neutronen sich bald (nach einigen weiteren hundert Stößen) in einer engen Verteilung um eine bestimmte, zeitlich abnehmende mittlere Energie scharen. Anschaulich läßt sich diese "Fokussierung" dadurch erklären, daß die Neutronen, deren Geschwindigkeiten über dem jeweiligen Mittel liegen, pro Zeiteinheit mehr Stöße erleiden, also stärker "gebremst" werden als die übrigen, vorausgesetzt, daß der Streuquerschnitt mit abnehmender Energie nicht zu stark zunimmt (vgl. Anhang 1.2).

Für eine gute Fokussierung und damit eine gute Energieauflösung ist außerdem ein hohes Atomgewicht des Moderators ausschlaggebend. Große Neutronenintensitäten sind nur zu erreichen, wenn die Absorption im Moderator gering ist. Blei entspricht diesen drei Bedingungen (konstanter Streuquerschnitt, hohes Atomgewicht, kleiner Absorptionsquerschnitt) sehr gut und wird daher üblicherweise als Moderatormaterial des Bremszeitspektrometers verwendet.

Das Neutronenfeld im Bleipile wird durch den orts-, zeitund energieabhängigen Neutronenfluß  $\Phi(\vec{r},t,E)$  hinreichend beschrieben. Die Kenntnis von  $\Phi$  setzt in Strenge die Lösung der instationären energieabhängigen Transportgleichung voraus. Da keine analytische Lösung der allgemeinen Transportgleichung existiert, ist die Berechnung von  $\Phi$  auf diesem Wege nur durch aufwendige numerische Programme möglich. Eine Vereinfachung des Problems ergibt sich aber, wenn man  $\Phi$  in ein Produkt aus drei Funktionen zerlegt:

$$\Phi(\vec{r},t,E) = \varphi_1(\vec{r}) \cdot \varphi_2(t) \cdot \varphi_3(E,\overline{E}(t)) , \qquad (1)$$

das zu ergänzen ist durch eine Beziehung zwischen der mittleren Neutronenergie  $\overline{E}$  und der Bremszeit t.

Im Bereich der rein elastischen Bremsung lassen sich für die einzelnen Komponenten einfache analytische Beziehungen aufstellen. Man erhält also im folgenden vier Grundgleichungen des Bremszeitspektrometers, nämlich über die Beziehung zwischen Bremszeit und mittlerer Energie der Neutronen,  $\overline{E}(t)$ , über die räumliche Verteilung der Neutronen,  $\varphi_1(\vec{r})$ , über die zeitliche Abnahme des Neutronenflusses,  $\varphi_2(t)$  und über die Energieverteilung der Neutronen zu einem bestimmten Zeitpunkt,  $\varphi_3(E,\overline{E}(t))$ .

a) Die Beziehung zwischen mittlerer Neutronenenergie  $\overline{E}$  und der Bremszeit t, also der Zeit vom Start der 14 MeV-Neutronen an, wird in Anhang 1.1 abgeleitet, sie lautet

- 5 -

$$\overline{E} = \frac{C}{(t + t_0)^2}$$
(2)

mit C = 
$$\frac{m_N}{2} A^2 \lambda_s^2$$
 = 167  $\angle keV \cdot \mu sec^2 /$ 

und 
$$t_0 = 0,265 / \mu sec_7$$

Dabei sind 
$$m_N =$$
 Neutronenmasse,  
 $A =$  Atomgewicht von Blei,  
 $\lambda_s =$  Streuweglänge in Blei = 2.71 cm  
( $\stackrel{\bigcirc}{=} \sigma_s = 11.2 \text{ barn}$ ).

Die Konstante C kann experimentell bestimmt werden. Über t<sub>o</sub> läßt sich keine analytische Aussage machen. Der Wert von t<sub>o</sub> hängt im wesentlichen von der Dauer des inelastischen Bremsprozesses ab, er wurde hier durch Monte-Carlo-Rechnungen bestimmt. Eine experimentelle Bestätigung des angegebenen Zahlenwertes ist kaum möglich, da eine Extrapolation von Meßwerten nach Gl.(2) bis t=o zu ungenau ist.

b) Die räumliche Verteilung der Neutronen ergibt sich aus der elementaren Diffusionstheorie  $\sqrt{257}$ . Nach etwa 10 µs Bremszeit entspricht die Neutronenverteilung zu 95% dem Grundmode. Dieser lautet (Anhang 1.3)

$$\varphi_1(\vec{r}) = \Phi_0 \cos \frac{\pi X}{2a} \cos \frac{\pi Y}{2b} \cos \frac{\pi Z}{2c}$$
 (3)

2a, 2b, 2c sind die effektiven Kantenlängen des Bleiquaders.

c) Die zeitliche Abnahme des Neutronenflusses durch Leckage und Absorption im Blei wird beschrieben durch den Ausdruck

$$\varphi_2(t) = \left(\frac{t-t_0}{t_0}\right)^{-(\alpha+1)}, e^{-t/T},$$
 (4)

der ebenfalls in Anhang 1.3 abgeleitet wird,

mit  $\alpha = \frac{A\lambda_s^2 B_o^2}{3} = 0,36$  für den kubischen Pile mit 2 m Kantenlänge

und T = 
$$\frac{1}{\sum_{\substack{p \ abs}}^{pb} \cdot v}$$
 = 810 µs,wobei

 $B_{O}^{2} = \text{geometrische Flußwölbung}$   $\Sigma_{abs}^{Pb} = \text{makroskopischer Absorptionsquerschnitt von Blei,} \\ \text{sein Wert bei v = 2200 m/sec ist 170 mb und proportional 1/v für größere v}$ und

v = Neutronengeschwindigkeit sind.

Die Gleichung (4) folgt aus der Fermi-Age-Theorie in Verbindung mit der instationären Diffusionsgleichung  $\sqrt{257}$ .  $\alpha$  und T sind durch Messung der zeitabhängigen Neutronendichte experimentell bestimmbar.

 d) Die dritte Komponente in Gl.(1), die die Neutronenenergieverteilung zu einem bestimmten Zeitpunkt beschreibt, wird durch die inelastischen und elastischen Streuprozesse und die thermische Bewegung der Bleiatome bestimmt.

Die inelastischen Prozesse führen dazu, daß zu Beginn der rein elastischen Bremsung bereits eine breite Energieverteilung vorliegt. Diese "Anfangsenergieverteilung" für den elastischen Prozeß kann nur numerisch, z.B. durch Monte-Carlo-Rechnungen bestimmt werden (vgl. Abschnitt 2.3). Der Beitrag dieser Anfangsverteilung zur gesamten Breite im elastischen Bereich vermindert sich mit abnehmender Energie durch den Fokussierungseffekt gemäß  $\overline{E}/\overline{E}_A$ , wobei  $\overline{E}_A$  die mittlere Energie der Anfangsverteilung ist (vgl. Anhang 1.2). Die durch die elastische Streuung hervorgerufene Energieverteilungsfunktion wurde in Anlehnung an das von Placzek und Marshak entwickelte Konzept  $\langle \overline{26}, 2\overline{27} \rangle$  von Kazarnowskij  $\langle \overline{287} \rangle$  für Neutronenenergien weit unterhalb der Quellenergie berechnet. Sie wird sehr gut durch eine Gaußfunktion

$$\varphi_{3}'(\frac{E}{E}) = \sqrt{\frac{3A}{16\pi}} \cdot e^{-\frac{3A}{16}(\frac{E}{E}-1)^{2}}$$
 (5)

angenähert, deren Varianz  $\sigma_{el} = \sqrt{8/3A}$  mit der Breite der exakten Verteilung identisch ist. Dieser Wert gilt für Neutronenenergien weit unterhalb der Quellenergie, für die Anfangsverteilung ist  $\sigma_{el} = 0$ ; näherungsweise gilt daher nach  $\sqrt{2}$ 

$$\sigma_{el}^2 = (1 - \frac{\overline{E}}{\overline{E}_A}) \frac{8}{3A}$$

Für Energien unterhalb etwa 10 eV verbreitert sich die Verteilung allmählich infolge der thermischen Bewegung der Bleiatome um  $kT/\overline{E}$   $\langle \overline{2}\overline{7}\rangle$ , wobei  $\frac{3}{2}$  kT die mittlere kinetische Energie eines Bleiatoms ist (vgl. Abschnitt 2.2.3). Da die Gesamtverteilung im Energiebereich zwischen 50 keV und 1 eV im wesentlichen durch die elastische Bremsung bestimmt ist, kann man sie für praktische Zwecke durch eine Gaußfunktion mit der Breite

$$\sigma_{t} = \sqrt{\sigma_{inel.}^{2} + \sigma_{el}^{2} + \sigma_{th}^{2}}$$

darstellen. Durch Einsetzen der einzelnen Beträge erhält man

$$\sigma_{t} = \int (\sigma_{\text{inel.}}^{O})^{2} \cdot \frac{\overline{E}}{\overline{E}_{A}} + (1 - \frac{\overline{E}}{\overline{E}_{A}}) \frac{8}{3A} + \frac{kT}{\overline{E}}$$

Die volle Halbwertsbreite  $\frac{\delta E}{E}$  der Gaußkurve ist dann  $\sqrt{2\ell n 2} \cdot 2\sigma$ .  $\frac{\delta E}{E}$  kann durch die Messung von schmalen Absorptionsresonanzen experimentell bestimmt werden.

### 2.2 <u>Experimentelle Bestimmung der charakteristischen Größen</u> des Bremszeitspektrometers

#### 2.2.1 Die Konstanten der Energie-Zeit-Relation

Als Eichung des BZS bezeichnet man die experimentelle Bestimmung der Konstanten C und t<sub>o</sub> in der Beziehung (2). Der in 2.1 angegebene Zahlenwert von C = 167 keV  $\mu \sec^2$  wurde mit  $\sigma_s^{Pb}$  = 11,194 b (ENDF/BIII),  $\rho^{Pb}$  = 11,255 g/cm<sup>3</sup> = 99,25% der theoretischen Dichte und A = 207,21, dem mittleren Atomgewicht von Blei, berechnet. Sowohl Einfang- als auch Spaltresonanzen, deren Energien genau bekannt sind, können zu einer Überprüfung dieses Zahlenwertes benützt werden. In der bisherigen Literatur über das BZS wurden für C gemessene Werte zwischen 155 und 187 keV· $\mu \sec^2$  angegeben; die großen Unterschiede machen eine erneute Bestimmung erforderlich. Aus Messungen von 20 Einfangresonanzen an 12 Materialien ergab sich die Konstante C zu 166 ± 6 keV  $\mu \sec^2$ . In Abb.1 sind die Resonanzenergien über den gemessenen Bremszeiten aufgetragen. Der Zahlenwert von to hängt wesentlich vom inelastischen Streuprozeß ab. Diese Abhängigkeit soll anhand von Abb.2 kurz erläutert werden, in der der mit Hilfe von Monte-Carlo-Rechnungen (Abschnitt 2.3) ermittelte und der durch Gl.(2) gegebene Verlauf der mittleren Neutronenenergie in Abhängigkeit von der Bremszeit dargestellt ist. In der hier gewählten Darstellung l $\sqrt{\overline{E}}$  über t ergibt die Beziehung (2) eine Gerade. Bei sehr kleinen Bremszeiten liegen die Neutronenenergien über den nach Gl.(2) berechneten Werten. Durch (n,2n)-Reaktionen und inelastische Streuung verlieren die Neutronen sehr schnell ihre Energie. Im Zeitbereich von 10 ns bis etwa 1000 ns ist  $\overline{\mathrm{E}}$  niedriger als durch Gl. (2) gegeben, weil in dem entsprechenden Energiebereich der Streuquerschnitt niedriger ist als der asymptotische Wert von 11,2 b, der die Steigung der Geraden bestimmt. Die Gerade (2) schneidet die Achsen bei E und to. In der Gl.(2) zugrunde liegenden Vorstellung, daß nur elastische Streuung möglich ist, bedeutet E die mittlere Neutronenenergie zur Zeit t=o und to entspricht der Zeit, die nötig ist, um Neutronen von unendlich hoher Energie auf E\_ abzubremsen.

Prinzipiell kann also aus den in Abb.1 dargestellten Meßwerten auch t<sub>o</sub> durch Extrapolation bis  $1/\sqrt{E} = 0$  bestimmt werden  $\langle \overline{2}\overline{7} \rangle$ . Die Anpassung einer Geraden an die Meßwerte durch Minimalisierung der Fehlerquadratsumme ergab  $t_o = 0,1 \pm 0,5 \mu s$ . Der große Fehler von  $t_o$  wird verursacht durch die Zeitunschärfe der Messung von etwa 1 µs und dadurch, daß nur Meßpunkte bei relativ großen Bremszeiten vorliegen.

In früheren Arbeiten  $\langle \overline{7}, 15, 16 \overline{7} \rangle$  wurde t<sub>o</sub> = 0,3 µs als gemessener Wert angegeben. Es ist anzunehmen, daß diese Angaben ebenfalls mit einem Fehler der gleichen Größenordnung behaftet sind, und zwar aus den gleichen Gründen wie in dieser Arbeit. Da die Kenntnis von t<sub>o</sub> für den Vergleich

- 10 -

der Neutronenflüsse in verschieden großen Piles entscheidende Bedeutung hat, ist man wegen des großen experimentellen Fehlers von t<sub>o</sub> auf numerische Rechnungen angewiesen (vgl. 2.3.1).

#### 2.2.2 Die zeitliche Abnahme der Neutronendichte

Die mit einem BF3-Zählrohr gemessene Reaktionsrate ist proportional zur Neutronendichte, da das Produkt Ø · E wegen des 1/v-Querschnitts der  ${}^{10}B(n,\alpha){}^7$ Li-Reaktion unabhängig von der Neutronenengie ist. Damit ergibt sich die Möglichkeit, das Neutronenfeld im Bleipile zeitabhängig ohne Rücksicht auf die Energieverteilung der Neutronen zu messen und so die Beziehung (4) zu verifizieren. Die Darstellung der Meßergebnisse erfolgt in doppelt logarithmischem Maßstab. Die Logarithmierung von (4) ergibt einen linearen Zusammenhang zwischen  $l_{n_{\varphi_2}} \cdot e^{t/T}$  und  $l_n$  t und ermöglicht damit die Bestimmung von  $\alpha \sqrt{157}$ . Abb.3 zeigt die Meßergebnisse, und zwar die gemessene Reaktionsrate im BF2-Zählrohr und die um die Bleiabsorption korrigierten Werte, wobei  $T = 810 \ \mu s$  (1.1) angenommen wurde. Deutlich sichtbar ist eine Stufe bei 180 µs, in der die Neutronendichte um ca. 13% reduziert wird, und eine zunehmende Abweichung von der Geraden bei Energien unterhalb 0,5 eV. Die Störungen des zeitlichen Verlaufs der Neutronendichte sind auf Verunreinigungen im Blei zurückzuführen. Eine Aktivierungsanalyse des in dieser Anlage verwendeten Bleis ergibt folgende Verunreinigungen  $\overline{29/}$ :

As	60	ppm	Sn	<	10	ppm	Cn		30	ppm
Sb	50	ppm	Bi		2	ppm	Zn	۷	10	ppm
Fe	20	ppm	Cd	<	10	ppm	Ag		40	ppm

Die Silberresonanz bei 5,2 eV entsprechend 182 µs führt bei dieser Größe der Verunreinigung zu einer Abnahme der Neutronendichte in der gemessenen Höhe. Die Absorption in den übrigen Resonanzen von Silber und Antimon ist dagegen vernachlässigbar. Die zunehmende Absorption unterhalb 0,5 eV läßt sich nicht allein durch die Silberverunreinigung erklären; Silber trägt im 1/v-Gebiet nur etwa 1,5% zur Absorption bei. Die tatsächliche Zunahme der Absorption unterhalb 0,5 eV kann nur durch eine Cd-Verunreinigung verursacht sein. Eine Abschätzung ergab, daß schon etwa 5 ppm Cd die gemessene zusätzliche Abnahme der Neutronenintensität bewirken.

Aus den Meßwerten in den Zeitbereichen, in denen  $ln\varphi_2 \cdot e^{t/T}$ linear von ln t abhängt, wurde der Wert von  $\alpha$  zu 0,37  $\pm$  0,02 bestimmt, was dem theoretischen Wert fast genau entspricht. Wenn der totale makroskopische Absorptionsquerschnitt proportional 1/v ist, kann auch T =  $\frac{1}{\Sigma abs \cdot v}$  = const aus den Meßwerten bestimmt werden  $l\bar{1}8\bar{l}$ . Das hier verwendete Blei ist aber merklich mit Cd verunreinigt, dessen Absorptionsquerschnitt vom 1/v-Verlauf stark abweicht. T ist deshalb nur oberhalb etwa 0,5 eV konstant, daher ist eine genaue experimentelle Bestimmung nicht möglich.

#### 2.2.3 Das Auflösungsvermögen

Das Auflösungsvermögen des BZS wird durch vier Effekte bestimmt, die in verschiedenen Energiebereichen wirksam sind:

a) Die inelastische Bremsung oberhalb 0,57 MeV führt zu der sogenannten Anfangsverteilung der Neutronenenergien nach Beendigung der inelastischen Stöße. Die mittlere Energie dieser Anfangsverteilung  $\overline{E}_A$  ist nicht eindeutig bestimmt, da sich der Übergang zur rein elastischen Bremsung über einen breiten Energiebereich erstreckt. Zweckmäßigerweise wird  $\overline{E}_A$  so gewählt, daß nur noch ein Bruchteil der Neutronen dieser Anfangsverteilung inelastische Stöße erleiden kann. In früheren Arbeiten wurde  $\overline{E}_A = 100$  keV mit einer vollen Halbwertsbreite  $\delta E_A / \overline{E}_A = 258$ % angegeben  $\langle \overline{27} \rangle$ . Die Monte-Carlo-Rechnungen ergaben, daß  $\overline{E}_A = 250$  keV angenommen werden kann, weil bei dieser mittleren Energie

- 12 -

bereits 95% aller Neutronen Energien unterhalb 0,57 MeV haben. Die entsprechende Anfangsverteilung hat eine volle Halbwertsbreite  $\delta E_A / \overline{E}_A = 200$ %, bei 100 keV ergaben die MC-Rechnungen eine Breite von 125%, was wesentlich unter dem in  $\overline{27}$  angegebenen Wert liegt. Diese bessere Energieauflösung wird durch neuere Rechnungen von Williamson und Albrecht  $\overline{307}$  bestätigt.

b) Die Energie-Zeit-Relation (2) beruht auf Gleichung (A1) in Anhang 1.1, die den Fokussierungseffekt im Bereich der elastischen Bremsung beschreibt. Entsprechend läßt sich aus (2) eine Beziehung zwischen den Breiten und den mittleren Energien zweier Neutronenverteilungen ableiten (Anhang 1.2). Nach (A5) gilt für den Beitrag der Anfangsverteilung zu der Gesamtbreite des Neutronenspektrums

$$\left(\frac{\delta E}{\overline{E}}\right)^2 = \left(\frac{\delta E_A}{\overline{E}_A}\right)^2 \cdot \frac{\overline{E}}{\overline{E}_A}$$

c) Dem Fokussierungseffekt wirkt die Stoßverbreiterung entgegen. Sie wird hervorgerufen durch die statistische Verteilung der Streuwinkel und der Flugweglänge der Neutronen in Blei. Die Überlagerung dieser beiden Effekte führt zu einer inhärenten Breite des Neutronenspektrums /7/

$$\left(\frac{\delta E}{\overline{E}}\right)^{2} = \left(\frac{\delta E}{\overline{E}}\right)^{2} \sim \left(1 - \frac{\overline{E}}{\overline{E}}\right)$$

mit

$$\left(\frac{\delta E}{E}\right)^2 \simeq = \frac{64}{3A} \cdot \ell n \ 2$$

d) Die thermische Bewegung der Moderatoratome bewirkt eine zunehmende Verbreiterung der Neutronenverteilung bei niedrigen Energien. Ein voll thermalisiertes Neutronenspektrum wird durch eine Maxwellverteilung beschrieben. Die der Varianz einer Gaußverteilung entsprechende Breite des Maxwellspektrums ist

$$\langle \Delta v \rangle^2 = \langle v^2 \rangle - \langle v \rangle^2 = (\frac{3}{2} - \frac{4}{\pi}) 2kT/m_N$$

Dabei ist v die Geschwindigkeit und  ${\tt m}_{\rm N}$  die Masse der Neutronen. Ein Maß für die thermische Verbreiterung ist

$$\left(\frac{\delta E}{E}\right)^2 = 8 \ell n 2 \cdot 4 \frac{\langle \Delta v \rangle^2}{\overline{v}^2} \approx 5,0 \frac{kT}{\overline{E}}$$

Eine in  $\sqrt{2}$  durchgeführte Abschätzung ergab den etwas größeren Wert von ungefähr 5,5 kT/E. Insgesamt erhält man damit für die volle Halbwertsbreite des Neutronenspektrums im elastischen Bereich die Beziehung

$$\frac{\delta E}{\overline{E}} = \sqrt{\left(\frac{\delta E_{A}}{\overline{E}_{A}}\right)^{2} \cdot \frac{\overline{E}}{\overline{E}_{A}} + \left(\frac{\delta E}{\overline{E}}\right)^{2}_{\infty} \cdot \left(1 - \frac{\overline{E}}{\overline{E}_{A}}\right) + 5, 0 \frac{kT}{\overline{E}}}$$

$$= \sqrt{0,163 \cdot \overline{E} + 713, 6 + \frac{1263}{\overline{E}}} \text{ in } \$, \qquad (6)$$

wobei  $\overline{E}$  in eV anzugeben ist.

Abb.4 zeigt  $\delta E/\overline{E}$  in Abhängigkeit von  $\overline{E}$  sowie die gemessene Halbwertsbreite einiger Einfangresonanzen als Funktion der Resonanzenergie. Die Meßwerte streuen im Bereich der besten Auflösung um den Mittelwert  $\delta E/\overline{E} = 28$ % und geben im Bereich von Energien >500 eV und < 10 eV die zunehmende Verbreiterung des Spektrums im Rahmen der Meßgenauigkeit wieder. 2.3 Ergebnisse der Monte-Carlo-Rechnungen

Sämtliche das Neutronenfeld im Bleipile bestimmenden Größen können im Prinzip mit Hilfe von Monte-Carlo-Rechnungen ermittelt werden. Man wird sich jedoch aus Rechenzeitgründen auf kurze Bremszeiten beschränken und speziell die Anfangswerte  $t_0$ ,  $E_0$  und  $\delta E/\overline{E}_A$  zu bestimmen versuchen. Des weiteren interessiert die räumliche Verteilung der Neutronen und der Effekt der Abschirmung um den Bleipile.

Hier wurde das Karlsruher Monte-Carlo-Programm KAMCCO verwendet, alle Wirkungsquerschnitte und Kerndaten für Blei wurden dem Kerndatenfile ENDF/B III entnommen und mit dem Programm DASU durch einen linearen Fit den Erfordernissen des Monte-Carlo-Programms angepaßt. Alle Rechnungen wurden für einen kubischen Bleipile mit 2 m Kantenlänge durchgeführt. Soweit notwendig, wurden auch die Abschirmung (borgetränktes Holz) und das Betonfundament berücksichtigt.

## 2.3.1 <u>Berechnung der Neutronenenergie in Abhängigkeit von</u> <u>der Zeit</u>

Aus den unter 25 keV liegenden Wertepaaren  $\overline{E}$  und t, wobei  $\overline{E}$  die mittlere Energie der Neutronendichteverteilung und t die mittlere Bremszeit des Zeitintervalls ist, wurden durch eine Anpassung an Gl.(2) nach der Methode der kleinsten quadratischen Fehler die Konstanten C und t<sub>o</sub> bestimmt. Es ergaben sich

> und C = 168,5 keV· $\mu$ sec<sup>2</sup> t<sub>o</sub> = 0,265 µs.

Die berechneten Wertepaare  $(\overline{E},t)$  sind in Abb.2 dargestellt. Unterhalb 100 keV liegen sie auf der durch Gl.(2) beschriebenen Kurve der rein elastischen Bremsung. Die Abweichungen oberhalb 100 keV werden verursacht durch die andersartigen Bremsprozesse innerhalb der ersten Mikrosekunde, sie wurden bereits in Abschnitt 2.2.1 diskutiert.

#### 2.3.2 Breite und Form des Neutronenspektrums

Durch inelastische Streuung wird zu Beginn des Bremsprozesses eine sehr breite Neutronenenergieverteilung erzeugt, die das Auflösungsvermögen des Bremszeitspektrometers im Energiebereich oberhalb 1 keV verschlechtert.

In Abb.5 ist die berechnete volle Halbwertsbreite des Neutronenspektrums für mittlere Energien oberhalb 1 keV eingetragen. Die Werte stimmen mit der in  $\sqrt{307}$  angegebenen Näherungsformel sehr gut überein, während (6) einen etwas anderen Verlauf hat. Die nach der Theorie erwartete Fokussierung der Anfangsenergieverteilung gemäß  $\overline{E}/\overline{E}_A$  scheint, wie die Ergebnisse der numerischen Rechnungen übereinstimmend zeigen, in Wirklichkeit etwas schwächer von der Energie abzuhängen. Als mögliche Erklärung kann man die allmähliche Abnahme des Streuquerschnitts mit wachsender Energie oberhalb 25 keV ansehen, die den Fokussierungseffekt der elastischen Streuung reduziert (vgl. Anhang 1.2). In Abb.6 ist die Energieverteilung der Neutronendichte zu verschiedenen Bremszeiten dargestellt; man sieht, daß die Neutronen von der breiten Anfangsverteilung sehr schnell zu einem relativ schmalen Spektrum zusammenrücken.

## 2.3.3 <u>Räumliche und energetische Verteilung der Neutronen</u> in der Anfangsphase des Bremsprozesses

Während der Anfangsphase des Bremsprozesses ist die Beschreibung des Neutronenflusses durch den Produktansatz (1) nicht möglich, da der Fluß in komplizierter Weise von  $\overrightarrow{r}$ , E und t abhängt. Die Monte-Carlo-Rechnungen sind geeignet, ein Bild von den Vorgängen in der Anfangsphase zu vermitteln und ermöglichen eine Aussage über ihre Dauer.

In den Monte-Carlo-Rechnungen starten die 14-MeV-Neutronen alle gleichzeitig, entsprechend einer 14-MeV-Pulsbreite O, während man im Experiment mit Pulsbreiten von O,5 bis zu einigen µs arbeitet. Deshalb sind die im folgenden beschriebenen Verhältnisse im Bleipile erst bei Bremszeiten, die größer sind als einige Pulsbreiten, für das Experiment repräsentativ.

Abb.7 zeigt den berechneten Neutronenfluß in Abhängigkeit von der Bremszeit, integriert über verschiedene Raumbereiche und bezogen auf den gesamten Fluß im Bleipile. Am Anfang befinden sich die Neutronen im innersten Bereich, nach 7,5 ns treffen die ersten Neutronen im Bereich 2 ein. Das entspricht etwa der Flugzeit der 14-MeV-Neutronen über die Distanz von 40 cm. Nach 50 ns erreichen die Neutronen den Bereich 3 (80 cm Abstand von der Quelle). Im Spektrum sind hier schon keine 14 MeV-Neutronen mehr vorhanden, die Flugzeit für 14 MeV-Neutronen wäre 15 nsec. Die relativen Neutronenflüsse streben dann asymptotisch gegen konstante Werte, die nach 10  $\mu$ s praktisch erreicht sind. Diese Werte entsprechen dem Grundmode der Neutronenverteilung (Anh.1.3).

Die mittleren Neutronenenergien in den verschiedenen Raumbereichen des Bleipile, relativ zur über den ganzen Pile gemittelten Neutronenenergie, sind in Abb.8 dargestellt. Die schnellsten Neutronen laufen am weitesten nach außen, während in der Pilemitte die bereits gebremsten Neutronen wegen ihrer viel geringeren Ausbreitungsgeschwindigkeit gespeichert werden. Deshalb liegt die mittlere Neutronenenergie im inneren Bereich unter dem Mittelwert aller Neutronen im Pile, während sie in den äußeren Bereichen anfangs weit darüber liegt. Innerhalb kurzer Zeit stellt sich jedoch der Ausgleich ein, so daß bei einer Bremszeit von 10 µs eine einheitliche mittlere Energie im ganzen Pile vorliegt.

- 17 -

Nach 10 µs ist die Anfangsphase abgeschlossen, die räumliche Flußverteilung ist stationär und die Neutronenenergieverteilung über den ganzen Pile einheitlich.

#### 2.3.4 Einfluß der Abschirmung des Bleipiles

Der Bleipile steht auf einem Betonfundament und ist aus Strahlenschutzgründen seitlich und oben durch boriertes Holz abgeschirmt. Das Monte-Carlo-Programm ermöglicht es, die Auswirkung des Betonfundaments und der Abschirmung auf das Neutronenfeld im Bleipile zu untersuchen.

#### Tabelle 1 Durch Rückstreuung verursachter niederenergetischer Anteil des Neutronenspektrums:

$$\frac{\Delta \Phi (E < E_{\rm u})}{\Phi}$$

in Prozent zu

verschiedenen Bremszeiten (E<sub>u</sub> =  $\overline{E}(t)(1 - \frac{\delta E}{\overline{E}(t)})$ ).

Bremszeit Zµs7	Bereich 1 2-40 cm	Bereich 2 40-80 cm	Bereich 3 80 cm - Rand		
2.5	0	0	2.2 %		
10	0.9 %	3.3 %	7.2 %		
45	0	0.8 %	2.6 %		
120	0	0.6 %	1.1 %		

Durch die Abschirmung wird ein Teil der aus dem Bleipile austretenden Neutronen mit niedrigen Energien in den Pile zurückgestreut. Der ohne Abschirmung im Pile vorhandenen gaußförmigen Neutronenergieverteilung überlagert sich dadurch vorwiegend in der Randzone ein niederenergetischer Anteil. Dieser Anteil nimmt relativ zur Zahl der Neutronen, die ohne Abschirmung im Pile vorhanden wären, für Bremszeiten größer als 10 µs ab, weil 1. durch den Fokussierungseffekt die beiden Verteilungen sich mit zunehmender Bremszeit immer mehr überdecken und weil 2. mit abnehmender Energie das Absorption/ Reflexion-Verhältnis der Abschirmung wächst.

Die Rechnungen ergeben, daß im nicht abgeschirmten Pile für Energien, die mehr als eine volle Halbwertsbreite unter der mittleren Energie liegen, nur noch eine verschwindende Anzahl von Neutronen vorhanden ist. Ein Maß für die Störung durch die Abschirmung ist daher der Anteil der Neutronen in diesem Energiebereich bezogen auf die Zahl aller Neutronen. In Tabelle 1 ist dieser Anteil für verschiedene Bremszeiten angegeben.

Der Detektor befindet sich im Bereich 1. In diesem Raumbereich beträgt der niederenergetische Neutronenanteil bei 10  $\mu$ s nur 0,9% und verschwindet mit wachsender Bremszeit. Auf die in Abschnitt 5 behandelten Ergebnisse der Spaltstoffmessungen haben die niederenergetischen Neutronen also keinen merklichen Einfluß. 3. Spaltstoffmessungen an Reaktorbrennstäben mit dem Bremszeitspektrometer

## 3.1 <u>Feststellung der Bestimmungsgrößen einer Spalt-</u> stoffmessung

Das Bremszeitspektrometer kann zur quantitativen Analyse des Spaltstoffgehalts (U-35, Pu-39) in Reaktorbrennstäben verwendet werden  $\sqrt{8}-147$ . Man benutzt dabei die Neutronen in bestimmten Energiebereichen unterhalb 50 keV zur Auslösung der Spaltprozesse. Besonders geeignet zum Nachweis der Spaltung sind die prompten Spaltneutronen, die wegen ihrer hohen Energie von den Neutronen zu diskriminieren sind, die die Spaltung auslösen. Die Zahl der schnellen Neutronen ist ein Maß für den Gehalt an spaltbarem Material, da unterhalb 50 keV keine Spaltungen in U-38 ausgelöst werden. Durch die Auswahl geeigneter Energieintervalle ergibt sich die Möglichkeit einer Diskriminierung zwischen U-35 und Pu-39.

Zwischen dem Meßwert (Zahl der gemessenen Spaltneutronen) Z, der Spaltrate R und der Spaltstoffmenge M besteht folgender Zusammenhang:

$$Z = \overline{\nu} \cdot \varepsilon \cdot R = \overline{\nu} \cdot \frac{L}{A} \cdot \varepsilon \cdot \Phi \cdot I_{eff} \cdot M$$
 (7)

Dabei ist

 $\overline{v}$ mittlere Zahl der prompten Spalt-= neutronen pro Spaltung, Empfindlichkeit der Zählrohrbank, = ε. = Loschmidt-Zahl,  $\mathbf{L}$ Atomgewicht des Spaltstoffs, Α = ungestörter Fluß, Φ I<sub>eff</sub> = effektiver lethargieintegrierter Spaltquerschnitt des Spaltstoffs (Anhang 2).

Das Lethargieintegral über dem Wirkungsquerschnitt wird als Resonanzintegral bezeichnet, wenn es sich über den gesamten Energiebereich von der Cd-Abschneidegrenze bis zu einigen MeV erstreckt.

Die Resonanzselbstabschirmung bildet das Hauptproblem bei Spaltstoffmessungen im Resonanzbereich, weil durch sie der lineare Zusammenhang zwischen Spaltrate und Spaltstoffmenge aufgehoben wird. Deshalb kann man aus den Meßwerten nur mit Hilfe von Eichdiagrammen Spaltstoffmengen bestimmen. Der Aufwand an Eichmessungen zur Erstellung dieser Diagramme kann erheblich reduziert werden durch geeignete numerische Verfahren zur Berechnung der Selbstabschirmung (Kap.6). In Kapitel 4 wird ein funktionaler Zusammenhang zwischen den selbstabgeschirmten Spaltraten, dem Spaltstoffgehalt sowie dem Durchmesser der Brennstäbe abgeleitet. Das erlaubt eine Übertragung der Eichdiagramme auf Stäbe mit anderer Anreicherung und anderem Durchmesser, was von großer Bedeutung für die praktische Anwendbarkeit dieser Methode in der Spaltstoffflußkontrolle ist.

Im folgenden sollen kurz Fragen im Zusammenhang mit der Mindestgröße des Bleipiles und der geeigneten Energiebereiche diskutiert werden.

#### 3.1.1 Abschätzung der minimalen Größe des Bleipiles

Für die Anwendung ist es interessant, mit einem möglichst kleinen Pile auszukommen. Hier sind jedoch Grenzen gesetzt durch den zunehmenden Ausfluß der Neutronen. Die zeitabhängigen Neutronendichten verschieden großer Piles werden durch das Fermialter der Neutronen bei der jeweiligen Energie bestimmt.

Bei der Berechnung des Fermialters



ist im allgemeinen die Energieabhängigkeit des Streuquerschnitts  $\Sigma_s$  zu berücksichtigen. Man erhält den richtigen Wert von  $\tau$  aber auch, wenn man den konstanten Streuquerschnitt des elastischen Bereichs benutzt und für  $E_o$  diejenige effektive Quellenergie einsetzt, die sich aus (2) für t=o ergibt, nämlich 2,4 MeV.

So erhält man z.B. bei einer mittleren Energie von 100 eV das Fermialter r (100 eV) = 2617 cm<sup>2</sup> in guter Übereinstimmung mit einem Wert von 2600 cm<sup>2</sup>, der auf numerischen Berechnungen basiert  $\sqrt{3}1$ .

Der Neutronenfluß



 $(B_0^2 = geometrisches Buckling)$ 

ist in Abb.9 für einen kubischen Pile mit 100, 130 bzw. 200 cm Kantenlänge als Funktion der Energie dargestellt.

Wichtig für die Anwendung ist neben dem Absolutwert des Neutronenflusses auch das Verhältnis von Signal zu Untergrund. Der Untergrund besteht hauptsächlich aus 14-MeV-Neutronen, die der Beschleuniger zwischen den Pulsen erzeugt, und den Spontanspaltneutronen der Brennstäbe, die Plutonium enthalten. Daneben ist der Untergrund, der von verzögerten Spaltneutronen herrührt, vernachlässigbar, er beträgt im Energiebereich oberhalb 10 eV weniger als 0,1% des von den prompten Spaltneutronen erzeugten Signals. In Tabelle 2 sind für die drei Piles die Zählraten (Impulse/g·s) von U-35 und spaltbarem Plutonium angegeben, die auf den am 2 m - Pile gemessenen Werten beruhen. Außerdem enthält die Tabelle gemessene Werte des Signal-zu-Untergrund-Verhältnisses. Diese Werte könnten mindestens um einen Faktor 30 verbessert werden, wenn der Deuteronenstrahl durch Abschalten der Ionenquellspannung zwischen den 14-MeV- Impulsen unterbrochen und nicht nur elektrostatisch abgelenkt würde. Für den Vergleich mit den kleineren Piles wurde deshalb dieses um einen Faktor 30 verbesserte Signal-zu-Untergrund-Verhältnis zugrunde gelegt.

		Signal/g s		Signal/Untergrund				
		11-35	D11-30	U	-35	Pu-39+41		
			+41	gemessen	berechnet	gemessen	berechnet	
	200 cm	64	50	69	2070	28.6	105	
l keV	130 cm	16.4	12.9		532		27	
	100 cm	1.8	1.4		59		3	
	200 cm	26.0	45.5	28	840	21.6	87	
100 eV	130 cm	2.1	3.7		68		7.1	
	100 cm	0.13	0.22		4.0		0.42	
	200 cm	9.8	20.1	10.7	322	8.0	38.6	
10 eV	130 cm	0.44	0.90		14.5		1.76	
	100 cm	0.015	0.029		0.44		0.055	

Tabelle 2Gemessene und berechnete Spaltneutronenzahlen und<br/>Signal-zu-Untergrund-Verhältnisse in verschieden<br/>großen Bleipiles

Daten der Meßwerte: Stäbe mit 2% Spaltstoffanreicherung, 8,8 mm Durchmesser, 1 m Länge; Empfindlichkeit der Zählrohrbank 0,3%, mittlere 14 MeV-Neutronenquellstärke 5x107 n/s bei einer Pulsbreite von 3.6 µs.

Der Pile mit 100 cm Kantenlänge ist nur im Energiebereich oberhalb 1 keV verwendbar. Der 1,3 m-Pile ist für Uranstäbe bis herunter zu 10 eV verwendbar, für Plutoniumstäbe ist wegen der Spontanspaltung das Signal-zu-Untergrund-Verhältnis bei 10 eV schon zu klein. Für Energien unterhalb 10 eV kommt nur der 2 m-Pile in Frage.

- 23 -

#### 3.1.2 Messungen im Resonanzbereich

Im Bereich aufgelöster Resonanzen, also etwa zwischen 0,2 und einigen 100 eV, zeigen die Meßwerte von U-35 und Plutonium deutliche Strukturen, die dem mittleren Verlauf der Wirkungsquerschnitte entsprechen. Wegen des schlechten Auflösungsvermögens des Bremszeitspektrometers ist es jedoch kaum möglich, einzelne Resonanzen zu isolieren. In Abb.10 ist der typische Verlauf der Spaltraten von Pu-39 und U-35 anhand von Spaltkammermessungen wiedergegeben. Dabei ist die Pu-Resonanz bei 7,82 eV mit Mühe zu identifizieren, ebenso die Uran-Resonanz bei 8,78 eV. Gut aufgelöst werden die Pu-Resonanz bei 0,3 eV und die U-35-Resonanzen bei 1,14 eV und 2,6/3,8 eV.

Die Spaltneutronenmessungen von Brennstäben unterscheiden sich von den Spaltkammermessungen durch folgende Effekte:

- a) Mit den Protonenrückstoßzählrohren wird die Zahl der Spaltneutronen und nicht die Spaltrate gemessen.
- b) Die Brennstäbe bestehen aus Uranoxid bzw. einer Mischung von Uranoxid und einigen Prozent Plutoniumoxid. Der U-38-Anteil des Urans liegt zwischen 94% und 98%. In den Absorptionsresonanzen des U-38 wird der Fluß in den Stäben stark abgesenkt. Gemittelt über den gesamten Meßbereich ergibt sich jedoch nur eine 4%ige Reduktion der Spaltraten. Diese Reduktion ist für alle Stäbe ungefähr gleich, weil der relative Anteil der U-38 nur geringfügig variiert.
- c) Bei den hier verwendeten Brennstäben mit Durchmessern bis 1,2 cm und Spaltstoffanreicherungen bis 6% tritt erhebliche Selbstabschirmung auf, die die gemessene Zahl der Spaltneutronen pro Gramm Spaltstoff bis zu 40% reduziert.

- d) Bei Brennstäben, die angereichertes Uran und Plutonium enthalten, wird der Meßwert durch die wechselseitige Abschirmung der beiden Spaltstoffe zusätzlich um 2 bis 4% reduziert.
- e) Neben Pu-39 trägt auch Pu-41 (Pu-41/Pu-39-Verhältnis 1-6%) zur Spaltrate bei. Die Meßwerte lassen sich als Funktion der gesamten Menge spaltbaren Plutoniums darstellen. Diese Funktion (vgl. 4.1) enthält zwei Anpassungsparameter, die vom Pu-41/Pu-39-Verhältnis abhängen.

#### 3.1.3 Auswahl der Energieintervalle

Ist in einem Reaktorbrennstab sowohl Uran-235 als auch Plutonium vorhanden, etwa wenn rezyklierter Brennstoff verwendet wird, kann die Menge von U-35 und Plutonium durch Messung der Spaltneutronenzahlen als Funktion der Neutronenenergie getrennt bestimmt werden. Man benutzt dabei die großen Unterschiede der Spaltquerschnitte von U-35 und Pu-39, die auch im Bleipilespektrum noch deutlich werden.

Wie gut die beiden Spaltstoffe zu diskriminieren sind, zeigt das Verhältnis der Spaltneutronenzählraten pro Gramm Spaltstoff in Abhängigkeit von der Energie (Abb.11), das aus Messungen von Teststäben mit verschiedenen Anreicherungen durch Extrapolation auf unendliche Spaltstoffverdünnung bestimmt wurde. Die Werte im Minimum bei 40 eV und im Maximum bei 15eV unterscheiden sich fast um einen Faktor 4.

Aus praktischen Gründen verwendet man zur Spaltstoffbestimmung nicht den gesamten in Abb.11 dargestellten Energiebereich, sondern beschränkt sich auf mindestens zwei Intervalle i, für die das Spaltneutronenverhältnis möglichst große Unterschiede zeigt. Zur getrennten Bestimmung der Mengen M(U-35) und M(Pu) von spaltbarem Uran und Plutonium aus den Meßwerten Z<sub>i</sub> ist bei Vernachlässigung von Abschirmungseffekten ein Gleichungssystem der Art

$$Z_{i} = A_{i}M(U-35) + B_{i}M(Pu)$$
,  $i = 1, 2, ...$ 

zu lösen, wobei die  $A_i$  und  $B_i$  durch Messung von geeichten Stäben vorher zu bestimmen sind. Die Resonanzselbstabschirmung und die wechselseitige Abschirmung bewirken, daß die  $A_i$  und  $B_i$  nicht konstant, sondern wiederum von den Spaltstoffmengen M(U-35) und M(Pu) abhängig sind (Abschnitt 4).

Durch die Verwendung von mehr als zwei Energieintervallen ist das System überbestimmt, da es nur die zwei Unbekannten M(U-35) und M(Pu) enthält. Damit ergibt sich eine gewisse Kontrollmöglichkeit im Hinblick auf Meßfehler, aber auch eine höhere Sicherheit gegen Betrugsversuche (Abschnitt 4.3). In den drei in der Abbildung gekennzeichneten Bereichen, die für die weiteren Messungen ausgewählt wurden, ist das Verhältnis der Spaltneutronenzählraten von Plutonium zu Uran im Mittel 1,675 (EI), 0,890 (EII) und 2,475 (EIII).

Da die Genauigkeit der Spaltstoffbestimmung nicht nur von den statistischen Fehlern der Meßwerte abhängt, sondern auch von der Größe des Diskriminationsfaktors (dem Verhältnis der Spaltneutronenverhältnisse in zwei Energiebereichen), kann die Breite der ausgewählten Energieintervalle optimalisiert werden im Hinblick auf einen kleinsten Fehler bei den ermittelten Spaltstoffmengen. Danach ergeben sich für die drei in der Abbildung angegebenen Bereiche die Energiegrenzen 57-110eV(EI), 25-45eV(EII) und 10-17.6 eV (EIII).

Die Verwendung der Resonanzen unterhalb von 7 eV erweist sich als nicht praktikabel, obwohl hier die Unterschiede im Spaltneutronenverhältnis größer sind. Der Grund dafür ist einmal die sehr große Selbstabschirmung, die in der 0.3eV-Resonanz von Pu-39 auftritt, zum anderen sind es die geringen Zählraten mit einem Signal-zu-Untergrund-Verhältnis kleiner als 1.

Im Energiebereich oberhalb einiger keV sind die Abschirmungseffekte vernachlässigbar, da die Wirkungsquerschnitte keine ausgeprägte Resonanzstruktur mit extrem hohen Maximalwerten mehr zeigen. Das wäre für die Spaltstoffbestimmung vorteilhaft, wenn auch in diesem Bereich eine Diskrimination zwischen Uran und Plutonium möglich wäre. Das Spaltneutronenverhältnis ist jedoch im keV-Bereich nahezu konstant, der Diskriminationsfaktor also in der Nähe von 1, was eine Trennung der Beiträge der einzelnen Spaltstoffe zur gesamten Spaltneutronenzählrate eines Stabs unmöglich macht.

#### 3.2 Aufbau und Durchführung der Experimente

#### 3.2.1 Beschreibung der Anlage

Das Bremszeitspektrometer (Abb.12) besteht aus einem kubischen Bleipile mit 2 m Kantenlänge, einem Neutronengenerator vom Cockcroft-Walton-Typ (Fa. Accelerators Inc., USA) und der Nuklearelektronik. Die verwendeten Bleiziegel haben nicht den vom Hersteller angegebenen Reinheitsgrad von 99,99%, wie aus Messungen der zeitabhängigen Neutronendichte und einer Aktivierungsanalyse hervorgeht (vgl. Abschnitt 1.2.2). Im Bleipile befinden sich zwei zentrale, horizontal liegende Kanäle (10x10 cm), und zwar ein durchgehender Meßkanal und ein bis zur Mitte führender Targetrohrkanal.

Die 14-MeV-Neutronen werden in 85 cm Tiefe in einem Tritium-Titan-Target durch die  $T(d,n)\alpha$ -Reaktion erzeugt. Der mit 150 kV beschleunigte Deuteronenstrahl wird durch zwei gepulste elektrostatische Ablenksysteme kurzzeitig auf das Target gelenkt.

- 27 -

Mit einer U-238-Spaltkammer in der Nähe des Targets wurde der zeitliche Verlauf der Neutronenerzeugung gemessen (Abb.13). Das erste Zeitmoment dieser Verteilung diente zur Bestimmung des Zeitnullpunktes für den Abbremsvorgang, da die zeitliche Verschiebung zwischen der Verteilung der Quellneutronen und der Verteilung der Neutronen mit Energien über 1 MeV, die in der Spaltkammer registriert werden, vernachlässigbar ist.

Im Meßkanal befindet sich der Brennstoffstab zentral zwischen vier Protonen-Rückstoß-Proportionalzählrohren. Die durch die prompten Spaltneutronen ausgelösten Zählrohrsignale werden über Vorverstärker, Hauptverstärker mit Impulsformung und eventuell Diskriminator in einem Vielkanalanalysator (Fa. TMC, 256 Kanäle) als Pulshöhenverteilung oder in Form eines Flugzeitspektrums registriert. Das Flugzeitspektrum ist die zeitliche Verteilung der Zählrohrsignale bezogen auf einen Startzeitpunkt, der hier dem Beginn des Abbremsvorgangs entspricht. Der Vielkanalanalysator kann nach einem Startimpuls mehrere Zählrohrimpulse speichern, falls ihr zeitlicher Abstand größer ist als 16  $\mu$ s, der Verarbeitungszeit für einen Impuls im Analysator.

Drei Bohrungen mit 36 mm Durchmesser und 60 cm Tiefe befinden sich in 45,65 und 85 cm Abstand vom Rand auf einer Flächendiagonalen. Sie enthalten ein BF<sub>3</sub>-Zählrohr, eine U-35-Spaltkammer und die U-38-Spaltkammer zur Kontrolle des Neutronenfeldes. In einem Blockschaltbild (Abb.14) ist der Aufbau der Meßanordnung dargestellt.

#### 3.2.2 Protonenrückstoßzählrohre und Vorverstärker

Durch Vergleich mit anderen Methoden  $\sqrt{97}$  ergab sich, daß lange, zylindrische Protonenrückstoßproportionalzählrohre zur Messung schneller Neutronen im Bleipile besonders geeignet sind. Die Störung des Neutronenfeldes ist relativ gering und man

- 28 -
erhält einen integralen Wert über einen großen Abschnitt eines Brennstabes. Die hier verwendeten vier Zählrohre sind 1 m lang und haben einen Durchmesser von 44 mm. Für die aus dem Brennstab austretenden Spaltneutronen liegt die Empfindlichkeit bei etwa 0,3%. Die Zählrohre werden mit 3,6 kV betrieben, was einer Gasverstärkung von 10 entspricht. Die mittlere Driftzeit der im Zählrohr erzeugten Ladungen wurde nach den Angaben von Werle  $\sqrt{327}$  zu 0.3 µs bestimmt, die energetische Auflösung liegt bei 8%  $\sqrt{337}$ .

Während des 14-MeV-Beschleunigerimpulses (Flash) werden im Detektor viele Impulse registriert. Da bereits einige  $\mu$ s nach dem Flash Spaltneutronen nachgewiesen werden sollen, muß das von den 14-MeV-Neutronen erzeugte Signal rasch abklingen. Daher wird ein stromempfindlicher Vorverstärker verwendet, der Impulsraten bis 10<sup>5</sup>/sec ohne pile-up verarbeiten kann  $\langle \bar{3}4\bar{7}$ . Bei den hier im Flash auftretenden Impulsraten von 10<sup>6</sup>/sec ist der Vorverstärker schon 1-2 µs nach Ende des Flashs wieder voll zählfähig, so daß das BZS bis zu Energien von 30 keV benutzt werden kann.

Die Amplitude des Stromimpulses im Vorverstärker ist durch die spezifische Ionisation der registrierten Teilchen bestimmt. Die von  $\gamma$ -Quanten in der Zählrohrwand ausgelösten Elektronen haben eine wesentlich geringere spezifische Ionisation als die von Neutronen erzeugten Rückstoßprotonen. Durch eine geeignete Schwelle kann daher gegen die  $\gamma$ -Impulse diskriminiert werden. Diese Schwelle liegt bei einer mittleren Neutronenenergie von etwa 600 keV. Ein konstanter, nur von der Form des Spaltspektrums abhängiger Teil der Rückstoßprotonenimpulse fällt ebenfalls unter diese Schwelle. Der Einfluß der Spaltspektren auf die Empfindlichkeit der Zählrohre wird in Abschnitt 6.1.3 behandelt.

- 29 -

#### 3.2.3 Spaltstoff-Teststäbe

Zur Untersuchung der Abhängigkeit der Spaltrate vom Spaltstoffgehalt bei verschiedenen Neutronenenergien stand ein Satz von Teststäben zur Verfügung, deren Spezifikationen in Tabelle 3a enthalten sind. Die Anreicherungen von U-35 und spaltbarem Plutonium liegen etwa bei Werten, die für thermische Reaktoren üblich sind. Ein weiterer Satz von Testbrennstäben mit ungesintertem Brennstoff wurde ebenfalls bei den Messungen verwendet. Er weist neben der geringeren Dichte auch eine andere Plutoniumzusammensetzung auf. Die Daten dieser Stäbe sind in Tabelle 3b aufgeführt.

#### 3.2.4 Durchführung der Messungen

Da bei dem hier benutzten Beschleuniger der Deuteronenstrahl zwischen den 14-MeV-Impulsen elektrostatisch abgelenkt und nicht durch periodisches Abschalten der Absaugspannung der Ionenquelle unterbrochen wird, ist der Neutronenuntergrund relativ hoch. Das Verhältnis zur Neutronenintensität im 14-MeV-Impuls beträgt etwa 10<sup>-5</sup>, es ist also mindestens um einen Faktor 30 schlechter als bei Beschleunigern mit einem gepulsten Ionenstrahl. Da sich der Neutronenuntergrund des Beschleunigers mit dem Betriebszustand änderte, waren häufige Untergrundmessungen notwendig.

Die Verstärkung des Zählkanals wurde mit einer Standardneutronenquelle (5 C Am-Be) überwacht. Das war notwendig, weil die Impulshöhenverteilung der Protonenrückstoßproportionalzählrohre mit wachsender Impulshöhe steil abfällt und daher kleine Änderungen des Verstärkungsfaktors zu erheblichen Änderungen der Nachweiswahrscheinlichkeit führen. Ein einzelner Meßzyklus beginnt mit dem Triggerimpuls des Hauptimpulsgebers; dieser steuert die Hochspannungsimpulsgeräte, die den Deuteronenstrahl zur Erzeugung des 14-MeV-Impulses kurzzeitig

- 30 -

 $(0,5 - 4 \ \mu s)$  auf das Target lenken. Einige Mikrosekunden nach Ende des Targetimpulses wird der TMC-Vielkanalanalysator gestartet, der die Impulse von der Zählrohrbank in ihrer zeitlichen Folge registriert. Da die Zählrohre durch Cadmium abgeschirmt sind, werden nach einer Bremszeit von 1250 µs, entsprechend einer Neutronenenergie von etwa 0,1 eV, keine Spaltungen im Teststab mehr ausgelöst, so daß ein neuer Zyklus gestartet werden kann.

Die Dauer einer Messung war durch das Erreichen einer vorgegebenen Impulszahl der als Monitor verwendeten U-35-Spaltkammer bestimmt. Die Monitorvorwahl war so eingestellt, daß bei jeder Teststabmessung etwa 2,5 x  $10^6$  Zyklen ( $\approx 50$  min) durchlaufen werden. Danach erfolgte stets eine Untergrundmessung mit etwa  $10^6$  Zyklen ( $\approx 20$  min) und eine Messung der Standardquelle. Die Messungen mit der Standardquelle ergaben, daß die Empfindlichkeit sich von Messung zu Messung um im Mittel 0,6% änderte. Die maximalen Abweichungen der Empfindlichkeit vom Mittelwert betrugen über einen Zeitraum von 20 Tagen ± 2%. Die einzelnen Teststabmessungen wurden nach Abzug des Untergrunds mit Hilfe der jeweiligen Standardquellenmessung auf gleiche Empfindlichkeit normiert.

Die in jedem einzelnen Kanal des Analysators gemessenen Zählraten wurden nach der Formel

$$z_{i}^{korr}(t) = z_{i}(t)(1 + \frac{1}{N_{ZYk1}} \cdot \sum_{j=i-\frac{\tau}{KB}}^{j=i-1} z_{j}(t))$$

bezüglich der Totzeit korrigiert. Dabei ist  $Z_{i}^{korr}(t)$  die totzeitkorrigierte und  $Z_{i}(t)$  die gemessene Zählrate in Kanal i,  $Z_{j}(t)$  die gemessene Zählrate in einem Kanal j < i,  $N_{Zyk1}$  ist die Zahl der gemessenen Zyklen, KB die Kanalbreite in  $\mu$ s und  $\tau = 16 \ \mu$ s die Totzeit des Anasysators. Die erforderlichen Korrekturen lagen zwischen 0,5 und 1,5%.

- 31 -

Stab Nr.	Durchmesse	r Anreicherung	Spaltstoffmenge	Stab Nr.	. Durchmess	ser Anreich	erung Gew.8	Spalts	toffmenge	a
	d /mm7	U-35 /Gew.87	M(U-35) /q/		d /mm/	<b>U-35</b>	Pu39+41	- М(U−35	)M(Pu39+41	)
		Reine Uranstäl	be			"Reine" Pl	utoniumstäb	e		
ר דז ג	0 0	0.2	1 12							
	8.8	2	1.13	א נוס ג	8 8	0.2	2	1 09	10.91	
	0.0	2 5	10.91	$\lambda D_{11} 7$	0.0	0.2	2 5	1.04	18 93	
	0.0	5.5	19.10	APU /	0.0	0.2	5.5	1.09	32 50	
AU 4	0.0	0	. 10.27		0.0	0.2	0	1.00	10 60	
AU IO	II.7 E O	2	19.27	APU II		0.2	2	1.90	19.09	
AU 12	5.0	0	10.50	APU IS				0.33	10.09	
Allgeme	Allgemeine Daten: Dichte 10.2 /g/cm <sup>3</sup> /					Comicabto	Stäbo			1
Dluton	iumroletore	Länge 1000±3	$\overline{\mathrm{mm}}$	<b>ND11 Q</b>	0 0	Jemischile 2	3 cabe	10 47	19 70	32
P LUCOIL.	Iunivertor:	Pu39 77.603%	Pu41 4.4678 Pu42 1.1308		0.0	2	J.J 7	10.47	10.79	
		Pu40 16.434%		APU 9	0.0	5.5	2	10.02	10.59	
				gesintert	tom Bronnst	toff				
		Reine Uranst	ihe	gesincer	Celli Di ellinsi	"Reine" Pl	utoniumstäb	۵		
5101	11 5	2	11 97	55 5	57	0 7	12 5	0 99	18 20	
C+ 1	11.5	2 5	15.05	556	5.7	0.7	15	0.96	21 76	
	11.5	2.5	19.09		5.7	0.7	25	0.90	21.70	
		J	10.00		J./					
Allgemeine Daten: Dichte 6.4 /g/cm <sup>3</sup> /										
		Länge: 984±2	<u>/mm</u> /							
Pluton	iumvektor:	Pu39 90.875%								
		Pu41 0.856%								
		Pu42 0.040%								
L										

Tabelle 3 Spezifikation der Teststäbe

3a: Stäbe mit gesintertem Brennstoff

Bei der Anwendung der Beziehung (2) auf Testergebnisse ist zu berücksichtigen, daß die tatsächliche Bremszeit t der Neutronen im Blei, aus der sich die mittlere Neutronenenergie  $\overline{E}$  ergibt, nicht immer mit der Zeit identisch ist, zu der eine durch diese Neutronen ausgelöste Reaktion registriert wird. Bei der Verwendung von zylindrischen Protonenrückstoß-Proportionalzählrohren durchfliegen die Neutronen eine Strecke, die etwa der mittleren Sehnenlänge des Meßkanals  $\overline{\ell}$ = 10 cm entspricht, ohne dem Bremsprozeß zu unterliegen, bevor sie im Brennstab Spaltungen auslösen können. Die mittlere Flugzeit durch den Meßkanal, At, hängt ab von der mittleren Neutronengeschwindigkeit  $\overline{v}$  gemäß At =  $\overline{\ell}/\overline{v}$ . Das Spaltereignis findet also statt zu einer Zeit (vgl. Anhang 1.1)

$$t' = t + \Delta t = \frac{A\lambda}{\nabla} - t_0 + \frac{\vec{\ell}}{\nabla}$$

Der Flugzeiteffekt kann daher korrigiert werden durch eine Veränderung der Konstanten C in Gl.(2) um den Faktor

$$\left(\frac{A\lambda_{s} + \ell}{A\lambda_{s}}\right)^{2} = 1,03 ,$$

so daß für die Brennstabmessungen mit den Protonenrückstoßzählrohren gilt

$$C^* = 172 \text{ keV} \mu \text{sec}^2$$
.

Bei der Registrierung der Spaltungen ist die Driftzeit der von den Rückstoßprotonen im Zählrohr erzeugten Ionisationsspuren zum Zähldraht in Höhe von O.3  $\mu$ s (Abschnitt 3.2.2) zu berücksichtigen. Die Spaltereignisse werden um diese Zeitspanne verzögert in Zählrohrimpulse verwandelt und im Vielkanalanalysator gespeichert, also mit einer Zeit t"=t'+O.3 registriert, was ebenfalls in die Berechnung der mittleren Neutronenergien eingeht. Man erhältalso aus den gemessenen Zeiten t" eine modifizierte Energie-Zeit-Relation

$$\overline{E} = \frac{C^{*}}{(t'' - 0.3 + t_{0})^{2}}$$
(2<sup>\*</sup>)

#### 3.3 Meßfehler

#### 3.3.1 Meßfehler hinsichtlich der Größe der Meßwerte

Bei der Abschätzung der Meßfehler ist zu unterscheiden zwischen statistischen Fehlern, mit denen jede Zählrate behaftet ist, und Fehlern, die durch Fluktuationen des Neutronenuntergrunds und des Verstärkungsfaktors entstehen. Der gesamte statistische Fehler eines Meßwertes setzt sich zusammen aus

- a) den statistischen Fehlern der Stabmessung (0,5-1%),
- b) den statistischen Fehlern der Untergrundmessung (3,5-6%),
- c) dem statistischen Fehler der Standardmessung (0,3%).

Dabei wird der Untergrundfehler nur in dem Maße berücksichtigt, wie der Untergrund zum Gesamtmeßwert beiträgt.

Die Fluktuation des Untergrunds von Messung zu Messung lag im allgemeinen zwischen 5 und 10%. Da der Beitrag des Untergrunds zum gesamten Meßwert zwischen 1 und 8% lag, ergab sich daraus ein typischer Fehler von 0,15% und ein maximaler Fehler von 0,4%. Bei AU-1, dem Stab mit abgereichertem Uran, betrug der Untergrund 21-44% des gesamten Meßwerts, die Spaltneutronenzahlen einer Messung waren daher mit einem Fehler von 2-5% behaftet.

Die mittlere Abweichung einer Standardquellenmessung vom Mit-

telwert war ±0,6%. Die Tagesmittelwerte, aus 5-8 Standardmessungen gebildet, lagen innerhalb dieser Schranken. Es trat während des Meßzeitraums von 20 Tagen keine Langzeitdrift auf.

Bei der Berechnung des gesamten Fehlers eines Meßwertes wurden anstelle der statistischen Fehler des Untergrunds und der Standardquelle die gemessenen mittleren Fehler verwendet. Damit ergaben sich für eine einzelne Stabmessung Fehler zwischen 1% und 2% (bei AU-1 3,5%). Jeder Stab wurde zwischen drei- und zehnmal (AU-1 dreizehnmal) gemessen, so daß der Fehler der aus diesen Messungen gemittelten Stabmeßwerte bei allen Stäben ≦ 1% war. Die Einzelmeßwerte der Stäbe lagen meist innerhalb dieser Fehlergrenzen.

#### 3.3.2 Meßfehler hinsichtlich der Lage der Meßzeitintervalle

Die gemessenen Spaltneutronenzahlen sind integrale Werte über ein Bremszeitintervall  $t_1$  bis  $t_2$ . Im Experiment entsprechen  $t_1$  und  $t_2$  den Zeitdifferenzen zwischen dem zeitlichen Mittelwert der 14-MeV-Neutronenverteilung und dem Öffnen des ersten bzw. Schließen des letzten Kanals des ausgewählten Zeitintervalls.

Bei den Teststabmessungen liegt das Startsignal des Zeitanalysators zeitlich hinter dem 14-MeV-Flash. Entsprechend setzten sich die Zeiten  $t_1$  und  $t_2$  additiv aus den Zeitdifferenzen zwischen dem 14-MeV-Impuls und dem Startsignal und zwischen dem Startsignal und den Intervallgrenzen zusammen. Die Lage des 14-MeV-Pulses relativ zum Startsignal wurde durch Messung der Zeitverteilung der schnellen Neutronen nahe beim Target mit der U-38-Spaltkammer bestimmt. Diese Verteilung (Abb.13) hatte eine Halbwertsbreite von 3,6 µsec, der zeitliche Mittelwert lag bei 5,35 ± 0,05 µs. Bei den Teststabmessungen wurde der TMC mit genau 10 µs Verzögerung gestartet. Da der Zeitnullpunkt des Bremsprozesses durch den zeitlichen Mittelwert

- 35 -

der 14-MeV-Neutronenverteilung bestimmt wird, die Spaltkammer jedoch für alle Neutronen oberhalb 1 MeV entsprechend 50 ns Bremszeit empfindlich ist, muß der zeitliche Mittelwert der gemessenen Verteilung um 25 ns korrigiert werden. Das ergibt für die Zeitdifferenz zwischen der 14-MeV-Neutronenverteilung und dem Startsignal den Wert von 10-5,35+0,025= 4,675±0,05 μs.

Das Öffnen und Schließen der Kanäle des Zeitanalysators relativ zum Startimpuls erfolgt mit einer Zeitunschärfe von 30 ns. Insgesamt lassen sich also die Grenzen t<sub>1</sub> und t<sub>2</sub> des Meßzeitintervalls mit einer Genauigkeit von  $\pm \sqrt{0,05^2+0,03^2} = \pm 0,06 \ \mu s$ angeben.

Wegen der in Abschnitt 2.2.4 erwähnten Flugzeit- und Drifteffekte sind die Grenzen der Meßzeitintervalle nicht identisch mit den Bremszeiten derjenigen Neutronen, deren Reaktionen gerade an diesen Grenzen registriert werden können. Die Korrekturen, die zu der modifizierten Energie-Zeit-Relation  $(2^{*})$ führten, entsprechen Mittelwerten von Verteilungen, wodurch die nach  $(2^{*})$  berechneten mittleren Neutronenenergien ebenfalls mit diesen Verteilungen behaftet sind. Die dadurch entstehende Verbreiterung des Neutronenspektrums in der Größenordnung von 0,5% ist jedoch vernachlässigbar, da die Breite der Energieverteilung gemäß Gleichung (6) höchstens mit einer Genauigkeit von  $\pm 1$ % angenommen werden kann.

### 3.4 Meßergebnisse

In den folgenden Darstellungen der Meßergebnisse sind die Teststäbe in vier Gruppen eingeteilt, derart, daß sich innerhalb einer Gruppe möglichst nur ein Parameter ändert (vgl. Tab.3). Die erste Gruppe bilden die Teststäbe AU 1-4, die kein Plutonium enthalten und sich nur in der U-35-Anreicherung unterscheiden, und APu 5-7, die Plutonium in verschiedenen Anreicherungen und abgereichertes Uran enthalten. Alle Stäbe dieser Gruppe haben die gleichen Durchmesser.

- 36 -

- 37 -

Die Stäbe AU 10- APu 13 bilden die zweite Gruppe. Sie unterscheiden sich von den Stäben der ersten Gruppe nur im Durchmesser.

Die ungesinterten Stäbe ST 1, 4 und 6 und SS 5-8 unterscheiden sich in Dichte, Durchmesser und Plutoniumzusammensetzung von den Teststäben der ersten beiden Gruppen.

Zuletzt werden die Stäbe APu 8 und 9 behandelt, sie enthalten sowohl U-35 als auch Plutonium in einigen Prozent Anreicherung. Die Stäbe der ersten drei Gruppen kann man als "reine" Stäbe bezeichnen, sie enthalten entweder nur einen Spaltstoff (U-35) oder zwei Spaltstoffe (Pu und U-35) in einem solchen Mischungsverhältnis, daß die wechselseitige Abschirmung der Absorptionsquerschnitte vernachlässigbar ist. Die Messungen der "reinen" Stäbe gaben daher Aufschluß über den Selbstabschirmungseffekt in Abhängigkeit von Spaltstoffdichte und Stabdurchmesser. Die in der vierten Gruppe zu behandelnden "gemischten" Stäbe liefern zusätzlich Information über die Wechselwirkungseffekte zwischen U-35 und Plutonium.

In Tabelle 4 sind die Meßergebnisse aller Stäbe in den drei für die Spaltstoffflußkontrolle geeigneten Bereichen (Abschnitt 3.1.3) zusammengefaßt. Die Abbildungen (15) und (16) zeigen die Meßwerte der "reinen" Stäbe als Funktion der Menge spaltbaren Materials. Für jeden Energiebereich erhält man bei den Uranstäben vier Werte (AU 1-4) und bei den Plutoniumstäben drei Werte (APu 5-7). Die durchgezogenen Kurven entsprechen einem funktionalen Zusammenhang zwischen Spaltneutronenzahl und Spaltstoffmenge, der den Selbstabschirmungseffekt enthält. Dieser analytische Ausdruck wird im nächsten Kapitel abgeleitet, seine Anwendung auf die Meßergebnisse und damit deren Interpretation erfolgt dann im fünften Kapitel.

	Teststab Nr.	gemessene Spaltneutronen		utronen
		ΕI	EII	E III
	AU1	1195	1309	1032
reine	AU2	11187	11872	9052
U-35-	AU3	18926	19869	15064
Signale	AU4	30883	31723	23277
0-9	AU10	19358	20280	15579
	AU12	10523	11267	8392
	APu5	18983	11162	21542
"raine" Pu-	APu7	29979	17091	33236
Signale nach	APu6	46636	25480	48926
Abzug der 11-35-Anteile	APull	32111	19062	35642
	APul3	17174	9420	19260
	ST1	12774	13388	10300
reine	ST4	15821	16518	12592
0-35-Signale	ST6	18421	19071	14438
	SS5	26924	13381	27238
Signale nach	SS6	31260	15521	31032
Abzug der	SS7	35282	17348	34343
	SS8	47830	22304	43931
gemischte	APu8	38355	26008	39689
Signale	APu9	34821	28889	33502

4. Resonanzselbstabschirmung und wechselseitige Resonanzabschirmung in analytischer Darstellung

Eine analytische Funktion, die die Resonanzabschirmungseffekte näherungsweise richtig beschreibt, ist für die Interpolation zwischen Meßwerten mit unterschiedlicher Selbstabschirmung von großer Bedeutung. Darüberhinaus bietet eine solche Funktion in den Grenzen ihrer Gültigkeit die Möglichkeit, effektive Wirkungsquerschnitte in Reaktorbrennstäben, die Mischoxid enthalten, näherungsweise zu berechnen.

Die Theorie der Resonanzabsorption liefert Ausdrücke für das effektive Resonanzintegral einer Resonanz in einem zylindrischen Absorberstab (Anhang 2), die als Basis der folgenden Entwicklungen verwendet werden. Diese Ausdrücke werden aufüber begrenzte Energiebereiche mit einem 1/E-Fluß integrierte Wirkungsquerschnitte übertragen, die viele, sich teilweise überlappende Resonanzen enthalten.

# 4.1 <u>Beschreibung der Selbstabschirmung durch das Lethargie-</u> <u>integral des effektiven Spaltquerschnitts I</u><sub>eff</sub>

Wegen der Resonanzselbstabschirmung ist die auf die Spaltstoffmenge bezogene Spaltneutronenzahl Z/M nicht konstant, vielmehr gilt nach (7)

$$Z/M = const. I_{eff}$$
 (8)

Der effektive Spaltquerschnitt  $I_{eff}$  für den gemessenen Energiebereich ist definiert **du**rch

$$I_{eff} = I_{\infty} \cdot \frac{\Phi_{abs}}{\Phi_{\infty}}$$
(9)

Dabei ist  $I_{\omega}$  das Lethargieintegral des Spaltquerschnitts und  $\Phi_{\infty}$  der Fluß im Stab bei unendlicher Verdünnung des Absorbermaterials für den entsprechenden Energiebereich.  $\Phi_{abs}$  ist der durch die Absorption reduzierte Fluß im Stab. Wie in Anhang 2 abgeleitet, gilt

$$I_{eff} = I_{\infty} \cdot \frac{1}{\sqrt{1 + K \cdot N \cdot \overline{\ell}}},$$
 (10)

N ist die Atomzahldichte des Resonanzabsorbers, $ar{\ell}$  ist die mittlere Sehnenlänge des Absorberelements (für

zylindrische Stäbe gleich dem Durchmesser d), K ist eine aus den Messungen zu bestimmende Konstante. Aus (8) und (10) erhält man für die Spaltneutronenzahl pro Gramm Spaltstoff

$$Z/M = \frac{c \cdot I_{\infty}}{\sqrt{1 + K \cdot N \cdot \overline{\ell}}} = \frac{I_{\infty}^{*}}{\sqrt{1 + K \cdot N \cdot \overline{\ell}}}$$
(11)

Dieser funktionale Zusammenhang kann durch Messungen an einer Reihe verschiedener Stäbe überprüft werden.

Im nächsten Kapitel werden die Meßergebnisse in zwei verschiedenen Darstellungen angegeben, die den Selbstabschirmungseffekt und seine Abhängigkeit von N und d nach (11) deutlich machen sollen:

 a) Wenn man die Meßwerte Z als Funktion der Spaltstoffmenge M darstellt, erhält man eine zunehmende Abweichung von der Linearität in dem Maße, wie die Selbstabschirmung zunimmt. Da die Selbstabschirmung auch vom Durchmesser abhängt, liegen in dieser Darstellung die Meßwerte von Stäben mit unterschiedlichem Durchmesser auf verschiedenen Kurven.

 b) (11) läßt sich so umschreiben, daß man zwischen den Meßwerten pro Gramm Spaltstoff und dem Parameter N·d eine universelle Beziehung erhält, die einem Geradenverlauf entspricht:

$$\left(\frac{M}{Z}\right)^2 = \frac{1}{(I_{\infty})^2} - (1 + KNd)$$
 (12)

Diese Darstellung erfaßt sowohl Stäbe mit unterschiedlicher Spaltstoffkonzentration als auch mit unterschiedlichem Durchmesser.

Es ist noch zu erwähnen, daß das sonst zur Abschätzung der Resonanzabschirmung häufig verwendete sogenannte  $\sqrt{S/M}$ -Gesetz  $\sqrt{27}$  (S = Oberfläche, M = Masse des Absorbermaterials) für diese Messungen keine gute Näherung darstellt, da es nicht für niedrige Konzentrationen des Resonanzabsorbers gilt.

Die Formel (10) unterscheidet sich vom  $\sqrt{S/M}$ -Gesetz dadurch, daß für N $\rightarrow$ O keine gegen unendlich gehenden Werte von I<sub>eff</sub> auftreten, sondern der richtige Grenzwert I<sub> $\infty$ </sub> angestrebt wird. Dagegen ist für KNd  $\gg$  1, also für große Atomzahldichten, das  $\sqrt{S/M}$ -Gesetz erfüllt, denn dann ist

$$I_{eff} \sim \frac{1}{\sqrt{N \cdot d}} \sim \sqrt{\frac{S}{M}}$$

## 4.2 Einfaches Modell zur Behandlung der wechselseitigen Resonanzabschirmung

Die Ableitung eines Ausdrucks, der die Reduktion des Resonanzintegrals eines Materials 1 durch Resonanzen eines Materials 2 beschreibt, folgt aus einer einfachen Modellvorstellung. Man nimmt an, daß alle Resonanzen des Materials 1 gleich hoch, gleich breit und rechteckig sind, daß zwischen den Resonanzen der Wirkungsquerschnitt gleich Null ist, und daß alle Resonanzen gleiche Abstände auf der Energieskala haben. Das gleiche gilt für Material 2, nur haben die Resonanzen von 2 eine andere Höhe, eine andere Breite und einen anderen Abstand. Mit den Bezeichnungen  $\Gamma$  für die Breite und D für den Abstand der Resonanzen ergibt sich die Wahrscheinlichkeit für das Auftreten eines von Null verschiedenen Querschnitts zu  $\Gamma/D$ . Der Teil der Resonanzen von 1, der durch die Resonanzen von 2 überdeckt wird, ist also  $\Gamma_2/D_2$ . Da in den Resonanzen von 2 der Neutronenfluß um den Faktor  $f_2$  abgeschwächt ist, wird in den Resonanzen von 1 die Reaktionsrate um diese Abschwächung reduziert. Es gilt

$$f_2 = \frac{I_{eff_2}}{I_{\infty 2}}$$

wobei  $f_2$ das Verhältnis von abgeschwächtem zu unabgeschwächtem Fluß in einer Resonanz von 2 und  $I_{eff_2}$  bzw.  $I_{\omega_2}$  das effektive bzw. das unendlich verdünnte Lethargieintegral des Spaltquerschnitts einer Resonanz von 2 ist.

Für die Abnahme des effektiven Spaltquerschnitts einer Resonanz von 1 gilt dann

$$\frac{\Delta I_{eff_1}}{I_{eff_1}} = \frac{\Gamma_2}{D_2} (1 - f_2) = \frac{\Gamma_2}{D_2} (1 - \frac{I_{eff_2}}{I_{\infty}})$$

Durch Kopplung mit dem Ausdruck für den effektiven mit einem 1/E-Fluß integrierten Spaltquerschnitt (10), der mit den entsprechenden Indizes zu versehen ist, erhält man den durch Selbstabschirmung und wechselseitige Abschirmung reduzierten effektiven Spaltquerschnitt des Materials 1:

- 42 -

$$I_{eff_{1}}^{W} = \frac{\frac{1}{N} \omega_{1}}{\sqrt{1 + K_{11}N_{1}d}} \cdot (1 - K_{12}(1 - \frac{1}{\sqrt{1 + K_{22}N_{2}d}}))$$
(13)

Für das Material 2 ergibt sich der entsprechende Ausdruck durch Vertauschen der Indizes. Die Größen  $K_{12}$  und  $K_{21}$  sind die Parameter der wechselseitigen Abschirmung, sie haben in dem hier eingeführten Modell die Werte  $\Gamma_2/D_2$  bzw.  $\Gamma_1/D_1$ .

Der Ausdruck (13) wurde abgeleitet unter der Voraussetzung, daß die Resonanzen Rechteckform haben und in gleichen Abständen auf der Energieskala verteilt sind. In Wirklichkeit sind diese Annahmen nicht erfüllt. Man kann jedoch davon ausgehen, daß derselbe formale Zusammenhang (13) auch gilt, wenn alle Resonanzen ähnliche Form haben und für alle Materialien unabhängig voneinander statistisch verteilt sind. Die die Wechselwirkung beschreibenden Größen  $K_{12}$  und  $K_{21}$  sind dann als Anpassungsparameter zu verstehen und werden entweder aus Experimenten oder aus numerischen Rechnungen bestimmt.

## 4.3 <u>Anwendung der analytischen Ausdrücke zur Spaltstoff-</u> bestimmung

Die für die Spaltstoffflußkontrolle relevante Fragestellung ist, ob aus den Meßwerten von zu kontrollirenden Stäben deren Spaltstoffgehalt ermittelt werden kann. Durch (11) bzw. (13) und die passenden Eichparameter I<sup>\*</sup> und K ist diese Möglichkeit sowohl für "reine" als auch für gemischte Stäbe gegeben. Voraussetzung für die Auswahl der passenden Eichparameter ist, daß Pelletdurchmesser d, Länge 1 der Pelletsäule sowie bei Plutoniumstäben der Isotopenvektor bekannt sind. Dabei wird angenommen, daß die Brennstoffdichte innerhalb weniger Prozent konstant ist, da im Normalfall gesinterter Brennstoff vorliegt. Man kann hier die Angaben der Hersteller der Stäbe verwenden, da deren Konsistenz durch Messungen in mehreren Energiebereichen überprüft werden kann.

- 43 -

Deshalb wird man auch bei reinen Uranstäben mindestens zwei Energiebereiche messen. Die Spaltstoffmenge ergibt sich dann aus dem jeweiligen Meßwert Z<sub>i</sub> durch Umformung von (11) zu

$$M = \frac{Z_{i}^{2}}{I_{\omega_{i}}^{*2}} \left(\frac{L}{A} \cdot \frac{2K_{i}}{d\pi \ell} - \sqrt{\left(\frac{L}{A} \cdot \frac{2K_{i}}{d\pi \ell}\right)^{2} + \left(\frac{I_{\omega_{i}}^{*2}}{S_{i}}\right)^{2}}\right)$$
(14)

Der Index i bezeichnet den Energiebereich. Wenn die ermittelten Spaltstoffmengen für die beiden Energiebereiche nicht übereinstimmen, sind bei Ausschluß von Meßfehlern die verwendeten Werte von d oder 1 falsch.

Bei reinen Plutoniumstäben, die abgereichertes Uran enthalten, sind zur Bestimmung des Plutoniumgehaltes Messungen in mindestens zwei Energiebereichen notwendig. Man erhält ein Gleichungssystem

$$z_{i} = M(U_{35}) \cdot \left(\frac{I_{\omega_{1}}^{*}}{\sqrt{1+K_{i}Nd}}\right)_{U_{35}} + M(Pu) \cdot \left(\frac{I_{\omega_{1}}^{*}}{\sqrt{1+K_{i}Nd}}\right)_{Pu} , \qquad (15)$$

i = 1, 2, ...,

aus dem die unbekannten Spaltstoffmengen des U-35 und des Plutonium bestimmt werden können. Durch Messung von drei oder mehr Energiebereichen kann die Konsistenz der Ergebnisse vor allem hinsichtlich der Plutoniumzusammensetzung geprüft werden. Bei Berücksichtigung der wechselseitigen Abschirmung in gemischten Stäben wird das Gleichungssystem (15) etwas umfangreicher. Mit dem in 3.2 entwickelten Ausdruck (13) und den Zuordnungen - Material 1 = Uran-235 (U), Material 2 = Plutonium-239+241 (Pu) - erhält man ein Gleichungssystem

$$Z_{i} = M(U) \cdot \left(\frac{I_{\omega_{i}}^{*}}{\sqrt{1+K_{i}Nd}}\right)_{U} \cdot (1 - K_{iUPu}(1 - \frac{1}{\sqrt{1+K_{i}Nd}})_{Pu}) + (16)$$

$$+ M(Pu) \cdot \left(\frac{I_{\omega_{i}}^{*}}{\sqrt{1+K_{i}Nd}}\right)_{Pu}(1 - K_{iPuU}(1 - \frac{1}{\sqrt{1+K_{i}Nd}})_{U})$$

Dieser Ausdruck unterscheidet sich von (15) gerade um die Reduktion durch die Wechselwirkungsterme

$$K_{i_{UPu}}(1-\frac{1}{\sqrt{1+K_{i}Nd}})_{Pu} \text{ und } K_{i_{PuU}}(1-\frac{1}{\sqrt{1+K_{i}Nd}})_{U}$$

Im Gegensatz zu den hier verwendeten Teststäben sind Brennstäbe von thermischen Reaktoren meist lang im Vergleich zu den Protonenrückstoßzählrohren und müssen daher zur Spaltstoffbestimmung vollständig durch die Zählrohrbank hindurchgeschoben werden. Der Spaltstoffmeßwert wird damit abhängig von der Position des Brennstabs relativ zu den Zählrohren. Wenn die axiale Spaltstoffverteilung im Stab homogen ist und der Stab so weit durch die Zählrohrbank durchgeschoben wurde, daß die Zählrohrempfindlichkeit konstant ist, stellt der Meßwert z eine Zählrate pro Längeneinheit dar und ist von der gesamten Brennstablänge unabhängig. Aus (11) ergibt sich in Analogie zu (14) eine Gleichung für die Spaltstoffmenge pro Längeneinheit m:

$$m = \frac{\mathbf{z}_{i}^{2}}{\mathbf{z}_{i}^{*2}} \left(\frac{\mathbf{L}}{\mathbf{A}} \cdot \frac{\mathbf{K}_{i}}{\mathbf{d}\pi} - \sqrt{\left(\frac{\mathbf{L}}{\mathbf{A}} - \frac{\mathbf{K}_{i}}{\mathbf{d}\pi}\right)^{2} + \left(\frac{\mathbf{z}_{i}}{\mathbf{z}_{i}}\right)^{2}}\right)$$

Die Länge der Pelletsäule ergibt sich aus der Integration des Meßwertes z über alle Stabpositionen

$$\ell = \frac{\int_{\mathbf{Z}} (\mathbf{x}) d\mathbf{x}}{\mathbf{z}}$$

und die gesamte Spaltstoffmenge M im Stab aus  $M = m \cdot \ell$ . Bei langen Stäben ist also die Kenntnis von  $\ell$  zur Spaltstoffbestimmung nicht notwendig. Vorteilhaft ist außerdem, daß Teststäbe in ihrer Länge nicht mit den zu kontrollierenden Stäben übereinstimmen müssen, vorausgesetzt, daß sie länger sind als die empfindliche Länge der Zählrohre.

Der hier angedeutete Formalismus erlaubt es also, den Spaltstoffgehalt von Reaktorbrennstäben durch Messung der Spaltneutronen im BZS zu bestimmen. 5. Auswertung der Meßergebnisse

Im folgenden werden die Ergebnisse der Teststabmessungen in den drei für die Spaltstoffbestimmung geeigneten Energiebereichen verwendet, um die analytischen Ausdrücke, die die Resonanzselbstabschirmung und die wechselseitige Abschirmung beschreiben sollen, auf ihre Gültigkeit und ihren Anwendungsbereich hin zu prüfen. Damit werden gleichzeitig die Meßergebnisse in einen sinnvollen Zusammenhang gebracht und eine Beurteilung ihrer Genauigkeit ermöglicht.

Im ersten Abschnitt werden zuerst die Meßergebnisse der "reinen" Teststäbe mit konstantem Durchmesser mit Beziehung (11) für die Resonanzselbstabschirmung verglichen und die noch unbestimmten Parameter  $I_{\infty}^{*}$  und K durch Anpassung von (11) an die Meßwerte ermittelt. Dann werden die Meßwerte der übrigen "reinen" Stäbe mit Gl.(11) verglichen und der Einfluß von Uran-238 auf die Meßwerte mit Hilfe von Gl.(16) für die wechselseitige Abschirmung korrigiert. Im zweiten Abschnitt werden die Stäbe mit gemischtem Brennstoff auf den Effekt der wechselseitigen Abschirmung hin untersucht, wobei wieder die Beziehung (16) zur Anwendung kommt.

#### 5.1 "Reine" Spaltstoffstäbe

#### 5.1.1 Uran- und Plutoniumstäbe mit konstantem Durchmesser

Durch Minimalisierung der Fehlerquadratsummen wurde Gleichung (11) an die Meßwerte der Stäbe AU 1-4 in den drei Energiebereichen angepaßt. Die so ermittelten Anpassungsparameter  $I_{\infty}^{*}$ und K sind in Tabelle 5 angegeben. Abb.15 zeigt die Meßwerte Z der Stäbe AU 1-4 und den angepaßten Verlauf von (11) für d = 0,88 cm als Funktion der Spaltstoffmenge M in den drei Energiebereichen. Die Darstellung  $\left(\frac{M}{Z}\right)^2$  als Funktion von N · d zeigt Abb.17. Die Meßwerte von AU 1-4 zeigen Abweichungen von der Geraden (12) innerhalb der statistischen Fehler von 0,5 - 1%, während die Meßwerte von Stäben mit anderem Durchmesser (5.1.2) und anderer Dichte (5.1.3) vom angepaßten Verlauf bis zu 2% abweichen. Die eingetragenen Fehlerbalken beziehen sich auf die statistischen Fehler der Meßwerte. Der mittlere quadratische Fehler der Meßwerte von AU 1-4 bezüglich der angepaßten Geraden (12) ist in den drei Energiebereichen 0,26%, 0,20% und 0,41%.

Die Stäbe APu 5-7 können trotz des U-35-Gehalts näherungsweise als reine Plutoniumstäbe behandelt werden. Der Beitrag des U-35 zum gesamten Meßwert liegt bei dem hier vorliegenden Grad der Abreicherung (0,2%) zwischen 3 und 12% und ist daher nicht vernachlässigbar. Dagegen ist die Reduktion des Meßwertes durch gegenseitige Abschirmung des U-35 und des Plutoniums kleiner als 0,5% und wird im folgenden nicht berücksichtigt. Man erhält daher aus dem Meßwert nach Abzug des U-35-Anteils, der aus den Messungen der reinen Uranstäbe zu erhalten ist, die Plutoniumspaltneutronenzahl. Diese ist in den Abb.16 und 18 analog zur Darstellung der Uranmeßwerte als Funktion der Menge spaltbaren Plutoniums bzw. des Produkts aus Atomzahldichte und Stabdurchmesser aufgetragen. Tabelle 5 enthält die mit Gleichung (11) bestimmten Anpassungsparameter, die wieder den durchgezogenen Kurven (11) in Abb.16 und Geraden (12) in Abb.18 zugrunde liegen. Die in Abb.18 zusätzlich eingetragenen Meßwerte der Stäbe APu 11 und 13 werden im nächsten Abschnitt behandelt. Der mittlere quadratische Fehler der Meßwerte von APu 5-7 bezüglich der Geraden ist 0,40%, 0,02% und 0,25%. Die Untersuchung der reinen Stäbe mit konstantem Durchmesser AU 1-4 und APu 5-7 ergibt, daß die Selbstabschirmung gut durch (11) beschrieben werden kann. Insbesondere zeigt sich, daß der Selbstabschirmungsparameter K praktisch unabhängig vom Anreicherungsgrad des Spaltstoffs ist. Im folgenden werden die Stäbe AU 1-4 und APu 5-7 als Standardstäbe bezeichnet und Gleichung (11) mit den hier bestimmten Parametern  $I_{M}^{*}$  und K

- 48 -

zur Berechnung von Vergleichswerten für die nun zu behandelnden Stäbe verwendet.

#### 5.1.2 Uran- und Plutoniumstäbe mit unterschiedlichem Durchmesser

Mit den Stäben AU 10 - APu 13, die sich nur im Durchmesser von den Standardstäben unterscheiden, kann (11) hinsichtlich seiner Gültigkeit für variable Durchmesser untersucht werden. In den Abb.17 und 18 sind die Meßwerte der Stäbe AU 10 und AU 12 bzw. APu 11 und APu 13 eingetragen. Die Werte zeigen systematische Abweichungen von den im vorigen Abschnitt ermittelten Geraden. Die Stäbe AU 10 und APu 11 haben einen größeren Durchmesser als die Standardstäbe, sie zeigen eine etwas größere Selbstabschirmung als nach (11) erwartet. Die Stäbe AU 12 und APu 13 mit dem kleineren Durchmesser weisen dagegen eine im Vergleich zu (11) geringere Selbstabschirmung auf.

Die Vermutung liegt nahe, daß dieser Effekt durch die Absorptionsresonanzen des Uran-238 verursacht wird. Beim Vergleich von Stäben mit konstantem Durchmesser und gleicher Brennstoffdichte war der Absorptionseffekt durch die U-38-Resonanzen nahezu konstant und deshalb ohne Auswirkung auf die Ergebnisse. Beim Vergleich von Stäben mit unterschiedlichem Durchmesser macht sich die Wechselwirkung zwischen Uran-238 und den Spaltstoffen jedoch bemerkbar, da sich die Selbstabschirmung des Uran-238 ändert. Die Korrektur dieser wechselseitigen Abschirmung erfolgt dahingehend, die Meßwerte der Stäbe AU 10 - APu 13 mit denen der Standardstäbe vergleichbar zu machen, also auf denselben U-38-Effekt wie bei den Standardstäben umzurechnen.

Die Anwendung der in Abschnitt 4.2 aufgestellten Formeln setzt die Kenntnis der Selbstabschirmungs- und Wechselwirkungsparameter voraus. Diese wurden mit Hilfe der in Abschnitt 6 beschriebenen numerischen Rechnungen bestimmt und sind in Tabelle 6 aufgeführt. Als Material 1 wird jeweils das Spaltmaterial (U-35 oder Plutonium) bezeichnet, Material 2 ist das Uran-23**8**, das die zusätzliche Abschirmung bewirkt.

a second and a statement of the second se	Energiebereich			
		EI	EII	E III
Reine Uranstäbe	I.*	1069.4	1165.2	921.9
(AU 1-4)	К	232.2	360.4	546.1
"Reine" Pluto-	I 🐝	1789.9	1037.8	2280.9
niumstäbe (APu5-7)	к	536.1	782.1	1163.4

<u>Tabelle 5</u> Anpassungsparameter  $I_{\phi}^{*}$  und K aus (11)

<u>Tabelle 7</u> Abweichungen der Meßwerte <u>de</u>r ungesinterten "reinen" Plutoniumstäbe von(11) in <u>/</u><u>8</u>/

	Energiebereich			
	ΕI	EII	E III	
SS 5	+ 1.38	- 6.49	- 4.32	
SS 6	+ 1.20	- 5.79	- 4.51	
SS 7	+ 1.64	- 5.65	- 4.56	
SS 8	+ 3.69	- 7.35	- 4.75	
Mittelwerte	- 1.97	- 6.32	- 4.53	

Tabelle 6U-38-Resonanzselbstabschirmungsparameter K22undU-38-Wechselwirkungsparameter K12für U-35undPlutonium nach Gl.(16), berechnete Reduktion derMeßwerte der Standardstäbe durch die U-38-Ab-sorption und Abweichungen von diesen Standard-werten für die übrigen Stäbe.

	ΕI	E II	E III
<sup>K</sup> 22 K <sub>12</sub> (U-35)	108.0 0.0975	46.25 0.185	62.3 0.046
K <sub>12</sub> (Pu)	0.060	0.063	0.112
$(1 - \frac{I_{eff}^{W}}{I_{eff}})$ eff U-35	0.042	0.050	0.015
$(1 - \frac{I_{eff}^{W}}{I_{eff}})$	0.026	0.017	0.036
Abweichung für			
Au 10 <u>/</u> §7	+1.20	+2.0	+0.54
Au 12 <u>/</u> 87	-2.04	-2.6	-1.42
APu 11 <u>/</u> 87	+0.74	+0.77	+1.30
APu 13 · <u>/</u> ₹7	-1.26	-1.32	-2.10
ST-Stäbe $2\overline{\underline{8}7}$	-0.55	-0.9	-0.22

In der Tabelle sind weiterhin enthalten die durch die wechselseitige Abschirmung des U-38 erzeugte Reduktion der Meßwerte der Standardstäbe sowie die Abweichungen von diesen Werten bei den Stäben mit unterschiedlichem Durchmesser und den ungesinterten ST-Stäben. Diese Zahlen wurden mit Gl.(16) berechnet und dienen zur Korrektur der Meßwerte. Die korrigierten Werte sind in den Abb.17 und 18 ebenfalls eingetragen. Sie weisen in den meisten Fällen eine bessere Übereinstimmung mit den durch die Standardstäbe vorgezeichneten Eichgeraden (12) auf.

### 5.1.3 Uran- und Plutoniumstäbe mit ungesintertem Brennstoff

Der Einfluß des Uran-238 auf die Resonanzabsorption wird auch in der Messung der Stäbe ST 1,4 und 6 deutlich. Die Dichte der ungesinterten Stäbe ist 6,4 g/cm<sup>3</sup> gegenüber 10,2 g/cm<sup>3</sup> bei den Standardstäben. Der Durchmesser ist 11,5 mm gegenüber 8,8 mm. Insgesamt ergibt sich eine kleinere U-38-Selbstabschirmung als bei den Standardstäben. Das bestätigen die in Abb.17 eingetragenen  $\left(\frac{M}{Z}\right)^2$ -Werte, die im Mittel 2% tiefer liegen als nach (11) berechnet. Die Korrektur dieser Werte mit Hilfe von Gl.(16) und den in Tab.7 angegebenen Parametern ergibt eine Verbesserung der Übereinstimmung im Rahmen der Meßgenauigkeit (vgl. Abb.17).

Die ungesinterten Stäbe SS5-SS8 enthalten Natururan und Plutonium, das sich in seiner Isotopenzusammensetzung von den Standardstäben unterscheidet. Beim Vergleich der Meßwerte mit dem Standardverlauf von (11) sind folgende Effekte zu berücksichtigen:

- a) Das die Selbstabschirmung bestimmende Produkt N. d liegt zwischen  $10^{-3}$  und 2 x  $10^{-3}$  und damit teilweise außerhalb des Bereichs, der mit den Standardstäben erfaßt wurde (Nd = 4 x  $10^{-4}$  bis 1,2 x  $10^{-3}$ ).
- b) Da sowohl U-35 als auch Plutonium in höheren Konzentrationen als bei den Standardstäben vorliegen, wird der Meßwert durch

- 52 -

wechselseitige Abschirmung der Spaltstoffe um bis zu 0,8% reduziert.

- c) Die Auswirkung des Uran-238 auf die Resonanzabsorption ist geringer als bei den Standardstäben, da gegenüber diesen sowohl Brennstoffdichte als auch Durchmesser um ein Drittel reduziert sind. Die Abschätzung dieses Effekts mit Gl.(16) ergibt eine Erhöhung der Meßwerte um etwa 3%.
- d) Der Gehalt an Pu-41 relativ zu Pu-39 ist sechsmal kleiner als bei den Standardstäben. Vor allem im Energiebereich II treten große Unterschiede in den Querschnitten der beiden Isotope auf. Dazu kommt, daß die Pu-41-Spaltrate praktisch nicht selbstabgeschirmt ist, so daß auch bei gleichen Querschnitten geringere Meßwerte für SS5-SS8 zu erwarten sind. Aufgrund dieser Effekte treten, wie Tab.7 zeigt, Diskrepanzen zwischen den Meßwerten und dem Pu-Standardverlauf (11) auf. Die Abweichungen von den Standardwerten sind erheblich und innerhalb eines Energiebereichs für alle Stäbe etwa gleich. Man kann daraus schließen, daß der Pu-41-Effekt überwiegt, weil nur dieser Effekt stark energieabhängig ist.

Aus den Messungen der Teststäbe ist zu schließen, daß Gl.(11) zur Beschreibung des Zusammenhangs zwischen Meßwert und Spaltstoffmenge für Stäbe, die sich nur in der Anreicherung unterscheiden, geeignet ist.

Bei Stäben, die sich im Durchmesser oder in der Brennstoffdichte unterscheiden, kann der Absorptionseffekt des Uran-238 mit Hilfe von Gl.(16) korrigiert werden, wenn die Selbstabschirmungs- und Wechselwirkungsparameter des U-38 bekannt sind.

Für Stäbe, deren Pu-41-Gehalt sich nicht mehr als 1% von dem der Standards unterscheidet, können mit Gl.(11) und den Standardparametern die Meßwerte mit einer Genauigkeit von 1% berechnet werden. Die größeren Abweichungen der Plutoniumzusammensetzung von der der Standards müssen mit geeigneten Teststäben neue Parameter  $I_{\infty}^{*}$  und K bestimmt werden.

## 5.2 Brennstäbe mit gemischtem Spaltstoff

Als Brennstäbe mit gemischtem Spaltstoff werden hier nur solche bezeichnet, in denen sowohl U-35 als auch Plutonium in Anreicherungen vorliegt, die zu merklichen wechselseitigen Abschirmungseffekten führen. Das ist der Fall für die Stäbe APu-8 und APu-9, die im folgenden behandelt werden.

Im allgemeinen enthalten Reaktorbrennstäbe jedoch nur entweder U-35 oder Plutonium als Spaltstoff.

Die gegenseitige Resonanzabschirmung hängt ab vom Grad der Überlappung der Resonanzen und von der Flußabsenkung in diesen Resonanzen. Dadurch wird die Spaltrate im allgemeinen verringert, obwohl an einzelnen Stellen des Spektrums auch eine Erhöhung möglich ist. Diese tritt dann auf, wenn unterhalb einer Streuresonanz des Materials 2 der Fluß im Bereich einer Absorptionsresonanz des Materials 1 erhöht wird  $\sqrt{357}$ . Bei einer Mittelung über größere Energiebereiche überwiegt jedoch der Absorptionseffekt. Aus dem Unterschied zwischen den Summen der selbstabgeschirmten Spaltneutronenzahlen der reinen Spaltstoffe, die aus den Eichkurven (11) ermittelt wurden, und den Meßwerten läßt sich die Größe der gegenseitigen Abschirmung entnehmen. Sie beträgt in den drei ausgewerteten Energiebereichen für APu-8 und -9 im Mittel 3%.

Mit Hilfe der Bezi**e**hung (16), die die wechselseitige Resonanzabschirmung von Uran-235 und Plutonium beschreibt, kann dieser Effekt genauer untersucht werden. Dabei zeigt sich, daß die noch unbestimmten Wechselwirkungsparameter  $K_{i_UPu}$  und  $K_{i_PuU}$  in Gl.(16) aus numerischen Rechnungen bestimmt werden müssen. Eine experimentelle Bestimmung dieser Parameter aus den Meßwerten der zwei Stäbe ist zwar prinzipiell möglich, wegen der statistischen Fehler wäre jedoch für eine genauere Bestimmung

- 54 -

eine erheblich größere Zahl von Teststäben notwendig. Die Bestimmung der Wechselwirkungsparameter aus den Ergebnissen numerischer Rechnungen wird in Abschnitt 6.4.2 beschrieben, in Tabelle 8 sind ihre Werte aufgeführt. Weiterhin sind in dieser Tabelle die prozentualen Abweichungen zwischen den Meßwerten Z der Stäbe APu-8 und APu-9 und den nach (15) ohne wechselseitige Abschirmung berechneten Werten  $Z_0$  sowie den nach (16) mit wechselseitiger Abschirmung berechneten Werten  $Z_w$  eingetragen. Die Berücksichtigung der Wechselwirkung nach Formel (16) führt zu einer besseren Übereinstimmung mit den Meßwerten. Bei APu-9 im Meßbereich EII trifft diese Aussage nicht zu, was nur auf eine ungünstige Kombination von Meßfehlern und Ungenauigkeiten in den verwendeten Selbstabschirmungs- und Wechselwirkungsparametern zurückzuführen sein kann.

- 55 -

		ΕI	E II	E III
Wechselwirkungs- parameter	K. <sub>UPu</sub>	0.236	0.163	0.080
(numerisch be- rechnet)	<sup>K</sup> PuU	0.040	0.325	0.150
Unterschied zwischen Meßwert und ohne wechselseitige Ab- schirmung nach (14)	APu 8	-3.23%	-4.27%	-2.50%
berechnetem Wert $\frac{Z - Z_{o}}{Z_{o}}$	APu 9	-2.51%	-0.59%	-3.18%
Unterschied zwischen Meßwert und mit wechselseitiger Ab- schirmung nach (16)	APu 8	-0.83%	-0.74%	-1.05%
berechneten Wert $\frac{Z - Z_{w}}{Z_{w}}$	APu 9	+0.37%	+2.03%	+0.42%

<u>Tabelle 8</u>	Effekt der	wechselseitigen	Abschirmung	auf	die
	Meßwerte de	er Stäbe APu <b>8</b> ur	nd APu 9		

6. Numerische Berechnung der Spaltneutronenzahlen von Reaktorbrennstäben im Bleipile

## 6.1 Das Programm RABBLE und seine Anwendung

### 6.1.1 Kurzbeschreibung des Programms

RABBLE  $\sqrt{367}$  ist ein Programm zur Berechnung der Resonanzabsorption für eine unendlich ausgedehnte Anordnung von zylindrischen oder ebenen, heterogenen Reakto**rz**ellen.

Die Reaktorzelle wird in einzelne Zonen so eingeteilt, daß die räumliche Änderung des Neutronenflusses näherungsweise berücksichtigt ist. Die Energieabhängigkeit der Reaktionsraten kann nur durch eine sehr feine Energiegruppenstruktur erfaßt werden. Diese Energiegruppen müssen auch schmal sein im Vergleich zum mittleren Energieverlust bei einem Stoß mit den schwersten vorhandenen Atomen. Dann werden die Neutronen bei jedem Stoß (Absorption oder Streuung) aus ihrer Energiegruppe entfernt.

Die Stoßdichte  $C_{ij}$  in einer Energie-Feingruppe i (Breite  $\Delta u_f$  in Lethargieeinheiten) und einer Zone j einer zylindrischen Reaktorzelle wird gebildet durch:

$$C_{ij} = (1 - T_{ij}^{OI}) J_{i,j-1}^{+} + (1 - T_{ij}^{OO} - T_{ij}^{IO}) J_{ij}^{-} + (1 - P_{ij}^{+} - P_{ij}^{-}) S_{ij}$$
(17)  
$$j \ge 2$$

Für die innerste Zone gilt:

$$C_{ij} = (1-T_{ij}^{OO}) J_{ij}^{-} + (1-P_{ij}^{+}) S_{ij}, \quad j = 1$$

Dabei sind  $J_{ij}^+$  und  $J_{ij}^-$  die durch die äußere Zonenbegrenzung austretenden bzw. eintretenden Neutronenströme;

 $T_{ij}^{OI}$ ,  $T_{ij}^{IO}$  und  $T_{ij}^{OO}$  sind die Transmissionswahrscheinlichkeiten von innen nach außen, von außen nach innen und von außen nach außen durch die Zone j;  $S_{ij}$  ist die Streuquelle in der Zone j und die  $P_{ij}^{+}$  und  $P_{ij}^{-}$ sind die Entkommwahrscheinlichkeiten aus der Zone j nach außen bzw. nach innen.

Die Transmissions- und Entkommwahrscheinlichkeiten sind Funktionen des totalen makroskopischen Wirkungsquerschnitts  $\Sigma_{ij}$ und der Zonenradien  $r_{j-1}$  und  $r_j$ .

Für die Streuquelle S<sub>ij</sub> gilt:

$$S_{ij} = e^{-\Delta U_{f}} \cdot S_{i-1,j} + \sum_{m=1}^{M} P_{1m} \cdot S_{i-1,j,m} \cdot \Phi_{i-1,j} - e^{-\Delta U_{f}} \cdot \sum_{m=1}^{M} P_{L_{m}} \cdot S_{i-L_{m}-1,j,m} \cdot \Phi_{i-L_{m}-1,j}$$

Dabei ist  $P_{lm}$  bzw.  $P_{L_mm}$  die Wahrscheinlichkeit, daß ein Neutron bei einem Stoß mit Material m um eine Gruppe bzw. um die maximale Zahl  $L_m$  von Gruppen heruntergestreut wird,  $\Sigma_{s_i,m,j}$  ist der Streuquerschnitt des Materials m und  $\Phi_{i,j}$  der Fluß in der Energiegruppe i in der Zone j. Die Neutronenströme  $J_i^{\dagger}$  und  $J_j^{-}$  ergeben sich aus einem Gleichungssystem mit 2J Gleichungen, wobei am Rand der Reaktorzelle  $J^{\dagger} = J^{-}$  angenommen wird.

Wenn die C<sub>ij</sub> nach diesem Formalismus bestimmt sind, ergeben sich die Flüsse  $\Phi_{ii}$  aus

$$\Phi_{ij} = \frac{C_{ij}}{\Sigma_{ij}}$$

und die Reaktionsrate R $_{\mbox{ijmz}}$  des Materials m für die Reaktion z $_{\mbox{aus}}$ 

$$R_{ijmz} = C_{ij} \cdot \frac{\Sigma_{ijmz}}{\Sigma_{ij}}$$

Das effektive Resonanzintegral eines Materials m in der Zone j für die Reaktion z, I<sub>effjmz</sub> ergibt sich aus der lethargieintegrierten Reaktionsrate

 $R_{jmz} \Delta U_f = N_{jm} \cdot V_j \cdot I_{effjmz} \cdot \Phi_{\infty}$ 

mit  $V_j = \pi (r_j^2 - r_{j-1}^2)$  und  $\Phi_{\infty} \equiv 1$ .

#### 6.1.2 Multiniveaudarstellung des U-35-Querschnitts

Für Resonanzabsorber, wie U-38 oder Eisen, bietet die Ein-Niveau-Darstellung der Wirkungsquerschnitte die geeignete Beschreibung des Resonanzquerschnittverlaufs, da die Resonanzen sich kaum überlappen. Der Querschnitt von Uran-235 zeigt dagegen eine so große Resonanzdichte, daß Interferenzen zwischen Resonanzen berücksichtigt werden müssen. In einer Multiniveaudarstellung sind diese möglichen Interferenzeffekte enthalten /37,387. In dieser Darstellung werden alle Resonanzen durch einen zur Resonanzenergie symmetrischen und einem asymmetrischen Term gebildet, während in der Ein-Niveau-Darstellung die Einfang- und Spaltresonanzen nur durch einen symmetrischen Term beschrieben werden. Jeder Resonanz sind neben der Resonanzenergie und dem g-Faktor für jeden Reaktionstyp zwei Parameter zugeordnet, aus denen die Koeffizienten der symmetrischen und der asymmetrischen dopplerverbreiterten Linienformfunktionen gebildet werden. Den betreffenden Querschnitt erhält man aus der Summe der Beiträge aller Resonanzen

bei der betrachteten Energie. Der totale Querschnitt erhält außerdem noch den Potentialquerschnitt  $4\pi R^2$ , wobei R der Kernradius ist.

Die Berechnung der Resonanzquerschnitte in RABBLE wurde so modifiziert, daß für U-35 wahlweise Multiniveau-Parameter oder Ein-Niveau-Parameter zur Erzeugung der Querschnitte verwendet werden können. Der Pu-39-Querschnitt konnte nur aus Ein-Niveau-Parametern berechnet werden, da kein geeigneter Satz von Multi-Niveau-Parametern zur Verfügung stand. Die Verwendung einer Multi-Niveau-Darstellung für Pu-39 erscheint jedoch auch weniger notwendig, da die Resonanzdichte bei Pu-39 etwa viermal geringer ist als bei U-35. Die Ein-Niveau-Parameter für U-35 und Pu-39 wurden ebenso wie die der Resonanzabsorber U-38 und Pu-40 aus KEDAK entnommen. Die Multiniveauparameter für U-35 stammen aus einer Arbeit von de Sanssure et al.  $\langle \overline{397} \rangle$ , die Ein-Niveau-Parameter zur Berechnung des Pu-41-Querschnitts wurden von Yiftah et al.  $\langle \overline{407} \rangle$  angegeben.

## 6.1.3 Berücksichtigung der mittleren Spaltneutronenzahlen $\overline{\nu}$ und des Effekts der Spaltspektren

Beim Vergleich zwischen Messung und Rechnung muß man berücksichtigen, daß der Meßwert proportional zur Zahl der Spaltneutronen ist, während in RABBLE die Zahl der Spaltungen berechnet wird. Die mittlere Zahl der Spaltneutronen pro Spaltung ist für die einzelnen Spaltstoffe etwas unterschiedlich. In Tabelle 9 sind die verwendeten Werte aufgeführt. Eine mögliche Energieabhängigkeit von  $\overline{v}$  im Bereich der niederenergetischen Resonanzen (6.3.2) wurde nicht berücksichtigt.

Da die Diskriminatorschwelle des Meßkanals bei einer Rückstoßprotonenenergie von 600 keV liegt, werden nicht alle Spaltneutronen, die aus dem Brennstab austreten, mit der gleichen Wahrscheinlichkeit registriert. Der gemessene Anteil hängt vielmehr vom Spaltspektrum ab, das sich für die einzelnen Spaltstoffe deutlich unterscheidet. Eine Abschätzung ergab, daß der Anteil der registrierten Spaltneutron**e**n bei Plutonium-239 um 1,25% höher liegt als bei Uran-235.

Aus dem Verhältnis der  $\overline{\nu}$  und der Spaltspektrumskorrektur ergeben sich die in Tabelle 9 ebenfalls eingetragenen Umrechnungsfaktoren zwischen Zahl der Spaltungen und Zahl der registrierten Spaltneutronen. Mit diesen Zahlen werden in RABBLE die für jedes einzelne Isotop berechneten Spaltraten multipliziert, so daß man nach Addition der einzelnen Beiträge eine für den Brennstab und das betrachtete Intervall spezifische Spaltneutronenzahl erhält.

#### 6.1.4 Berücksichtigung des Neutronenspektrums im Bleipile

Zu einem bestimmten Zeitpunkt wird das Spektrum der Neutronendichte im Bleipile durch eine Gaußfunktion mit der mittleren Energie  $\overline{E}$  nach Gl.(2) und der vollen Halbwertsbreite  $\frac{\delta E}{E}$  nach Gl.(6) beschrieben. Das Neutronenspektrum in einem Zeitintervall erhält man durch Integration über Gl.(5) in den Grenzen des Intervalls. Dabei verwendet man in der Gaußfunktion die Zeit mit Hilfe von Gl.(2) als unabhängige Variable. Die zeitliche Abnahme der Neutronendichte durch Leckage muß durch einen Faktor  $(t+t_0/t_0)^{-\alpha}$  berücksichtigt werden. Nach Umrechnung auf Lethargieeinheiten und Neutronenflüsse erhält man

$$\Phi(\mathbf{u}) \begin{vmatrix} t_{2} & t_{1} \\ = c \cdot (\frac{t+t_{0}}{t_{0}})^{-(\alpha+1)} \\ t_{1} & t_{1} \end{vmatrix} = e^{-\frac{1}{2\sigma^{2}}(\frac{(t+t_{0})^{2}}{t_{0}^{2}} e^{-\mathbf{u}} - 1)^{2} - \frac{\mathbf{u}}{2}$$
(18)

Die Integration wurde numerisch durchgeführt. Eine Möglichkeit zur Überprüfung der nach Gl.(18) berechneten Spektren bietet das Monte-Carlo-Programm.

- 61 -

In Abb.19 sind nach Gl.(18) und mit der Monte-Carlo-Methode berechnete Flußspektren für die drei gemessenen Zeitintervalle dargestellt. Innerhalb des statistischen Fehlers der Monte-Carlo-Rechnungen stimmen die Spektren gut überein. Da RABBLE mit einem 1/E-Spektrum rechnet, also  $\Phi(U)=1$  für alle U ist, erhält man durch Multiplikation der RABBLE-Ergebnisse mit dem nach Gl.(18) berechneten Fluß und Integration über den ganzen Energiebereich eine Reaktionsrate, die der im Zeitintervall t<sub>1</sub> bis t<sub>2</sub> gemessenen Spaltneutronenzahl entspricht.

 $\begin{array}{c} \underline{\text{Tabelle 9}} & \underline{\text{Mittlere Zahl der Spaltneutronen pro Spaltung,}} \\ \hline \nu & \underline{\sqrt{41}} & \underline{\text{und Umrechnungsfaktoren von Spaltrate}} \\ auf Spaltneutronenzählrate, f bei Berücksichtigung der Spaltneutronenspektren} \end{array}$ 

√ (U-35)	2.243	f (U-35)	1
⊽ (Pu-39)	2.892	f (Pu-39)	1.21
ν̄ (Pu-41)	2.924	f (Pu-41)	1.22

#### 6.1.5 Anwendung des Programms

Der gesamte Bleipile wurde als zylindrische Reaktorzelle aufgefaßt. Der Brennstab befindet sich im Zentrum dieser Zelle und wird umgeben von einem mit Wasserstoffgas gefüllten Hohlraum von 5 cm Radius. Dieser Gasraum entspricht dem Meßkanal im Bleipile, in dem sich der Brennstab und die mit 3 atm Methan gefüllten Protonenrückstoßzählrohre befinden. Die Strukturmaterialien (Brennstabhüllrohr, Zählrohrwand) können vernachlässigt werden, wie Testrechnungen ergaben. Der Radius des den Meßkanal umgebenden Bleimoderators ist mit 60 cm so gewählt, daß der Neutronenfluß am Rand der Zelle asymptotisch ist.

## 6.2 Prüfung des Programms und der verwendeten Wirkungsquerschnittsdaten

#### 6.2.1 Vergleich von gemittelten Wirkungsquerschnitten

Zur Überprüfung der Resonanzparamter, die in RABBLE zur Erzeugung der Spaltquerschnitte von U-35 und Pu-39 verwendet werden, wird der Kerndatensatz KEDAK herangezogen. Auf KEDAK sind für diskrete Energien Querschnittswerte gespeichert. Ein punktweiser Vergleich der aus Resonanzparametern erzeugten Querschnitte mit den differentiellen KEDAK-Daten erweist sich als wenig informativ, da die Querschnittswerte zu stark variieren. Sinnvoller ist es, Mittelwerte über nicht zu große Energieintervalle zu vergleichen. Die in RABBLE erzeugten und auf KEDAK vorliegenden mikroskopischen Spaltquerschnitte von U-35 und Pu-39 werden über schmale Energieintervalle ( $\Delta U = 0,06$ ) arithmetisch gemittelt (Abb.20 und 21). Große Diskrepanzen treten nur in Bereichen niedriger Querschnitte auf.

Für den Vergleich von numerisch berechneten Werten und Meßwerten sind die Fehler der über die Meßbereiche (E I bis III) gemittelten Wirkungsquerschnitte von Bedeutung. Ein Maß für diese Ungenauigkeit sind die Diskrepanzen zwischen den entsprechenden Mittelwerten der KEDAK-Daten und der in RABBLE verwendeten Querschnitte. Die Mittelung wurde mit dem Wichtungsspektrum aus Gl. (18) durchgeführt. In Tabelle 10 sind die Unterschiede zwischen KEDAK- und RABBLE-Querschnitten angegeben.

		f		
		Pu-39/Ein-Niveau-P.	U-35/Ein-Niveau-P.	U-35/Multi-Niveau-P.
E	I	+ 1,13 %	- 14,0 %	+ 3,74 %
Е	II	+ 6,93 %	- 14,36 %	+ 8,64 %
E	III	- 7,32 %	- 17,44 %	+ 2,56 %

<u>Tabelle 10</u> Vergleich von gemittelten Spaltquerschnitten:  $\overline{\sigma}_{f}(\text{RABBLE}) - \overline{\sigma}_{f}(\text{KEDAK})$   $\overline{\sigma}_{f}(\text{KEDAK})$ 

Die Multiniveau-Darstellung für U-35 zeigt eine wesentlich bessere Übereinstimmung mit den punktweisen Daten als die Ein-Niveau-Darstellung, obwohl auch hier ebenso wie bei Pu-39 noch erhebliche Diskrepanzen auftreten. Diese Diskrepanzen liegen jedoch in einer Größenordnung, die bei dem derzeitigen Stand der Kenntnis dieser Kerndaten zu erwarten ist.

### 6.2.2 Vergleich von Resonanzintegralen

RABBLE bietet die Möglichkeit, Resonanzintegrale bei unendlicher Verdünnung des Absorbers zu berechnen. Durch Vergleich mit gemessenen Resonanzintegralen erhält man eine Aussage über die Qualität der zur Berechnung verwendeten Resonanzparameter. Mit einer unteren Energiegrenze von O,5 eV und unter Berücksichtigung der unaufgelösten Resonanzen mit Hilfe von statistischen Parametern erhält man die in Tabelle 10 aufgeführten Werte. Der Vergleich mit den ebenfalls in der Tabelle enthaltenen Meßwerten zeigt, daß die Resonanzintegrale von U-38 und Pu-39 mit befriedigender Genauigkeit berechnet wurden. Der Wert für U-35 liegt fast 10% tiefer als der empfohlene Wert, jedoch ist zu berücksichtigen, daß die Streuung der in  $/\overline{42}/$  angegebenen gemessenen Werte des U-35-Resonanzintegrals von der gleichen Größenordnung ist.

Das Resonanzintegral von Pu-240 wird zum großen Teil von der hohen Absorptionsresonanz bei 1 eV gebildet, die außerhalb des hier verwendeten Energiebereichs liegt. Daher kann aus dem hier ermittelten Unterschied von 885 b keine Aussage über die Diskrepanz im Bereich von 10 eV bis 100 eV gemacht werden. Das Resonanzintegral von Pu-241 stimmt mit dem in  $\langle \bar{4}3 \rangle$  angegebenen Wert innerhalb dessen Fehlergrenzen gut überein. Die hier aufgezeigten Diskrepanzen in den gemittelten Wirkungsquerschnitten und in den Resonanzintegralen lassen beim Vergleich mit RABBLE berechneter und gemessener Spaltneutronenzahlen Unterschiede in der Größenordnung bis 10% erwarten.

- 64 -
|                         | berechnet | gemessen              |
|-------------------------|-----------|-----------------------|
| I <sub>∞</sub> (U-35)   | 254.6     | 281.4 (ENDF/B)        |
| I <sub>co</sub> (U -38) | 280.6     | 278.2 ( " )           |
| I∞(Pu-39)               | 314.1     | 30 <b>9.</b> 1 ( " )  |
| I <sub>00</sub> (Pu-40) | 7815.1    | 8700 ± 800 /407       |
| I <sub>∞</sub> (Pu-41)  | 541.2     | 557 ± 33 <u>/4</u> 17 |

Tabelle 11 Vergleich der mit RABBLE berechneten Resonanzintegrale mit Meßwerten

### 6.2.3 Berechnung des effektiven Resonanzintegrals einer Resonanz

Für eine isolierte Resonanz in Ein-Niveau-Darstellung kann mit der Theorie der Resonanzabsorption 2/7 das effektive Resonanzintegral als Funktion der Atomzahldichte des Absorbermaterials in einem zylindrischen Stab näherungsweise berechnet werden (Anhang 2). Die Dopplerverbreiterung der Resonanz bewirkt eine Reduktion der Selbstabschirmung, da die Resonanz durch diesen Effekt nicht nur breiter, sondern auch flacher wird und daher eine geringere Flußabsenkung im Absorberstab hervorruft.

In RABBLE wird bei der Berechnung der Wirkungsquerschnitte die Dopplerverbreiterung berücksichtigt. Außerdem werden aber auch die Resonanzentkomm- und Transmissionswahrscheinlichkeiten in den einzelnen ringförmigen Zonen des Stabs exakt berechnet, während die in Anhang 2 dargestellte Theorie zur Berechnung der Entkommwahrscheinlichkeit aus dem gesamten Absorberstab die rationale Näherung von Wigner verwendet. In dieser Näherung wird die Entkommwahrscheinlichkeit unterschätzt, folglich das effektive Resonanzintegral überschätzt  $\langle \overline{27} \rangle$ . Die Rechnungen wurden für die 36,8 eV-Resonanz von U-38 und einen Stab mit 1 cm Durchmesser durchgeführt. Die Atomzahldichte N des U-38 wurde über fünf Zehnerpotenzen variiert. Die Abb.22 zeigt das mit der "narrow resonance infinite absorber mass"-Näherung  $\langle \overline{44} \rangle$  für die natürliche und die doppler-verbreiterte Linienform sowie das mit RABBLE berechnete effektive Resonanzintegral als Funktion von N.

Bei sehr niedrigen Absorberkonzentrationen ergeben die drei Berechnungsmethoden den Grenzwert I<sub>co</sub>. Für sehr hohe Konzentrationen ergeben die drei Methoden ebenfalls gleiche Werte, die in Übereinstimmung mit gemessenen Werten  $\langle \overline{4} \rangle$  entsprechend I<sub>eff</sub> ~ 1/ $\sqrt{N}$  abfallen. Im Bereich mittlerer Konzentrationen liegen die mit RABBLE berechneten Werte von I<sub>eff</sub> wie erwartet zwischen den mit der natürlichen und der dopplerverbreiterten Linienform berechneten Näherungswerten. Die mit RABBLE berechnete Selbstabschirmung einer isolierten Resonanz wird demnach im vollen Umfang durch die Ergebnisse der Resonanzabsorptionstheorie bestätigt.

### 6.3 Fehler bei der Berechnung der Spaltneutronenzahlen mit RABBLE

### 6.3.1 Programmbedingte Fehler

Bei der Berechnung der Reaktionsraten mit RABBLE können sich durch die notwendige Diskretisierung der räumlichen und energetischen Verteilung der Neutronen Fehler ergeben, wenn die Energiegruppen- bzw. Zoneneinteilung nicht fein genug ist. Es zeigte sich, daß eine Einteilung mit  $\Delta u = 2 \times 10^{-4}$  und jeweils 5 Zonen im Stab, im Meßkanal und im Bleipile ausreichend ist. Eine weitere Verfeinerung der Einteilung ergab keine Änderung der Ergebnisse.

Da RABBLE eine in axialer Richtung unendlich ausgedehnte Reaktorzelle berechnet, kann die endliche Länge der Stäbe vor allem beim Vergleich von Stäben verschiedener Dicke zu Fehlern führen. Aus dem Verhältnis von Durchmesser zu Länge der Stäbe läßt sich jedoch abschätzen, daß der Effekt der Stabenden auf die berechneten Reaktionsraten kleiner als 1% ist und daß die Unterschiede für verschieden dicke Stäbe vernachlässigbar sind.

66 -

# 6.3.2 Fehler durch Unsicherheit in den Kerndaten und in den Bleipilespektren

Die vermutlich größten Fehler der berechneten Spaltneutronenzahlen beruhen auf Ungenauigkeiten der Wirkungsquerschnitte. Ein Maß für diese Ungenauigkeiten sind die beim Vergleich mit KEDAK aufgetretenen Diskrepanzen von durchschnittlich 5% und maximal  $\pm$  8% (Tabelle 8).

Auch bei der Umrechnung von Spaltraten in Spaltneutronenzahlen kann ein Fehler infolge nicht ganz gesicherter Kerndaten entstehen. Die für die Umrechnung verwendeten  $\overline{v}$ -Werte (Tabelle 7) werden als energieunabhängig angenommen. In einigen neueren Arbeiten  $/\overline{45}-487$  wurde jedoch eine schwache Energieabhängigkeit der  $\overline{v}$ -Werte im Bereich zwischen 1 und 100 eV festgestellt. Die Ergebnisse dieser Arbeiten widersprechen sich allerdings zum Teil, so daß eine Berücksichtigung dieses Effekts nicht sinnvoll erscheint. Abweichungen bis zu 3% von den hier verwendeten  $\overline{v}$ -Werten in den einzelnen Energiegruppen sind jedoch nicht auszuschließen.

Beim Vergleich von numerisch berechneten Werten mit gemessenen Spaltneutronenzahlen müssen die den Meßzeitintervallen entsprechenden Energieverteilungen der Neutronen im Bleipile berücksichtigt werden (Abschnitt 6.1.4). Dabei entstehen Fehler in den RABBLE-Werten dadurch, daß die Grenzen  $t_1$  und  $t_2$  des Meßzeitintervalls und die Breite  $\sigma$  der Energieverteilungsfunktion in (18) nicht genau bekannt sind.

Die Unsicherheit der Werte von  $t_1$  und  $t_2$  in Höhe von  $\pm$  60 ns entsprechend 0,05 bis 0,15% und von  $\sigma$  in Höhe von  $\pm$  1% führen jedoch zu Fehlern in den Spaltneutronenzahlen, die vernachlässigbar sind gegen die durch die Unsicherheit der Kerndaten entstehenden Fehler.

Insgesamt kann man aus der Unsicherheit der Wirkungsquerschnitte, der V-Werte und der Bleipilespektren auf einen für jeden Meßbereich und jeden Spaltstoff spezifischen Fehler schließen, der im Maximum 10% nicht überschreiten dürfte, wahrscheinlich aber eher unter 5% liegt.

## 6.4 Ergebnisse der Brennstabrechnungen mit RABBLE

RABBLE liefert integrale Spaltneutronenzahlen, die sich von den gemessenen nur durch einen Normierungsfaktor unterscheiden. Dieser Normierungsfaktor sollte für alle Stäbe und alle Energiebereiche derselbe sein. Tatsächlich ist dieser Faktor nicht konstant. Es wird daher beim Vergleich von gerechneten und gemessenen Werten ein mittlerer Normierungsfaktor verwendet.

Aus den systematischen Abweichungen der berechneten Spaltneutronenzahlen von den gemessenen Werten lassen sich Schlüsse hinsichtlich der Fehler in den Spaltratenrechnungen oder in den Messungen ziehen. In Tabelle 12 sind die Unterschiede zwischen Meß- und Rechenergebnissen zusammengefaßt.

### 6.4.1 Spaltneutronenzahlen der "reinen" Stäbe

Der Vergleich der gerechneten Spaltneutronenzahlen der "reinen" Stäbe mit den gemessenen Werten läßt keine systematischen Fehler hinsichtlich der Anreicherung oder des Stabdurchmessers erkennen. Dagegen treten in den einzelnen Energiebereichen sowohl für Uranals auch für Plutoniumstäbe signifikante Unterschiede auf, die offensichtlich von Diskrepanzen in den Wirkungsquerschnitten herrühren.

Die mit den Multiniveau-Parametern berechneten Spaltneutronenzahlen der reinen Uranstäbe AU 1-4, AU 10 und AU 12 zeigen in den Energiebereichen II und III systematische Abweichungen von den gemessenen Werten in Höhe von  $+2,3 \pm 0,6\%$  bzw.  $+4,1 \pm 1,2\%$ . Die Fehlergrenzen geben die maximalen Abweichungen einzelner Stäbe vom Mittelwert an, sie liegen in der Größenordnung der Meßfehler.

Eine Korrelation mit den Unterschieden der gemittelten Wirkungsquerschnitte zwischen KEDAK und den Multiniveau-Daten (Tab.10) ist nicht vorhanden. Es scheint, als ob der hier verwendete U-35-Querschnitt  $\sqrt{397}$  in den gemessenen Energiebereichen dem tatsächlichen Spaltquerschnitt besser entspricht. Unter Verwendung der in Tabelle 10 enthaltenen Werte ergeben sich folgende Unterschiede zwischen Meßwerten und KEDAK-Daten:

E I: +3,5%, E II: +10,9%, E III: +6,6%

Bei den Stäben, die abgereichertes Uran und Plutonium enthalten, wird der Plutoniumanteil der Spaltrate getrennt berechnet und mit dem Plutoniumanteil der Meßwerte (5.1.1) verglichen. Die in Tabelle 12 angegebenen prozentualen Unterschiede der Mittelwerte aller "reinen" Stäbe in den einzelnen Energiebereichen liegen zwischen 2 und 4% und zeigen keine Korrelation mit den Abweichungen der gemittelten Spaltquerschnitte von KEDAK (Tab.10). Die Unterschiede zwischen Messung und KEDAK-Daten für Plutonium betragen in E I: +5,3%, E II: +3,6%, E III: -5,6%.

Abgesehen von diesen Diskrepanzen, deren mögliche Ursachen in 6.3.2 beschrieben wurden, stimmen die RABBLE-Werte und die Meßwerte innerhalb der Fehlergrenzen der Meßwerte gut überein.

### 6.4.2 Spaltneutronenzahlen der gemischten Stäbe

Für die gemischten Stäbe APu-8 und APu-9 treten zwischen den RABBLE-Ergebnissen und den Meßwerten Abweichungen bis zu 3,7% auf. Diese Diskrepanzen sind wieder auf die Wirkungsquerschnitte zurückzuführen und können mit den in 6.4.1 ermittelten Abweichungen zwischen den gemessenen und den berechneten Werten der "reinen" Stäbe korrigiert werden.

		un	
Teststab Nr.	(Meßwert-Rechenwert)/Meßwert 2 %_7		
	ΕI	E II	E III
<b>AU</b> 1	+0.65	+2.69	+5.57
<b>AU</b> 2	-0.54	+2.32	+3.79
<b>AU</b> 3	-0.19	+2.95	+3.53
AU 4	-0.48	+1.75	+4.26
<b>AU</b> 10	+0.43	+2.84	+4.96
AU 12	-0.73	+1.84	+3.12
Mittelwerte:	-0.24	+2.32	+4.09
max. Abweichungen:	±0.7	±0.6	±1.2
APu 5	+4.12	-1.95	-0.27
APu 7	+3.30	-2.59	-0.62
APu 6	+3.56	-4.14	+0.50
APu ll	+5.62	-2.35	+4.28
APu 13	+3.91	-2.74	-1.55
Mittelwerte:	+4.20	-3.32	+1.74
max. Abweichungen:	±1.2	±1.1	±2.4
APu 8	+1.66	-2.47	-0.07
APu 9	+2.94	+3.76	+0.18

Tabelle 12 Vergleich von Meßwerten und RABBLE-Ergebnissen

In Tabelle 13 sind die Unterschiede zwischen Messung und Rechnung sowie die nach der Korrektur der Rechenergebnisse ermittelten Unterschiede angegeben. Die Korrektur führt zu einer befriedigenden Übereinstimmung zwischen RABBLE-Werten und Meßergebnissen.

In den gemischten Stäben treten Wechselwirkungseffekte auf, deren Auswirkung auf die Spaltraten der einzelnen Spaltstoffe mit RABBLE berechnet werden kann. Dazu muß die von U-35 bzw. Plutonium herrührende Spaltneutronenzahl im Stab einzeln berechnet werden, und zwar einmal bei Anwesenheit des jeweiligen Mischungspartners und einmal ohne diesen. Auf diese Weise erhält man die in Tabelle 13 angegebene Reduktion der Spaltneutronenzahlen des einen Spaltstoffs durch den anderen.

Aus diesen Werten wurden die in Tabelle 8 angegebenen Wechselwirkungsparameter K<sub>UPu</sub> und K<sub>PuU</sub> für die drei Energiebereiche ermittelt. Die Unterschiede zwischen den nach (16) berechneten und den gemessenen Spaltneutronenzahlen (Tab.8) und die in Tab.13 eingetragenen Unterschiede zwischen RABBLE-Werten und Meßwerten sind jeweils klein. Für die mit RABBLE berechnete Wechselwirkung zwischen U-35 und Plutonium stellt (16) also ein gute näherungsweise Beschreibung dar.

- 71 -

Tabelle 13Vergleich von gemessenen Spaltneutronenzahlen Z<br/>und RABBLE-Werten R sowie RABBLE-Werten K nach<br/>Korrektur der systematischen Abweichungen.<br/>Reduktion der RABBLE-Werte durch Wechselwirkung<br/>für die einzelnen Spaltstoffe  $\sqrt{-8}$ 

ΕI	E II	E III
+1.66	-2.47	-0.07
+2.94	-3.76	+0.18
· · · · · · · · · · · · · · · · · · ·	· . ·	
-0.83	-0.53	-0.94
+1.02	+2.59	-1.03
-3.29	-3.22	-2.15
-2.66	-2.42	-1.55
-0.13	-1.90	-1.37
-0.31	-4.20	-2.60
	E I +1.66 +2.94 -0.83 +1.02 -3.29 -2.66 -0.13 -0.13 -0.31	E I E II +1.66 -2.47 +2.94 -3.76 -0.83 -0.53 +1.02 +2.59 -3.29 -3.22 -2.66 -2.42 -0.13 -1.90 -0.31 -4.20

 Berechnung der effektiven Absorptionsquerschnitte von Uran-235, Uran-238 und Plutonium-239 in einem 1/E-Spektrum

Aus den bisherigen Ergebnissen lassen sich zwei Schlußfolgerungen ziehen:

- a) Die Gleichungen (11) bzw. (16) sind zur Beschreibung der Resonanzselbstabschirmung bzw. der Resonanzselbstabschirmung und der wechselseitigen Resonanzabschirmung in Reaktorbrennstäben geeignet, wenn es möglich ist, für die freien Parameter in diesen Gleichungen passende Werte zu bestimmen.
- b) Das Programm RABBLE bietet die Möglichkeit, Reaktionsraten in Brennstäben unter Berücksichtigung der Resonanzabschirmungseffekte zu berechnen.

Beide Aussagen werden durch die zufriedenstellende Übereinstimmung zwischen gemessenen Spaltneutronenzählraten von Testbrennstäben im Bremszeitspektrometer und den nach Gleichung (11) und (16) bzw. numerisch berechneten Werten bestätigt.

Damit eröffnet sich die Möglichkeit, effektive Absorptionsquerschnitte für Reaktorbrennstäbe in einem 1/E-Spektrum auf einfache Weise und in guter Näherung mit Hilfe der analytischen Formeln zu berechnen. Diese effektiven Absorptionsquerschnitte eines Stabs bilden eine Grundlage für eine Abschätzung der Resonanzentkommwahrscheinlichkeit in einem thermischen Reaktor. Deshalb wird nun der gesamte Bereich des 1/E-Spektrums betrachtet, der mit den RABBLE-Querschnitten erfaßt werden konnte, nämlich der Bereich von 0,2 bis 150 eV.

### 7.1 Berechnung der Abschirmungsparameter

Als Ausgangsgleichung dient die folgende Beziehung, die aus Gl.(13) durch Hinzufügen eines dritten Resonanzabsorbers hervorgeht:

$$I_{eff_{1}}^{W} = I_{eff_{1}} (1 - K_{12} (1 - \frac{I_{eff_{2}}}{I_{\infty 2}})) \cdot (1 - K_{13} (1 - \frac{I_{eff_{3}}}{I_{\infty 3}}))$$
(19)

$$= \frac{1_{\infty_1}}{\sqrt{1+K_{11}N_1d}} \cdot (1-K_{12}(1-\frac{1}{\sqrt{1+K_{22}N_2d}}))(1-K_{13}(1-\frac{1}{\sqrt{1+K_{33}N_3d}}))$$

Für die Materialien 2 und 3 erhält man analoge Ausdrücke durch zyklische Vertauschung der Indizes. N<sub>1</sub>, N<sub>2</sub>, N<sub>3</sub> sind Atomzahldichten der Resonanzabsorber, hier werden U-35, U-38 und Pu-39 betrachtet.

Der Ausdruck (19) beschreibt sowohl Selbstabschirmung als auch wechselseitige Abschirmung und enthält die reine Selbstabschirmung als Spezialfall, wenn N<sub>2</sub> und N<sub>3</sub> = O sind. Mit den Ergebnissen der RABBLE-Rechnungen werden die Parameter  $I_{\omega_1}$  und K<sub>11</sub> für verschiedene Anreicherungen des Materials i und K<sub>1j</sub> für verschiedene Materialmischungen bestimmt. Für reine Resonanzabsorber (N<sub>1</sub> = O, j **‡** i) ist

$$K_{ii} = \left( \left( \frac{I_{\omega i}}{I_{eff_i}} \right)^2 - 1 \right) / N_i d$$

i = 1, 2, 3.

Für eine Mischung aus jeweils zwei Resonanzabsorbern erhält man die sechs Größen

$$K_{ij} = (1 - \frac{I_{eff_{i}}^{w}}{I_{eff_{i}}}) / (1 - \frac{I_{eff_{i}}}{I_{\omega_{j}}})$$
  
i,j = 1,2,3, i**‡**j.

Für jede Materialkombination werden für fünf Mischungsverhältnisse die  $K_{ij}$  berechnet, in Tabelle 14 sind die Mittelwerte  $\overline{K_{ij}}$  angegeben.

Tabelle 14	Selbstabschirmungs- und Wechselwirkungsparameter
	Kij für U-35, U-38 und Pu-39 im Energiebereich
	0.2-150 eV bzw. 0.55-150 eV (Werte in Klammern)

j	1	2	3
i	(U-35)	(U-38)	(Pu-39)
1 (U-35)	256.5±2%	0.047±7%	0.363±6.5%
	(251.0±0.8%)	(0.066±5%)	(0.135±7.5%)
2 (U-38)	0.270±4%	10377±0.4%	0.0635±10%
	(0.235±3%)	(11290±0.25%)	(0.0817±6%)
3 (Pu-39)	0.490±25%	0.0154 <sup>+</sup> 8%	5353±13%
	(0.254±4%)	(0.0238±8%)	(621±2.5%)

Die in der Tabelle angegebenen Fehlerprozente beziehen sich auf die maximalen Abweichungen vom Mittelwert im Bereich  $0 < Nd < 1.3 \cdot 10^{21}$  /cm<sup>-2</sup>/, entsprechend Spaltstoffanreicherungen von 0 bis 6% bei einem Stabdurchmesser von 1 cm.

Da bei der 0.3 eV-Resonanz von Pu-39 der mittlere Energieverlust pro Stoß nicht mehr groß ist gegen die Breite der Resonanz, was bei Ableitung der Selbstabschirmungsformel (11) vorausgesetzt war, treten bei allen mit der Plutoniumselbstabschirmung gekoppelten Werten größere Fehler auf. Insbesondere ist der Plutoniumselbstabschirmungsparameter K<sub>33</sub> von der Plutoniumanreicherung abhängig.

Es wurde daher ein zweiter Satz von Parametern für den Energiebereich 0.55-150 eV berechnet. Die in Tab.14 in Klammern angegebenen Werte weisen insbesondere für Plutonium, wie erwartet, geringere maximale Abweichungen auf.

- 75 -

# 7.2 <u>Anwendbarkeit der analytischen Methode zur Berechnung</u> der effektiven Absorptionsquerschnitte

Die Anwendbarkeit der Beziehung (19) erweist sich daran, inwieweit die  $K_{1j}$  von den Anreicherungen der Resonanzabsorber i und j unabhängig sind und wie groß die Abweichungen zwischen den mit Gl.(19) und den numerisch berechneten effektiven Querschnitten sind.

Die in der Tabelle 14 angegebenen Ungenauigkeiten der Abschirmungsparameter wirken sich mit unterschiedlichem Gewicht auf den nach (19) zu berechnenden effektiven Resonanzquerschnitt aus.

Zur Abschätzung der maximalen Fehler von  $I_{eff}^{W}$  wurden mit Gl.(19) für einen Stab mit 6% U-35- und 6% Plutoniumanreicherung die Reduktion der Querschnitte und die entsprechenden Fehlergrenzen berechnet (Tab.15). Die für diesen Stab mit RABBLE berechneten integralen abgeschirmten Absorptionsquerschnitte R stimmen innerhalb dieser maximalen Fehlergrenzen mit den  $I_{eff}^{W}$  von (19) überein, wie Tab.15 zeigt.

Für einen Brennstab mit gemischtem Spaltstoff können also mit (19) und den in Tab.14 angegebenen Parametern aus den unendlich verdünnten integralen Absorptionsquerschnitten der einzelnen Resonanzabsorber (Tab.15), den Atomzahldichten und dem Stabdurchmesser die effektiven Absorptionsquerschnitte des Spaltquerschnitts von U-35 und Pu-39 unter Berücksichtigung der Selbstabschirmung und der wechselseitigen Abschirmung mit einem maximalen Fehler von 3% bzw. 7% im Energiebereich 0.2-150 eV und von 1% bzw. 2% im Energiebereich 0.55-150 eV berechnet werden. Diese Angaben beziehen sich auf einen Wertebereich des Produkts N-d von O bis  $1.3 \cdot 10^{-3} / \overline{10}^{24} \text{ cm}^{-2} / \overline{7}$  entsprechend Spaltstoffanreicherungen von O bis 6% bei einem Stabdurchmesser von 1 cm. Die Absorptionsrate, die von einem 1/E-Fluß  $\Phi_{epi}$ epithermischen Energiebereich im Stab erzeugt wird, ergibt sich aus diesen effektiven integralen Absorptionsquerschnitten mit Hilfe von Gleichung (7) zu:

$$Z_{abs} = \frac{L}{235} \cdot I_{eff}^{W} (U-35) \cdot \Phi_{epi} \cdot M(U-35)$$
$$+ \frac{L}{238} \cdot I_{eff}^{W} (U-38) \cdot \Phi_{epi} \cdot M(U-38)$$
$$+ \frac{L}{239} \cdot I_{eff}^{W} (Pu-39) \cdot \Phi_{epi} \cdot M(Pu-39)$$

ø

Tabelle 15Integrale Absorptionsquerschnitte I, bei unend-<br/>licher Verdünnung, ihre Reduktion nach Gl.(19)<br/>in einem Stab mit je 6% U-35- und Pu-39-An-<br/>reicherung und Unterschiede zwischen dieser und<br/>der numerisch berechneten Reduktion der effek-<br/>tiven integralen Absorptionsquerschnitte

		0.2 - 150 eV	0.55-150 eV
<b>U-</b> 35	I coo	509,2	332,9
	$\frac{I_{\omega} - I_{eff}^{"}}{I_{\omega}}$	0,36±0,03	0,20±0,01
	I <sup>w</sup> eff <sup>−R</sup> I∞	- 0.019	+ 0.0052
U-38	I <sub>øo</sub>	263,7	262,9
	I <sub>∞</sub> -I <sup>w</sup> eff I <sub>∞</sub>	0,938±0,003	0,937±0,001
	$\frac{I_{eff}^{W} - R}{I_{\omega}}$	- 0,0007	+ 0,0003
Pu-39	I <sub>00</sub>	2641,2	410,0
	I∞-I <sup>₩</sup> eff I∞	0,58±0,07	0,29±0,02
	$\frac{I_{eff}^{W}-R}{I_{\infty}}$	- 0,0293	- 0,0041

### 8. Zusammenfassung

Das Bremszeitspektrometer bietet die Möglichkeit, induzierte Spaltungen in Abhängigkeit von der Energie der die Spaltungen auslösenden Neutronen in Reaktorbrennstäben mit gemischtem Spaltstoff zu messen. Dazu werden die emittierten Spaltneutronen mit Protonenrückstoßproportionalzählrohren registriert. Aus der Zahl der in verschiedenen Bremszeitintervallen gemessenen Spaltneutronen lassen sich die Mengen der einzelnen Spaltstoffe (Uran-235 und Plutonium) getrennt und gleichzeitig bestimmen, wobei zu berücksichtigen ist, daß der Zusammenhang zwischen Spaltneutronenzahl und Spaltstoffmenge aufgrund von Resonanzabschirmungseffekten von der direkten Proportionalität abweicht.

Diese Methode zur Spaltstoffbestimmung wurde hinsichtlich ihrer Durchführbarkeit und Genauigkeit untersucht, und zwar in folgenden Schritten:

- Die Eigenschaften des Bremszeitspektrometers, vor allem der Abhängigkeit der mittleren Neutronenenergie, des Auflösungsvermögens und der Neutronenflußdichte von der Bremszeit wurden experimentell überprüft und, für kurze Bremszeiten, durch Monte Carlo-Rechnungen erstmals genauer erfaßt.
- Durch Messung des Verhältnisses der Spaltneutronenzählraten von Uran-235 und Plutonium wurden die für die Diskrimination der beiden Spaltstoffe am besten geeigneten Energiebereiche ermittelt.
- 3. Im Bremszeitspektrometer wurden Spaltneutronenzählraten von Eichstäben mit unterschiedlicher Anreicherung, Spaltstoffmischung, Dichte und unterschiedlichem Durchmesser in verschiedenen Bremszeitintervallen gemessen, deren Verlauf als Funktion der Spaltstoffmenge den Einfluß der Resonanzselbstabschirmung und der wechselseitigen Resonanzabschirmung erkennen ließ.

- 4. Zur Berechnung der Resonanzabschirmungseffekte wurden mit Hilfe der Theorie der Resonanzabsorption analytische Ausdrücke mit mehreren freien Parametern abgeleitet. Die Parameter für reine Uran-235- oder Plutoniumstäbe wurden aus den Messungen unter 3., die für Spaltstoffmischungen aus den numerischen Rechnungen unter 5. gewonnen. Es zeigte sich, daß fast alle Meßergebnisse innerhalb der Meßgenauigkeit von 1% durch die analytischen Ausdrücke wiedergegeben werden. Diese gute Übereinstimmung konnte nur durch Berücksichtigung der wechselseitigen Abschirmung zwischen U-35, U-38 und Plutonium hergestellt werden.
- 5. Mit einem Neutronentransportprogramm, das Stoßwahrscheinlichkeiten in 10000 Energiegruppen berechnet, wurden effektive Spaltquerschnitte von Brennstäben als Funktion von Anreicherung, Spaltstoffmischung, Dichte und Durchmesser bestimmt. Das Programm wurde so modifiziert, daß der Wirkungsquerschnitt von Uran-235 aus Multi-Niveau-Resonanzparametern bestimmt werden kann. Mit den im Bleipile in den verschiedenen Bremszeitintervallen herrschenden Spektren und den numerisch berechneten effektiven Spaltquerschnitten wurden Reaktionsraten zum Vergleich mit den Meßwerten ermittelt. Bei diesem Vergleich zeigten sich für jeden Spaltstoff spezifische systematische Abweichungen in der Größenordnung von 5%, die auf Ungenauigkeiten der verwendeten Kerndaten zurückzuführen sind. Abgesehen von diesen systematischen Unterschieden war die Übereinstimmung zwischen numerisch berechneten Werten und Meßwerten innerhalb der Fehlergrenzen der Messung zufriedenstellend.

Die Konsistenz der Ergebnisse der Messungen von Eichstäben, der numerischen Rechnungen und der analytischen Darstellung läßt den Schluß zu, daß die Spaltstoffbestimmung an gemischten Brennstäben mit dem Bremszeitspektrometer möglich ist und daß dabei im Rahmen der Meßgenauigkeit kein systematischer Fehler auftritt.

- 79 -

Die Meßgenauigkeit der Spaltneutronenzählraten für Brennstäbe mit 1 m Länge, Spaltstoffanreicherungen von 2 bis 6% und Durchmessern von ca. 1 cm betrug für die bei den Experimenten verwendete Anlage bei einer Meßzeit von ca. 50 min pro Stab 1%; sie kann für Stäbe mit mehr als 2 m Länge bei einer dreimal so hohen Leistung des Neutronengenerators und einer Meßzeit von 2 min pro Stab mit 2% angenommen werden. Der Fehler der aus den Spaltneutronenzählraten ermittelten Spaltstoffmengen liegt in der Größenordnung der Meßgenauigkeit dieser Spaltneutronenzählraten.

Da die analytische Formel in Verbindung mit der numerischen Berechnung einzelner effektiver Reaktionsraten sich zur Beschreibung der Meßergebnisse als geeignet erwies, wurden auch für ein 1/E-Spektrum die Parameter der Formel numerisch bestimmt. So können effektive Resonanzintegrale der verschiedenen Absorptionsquerschnitte in Stäben mit gemischtem Spaltstoff sofort ausgerechnet werden. Diese Zahlen sind z.B. für die Bestrahlung von Brennstäben in thermischen Reaktoren von Bedeutung.

#### Literaturverzeichnis

- /1/ Weinberg, A.M. und E.P. Wigner The Physical Theory of Nuclear Chain Reactors; Chicago University Press (1958)
- <u>/2</u>7 Dresner, L.
  Resonance Absorption in Nuclear Reactors;
  Pergamon Press (1960)
- <u>/3</u> Nordheim, L.W. The Theory of Resonance Absorption; General Atomic Report GA-638 (1961)
- <u>/4</u>/ Hellstrand, E. Measurements of the Effective Resonance Integral in Uranium Metal and Oxide in Different Geometries; J. Appl. Phys. 28, 1493 (1957)
- <u>/5</u>7 Brose, M. Zur Messung und Berechnung der Resonanzabsorption in Gold-, Uran- und Thoriumfolien; Dissertation, Karlsruhe (1962)
- <u>/6</u>/ Lazareva, L.E., E.L. Feinberg und F.L. Shapiro Neutron Spectrometry Based on the Measurement of the Deceleration Time of Neutrons; J. Exper. Theor. Phys. USSR, 29, 381 (1955)

- 82 -
- <u>Z</u> Stegemann, D. und H. Seufert Application of the Slowing Down Spectrometer for the Control of Fissionable Material; Trans. Am. Nucl. Soc., <u>11</u>, 658 (1968)
- <u>/9</u>7 Krinninger, H., S. Wiesner und C. Faber Pulsed Neutron Method for the Nondestructive and Simultaneous Determination of the U-235 and Pu-239 Contents of Irradiated Reactor Fuel Elements; Nucl. Instr. Methods, <u>73</u>, 13 (1969)
- /107 Navalkar, M.P., K. Chandramoleshwar und D.V.S. Ramakhrishna A Feasibility Study of Nondestructive Assay of Pu-239 and U-235 in Irradiated Samples Using a Slowing Down Lead Spectrometer; Nukleonik, 11, 54 (1968)
- /ll/ Beyster, J.R. The Application of the Slowing Down Spectrometer to Nuclear Materials Assay; BNL-50232 (1970)
- <u>/12</u>/ Baumung, K., K. Böhnel, J. Klunker, M. Küchle und J. Wolff Some Investigations on Nondestructive Safeguards Techniques; Proc. IAEA Symp. Safeguards Techniques, Karlsruhe 1970, IAEA-SM-133/90, Vol.II, 177
- <u>/13</u>/ Küchle, M., E. Ruppert, H. Krinninger und V.W. Schneider Slowing Down Spectrometer and Calorimetry Techniques for Safeguards; Trans. Am. Nucl. Soc. <u>14</u>, 114 (1971)
- /14/ Krinninger, H. und E. Ruppert A Slowing Down Time Spectrometer Designed for Automatically Controlling the Flow of Fissile Material; Proc. IAEA Symp. Safeguards Techniques, Karlsruhe 1970, IAEA-SM-133/31

- $\overline{157}$  Mitzel, F. und H.S. Plendl Messungen von  $(n,\gamma)$ -Wirkungsquerschnitten und Resonanzintegralen mit einem Bleispektrometer; Nukleonik 6, 8, 371 (1964)
- $\langle \bar{1}\bar{6}\bar{7} \rangle$  Chou, Y.C. Messung von  $(n,\gamma)$ -Wirkungsquerschnitten für  $T_c^{99}$ , Eu, Sm und Fe im Energiebereich 1 eV bis 50 keV mit einem Bremszeitspektrometer; KFK-Externer Bericht INR-4/70-28 (1970)
- /17/ Seufert, H. und D. Stegemann Energy and Temperature Dependent Capture Measurements below 30 keV Supporting Doppler Effect Calculations; KFK 631 (1967)
- <u>/18</u>/ Bergman, A.A., et al. Moderation of Neutrons Emitted by a Pulsed Source and Neutron Spectrometry Based on Slowing-Down Time; Proc. IAEA Symp. Pulsed Neutron Research, Karlsruhe, Vol.I, 671 (1965)
- $\langle \bar{1}9\bar{7} \rangle$  Kashukeev, N.T., Y.P. Popov und F.L. Shapiro Measurement of the Energy Dependence of the Cross Section of the Cl(n, $\gamma$ )-Reaction; J. Nucl. Energy <u>14</u>, 76 (1961)
- $\langle 20 \rangle$  Popov, Y.P. und F.L. Shapiro Energy Dependance of Cross Sections of  $(n,\gamma)$ -Reactions on a Number of Odd-Z Nuclei; Sov. Phys. JETP, 15/4, 683 (1962)
- $\sqrt{2}\overline{1}$  Popov, Y.P. und Y.I. Fenin Analysis of Averaged Cross Sections for Neutron Capture; Sov. Phys. JETP, <u>16</u>, 6 (1963)

- /22/ Bergman, A.A. et al. Bremsung gepulster Neutronen und Neutronenspektrometrie mit dem Bremszeitspektrometer; STI/PUB/104 (Vol.1), 671 (1966)
- $\langle \overline{237} \rangle$  Chandramoleshwar, K. et al. Study of Neutron Resonance Parameters Using Slowing Down Time Lead Spectrometer; AEE, Trombay, CONF-660221, 273 (1965)
- /24/ Wakabayashi, H. et al. Some New Applications of Neutron Slowing Down Time Spectrometry; J. Nucl. Sci. Techn. 7, 487 (1970)
- $\sqrt{257}$  Beckurts, K.H. und K. Wirtz Neutron Physics; Springer-Verlag Berlin (1964)
- $\sqrt{267}$  Placzek, G. Manhattan Project Report A-25
- /27/ Marshak, R. Theory of the Slowing Down of Neutrons by Elastic Collisions with Atomic Nuclei; Rev. Mod. Phys., 19, 185 (1947)
- $\langle \overline{287} \rangle$  Kazarnowskij, M.V. Energy Distribution of Neutrons Obtained by a Pulsed Source and Slowed Down in a Heavy Medium; in  $\langle \overline{277} \rangle$
- $\sqrt{297}$  v. Baeckmann, A. persönliche Mitteilung (1973)
- <u>Villiamson</u>, T.J. und R.W. Albrecht Calculations of Neutron Time-Energy Distributions in Heavy Moderators; Nucl. Sci. Eng., <u>42</u>, 97 (1970)

84 \_

- /317 Weisbin, C.R. et al. Space and Time Dependent Slowing Down in Heavy Media; Trans. Am. Nucl. Soc. 14, 386 (1971)
- $\sqrt{32}$  Werle, H. persönliche Mitteilung (1973)
- /337 Fieg, G.
  persönliche Mitteilung (1969)
- /34/ Jeandidier, C. et al. Utilisation d'une chaine a impulsion de courant pour la spectrometrie des neutrons rapides en pile; Nucl. Instr. Meth., 94, 13 (1971)
- /35/ Corngold, N. und R. Schermer Resonance Capture of Neutrons in Infinite Homogeneous Media; Proc. Phys. Soc. <u>73</u>, 561 (1959)
- $\sqrt{367}$  Kier, P.H. und A.A. Robba RABBLE, A Program for Computation of Resonance Absorption in Multiregion Reactor Cells; ANL-7326 (1967)
- /37/ Adler, D.B. and F.T. Adler Multilevel analysis of the U-235 total and fission cross sections in the energy region below 37 eV; AEC-BNL 006977 (1966)
- /38/ Vogt, E. Low Energy Cross Sections of Fissionable Nuclei; Phys. Rev. 118, 724 (1960)
- <u>/39</u>/ De Saussure,G. et al. Multilevel Analysis of the U-233 and U-235 Capture and Fission Cross Sections; Sec. Int. Conf. Nucl. Data Reactors, Helsinki 1970, P.CN-26/94

- $\langle \bar{4}0 \bar{7} \rangle$  Caner, M. und S. Yiftah persönliche Mitteilung, wird veröffentlicht als TNSD-Bericht
- /41/ Hanna, G.C., C.H. Westcott et al. Revision of Values for the 2200 m/s Neutron Constants for Four Fissile Nuclides; Atomic Energy Review Vol.7, Nr.4 (1969)
- $\sqrt{427}$  Schmidt, J.J. Resonance and thermal neutron nuclear data for U-235; KFK 120/Teil I, Abschnitt IV.1)
- $\overline{437}$  Hardy, jr., J. et al. The Resonance Fission Integrals of U-235, Pu-239 and Pu-241; Nuclear Sci. Eng. <u>9</u>, 341 (1961)
- $\overline{\sqrt{447}}$  Wigner, P. et al. Resonance Absorption of Neutrons by Spheres; J. Appl. Phys. <u>26</u>, 260 (1955)
- $\overline{457}$  Weinstein, S. et al. Sec. IAEA Symp. on Physics and Chemistry of Fission; Wien 1969, 477 (1969)
- /46/ Ryabov, Y.V. et al. JINR-P3-5297 (1970)
- <u>√47</u> Weston, L.W. und J.H. Todd ORNL-TM-3331 (1971)
- $\langle \overline{48} \rangle$  Shackleton, D. et al. Prompt neutron and  $\gamma$ -ray yield in fission-induced <sup>239</sup>Pu by resonance neutrons: Existence of the (n, $\gamma$ ,f)reaction; Physics Letters 42 B, Nr. 3 (1972) p.344

- 87 -

1. Theorie des Bremszeitspektrometers

## 1.1 Energie-Zeit-Relation

In einem Moderator mit konstantem Streuquerschnitt läßt sich eine Beziehung zwischen der Bremszeit der Neutronen und ihrer Energie aufstellen  $\overline{\sqrt{6}, \overline{2}}$ . Der mittlere logarithmische Energieverlust pro Stoß ist

$$\xi = \ell n \frac{E_1}{E_2} \approx \frac{2}{A + \frac{2}{3}} \approx \frac{2}{A} \quad \text{für } A \gg 1$$

und pro Zeiteinheit:

$$\frac{\mathrm{d}\mathbf{u}}{\mathrm{d}\mathbf{t}} = \boldsymbol{\xi} \cdot \frac{\overline{\mathbf{v}}}{\lambda_{\mathrm{S}}} \tag{A1}$$

Dabei sind



Wegen  $\frac{du}{dt} = \frac{2dv}{vdt}$  ergibt sich nach Integration

$$t + t_{o} = A\lambda_{s} \cdot \frac{1}{\nabla}$$
 (A2)

Daraus erhält man die mittlere Neutronenenergie

$$\widetilde{E}(t) = \frac{m_N}{2} A^2 \lambda_s^2 \frac{1}{(t+t_o)^2} = \frac{C}{(t+t_o)^2}$$
(A3)

und das mittlere Fermialter der Neutronen

$$\mathbf{r} = \frac{A\lambda_{s}^{2}}{3} \cdot \ell_{n} \left(\frac{t+t_{o}}{t_{o}}\right) \tag{A4}$$

wobei d $\tau = \frac{D}{\xi \Sigma_s}$  du und D =  $\frac{3}{\Sigma_s}$  verwendet werden.

### 1.2 Fokussierungseffekt

Gleichung (Al) besagt, daß der mittlere logarithmische Energieverlust pro Zeiteinheit proportional zur Neutronengeschwindigkeit ist. In einem Spektrum werden also die höherenergetischen Neutronen schneller abgebremst als die Neutronen mit niedriger Energie, was zu einer Verringerung der Breite des Spektrums bezüglich seiner mittleren Energie, einer "Fokussierung" führt. Diese Fokussierung ist im Gegensatz zur Energie-Zeit-Relation (A3) nicht auf den Fall beschränkt, daß der Streuquerschnitt konstant ist. Sie tritt immer auf, wenn  $\sigma_s$  mit abnehmender Neutronenenergie langsamer als  $\frac{1}{v}$  ansteigt, wie aus (Al) ersichtlich ist  $\underline{\sqrt{67}}$ .

Für den Normalfall eines konstanten Streuquerschnitts läßt sich aus (A3) ein analytischer Ausdruck zur Beschreibung der Fokussierung herleiten  $\overline{\overline{6}, \overline{7}}$ . Man vergleicht dann die relativen Breiten des Neutronenspektrums zu zwei verschiedenen Bremszeiten t<sub>1</sub> und t<sub>2</sub> > t<sub>1</sub>. Für die mittleren Energien  $\overline{E}_1 = \overline{E}(t_1)$  und  $\overline{E}_2 = \overline{E}(t_2)$  gilt

88 -

$$\sqrt{\frac{C}{E_2}} - \sqrt{\frac{C}{E_1}} = t_2 - t_1$$

und nach Differentiation ergibt sich

$$\frac{dE'_2}{\overline{E}_2} = \frac{dE_1}{\overline{E}_1} \cdot \sqrt{\frac{\overline{E}_2}{\overline{E}_1}}$$
(A5)

Die Fokussierung ist also proportional zur Wurzel aus der mittleren Energie des Neutronenspektrums.

## 1.3 Zeitliche Abnahme der Neutronendichte

Eine Kombination von zeitabhängiger Diffusionsgleichung und Fermi-Alter-Gleichung beschreibt den räumlichen und zeitlichen Verlauf der Neutronenbremsdichte in einem homogenen Medium aus schweren Kernen mit isotroper Streuung und geringer Absorption  $\langle \bar{7}, 11, 12\bar{7}$ . Man geht aus von der Neutronenbilanzgleichung

$$\frac{1}{v} \cdot \frac{\partial \Phi}{\partial t} \quad (\vec{r}, u, t) = - \operatorname{div} \vec{J}(\vec{r}, u, t) - \Sigma_{abs} \Phi(\vec{r}, u, t) - \frac{\partial q(\vec{r}, u, t)}{\partial u} + S(\vec{r}, u, t)$$

bestehend aus Ausfluß-, Absorptions-, Streu- und Quellterm. Dabei ist

Φ	die	Neutronenflußdi	lchte	
F	die	Neutronenstromdichte		
q	die	Neutronenbremsdichte		
S	die	Neutronenquella	lichte	
$\Sigma_{abs}$	der quei	makroskopische schnitt	Absorptions-	

- 89 -

Man verwendet folgende vereinfachende Annahmen:

1. 
$$S(\vec{r}, u, t) = S(\vec{r}) \cdot \delta(u) \cdot f(t)$$
  
(monoenergetische Quellneutronen)

2. 
$$\overrightarrow{\mathcal{F}} = - D \operatorname{grad} \Phi$$

(Diffusionsnäherung)

3.  $\Phi(E) = \frac{q}{\xi \Sigma_s E}$ (asymptotischer Fluß für Neutronenenergien weit unterhalb der Quell-

Außerdem erfolgt ein Übergang von der Variablen u auf das Fermi-Alter

$$\tau = \int_{0}^{u} \frac{D(u')}{\xi \Sigma_{s}} du$$

energie)

und die Abspaltung des Absorptionstermes mit dem Lösungsansatz

$$q(\vec{r},\tau,t) = \widetilde{q}(\vec{r},\tau,t) \cdot e^{-\Sigma_a v t}$$

Dieser Lösungsansatz ist zu begründen durch die Beziehung

$$q \sim \exp\left(\int_{0}^{u} \frac{\Sigma_{a}}{\xi \Sigma_{s}} du\right) = \exp\left(-\int_{E}^{E_{o}} \frac{\Sigma_{a}}{\xi \Sigma_{s}} \cdot \frac{dE}{E}\right) =$$

$$= \exp\left(-\int_{E} \frac{\lambda_{s}}{\xi_{v}} \cdot \Sigma_{a} v \cdot \frac{dE}{E}\right) = \exp\left(-\Sigma_{a} v t\right)$$

wobei

$$t = \int_{E}^{E_{o}} \frac{\lambda_{s}}{\xi v} \frac{dE}{E} \quad \text{eingeht (vgl.(A1)).}$$

So ergibt sich die inhomogene zeitabhängige Fermi-Alter-Gleichung für die Neutronenbremsdichte:

$$\frac{1}{Dv} \cdot \frac{\partial \widetilde{q}(\vec{r},\tau,t)}{\partial t} + \frac{\partial \widetilde{q}(\vec{r},\tau,t)}{\partial \tau} = \nabla^2 \widetilde{q}(\vec{r},\tau,t) + S(\vec{r}) \delta(\tau) f(t)$$

In dieser Gleichung kann die Zeitabhängigkeit abgetrennt werden durch einen Lösungsansatz, der die Variablen t und  $\tau$  miteinander verknüpft:

$$\widetilde{q}(\vec{r},\tau,t) = q_0(\vec{r},\tau) f(t - \int_0^t \frac{d\tau'}{Dv})$$

Der Zusammenhang zwischen t und  $\tau$  wird deutlich, wenn man eine gepulste Quelle annimmt, also

•

$$f(t) = 0 (t)$$

Dann ist

$$f(t - \int_{o}^{\tau} \frac{d\tau'}{Dv}) = o'(t - \int_{o}^{\tau} \frac{d\tau'}{Dv}) ,$$

d.h. q ist nur dann nicht identisch Null, wenn

$$t = \int_{0}^{\tau} \frac{d\tau'}{Dv} \quad bzw. \quad \tau = \int_{0}^{t} Dvdt' / 2\overline{2}\overline{5}/.$$

Dieser Ausdruck ergibt sich auch aus der Grundbeziehung des Bremsvorgangs

,

$$\frac{\mathrm{d}u}{\mathrm{d}t} = \xi \frac{\overline{v}}{\lambda_{\mathrm{s}}}$$
(A1)

$$\frac{\mathrm{d}\mathbf{r}}{\mathrm{d}\mathbf{t}} = \boldsymbol{\xi} \frac{\overline{\mathbf{v}}}{\lambda_{\mathbf{s}}} \cdot \frac{\mathrm{D}\lambda_{\mathbf{s}}}{\boldsymbol{\xi}} = \mathrm{D}\overline{\mathbf{v}}$$

$$\tau = \int_{0}^{t} D\overline{\nabla} dt'$$

d.h. der Lösungsansatz beschreibt nichts anderes als den Zusammenhang zwischen t und  $\tau$  bei der elastischen Bremsung  $\sqrt{257}$ .

Die Neutronenbremsdichte hat jetzt die Gestalt

$$\widetilde{q}(\vec{r},\tau,t) = q_0(\vec{r},\tau) \delta(t - \int_0^\tau \frac{d\tau'}{Dv}).$$

Dabei ist q<sub>o</sub>(**r**,t) die Lösung der stationären Fermi-Alter-Gleichung

$$\frac{\partial q_0}{\partial \tau} = \nabla^2 q_0 + S(\hat{r}) \delta(\tau),$$

nämlich

$$q_{o}(\vec{r},\tau) = \sum_{n} S_{n}R_{n}(\vec{r}) e^{-B_{n}^{2}\tau}$$

Die  $B_n^2$  sind die Eigenwerte, die  $R_n(\vec{r})$  die Eigenfunktionen der homogenen Diffusionsgleichung der Bremsdichte

$$\nabla^2 q + B^2 q = 0$$

mit der Randbedingung q=O auf der effektiven Oberfläche des Moderators. Die S<sub>n</sub> sind die Entwicklungskoeffizienten der Quellverteilung nach den Eigenfunktionen des Systems. Unter Verwendung von (A4) erhält man als Gesamtlösung für q:

$$q(\vec{r},t) = \sum_{n} S_{n}R_{n}(\vec{r}) \left(\frac{t+A\lambda_{s}/v_{o}}{A\lambda_{s}/v_{o}}\right)^{-\frac{A\lambda_{s}^{2}B_{n}^{2}}{3}} \cdot e^{-\Sigma_{a}vt}$$

Der Absorptionsterm kann durch eine Zeitkonstante beschrieben werden, da  $\Sigma_{\rm a} \sim \frac{1}{\rm v}$  ist:

$$\Sigma_a \cdot v = T^{-1} = \Sigma_a^{\text{th}} \cdot v^{\text{th}}$$

Für  $\Sigma_a^{\text{th}} = 0,17$  b erhält man T = 810 µsec. T ist die Lebensdauer der Neutronen in Blei und ist energieunabhängig, d.h. für alle Zeiten t gültig, solange  $\Sigma_a \sim \frac{1}{v}$  ist. Statt der Neutronenbremsdichte  $q(\vec{r},t)$  kann man auch die Neutronendichte  $n(\vec{r},t)$  einsetzen, denn

$$q(\vec{r},t) = q(\vec{r},u) = \xi \Sigma_{s} E \Phi(E) = \xi \Sigma_{s} E \sqrt{\frac{2E}{m_{N}}} n(E)$$

und 
$$n(t) = n(E) \frac{dE}{dt} = n(E) \frac{2E}{A\lambda_s} \sqrt{\frac{2E}{m_N}}$$

so daß 
$$n(\vec{r},t) = \sum_{n} S_{nR_{n}}(\vec{r}) \left(\frac{t+t_{o}}{t_{o}}\right)^{-\alpha} e^{-\frac{t}{T}}$$

wobei  $t_0 = \frac{A\lambda_s}{v_0}$  und  $\alpha_n = \frac{A\lambda_s^2 B_n^2}{3}$  gesetzt wurde.

Die Eigenfunktionen R $_{n}(\vec{r})$  haben für einen kubischen Pile mit der effektiven Kantenlänge 2a die Form

$$R_{\ell mn}(r) = \cos \frac{(2\ell+1)\pi x}{2a} \cos \frac{(2m+1)\pi y}{2a} \cos \frac{(2n+1)\pi x}{2a}$$

Die Eigenwerte dazu sind

$$B_{mn}^{2} = \frac{\pi^{2}}{4a^{2}} \left( 2\ell + 1 \right)^{2} + (2m+1)^{2} + (2n+1)^{2} - 7$$

Der niedrigste Eigenwert,  $B_0^2$ , mit  $\ell = m = n = 0$ , also das geometrische Buckling, ist das Maß für das Abklingen der niedrigsten Eigenfunktion (Grundmode) der Neutronendichte und kann leicht experimentell bestimmt werden (vgl. 2.2.2). Die Neutronendichte hat also die Form

$$n(\vec{r},t) = \left( n_{0}(\vec{r}) \left( \frac{t+t_{0}}{t_{0}} \right)^{-\alpha} + n_{1}(\vec{r}) \left( \frac{t+t_{0}}{t_{0}} \right)^{-\alpha} + \dots \right)^{-\frac{t}{T}}$$

wobei  $\alpha_0 = \frac{A\lambda_s^2 B_0^2}{3}$  für einen Pile mit 2m Kantenlänge etwa 0.36 ist. Die nächst höheren Modes,  $n_1(\vec{r})$ , klingen mit  $\alpha_1 = \frac{11}{3} \alpha_0$  ab, das Verhältnis  $n_1(\vec{r})/n_0(\vec{r})$  ist also nach 10 µsec auf etwa 5% des Anfangswertes abgesunken. Bei einer Punktquelle werden zur Zeit t = 0 alle Modes mit gleicher Intensität angeregt, während tatsächlich durch die inelastische Bremsung im Anfangsstadium eine räumlich konstante Quellverteilung für den rein elastischen Bremsvorgang im Bleipile angenommen werden muß. Das bedeutet, daß die relative Intensität der höheren Modes von Anfang an klein ist und sehr schnell gegen Null geht, die räumliche Verteilung der Neutronendichte also dem Grundmode entspricht, d.h. cosinus-förmig ist.

### 2. Theorie der Resonanzabsorption

Bei der Definition des Resonanzintegrals betrachtet man die Reaktionsrate in einer homogenen Mischung aus Absorber und Moderator in einem Energiebereich weit unterhalb der Energie der Quellneutronen. Bei fehlender Absorption könnte man für den Fluß den asymptotischen Wert  $\Phi(u) = 1/\xi\Sigma_p$  einsetzen, hier ist  $\xi$  der über Moderator- und Absorberkerne gemittelte mittlere logarithmische Energieverlust pro Stoß und  $\Sigma_p$  der gesamte makroskopische Streuquerschnitt der Mischung:

 $\Sigma_{\rm p} = \Sigma_{\rm s}$  (Moderator) +  $N\sigma_{\rm pot}$  (Absorber).

Das effektive Resonanzintegral  $I_{eff}$  ist nun definiert als derjenige lethargieintegrierte Wirkungsquerschnitt, der bei Fehlen der Resonanzen mit dem ungestörten Fluß zu derselben integralen Reaktionsrate R führen würde wie der tatsächliche Resonanzquerschnitt mit dem gestörten Fluß  $/\overline{1}/$ .

Es ist also einmal nach dieser Definition

$$R = \frac{NI_{eff}}{\xi \Sigma_{p}}$$

zum anderen ist

$$R = \int \Sigma_{abs}(u) \cdot \Phi(u) du.$$

Hier erhält man  $\Phi(u)$  aus der Annahme, daß die Breite der Resonanz klein ist im Vergleich zu &, d.h. daß die Zahl der Neutronen, die im Resonanzgebiet zur Verfügung stehen, unabhängig ist von der Existenz der Resonanz (narrow resonance (=NR)-Näherung). Die Neutronenstoßdichte in der Resonanz nimmt also den Wert im 1 an:

$$\psi(\mathbf{u}) d\mathbf{u} = \frac{1}{\xi} d\mathbf{u} = \Sigma_{t}(\mathbf{u}) \Phi(\mathbf{u}) d\mathbf{u}$$

Damit ist der tatsächliche Fluß im Resonanzgebiet

$$\Phi(\mathbf{u})\,\mathrm{d}\mathbf{u} = \frac{1}{\boldsymbol{\xi} \cdot \boldsymbol{\Sigma}_{+}(\mathbf{u})} \,\mathrm{d}\mathbf{u}$$

und zeigt die charakteristische "inverse" Resonanzstruktur. Das effektive Resonanzintegral läßt sich schreiben als

$$\mathrm{NI}_{eff} = \int \frac{\Sigma_{p} \cdot \Sigma_{abs}(u)}{\Sigma_{+}(u)} du$$

Unter Verwendung der Breit-Wigner-Formel zur Beschreibung des Wirkungsquerschnitts in einer Resonanz und folgender Hilfsgrößen:

$$\sigma_{p} = \frac{\Sigma_{p}}{N} = \frac{\Sigma_{s} (Mod.)}{N} + \sigma_{pot} (Abs.)$$
$$\beta = \frac{\sigma_{p}}{\sigma_{o}}$$

wobei N die Atomzahldichte des Absorbermaterials und  $\sigma_{O}$  der

- 96 -

Querschnitt im Maximum der Resonanz ist, sowie bei Vernachlässigung der Energieabhängigkeit von  $\sigma_0$ ,  $\Gamma$  und E (=E<sub>r</sub>) und des Interferenzterms im Streuquerschnitt erhält man  $\frac{\sqrt{2}}{\sqrt{2}}$ 

$$I_{eff} = \frac{\frac{1}{2}\pi\sigma_{p}r_{abs}/E_{R}}{\sqrt{\beta(1+\beta)}}$$

Für hohe Absorberkonzentrationen gilt oft  $\beta \ll 1$ , so daß  $I_{eff} \sim \sqrt{\sigma_p}$  ist. Bei extremer Verdünnung wird  $\beta \gg 1$  und

$$I_{eff} = I_{\infty} = \frac{\pi}{2} \sigma_{O} \frac{\Gamma_{abs}}{E_{R}}.$$

Bei einer heterogenen Verteilung von Moderator und Absorber, wie z.B. in einem Reaktor, ist die Absorptionsrate größer als im homogenen Fall und von den Dimensionen des Absorbers abhängig. Es ist nach  $\sqrt{27}$ 

$$\mathrm{NI}_{eff} = \int \frac{\Sigma_{p} \Sigma_{abs}}{\Sigma_{t}} \, \mathrm{du} + \int \frac{(\Sigma_{t} - \Sigma_{p})}{\Sigma_{t}} \Sigma_{abs} P_{o} (\Sigma_{t}) \, \mathrm{du}$$

Die hier angegebenen Wirkungsquerschnitte beziehen sich alle auf das Absorberelement; dabei können in  $\Sigma_p$  und  $\Sigma_t$  noch Streuteile von Moderatorkernen im Element, z.B. bei oxidischem Brennstoff von Sauerstoffatomkernen, enthalten sein.

Der erste Term ist identisch mit dem Resonanzintegral im homogenen Fall und wird auch als "Volumenintegral" bezeichnet; der zweite Term, das "Oberflächenintegral", berücksichtigt sowohl die Neutronen, die von außen in das Absorberelement eindringen und dort absorbiert werden als auch diejenigen, die den Absorber ohne Stoß verlassen.  $P_O(\Sigma_t)$  ist die Entkommwahrscheinlichkeit aus dem Absorberelement. Als analytischen Ausdruck kann man die rationale Näherung von Wigner

$$P_{o}(\Sigma_{t}) = \frac{1}{1 + \Sigma_{t} \overline{\ell}}$$

verwenden;  $\overline{\ell} = \frac{4V}{S}$  ist die mittlere Sehnenlänge des Elements. Damit lassen sich die beiden Integrale zusammenfassen zu

$$\mathrm{NI}_{eff} = (1 + \frac{1}{\Sigma_{p} \overline{\ell}}) \int \frac{\Sigma_{p} \Sigma_{abs}}{\Sigma_{t} + 1/\overline{\ell}} du$$

Im Nenner des Integrals kann man auch schreiben

$$\Sigma_{t} + \frac{1}{\overline{\ell}} = N(\sigma_{s} + \sigma_{abs}) + \Sigma_{p}(1 + \frac{1}{\Sigma_{p}\overline{\ell}})$$

so daß durch Ersetzung von  $\Sigma_{D}$  durch

$$b\Sigma_{p} = \Sigma_{p} + \frac{1}{\overline{e}}; \quad b = 1 + \frac{1}{N\sigma_{p}\overline{e}}$$

der heterogene auf den homogenen Fall zurückgeführt werden kann (Äquivalenztheorem)  $\sqrt{27}$ :

$$I_{eff}^{het} = \frac{\frac{1}{2}\pi b\sigma_{p}r_{abs}/E_{R}}{\sqrt{b\beta(1+b\beta)}}$$

Für hohe Absorberkonzentrationen ist  $b\beta \!\ll\! 1$  und

$$I_{eff}^{het} \sim \sqrt{b\sigma_{p}} = \sqrt{1 + \frac{m_{N}}{4\sigma_{p}} \cdot \frac{S}{M}} \approx 1 + \varepsilon \sqrt{\frac{S}{M}}$$

Dabei sind m<sub>N</sub> = Neutronenmasse S = Oberfläche des Absorberelements M = Masse des Absorbermaterials

Dieses sogenannte  $\sqrt[S]{M}$ -Gesetz ist z.B. für Resonanzselbstabsorption der U-238-Resonanzen in Brennstäben bestätigt worden  $\underline{\sqrt{47}}$ . Für niedrige Anreicherungen wird b $\beta > 1$ , so daß

$$I_{eff}^{het} = \frac{\frac{1}{2}\pi\sigma_{o}\Gamma_{abs}/E_{R}}{\sqrt{1+\frac{\sigma_{o}}{\sigma_{p}+\frac{1}{N\overline{\ell}}}}} = \frac{I_{\infty}}{\sqrt{1+\frac{\sigma_{o}}{(1+N\overline{\ell}\sigma_{p})}N\overline{\ell}}}$$
$$= I_{\infty}/\sqrt{1+N\overline{\ell}\cdot\frac{\sigma_{o}}{N\overline{\ell}\sigma_{pot}^{Abs}+\Sigma_{s}^{Mod}\overline{\ell}+1}}$$

In erster Näherung kann man zur Beschreibung der Resonanzabsorption in Stäben mit unterschiedlichen Anreicherungen und Durchmessern die Formel

$$I_{eff} = \frac{I_{\infty}}{\sqrt{1 + KN\overline{\ell}}}$$

verwenden. K ist im wesentlichen ein Mittelwert aller  $\sigma_0$ der betrachteten Resonanzen und hängt nur schwach von N und  $\overline{\ell}$  ab.

Dieses recht grobe Modell der Resonanz-Selbstabschirmung ist durch verschiedene Modifikationen noch zu verfeinern, es seien nur die zwei wichtigsten aufgeführt.

a) Die Dopplerverbreiterung der Resonanzen führt zu einer Abschwächung der Selbstabschirmung, da die Resonanzen breiter und flacher werden  $\sqrt{257}$ . An die Stelle der natürlichen Linienform, die durch den Term  $1/1+x^2$  in der Breit-Wigner-Formel beschrieben wird, tritt die dopplerverbreiterte Linienform

$$\psi(\theta, \mathbf{x}) = \frac{\theta}{2\sqrt{\pi}} \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{\exp(-\frac{1}{4}\theta^2 (\mathbf{x}-\mathbf{y})^2)}{1+\mathbf{y}^2} d\mathbf{y}$$

 $\theta$  ist das Verhältnis von natürlicher und Doppler-Breite der Resonanz; x =  $\frac{E-ER}{\Gamma/2}$ . Das Resonanzintegral lautet dann

$$I = \sigma_{p} \frac{\Gamma_{abs}}{E_{R}} \int \frac{\psi(\theta, x) dx}{\psi(\theta, x) + \beta} = \sigma_{p} \frac{\Gamma_{abs}}{E_{R}} \mathcal{J}(\theta, \beta).$$

Die Funktionen  $\overline{\mathcal{F}}(\theta,\beta)$  sind tabelliert.

b) Ist die praktische Breite einer Resonanz, d.h. der Energiebereich, in dem der Resonanzquerschnitt größer ist als der Potentialquerschnitt des Absorbermaterials, größer als der mittlere Energieverlust bei einem elastischen Stoß im Absorber, so verwendet man besser die sogenannte "narrow resonance infinite absorber mass" (=NRIA)-Näherung zur Beschreibung der Resonanzabsorption  $\overline{447}$ . Diese Näherung behandelt die Streuung an den Absorberkernen als Stoß ohne Energieverlust und führt zu einem ähnlichen Formalismus wie die NR-Näherung  $\overline{27}$ .




<u>Abb.2</u> Zusammenhang zwischen Bremszeit t und mittlerer Neutronenenergie E bei kurzem Bremszeiten (Ergebnisse der Monte Carlo-Rechnungen)





<u>Abb.4</u> Gemessene volle Halbwertsbreite des Neutronenspektrums in Abhängigkeit von der mittleren Neutronenenergie  $\bar{\rm E}$ 









Abb.7 Nach der Monte Carlo-Methode berechnete integrale Neutronenflüsse in verschiedenen Raumbereichen des Bleipiles bei kurzen Bremszeiten, bezogen auf den gesamten Fluß.



Abb.8 Nach der Monte Carlo-Methode berechnete mittlere Neutronenenergien in verschiedenen Raumbereichen des Bleipiles bei kurzen Bremszeiten, bezogen auf die mittlere Neutronenenergie im gesamten Bleipile.







ABB-00010 SPALTNAMERZAEHLRATEN U-35, RU-39







Abb.12 Aufbau des Bremszeitspektrometers



Abb.13 Zeitliche Verteilung der Quellneutronen im Bleipile, gemessen mit einer U-38-Spaltkammer in der Nähe des Targets.



Abb.14 Blockschaltbild der Meßanordnung











<u>Abb.18</u> Darstellung der Meßwerte Z der "reinen" Plutonium-Stäbe nach Gl.(12) in den Energiebereichen EI-III als Funktion des Produkts aus Atomzahldichte N von Pu39+41 u.Durchmesser d des Stabs (M=Masse von Pu39+41).



Abb.19 Nach Gleichung (18) und mit der Monte Carlo-Methode berechnete Flußspektren im Bleipile





