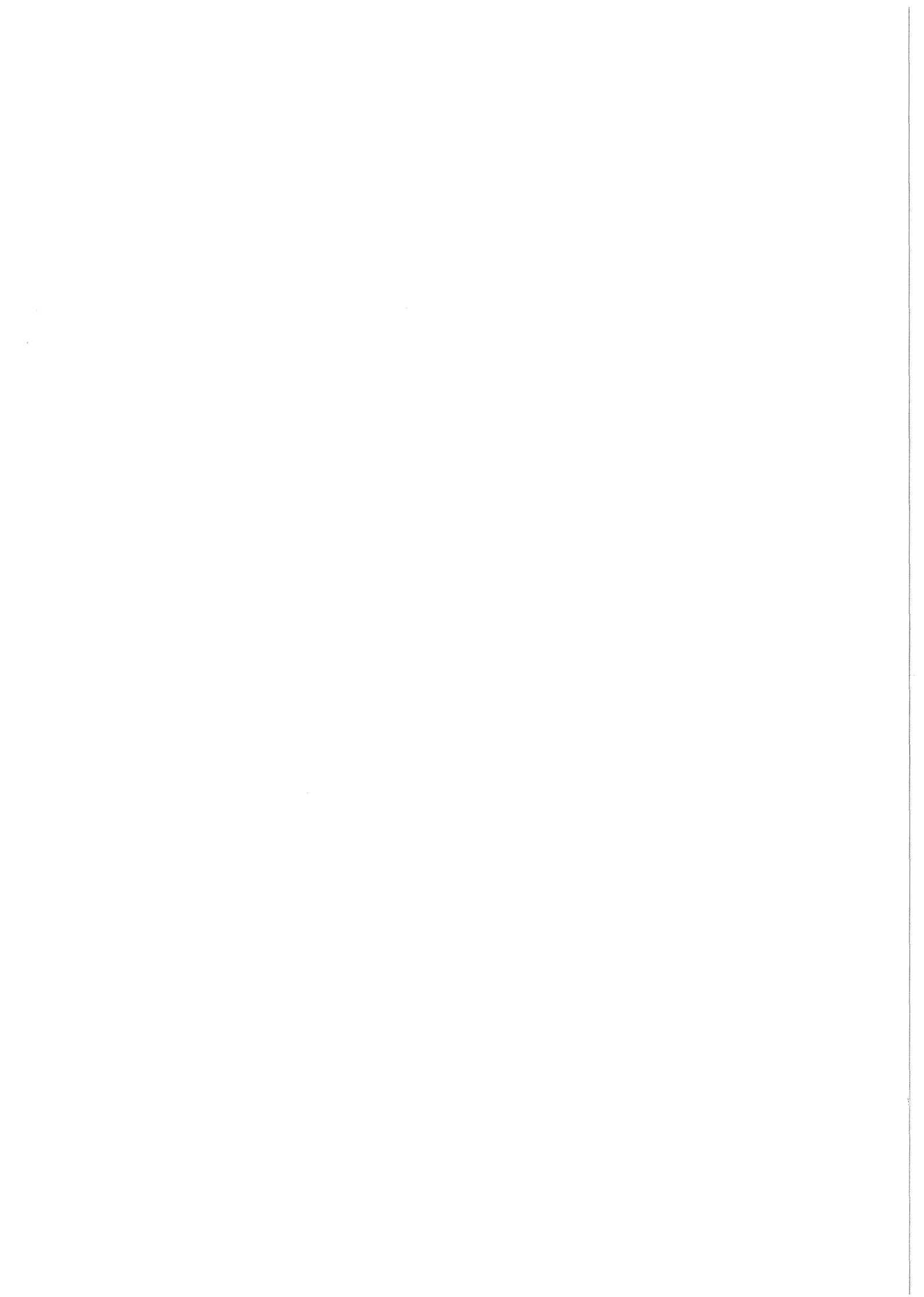


KfK 3262
Dezember 1981

**Messung der
Nachzerfallsleistung von
 ^{235}U im Zeitbereich von
15 s bis 4000 s**

K. Baumung
Institut für Neutronenphysik und Reaktortechnik

Kernforschungszentrum Karlsruhe



KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

Institut für Neutronenphysik und Reaktortechnik

KfK 3262

Messung der Nachzerfallsleistung von ^{235}U im Zeitbereich
von 15 s bis 4000 s

von
K. Baumung

Dissertation genehmigt von der
Fakultät für Maschinenbau
der Universität Karlsruhe

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH, Karlsruhe

Als Manuskript vervielfältigt
Für diesen Bericht behalten wir uns alle Rechte vor

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH
ISSN 0303-4003

Messung der Nachzerfallsleistung von ^{235}U im Zeitbereich
von 15 s bis 4000 s

Kurzfassung:

Es wird ein "reduziertes Tandemkalorimeter" vorgestellt, bei dem durch Reduktion des Kalorimeterblocks auf die zylindrische Brennstoffprobe selbst und durch Verwendung von Thermistoren zur Temperaturmessung thermische Zeitkonstanten von der Größenordnung 1 s erreicht werden können. Das Kalorimeter kann sowohl adiabatisch als auch im Aufheizbetrieb benutzt werden und gestattet es, sowohl den Temperaturanstieg von LWR-ähnlichen Brennstofftabletten als auch deren Wärmekapazitäten zu messen. Diese beiden Größen ergeben direkt den in den Proben in Wärme umgesetzten Anteil der Nachzerfallsleistung. Der als Gamma-Strahlung entweichende Anteil (30-40 %) wurde mit einem Energiestromdetektor gesondert gemessen. Es werden für eine Bestrahlungszeit von 200 s die beiden Anteile sowie die gesamte Nachzerfallsleistung für Kühlzeiten zwischen 15 s und 4000 s angegeben.

Measurement of ^{235}U Fission Product Decay Heat between
15 s and 4000 s.

Abstract:

A "reduced tandem calorimeter" is presented where, by reducing the calorimeter block to be only the cylindrical fuel samples themselves and by the use of thermistors for temperature measurement, thermal time constants of the order of one second have been achieved. The calorimeter can be operated adiabatically as well as in the heat-up mode, thus permitting measurement of the time-dependent temperature rise of LWR-pellet-like samples and also their heat capacities. Both quantities directly yield the portion of the decay heat which is converted into thermal power within the samples. The portion escaping as gamma-rays was measured by use of an energy-flux detector. The total decay heat, the thermal and the escaping gamma-fraction are given in tabular form for cooling times from 15 seconds to 4000 seconds following a 200 second irradiation.

Inhaltsverzeichnis

	Seite
1. Einleitung	1
2. Prinzip der Messung	7
2.1 Überblick über Verfahren zur Bestimmung der Nachzerfallsleistung	7
2.2 Stationäres und dynamisches Verhalten von Kalorimetern	9
2.3 Das reduzierte Tandemkalorimeter	14
3. Aufbau und Arbeitsweise der Meßapparatur	17
3.1 Das Kalorimeter	17
3.1.1 Mechanischer Aufbau	17
3.1.2 Temperaturmessung und Regelung	20
3.1.3 Eichmessungen	26
3.1.3.1 Eichung der Thermistoren	26
3.1.3.2 Leistungseichung	30
3.2 Aufbau und Arbeitsweise des γ -Energiestrom- Detektors	32
3.3 Rohrpostanlage	38
3.3.1 Aufbau und Arbeitsweise	38
3.3.2 Sicherheitsmaßnahmen	44
3.4 Brennstoffproben	46
4. Messungen und Auswertung	51
4.1 Bestrahlung der Brennstoffproben und Messung des adiabatischen Temperaturanstiegs	51
4.2 Messung der entweichenden γ -Strahlung	54
4.3 Messung der Wärmekapazität der Brennstoffproben	56

	Seite
4.4 Messung der Spaltrate	59
4.4.1 Absoluteichung des Ge-Li-Detektors	62
4.4.2 Berechnung der Selbstabschirmung der Proben	63
4.4.3 Gammaskpektrometrie von Spaltprodukten	67
4.5 Auswertung	68
5. Diskussion der Ergebnisse	77
6. Zusammenfassung	85
Literaturverzeichnis	87
Anhang 1	90
Anhang 2	91
Anhang 3	92

1. Einleitung

Bei der Spaltung von ^{235}U -Kernen durch Neutronen wird im Mittel ein Energiebetrag von 203 MeV pro Spaltung freigesetzt. Der Hauptanteil von 178 MeV wird unmittelbar beim Spaltprozeß und innerhalb sehr kurzer Zeiten (10^{-14} s) danach in Form von kinetischer Energie der Spaltbruchstücke sowie der von ihnen emittierten prompten Spaltneutronen und der prompten γ -Strahlung frei. Die Spaltbruchstücke weisen im Vergleich zu stabilen Kernen gleicher Massenzahl einen hohen Neutronenüberschuß auf und befinden sich diesen gegenüber in einem angeregten Energiezustand. Der Abbau dieses Energieüberschusses erfolgt durch eine Kette radioaktiver Zerfälle. Dabei werden etwa 13 MeV als β - und γ -Strahlung emittiert und sind thermisch nutzbar, die restlichen 12 MeV gehen als Neutrinostrahlung wegen der geringen Wechselwirkungswahrscheinlichkeit in den Weltraum verloren. Die Halbwertszeiten der etwa tausend verschiedenen Spaltbruchstücke, die bei der Kernspaltung entstehen können, überstreichen einen Zeitbereich von nahezu Null bis zu vielen Millionen Jahren. Dies bedeutet, daß ein merklicher Anteil der bei der Kernspaltung auftretenden Energie erst in Zeiträumen freigesetzt wird, die sehr lang sind im Vergleich zur Dauer des auslösenden Prozesses. Dieser verzögert auftretende Teil der Spaltenergie wird, bezogen auf die Zeiteinheit, als Nachzerfallsleistung bezeichnet.

Beim Abschalten eines Reaktors sinkt durch Unterbrechung der Kettenreaktion die Zahl der Spaltprozesse und damit die primäre Energiefreisetzung innerhalb weniger Sekunden auf nahezu Null ab /1/. Die Energiefreisetzung aufgrund der radioaktiven Zerfälle der Spaltprodukte läuft jedoch davon unbeeinflusst weiter und nimmt mit der Zeit nur langsam ab. Bei fehlender Kühlung würde sie nach einigen Minuten zum Niederschmelzen des Kerns und zu einer Zerstörung des Reaktors führen. Der sicheren Nachwärmeabfuhr kommt daher eine hohe sicherheitstechnische Bedeutung zu, der man konstruktiv durch Bereitstellung spezieller Betriebs- und Sicherheitssysteme Rechnung trägt.

Entsprechendes gilt für die Auslegung der Behälter zum Transport und zur Lagerung von abgebrannten Brennelementen bis hin zur sicheren Endlagerung des radioaktiven Abfalls, der bei der Aufarbeitung von wiederverwertbarem Brennstoff abgetrennt wird.

Eine zentrale Bedeutung erlangt die genaue Kenntnis vom Betrag und Zeitverhalten der Nachzerfallsleistung bei der Vorhersage von Störfallabläufen, aus denen die Auslegungsgrenzen der Sicherheitssysteme abgeleitet werden können, deren Zweck es ist, auch bei einem Störfall die Nachwärme sicher abzuführen.

Als Störfall mit dem größten Restrisiko geben Sicherheitsstudien für die heute in Betrieb befindlichen Leichtwasserreaktoren den Kühlmittelverluststörfall (loss of coolant accident, LOCA) an. Dieser Störfall wird eingeleitet durch das Versagen einer der Hauptkühlmittelleitungen oder des Reaktordruckbehälters und durchläuft beim Druckwasserreaktor bis zum Einsetzen der Notkühlung drei Phasen. Die erste, die sogenannte Blowdown-Phase, ist gekennzeichnet durch starken Druckabfall, der die Schnellabschaltung des Reaktors auslöst. Nach Unterschreiten des Sättigungsdrucks beginnt das Kühlmittel zu verdampfen. Die Brennstabtemperatur durchläuft nach Erreichen der kritischen Heizflächenbelastung ein Maximum, sinkt dann im Verlauf komplizierter hydrodynamischer Vorgänge ab und steigt mit zunehmender Entleerung des Reaktordruckbehälters wieder an^{1/}. Die Blowdown-Phase ist abgeschlossen, wenn durch Druckausgleich zwischen Primärsystem und Containment der Ausströmvorgang endet. Dies ist bei einem großen Leck nach etwa 10-20 s der Fall. In der anschließenden Wiederauffüllphase verbleibt das von den Druckspeichern und von den anlaufenden Niederdruck-Notkühlsystemen eingespeiste Wasser im Reaktorbehälter und dieser füllt sich langsam. Dabei durchläuft die Brennstabtemperatur ein zweites Maximum, weil die Kühlung nur über geringe Dampfmengen und Strahlung erfolgt. Die Temperatur beginnt zu sinken, wenn der Wasserspiegel die untere Kernkante erreicht und durch die Dampfströmung mitgerissene Wassertropfen den Wärmetransport verbessern. In der daran an-

schließenden Flutphase steigt der Wasserspiegel im Reaktorkern an, die Temperatur sinkt nach Wiederbenetzung der Brennstäbe schnell ab, und der Störfall ist nach Auffüllen des Reaktorbehälters abgeschlossen. Ob der Kern danach langfristig über die Nachwärmeabfuhrsysteme gekühlt werden kann, hängt vom Zustand der Brennstäbe ab.

Die Untersuchung des Brennstabverhaltens während eines Kühlmittelverluststörfalls stellt daher auch im Kernforschungszentrum Karlsruhe einen Arbeitsschwerpunkt innerhalb des Forschungsvorhabens zum Systemverhalten nuklearer Anlagen bei Störfällen dar, das im Rahmen des Projekts Nukleare Sicherheit durchgeführt wird. Ziel dieser Arbeiten ist es, experimentelle Erfahrungen und Daten zu gewinnen sowie Rechenprogramme zu entwickeln, mittels derer die komplexen Vorgänge im Kernreaktor während des Störfalls beschrieben werden können.

Ob es zum Brennstabversagen durch Aufschmelzen bzw. durch chemische Reaktionen zwischen Brennstabhülle und Kühlmittel kommt, oder ob durch starke Verformung der Stäbe Kühlkanalblockaden entstehen, durch die die Kühlbarkeit in Frage gestellt wird, hängt außer von der Vielzahl der möglichen thermohydraulischen Abläufe wesentlich von der zugeführten Nachwärme ab. Diese setzt sich zusammen aus der nach der Schnellabschaltung rasch abklingenden Spaltleistung, der Wärmefreisetzung durch den radioaktiven Zerfall von Spalt- und Aktivierungsprodukten sowie der chemischen Energiefreisetzung aus der Hüllrohr-Kühlmittel-Reaktion.

Dabei kann, je nach Störfallablauf, eine Unsicherheit von 30% in der Nachwärmeproduktion eine Unsicherheit in der Angabe der maximal erreichten mittleren Stabtemperatur von 100 K und der maximalen Stabtemperatur von über 200 K zur Folge haben.

Während der Wiederauffüllphase (10 s - 200 s nach Abschalten des Reaktors), in der die Brennstabtemperatur ein zeitlich aus-

gedehntes Maximum durchläuft, überwiegt der Beitrag der Nachzerfallsleistung, d.h. die Energiefreisetzung durch den radioaktiven Zerfall der Spaltprodukte, alle anderen Energie liefernden Prozesse bei weitem. Man muß also speziell diese Größe möglichst genau kennen.

Bei Beginn dieser Arbeit war von der Genehmigungsbehörde die Verwendung des ANS 5.1-Standards in der überarbeiteten Fassung von 1973 /2/ vorgeschrieben, in dem die Nachzerfallsleistung für Reaktoren mit ^{235}U als Spaltstoff für Kühlzeiten bis 10^7 s angegeben war. Im für den Kühlmittelverluststörfall wichtigen Zeitbereich bis 1000 s nach Abschalten des Reaktors basierten die Werte für die Nachzerfallsleistung allein auf der Auswertung von Rechenergebnissen und waren wegen der Unsicherheit der Eingangsdaten vor allem der kurzlebigen Radionuklide (vergl. Abs. 2.1) mit einer Fehlerbandbreite zwischen +40% und -20% behaftet.

Nachdem die völlig unzureichende Genauigkeit der Nachzerfallsleistung als Hauptquelle der Unsicherheit bei der Vorhersage von Störfallabläufen erkannt worden war, wurden zahlreiche Forschungsarbeiten begonnen /3,4,5,6,7/ mit dem Ziel, vor allem im LOCA-relevanten Zeitbereich die Nachzerfallsleistung experimentell zu bestimmen, um die bis dahin nur rechnerisch ermittelten Werte zu überprüfen.

Während sich die oben erwähnten Arbeiten bei der Wahl der Form und Zusammensetzung der Brennstoffproben vor allem an der jeweils verwendeten Meßtechnik (z.B. Messung allein des β - bzw. des γ -Anteils der Nachzerfallsleistung) orientierten, war es der Zweck der vorliegenden Arbeit, einmal den in einem einzelnen Brennstab in Wärme umgesetzten Anteil und zum anderen den daraus in Form von γ -Strahlung entweichenden Anteil der Nachzerfallsleistung zu messen und damit direkt die Daten zu bestimmen, die bei der Auswertung der im Rahmen des oben erwähnten Forschungsprogramms durchgeführten Notkühlexperimente benötigt werden, um die experimentell gefundenen Verhältnisse auf die

im Reaktorkern zu übertragen. Während nämlich im Reaktorkern die gesamte radioaktive Strahlung der Spaltprodukte nahezu vollständig absorbiert und damit in Wärme umgesetzt wird, entweicht bei den Notkühlexperimenten, die aus meßtechnischen und Sicherheitsgründen nur an Einzelstäben bzw. kleinen Stab-bündeln mit bis zu sieben Stäben durchgeführt werden können, ein nicht zu vernachlässigender Anteil der Nachzerfallsleistung aus der Meßanordnung und muß entsprechend korrigiert werden.

Damit stellte sich die Aufgabe, anhand von Brennstoffproben, die in Zusammensetzung und Durchmesser typisch für LWR-Brennstäbe sind, im LOCA-relevanten Zeitbereich zwischen 10 s und 1000 s sowohl den in den Proben in Wärme umgesetzten als auch den in Form von γ -Strahlung aus den Proben entweichenden Anteil der Nachzerfallsleistung mit einer Genauigkeit von $\pm 5\%$ zu messen.

Im folgenden wird eine Meßmethode vorgestellt, bei der unter Anwendung eines kombinierten Verfahrens die Nachzerfallsleistung von ^{235}U nach thermischer Spaltung durch gleichzeitige Messung sowohl des adiabatischen Temperaturanstiegs einer bestrahlten Brennstoffprobe als auch des aus der Probe entweichenden γ -Energiestroms bestimmt wird.

Es werden Aufbau und Funktion eines neuartigen "reduzierten Tandemkalorimeters" beschrieben, bei dem der Kalorimeterblock konventioneller Kalorimeter weggelassen, d.h. auf die zu untersuchende Probe selbst reduziert ist. Damit erreicht man eine um fast zwei Größenordnungen kleinere thermische Zeitkonstante von etwa 2 Sekunden, die es ermöglicht, den Meßbereich bis einige Sekunden nach Ende der Bestrahlung herab zu erweitern. Das Kalorimeter kann sowohl adiabatisch als auch als Wärmeleitkalorimeter betrieben werden, so daß man zwei der drei für die Auswertung benötigten Meßgrößen - zeitabhängige Temperaturanstiegsrate und Wärmekapazität der Probe - unter Vermeidung zusätzlicher Meßfehler in derselben Apparatur bestimmen kann. Zur Messung des aus den Proben entweichenden γ -Energieanteils,

der sich je nach Zeitbereich und Probenbeschaffenheit auf 10% bis 40% der thermisch nutzbaren Leistung beläuft, wird ein Detektor benutzt, dessen Empfindlichkeit nahezu proportional zur Energie des nachgewiesenen γ -Quants ist, so daß die Zählrate unabhängig von der spektralen Verteilung direkt ein Maß für die Energiestromdichte ist.

Es werden Meßergebnisse an schwach angereichertem UO_2 - und Uranmetallproben verschiedener Durchmesser für den Zeitbereich von 15 bis 4000 Sekunden nach Ende der Bestrahlung vorgelegt und die Unsicherheiten der Meßgrößen besprochen. Abschließend wird ein Vergleich mit verschiedenen Ergebnissen anderer Autoren gegeben.

2. Prinzip der Messung

2.1 Überblick über Verfahren zur Bestimmung der Nachzerfallsleistung

Bei Bestimmung der Nachzerfallsleistung stehen folgende drei Methoden zur Auswahl

- Summationsrechnungen
- radiometrische Meßverfahren
- kalorimetrische Meßverfahren

Das Prinzip der Summationsrechnungen besteht darin, die einzelnen Energiebeiträge aller bei der Kernspaltung auftretenden radioaktiven Nuklide zu summieren /9/. Dazu werden an Eingabedaten Spaltausbeute, Halbwertszeit, Zerfallsenergie sowie Zerfallsschema für jedes der etwa 1000 Nuklide benötigt. Für über 300 längerlebige Isotope sind experimentelle Kerndaten verfügbar, für die übrigen kurzlebigen Nuklide behilft man sich mit Abschätzungen aus theoretischen Modellen /10/. Da mit zunehmender Bestrahlungszeit die Konzentration langlebiger Isotope zunimmt, sinkt der Anteil der kurzlebigen Isotope an der Nachzerfallsleistung und damit die Fehlerbandbreite, die durch die theoretische Abschätzung der Eingabedaten bedingt ist /11/. Zur Absicherung der Ergebnisse im für den Kühlmittelverluststörfall relevanten Zeitbereich bis 200 s ist jedoch ein Vergleich mit experimentellen Daten unerlässlich.

Einen Vorteil bietet die Summationsmethode dagegen bei der Bestimmung der Nachzerfallsleistung für lange Bestrahlungszeiten, bei denen nicht nur Entstehung und radioaktiver Zerfall der Spaltprodukte sondern auch Neutroneneinfangreaktionen in Spaltprodukten einen wesentlichen Einfluß ausüben, sowie bei sehr langen Abklingzeiten, die experimentell nicht mehr realisiert werden können.

Die radiometrischen Meßverfahren lassen sich in zwei Gruppen klassifizieren. Beim integralen Verfahren wird ein sehr großer Strahlungsdetektor benutzt /6/, in dem die gesamte von den Spaltprodukten emittierte Kernstrahlung absorbiert wird, was zu der Bezeichnung "Nukleares Kalorimeter" geführt hat. Die Apparatur ist zwar sehr aufwendig, vereinigt jedoch Vorteile der Kernstrahlungsmeßtechnik - sehr kurze Zeitkonstanten - und der Kalorimeter - integrales Signal - und liefert insgesamt sehr gute Ergebnisse.

Die zweite Gruppe, die sogenannten "differentiellen Verfahren" beruhen auf der Spektroskopie der β - bzw. γ -Strahlung (z.B. /5/). Aus den in verschiedenen Abklingzeitintervallen gemessenen Impulshöhenspektren erhält man die Energiespektren durch Entfaltung nach experimentell bestimmten spektralen Antwortfunktionen. Die Nachzerfallsleistung berechnet man durch Integration der Energiespektren als Summe der β - und γ -Anteile. Der größte Teil der bei diesen Meßverfahren anfallenden Information, d.h. die spektrale Energieverteilung der Strahlung, wird bei der Bestimmung der Nachzerfallsleistung eines Reaktors nicht ausgenutzt, wird jedoch z.B. zur Berechnung von Dosisleistungen oder Abschirmungen benötigt. Sie kann auch in besonderen Fällen für die Berechnung der Nachzerfallswärme nötig sein, z.B. bei der Auswertung von Experimenten, die an einzelnen Brennstäben oder kleinen Bündeln mit 7-9 Stäben durchgeführt worden, aus denen im Gegensatz zum Reaktorkern ein nicht zu vernachlässigender Anteil in Form von γ -Strahlung entweicht.

Der Vorteil der kalorimetrischen Verfahren gegenüber den oben angeführten besteht darin, daß die Meßgröße mit der gesuchten Größe, der thermischen Leistung, identisch ist. Ein Nachteil konventioneller Kalorimeter gegenüber den radiometrischen Verfahren ist in ihren großen thermischen Zeitkonstanten zu sehen, wodurch ihr Einsatz bei der Messung der Nachzerfallsleistung auf den Zeitbereich oberhalb etwa 100 s nach Ende der Bestrahlung begrenzt wird. Im folgenden Absatz soll dies anhand der Grundgleichung der Kalorimetrie aufgezeigt und die

Überlegungen erläutert werden, die zur Konzeption der hier beschriebenen Apparatur führten, mit der der Meßbereich um rund eine Größenordnung zu kürzeren Abklingzeiten hin erweitert werden konnte.

2.2 Stationäres und dynamisches Verhalten von Kalorimetern

Wegen der Einfachheit der Methode und der hohen absoluten Genauigkeit wird die Kalorimetrie häufig zur Bestimmung integraler radio-metrischer Größen wie Zerfallsenergie, Halbwertszeit oder Dosisleistung herangezogen. Die Meßgröße ist dabei die dem Kalorimeter zugeführte thermische Leistung.

In der Regel besteht ein Kalorimeter aus einem Kalorimeterkörper (Kalorimeterblock), der je nach Art der Strahlung, die absorbiert werden soll, mehr oder weniger massiv sein muß und gut wärmeleitend sein soll. In der Praxis besteht der Kalorimeterblock häufig aus einem Kupfer- oder Silberzylinder mit einer Bohrung zur Aufnahme der Probe. Dieser Block ist je nach Betriebsweise entweder gegenüber der Umgebung möglichst gut thermisch isoliert (adiabatisches Kalorimeter), oder aber in einer genau definierten Weise mit dieser wärmeleitend verbunden (Wärmeleitungskalorimeter). Die Bestimmung der im Kalorimeter freigesetzten thermischen Leistung läuft bei den Phasenumwandlungskalorimetern (Schmelz- oder Verdampfungskalorimeter) auf die Messung einer Volumenänderung, in den meisten Fällen jedoch auf eine Temperaturmessung am Kalorimeterblock hinaus. Die zeitliche Änderung des Meßsignals der Temperatur des Kalorimeters $d\theta/dt$, in das zum Zeitpunkt $t=0$ eine Probe der Leistung $P(t)$ eingebracht wird, wird durch die Grundgleichung der Kalorimetrie beschrieben:

$$\frac{d\theta}{dt} = \int_0^t \frac{P(\tau)}{\alpha C} \cdot e^{-(t-\tau)/\alpha} d\tau - \frac{k}{C} \cdot (T_K(t) - T_M(t)) \quad (2.1)$$

Darin ist $T_K(t)$ die Temperatur des Kalorimeters, $\theta(t)$ das Meßsignal von T_K , $T_M(t)$ die Temperatur der Umgebung, C die Wärmekapazität des Kalorimeters einschließlich der Probe und k die Wärmeübertragungszahl zwischen Kalorimeter und Umgebung. $e^{-t/\alpha}$ ist die Antwortfunktion des Temperaturfühlers auf eine Änderung der Temperatur im Kalorimeter. Der Einfachheit halber sei $e^{-t/\alpha}$ auch gleichzeitig die Antwortfunktion der Oberflächentemperaturänderung des Kalorimeters, von der aus der Wärmetransport an die Umgebung erfolgt. (Diese Bedingungen sind z.B. im Wärmeleitungs-kalorimeter nach Calvet erfüllt, auf das noch eingegangen wird.) Das Faltungsintegral gibt also die zeitliche Änderung des Meßsignals zur Zeit t aufgrund der im Zeitintervall $(0,t)$ durch die Leistung $P(t)$ an den Kalorimeterblock abgegebenen Wärmeenergie an. Ist die zeitliche Änderung der Leistung klein im Vergleich zur Zeitkonstanten α , so geht Gl.(2.1) in die bekannte Form über:

$$\frac{d\theta}{dt} = \frac{dT_K}{dt} = \frac{1}{C} (P(t) - k \cdot (T_K(t) - T_M(t))) \quad (2.1a)$$

Zur Messung konstanter oder nur langsam veränderlicher Leistungen (lange Halbwertszeiten) wird meistens das isotherme oder Wärmeleitungs-kalorimeter eingesetzt, bei dem die Umgebungstemperatur thermostatisch gesteuert konstant gehalten wird. Unter der Annahme, daß die Wärmekapazität in dem kleinen in Frage kommenden Temperaturintervall konstant ist, liefert die Integration von Gl.(2.1) für das Meßsignal $\theta(t)$ der Kalorimetertemperatur $T_K(t)$

$$\theta(t) = T_M + \frac{P}{k} \cdot \left[(1 - e^{-t \cdot k/C}) - \frac{1}{\frac{C}{k \cdot \alpha} - 1} \cdot (e^{-t \cdot k/C} - e^{-t/\alpha}) \right] \quad (2.2)$$

Da in der Praxis die Zeitkonstanten α des Kalorimeterblocks um Größenordnungen kleiner sind als die Gerätekonstanten C/k , wird der Klammerausdruck in Gl.(2.2) im wesentlichen durch den ersten Summanden bestimmt. Man sieht, daß das Meßsignal mit der Zeitkonstante C/k einem Grenzwert zustrebt, der durch die Wärmeübertragungszahl k festgelegt ist. Der zweite Summand beschreibt die Nacheilung des Meßsignals (in der Praxis von der Größenordnung Prozent) aufgrund des Wärmetransports im Kalorimeterblock.

Wartet man ab, bis sich stationäre Verhältnisse eingestellt haben, so erhält man folgende einfache Beziehung zwischen gemessener Temperatur und der gesuchten Leistung:

$$P = k \cdot (\theta(\infty) - T_M) = k \cdot (T_K(\infty) - T_M) \quad (2.3)$$

Man sieht, daß die Wärmeübertragungszahl k die einzige durch Eichmessungen zu bestimmende Gerätekonstante ist. Die Wärmekapazität braucht bei vernachlässigbarer Temperaturabhängigkeit nicht bekannt zu sein, sollte jedoch möglichst klein gehalten werden, um bei hoher statischer Empfindlichkeit $1/k$ die Zeitkonstante C/k und damit die Meßzeit bis zum Erreichen stationärer Verhältnisse zu reduzieren. Beim Wärmeleitungskalorimeter nach Calvet /12/ erfolgt die Wärmeleitung durch die Schenkel einer in Serie geschalteten Thermoelementsäule, deren Spannung ein direktes Maß für die Temperaturdifferenz $T_K - T_M$ ist. Durch den Einsatz von bis zu 1400 Thermoelementen erreicht man hohe statische Empfindlichkeiten bei Zeitkonstanten C/k von der Größenordnung 100 s.

Im Fall des adiabatischen Kalorimeters wird die Temperatur T_M des adiabatischen Mantels, der den Kalorimeterblock umschließt, laufend der Temperatur T_K des Kalorimeters nachgeführt. Dadurch entfällt in der Grundgleichung (2.1) der zweite Summand und die Integration liefert bei konstanter Leistung P

$$P = \frac{C}{1 - e^{-\frac{t}{\alpha}}} \cdot \frac{d\theta}{dt} \quad (2.4)$$

Man sieht, daß nach einer Einschwingzeit von der Größenordnung der Zeitkonstante α die zeitliche Änderung des Temperaturmeßsignals $d\theta/dt$ gleich dT_K/dt wird und ein direktes Maß für die gesuchte Leistung P ist. Hier ist die Wärmekapazität C des Kalorimeters die durch Eichmessungen zu bestimmende Gerätekonstante. Sie legt gleichzeitig die statische Empfindlichkeit fest: um einen großen Meßeffect $d\theta/dt$ zu erzielen, muß C möglichst klein sein. Die Wärmeübertragungszahl k muß nicht bekannt sein. Es wird jedoch ein

niedriger Wert angestrebt, um bei Abweichungen vom adiabatischen Zustand den Verlustterm $(T_K - T_M) \cdot k/C$ klein zu halten.

Sollen zeitlich veränderliche Größen gemessen werden, die im Vergleich zu den Zeitkonstanten des Kalorimeters nicht mehr quasi-stationär sind, wie z.B. die Nachzerfallsleistung, so erhält man durch Integration von Gl. (2.1) für das Wärmeleitungs-kalorimeter, wieder unter der Annahme konstanter Wärmekapazität C ,

$$\theta(t) = T_M + (T_K(0) - T_M) \cdot e^{-k/C \cdot t} + \frac{1}{\alpha \cdot C} \int_0^t e^{-k/C \cdot (t-\tau)} \int_0^\tau P(\tau') \cdot e^{-(\tau-\tau')/\alpha} d\tau' d\tau \quad (2.5)$$

Man sieht, daß die gesuchte zeitabhängige Größe P jetzt über ein Faltungsintegral mit dem Meßsignal verknüpft ist. Durch Vertauschen der Integrale und Integration über τ kann man eine Antwortfunktion $A(t)$ des Kalorimeters einführen:

$$A(t) = \frac{1}{1 - \frac{\alpha k}{C}} (e^{-k/C \cdot t} - e^{-t/\alpha}) \quad (2.6)$$

Man erhält unter der Annahme, daß vor Einbringen der Probe der Kalorimeterblock im Temperaturgleichgewicht mit der Umgebung war, $(T_K = T_M)$ für das Meßsignal

$$\theta(t) = T_K(0) + \frac{1}{C} \int_0^t P(\tau) \cdot A(t-\tau) d\tau + \frac{Q}{C} \cdot A(t) \quad (2.7)$$

$P(t)$ muß durch numerische Entfaltung des Meßsignals nach der Antwortfunktion berechnet werden. Der dritte Summand berücksichtigt, daß die Probe in der Regel eine von der Anfangstemperatur $T_K = T_M$ des Kalorimeters verschiedene Temperatur T_P hat und somit eine thermische Enthalpie Q

$$Q = C_P \cdot (T_P - T_K) \quad (2.8)$$

einbringt, die den sogenannten "thermischen Schock" $(T_P - T_K) \cdot A(t)$ verursacht. Die Antwortfunktion wird experimentell bestimmt, indem man durch elektrische Beheizung dem Kalorimeter kurzzeitig einen definierten Leistungsimpuls zuführt. Damit kann der erste Klammerausdruck in (2.6), der den Wärmetransport an die Umgebung beschreibt, mit guter Genauigkeit bestimmt werden. Der zweite Summand, der den Wärmetransport durch den Kalorimeterblock von der Probe zum Temperaturfühler beschreibt, kann durch eine elektrisch beheizte Probe nur näherungsweise gemessen werden, weil sie die gesamte Leistung durch Wärmeleitung und damit verzögert an den Kalorimeterblock übertragen muß, während bei einem radioaktiven Präparat etwa die Hälfte der Leistung als γ -Strahlung entweicht und direkt im Kalorimeterblock in thermische Leistung umgesetzt wird. Die Ungenauigkeit in der Antwortfunktion sowie der nicht genau bestimmbare Betrag $Q \cdot A(t)$ haben zur Folge, daß in der Praxis die gesuchte Größe mit einer ausreichenden Genauigkeit erst für Kühlzeiten von der Größenordnung der Zeitkonstante C/k , dh. etwa 100 s, bestimmt werden kann /3/. Schrock et al. /7/ versuchten die Ungenauigkeit der Antwortfunktion im Anstieg, der durch die Zeitkonstante α des Kalorimeterblocks bestimmt ist, durch ein spezielles Kurzzeitmeßsystem zu vermeiden. Der Kalorimeterblock bestand aus einem mit Quecksilber gefüllten zylindrischen Gefäß, an das eine Kapillare angeschlossen war. Durch Messung der Position der Oberfläche der Quecksilbersäule mittels eines optisch-elektronischen Dilatometers konnte so ein Signal der im Kalorimeter freigesetzten thermischen Leistung gewonnen werden, bevor die an der Mantelfläche angebrachte Thermoelementsäule ansprach. Obwohl es möglich war, den thermischen Schock durch dieses schnellansprechende Meßsystem zu separieren, resultieren für Kühlzeiten unter der Zeitkonstante C/k um ein mehrfaches höhere Unsicherheiten im Ergebnis als für lange Kühlzeiten.

Im Fall des adiabatischen Kalorimeters erhält man unter der Voraussetzung, daß die Wärmeübertragungszahl durch gute thermische Isolation des Kalorimeterblocks gegenüber dem adiabatischen Mantel klein gehalten und durch eine geeignete Regelung

die Temperatur des Mantels der des Kalorimeterblocks möglichst genau nachgeführt wird, aus Gl. (2.1) als Beziehung zwischen Meßsignal und der gesuchten Leistung

$$\frac{d\theta}{dt} = \int_0^t \frac{P(\tau)}{C(T_K)} \cdot A(t-\tau) d\tau \quad (2.9)$$

wobei $A(t)$ die Antwortfunktion der zur Zeit t gemessenen Temperaturanstiegsrate $d\theta/dt$ auf einen zur Zeit $t=0$ im Kalorimeter freigesetzten Leistungsimpuls von 1 Ws darstellt. $A(t)$ kann wie beim Wärmeleitungskalorimeter näherungsweise als Exponentialfunktion dargestellt werden, deren Zeitkonstante den Wärmetransport von der Probe zum Temperaturfühler beschreibt:

$$A(t) = \frac{1}{\alpha} \cdot e^{-t/\alpha} \quad (2.10)$$

Obwohl sich bei der Messung von α mittels einer elektrisch beheizten Probe ebenfalls die oben diskutierte systematische Ungenauigkeit ergibt, liegen die Verhältnisse beim adiabatischen Kalorimeter insofern günstiger, als die realisierbaren Zeitkonstanten von der Größenordnung 1-10 s sind, und damit kürzere Abklingzeiten prinzipiell erreichbar werden.

2.3 Das reduzierte Tandemkalorimeter

Im vorausgegangenen Absatz wurden die dynamischen Eigenschaften von Kalorimetern und die sie bestimmenden Größen behandelt.

Daraus läßt sich zunächst ableiten, daß die Messung der Nachzerfallsleistung für kurze Kühlzeiten nur möglich ist, wenn die Zeitkonstante der Antwortfunktion des Meßsignals auf die freigesetzte Leistung klein ist.

Beim Wärmeleitungskalorimeter läßt sich die Verringerung der Zeitkonstante C/k nur unter gleichzeitiger Verschlechterung der Empfindlichkeit erreichen, die durch $1/k$ bestimmt wird. Deshalb wird dieser Typ als ungeeignet betrachtet.

Beim adiabatischen Kalorimeter wird die Zeitkonstante der Antwortfunktion vom Zeitverhalten des Wärmetransports durch den Kalorimeterblock von der Probe zum Temperaturfühler bestimmt und liegt in der Größenordnung 1-10 s. Die Schwierigkeit bei diesem Kalorimetertyp liegt darin, den Verlustterm $k(T_K - T_M)$ aus Gl.(2.1) auch unter dynamischen Bedingungen klein zu halten. Dazu muß zunächst die Wärmeübertragungszahl k durch eine gute thermische Isolation niedrig gehalten werden. Darüber hinaus ist durch eine kleine Zeitkonstante des Regelkreises dafür zu sorgen, daß die Abweichung der Regelgröße T_M von der Führungsgröße T_K auch bei der schnellen Änderung von T_K bei kurzen Kühlzeiten (thermischer Schock) niedrig bleibt.

Bei der technischen Ausführung kommt einem dabei zugute, daß die Führungsgröße einen stetigen Anstieg durchläuft. Dadurch kann man auf eine regelbare Wärmeabfuhr aus dem adiabatischen Mantel verzichten und sich auf eine schnelle, direkt steuerbare Ohmsche Beheizung beschränken.

Da es sich beim Meßsignal $d\theta/dt$ des adiabatischen Kalorimeters um eine differentielle Größe handelt, ist ein hohes Auflösungsvermögen bei der Temperaturmessung erforderlich. Dies kann durch eine Reduktion der Wärmekapazität C des Kalorimeters, was gleichbedeutend mit der Erhöhung der statischen Empfindlichkeit ist, bzw. durch die Wahl eines hochauflösenden Temperaturfühlers geringer Trägheit erreicht werden.

Die Berücksichtigung dieser Gesichtspunkte hat zu folgendem Konzept geführt, das als "reduziertes Tandemkalorimeter" bezeichnet werden soll:

(1) Kalorimeterblock:

Um kurze Zeitkonstanten der Antwortfunktion Gl.(6) zu realisieren, wird der konventionelle Kalorimeterblock auf die radioaktive Probe selbst reduziert, dh. er wird weggelassen. Als Proben werden, entsprechend der auf eine Einzelstabgeometrie bezogenen Aufgabestellung, Zylinder von Pelletabmessungen (Länge 15 mm, Durchmesser 8,12 und 15 mm) aus UO_2

bzw. Uranmetall benutzt. Da aus diesen Proben ein beträchtlicher Anteil der Leistung in Form von γ -Strahlung entweicht, muß dieser Anteil mittels eines geeigneten Detektors gesondert gemessen werden. Durch die Reduktion der Wärmekapazität auf $C=C_p$ der Probe erhält man einen maximalen Meßeffect.

(2) Temperaturmessung

Zur Temperaturmessung werden Thermistoren, dh. stark temperaturabhängige Halbleiterbauelemente, eingesetzt. Sie vereinen kurze Zeitkonstanten (1-2 s) mit einer hohen Empfindlichkeit von $\Delta R/\Delta T/R=0.045 \text{ K}^{-1}$, die um eine Größenordnung über der von Widerstandsthermometern liegt. Zur repräsentativen Temperaturmessung werden die Proben mit einer axialen Sackbohrung versehen und freistehend auf den Temperaturfühler gestülpt, der einen Durchmesser von 0.4 mm aufweist und in die ausgezogene Spitze eines Glasröhrchens von 2 mm Durchmesser und 0.3 mm Wandstärke eingeschmolzen ist.

(3) Adiabatischer Mantel:

Der adiabatische Mantel wird als dünnwandiger, elektrisch beheizbarer Kupferzylinder ausgebildet. Die Meßwerterfassung erfolgt über einen Kleinrechner, der auch die Temperaturnachführung mit einer PI-Charakteristik regelt. Die Wärmeübertragungszahl k wird minimalisiert: die Wärmeleitung zwischen Probe und Mantel wird durch Evakuieren auf 10^{-3} torr reduziert, der Wärmeaustausch durch Strahlung wird durch Beschichtung von Probe und Mantelinnenseite mit einer blanken Metallschicht geringer Emissivität minimalisiert.

(4) Messung der entweichenden γ -Strahlung

Der Anteil der Nachzerfallsleistung, der nicht in der Probe in thermische Leistung umgesetzt wird, sondern als γ -Strahlung entweicht, wird mit einem Detektor vom Moxon-Rae-Typ /13/ gemessen. Dies ist ein Detektor, dessen Empfindlichkeit proportional zur Energie der γ -Strahlung ist $\epsilon \sqrt{E}$, so daß die γ -Zählrate ein direktes Maß für die zu messende Energiestromdichte ist: $Z \sim \int E \cdot \phi(E) dE$.

3. Aufbau und Arbeitsweise der Meßapparatur

3.1 Das Kalorimeter

3.1.1 Mechanischer Aufbau

Ein Querschnitt des mechanischen Aufbaus ist in Abb.1 dargestellt. Da die Funktion des konventionellen Kalorimeterblocks allein von der Probe übernommen wird, besteht das eigentliche Kalorimeter aus dem Temperaturfühler (1) und dem adiabatischen Mantel, der sich aus einem zylindrischen Gefäß (3) und einem konisch eingepaßten Deckel (2) zusammensetzt, die elektrisch beheizt werden. Um eine homogene Aufheizung bei minimaler

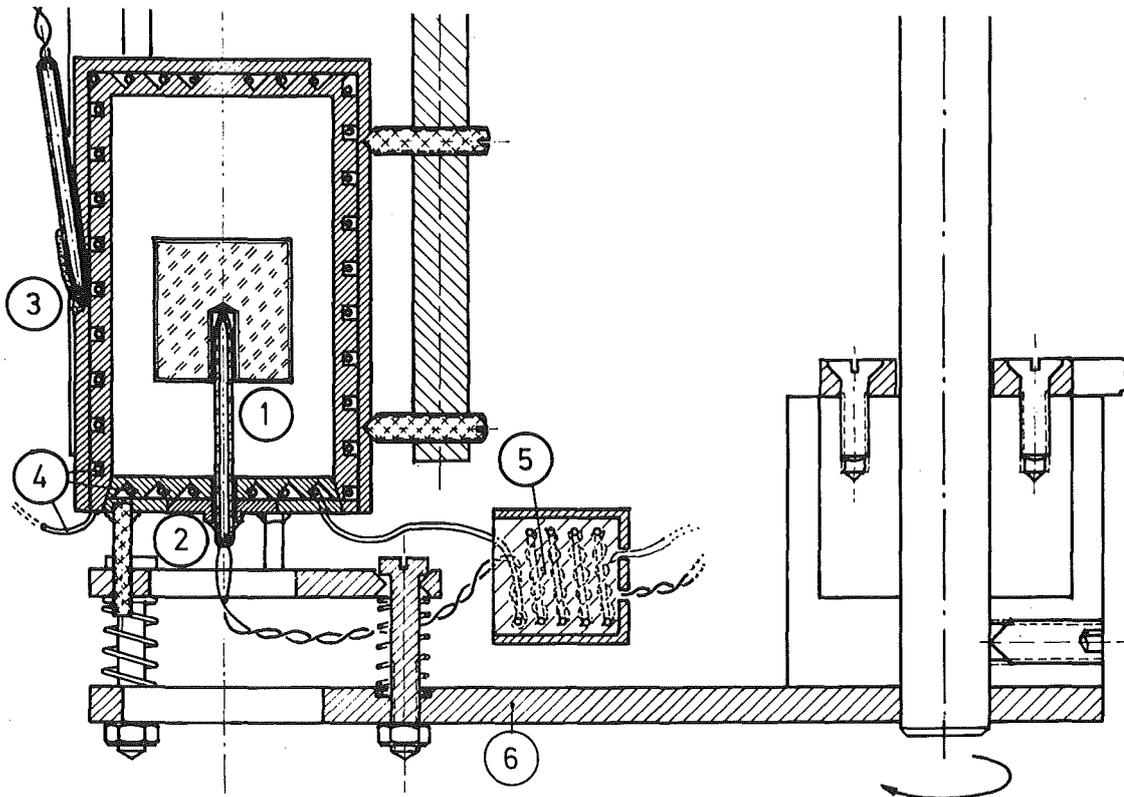


Abb. 1: Querschnitt durch Kalorimeter mit Probe

thermischer Trägheit zu erreichen, muß der Heizdraht so verlegt werden, daß er pro Zentimeter jeweils von der gleichen Masse Kupfer umgeben ist, und er muß vor allem gut wärmeleitend mit dem Gefäß verbunden sein. Die Gleichverteilung wurde durch eine spiralförmige Anordnung der Nuten auf der Mantelfläche

und eine konzentrische Anordnung mit versetzten Durchführungen (Abb.2) an den Stirnflächen des inneren Teilstücks (2.5 mm Wandstärke) erreicht. Die wärmeleitende Verbindung wurde durch Einbetten des Heizdrahts in Weichlot realisiert, das in die Nuten eingeführt wurde und die beiden Teilstücke miteinander verbindet. Um einen optimalen Wärmeübergang zwischen Heizdraht und dem Lötzinn zu erreichen, wurde auf die Verwendung eines konventionellen, koaxial aufgebauten und durch eine Al_2O_3 -Pulverschicht elektrisch isolierten Heizdrahts verzichtet. Stattdessen wurde ein einfacher Lackdraht aus Konstantan mit 0.5 mm^2 Querschnitt und $2.5 \text{ } \Omega/\text{m}$ verwendet. Es gelang zwar erst nach einigen Versuchen, den Draht in die Nuten einzulegen und die beiden Teile zu verlöten, ohne einen elektrischen Kurzschluß durch Zerstörung der Lackisolierung zu verursachen. Die Wärmeleitung durch die nur wenige Mikrometer dicke Lackschicht ist jedoch so gut, daß die Antwortfunktion des Meßsignals des Temperaturfühlers (3) auf die Heizleistung im Mantel eine Zeitkonstante von nur 1.1 s aufweist (vergl. Abb.3). Damit konnte eine wichtige Voraussetzung für ein gutes dynamisches Verhalten der Temperaturregelung erfüllt werden.

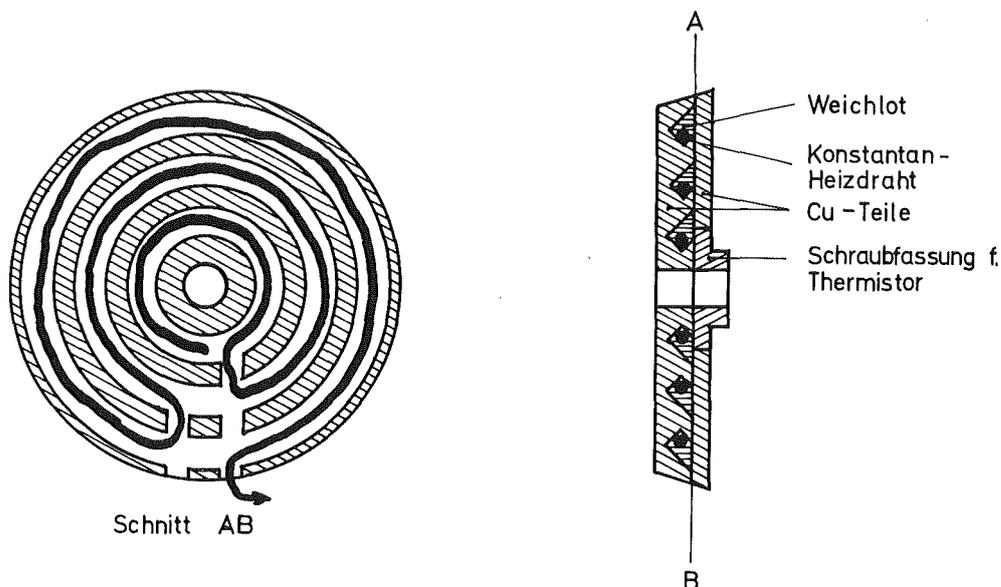


Abb.2: Anordnung des Heizdrahts im Deckel des adiabatischen Mantels

Das eine Ende des Heizdrahtes ist leitend mit dem Kupferkörper verlötet, das andere wird bei (4) herausgeführt. Der Behälter ist zur Verringerung von Wärmeverlusten an die Umgebung mittels dreier Paare Polyamidschrauben justierbar fixiert. Der Deckel ist mittels dreier Polyamidstifte auf einer Tragplatte aus Aluminium befestigt. Diese Platte wird durch Federkraft so auf drei Stehbolzen geführt, daß das gläserne Trageröhrchen des Temperaturfühlers axialen Kräften und in einem gewissen Winkelbereich auch Kippmomenten nachgeben kann, ohne zerstört zu werden. Dadurch können kleine Schwankungen in der azimuthalen Positionierung des Dreharms (6), auf dem der Fühler sitzt, ausgeglichen werden, was vor allem beim Be- und Entladen wichtig ist. Der Deckel besitzt ebenfalls nur einen elektrischen Anschluß für den Heizdraht, so daß der Stromkreis erst beim Einsetzen in das Gefäß geschlossen wird. Elektrischer und Wärmekontakt werden durch den selbstzentrierenden konischen Sitz und die Federkraft der Trageplatte gewährleistet. Der Temperaturfühler (3) zur Messung der Manteltemperatur ist mit einem wärmeleitenden Silbergranulatkleber an der Außenseite angeklebt. Der Temperaturfühler (1) ist in einem auswechselbaren Schraubsitz eingeklebt. Die Innenfläche des adiabatischen Mantels wurde zur Verringerung des Energieaustauschs mit der Probe wie diese mit einem galvanischen Überzug aus Glanznickel versehen.

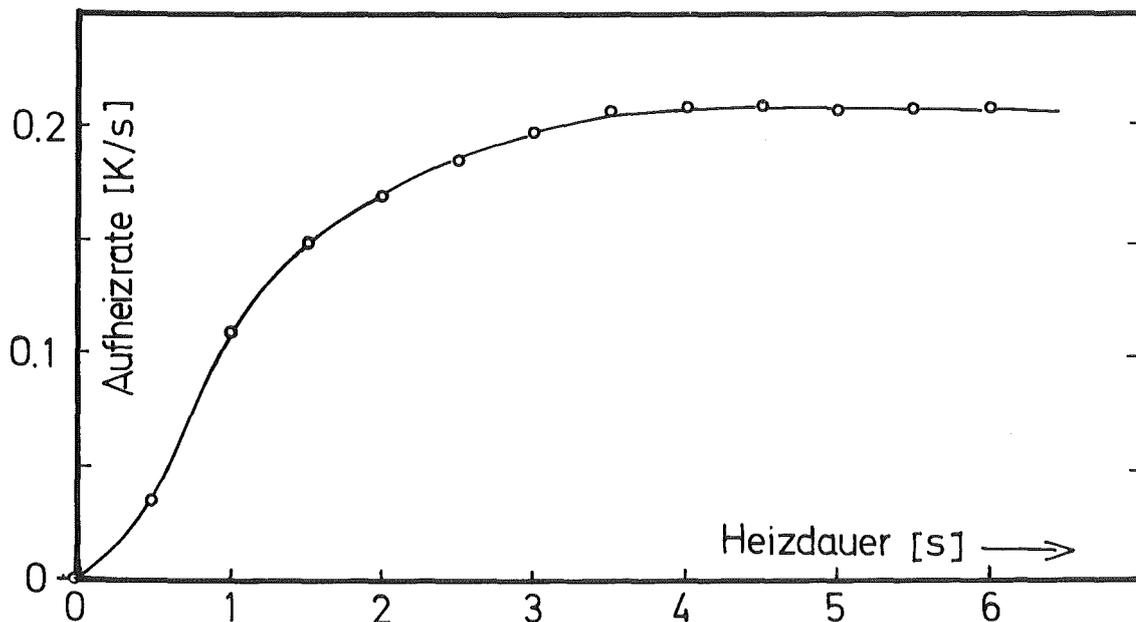


Abb.3: Antwortfunktion der Heizung des Kalorimetermantels

Beim Probetrieb im Vakuum zeigte es sich, daß die relativ zur Wärmekapazität des Deckels zahlreichen Wärmebrücken (Haltestifte, elektrische Anschlüsse des Meßfühlers) eine Temperaturdifferenz zwischen Deckel und Gefäß zur Folge hatte. Diese konnte durch Zwischenschalten eines mit gleicher spezifischer Leistung beheizten Wärmepuffers (5) zwar für Normaldruck, nicht aber im Vakuumbetrieb ausgeglichen werden.

3.1.2 Temperaturmessung und Regelung

Temperaturfühler

Vom Meßprinzip her war ein Temperaturfühler mit kleinen geometrischen Abmessungen und einer kleinen Wärmeleitfähigkeit erwünscht. Vor allem jedoch war ein Meßfühler höchster Empfindlichkeit nötig, da eine Serienschaltung nicht realisierbar war.

Alle diese Forderungen werden von Thermistoren erfüllt, Halbleiterbauelementen mit einem hohen negativen Temperaturkoeffizienten ($-4.5\%/K$) des elektrischen Widerstands. Eingesetzt wurden Miniatur-NTC-Widerstände (Negative-Temperature-Coefficient) der Firma Valvo mit einem Widerstandsnennwert von $600\ k\Omega$ bei $20^{\circ}C$. Diese bestehen aus einem Kügelchen Halbleitermaterial von $0.4\ mm$ Durchmesser, das mit zwei Platin-Iridium-Drähten von $50\ \mu$ Durchmesser fest zusammengesintert und in die ausgezogene Spitze eines Glasröhrchens von $30\ mm$ Länge, $2\ mm$ äußerem Durchmesser und $0.3\ mm$ Wandstärke eingeschmolzen ist. Die Anschlußdrähte bestehen aus $0.3\ mm$ dicken Kupferdrähten.

Ein Nachteil für die praktische Anwendbarkeit der Thermistoren, der ihre größere Verbreitung bei Temperaturmessungen hoher Auflösung bisher verhindert hat, ist in der Tatsache zu sehen, daß im Gegensatz etwa zu den genormten Kennlinien von Thermoelementen oder Widerstandsthermometern wegen der herstellungsbedingten Streubreite der Kennlinien für jedes Exemplar eine individuelle Temperatur-Widerstandskennlinie erstellt werden muß. (Die Eichmessungen werden in Abs. 3.1.3 behandelt.)

Vor der endgültigen Entscheidung für den Einsatz dieses Temperaturfühlertyps mußte sichergestellt werden, daß sich die Kennlinie durch radioaktive Bestrahlung nicht ändert. Dazu wurden 10 Thermistoren in einer γ -Bestrahlungseinrichtung am Reaktor FR2 schrittweise bestrahlt, und durch Messung des Widerstands in einem Wasser-Eis-Gemisch die Kennlinie überprüft. Im Rahmen der Meßgenauigkeit von 0.05 K konnte, auch bei der maximalen Dosis von $2 \cdot 10^5$ rad, keine Veränderung nachgewiesen werden. Demgegenüber ergibt eine Abschätzung, daß der Thermistor durch die übergestülpte Probe während einer Meßzeit von 10^4 s maximal mit einer Dosis von etwa $4 \cdot 10^4$ rad belastet wird. Damit war die Einsatzfähigkeit für das vorliegende Meßproblem nachgewiesen.

Temperaturmessung

Die Temperaturmessung beruht auf der Messung des elektrischen Widerstands der Thermistoren mittels einer modifizierten Wheatstoneschen Brücke, deren Blockschaltbild in Abb.4 dargestellt ist.

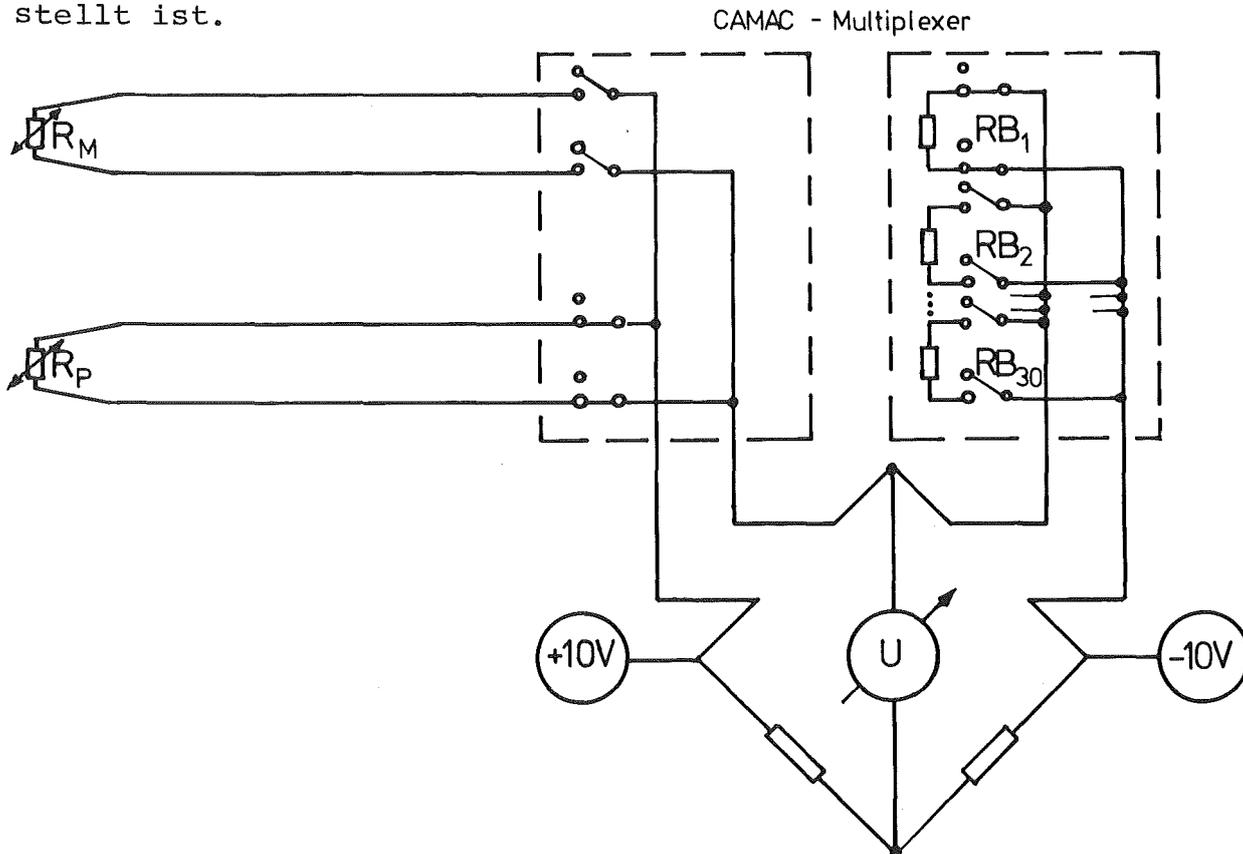


Abb.4: Blockschaltbild der Temperaturmeßeinrichtung

Der eine Zweig der Brücke besteht aus zwei auf gleichen Widerstandswert R_0 ausgesuchten Metallschichtwiderständen von etwa $120 \text{ k}\Omega$. Im anderen Zweig liegen einer der Thermistoren sowie ein Metallschichtwiderstand RB_{\perp} , der aus einem Satz von 30 geeignet abgestuften Werten so ausgewählt wird, daß die Brückenspannung in das Intervall $\pm 0.120000 \text{ V}$ zu liegen kommt. Dieses entspricht dem empfindlichsten Meßbereich eines hochauflösenden Digitalvoltmeters vom Typ Dana 5333, das über einen Camac-Datenweg mit einem 8K-Kleinrechner HP 2115 A verbunden ist.

Die Messungen werden im Abstand von jeweils 1 s abwechselnd an der Probe und am Kalorimetermantel durchgeführt. Dieses Meßzeitintervall ist durch die Integrationszeit des Voltmeters (250 ms), die Datenausgabe über eine Lochstreifenstanze sowie die Dauer der Rechen- und Datenwegoperationen festgelegt. (Eine Erläuterung des Meßprogramms anhand eines Diagramms findet sich im Anhang 1.) Jeweils aus den drei letzten Temperaturmeßpunkten werden der Temperaturanstieg im Meßzeitintervall ($2\Delta t$) sowie dessen zeitliche Änderung berechnet und daraus der nächste zu erwartende Meßwert extrapoliert. Daraus wird der für die nächste Messung in die Brücke zu schaltende Widerstand RB_{\perp} berechnet und gegebenenfalls, z.B. bei Überschreitung der verfügbaren RB_{\perp} -Werte, der Meßbereich des Digitalvoltmeters erweitert, um eine Meßbereichsüberschreitung zu vermeiden.

Die absolute Genauigkeit sowie das Auflösungsvermögen der Temperaturmessungen werden im Absatz 3.1.3.1 im Zusammenhang mit den Eichmessungen der Thermistoren diskutiert.

Temperaturregelung des adiabatischen Mantels

Zweck der Regelung ist es, beim Einbringen der Probe den Mantel möglichst schnell auf deren Temperatur zu bringen und dieser laufend nachzufahren.

Um kurze Zeitkonstanten zu realisieren, enthält der adiabatische Mantel nur eine elektrische Heizung, kann also nicht aktiv ge-

kühlt werden. Man muß also, wenn man den Mantel vorheizt, um die Aufheizspanne nach dem Einbringen der Probe klein zu halten, darauf achten, daß die Manteltemperatur unter der zu erwartenden Probertemperatur bleibt, dieser schnell angeglichen und dann ihrem langsamen Anstieg nachgeführt wird.

Neben der verschwindenden Regelabweichung im letzteren Bereich ist von der Regeleinrichtung auch ein gutes Einschwingverhalten zu fordern.

Als erstes wurde die Kennlinie der Heizung gemessen, die den zeitlichen Temperaturanstieg dT_M/dt als Funktion der Heizleistung beschreibt. Die Übergangsfunktion $\int^t A(t-\tau)d\tau$ zwischen Temperaturanstieg dT_M/dt und der zur Zeit $t \stackrel{0}{=} 0$ eingeschalteten konstanten Heizleistung läßt sich, wie aus Abb.3 zu entnehmen ist, in guter Näherung mit einer einfachen Exponentialfunktion als Antwortfunktion darstellen

$$A(t) = \frac{1}{\mu} \cdot e^{-t/\mu}, \quad (3.1)$$

deren Zeitkonstante sich etwa zu $\mu = 1$ s ergibt. Als Kennlinie erhält man damit

$$\frac{dT_M}{dt} = \frac{H_0}{C} \cdot (1 - e^{-t/\mu}) - (T_M - T_W) \cdot k, \quad (3.2)$$

wobei der zweite Summand die Verluste an die Umgebung der Temperatur T_W beschreibt.

Durch numerische Anpassung des Temperaturanstiegs als Funktion von $(T_M - T_W)$ mit konstantem H_0 wurde ein analytischer Zusammenhang zwischen der Temperaturdifferenz $(T_M - T_W)$ und H_0 abgeleitet, mittels dessen H_0 so variiert wird, daß über den gesamten Betriebsbereich (20 - 70°C) eine gewünschte Temperaturanstiegsrate $\Delta T_M / \Delta t$ pro Meßzeitintervall $\Delta t = 1$ s eingehalten wird.

Aus den in jedem Meßzeitintervall abwechselnd anfallenden Meßwerten T_P bzw. T_M bestimmt der Kleinrechner anhand der Kennlinie die Heiz-

leistung, die im folgenden Zeitintervall dem Mantel zugeführt werden muß, um den gewünschten Temperaturanstieg ΔT_M zu erreichen, sowie die Verluste an die Umgebung zu kompensieren. Der Rechner liefert einen Heizparameter h_o , der in einem 12 bit Digital-zu-Analog-Wandler in eine entsprechende Gleichspannung umgesetzt wird. Da eine in äquidistanten Schritten einstellbare Spannung am Heizwiderstand R quadriert wird (U^2/R), würde man eine in nichtlinearen Schritten steuerbare Heizleistung erhalten. Deshalb wurde ein analoger Radizierbaustein eingesetzt, der die Quadratwurzel \sqrt{U} aus der Ausgangsspannung des ADC bildet, bevor diese auf einen Endwert verstärkt und dem Leistungsverstärker zugeführt wird. (Vergl. Blockschaltbild Abb.5)

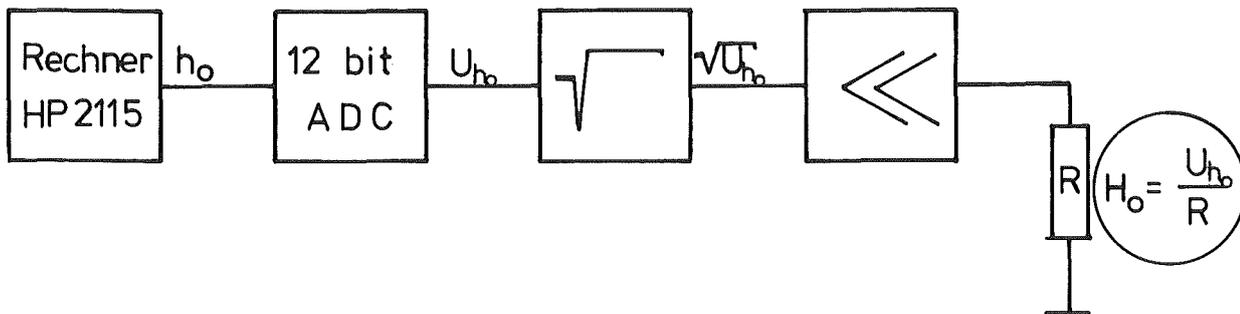


Abb. 5: Blockschaltbild der Heizungsregelung

Auf diese Weise erhält man eine in äquidistanten Stufen von 30 mW einstellbare Heizleistung H_o , die zwischen 0 und 120 W variiert werden kann. Dies entspricht bei $T_W = T_M$ einem in Stufen von $2.5 \cdot 10^{-4}$ K/s variierbaren Temperaturanstieg $\Delta T_M / \Delta t$ pro Meßzeitintervall von maximal 1 K/s.

Zunächst wurde das Verhalten einer einfachen Proportional (P-) Regelung untersucht. Dabei zeigte sich, daß durch eine geeignete Erhöhung des Heizparameters bei kleinen Differenzen die mittlere Regelabweichung ($T_p - T_M$) auf Werten von $\pm 2 \cdot 10^{-3}$ K gehalten werden konnte, doch ergab sich bei Anfangsabweichungen ($T_p - T_M$) > 1 K unzulässig hohes Überschwingen über den Sollwert. Auch der Versuch, die Heizleistung abwechselnd für die Dauer eines Meßintervalls ein- und auszuschalten, um so die Nacheilung des Meßwertes zu

kompensieren, brachte keine befriedigenden Ergebnisse. Deshalb wurde anhand der gemessenen Übergangsfunktion (vergl. Gl. (3.2)) folgende Proportional-Integral (PI-)Regelung konzipiert:

Die Integration von (3.2) liefert bei Einschalten der Heizleistung H_0 zur Zeit $t=0$ für das Zeitverhalten der Manteltemperatur

$$T_M(t) = T_0 + \frac{H_0}{C} \cdot t - \mu \cdot \frac{H_0}{C} \cdot (1 - e^{-t/\mu}) \quad (3.3)$$

Die Manteltemperatur steigt demzufolge nach einer Einschwingzeit von einigen μ proportional zur Heizdauer an, wobei jedoch der Temperaturanstieg $(T_M(t) - T_0)$ um den Betrag $\mu \cdot H_0/C$ kleiner ist als es dem insgesamt eingebrachten Energiebetrag $H_0/C \cdot t$ entspricht. Schaltet man zur Zeit $t_H < t$ die Heizung ab, so läuft die Temperatur um genau diesen Betrag weiter

$$T_M(t) = T_0 + \frac{H_0}{C} \cdot t_H - \mu \cdot \frac{H_0}{C} \cdot (1 - e^{-t_H/\mu}) \cdot e^{-(t-t_H)/\mu} \quad (3.4)$$

Setzt man für $\mu = 1$ s und für $t_H = 1$ s die Dauer eines Meßzyklus, so zeigt sich, daß die während des ersten Meßzyklus eingebrachte Energie H_0/C einen Temperaturanstieg ΔT_M des Mantels auslöst, der sich aus den über 5 Meßzyklen verteilten Anteilen a_i zusammensetzt:

$$\Delta T_M = \frac{H_0 \cdot \Delta t}{C} \cdot \sum_{i=1}^5 a_i \quad (3.5)$$

Bei der Berechnung der Stellgröße H_0 aus der aktuellen Abweichung $T_{P23} - T_{M2}$ (wegen der Indizes vergl. Blockschaltbild des Meßprogramms im Anhang) wird berücksichtigt, daß der zu erwartende Zwischenwert der Manteltemperatur T_{M23} (der nicht gemessen wird, weil dann gerade der neue Meßwert T_{P2} ermittelt wird) aufgrund der in den vier ($i=2-5$) zurückliegenden Meßintervallen eingebrachten Heizenergien $H_i \cdot \Delta t$ um den Betrag

$$\Delta T' = \frac{1}{C} \cdot \sum_{i=2}^5 a_i \cdot H_i \cdot \Delta t \quad (3.6)$$

über dem aktuellen Meßwert T_{M2} liegen wird. Korrigiert man die Regelabweichung um diese Nacheilung, so ergibt sich ein befriedigendes dynamisches Regelverhalten mit schnellem Anstieg und geringen Überschwingern. Im Bereich des langsamen Temperaturanstiegs nach der Anfangstransiente wird durch einen von der Regelabweichung abhängigen nichtlinearen Korrekturfaktor die Stellgröße so erhöht, daß die Standardabweichung der Manteltemperatur vom Sollwert nur $\pm 2 \cdot 10^{-3}$ K beträgt.

3.1.3 Eichmessungen

3.1.3.1 Eichung der Thermistoren

Wie schon erwähnt, lassen sich Thermistoren wegen der fertigungstechnischen Streubreiten nicht mit standardisierbaren Kennlinien herstellen. Der Benutzer muß die Widerstands-Temperatur-Kennlinie eines jeden Thermistors einzeln messen.

Zur Eichung wurden 15 Thermistoren in eine Halterung eingeklebt, die es gestattet, die Fühler mit trockenen elektrischen Zuführungen in ein Wasserbad einzusetzen. Die Widerstandsmessung erfolgte nach der 4-Leiter-Methode (getrennte Meßstrom- und Spannungsmeßleitungen) mit einem Digitalvoltmeter, das von einem Kleinrechner über einen CAMAC-Datenweg gesteuert wurde. Die Umschaltung der einzelnen Fühler auf das Meßgerät erfolgte über einen 15-Kanal-Multiplexer ebenfalls durch den Rechner. Um systematische Fehler bei der Bereichsumschaltung zu vermeiden, wurde das Meßgerät jeweils im 1000 k Ω -Bereich betrieben.

Bei den Messungen wurden die Thermistoren in das Wasserbad in einem 2l-Dewargefäß getaucht, dessen Inhalt laufend gerührt wurde. Durch einen elektrischen Heizstab wurde dem abgedeckten Bad gerade soviel Leistung zugeführt, daß sich ein langsamer Temperaturanstieg von etwa 5 K/Stunde ergab. In dieses Bad wurde ein Quecksilber-Normalthermometer der Firma Thermo-Schneider soweit eingetaucht, daß

der Faden mit einer paralaxfreien Meßlupe gerade abgelesen werden konnte. Die Genauigkeit des mit 1/10 Grad-Teilung versehenen Thermometers wird vom Hersteller im gesamten Meßbereich (0-50°C) mit 0.01 Grad angegeben. Die Unsicherheiten aufgrund der von der Quecksilbersäule verschiedenen Eintauchtiefe berechnen sich zu maximal 0.015 K.

Das Meßprogramm war so aufgebaut, daß die Widerstandswerte der verschiedenen Thermistoren in zehn Zyklen gemessen und ein Mittelwert über Lochstreifen ausgegeben wurde. Danach wurde der am Thermometer bis auf 0.02 Grad (letzte Dezimale geschätzt) abgelesene Meßwert ebenfalls auf Lochstreifen ausgegeben und ein neuer Meßzyklus gestartet. So wurden für jeden Thermistor insgesamt 158 Eichpunkte im Temperaturbereich zwischen 22°C-50°C gemessen. Da der elektrische Widerstand eines Thermistors in erster Näherung mit steigender Temperatur exponentiell sinkt, wurde an die Meßpunkte die folgende Funktion angepaßt

$$R_T = R_0 \cdot e^{a \cdot x + b \cdot x^2 + c \cdot x^3} \quad , \quad (3.7)$$

wobei R_0 der Thermistorwiderstand bei $T_0 = 35.0^\circ\text{C}$ und $x = T - 35$ die auf T_0 bezogene Temperatur ist. Die Standardabweichung der Meßwerte um die Ausgleichskurve liegt bei 0.1 k Ω für die Widerstandsmessung in Übereinstimmung mit den Herstellerangaben für das Meßgerät, bzw. bei 0.016 K bei der Temperaturmessung, was der Ablesegenauigkeit ohne Korrektur der überstehenden Quecksilbersäule entspricht.

Im Laufe des Meßbetriebs wiederholt vorgenommene Bestimmungen des "adiabatischen Zustands", bei denen die Manteltemperatur fest vorgegeben und der Verlauf der Temperatur des Probenmeßfühlers beobachtet wurde, ergaben nach Erreichen des stationären Zustands Übereinstimmungen der beiden Temperaturwerte innerhalb von typisch ± 0.02 K. Mittels der oben beschriebenen Eichprozedur erhält man also Thermistorkennlinien, die es gestatten, im Bereich von 20°C-50°C Temperaturen mit einer absoluten Genauigkeit von ± 0.02 K zu messen.

Das in dieser Arbeit angewandte Meßprinzip zur Bestimmung der Nachzerfallsleistung beruht jedoch nicht auf der Absolutmessung der Probestemperatur, sondern auf der Messung des Temperaturanstiegs $\Delta T_P/2\Delta t$ während zweier Meßzeitintervalle (zwei Meßzeitintervalle Δt , weil abwechselnd T_P und T_M gemessen werden). Wie im nächsten Abschnitt gezeigt wird, erfolgt die Absolut-eichung der Meßgröße $\Delta T_P/2\Delta t$ auf die in der Probe wirksame Leistung P durch eine Relativmessung zu einem Standard, deren Genauigkeit im wesentlichen von der Reproduzierbarkeit und dem Auflösungsvermögen einer Widerstandsmessung abhängt. Die absoluten Temperaturwerte werden nur beim Vergleich der mit verschiedenen Sensoren gemessenen Werte, dh. für die Regelung der Manteltemperatur benötigt. Zur Messung kleiner Temperaturdifferenzen ΔT_P müssen die Temperaturwerte und damit im vorliegenden Fall die Widerstandswerte mit möglichst guter Auflösung gemessen werden. Betrachtet man dazu zunächst die Zahl der ablesbaren Stellen, so bietet das Digitalvoltmeter im 1000 k Ω Meßbereich ein Auflösungsvermögen von 10 Ω . Bei mittleren Temperaturen beträgt der zu messende Thermistorwiderstand etwa 450 k Ω , so daß man mit einer Empfindlichkeit von 0.045/K ein Auflösungsvermögen von etwa $5 \cdot 10^{-4}$ K erreicht.

Benutzt man zur Widerstandsmessung die im letzten Abschnitt beschriebene Brückenschaltung, so berechnet sich der Thermistorwiderstand R_T bei kleinen U näherungsweise zu

$$R_T \approx RB_i \cdot (1.0 \pm 2U/10) \quad (3.8)$$

wobei RB_i der benutzte Brückenwiderstand und U die mit einer Auflösung von 1 μ V gemessene Brückenspannung ist. Damit erhält man ein Auflösungsvermögen der Temperaturmessung von etwa $5 \cdot 10^{-6}$ K, solange für die Messung derselbe Brückenwiderstand RB_i benutzt wird. Muß bei zu erwartender Meßbereichsüberschreitung ein anderer Brückenwiderstand RB_{i+1} gewählt werden, so ergibt sich in der Regel ein Sprung in der Kennlinie der Brücke, weil die Brückenwiderstände nur mit einer Genauigkeit von etwa 0.05% ausgesucht werden konnten, was einer Temperaturunsicherheit von etwa 0.01 K entspricht. Für

die Messung der Nachzerfallsleistung bedeutet dies, daß an dieser Stelle ein Meßwert ΔT_P zu verwerfen ist. Bei der Auswertung kann dies durch kontinuierliche Mitteilung der Meßwerte ΔT_{Pi} nach dem "exponential averaging"-Verfahren

$$\overline{\Delta T}_{Pi+1} = \overline{\Delta T}_{Pi} + (\Delta T_{Pi+1} - \overline{\Delta T}_{Pi})/N \quad (3.9)$$

(N: ganze Zahl, die etwa die Zahl der Einzelmeßwerte angibt, die bei der Mittelung berücksichtigt werden) und Vergleich der Abweichung $\Delta T_{Pi+1} - \overline{\Delta T}_{Pi}$ mit einem Grenzwert aufgrund der Höhe des Kennliniensprungs einfach entschieden werden.

Die Varianzanalyse von Meßwerten des Typs $y = \Delta T_P / 2\Delta t / (T_M - T_P)$, wo $T_M - T_P$ durch die Regelung konstant gehalten wird und viel größer als ΔT_P ist, ergibt für die Standardabweichung $\sigma_Y = \sqrt{1/N \cdot \sum (Y_i - \bar{Y})^2}$ der Meßwerte y_i um eine angepaßte Kurve des Typs

$$y = a + b \cdot (T_P - T_O) + c \cdot (T_P - T_O)^2 \quad (3.10)$$

einen Wert, der einer mittleren Schwankung der Temperaturdifferenzen ΔT_P um $\pm 7 \cdot 10^{-6}$ K entspricht. Eine Analyse der Schwankungen der angepaßten Parameter a, b und c aus verschiedenen Meßserien zeigt, daß bei Beträgen von $|T_P - T_O| < 5K$, was bei den Messungen erfüllt war, σ_Y im wesentlichen nur von der Standardabweichung σ_a des Parameters a abhängt. Es zeigte sich weiter, daß die Standardabweichung $\sigma_a = \sqrt{1/N \cdot \sum (a_i - \bar{a})^2}$ der a_i aus verschiedenen Meßserien der Standardabweichung der Temperaturdifferenz einer Meßserie von $7 \cdot 10^{-6}$ K entspricht.

Es zeigt sich somit, daß aufgrund der angewandten Meßtechnik (Brückenschaltung unter Verwendung der internen Referenzspannungen des Digitalvoltmeters, mittels derer die zu messenden Spannungen bestimmt werden) Temperaturanstiege $\Delta T_P / 2\Delta t$ mit einem Auflösungsvermögen σ_Δ gemessen werden können, das nur durch das Auflösungsvermögen des Voltmeters bestimmt wird ($\sigma_\Delta = \sqrt{2 \cdot \sigma_V}$). Dies gilt, solange derselbe Brückenwiderstand RB_i benutzt wird, und alterungsbedingte Änderungen der RB_i oder der Thermistor-Kennlinie ausgeschlossen werden können.

Die Auswertung von Meßserien, die innerhalb von 10 Tagen durchgeführt wurden, zeigt keine meßbare Änderung. Daraus kann man schließen, daß etwaige Änderungen langsam ablaufen. Darüber hinaus ist jederzeit leicht eine Nacheichung durchführbar, wie sie im folgenden beschrieben wird.

3.1.3.2 Leistungseichung

Nach Gl. (2.9) muß zur Bestimmung der Nachzerfallsleistung P außer dem zeitlichen Temperaturanstieg $d\theta/dt$ noch die Wärmekapazität C der Probe bekannt sein. Da nicht ausgeschlossen werden konnte, daß sich die Wärmekapazität der Proben während der Bestrahlung im Reaktor ändert, wurde das Meßprogramm so ausgelegt, daß zunächst der zeitliche Temperaturanstieg einer Probe gemessen wird, wobei das Kalorimeter adiabatisch betrieben wird. Anschließend wird das Kalorimeter mit 1 bar Stickstoff gefüllt und als Aufheizkalorimeter betrieben. Dazu wird die Temperatur des adiabatischen Mantels so geregelt, daß sie immer um einen konstanten Betrag über der Proben-temperatur liegt. Durch die Wärmeleitung im Füllgas wird damit der Probe eine durch die Geometrie genau definierte Energiemenge zugeführt, die einen der Wärmekapazität proportionalen zeitlichen Temperaturanstieg verursacht.

Die Wärmeübertragung wurde für die verschiedenen Probenabmessungen durch Eichmessungen bestimmt. Um die Schwierigkeiten zu umgehen, die sich bei der vorgegebenen Meßapparatur (vergl. Abb.1) bei der Realisierung einer definierten Energiezuführung durch elektrische Heizung ergeben (Wärmeleitung in den Zuleitungen, Schwierigkeit, den "effektiven" Spannungsabfall zu messen), wurde ein anderer Weg beschritten:

Zunächst wurden einige der oben beschriebenen Meßserien mit einer in den äußeren Abmessungen einer Probe von 15 mm Durchmesser entsprechenden, innen jedoch hohl ausgedrehten Messingprobe durchgeführt. Dabei wurden Meßwerte jeweils erst nach einer bestimmten Vordrift und ab einer bestimmten Proben-temperatur an registriert.

Die Temperaturdifferenz $T_M - T_P = 2.6$ K war so gewählt, daß die zugeführte Wärmeleistung von etwa 10 mW einen so kleinen Temperaturanstieg ($\Delta T_P = 0.002$ K/s) zur Folge hatte, daß man sicher sein konnte, daß dieser von Wärmeleitprozessen innerhalb der Probe nicht beeinflußt wurde.

Danach wurde eine Reihe von Meßserien durchgeführt, bei denen die Eichprobe mit einer auf $\pm 0.01\%$ genau gewogenen Menge Wasser gefüllt war, dessen spezifische Wärme im fraglichen Temperaturbereich ($20^\circ - 50^\circ\text{C}$) mit einer Genauigkeit von 0.001% tabelliert ist. Pro Meßserie wurden jeweils 1250 Meßpunkte registriert und durch eine Funktion gemäß Gl.(3.10) angepaßt. Damit wurde für jede Meßserie die auf die Temperaturdifferenz $T_P - T_W$ bezogene Temperaturanstiegsrate $a = \Delta T_P / 2\Delta t / (T_P - T_W)$ bei einer bestimmten Temperatur $T_P = T_0$ berechnet und die Mittelwerte \bar{a}_0 und \bar{a}_1 aus den Meßserien mit (1) und ohne (o) Wasserfüllung gebildet.

Aus den Mittelwerten und der Wärmekapazität C_{H_2O} der Füllung bestimmt sich die der Probe bei der Temperatur T_0 pro K Temperaturdifferenz durch Wärmeleitung zugeführte Heizleistung zu

$$\frac{P_{th}}{T_P - T_W} = \frac{C_{H_2O}}{2\Delta t \cdot \left(\frac{1}{\bar{a}_1} - \frac{1}{\bar{a}_0} \right)} \quad \left[\frac{W}{K} \right] \quad (3.11)$$

deren Genauigkeit im wesentlichen durch die Genauigkeit von C_{H_2O} ($\pm 0.01\%$) gegeben ist. Eine Vergleichsmessung mit einer massiven Kupferprobe gleicher Abmessungen lieferte die entsprechenden Tabellenwerte für die spezifische Wärme des Kupfers. Damit war ein Weg gefunden, ohne absolute Temperaturmessung die Wärmekapazität der Proben bzw. das einer Temperaturanstiegsrate entsprechende Leistungsäquivalent zu eichen.

3.2 Aufbau und Arbeitsweise des γ -Energiestrom-Detektors

Wie schon erwähnt wurde auf eine vollständige Absorption der γ -Strahlung zugunsten einer besseren Dynamik des Kalorimeters verzichtet. Da der γ -Anteil an der Nachzerfallsleistung je nach Abklingzeit bis zu 50% beträgt, von denen je nach Größe und Material der Proben zwischen 30% und 60% entweichen, muß dieser Anteil gesondert gemessen werden.

Dazu wird ein Strahlungsdetektor verwendet, der zum erstenmal von Moxon und Rae /13/ beschrieben wurde. Ausgehend von der Tatsache, daß die Nachweiswahrscheinlichkeit eines dickwandigen Geiger-Müller-Zählrohrs für γ -Strahlung nahezu linear mit der γ -Energie ansteigt, konzipierten die Autoren einen Detektor mit den gleichen Eigenschaften, jedoch ohne die langen Totzeiten des Zählrohrs.

Der Detektor besteht aus einem plattenförmigen Konverter aus einem Material niedriger Kernladungszahl, in dem durch die auffallende γ -Strahlung Elektronen freigesetzt werden. Diese werden im wesentlichen vorwärts gestreut und in einem an der Rückseite des Konverters angebrachten dünnen Plastikszintillator nachgewiesen. Nach Malik /14/ kommt die Proportionalität zwischen der γ -Energie und der Wahrscheinlichkeit, daß ein durch eine γ -Wechselwirkung freigesetztes Elektron im Szintillator nachgewiesen wird, folgendermaßen zustande: Die Produktionswahrscheinlichkeit für Elektronen nimmt im Energiebereich zwischen 0 - 10 MeV entsprechend der Energieabhängigkeit des totalen γ -Schwächungskoeffizienten für Materialien mit kleiner Kernladungszahl nur langsam mit der Energie ab. Dafür steigt die Reichweite und damit das Konvertervolumen, aus dem Elektronen bis zum Szintillator gelangen können, mit der Energie stark an, so daß das Produkt aus Produktions- und Nachweiswahrscheinlichkeit etwa proportional zur γ -Energie verläuft. Dabei wird vorausgesetzt, daß im Szintillator nur Elektronen, dh. keine γ -Strahlen nachgewiesen werden.

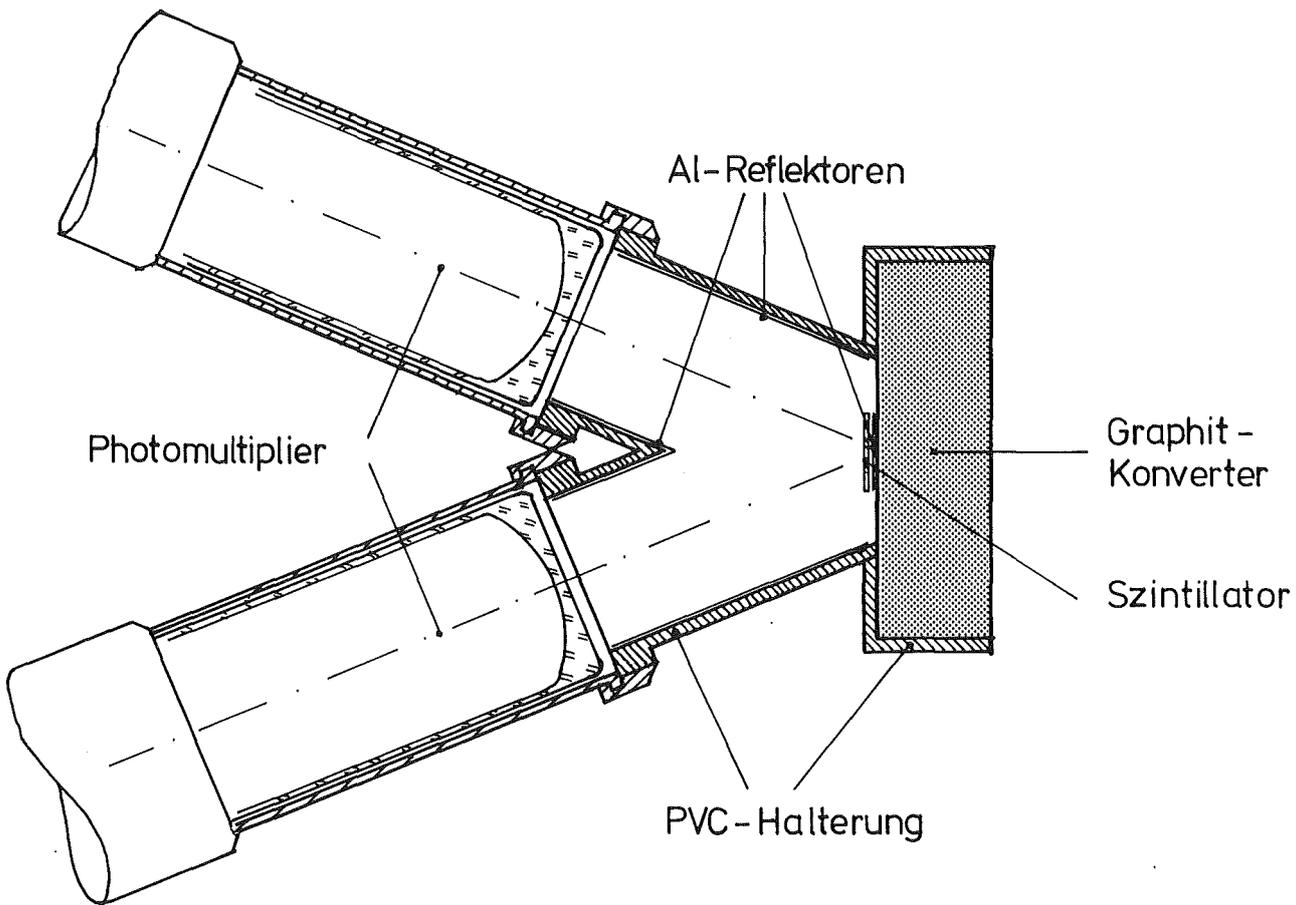


Abb.6: Aufbau des γ -Detektors

Man verwendet daher Plastiksintillatoren von nur etwa 0.5 mm Dicke. Der Energieverlust der Elektronen in dieser dünnen Schicht und damit die Quantenausbeuten sind so gering, daß man auch Ereignisse registrieren muß, die nur wenige, im Grenzfall nur ein einziges, Photoelektronen aus der Kathode des Photovervielfachers herauslösen. Da aber einzelne Elektronen auch spontan durch thermische Anregung aus der Kathode emittiert werden können, muß man bei der Wahl einer Diskriminatorschwelle einen Kompromiß zwischen höchster Nachweiswahrscheinlichkeit und kleiner Untergrundzählrate und, wie sich bei der Eichung der hier beschriebenen Variante zeigen sollte, einer auch bei niedrigen γ -Energien mehr oder weniger linearen Beziehung zwischen Energie und Nachweiswahrscheinlichkeit suchen. Während Moxon und Rae aus einer größeren Anzahl von Photovervielfachern Exemplare mit besonders niedrigem Dunkelstrom aussuchen konnten, wurde hier eine von Horrocks beschriebene Koinzidenzschaltung /15/ zweier Photovervielfacher eingesetzt. Durch die Verwendung zweier Vervielfacher mußte der Raumwinkel, unter dem der Szintillator er-

scheint, notwendigerweise (vergl. Abb.6) stark reduziert werden. Die damit verbundene Abnahme der Nachweiswahrscheinlichkeit ist für die hier beschriebenen Messungen wegen der hohen verfügbaren γ -Intensität ohne Bedeutung.

Der Detektor besteht aus einem Konverter aus Graphit der Dichte 1.75 g/cm^3 von 10 cm Durchmesser und 3 cm Dicke. Auf die Rückseite ist als Reflektor eine 20μ dicke Al-Folie von 20 mm Durchmesser und auf diese ein 0.5 mm dicker Plastiksintillator (NE 102 A der Fa. Nuclear Enterprises) gleichen Durchmessers geklebt. Unter einem Winkel von 22.5° gegen die Längsachse des Konverters sind zwei schnelle Photomultiplier vom Typ RCA 8775 in einer Halterung aus PVC montiert (Vergl. Abb.6). Die Entfernung zwischen Szintillator und den Fenstern der Photomultiplier beträgt 7,5 cm und konnte wegen deren Durchmesser (2") nicht verkleinert werden. Zur Verbesserung der Lichtleitung werden die Innenseiten der Halterung ebenfalls mit Aluminiumfolie beklebt.

Die Photomultiplier werden bei einer Hochspannung von 3.0 kV betrieben. Damit wird eine Verstärkung erreicht, die es gestattet, einzelne von der Photokathode emittierte Elektronen nachzuweisen. Um diese sogenannten Einzelelektronenereignisse von denen zu unterscheiden, die durch thermische Emission ausgelöst werden, wurde eine Koinzidenzschaltung benutzt, deren Blockschaltbild in Abb.7 dargestellt ist. Die Anodensignale werden direkt auf einen schnellen Impulshöhendiskriminator (LRS 621 A) gegeben, dessen Schwelle so eingestellt ist, daß Einzelelektronenereignisse nachgewiesen, Impulse jedoch, die durch den Blindstrom der Dynoden entstehen, unterdrückt werden.

Ein Diskriminatorausgang führt zum START-Eingang eines Zeit-zu-Impulshöhen-Wandlers, und löst dort einen Spannungsanstieg von $0.2 \text{ V}/10^{-9} \text{ s}$ aus. Der zweite Diskriminatorausgang führt über ein um 3.5 m längeres BNC-Kabel zum STOP-Eingang und unterbricht den Spannungsanstieg bei einer Amplitude, die der Zeitdifferenz zwischen Start- und Stopimpuls entspricht. Koinzidente Photovervielfacherimpulse erzeugen somit einen Ausgangsimpuls, dessen Höhe von 3.5 V dem Produkt aus Laufzeitunterschied von 17.5 ns

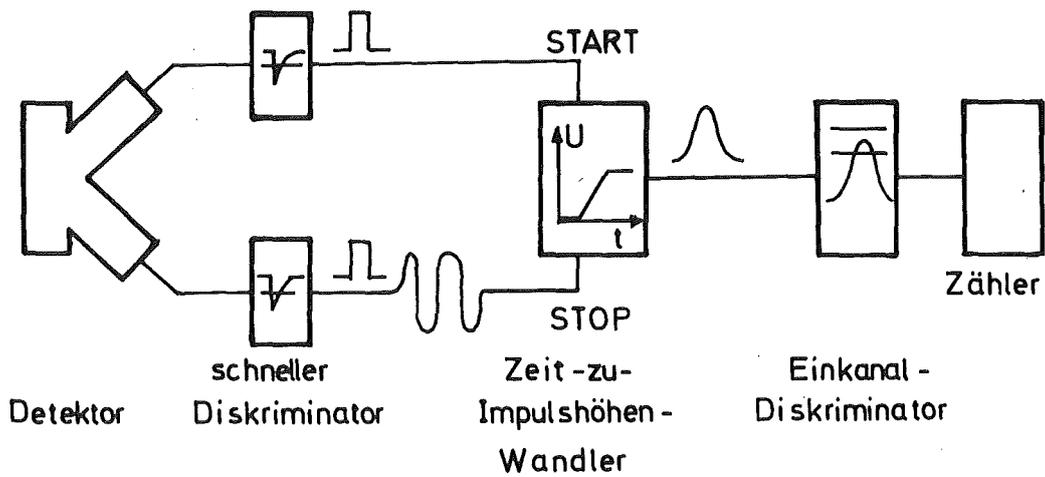


Abb.7: Blockschaltbild der Koinzidenzschaltung des γ -Detektors.

(entsprechend 3,5 m Kabel) und Spannungsanstieg ist. Die Halbwertsbreite der Impulshöhenverteilung von koinzidenten Ereignissen ist durch die statistisch verlaufenden Prozesse in Photovervielfacher und Diskriminatoren gegeben und entspricht einer Koinzidenzbreite von $2 \cdot 10^{-9}$ s. Die 1 μ s-Ausgangsimpulse werden auf einen Einkanal diskriminator geleitet, dessen Fenster so eingestellt ist, daß Impulse mit weniger als 10 ns Zeitabstand nachgewiesen werden. Die Diskriminatorimpulse werden von einem CAMAC-Zähler registriert und vom Rechner im 2s-Takt übernommen und über Lochstreifen ausgegeben.

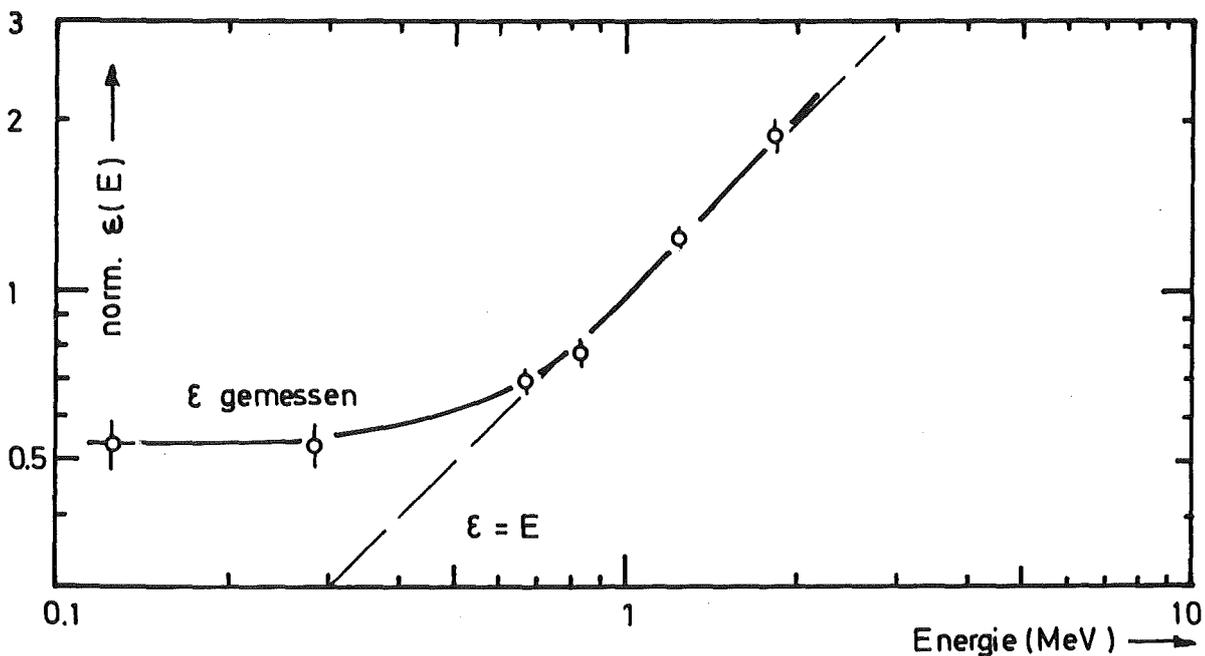


Abb.8: Energieabhängigkeit der Nachweiswahrscheinlichkeit des γ -Detektors

Zur Überprüfung der Proportionalität zwischen γ -Energie und Nachweiswahrscheinlichkeit wurden die Zählraten einiger verfügbarer γ -Quellen mit Energien zwischen 59,5 keV (^{241}Am) und 1836 keV (^{88}Y) gemessen. Dabei ergab sich ein im Vergleich zu Messungen von Moxon und Rae /13/ sowie theoretischen Überlegungen von Malik /14/ und Iyengar et al. /16/ qualitativ anderer Verlauf bei γ -Energien unterhalb 1000 keV (vergl. Abb.8), der folgendermaßen erklärt werden kann: Während der hier beschriebene Detektor mit der (Energie-)Diskriminatorschwelle Null betrieben wird und damit auch Szintillationen sehr niederenergetischer Elektronen nachweist, die im wesentlichen von niederenergetischen γ -Strahlen stammen, werden diese Ereignisse durch das Setzen einer endlichen Diskriminatorschwelle (die zur Rauschunterdrückung unerlässlich ist) überproportional diskriminiert, dh. mit einer zu kleinen Wahrscheinlichkeit nachgewiesen. Bei den theoretischen Ergebnissen läßt sich die Diskrepanz durch ungerechtfertigte Annahmen wie Nichtberücksichtigung des Photoeffekts, der gerade bei niedrigen γ -Energien dominiert, oder Vernachlässigung von Quanten unter 50 keV erklären, was durch die Lage des Meßpunkts bei 59 keV als unzulässig anzusehen ist.

Um den Einfluß der Nichtlinearität der Detektorkennlinie auf das Meßsignal des Energiestroms zu untersuchen, wurde eine Empfindlichkeitsanalyse durchgeführt. Als spektrale Verteilung der γ -Energien wurde in guter Übereinstimmung mit den Meßergebnissen von J.E. Dickens et al. /5/ eine Funktion vom Typ

$$S \sim \exp(-a \cdot E) \cdot (1 - \exp(-b \cdot E)) \quad (3.12)$$

angesetzt und die relative Detektorempfindlichkeit durch

$$\varepsilon = \left[0.4 \cdot (1 + a \cdot E) + 2.4 \cdot \exp(-E/0.165) \right] \cdot E \quad (3.13)$$

approximiert. Darin beschreibt der zweite Summand den gemessenen Anstieg der Empfindlichkeit bei kleinen γ -Energien und a gestattet es, eine systematische Abweichung von der Proportionalität $\varepsilon \sim E$ zu untersuchen. Der Energiebereich zwischen 0.1 und 9 MeV wurde

anhand von gemessenen Spektren aus Ref./5/ logarithmisch in 30 Energiegruppen unterteilt und Zählraten Z_j wie folgt berechnet:

$$Z_j = \sum_{i=1}^N \epsilon(E_i) \cdot S(E_i) \cdot f_{ij} \cdot \Delta E_i \quad (3.14)$$

Darin ist f_{ij} ein Faktor, der für jedes i statistisch (logarithmisch gleich verteilt) aus dem Bereich zwischen 0.01 und 100 gewählt wird, um den Einfluß eines zeitlich sich ändernden Energiespektrums auf die Zählrate zu simulieren.

Dabei zeigte sich, daß die Nichtlinearität der Kennlinie zu einer systematischen Erhöhung der Zählrate um 6% führt, und daß die Zählrate aufgrund der oben zugelassenen Schwankungen der spektralen Verteilung mit einer Standardabweichung von etwa 3.5% behaftet ist.

Da die Kennlinie oberhalb 1836 keV mangels geeigneter Präparate nicht gemessen wurde konnte, wurde der von Moxon und Rae gemessene lineare Verlauf zugrunde gelegt, weil Konverter- und Szintillatordicken mit denen der beiden Autoren identisch sind.

Die theoretischen Vorhersagen der Kennlinien liefern für Graphit eine lineare Abnahme der Größe ϵ/E um etwa 30% zwischen 0 und 10 MeV. Dabei läßt sich jedoch aus der Literatur nicht entnehmen, ob dies prinzipiell so ist, oder nur für das gezeigte Beispiel einer Konverterdicke, die eine maximale integrale Nachweiswahrscheinlichkeit ergibt. Setzt man in Gl.(3.13) für $a=0.3$, um die oben erwähnte Abnahme zu berücksichtigen, so erhält man eine um 6% niedrigere Zählrate. Für die Auswertung wurde ein nicht linearer Verlauf zugrundegelegt, der in Abs. 4.2 näher erläutert wird.

3.3 Rohrpostanlage

3.3.1 Aufbau und Arbeitsweise

Die Rohrpost hat den Zweck, die Brennstoffproben in eine definierte Bestrahlungsposition in der thermischen Säule des Forschungsreaktors FR2 zu bringen, eine wirkungsvolle Kühlung der Probe während der Bestrahlung zu gewährleisten und die Proben zu einem definierten Zeitpunkt in das Kalorimeter zu transportieren.

Da diese Forderungen mit den vorhandenen Anlagen nicht erfüllt werden konnten, mußte eine neue Rohrpost, geeignete Fahrzeuge sowie eine Transportmechanik entwickelt und gebaut werden, die die Proben sicher aus dem Fahrzeug auf die mechanisch empfindlichen Temperaturfühler bringt, ohne diese dabei zu zerstören, und sie schließlich in den adiabatischen Mantel transportiert. Die Rohrpostanlage (vergl. Schaltdiagramm Abb.9) ist als geschlossener Kreislauf ausgelegt, der nur zum Be- und Entladen sowie zum Ausfahren des Fahrzeuges aus der Bestrahlungsposition geöffnet werden muß. Das Fahrrohr besteht aus $AlMg_3$ und hat einen Innendurchmesser von 31 mm und eine Wandstärke von 2 mm. Es führt in einem Viertelkreisbogen von 35 cm Krümmungsradius aus der Vertikalen in den horizontalen Stopfen des "ThOst"-Kanals der thermischen Säule.

Die Länge des Fahrrohrs im Reaktorblock beträgt 3.79 m (vergl. Abb.10 auf dem Faltblatt im Anhang 3). Zur Abschirmung schneller Spaltneutronen (Quellstärke max. $3 \cdot 10^{11} \text{ s}^{-1}$) wurde das Fahrrohr mit einer Etage versehen und in die Verlängerung der Fahrrohrachse ein Polyäthylenzylinder von 40 cm Länge eingesetzt. Die Bestrahlungsposition liegt etwa 45 cm von der Mittelebene der thermischen Säule entfernt in einem thermischen Fluß von etwa $\phi = 2.9 \cdot 10^{11} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$, der mit einem vom Reaktorbetreiber zu Testzwecken in den Rohrposteinsatz eingebauten Flußdetektor gemessen werden konnte. Das Rohrpostfahrzeug wird von einem gefeder-ten Kolben abgebremst, wobei ein ebenfalls gefedert geführtes Thermoelement in Wärmekontakt mit der Probe kommt. Während der Bestrahlung strömt Kühlgas (N_2) vom Fahrrohr durch den Ringspalt

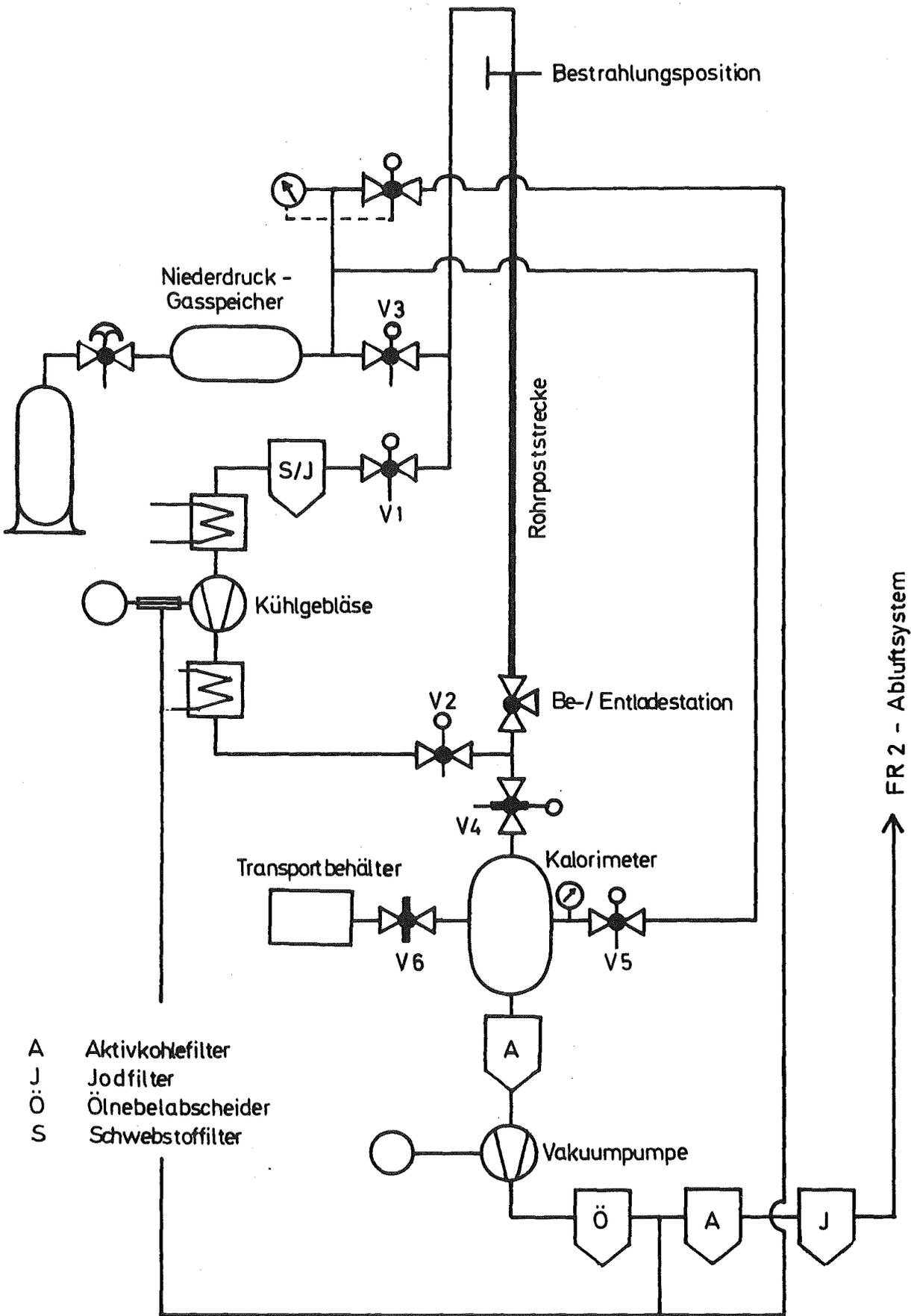


Abb.9: Blockschaltbild der Rohrpostanlage

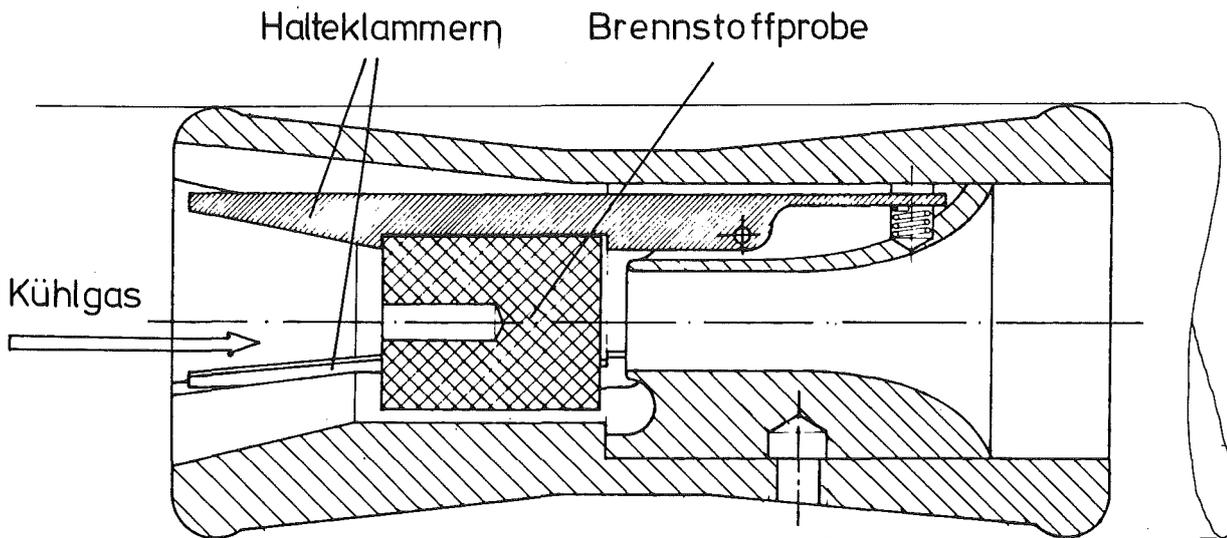


Abb. 11: Längsschnitt eines Rohrpostfahrzeugs mit eingesetzter Probe

zwischen Probe und Fahrzeug (vergl. Abb.11) und hält die Proben-
temperatur zwischen 40° und 50°C . Das Kühlgas wird vom Endstück aus
Al 99.9 in das rückführende Rohr (AlMg_3 $30^{\phi}\times 2$) geleitet, strömt
durch ein kombiniertes Halogen-Schwebstofffilter und gelangt dann
in das öllose Drehschiebergebläse (vergl. Schaltschema Abb.9)
mit einer Umwälzleistung von $25\text{ m}^3/\text{h}$. Das durch die Verdichtung
erwärmte Gas wird in zwei hintereinandergeschalteten Lamellen-
Kühlern auf etwa 16°C abgekühlt und tritt in der Be-/Entlade-
station (vergl. Abb.12) wieder in das Fahrrohr ein.

Die Rohrpostfahrzeuge haben die Aufgabe, die Kühlung der Proben
während der Bestrahlung zu ermöglichen und sie nach dem Aus-
fahren automatisch freizugeben. Bei thermischen Leistungen bis
zu 9W und Probenabmessungen von $15\text{ mm}^{\phi}\times 15\text{ mm}$ erhält man Wärme-
stromdichten von $1\text{W}/\text{cm}^2$, die nicht mehr ganz einfach zu erreichen
sind, wenn man nicht zu hohe Proben-temperaturen in Kauf nehmen
will. Experimente mit elektrisch beheizbaren Modellen zeigten,
daß die Proben-temperatur ohne Zwangskühlung auf 150 K über
Raumtemperatur ansteigt. Setzt man die Proben in einen Ringspalt
von 1 mm Breite, so genügt bei einem Gasdurchsatz von etwa $51/\text{s}$
eine Temperaturdifferenz von etwa 10 K , um die Leistung abzu-
führen. Versuche mit künstlichen Rauigkeiten an der Außenwand

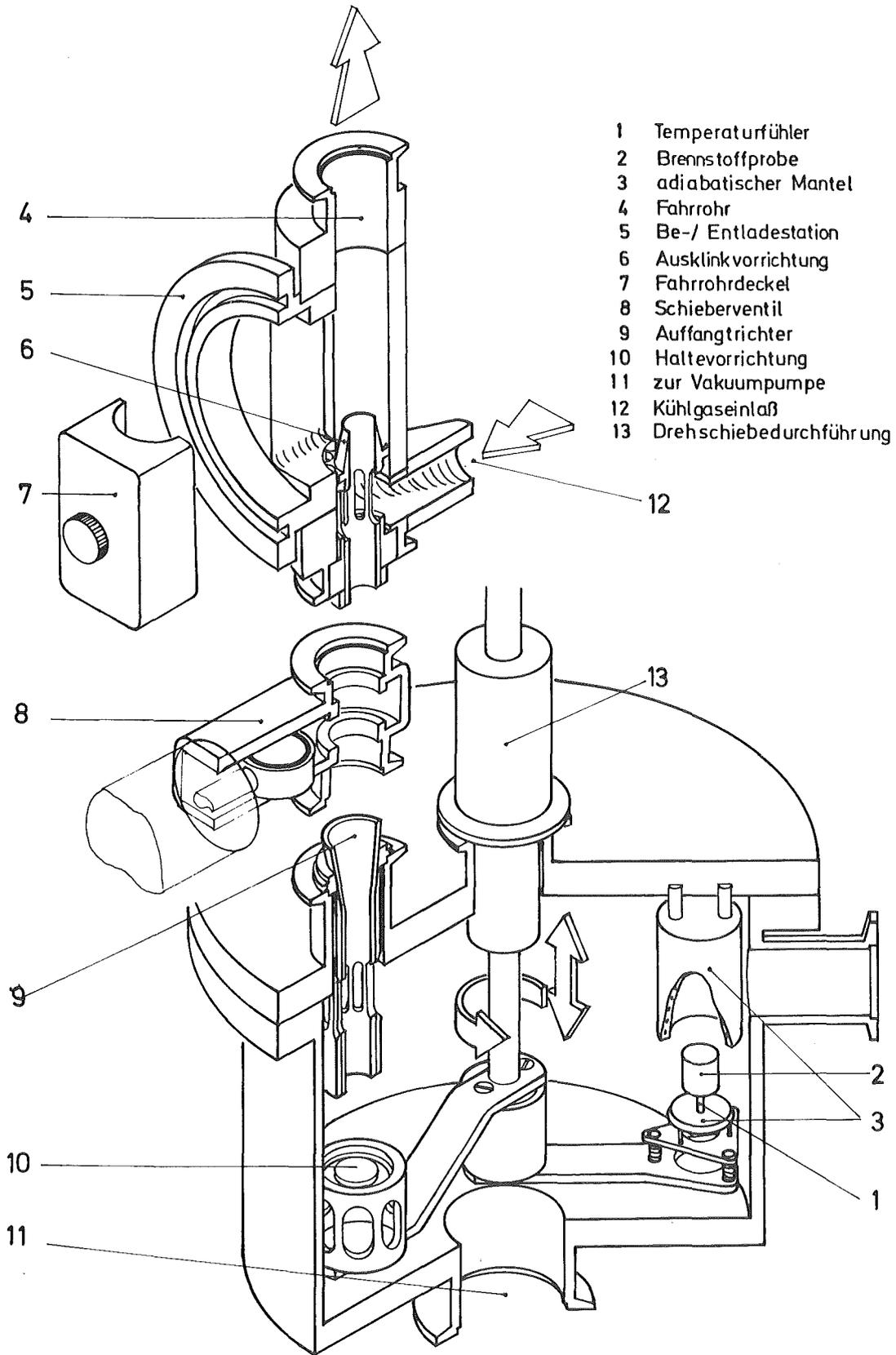


Abb.12: Kalorimeterrezipient mit Transportmechanik

des Ringspalts, die eine Verbesserung des Wärmeübergangs bewirken sollten (radiale bzw. spiralförmige Rippen), zeigten, daß der gegenüber einem glatten Ringspalt erreichbare Gewinn den Fertigungsaufwand nicht lohnt. In Abb.11 ist ein Fahrzeug mit einer eingesetzten Probe von 15 mm Durchmesser dargestellt.

Der äußere Durchmesser der Laufflächen beträgt 30 mm, so daß auch im gekrümmten Teil des Fahrrohrs (31 mm Innendurchmesser) ein Hängenbleiben des Fahrzeugs ausgeschlossen werden kann. Die Proben werden von drei um 120° versetzten Klammern durch Federkraft zentriert in einer Bohrung gehalten, deren Durchmesser um 2 mm größer ist als der der jeweiligen Probe. Um den Wärmeübergang zu verbessern, wurde die Abluftöffnung so geführt, daß auch die hintere Stirnfläche der Proben noch angeströmt wird. Um die Aktivierung durch Neutronen möglichst niedrig zu halten, wurden die Körper aus Al 99.9 und die Klammern aus Titan gefertigt. Beim Ausfahren werden die Klammern durch eine gefedert gelagerte konische Ausklinkvorrichtung (vergl. Nr.6 in Abb.12) auseinandergedrückt und geben die Probe frei.

Beim Beladen wird das Fahrzeug in den konischen Kanal (unten 30 mm \varnothing , aber Fahrrohrdurchmesser 31 mm) der Be-/Entladestation auf die Ausklinkvorrichtung gesetzt und der Deckel (Nr.7 in Abb.12) geschlossen. Zum Einfahren wird das Kühlgebläse eingeschaltet und Ventil V1 (Nennweite 20 mm) sowie zunächst Ventil V2 (mit ebenfalls 20 mm NW) für eine Sekunde geöffnet. Nach dieser Zeit hat das Fahrzeug den Anstieg aus der vertikalen Startposition ins horizontale Fahrrohr ausgeführt. Um eine zu hohe Aufschlaggeschwindigkeit zu vermeiden, wird der Durchsatz 5 Sekunden lang durch Umschalten auf V2a (mit nur NW 2.5) gedrosselt. Nach dem sicheren Erreichen der Bestrahlungsposition wird der Durchsatz wieder erhöht (V2) um die Kühlung der Probe zu gewährleisten.

Zum Ausfahren werden zunächst die Ventile V1 und V2 geschlossen und das Kühlgebläse ausgeschaltet. Dann wird das pneumatische Schieberventil (NW 25, Nr.8 in Abb.12, bzw. V4 in Abb.9) geöffnet

und das Fahrrohr durch die anlaufende Vakuumpumpe evakuiert. Um einen definierten Zeitpunkt für das Ende der Bestrahlung zu erhalten und ein Stehenbleiben des Fahrzeugs in der Etage wegen zu geringen Durchsatzes zu verhindern, war es nötig, das Ventil V3 zum Pufferbehälter (50 l bei 1.5 bar) mit 5 Sekunden Verzögerung zu öffnen.

Nach dem Ausklinken fällt die Probe frei durch den geöffneten Schieber in den Zentriertrichter (Nr.9 in Abb.12). Wenn sie die dort angebrachte Lichtschranke passiert hat, wird der Schieber geschlossen und der Rezipient, in dem sich das Kalorimeter befindet, durch die weiterlaufende Pumpe evakuiert, um die Wärmeleitfähigkeit des Gases zu reduzieren. Die Probe wird von der durch Federkraft an den unteren Trichterrand gedrückten Halteplatte (in Abb.12 in der unteren Stellung dargestellt) aufgefangen und durch einen elektromagnetisch betätigten Stift festgehalten. Dann wird die Haltevorrichtung abgesenkt, und der Temperaturfühler durch Schwenken des Arms um 120° in die Position unter der Probe gebracht. Die Probe ist mit einer axialen Sackbohrung von 2.5 mm Durchmesser versehen, die nach unten weist. Durch Anheben des Arms wird der Temperaturfühler in die Bohrung eingeführt und übernimmt die Probe nach Abschalten des Haltemagnets. Nach neuerlichem Absenken und Zurückschwenken befindet sich die Probe in der in Abb.12 gezeigten Position. Nach Anheben des Arms befindet sich die Probe in der Meßposition im adiabatischen Mantel. Durch den seitlichen Flansch, der mit einem dünnen Aluminiumfenster verschlossen ist, wird ein γ -Strahl durch die umgebende Abschirmung zum γ -Energistromdetektor geführt. Ein- und Ausfahrt können entweder durch eine vollautomatische Steuerung oder wahlweise durch manuelles Auslösen der einzelnen Schritte über Schalter ausgeführt werden. Die Funktionen sind so verriegelt, daß eine mechanische Beschädigung der Proben ausgeschlossen ist.

Der gesamte Ausfahrvorgang dauert zwischen Verlassen der Bestrahlungsposition und Erreichen der Meßposition je nach Masse der Probe und Gasdruck im Vorratsbehälter konstruktionsbedingt (der Reaktor-

betreiber genehmigte aus Sicherheitsgründen nur einen Überdruck von 0.3 bar im Pufferbehälter) 6s bis 10s, so daß die geplante Messung der Nachzerfallsleistung ab 10s nicht realisiert werden konnte.

3.3.2 Sicherheitsmaßnahmen

Wie schon im vorausgegangenen Kapitel erwähnt, ist die Rohrpost als geschlossener Kreislauf ausgelegt. Der Einsatz im Reaktorblock ist mit Metalledichtungen versehen und weist eine Heliumleckrate unter 10^{-5} mbar·l/s auf. Die äußeren Komponenten, die nicht dem Strahlungsfeld ausgesetzt sind, wurden mit üblichen Kleinflaschen mit Schnurringdichtungen verbunden. Um im Fall einer undichten Probe die Kontamination der Anlage klein zu halten, wurde ein kombiniertes Halogen-(dh. Jod-) und Schwebstofffilter in den Kreislauf eingebaut, das während der Bestrahlung auf Kontamination überwacht wird. Da am Ort des Filters eine veränderliche γ -Dosisleistung von bis zu 20 mrem/h herrschte, die von Nachbarexperimenten verursacht wurde, mußte das Überwachungssystem mit 2 NaJ-Detektoren ausgerüstet werden, mit denen es möglich war, den Untergrund und seine Änderungen zu kompensieren.

Da bei einem Ausfall der Kühlung die Temperatur der Proben auf Werte angestiegen wäre (140° - 170° C), für die das Kalorimeter nicht ausgelegt ist, wurde durch ein in der Bestrahlungsposition mit der Probe in Wärmekontakt stehendes Thermoelement die Proben-temperatur kontrolliert.

Die Zählrate des Kontaminationsmonitors sowie die Proben-temperatur wurden vom Kleinrechner überwacht, der bei Grenzwertüberschreitung ein spezielles Notausfahrtprogramm der Rohrpoststeuerung auslöst, bei dem die Probe auf der Halteplatte belassen und die Vakuumpumpe abgeschaltet wird.

Um bei einer Zerstörung der Probe während des Ausfahrtvorgangs, dh. bei laufender Vakuumpumpe, eine Freisetzung von radioaktiven Stoffen und speziell von Jod zu verhindern, wurde in die Abgasleitung

der Pumpe ein Ölnebelabscheider, ein Aktivkohlefilter und ein Halogenfilter eingebaut. Das Gas wird in die Abluftanlage des FR2 abgegeben.

Zum Ausschleusen werden die Proben über ein Tischchen geschwenkt und durch Absenken des Temperaturfühlers auf diesem abgesetzt. Das Tischchen ist an einem Vierkantstab befestigt, der horizontal durch einen Kleinflansch mit angesetztem Schieberventil NW20 verschoben werden kann. Über der Entladeöffnung kann der Stab um seine Längsachse gedreht werden, worauf die Probe über den etwas hochgezogenen Rand des Tischchens kippt und durch einen Zentriertrichter fällt, an dem durch einen Schnurring gegen die Atmosphäre abgedichtet eine Hülse aus weichgeglühtem Kupferrohr angeschraubt ist. Das untere Ende der 20 cm langen Hülse ist mit einem vakuumdichten Deckel verschlossen und ragt in einen massiven Abschirmbehälter aus Blei. Durch Abquetschen der Hülse mit einem Bolzenschneider, dessen Schneiden verrundet sind, wird die Kupferwandung kalt verschweißt, so daß für den Abtransport ein "umschlossener radioaktiver Stoff" im Sinne der Strahlenschutzverordnung vorliegt.

Fahrrohr sowie Rezipient und Ausschleusevorrichtung wurden mit einer Bleiabschirmung von 20 cm Dicke umgeben, in die an der Stelle der Be-/Entladestation der Rohrpost sowie an der Entladeposition der Probe zur einfacheren Handhabung Stopfen eingelassen waren. Während der Bestrahlungen und der Messungen war die Bleiabschirmung zusätzlich mit einer Lage von 30 cm Borparaffin umgeben um die verzögerten Neutronen (Quellstärke max. $3 \cdot 10^9 \text{ s}^{-1}$) abzuschirmen.

Die primäre Sicherheitsmaßnahme zur Vermeidung der Freisetzung von radioaktiven Stoffen aus den Proben war deren Hülle, auf die im folgenden Abschnitt eingegangen wird.

3.4 Brennstoffproben

Material und Abmessungen

Wie einleitend erwähnt, sollten die Messungen an Brennstoffproben durchgeführt werden, die es gestatten, die Ergebnisse auf einen Leichtwasserreaktor-Brennstab zu übertragen.

Der Brennstoff liegt in einem solchen Brennstab in Form von gesintertem UO_2 der Dichte $10.2-10.3 \text{ g/cm}^3$ mit einer Anreicherung an ^{235}U zwischen etwa 2% und 4% und Durchmessern zwischen etwa 8 mm und 14 mm vor.

Berechnet man für einen Brennstab die Wärmequellenverteilung aufgrund der radioaktiven Zerfälle der Spaltprodukte, so zeigt es sich, daß eine homogene Spaltproduktkonzentration zu einem maximalen Wert entlang der Stabmitte führt, der nach außen hin stetig abnimmt. Ursache dafür ist die relativ hohe Entkommwahrscheinlichkeit für γ -Strahlen aus den Randschichten. Da bei der hier beschriebenen Methode die Temperatur etwa im Mittelpunkt der Probe gemessen wird, ist eine möglichst homogene Wärmequellenverteilung wünschenswert, wenn man wegen des schlechten Wärmeleitvermögens des keramischen Brennstoffs bei kurzen Abklingzeiten größere Unterschiede zwischen Meßwert und Mittelwert der Proben-temperatur vermeiden will. Eine näherungsweise homogene Wärmequellenverteilung läßt sich durch eine höhere Anreicherung erreichen, die aufgrund der Selbstabschirmung zu einer Erhöhung der Spaltproduktkonzentration in den äußeren Schichten der Proben führt. Da sich dabei der Gesamtbetrag der absorbierten Energie fast nicht ändert (1% für Σ zwischen $0.4-1.7 \text{ cm}^{-1}$) und somit die Übertragbarkeit auf LWR-Verhältnisse erhalten bleibt, wurde vorhandenes Material mit 6.66% ^{235}U verwendet.

Außerdem wurden einige Proben aus Uran-Metall vorgesehen, das sowohl durch seine höhere Dichte und damit bessere Absorption der radioaktiven Strahlung sowie durch seine im Vergleich zu UO_2 um den Faktor 12 höhere Wärmeleitfähigkeit meßtechnische Vorteile bietet. Dabei wurde ebenfalls auf vorhandenes Material

zurückgegriffen, das eine Anreicherung von 1.64% ^{235}U aufwies.

Insgesamt standen folgende Proben zur Verfügung:

Je 10 UO_2 -Proben der Durchmesser 8 mm, 12 mm und 15 mm und der Dichte 10.41 g/cm^3 . Diese wurde so hoch gewählt, weil dann geschlossene Porosität vorliegt, dh. die beim Sinterprozeß aus UO_2 -Pulver in der Keramik eingeschlossenen Gasblasen stehen nicht miteinander in Verbindung, so daß die Diffusion von Spaltprodukten unterbunden wird. Außerdem standen jeweils 3 Metallproben gleicher Abmessungen zur Verfügung. Die Proben waren jeweils 15 mm lang und hatten eine axiale Bohrung von 2.5 mm Durchmesser und 8 mm Tiefe zur Aufnahme des Temperaturfühlers.

Umhüllung der Proben

Eine gasdichte Umhüllung der Proben ist notwendig, um den Austritt von Spaltprodukten zu verhindern.

Unter den Bedingungen der hier beschriebenen Experimente, bei denen Proben ohne offene Porosität und bei niedrigen Temperaturen bestrahlt werden, erfolgt die Freisetzung von Spaltprodukten allein aufgrund ihrer kinetischen Energie, die sie beim Spaltprozeß erhalten. Die Reichweite beträgt etwa $6 \mu\text{m}$ im U-Metall und $9 \mu\text{m}$ im UO_2 . Wegen der im Vergleich dazu großen Abmessungen der Proben würden maximal einige Promille der Aktivität freigesetzt. Dies wäre angesichts der übrigen Fehlerquellen von der Meßtechnik her vertretbar, würde aber bei Gesamtaktivitäten von einigen 10 Ci doch zu einer unzulässigen Kontamination der Rohrpostanlage und möglicherweise zur Freisetzung von Radioaktivität führen.

Von der Meßtechnik her müssen folgende Forderungen an die Umhüllung gestellt werden: Die Hülle muß eng an den Proben anliegen, um eine gute Kühlbarkeit während der Bestrahlung zu gewährleisten. Die Wärmekapazität C_H der Hülle sollte klein sein im Vergleich zu der der Proben, um den Meßeffect $\Delta T_P / (C_P + C_H)$ nicht zu sehr zu reduzieren. Angesichts der kleinen Abmessungen der Proben sowie der komplizierten Geometrie der Sackbohrung schien eine

chemische Beschichtung der Proben am besten geeignet. Da der Hersteller der Proben diese Technologie nicht beherrschte und Spezialfirmen keine Umgangsgenehmigung für Kernbrennstoffe vorweisen konnten, wurden die Proben vom Autor im INR beschichtet.

Bei der Auswahl der Beschichtung waren zwei Gesichtspunkte zu beachten:

- Es mußte zunächst eine Hülle von einigen $10\ \mu\text{m}$ Dicke auf das keramische UO_2 und insbesondere auch in der Sackbohrung aufgebracht werden, um das Austreten von Spaltprodukten aufgrund ihrer kinetischen Energie bei der Spaltung zu verhindern. (Die Reichweite der Spaltprodukte in UO_2 beträgt etwa $9\ \mu\text{m}$, was zu einer Freisetzung von einigen 0.1% aus dem Testkörper führen würde)
- Sodann sollte eine Schicht aufgebracht werden, deren Werkstoffeigenschaften sicherstellen, daß bei mechanischer Gewaltanwendung die keramischen Proben nicht in Stücke zerfallen und dadurch u.U. das Rohrpostfahrzeug blockieren.

Wegen seiner guten mechanischen Eigenschaften und seiner problemlosen galvanischen Verarbeitung wurde Nickel als Hüllmaterial ausgesucht.

Die erste, etwa $50\ \mu\text{m}$ starke Schicht wurde chemisch abgeschieden. Dazu wurde das chemische Nickelbad "Enplate Ni-415" der Fa. Kampschulte in Solingen benutzt.

In chemischen Metallisierungsbädern wird, im Gegensatz zu galvanischen Verfahren, das abzuscheidende Metallion statt durch die Kathode durch ein Reduktionsmittel im Bad reduziert. Um zu verhindern, daß es zum unkontrollierten Ausfällen des Metalls kommt, muß das Redoxpotential über den pH-Wert des Bades kontrolliert werden und die Konzentration an freien Metallionen durch Komplexbildner gepuffert werden. Um eine gezielte Beschichtung zu erreichen, muß der zu metallisierende Körper mit Ionen eines edleren Metalls "aktiviert" werden, an denen sich durch Ladungsaustausch die ersten Keime des eigentlichen Schichtmetalls bilden.

Sorgt man durch entsprechende Wahl des Arbeitspunktes (Temperatur, pH-Wert) für eine langsame Abscheidung (ca. 10 $\mu\text{m}/\text{h}$), so werden die reduzierten Metallatome durch Diffusion auch in Winkel und Ecken transportiert und man erhält selbst bei kompliziert gestalteten Körpern eine gleichmäßige Schichtdicke.

Während die Metallproben direkt chemisch vernickelt werden konnten, wurden die Oxidproben zunächst chemisch verkupfert. Im einzelnen wurde, ähnlich dem Vorgehen beim Metallisieren von Kunststoffen /17/, wie folgt verfahren:

- (1) 1 min Ätzen in 90% H_2SO_4 , um die beim Schleifen der Proben zerstörten Mikrokristalle des Sintermaterials zu entfernen
- (2) Spülen in H_2O
- (3) Sensibilisieren in SnCl_2 (20 g/l) + HCl (50 ml/l)
- (4) Sorgfältig spülen, neuer Behälter für Proben
- (5) Aktivieren mit AgNO_3 (2 g/l) + NH_3 (verd.), bis sich der braune Niederschlag löst.
- (6) wie (4)
- (7) 5 min stromlos Verkupfern mit Formaldehyd als Reduktionsmittel (das Bad ist sehr instabil und wurde nach einer Rezeptur aus Ref. /17/ erst vor dem Gebrauch angesetzt)
- (8) Spülen der verkupferten Proben und Abreiben der Warzen auf Schleifpapier Körnung 800
- (9) Passivieren der Oberfläche in 5% HCl + 5% H_2SO_4
- (10) 4 h Vernickeln der Proben, wobei gelegentlich mit einem dünnen Schlauch die H_2 -Blasen aus den Sackbohrungen herausgeblasen werden, um die Metall-Konzentration nicht zu sehr absinken zu lassen. Die Vernickelung der verkupferten Proben erfolgte spontan beim Einbringen ins Bad.

Nach dieser Prozedur waren die Proben mit einer mattglänzenden Schicht von etwa 50µm Dicke aus einer sehr harten und spröden Ni-NiPO₃-Legierung (ca. 7% P) beschichtet. Untersuchungen unter einem Metallmikroskop zeigten, daß auch die Bohrlöcher voll beschichtet waren. Wie sich später bei den Bestrahlungsexperimenten zeigte, war die so erhaltene Beschichtung dicht. Um die Oxidproben gegen mechanische Beschädigung zu schützen und eine blanke Oberfläche mit geringer Emissivität (geringer Energieaustausch durch Strahlung) zu erzielen, wurden die Proben anschließend in einem galvanischen Glanznickelbad (DeWeKa-Uniplat der oben erwähnten Firma) mit einer hochglänzenden, sehr duktilen Nickelschicht von etwa 0.3 mm Dicke überzogen. Dabei waren die Proben mit den Sackbohrungen auf die Kathode gestülpt, da in den elektrisch abgeschirmten Löchern keine galvanische Abscheidung möglich ist.

Bei der Beschichtung der Metallproben wurde ähnlich verfahren, wobei jedoch auf eine Verkupferung verzichtet wurde. Obwohl die Metallflächen vor der chemischen Vernickelung (auf die wegen der Bohrungen nicht verzichtet werden konnte) je zweimal in HNO₃ und in einer Zinkatbeize behandelt worden waren, um die die Haftfestigkeit störenden Oxidschichten zu entfernen, erwies es sich schließlich als günstig, die Proben nach dem Beizen noch mit einem Schleifpapier zu behandeln. Die Vernickelung wurde durch Berühren der Proben mit einem unedleren Metall (Zink) ausgelöst.

Um den Einfluß vor allem der stärkeren Absorption von β-Strahlen in einer dickeren Umhüllung zu untersuchen, wurden einige Proben mit 12 mm Durchmesser nach dem chemischen Vernickeln mittels Weichlot in eine Eisenkapsel von 0.7 mm Wandstärke gelötet und diese anschließend galvanisch vernickelt. Dadurch ergab sich eine Hüllwandstärke von rund 0.8 mm wie sie für LWR-Brennstäbe typisch ist.

4. Messungen und Auswertung

4.1 Bestrahlung der Brennstoffproben und Messung des adiabatischen Temperaturanstiegs

Vor einer Bestrahlung wurde die Kältmaschine im Kühlkreislauf in Betrieb gesetzt, der Rohrpostkreislauf evakuiert, mit N_2 gespült und mit 1 bar N_2 gefüllt. Der Druckspeicher (vergl. Abb.9) wurde mit 1.3 bar N_2 gefüllt.

Die axiale Sackbohrung der Probe wurde mittels einer Kanüle mit etwa $2-5 \text{ mm}^3$ einer wärmeleitenden Silikonpaste zur Verbesserung des Wärmekontakts mit dem Temperaturfühler gefüllt. Dann wurde die Probe in das Rohrpostfahrzeug eingeklinkt und dieses vorsichtig auf den Konus in der Be-/Entladestation (vergl. Abb.12 Nr.6) gesetzt. Nach dem Schließen des Rohrpostkreislaufs wurde die Blei- bzw. Borparaffinabschirmung, die zum Beladen geöffnet werden mußte, wieder geschlossen und der Korridor zwischen Kalorimeter und γ -Energiestromdetektor mit einer Absperrung versehen.

Anschließend wurde das Meßprogramm des Rechners gestartet und als Sollwert für die Temperatur, auf die der adiabatische Mantel des Kalorimeters vorgeheizt werden sollte, die erwartete Austrittstemperatur der Probe eingegeben.

Nachdem entsprechend den Auflagen der Betriebsgenehmigung für die Versuchsanlage ein Angestellter des Strahlenschutzes an der Absperrung mit Instrumenten zur Messung der γ - und Neutronendosisleistung Stellung bezogen hatte, und die Schaltwarte informiert worden war, wurde der Transport der Probe in die Bestrahlungsposition durch Drücken der Taste "Einfahren" eingeleitet. Als Beginn der Bestrahlung wurde der Zeitpunkt festgelegt, in dem das Fahrzeug auf die gefederte Abbremsplatte der Bestrahlungsposition auftraf.

Das Aufschlaggeräusch wurde durch eine innerhalb der Bleiabschirmung angebrachte Gegensprechanlage zum Steuerpult übertragen, die zur akustischen Überwachung der Transportfunktionen diente.

Die Bestrahlungszeit t_B wurde von Hand mit einer Stoppuhr gemessen. Während der Bestrahlung wurde das Anzeigeeinstrument des Kontaminationsmonitors überwacht, um im Falle eines Anstiegs der Zählrate, die auf eine Undichtigkeit der Probenhülle hingewiesen hätte (was letztlich bei keinem der Experimente auftrat), die Bestrahlung sofort zu unterbrechen.

Als Ende der Bestrahlungszeit wurde der Zeitpunkt festgelegt, in dem das Ventil V3 (vergl. Abb.9) zwischen Gasspeicher und dem schon teilweise evakuierten Fahrrohr öffnete, was genau 5 s nach Drücken der Taste "Ausfahren" der Rohrpoststeuerung im Automatikbetrieb erfolgte. An der Abschirmmauer (beam-stop), die in der Verlängerung der Achse des aus der Abschirmung herausgezogenen γ -Strahlenbündels hinter dem γ -Detektor aufgebaut worden war, wurden unmittelbar nach dem Eintreffen der Probe im Kalorimeter in etwa 4.5 m Entfernung bis zu 300 mrem/h an γ - und bis zu 30 mrem/h an Neutronendosisleistung (verzögerte Neutronen) gemessen.

Wie schon erwähnt, durfte der Druck im Gasspeicher nicht über 1.3 bar erhöht werden, was dazu führte, daß Ausfahrzeiten einschließlich des Transports der Probe in die Meßposition im Kalorimeter unter 10s nicht realisiert werden konnten. Sie lagen in günstigen Fällen bei etwa 12s, so daß die Messung der Nachzerfallsleistung nach etwa 15s begonnen werden konnte.

Das Meßprogramm war so aufgebaut, daß ein signifikanter Anstieg der Zählrate des γ -Detektors als Signal für "Probe in Meßposition" interpretiert wurde, worauf die vorher eingegebene Solltemperatur des Kalorimetermantels durch den jeweils aktuellen Meßwert der Probentemperatur als Führungsgröße der Temperatursteuerung ersetzt wurde. Als Meßdaten wurden direkt die anhand der Eichkurven aus den gemessenen Thermistorwiderständen berechneten Temperaturen von Probe und adiabatischem Mantel sowie die über jeweils zwei Meßzeitintervalle von $\Delta t=1s$ summierten Zählraten des γ -Detektors in der Reihenfolge ihres Auftretens über die Lochstreifenstanze ausgegeben. Die Meßdatenausgabe wurde zum Zeitpunkt des Endes der Bestrahlung gestartet, so daß aus der laufenden Nummer des

Meßwertes direkt die Abklingzeit abgeleitet werden konnte.

Es wurden insgesamt 21 Bestrahlungen durchgeführt. Da die "kalten" Tests von Rohrpost und Transportmechanik nur mit Probenattrappen aus Kupfer durchgeführt worden waren, die wesentlich leichter als die U-Metall-Proben waren, gab es anfänglich Schwierigkeiten beim Start der Fahrzeuge zum Ein- bzw. Ausfahren. In einigen Fällen blieben die Fahrzeuge in der Etage des Fahrrohres (vergl. Abb.10 im Anhang) hängen, so daß sie nur durch manuelle Betätigung der Steuerung ausgefahren werden konnten. Nach einer Modifikation der Steuerung wurden schließlich insgesamt 13 Proben programmgemäß in das Kalorimeter transportiert, von denen 4 wegen einer zu hoch angesetzten "erwarteten Anfangstemperatur" nicht sinnvoll ausgemessen werden konnten, da es zu lange dauerte, bis sich der Kalorimetermantel im Vakuum soweit abgekühlt hatte, daß adiabatische Verhältnisse vorlagen.

Außerdem wurde ein Experiment durchgeführt, bei dem vorher der adiabatische Mantel ausgebaut worden war. Es diente dazu, den Anteil der in der immerhin 4 mm dicken Kupferwandung des Mantels absorbierten γ -Strahlung (etwa 10%) zu bestimmen. Somit wurden insgesamt 8 ungestörte Messungen an den 7 verschiedenen vorhandenen Probentypen durchgeführt.

Wegen der hohen Empfindlichkeit, die mit der Meßapparatur schließlich erreicht werden konnte, war es möglich, die Bestrahlungszeit von 2d, wie zuerst geplant, auf 200s zu reduzieren und gleichzeitig die Meßzeit von 1000s auf bis zu 5000s auszudehnen. So war es möglich, den gesamten Ablauf der Experimente direkt zu überwachen und die erzeugte Spaltproduktaktivität ganz wesentlich zu reduzieren. Der wichtigste Aspekt der kurzen Bestrahlungszeit ergibt sich jedoch im Hinblick auf die Zielsetzung der vorliegenden Arbeit. Es wurden im wesentlichen die Spaltprodukte aufgebaut, die in dem in Frage kommenden Zeitbereich den Hauptbeitrag liefern. Der Beitrag der langlebigen Isotope, der sich auf das Meßsignal wie eine hohe quasistationäre Untergrundkomponente ausgewirkt hätte, wurde dadurch stark reduziert. Er ist gut bekannt und kann rechnerisch einfach berücksichtigt werden.

4.2 Messung der entweichenden γ -Strahlung

Der Energiestromdetektor war in 4m Entfernung vom Kalorimeter vor einer Abschirmmauer aufgebaut. Um die γ -Strahlung möglichst ungeschwächt messen zu können, war der Rezipient mit einem Aluminiumfenster von 0.3 mm Dicke versehen. Ein Kollimator mit einer Öffnung von 25 mm Durchmesser (20 cm Blei und 30 cm Borparaffin) wurde benutzt, um den aus der Abschirmung herausgeführten Strahl möglichst eng auszublenzen.

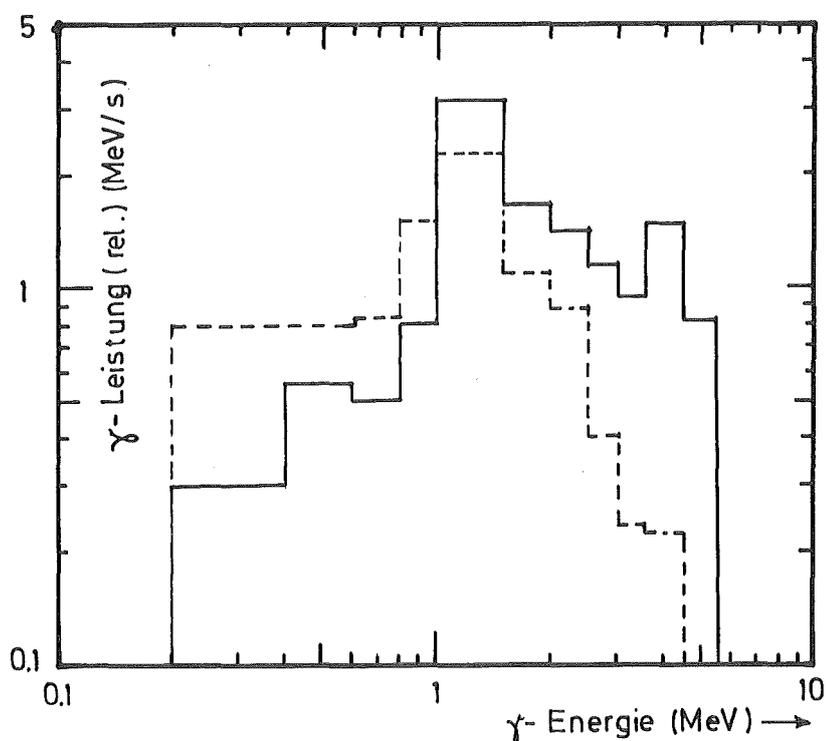


Abb.13: Spektrale Verteilung der von Spaltprodukten emittierten γ -Leistung (100 s (—) bzw. 1000 s (---) nach Ende der Bestrahlung (aus Ref. /20/).

Zur Messung der Energieabhängigkeit der Empfindlichkeit des Energiestromdetektors wurden γ -Eichpräparate mit Quellstärken von 1 bis 10 μ Ci verwendet. Wegen der geringen Empfindlichkeit mußten die Quellen etwa 5 cm vor dem Konverter aufgebaut werden, um ein mit der Untergrundzählrate von 0.6 s^{-1} vergleichbares Signal zu erhalten. Zur Eichung der Empfindlichkeit des Detektors in der Meßgeometrie (Quelle in 4.0 m Entfernung) wurde eine ^{60}Co -Quelle, deren Gammaenergie (1,117 MeV und 1,332 MeV) in den Bereich der maximalen Energie-

emission der Spaltprodukte (vergl. Abb.13) fallen, sowie ein ^{137}Cs -Präparat (0.662 MeV) benutzt. Die Quellstärken wurden mit dem im folgenden Abschnitt beschriebenen Detektor zu $288 \mu\text{Ci} \pm 1,5\%$ bzw. $1.09 \text{ mCi} \pm 1.5\%$ gemessen. Dabei zeigte es sich, daß in dieser Meßgeometrie das für einen idealen Detektor konstante Verhältnis von Empfindlichkeit zu Energie $\epsilon(E)/E$ eine noch stärkere Energieabhängigkeit zeigt als die ursprünglich bei geringem Abstand zwischen Quelle und Detektor gemessene Kennlinie ((1) in Abb.14). Da keine geeigneten Quellen verfügbar waren, um den Verlauf der $\epsilon(E)$ -Kennlinie bei höheren γ -Energien zu messen, wurde er wie folgt abgeschätzt: Aufgrund des Nachweismechanismus des Detektors (vergl. Abs. 3.2.1) darf man davon ausgehen, daß der Verlauf der Energieabhängigkeit des totalen γ -Wechselwirkungskoeffizienten $\mu(E)$ ((2) in Abb.14) den Grenzwert für eine extrem nicht lineare Kennlinie darstellt. Wegen der stärkeren Absorption der niederenergetischen γ -Quanten und der größeren Reichweite der Elektronen aus Wechselwirkungen mit höherenergetischen γ -Quanten ist es vielmehr wahrscheinlich, daß die Kennlinie zwischen dieser Grenzkurve und dem linearen Verlauf liegt. Wie in Abs. 4.5 noch näher erläutert wird, wurde die in Abb.14 mit (3) bezeichnete Kurve benutzt, um anhand von insgesamt sechs für verschiedene Abklingzeiten zwischen 20s und 2400s gültige γ -Energiespektren, die aus Ref. /20/ entnommen wurden, einen zeitabhängigen Faktor (max. 1.2) zu berechnen, mit dem die Nichtlinearität der Kennlinie des γ -Energiestromdetektors korrigiert wurde.

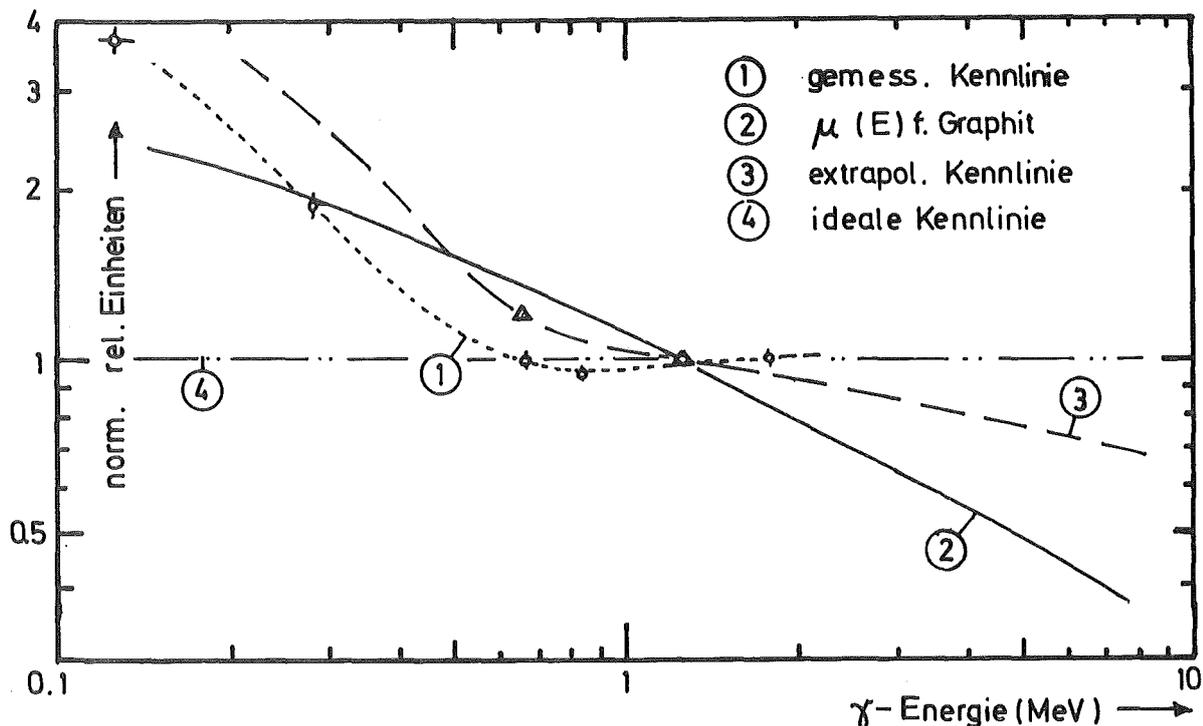


Abb.14: Energieabhängigkeit der Detektorkennlinie $\epsilon(E)/E$

Es kann angenommen werden, daß die Ursache für die Nichtlinearität der Kennlinie nicht in der Anordnung zweier Photoelektronenvervielfacher in Koinzidenzschaltung, sondern in zwei geometrischen Eigenschaften des Detektors zu suchen ist, in denen er vom Phototyp nach Moxon und Rae abweicht. Dies ist einmal die geänderte Entfernung Quelle-Detektor und zum anderen der kleinere Durchmesser des Szintillators. Beide Abweichungen können das Verhältnis von im Konverter erzeugten zu im Szintillator nachgewiesenen Elektronen in Abhängigkeit von deren Anfangsenergie beeinflussen.

Zur Messung der Untergrundzählrate, die von der Streustrahlung der umgebenden Experimente herrührte, wurde das Detektorsignal während der Vorbereitungen zur Bestrahlung etwa 30 min lang über einen Drucker ausgegeben. Dabei zeigte sich, daß sich der γ -Untergrund kurzfristig um einen Faktor 2-3 ändern konnte, was letztlich zu einer erheblichen Einschränkung der Meßgenauigkeit zu langen Abklingzeiten hin führte.

Die maximalen Zählraten lagen bei rund $1.5 \cdot 10^4 \text{ s}^{-1}$, die Untergrundzählrate schwankte zwischen 10 und 40 s^{-1} .

4.3 Messung der Wärmekapazität der Brennstoffproben

Um aus dem gemessenen adiabatischen Temperaturanstieg die Nachzerfallsleistung zu berechnen, benötigt man die Wärmekapazität der Proben. Sie wurde gemessen, indem das Kalorimeter in der in Abs. 3.1.3.2 beschriebenen Weise als Aufheizkalorimeter betrieben wurde.

Wie schon in Abs. 3.1.1. erwähnt, sank bei Vakuumbetrieb und festgehaltener Temperatur T_M des adiabatischen Mantels die Temperatur T_P der Probe um bis zu $\Delta T_a = T_M - T_P = 0.2 \text{ K}$ ab. Ursache

dafür ist die konstruktionsbedingte Toleranz von ± 0.5 mm in der Positionierung des Deckels relativ zum fest montierten adiabatischen Mantel (vergl. Abb.1), die große Änderungen im Wärmekontakt zwischen den beiden Teilen zur Folge hatte. Während bei Atmosphärendruck die Wärmeleitung im Füllgas ausreichte, um die relativ höheren Verluste des Deckels auszugleichen, war dazu im Vakuumbetrieb eine gewisse Temperaturdifferenz nötig, die von der Position des Deckels relativ zum Mantel und von der Temperaturdifferenz zur Umgebung $T_M - T_W$ abhängig war.

Dies bedeutete mit anderen Worten, daß adiabatische Verhältnisse nicht bei $T_p = T_M$ sondern bei $T_p = T_M - \Delta T_a$ vorlagen. Um diese variable Temperaturabweichung ΔT_a bei der Auswertung berücksichtigen zu können, wurden vor der eigentlichen Messung der Wärmekapazität jeweils folgende zwei Messungen durchgeführt:

Zunächst wurde, meistens über Nacht, da sich im Vakuum der stationäre Zustand nur langsam einstellte, die Abweichung ΔT_a vom adiabatischen Zustand über einen Temperaturbereich hinweg gemessen, der den bei der Hauptmessung (des adiabatischen Temperaturanstiegs) überstrichenen Bereich einschloß. Dazu wurde der adiabatische Mantel jeweils auf verschiedenen Sollwerten gehalten und abgewartet, bis die Proben temperatur einen stationären Wert erreicht hatte. Dieser wurde als erreicht betrachtet, wenn die nach dem in Gl. (3.9) beschriebenen Verfahren mit einer Zeitkonstanten von 200s gemittelte Temperaturanstiegsrate $\overline{\Delta T_p / \Delta t} < 5 \cdot 10^{-6}$ K/s geworden war. Der Wert der Abweichung im interessierenden Temperaturbereich wurde dann aus einer numerischen Anpassung der so erhaltenen Meßwerte berechnet.

Um eine Änderung der Position des Deckels zu vermeiden, wurde diese sowie die folgende Messung jeweils im Anschluß an die Hauptmessung bei weiterlaufender Vakuumpumpe durchgeführt, sobald die Temperaturen von Probe und adiabatischem Mantel einige K unter den Anfangswert der Proben temperatur beim Ausfahren aus der Bestrahlungsposition gesunken war.

In der daran anschließenden Messung wurde die Wärmeübertragung zwischen Mantel und Probe unter Vakuumbedingungen gemessen, indem die Manteltemperatur um einen festen Betrag über der langsam ansteigenden Proben temperatur gehalten wurde.

Schließlich wurde die transiente Wärmeleitung während des Evakuierens für die folgenden beiden Fälle gemessen: Erstens für den Fall, daß die Manteltemperatur über der Proben temperatur lag ($T_M > T_P$), dh. die Heizung nicht benutzt wurde, und zweitens für den Fall $T_M < T_P$, bei dem dem Mantel Wärmeenergie zugeführt werden mußte, wobei durch Wärmetransport in den Meßleitungen des Thermistors die Wärmeverluste der Probe an die Umgebung reduziert wurden.

Bei den späteren Versuchen wurde dann als Führungsgröße für die Manteltemperatursteuerung der um etwa 0.2K erhöhte Meßwert der Proben temperatur benutzt. Dies hatte den Vorteil, daß die Verluste kompensiert bzw. leicht überkompensiert wurden, wodurch sich die nötige Korrektur der Meßwerte verringerte und außerdem das Kalorimeter in einem für die Steuerung und Messung günstigeren (höhere Temperaturdifferenzen pro Meßzeitintervall) Arbeitspunkt betrieben werden konnte. Die dann noch nötigen Korrekturen lagen unter 10^{-5} K pro Meßintervall, entsprechend einer Leistung von weniger als 10^{-4} W. Der Einfluß auf die Genauigkeit der Meßergebnisse wird in Abs. 4.5 diskutiert.

Danach wurde das Kalorimeter mit 1 bar N_2 belüftet und in der in Abs. 3.1.3.2. beschriebenen Weise die Wärmekapazität gemessen. Als Führungsgröße für die Steuerung der Temperatur T_M des adiabatischen Mantels wurde $T_P + 2.6$ K vorgegeben. Durch Wärmeleitung im N_2 vom wärmeren Mantel zur Probe steigt deren Temperatur mit einer Rate an, die proportional zur Temperaturdifferenz und umgekehrt proportional zur Wärmekapazität ist

$$\Delta T_P / \Delta t \sim \frac{T_M - T_P}{C_P} \quad (4.1)$$

Offensichtlich lieferte weder die Wärmestrahlung noch die Naturkonvektion einen meßbaren Beitrag zur Wärmestromdichte von rund $0.4 \text{ mWcm}^{-2}\text{K}^{-1}$, denn die auf die Wärmekapazität bezogene Temperaturanstiegsrate $\Delta T_P / \Delta t / C_P$ zeigte eine streng lineare Abhängigkeit von der Probenoberfläche bzw. der Temperaturdifferenz $T_M - T_P$. Eine Messung dauerte 2500 s und lieferte 1250 Wertepaare, wobei eine Temperaturspanne von etwa 8K durchfahren wurde. Diese war so gewählt, daß sie den bei der Hauptmessung überstrichenen Temperaturbereich etwa symmetrisch einschloß.

In einem letzten Schritt wurde schließlich die Brennstoffprobe durch eine Referenzprobe gleicher Abmessungen aus Kupfer ersetzt, deren Wärmekapazität C_R durch Eichmessungen (vergl. 3.1.3.2) genau bestimmt worden war. Mit dieser wurde unter Einhaltung der Randbedingungen die gleich Messung wie oben beschrieben wiederholt. Die gesuchte Wärmekapazität C_P der Probe berechnet sich dann einfach zu (R=Referenz)

$$C_P = \frac{\Delta T_R / \Delta t / (T_M - T_R)}{\Delta T_P / \Delta t / (T_M - T_P)} \cdot C_R \quad (4.2)$$

Damit waren alle kalorimetrischen Meßdaten bereitgestellt, die zur Auswertung benötigt wurden und es mußte, um eine Normierung der Nachzerfallsleistung auf die Spaltleistung zu erhalten, nur noch die Spaltrate bestimmt werden.

4.4. Messung der Spaltrate

Es ist üblich, die Nachzerfallsleistung entweder auf die vorher gefahrene thermische Leistung des Reaktors oder aber auf die Spaltrate zu normieren.

Da die Energieausbeute pro Kernspaltung nicht nur vom Spaltstoff, sondern auch von der übrigen Materialzusammensetzung des Reaktorkerns und damit vom Reaktortyp abhängt (unterschiedliche Einfanggammastrahlung durch Absorption der $\nu-1$ für die Aufrechterhaltung der Kettenreaktion nicht benötigten Spaltneutronen), ist nur die Normierung auf die Spaltrate eindeutig und soll hier angewandt werden.

Da im vorliegenden Fall sowohl die spezifische Spaltrate (etwa $S=10^{10} \text{ s}^{-1} \text{ g}^{-1}$) als auch die Bestrahlungszeit ($t_B=200\text{s}$) zu niedrig waren, um radiochemische Verfahren zur Spaltratenbestimmung einsetzen zu können, wurde auf die zerstörungsfreie Methode der γ -Spektrometrie der Spaltprodukte zurückgegriffen.

Das Meßprinzip beruht darauf, die Aktivität geeigneter Spaltprodukte (vergl. 4.3.3) durch Messung der Emissionsrate charakteristischer γ -Quanten zu bestimmen.

$$Z(E) = \epsilon(E) \cdot a_i(E) \cdot \int_{t_1}^{t_1+t_m} A_i(t) dt \quad (4.3)$$

Darin bedeuten:

- $Z(E)$: die Zahl der im Meßzeitintervall t_m registrierten γ -Quanten der Energie E
- $\epsilon(E)$: die totale Nachweiswahrscheinlichkeit für γ -Quanten der Energie E , d.h. die Wahrscheinlichkeit, daß ein in der Probe emittiertes Quant einen Zählimpuls auslöst
- $a_i(E)$: die Wahrscheinlichkeit, mit der bei einem Zerfall des Spaltproduktkerns i ein γ -Quant der Energie E emittiert wird
- $A_i(t)$: die Aktivität des Spaltprodukts in zur Zeit t nach Ende der Bestrahlung
- t_M : die Dauer der γ -Messung

Für den einfachsten Fall, wenn die Vorläuferkerne des betrachteten Spaltprodukts kurzlebig und damit zur Zeit t_1 , dem Beginn der γ -Messung, zerfallen sind, klingt $A_i(t)$ rein exponentiell mit der Zerfallskonstante λ_i ab, und man erhält für die Anfangsaktivität $A_i(0)$ bei Ende der Bestrahlung aus Gl.(4.3)

$$A_i(0) = Z(E) \cdot \frac{\lambda_i \cdot e^{\lambda_i \cdot t_1}}{\epsilon(E) \cdot a_i(E) \cdot (1 - e^{-\lambda_i \cdot t_M})} \quad (4.4)$$

Andererseits ist die Aktivität $A_i(0)$ nach einer Bestrahlung der Dauer t_B (s) bei der Spaltrate S und der kumulativen Spaltausbeute y_i des Spaltprodukts i

$$A_i(0) = S \cdot y_i (1 - e^{-\lambda_i \cdot t_B}) \quad (4.5)$$

Damit erhält man für die Spaltrate den Ausdruck

$$S = Z(E) \cdot \frac{\lambda_i}{\epsilon(E) \cdot a_i(E) \cdot y_i} \cdot \frac{e^{-\lambda_i \cdot t_1}}{(1 - e^{-\lambda_i \cdot t_B}) \cdot (1 - e^{-\lambda_i \cdot t_M})} \quad (4.6)$$

Um aus der Meßgröße Z die Spaltrate zu berechnen, muß neben den Kerndaten y, λ und $a(E)$ auch die Nachweiswahrscheinlichkeit $\epsilon(E)$ bekannt sein. ϵ setzt sich aus zwei Faktoren zusammen

$$\epsilon(E) = \epsilon_0 \cdot p_\gamma = p_1(R, E) \cdot \int_V p_2(r, z) \cdot p_3(r, z, E) dV \quad (4.7)$$

$\epsilon_0 = p_1(R, E)$ gibt die Wahrscheinlichkeit an, mit der ein γ -Quant, daß auf der Achse (des zylinderförmigen) Detektors in der Entfernung R von der Detektoroberfläche emittiert wird, im "full energy peak", d.h. mit der Amplitude registriert wird, die der vollen γ -Energie E entspricht.

p_γ ist eine über das Probenvolumen gemittelte Entkommwahrscheinlichkeit und setzt sich aus zwei Anteilen zusammen:

$p_2(r, z)$ ist die Wahrscheinlichkeit, mit der im Volumenelement $(dr, dz, rd\phi)$ ein Spaltprodukt erzeugt wird

$p_3(r, z, E)$ ist die Wahrscheinlichkeit, mit der aus dem selben Volumenelement ein γ -Quant der Energie E ohne Wechselwirkung in der Probe, d.h. mit seiner Anfangsenergie in die Mittelebene senkrecht zur Probenachse (entsprechend der Meßgeometrie) entweicht.

p_1 wurde durch Eichmessungen bestimmt, die im folgenden Abschnitt beschrieben werden. Das Integral in Gl.(4.7) wurde für die benutzten γ -Energien mit einem Rechenprogramm bestimmt, das in Abs. 4.3.2 erläutert wird.

4.4.1 Absoluteichung des Ge-Li-Detektors

Zum Nachweis der Spaltprodukt- γ -Strahlen wurde ein hochauflösender Ge-Li-Halbleiterdetektor der Fa. Valvo mit einem empfindlichen Volumen von 85 cm^3 um einem Energieauflösungsvermögen von 2.2 keV (FWHM) für die ^{60}Co -Linie von 1132 keV benutzt. Als γ -Eichpräparate standen ein Amersham-Quellensatz mit Aktivitäten zwischen 1 und $10 \text{ }\mu\text{Ci}$ und 1.9% bis 5% Genauigkeit sowie ein IAEA-Präparat (in Tabelle 4 mit (1) bzw. (2) gekennzeichnet) mit einer Mischung aus vier Isotopen mit Aktivitäten um $10 \text{ }\mu\text{Ci}$ und Genauigkeiten zwischen 0.6% und 1.2% zur Verfügung. Die Halbwertszeiten λ_i und die Ausbeute $a_i(E)$ pro Zerfall wurden den Datenblättern bzw. dem Tabellenwerk von Erdtmann /18/ entnommen.

Die Eichung wurde für eine Quellposition auf der verlängerten Detektorachse in einer Entfernung von 500 mm vom γ -Fenster des Kryostaten mit einem Vielkanalanalysator (1024 Kanäle) der Fa. Nucl. Data durchgeführt. Die Daten der verwendeten Eichquellen sowie die gemessenen Empfindlichkeiten sind in der folgenden Tabelle zusammengesetzt:

Isotop	E_γ (keV)	λ (s^{-1})	$a(E)$	p_1 (500 mm) (10^{-4})	$\Delta p_1/p_1$
^{133}Ba (2)	276.3	$2.053 \cdot 10^{-9}$	0.073	2.169	2.0%
	302.7		0.1862	2.084	1.35%
	355.8		0.6227	1.747	1.21%
	383.7		0.0884	1.636	1.75%
^{203}Hg (1)	279.2	$1.721 \cdot 10^{-7}$	0.815	2.253	3.1%
^{137}Cs (1)	661.6	$7.280 \cdot 10^{-10}$	0.851	1.00	3.7%
^{54}Mn (2)	834.8	$2.567 \cdot 10^{-8}$	1.0	0.799	0.62%
	898.0		0.940	0.7576	1.4%
^{88}Y (1)	1836.0	$7.526 \cdot 10^{-8}$	0.9936	0.407	1.45%
	1115.4		0.507	0.621	1.13%
^{60}Co (1)	1173.2	$4.167 \cdot 10^{-9}$	0.9986	0.6085	1.95%
	1332.5		0.9998	0.543	1.94%

Tabelle 4.1: Für die Detektoreichung benutzte γ -Präparate

In der rechten Spalte ist der gesamte relative Fehler der Detektorempfindlichkeit p_1 angegeben. Er wird im wesentlichen durch die Genauigkeit der Aktivitätsangabe bestimmt. Außer bei dem relativ kurzlebigen Isotop ^{88}Y , bei dem die Unsicherheit der Nettozählrate rund 1% erreicht, sind die Beiträge aus Halbwertszeit λ , Linienausbeute $a(E)$ und Zählstatistik zum Gesamtfehler unbedeutend. Die Nettozählrate der einzelnen γ -Linien wurde durch Subtraktion des linear zwischen den Untergrundzählraten oberhalb und unterhalb der γ -Energie interpolierten Untergrundbeitrags zum "full-energy-peak" bestimmt. Wegen des hohen Auflösungsvermögens des Detektors waren die Beiträge der Untergrundkorrektur zum statistischen Fehler der Zählraten nur in ungünstigen Fällen von vergleichbarer Größe wie der statistische Fehler, so daß auf ein aufwendigeres Verfahren zur Untergrundkorrektur verzichtet werden konnte.

An die in der Tabelle angegebenen Werte von p_1 wurde anschließend eine Eichkurve vom Typ

$$p_1(E) \sim \exp(C_1 + C_2 \cdot \ln(E) + C_3 \cdot \ln^2(E)) \quad (4.8)$$

nach der Methode der kleinsten Fehlerquadrate angepaßt. Die mittlere relative Abweichung (1σ) der gemessenen Empfindlichkeiten $p_{1i}(E)$ von der Eichkurve beträgt 0.35% und wird mit der Genauigkeit eines berechneten Wertes $p_1(E)$ gleichgesetzt.

4.4.2. Berechnung der Selbstabschirmung der Proben

Entsprechend Gl.(4.7) wurde die Selbstabschirmung der Proben in einen Neutronenanteil $p_2(r,z)$ und in einen γ -Anteil $p_3(r,z,E)$ separiert.

Der Neutronenanteil berücksichtigt, daß die Spaltrate wegen der relativ hohen makroskopischen Absorptionsquerschnitte (1.114 cm^{-1} für die UO_2 - und 0.6595 cm^{-1} für die Metallproben bei $v=2200 \text{ m/s}$) zur Probenmitte hin abnimmt, wodurch sich die Gammaentkommwahrscheinlichkeit gegenüber einer homogenen Spaltproduktkonzentration erhöht. Für die Berechnung wurde ein isotroper, rein thermischer Neutronenfluß bei einer absoluten Temperatur von $T=320\text{K}$ (entsprechend der Temperatur der thermischen Säule von $40-45^\circ\text{C}$) zugrunde gelegt. Die Messung der 228 keV -Linie des ^{132}Te bei verschiedenen Azimutwinkeln der Probe relativ zum Detektor zeigte, daß die Annahme der Isotropie innerhalb der Meßgenauigkeit ($\pm 2.5\%$) erfüllt war.

Die Voraussetzung eines rein thermischen Neutronenflusses wurde als erfüllt betrachtet, da die Bestrahlung in der thermischen Säule des FR2 erfolgte, und eine Berechnung des Schnellspaltfaktors, der die durch Spaltneutronen der Probe induzierten Kernspaltungen berücksichtigt, für die größte Probe nur einen Wert $f=1.017$ ergab. Für die Berechnung wurde das thermische Neutronenenergiespektrum so in 10 Gruppen aufgeteilt, daß $\int_{\Delta E} \phi(E) dE = 0.1 \cdot \int_0^{\infty} \phi(E) dE$ war. Damit sollte die Energieabhängigkeit der Selbstabschirmung der Proben gegen Neutronen genau erfaßt werden. Es zeigte sich jedoch, daß die so berechnete γ -Entkommenwahrscheinlichkeit weitgehend mit dem Wert übereinstimmt, den man mit einem über das Spektrum gemittelte Absorptionsquerschnitt erhält. Nur bei den niedrigsten γ -Energien (364 keV des ^{131}I) lieferte die genauere Methode einen um rund 1% höheren Wert.

Die Produktionswahrscheinlichkeit p_2 eines Spaltprodukts am Ort (r, z) in der Probe wurde mittels eines kleinen Monte-Carlo-Programms berechnet, das speziell auf die Probengeometrie ausgelegt war, und in Fortran auf dem Kleinrechner ausgeführt werden konnte, der auch zur Steuerung und Datenerfassung der Experimente eingesetzt wurde.

Darin wird zunächst ein Ort (r, z) in der Probe "gewürfelt", wobei beachtet wird, daß die Wahrscheinlichkeit für jedes Volumenelement $(dz, dr, rd\phi)$ konstant ist. Danach wird eine Flugrichtung \vec{e} durch "würfeln" des Azimutwinkels ϕ und des $\cos \theta$ des Zenitabstandswinkels bestimmt, wodurch die Isotropiebedingung für die Richtungen erfüllt ist. Dann wird die Wegstrecke s berechnet, die ein Neutron vom Punkt (r, z) aus in der vorgegebenen Richtung bis zum Probenrand im Probenmaterial zurücklegen muß. Dabei werden Radius und Höhe von Probe und axialer Sackbohrung sowie die um $\Sigma_a^{\text{Hülle}}/\Sigma_a^{\text{Probe}}$ reduzierte Dicke der Hülle berücksichtigt.

Dies wird bei jedem Punkt (r, z) für insgesamt 10 verschiedene Flugrichtungen ausgeführt und die relative Entstehungswahrscheinlichkeit p_2 wie folgt berechnet

$$p_2(r, z) = \frac{1}{10} \cdot \sum_{i=1}^{10} \exp(-\Sigma_a \cdot s(r, z, \vec{e}_i)) \quad (4.9)$$

Zur Berechnung der Entkommwahrscheinlichkeit $p_3(r, z, E)$ wird vom selben Punkt (r, z) ein Weg s in einer Richtung senkrecht zur Längsachse aus der Probe heraus berechnet. Die Reduktion auf den Bereich $\cos \theta = 0, \phi \in [0, \pi]$ entspricht der Meßgeometrie, bei der die Probenachse senkrecht zur Verbindungslinie Probe-Detektor steht, die gleichzeitig die Achse des koaxial gedrifteten Detektors darstellt. Als Entkommwahrscheinlichkeit erhält man analog zu Gl.(4.9)

$$p_3(r, z, E) = \exp(-s(r, z) \cdot \mu(E)) \quad (4.10)$$

wobei $\mu(E)$ der totale γ -Schwächungskoeffizient für γ -Strahlen der betrachteten Energie E ist.

Das Integral in Gl.(4.7) wurde durch Mittelung über viele Einzelschicksale ($N=5-10 \cdot 10^4$) berechnet

$$\int p_2 p_3 dV = \frac{\sum_{n=1}^N p_2 \cdot p_3}{\sum_{n=1}^N p_2} \quad (4.11)$$

Für die Rechnungen wurden folgende Wirkungsquerschnitte
($v=2200$ m/s) benutzt.

$$\begin{aligned}\sigma_f(^{235}\text{U}) &= 579.5 \text{ b} \\ \sigma_c(^{235}\text{U}) &= 98.0 \text{ b} \\ \sigma_c(^{238}\text{U}) &= 2.73 \text{ b}\end{aligned}$$

daraus erhält man für die UO_2 -Proben (Anreicherung 6.66% ^{235}U) bzw. für die U-Metall-Proben (1.64%) die makroskopischen Absorptionsquerschnitte ($T=320$ K)

$$\begin{aligned}\Sigma_{\text{UO}_2} &= 0.948 \text{ cm}^{-1} \\ \Sigma_{\text{U}} &= 0.560 \text{ cm}^{-1}\end{aligned}$$

Die totalen γ -Schwächungskoeffizienten wurden der Arbeit von Henry und Kennet /19/ entnommen, wobei die benötigten Zwischenwerte bei den γ -Energien der Spaltprodukte mit Hilfe einer logarithmisch angepaßten Kurve berechnet wurden. Der relative Fehler der einzelnen Meßwerte für Energien gängiger γ -Präparate wird von den Autoren mit 1% angegeben. Die Unsicherheit der interpolierten Zwischenwerte dürfte 1.5% nicht überschreiten.

Insgesamt ergaben die Rechnungen Entkommwahrscheinlichkeiten mittels derer Spaltraten gemäß Gl.(4.6) berechnet werden konnten, die selbst für die U-Metallprobe von 15 mm Durchmesser innerhalb der Standardabweichung der Meßwerte lagen. Ein Beispiel ist in Tab. 4.2 angegeben.

Isotop	E_{γ} (keV)	$S(10^{11} \text{ s}^{-1})$
^{131}I	364	1.61 ± 0.051
^{95}Zr	724	1.62 ± 0.055
^{140}La	919/925	1.65 ± 0.083
^{140}La	1596	1.68 ± 0.048
	Mittelwert:	1.634 ± 0.026

Tabelle 4.2: Vergleich von Spaltraten einer U-Metallprobe (15 mm \varnothing) die aus Zählraten verschiedener Spaltprodukt- γ -Linien bestimmt wurden.

4.4.3. Gammaskpektrometrie von Spaltprodukten

Anhand der zu erwartenden Spaltraten von $5-35 \cdot 10^{10} \text{ s}^{-1}$ wurden Spaltprodukte mit geeigneten Spaltausbeuten, Halbwertszeiten und γ -Energien ausgesucht, von denen sich schließlich die in der folgenden Tabelle 4.3 angegebenen als in der Praxis anwendbar erwiesen. Angegeben sind Isotop, Spaltausbeute für die thermische Spaltung von ^{235}U , γ -Energie sowie die zugehörige Ausbeute pro Zerfall einschließlich der Fehlerbandbreite.

Isotop	$T_{1/2}$	Spaltausbeute (%)	E_{γ} (keV)	Quantenausbeute (%)
^{140}La	12.79d (40.234 h)	6.276 \pm 0.0878	487.0	43.0 \pm 0.21
			919.6	9.53 \pm 0.46
			925.2	
			1596.2	95.47 \pm 0.1
^{95}Zr	64.0d	6.494 \pm 0.088	724.2	44.5 \pm 0.6
^{95}Nb	3.50d	6.494 \pm 0.088	765.5	99.0
^{131}I	8.041d	2.883 \pm 0.02	364.5	81.24 \pm 0.11
^{132}I	(78h) 2.29h	4.298 \pm 0.03	667.7	98.7 \pm 0.1
			772,6	76.2 \pm 0.18
^{103}Ru	39.4d	3.0418-0.06	497.1	86.4 \pm 0.24

Tabelle 4.3: Daten der verwendeten Spaltprodukte

Die Proben wurden nach der Messung aus dem Kalorimeter ausgeschleust und etwa 7d in einem Bleibehälter zwischengelagert, um die Aktivität abklingen zu lassen. Danach wurden sie zweifach in Polyäthylenfolie eingeschweißt und ins INR in ein Labor zur γ -Spektrometrie transportiert. Die Proben wurden in einer Entfernung von 500 mm vom γ -Fenster auf einem um seine vertikale Achse drehbaren Stift befestigt. Bei Abklingzeiten $t_1 = 1-4 \cdot 10^6 \text{ s}$ (vergl. Gl. (4.6)) waren Meßzeiten t_M zwischen $4-10 \cdot 10^3 \text{ s}$ nötig um in den Peaks 10^4-10^5 Impulse zu zählen. In einigen Fällen wurde der Vielkanalanalysator mit Totzeiten von einigen % betrieben, die durch den Betrieb im "true time"-Modus kompensiert wurden.

4.5 Auswertung

Die Auswertung der Meßdaten erfolgte wie die Messungen im wesentlichen mit dem Kleinrechner.

Zunächst wurden die für die adiabatische Korrektur benötigten Terme bestimmt, indem für die Temperaturabweichung $\Delta T_a = T_M - T_P$ unter stationären Bedingungen eine Anpassung der Form

$$\Delta T_a = C_1 + C_2 \cdot \Delta T_O \quad (4.12)$$

und für die auf 1K Temperaturdifferenz bezogene Temperaturanstiegsrate s_v im Vakuum bzw. s_n bei 1 bar mit einem Polynom zweiten Grades

$$s(\Delta T_O) = \frac{\Delta T_P / 2 \Delta t}{T_P - T_M} = C_1 + C_2 \cdot \Delta T_O + C_3 \cdot \Delta T_O^2 \quad (4.13)$$

nach der Methode der kleinsten Fehlerquadrate vorgenommen wurde. Darin ist $\Delta T_O = T_P - T_O$ die auf eine im fraglichen Temperaturintervall liegende Temperatur T_O reduzierte Proben temperatur, die aus numerischen Gründen eingeführt wurde.

Wegen der zeitraubenden Messung lagen für die Temperaturabweichungen ΔT_a in der Regel nur 6-10 Meßwerte vor. Die mittlere Streuung der Meßwerte um die angepaßte Gerade lag bei etwa 3 mK, was einer Unsicherheit von ΔT_a von einigen Prozent entspricht.

Die Änderung der auf die Temperaturdifferenz $T_M - T_P = 1K$ bezogenen Temperaturanstiegsrate $s = \Delta T_P / (T_M - T_K)$ während des Evakuierens vom Wert s_n bei Atmosphärendruck auf den Wert s_v nach Erreichen des Endvakuums wurde für die verschiedenen Probengrößen unter verschiedenen Bedingungen gemessen. Sie konnte mittels zweier Zeitkonstanten in der folgenden Form dargestellt werden:

$$f = a \cdot e^{-\frac{t}{\alpha}} + b \cdot e^{-\frac{t}{\beta}} \quad (4.14)$$

wobei

t Zeit seit Einschalten der Vakuumpumpe

$\alpha \approx 9 \div 10s$

$\beta \approx 95 s$

Die beiden Faktoren a und b lagen im Wertebereich von 0.7 ± 0.8 bzw. 0.3 ± 0.2 , je nachdem, ob während der Drucktransiente die Heizung des adiabatischen Mantels in Betrieb war oder nicht. Für Zeiten $t > 10$ s beschreibt f die transienten Vorgänge zufriedenstellend, während für kürzere Zeiten sowohl die Wärmeleitung als auch die Temperaturmessung durch die Gasströmung bei Beginn des Pumpens so gestört wurden, daß die Meßwerte unbrauchbar waren. Man muß jedoch berücksichtigen, daß die Zeitkonstante α wegen der geringen Zahl von Meßpunkten pro Transiente nur sehr ungenau ($\pm 10\%$) bekannt war, und daß der Startzeitpunkt des Evakuierens nur näherungsweise extrapoliert werden konnte, weil bei den Messungen an bestrahlten Proben der Druckabfall bei schon laufender Pumpe durch das Schließen des Schieberventils (vergl. Nr.8 in Abb.12) ausgelöst wurde, wobei weder der Ausgangsdruck noch der genaue Zeitpunkt bekannt waren. Dies wirkt sich zwar auf die Meßergebnisse nur dann aus, wenn beim Einbringen der Proben in das Kalorimeter die Probertemperatur erheblich von der Temperatur des adiabatischen Mantels abweicht ($T_P - T_M > 1K$). Da aber aus Zeitgründen nicht so viele Bestrahlungsexperimente durchgeführt werden konnten, daß eine ausreichende Anzahl von Messungen bei günstigen Anfangsbedingungen hätte erfolgen können, mußten auch Meßserien unter Anwendung der oben beschriebenen Korrekturen für den Kurzzeitbereich ausgewertet werden. Da die Korrektur für $T_P - T_M \geq 1K$ und Abklingzeiten $t < 100$ s Werte von der Größenordnung der Meßgröße annimmt, ergeben sich bei einigen Experimenten erhebliche Fehlerbandbreiten des kalorimetrisch gemessenen Anteils der Nachzerfallsleistung im Kurzzeitbereich. In Abb.15 ist dieser Fehler für eine Einzelmessung bei einer anfänglichen Temperaturdifferenz von 1K als Funktion der Zeit angegeben.

Die Ergebnisse der Messungen der Temperaturanstiegsraten s_v bzw. s_n sind entsprechend der großen Zahl der Meßpunkte (1250) und dem andersartigen Charakter der Messung - kontinuierlicher Temperaturanstieg gegenüber der asymptotischen Annäherung an einen stationären Wert im Fall der Messung von ΔT_a - sehr viel genauer: die Standardabweichung der Meßwerte von der gemäß Gl.(4.13) angepaßten Funktion beträgt nur $\delta_s = 4-8 \cdot 10^{-6} s^{-1}$, was bei Werten von $s_v = 4-8 \cdot 10^{-4} K/s/K$ zu relativen Fehlern der angepaßten Funktion von der Größenordnung 1 % führt, während sie für $s_n = 1-3 \cdot 10^{-3} K/s/K$ bei einigen Promille liegen.

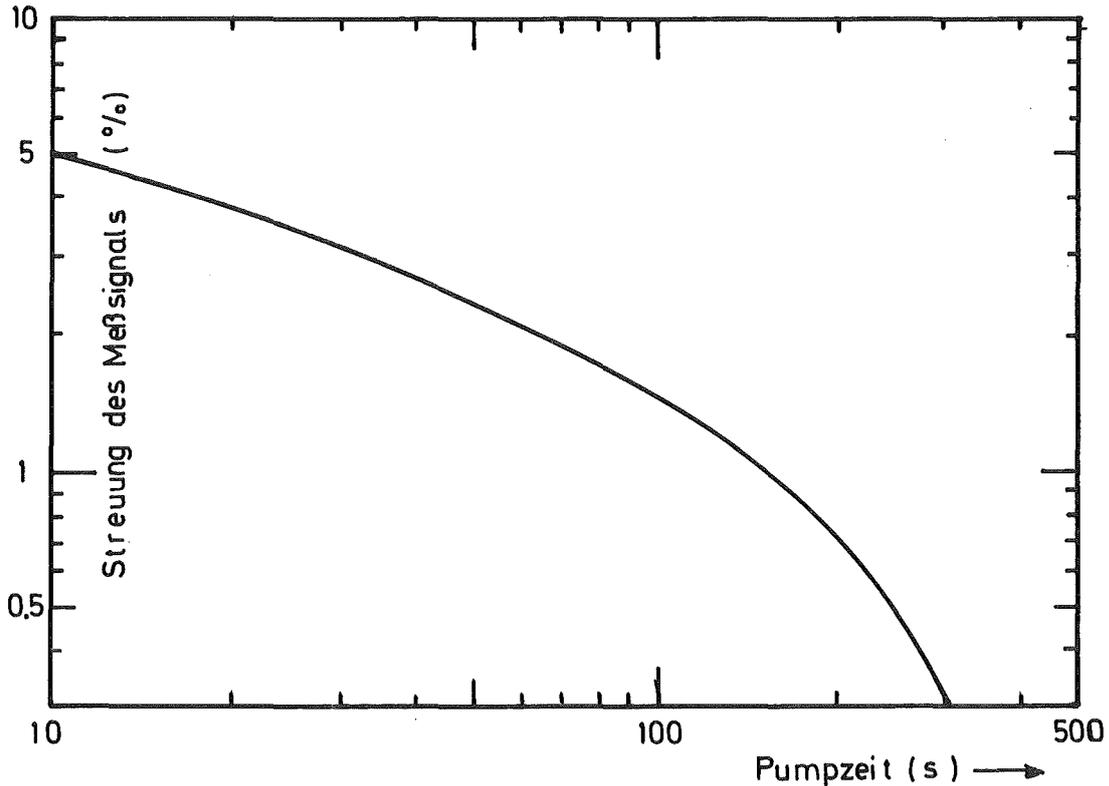


Abb.15: Fehlerbandbreite des Meßsignals aufgrund einer anfänglichen Temperaturdifferenz $T_P - T_M = 1K$ als Funktion der Betriebsdauer der Vakuumpumpe

Mit Hilfe dieser vier Größen wurde aus der zeitlichen Folge der Meßdaten $T_P(t)$ die auf adiabatische Verhältnisse korrigierte Temperaturanstiegsrate wie folgt berechnet und für die weitere Auswertung auf Lochstreifen ausgegeben:

$$\frac{\Delta T_P(t_1+1)}{\Delta t} = \frac{T_P(t_1+2) - T_P(t_1)}{2} + A(t+1) \quad (4.15)$$

Als Temperaturanstiegsrate pro Sekunde zur Zeit $t=t_1+1s$ wurde die halbe Differenz zweier aufeinanderfolgender Meßwerte der Proben-temperatur genommen, die zwei Meßzeitintervalle $\Delta t=1s$ auseinanderliegen, weil im dazwischenliegenden Schritt der Wert $T_M(t_1+1)$ der Manteltemperatur gemessen wurde.

A stellt die adiabatische Korrektur dar, die wie folgt berechnet wurde:

$$A(t+1) = \frac{1}{2} \cdot \left[T_M(t_1+1) + \Delta T_a(\Delta T_o) - T_P(t_1+1) \right] \cdot S(t+1) \quad (4.16)$$

In der Klammer steht die Differenz zwischen der für die Zeit $t=t_1+1$ interpolierten Probestemperatur $- T_P(t_1+1) = \frac{1}{2} \cdot (T_P(t_1) + T_P(t_1+2))$ - und der um die adiabatische Abweichung ΔT_a korrigierten Manteltemperatur $T'_M = T_M(t_1+1) + \Delta T_a(\Delta T_o)$, bei der adiabatische Verhältnisse herrschen würden, d.h. der Energieverlust der Probe an die Umgebung gleich der Energiezufuhr durch den um ΔT_a wärmeren Mantel wäre. Diese Temperaturdifferenz wird multipliziert mit der auf 1K Temperaturdifferenz bezogenen, zeitabhängigen Temperaturdrift S, die den transienten Übergang von s_n bei 1 bar aus s_v bei Vakuum beschreibt (vergl. (4.13) bzw. (4.14))

$$S(t) = (s_n - s_v) \cdot (a \cdot e^{-\frac{t}{\alpha}} + b \cdot e^{-\frac{t}{\beta}}) + s_v \quad (4.17)$$

Da die Nachzerfallsleistung in dem in dieser Arbeit überstrichenen Zeitbereich näherungsweise durch eine Potenzfunktion der Abklingzeit t dargestellt werden kann, wurden die korrigierten Meßwerte logarithmiert und durch ein Polynom dritten Grades als Funktion des Logarithmus der Abklingzeit angepaßt:

$$\ln \left(\frac{\Delta T_P(t)}{\Delta t} \right) = \sum_{i=0}^3 a_i \cdot (\ln(t))^i \quad (4.18)$$

Da die zeitliche Änderung der Proben­temperatur aufgrund der Nach­zerfallsleistung erst ab etwa 15-20 s nach Ende der Bestrahlung mit einiger Genauigkeit gemessen werden konnte (Transportzeit, Störungen des Meßsignals bei Beginn des Evakuierens), war die Änderung des Temperaturanstiegs so klein, daß die Abweichung des Meß­signals aufgrund der Trägheit des Temperaturfühlers nur rund 2% betrug. Aus diesem Grund wurde auf die numerisch aufwendige Ent­faltung des Meßsignals entsprechend Gl.(2.7) verzichtet. Statt­dessen wurde die Abweichung durch Korrektur des Meßsignals mit der Zeitkonstanten $\tau=1.2$ s (anstatt der tatsächlichen Temperatur­anstiegsrate der Probe) approximiert. Wegen der Kleinheit des Effekts konnte auf eine Iteration verzichtet werden. Aus dem so erhaltenen zeitabhängigen Temperaturanstieg pro Meßzeitintervall kann der kalorimetrisch gemessene Teil der Nachzerfallsleistung $P_K(t)$ durch Multiplikation mit der Wärmekapazität C_p der Probe berechnet werden:

$$P_K(t) = C_p \cdot \frac{\Delta T_P(t)}{\Delta t} \quad (4.19)$$

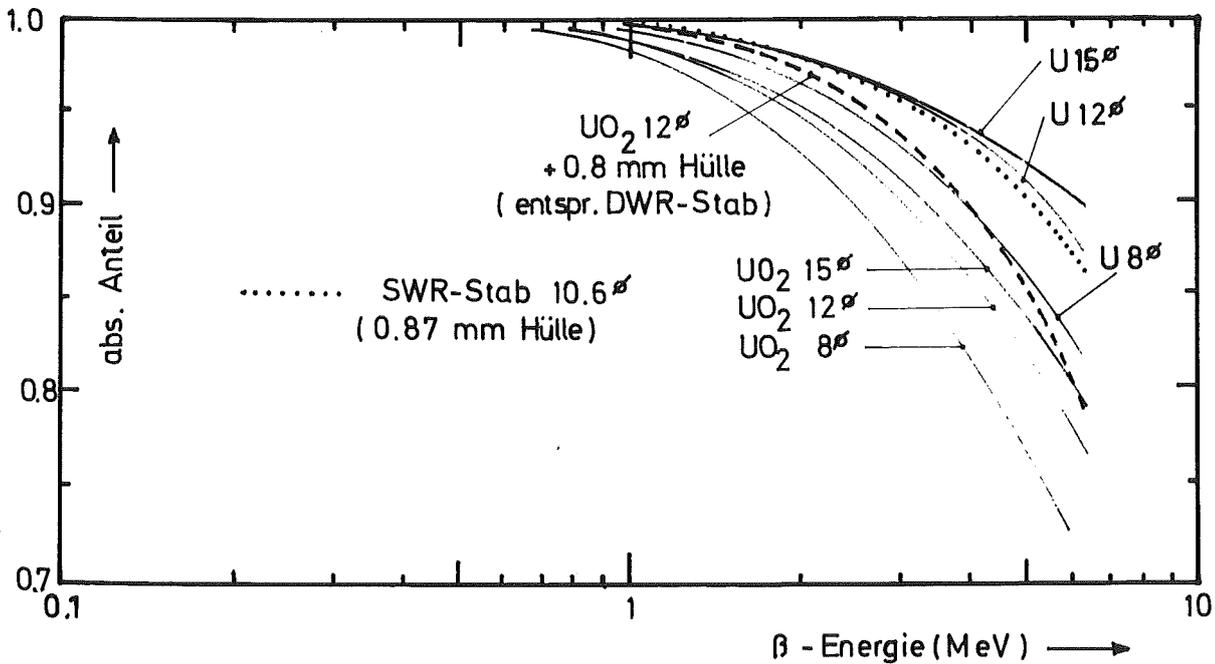


Abb.16: Mittlere β -Energieabsorptionswahrscheinlichkeit für die verschiedenen Proben

Um die gesamte Nachzerfallsleistung $P_n(t)$ zu erhalten, muß noch der entweichende γ -Anteil, der gesondert gemessen wurde, sowie ein kleiner Anteil berücksichtigt werden, der sich durch die unvollständige Absorption von hochenergetischen β -Strahlen in der Probenhülle ergibt. Zur Bestimmung des entweichenden β -Anteils wurden mittels des in Abs. 4.3.2 beschriebenen Rechenprogramms, das um eine Energie-Reichweite-Beziehung für Elektronen in Uran bzw. UO_2 erweitert worden war, die in Abb.16 dargestellten mittleren β -Energieabsorptionswahrscheinlichkeiten für die 7 verschiedenen Probenotypen sowie für einen typischen DWR- und SWR-Stab berechnet.

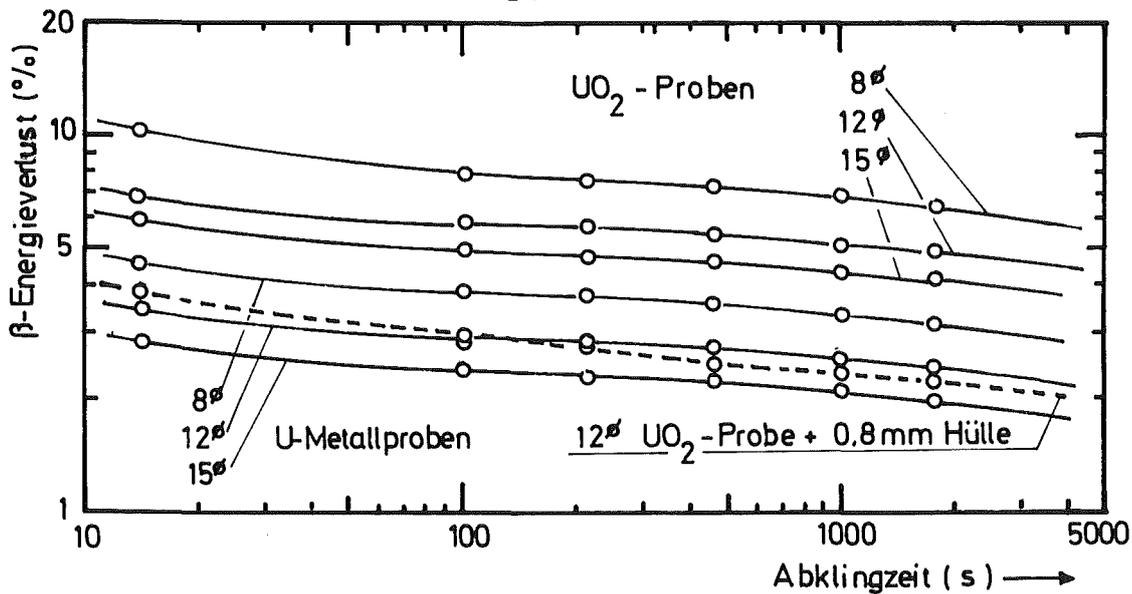


Abb.17: Anteil der aus den verschiedenen Proben entweichenden β -Leistung

Diese werden dann mit sechs für verschiedene Abklingzeiten geltenden β -Energiespektren aus Ref. /20/ gewichtet, um den Anteil der absorbierten β -Leistung zu berechnen. In Abb.17 ist der Bruchteil der entweichenden β -Leistung, um den die in Gl.(4.19) angegebene kalorimetrische Größe korrigiert werden muß, als Funktion der Zeit nach Ende der Bestrahlung angegeben.

Auch ein Teil der aus der Wechselwirkung mit γ -Strahlen stammenden schnellen Elektronen entweicht aus den Proben. Der Anteil ist etwa 50% kleiner als bei der β -Strahlung. Wegen der Kleinheit beider Effekte wurde dieser Unterschied jedoch nicht berücksichtigt und lediglich die in Abb.17 angegebene Korrektur angewandt. Schließlich mußte beim kalorimetrisch gemessenen Anteil noch der Beitrag aus dem Neutroneneinfang im ^{238}U der Brennstoffproben berücksichtigt werden. Die Einfangrate R wurde aus den nach Abs. 4.3 gemessenen Spaltraten wie folgt berechnet:

$$R = S \cdot \frac{(1-a) \cdot \sigma_c(238)}{a \cdot \sigma_f(235)} \quad (4.20)$$

Darin bedeutet a die Anreicherung an ^{235}U .

Die mittlere Energie der Elektronen aus dem β -Zerfall der ^{239}U von $Q=0.474$ MeV wurde aus der ENDFB/IV-Datei entnommen. Der Anteil des ^{239}U an der Nachzerfallsleistung macht sich vor allem bei Abklingzeiten zwischen 1000 s und 2000 s und bei den U-Metallproben mit nur $a=1.64\%$ bemerkbar. Er beträgt dort bis zu 10%. Beim Vergleich der Ergebnisse der verschiedenen Probentypen ergab sich eine auffallende Abweichung der dünnsten Proben mit 8 mm Durchmesser von konstant -15%. Da die γ -Emissionswahrscheinlichkeit für die UO_2 - bzw. U-Metall-Proben sehr verschieden ist, kommt als Fehlerquelle weder die Spaltraten noch die γ -Energiestrommessung, sondern nur die Messung der Wärmekapazität der Proben in Betracht. Deshalb wurde der kalorimetrische Anteil dieser Proben für die endgültige Auswertung nicht benutzt.

Zur Bestimmung der entweichenden γ -Leistung wurde nach Subtraktion des Untergrunds die zeitabhängige Zählrate analog zu Gl.(4.18) angepaßt. Dann wurde die Zählrate bezüglich der Schwächung des γ -Stromes im adiabatischen Mantel korrigiert. Wie sich aus der in Abs. 4.1 beschriebenen Differenzmessung ergab, betrug die Schwächung 10% und war im Rahmen der Meßgenauigkeit unabhängig von der Form des γ -Spektrums, dh. über den gesamten Meßzeitbereich konstant.

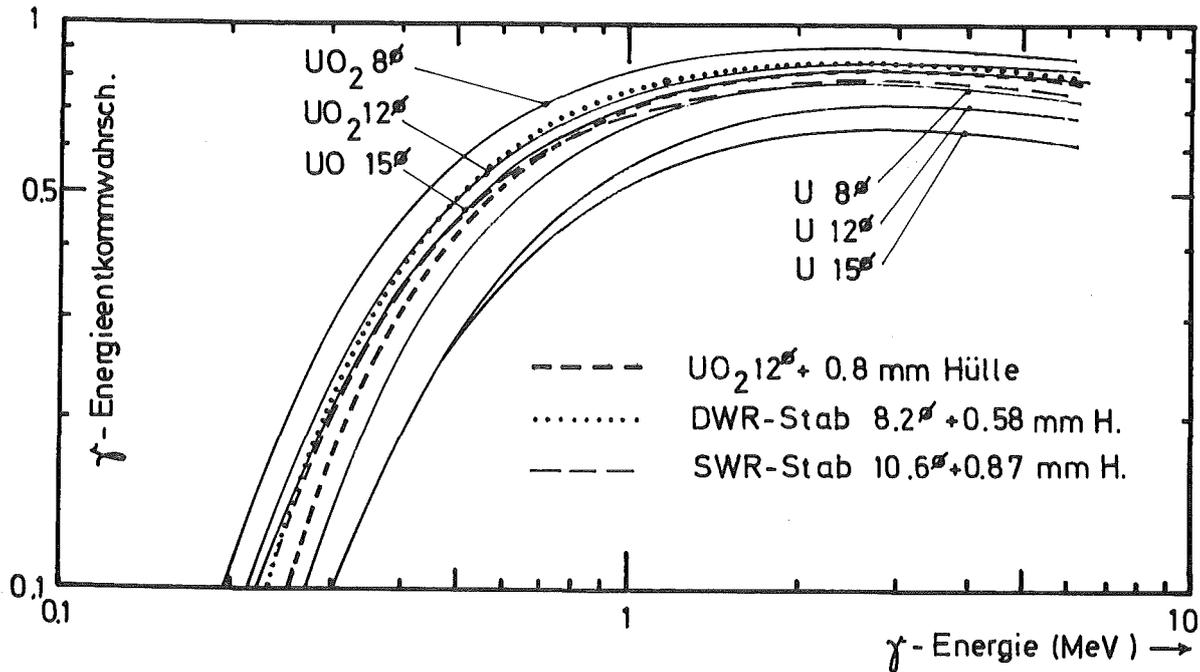


Abb.18: γ -Entkommwahrscheinlichkeit für verschiedene Proben als Funktion der γ -Energie

Wie schon in Abs. 4.2 erwähnt, wich in der bei den Bestrahlungsexperimenten realisierten Meßgeometrie die Kennlinie des γ -Energiestromdetektors erheblich von der Proportionalität $\epsilon = \text{konst.} \cdot E$ ab. Zur rechnerischen Korrektur der Nichtlinearität wurde eine Kennlinie benutzt, die mit 60% Abnahme zwischen 1 MeV und 10 MeV der von Malik berechneten /14/ weitgehend entspricht, und in Abs. 4.2 diskutiert wurde (vergl. Abb.14). Anhand von sechs für Abklingzeiten zwischen 20 s und 2400 s gültigen γ -Spektren aus Ref. /20/ wurde der Unterschied des Detektorsignals aufgrund der Abweichung der Kennlinie vom idealen Verlauf berechnet. Dabei wurde die Verschiebung der Spektren zu höheren Energien berücksichtigt, die sich aus der Energieabhängigkeit der Entkommwahrscheinlichkeit der γ -Strahlung aus den Proben ergibt. Die Entkommwahrscheinlichkeiten wurden mit dem in Abs. 4.3.2 beschriebenen Rechenprogramm bestimmt und sind in Abb.18 für verschiedene Probentypen sowie zum Vergleich für einen DWR- und einen SWR-Stab angegeben.

Dabei wirkte es sich günstig aus, daß die Eichung des γ -Detektors in der Meßgeometrie mit einer ^{60}Co -Quelle erfolgte, deren γ -Energien im Maximum der γ -Energiespektren der Spaltprodukte liegen (vergl. Abb.13). Dies führt dazu, daß der Korrekturfaktor für die Detektorempfindlichkeit von 1.2 bei Abklingzeiten bis 100s auf 1.02 bei Abklingzeiten über 1500 s absinkt. Selbst wenn man statt des von Malik angegebenen Fehlerbandes der Kennlinie von $\pm 10\%$ als Unsicherheit den ganzen Bereich zwischen linearer Kennlinie und einer Kennlinie annimmt, die proportional zum totalen γ -Schwächungskoeffizienten μ von Graphit liegt (vergl. Abb.14), so ergibt sich daraus eine Unsicherheit der entweichenden γ -Leistung von $\pm 12\%$ bei kurzen und $\pm 2\%$ bei langen Abklingzeiten, da nur der Verlauf oberhalb 1.3 MeV extrapoliert wurde. Bei gemittelten Entkommwahrscheinlichkeiten zwischen 0.5 und 0.8 und einem Verhältnis von β - zu γ -Leistung von 0.45 - 0.5 ergeben sich daraus im Kurzzeitbereich systematische Fehler von maximal 3% bis 5%. Der Betrag der zeitabhängigen Korrektur ist in Abb.19 dargestellt. Neben der eben diskutierten Unsicherheit ist der Einfluß der spektralen Entkommwahrscheinlichkeiten der verschiedenen Probentypen auf die Korrektur klein und wirkt sich nur bei niedrigen Energien aus, bei denen jedoch die Kennlinie gemessen wurde.

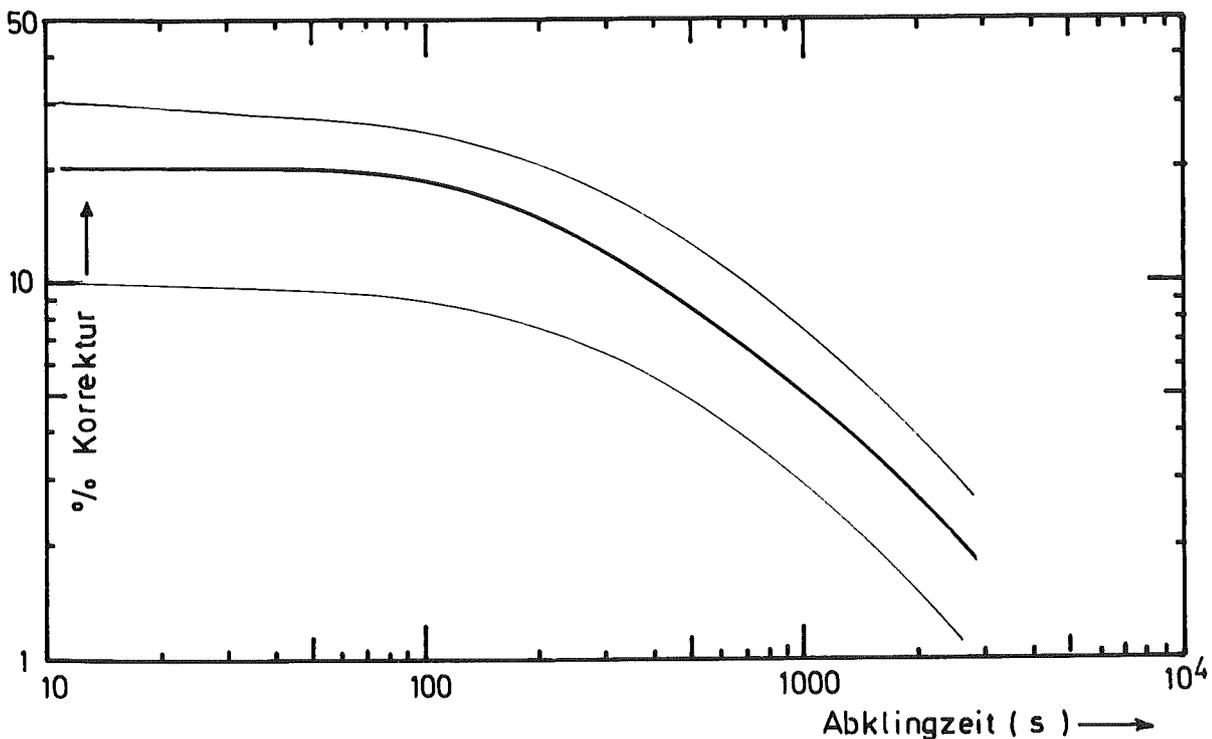


Abb.19: Betrag der Korrektur der Nichtlinearität der Detektorkennlinie mit geschätzter Fehlerbandbreite

5. Diskussion der Ergebnisse

Die Ergebnisse sind in den Tabellen 5.1 und 5.2 sowie in Abb.20 dargestellt.

Tabelle 5.1 zeigt den Mittelwert der gesamten Nachzerfallsleistung aus acht verschiedenen Messungen für Abklingzeiten zwischen 15 s und 4000 s und eine Bestrahlungszeit von 200 s. Die Nachzerfallsleistung ist auf eine Spaltrate von 1 fiss/s normiert. In der Tabelle sind außerdem die Standardabweichung der Einzelmessungen vom Mittelwert sowie der totale Fehler angegeben, in dem der systematische Fehler aus der Kennlinie additiv enthalten ist (vergl. Abb. 19). Weiterhin sind die nach den Vorschriften des neuen ANS-5.1-Standards /21/ für die selbe Bestrahlungszeit berechneten Werte der Nachzerfallsleistung und deren Fehler, sowie in der letzten Spalte die Abweichungen der in dieser Arbeit vorgelegten Werte gegenüber denen des ANS-Standards angegeben.

Es ist generell eine sehr gute Übereinstimmung der Meßwerte mit dem ANS-Standard festzustellen. Daraus kann man den Schluß ziehen, daß die benutzte Detektorkennlinie (vergl. Abs. 4.2 und Abb.14), die mangels geeigneter γ -Quellen nicht gemessen sondern nur extrapoliert werden konnte, der tatsächlichen Kennlinie nahe kommt und der in Abs. 4.2 dafür abgeleitete systematische Fehler sehr konservativ ist. Die Tatsache, daß für Abklingzeiten zwischen 80 s und 200 s die Meßwerte deutlich über denen des ANS-Standards liegen, scheint darauf hinzudeuten, daß die entweichende γ -Leistung leicht überschätzt wird, weil in diesem Zeitbereich von den Spaltprodukten 20% mehr γ - als β -Leistung emittiert wird.

Sieht man von dem Kurzzeitbereich bis etwa 100 s ab, in dem das Kalorimetersignal einiger Messungen durch große anfängliche Temperaturdifferenzen zwischen Probe und adiabatischem Mantel erheblich gestört wurde (vergl. Abs. 4.4 und Abb.15), so liegt die Streuung der einzelnen Messungen um den Mittelwert zwischen 2% und 3%, was der Unsicherheit aus der Spaltratenbestimmung (im Mittel etwa 2%) und aus der Messung der Wärmekapazität der Proben (etwa 1-1.5%) entspricht.

Abklingzeit (s)	Meßergebnis (10^{-12} W/fiss/s)	stat. Fehler (%)	totaler Fehler (%)	ANS-Standard (10^{-12} W/fiss/s)	Fehler ANS (%)	Abweichung gegen ANS (%)
15	58.2	6.5	10.5	57.5	2.1	1.2
20	52.3	6.4	10.4	51.0	2.0	2.5
30	43.0	6.2	10.2	42.4	1.9	1.4
40	37.3	6.0	10.0	36.5	1.9	2.2
50	32.6	6.0	10.0	32.2	1.9	1.2
60	29.2	5.8	9.8	28.7	1.9	1.7
80	24.3	5.0	9.0	23.6	1.9	2.9
100	20.5	3.2	7.2	20.0	1.9	2.5
150	14.9	3.0	6.6	14.4	1.9	3.5
200	11.5	2.6	5.8	11.2	1.9	2.7
300	8.0	2.0	4.5	7.85	1.9	1.9
400	6.19	2.2	4.2	6.14	1.9	0.8
500	5.09	2.3	4.1	5.10	1.9	-0.2
600	4.34	2.7	4.1	4.83	1.9	-1.0
800	3.35	2.6	3.9	3.42	1.8	-2.1
1000	2.72	3.1	3.3	2.80	1.8	-2.9
1500	1.87	2.9	3.4	1.90	1.8	-1.6
2000	1.39	3.0	3.6	1.41	1.8	-1.4
3000	0.886	3.5	4.1	0.881	1.8	0.6
4000	0.62	3.6	4.3	0.612	1.8	1.3

Tabelle 5.1: Nachzerfallsleistung von ^{235}U im Zeitbereich von 15 bis 4000 s für eine Bestrahlung von 200 s Dauer bei einer Spaltrate von 1 s^{-1} .

Die Zunahme der Streuung bei sehr langen Kühlzeiten erklärt sich durch die Grenze des Auflösungsvermögens der Temperaturmessung mit einer Standardabweichung von $1-1.5 \cdot 10^{-5}$ K. Multipliziert mit den Wärmekapazitäten (siehe Überblick über Probandaten im Anhang 2) von einigen Ws/K ergibt sich daraus ein Auflösungsvermögen des Kalorimeters von etwa $100 \mu\text{W}$, was bei Abklingzeiten über 2000 s (vergleiche Beispiel in Abb.20) zu relativen Fehlern von der Größenordnung 1-10% führt.

Die systematische Unsicherheit aus der Nichtlinearität der Detektor-kennlinie wurde in Abs. 4.4 zu etwa 12% bestimmt. Da sich zu längeren Abklingzeiten hin die spektrale Verteilung der von den Spaltprodukten emittierten γ -Energien in den Bereich verschiebt, in dem die Kennlinie gemessen werden konnte, reduziert sich die notwendige Korrektur von anfänglich $20\% \pm 12\%$ auf $2\% \pm 1.2\%$ bei 2000 s. Da die Zählraten mit Werten von $1.5 \cdot 10^4$ bis herab zu einigen 100 pro Meßzeitintervall von 2s immer ausreichend hoch waren, liegt die statistische Genauigkeit der angepaßten γ -Leistungskurven jeweils erheblich unter der Unsicherheit von etwa 2% aus der Bestimmung der Spaltrate, auf die normiert wurde. Zu sehr langen Abklingzeiten hin macht sich eine stärkere Streuung der Kurven bemerkbar, die durch den sich schnell zwischen Werten von 30 bis 80 Impulsen pro Meßzeitintervall ändernden γ -Untergrund der Reaktorhalle des FR2 verursacht wurden.

In Tabelle 5.2 sind für die 7 verschiedenen Proben typen die Anteile an der gesamten Nachzerfallsleistung angegeben, die in Form von γ -Strahlung aus den Proben entweichen. Die Anteile variieren zwischen knapp 30% für die U-Metallprobe von 15 mm Durchmesser und über 40% für die UO_2 -Probe mit 8 mm Durchmesser. Wie aus Abb.18 zu entnehmen ist, entspricht die γ -Energieentkommwahrscheinlichkeit der UO_2 -Probe mit 12 mm \emptyset weitgehend der eines typischen DWR-Stabs, während sie für einen SWR-Stab zwischen den Werten für die U-Metallprobe von 8 mm \emptyset und der UO_2 -Probe (12 mm) mit Stahlhülle liegt. Die in der letzten Spalte von Tab. 5.2 angegebene mittlere Fehlerbandbreite ist relativ groß, weil es sich bei den Verhältnissen meistens um Werte aus einer einzelnen Messung handelt, die mit einer höheren Unsicherheit behaftet sind als die in Tab. 5.1 angegebenen Mittelwerte.

Abklingzeit (s)	UO ₂ -Proben				U-Metallproben			Fehlerband- breite (± %)
	8 mm φ	12 mm φ	12 mm φ + 0.8 mm Hülle	15 mm φ	8 mm φ	12 mm φ	15 mm φ	
15	0.41	0.29	0.29	0.28	0.35	-	0.24	25
20	0.42	0.30	0.31	0.29	0.34	0.27	0.25	25
30	0.42	0.31	0.32	0.31	0.37	0.31	0.27	24
40	0.42	0.34	0.33	0.32	0.37	0.31	0.27	24
50	0.42	0.35	0.34	0.33	0.38	0.32	0.28	23
60	0.43	0.36	0.34	0.33	0.38	0.32	0.29	20
80	0.44	0.36	0.35	0.34	0.40	0.33	0.29	19
100	0.44	0.38	0.37	0.35	0.40	0.33	0.30	18
150	0.43	0.36	0.37	0.35	0.37	0.33	0.31	18
200	0.42	0.37	0.36	0.35	0.37	0.33	0.29	16
300	0.41	0.36	0.35	0.34	0.37	0.30	0.30	14
400	0.41	0.36	0.34	0.34	0.36	0.31	0.29	13
500	0.42	0.35	0.34	0.34	0.36	0.31	0.29	11
600	0.37	0.34	0.34	0.34	0.32	0.31	0.29	9
800	0.39	0.35	0.33	0.33	0.34	0.30	0.30	8
1000	0.39	0.34	0.32	0.33	0.34	0.30	0.30	8
1500	0.38	0.34	0.33	0.33	0.32	0.30	0.29	9
2000	0.36	0.34	0.33	0.34	0.33	0.31	0.28	9
3000	-	0.36	0.35	0.34	-	0.30	0.29	10
4000	-	0.37	0.36	0.35	-	0.31	0.30	10

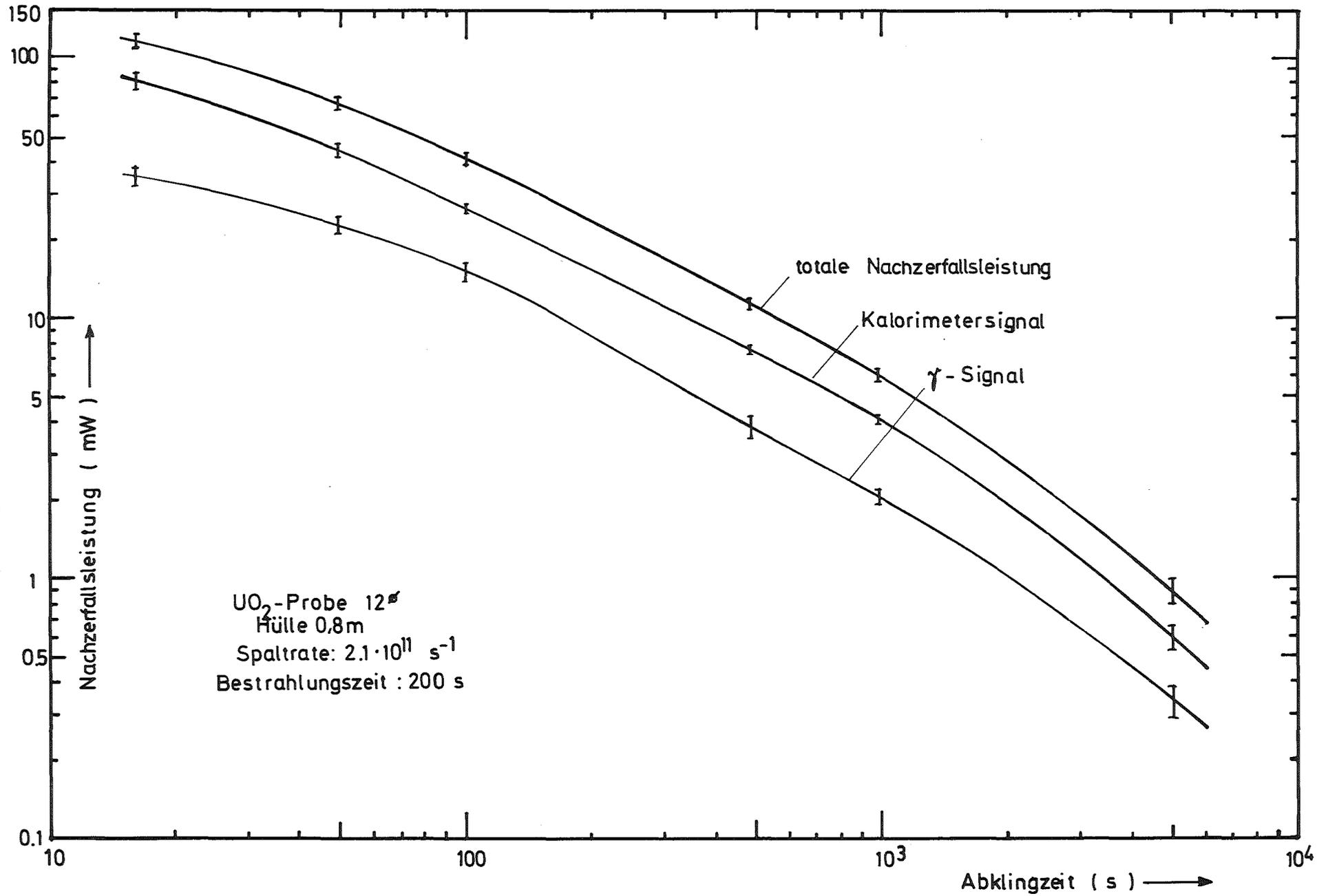
Tabelle 5.2: Anteil der entweichenden γ -Leistung bei verschiedenen Proben

Einen Überblick über die Größe der Meßeffekte und die Fehlerbandbreiten einer Einzelmessung gibt Abb.20, in der für die UO_2 -Probe von 12 mm \varnothing mit 0.8 mm Stahlhülle die Meßergebnisse des Kalorimeters und des γ -Energiestromdetektors, sowie die gesamte Nachzerfallsleistung dargestellt sind. Man sieht, daß die γ -Leistung zunächst langsamer abnimmt was zu einer Erhöhung des γ -Anteils bei 100-200 s führt.

Die Fehlerbandbreite des Kalorimetersignals reduziert sich nach dem Einschwingen auf Werte von 2-3%, die wie schon erwähnt, auf die Unsicherheit in der Bestimmung der Wärmekapazität und das Auflösungsvermögen der Temperaturmessung zurückzuführen sind. Diese macht sich zu kleinen Nachzerfallsleistungen hin immer stärker bemerkbar und erreicht $\pm 10\%$ bei 5000 s. Die Fehlerbandbreite des γ -Signals reduziert sich mit abnehmender Größe des Korrekturterms, um bei sehr niedrigen Leistungen, bedingt durch die Schwankungen des γ -Untergrunds, wieder anzusteigen. Die gemessenen thermischen Leistungen der Proben variierten zwischen etwa 100 mW bis herab zu etwa 0.5 mW, die entweichenden γ -Leistungen lagen im Bereich zwischen etwa 40 mW und 0.1 mW.

Um einen Überblick über den Betrag des gemessenen Kurzzeitanteils der Nachzerfallsleistung im Zeitbereich der Wiederauffüllphase (10 s - 200 s) nach einem Kühlmittelverluststörfall (LOCA) zu geben, sind in Tab. 5.3 für eine Standzeit von einem Jahr der Kurzzeitanteil, der aus den Spaltprodukten stammt, die in den letzten 200 s vor dem Abschalten erzeugt worden sind, der Langzeitanteil, der von der Summe der davor erzeugten Spaltprodukte freigesetzt wird, sowie als Summe von beiden die gesamte Nachzerfallsleistung für Abklingzeiten zwischen 15 s und 4000 s angegeben. Der Langzeitanteil wurde nach den Vorschriften des ANS-5.1-Standards berechnet, der eine "beste Schätzung" aus den Ergebnissen mehrerer neuer Arbeiten /3-7/ darstellt.

Abb. 20: Nachzerfallsleistung einer UO_2 -Probe



Abklingzeit (s)	Kurzzeitanteil ¹⁾ (10 ⁻¹² W/fiss/s)	Langzeitanteil ²⁾ (10 ⁻¹² W/fiss/s)	Summe (10 ⁻¹² W/fiss/s)	Fehler (%)
15	58.2	82.1	140.3	5.3
20	52.3	81.7	134.0	5.1
30	43.0	81.0	124.0	4.6
40	37.3	80.3	117.6	4.3
50	32.6	79.6	112.2	4.1
60	29.2	78.9	108.1	3.9
80	24.0	77.7	101.7	3.4
100	20.5	76.6	97.1	2.9
150	14.9	74.2	89.1	2.5
200	11.5	72.2	83.7	2.3
300	8.0	68.9	76.9	2.0
400	6.19	66.0	72.2	1.9
500	5.09	63.7	68.8	1.9
600	4.34	61.6	66.0	1.8
800	3.35	58.2	61.6	1.8
1000	2.72	55.4	69.1	1.7
1500	1.87	50.1	52.0	1.7
2000	1.39	46.3	47.7	1.7
3000	0.886	41.0	41.9	1.7
4000	0.62	37.4	38.0	1.7

1) Beitrag der Spaltprodukte aus den letzten 200 s vor Ende der Bestrahlung

2) Beitrag aller davor erzeugten Spaltprodukte.

Tabelle 5.3: Nachzerfallsleistung von ²³⁵U nach 1 Jahr Bestrahlung bezogen auf eine Spaltrate von 1 fiss/s.

Es zeigt sich, daß im LOCA-relevanten Zeitbereich zunächst über 40% und nach 200 s noch 17% der Nachzerfallsleistung aus Spaltprodukten und ihren Zerfallsketten stammen, die in den letzten 200 s einer über $3 \cdot 10^7$ s dauernden Bestrahlung erzeugt wurden.

6. Zusammenfassung

In der vorliegenden Arbeit wurden Aufbau und Funktion eines neuartigen "reduzierten Tandemkalorimeters" beschrieben, mit dem die Nachzerfallsleistung von niedrig angereicherten UO_2 - und U-Metallproben im Zeitbereich zwischen 15 s und 4000 s nach Ende einer 200 s dauernden Bestrahlung in der thermischen Säule des Reaktors FR2 gemessen wurde.

Die grundlegende Idee bestand darin, die Grenzen, die konventionellen Kalorimetern durch ihre thermische Trägheit gesetzt sind, durch Reduktion des Kalorimeterblocks auf die auszumessende Probe selbst sowie durch den Einsatz hochempfindlicher Temperaturfühler mit thermischen Zeitkonstanten von der Größenordnung 1 s zu überwinden.

Damit wurde es möglich, ein kalorimetrisches Verfahren zur Messung der sich schnell ändernden thermischen Leistung aus dem radioaktiven Zerfall von Spaltprodukten bis herab zu Abklingzeiten von der Größenordnung 10 s einzusetzen.

Gemessen wurde zunächst der Temperaturanstieg der bestrahlten Brennstoffproben, wobei das Kalorimeter adiabatisch betrieben wurde. Die Verwendung desselben Kalorimeters im Aufheizbetrieb lieferte die Wärmekapazität der Proben, die zusammen mit dem adiabatischen Temperaturanstieg die gesuchte thermische Leistung ergab. Dabei wurde ein Auflösungsvermögen der Leistungsmessung von 100 μ W erreicht, was einer Genauigkeit des gemessenen Temperaturanstiegs von 10^{-5} K/s entspricht.

Da bei dieser Methode ein nicht zu vernachlässigender Anteil der Nachzerfallsleistung in Form von γ -Strahlung entweicht, mußte dieser getrennt gemessen werden. Dazu wurde ein Detektor eingesetzt, dessen Empfindlichkeit annähernd proportional zur Energie der nachgewiesenen γ -Quanten verläuft, so daß das Signal ohne genauere Kenntnis der spektralen Verteilung ein direktes Maß für den γ -Energiestrom darstellt.

Die Tatsache, daß einerseits die Kennlinie des eingesetzten Detektors in der realisierten Meßgeometrie mit großem Abstand zur Quelle erheblich von der linearen Beziehung abwich, und andererseits keine geeigneten Eichpräparate zur Verfügung standen, um den Betrag der Nichtlinearität genau zu messen, führte dazu, daß das Meßsignal der entweichenden γ -Leistung für kurze Abklingzeiten mit einem hohen systematischen Fehler (etwa 12%) behaftet war. Bei Anteilen der γ -Leistung von 30-40% an der Gesamtleistung reduzierte dies die mit dem kalorimetrischen Verfahren prinzipiell erreichbare hohe Genauigkeit sehr stark.

Die erreichbare Genauigkeit liegt in den Zeitbereichen, in denen keine störenden Einflüsse einwirken, bei etwa 1.5%, was vergleichbar ist mit der Genauigkeit von 2%, mit der die Spaltrate mittels eines zerstörungsfreien γ -spektroskopischen Verfahrens gemessen werden konnte. Als störende Einflüsse machten sich Einschwingvorgänge bemerkbar, die bei anfänglichen Temperaturunterschieden zwischen Probe und adiabatischem Mantel auftreten. Dies stellt jedoch kein prinzipielles Hindernis dar, weil sich günstige Anfangsbedingungen bei mehrmaligem Wiederholen der Experimenten einstellen lassen.

Insgesamt läßt sich feststellen, daß sich das Konzept zur Reduktion der Zeitkonstanten des Kalorimeters und damit der Einsatz der Kalorimetrie zur Messung der Nachzerfallsleistung bis in den 10 s-Bereich nach Ende der Bestrahlung als erfolgreich erwiesen hat, auch wenn durch die nicht befriedigende Arbeitsweise der Rohrpostanlage und des γ -Detektors das gesetzte Ziel der 10 s-Messung bei einer Genauigkeit von 5% nicht erreicht werden konnte.

Literaturverzeichnis

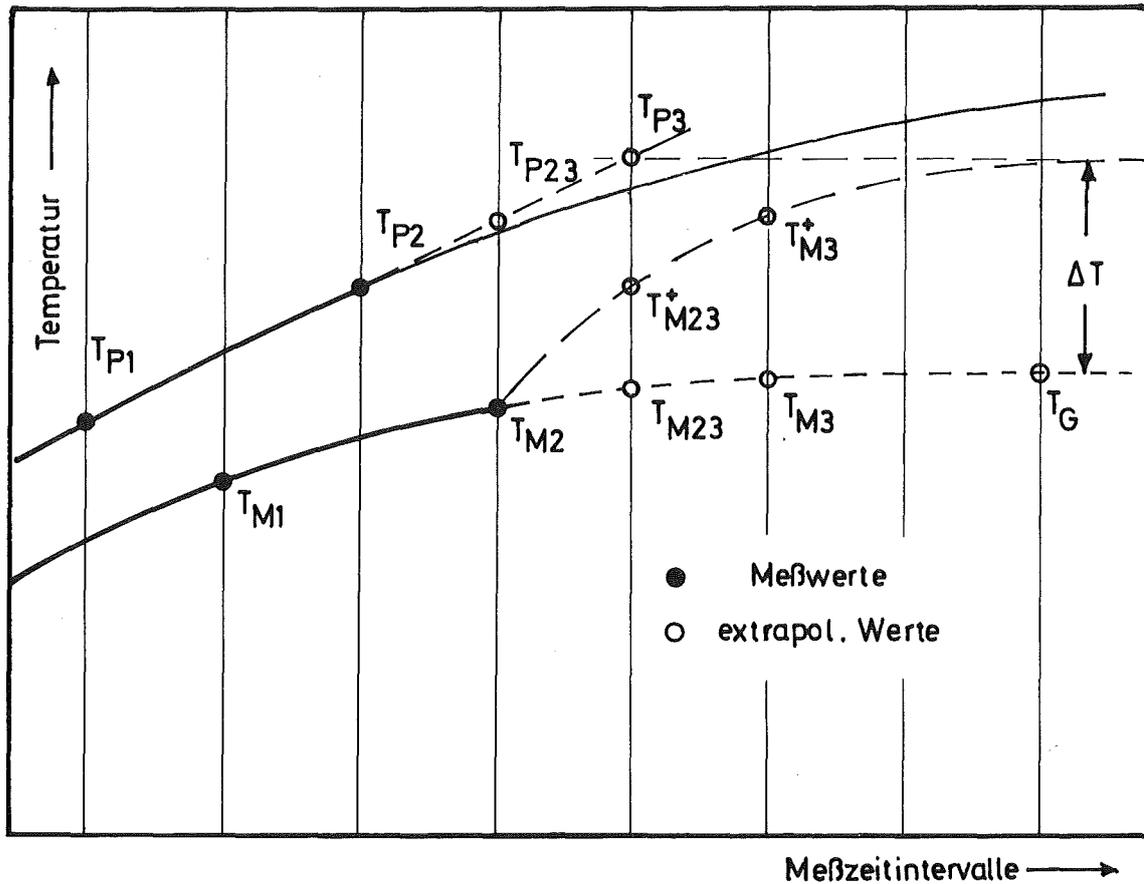
- /1/ D. Smidt:
"Reaktorsicherheitstechnik", Berlin, Heidelberg, New York-Springer (1979)
- /2/ ANS Proposed Standard ANS 5.1 "Decay Energy Release Rates Following Shutdown of Uranium Fueled Thermal Reactors" (1971), revised 1973
- /3/ M. Lott et al.:
"Puissance Résiduelle Totale Emise par les Produits de Fission Thermique de ^{235}U ", Journ. Nucl. Energy 27, 597 (1973)
- /4/ J.L. Yarnell and P.J. Bendt:
"Decay Heat from Products of ^{235}U Thermal Fission by Fast Boil-Off Calorimetry", LA-NUREG-6713 (1977)
- /5/ J.K. Dickens et al.:
"Fission Product Energy Release for Times Following Thermal-Neutron Fission of ^{235}U between 2 and 14,000 Seconds", ORNL/NUREG-14 (1977)
- /6/ S.J. Friesenhahn et al.:
" ^{235}U Fission Product Decay Heat from 1 to 10^5 Seconds", EPRI NP-80 (1976)
- /7/ V.E. Schrock et al.:
"A Calorimetric Measurement of Decay Heat from ^{235}U Fission Products from 10 to 10^5 Seconds", EPRI-NP-616/Vol.1 (1978)
- /8/ G. Class und U. Hitzschke:
"Untersuchung zum Brennstabverhalten in der Blowdown-Phase eines Kühlmittelverlustunfalls", KfK 1787, p.48 (1973)
- /9/ T.R. England:
"Investigation of Fission Product Behavior and Decay Heating in Nuclear Reactors", Ph.D. Thesis, Univ. of Wisconsin (1970).

- /10/ T.R. England et al.:
"Fission-Product Source Terms for Reactor Applications",
LA-NUREG-6197-MS (1977)
- /11/ F. Schmittroth:
"Uncertainty Analysis of Fission Product Decay-Heat Summation
Methods", Nucl. Sci. Eng. 59, pp.117 (1976)
- /12/ E. Calvet et H. Prat:
"Microcalorimètrie", Masson et Cie, Paris (1956)
- /13/ M.C. Moxon and E.R. Rae:
"A Gamma-Ray Detector for Neutron Capture Cross-Section Measure-
ments", Nucl. Instr. Meth. 24, p.445 (1963)
- /14/ S.S. Malik:
"An Idealized Theory of the Gamma-Ray Detector Mechanism of
a Simple Moxon Rae Detector" Nucl. Instr. Meth. 125, 45 (1975).
- /15/ D.L. Horrocks:
"Applications of Liquid Scintillation Counting", Academic Press,
New York und London (1974).
- /16/ K.V.K. Iyengar et al.:
"Calculations of the Response of Moxon-Rae-Detectors for Neutron
Capture Cross-Section Measurements", Nucl. Instr. Meth. 121,
33 (1974).
- /17/ "Praktische Galvanotechnik", Bearbeitet von einem Mitarbeiter-
Team der Fachzeitschrift "Galvanotechnik", Saulgau/Württ. (1970).
- /18/ G. Erdtmann und W. Soyka:
"The Gamma Rays of the Radionuclides", Weinheim-New York (1979).
- /19/ L.C. Henry und T.J. Kennet:
"Measurement of Intermediate Energy Gamma-Ray Cross Sections",
Canad. Journ. Phys. 49, 1167 (1971).

/20/ J.K. Dickens et al.:

"Delayed Beta- and Gamma-Ray Production Due to Thermal-Neutron Fission of ^{235}U , Spectral Distributions for Times After Fission Between 2 and 14000 sec: Tabular and Graphical Data", ORNL/NUREG-39 (1978)

/21/ ANSI/ANS-5.1-1979 "American National Standard for Decay Heat Power in Light Water Reactors", 1979



Zum Prinzip der Temperaturregelung:

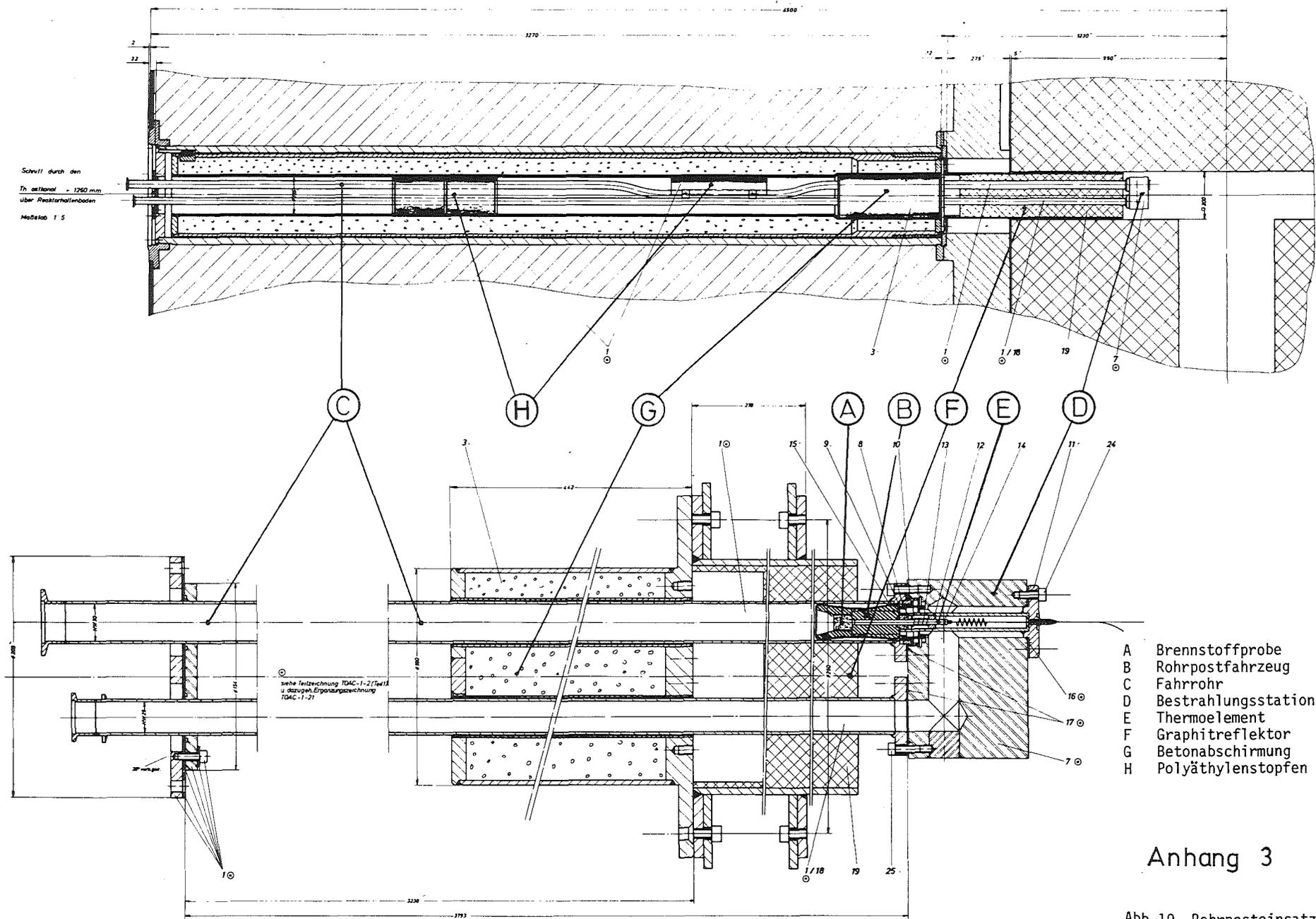
Aus den aktuellen Meßwerten der Probestemperatur T_{P1} und T_{P2} wurden linear der nächste Wert T_{P3} (der zur Bereichswahl der Meßbrücke benötigt wird) und der Zwischenwert T_{P23} extrapoliert. Aus dem Meßwert T_{M2} der Manteltemperatur wird anhand der in den vorausgegangenen Meßzeitintervallen eingebrachten Heizenergie die Werte T_{M3} und T_{M23} sowie der Grenzwert T_G extrapoliert. Aus der Differenz $\Delta T = T_{P3} - T_G$ wird der nötige Heizparameter berechnet und die Heizung eingeschaltet. Dann werden die durch die Wärmezufuhr veränderten Werte T_M^+ und T_{M23}^+ extrapoliert und die Meßbrücke zur Messung von T_{P3} vorbereitet.

Material	Radius [cm]	a (^{235}U) [%]	m _{Brst} [g]	C _p [$\frac{\text{Ws}}{\text{K}}$]	Spaltrate* [10^{11} s^{-1}]	Neutronen- selbstabsch. faktor *)	Hülle [mm]
UO ₂	0.4	6.66	7.475	2.35	1.09	0.70	0.22 Ni
"	0.6	"	17.257	5.10	2.10	0.62	0.30 Ni
"	0.75	"	27.188	8.10	2.95	0.57	0.40 Ni
"	0.6	"	17.257	6.40	2.11	0.60	0.7 Fe + 0.1 Ni
U	0.4	1.64	13.30	2.20	0.59	0.79	0.2 Ni
"	0.6	"	30.82	4.58	1.18	0.74	0.25 Ni
"	0.75	"	48.57	7.67	1.69	0.69	0.35 Ni

Tabelle A1: Einige Probeneigenschaften (* $\phi_{\text{th}} \approx 2.9 \cdot 10^{11} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$)

*) bezüglich der auf die Probe auftreffenden Neutronen

Anhang 2



Anhang 3

Abb.10 Rohrposteinsetzung Th-0st