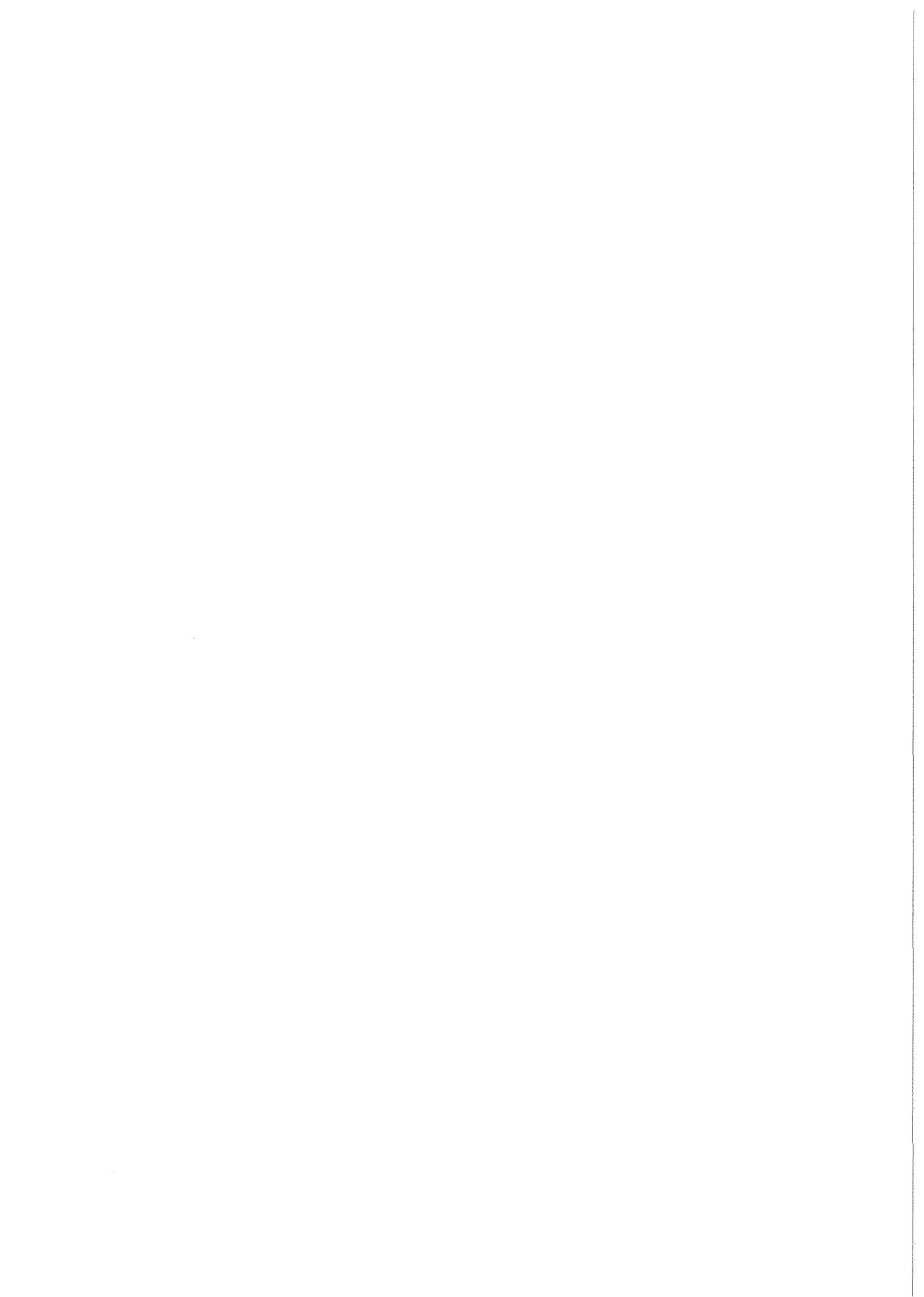


KfK 3316  
März 1982

# **Bestimmung der Curiumbildung in Leichtwasserreaktoren und Vergleich mit Berechnungen**

M. Wanschik  
Institut für Radiochemie

**Kernforschungszentrum Karlsruhe**



KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

Institut für Radiochemie

KfK 3316

Bestimmung der Curiumbildung  
in Leichtwasserreaktoren und  
Vergleich mit Berechnungen <sup>+</sup>)

Michael Wantschik

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH, Karlsruhe

---

<sup>+</sup>) Von der Fakultät für Chemie der Universität Karlsruhe (TH)  
genehmigte Dissertation

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

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH  
ISSN 0303-4003

## Bestimmung der Curiumbildung in Leichtwasserreaktoren und Vergleich mit Berechnungen

Abriß: Es wurde eine massenspektrometrische Isotopenverdünnungsanalyse zur Bestimmung des Curiuminventars in abgebrannten LWR-Brennelementen ausgearbeitet. Die Konzentrationen der Curiumisotope 242 bis 247 in zehn Standardbrennstoffen und drei Brennstoffen mit rückgeführtem Plutonium wurden bestimmt. Mittels des Abbrand- und Zerfallsprogramms KORIGEN wurde der Curiumaufbau in den untersuchten Brennstoffproben nachgerechnet. Als alternative Bestimmungsmethode des Curiumaufbaus wurde die Isotopenkorrelationstechnik untersucht. Die Ergebnisse der Rechenverfahren wurden mit den experimentellen Werten verglichen. Das bis zum Jahr 2000 gebildete Curium in der Bundesrepublik Deutschland wurde berechnet.

## The experimental determination of curium build-up in light water reactors and comparison with calculated values

Abstract: The technique of mass-spectrometric isotope dilution has been employed for the determination of the amount of curium in irradiated LWR fuel. The concentrations of the curium isotopes 242 to 247 were determined in ten standard fuel samples and in three fuel samples which contained recycled plutonium. The curium build-up in the fuels investigated was subsequently calculated by means of the nuclear build-up and decay program KORIGEN. As an alternative method of determination, the isotope correlation technique was investigated. The calculated results have been compared with the experimental values. The build-up of curium in the Federal Republic of Germany was calculated up to the year 2000.

# Inhaltsverzeichnis

Seite

1.	Einleitung .....	1
2.	Isotopenverdünnungsanalyse zur Bestimmung des Curiuminventars in LWR-Standardbrennstoffen und Brennstoffen mit rückgeführtem Plutonium .....	3
2.1.	Bisheriger Stand der Untersuchungen .....	3
2.2.	Massenspektrometrische Isotopenverdünnungsanalyse als Methode der Wahl .....	4
2.2.1.	Standard: Curium-244 .....	5
2.2.2.	Indikator: Curium-248 .....	8
2.2.3.	Analysengang .....	11
2.3.	Untersuchte Proben .....	13
2.3.1.	Herkunft und Bestrahlungsgeschichte .....	13
2.3.2.	Abbrandbestimmung .....	16
2.4.	Auswertung .....	21
2.5.	Ergebnisse und Fehlerdiskussion .....	30
3.	Berechnung des Curiumaufbaus mittels KORIGEN .....	35
3.1.	KORIGEN: Kurze Beschreibung .....	35
3.2.	Eingabedaten .....	36
3.3.	Ergebnisse .....	43

4.	Die Isotopenkorrelationstechnik als alternative Bestimmungsmethode des Curiumaufbaus .....	48
4.1.	Kurze Beschreibung der Isotopenkorrelations- technik .....	48
4.2.	Anwendung der Isotopenkorrelationstechnik .....	49
5.	Vergleich der experimentellen Ergebnisse mit den Resultaten aus KORIGEN und der Isotopenkorrelations- technik .....	54
6.	Prognose der Curiumproduktion bei unterschiedlicher Energiebereitstellung durch LWR .....	64
7.	Literatur .....	69

# 1. Einleitung

Die Mehrzahl der heute arbeitenden Kernkraftwerke haben Leichtwassereaktoren. Die als Druck- bzw. Siedewasserreaktoren konzipierten Anlagen verwenden als Brennstoff angereichertes Uran. Außer den Spaltprodukten werden beim Betrieb Transurane gebildet. Diese Elemente mit einer höheren Ordnungszahl als Uran werden durch aufeinanderfolgende Neutroneneinfangreaktionen und  $\beta^-$ -Zerfälle der schweren Isotope aus Uran-238 aufgebaut. Abbildung 1 zeigt das Aufbauschema, wobei waagrecht die Neutroneneinfangreaktionen und diagonal die Isobarenzerfälle eingezeichnet sind /1/.

		Bk 243 4,5 h c a 6,574; 6,542... y 755; 946... g	Bk 244 4,35 h sf c a 6,687; 6,625... y 892; 218; 922... g	Bk 245 4,98 d sf c a 6,892; 6,155... y 253; 391... e-; g	Bk 246 1,83 d c a 6,800; 10,82; 835; 1124... g	Bk 247 1380 a c a 6,531; 5,710; 5,688... y 84; 265... g	Bk 248 18 h > 9 a p- 0,7	Bk 249 34 d p- 0,1 a 6,417; 6,30... sf; y... o ab 1300	Bk 250 3,22 h p- 0,7 a 6,989; 10,32... of 960
Cm 240 27 d a 6,291; 6,248... sf; g	Cm 241 36d sf c a 6,839... y 475... g	Cm 242 163,0 d sf c a 6,839... y 475... g	Cm 243 30 a c a 6,839... y 475... g	Cm 244 18,099 a c a 6,839... y 475... g	Cm 245 8532 a c a 6,839... y 475... g	Cm 246 4820 a c a 6,839... y 475... g	Cm 247 1,56 · 10 <sup>7</sup> a c a 6,839... y 475... g	Cm 248 3,61 · 10 <sup>5</sup> a c a 6,839... y 475... g	Cm 249 64,2 m p- 0,9 y 0,1,6
Am 239 11,9 h sf c a 5,778... y 278; 228... g	Am 240 50,8 h sf c a 5,378... y 888; 888... g	Am 241 433 a sf c a 5,378... y 888; 888... g	Am 242 16 h c a 5,378... y 888; 888... g	Am 243 7400 a c a 5,378... y 888; 888... g	Am 244 10,1 h c a 5,378... y 888; 888... g	Am 245 2,05 h sf c a 5,378... y 888; 888... g	Am 246 25 m 39 m c a 5,378... y 888; 888... g	Am 247 22 m p- y 285; 225	
Pu 238 87,75 a sf c a 5,499; 5,457... y 87; 29... g	Pu 239 2,439 · 10 <sup>4</sup> a sf c a 5,499; 5,457... y 87; 29... g	Pu 240 6537 a sf c a 5,499; 5,457... y 87; 29... g	Pu 241 14,89 a sf c a 5,499; 5,457... y 87; 29... g	Pu 242 3,8 · 10 <sup>5</sup> a sf c a 5,499; 5,457... y 87; 29... g	Pu 243 96 h sf c a 5,499; 5,457... y 87; 29... g	Pu 244 8,26 · 10 <sup>7</sup> a sf c a 5,499; 5,457... y 87; 29... g	Pu 245 10,48 h c a 5,499; 5,457... y 87; 29... g	Pu 246 10,9 d p- 0,2; 0,3 y 44; 224; 180... m	
Np 237 2,14 · 10 <sup>6</sup> a sf c a 4,788; 4,770... y 87; 29... g	Np 238 50,8 h p- 1,3... y 884; 1029; 1028; 924... g; of 2070	Np 239 2,955 d p- 0,3... y 106; 27... g	Np 240 7,4 m 85 m c a 4,788; 4,770... y 87; 29... g	Np 241 16,0 m p- 1,3... y 133; 174 g					
U 236 2,342 · 10 <sup>7</sup> a sf c a 4,494; 4,445... y 87; 29... g	U 237 6,75 d p- 0,2... y 60; 208... g; of <0,35	U 238 99,28 a sf c a 4,494; 4,445... y 87; 29... g	U 239 23,5 m p- 0,3... y 75... g	U 240 14,1 h p- 0,4... y 44 m					

Abb. 1: Curiumaufbau im Kernreaktor

Man erkennt, daß Curium über zwei verschiedene Wege gebildet wird. Curium ist das Element mit der höchsten Ordnungszahl, welches beim Betrieb von Leistungsreaktoren in nennenswerten Mengen entsteht. Curium hat, obwohl es beim Entladen der abgebrannten Brennelemente aus dem Reaktor, im Vergleich zu anderen Transuranen und Spaltprodukten, nur in sehr geringer Konzentration vorliegt, eine erhebliche Bedeutung bei der Brennelementhandhabung und bei der Wiederaufarbeitung des Kernbrennstoffs. So trägt die Spontanspaltung von Curiumisotopen überwiegend zur Neutronenstrahlung abgebrannter Brennelemente bei.

Während des Entladens und Lagerns der Brennelemente im Reaktor ist Curium-242 die Hauptquelle der Neutronen, während nach seinem Abklingen (mit  $T_{1/2} = 163$  d) Curium-244 (mit  $T_{1/2} = 18$  a) allein die Neutronenstrahlung der Brennelemente bei der Zwischenlagerung und des hochaktiven Abfalls in den ersten Jahrzehnten der Endlagerung ausmacht /2-4/. Außerdem hat Curium durch den  $\alpha$ -Zerfall seiner Isotope einen erheblichen Anteil an der Wärmebildung der zwischengelagerten Brennelemente.

Trotz der sicherheitstechnischen Relevanz der Curiumisotope sind für die bisherigen Sicherheitsbetrachtungen nur theoretische Abschätzungen der Curiumbildung zugrundegelegt worden, die, wie erste experimentelle Untersuchungen andeuten, bis zu einer Größenordnung von den tatsächlich aufgebauten Curiummengen abweichen. So fehlt bislang sowohl eine systematische, breit angelegte Untersuchung der Bildungsraten der verschiedenen Curiumisotope in LWR-Brennstoffen als auch ein umfassender Vergleich dieser Bildungsraten mit den Ergebnissen aus Inventarrechenprogrammen.

Hier wird erstmals eine Isotopenverdünnungsanalyse /5/ zur quantitativen Bestimmung von Curium ausgearbeitet, die Curium-248 als Indikator benutzt und auf einem gravimetrischen Standard aus metallischem Curium beruht. Der Gehalt an den Curiumisotopen 242 bis 247 wird in verschiedenen Brennstoffproben unterschiedlicher Anfangszusammensetzung und Bestrahlungsgeschichte bestimmt. Darüber hinaus soll der Einfluß von rückgeführtem Plutonium auf die Curiumgenese untersucht werden. Anhand der letzten Fassung des Rechenprogrammes KORIGEN /6/ soll der Curiumaufbau in den untersuchten Proben entsprechend ihrer Bestrahlungsgeschichte nachgerechnet und mit den Analysen verglichen werden. Es soll untersucht werden, ob die Isotopenkorrelationstechnik /7, 8/ als alternative Bestimmungsmethode des Curiumaufbaus geeignet ist und welche Möglichkeiten in dieser Methode stecken.

Somit soll erstmals eine verlässliche Basis von Daten geschaffen werden, von der aus sich zuverlässig die Bildung der einzelnen Curiumnuklide vorhersagen läßt, so daß man die Risiken, die mit der Curiummenge zunehmen, besser abschätzen kann.

## 2. Isotopenverdünnungsanalyse zur Bestimmung des Curiuminventars in LWR-Standardbrennstoffen und Brennstoffen mit rückgeführtem Plutonium.

### 2.1. Bisheriger Stand der Untersuchungen.

Bislang gibt es nur vereinzelt experimentelle Untersuchungen zur Bestimmung von Curiumbildungsrate in Leichtwasserreaktoren. Sie basieren ausschließlich auf der  $\alpha$ -Spektrometrie und beschränken sich im wesentlichen auf die Hauptisotope Curium-242 und Curium-244 /9-11/. Diese Analysen, obwohl relativ ungenau, weichen deutlich von Vorausberechnungen, die meistens auf dem Rechenprogramm ORIGEN basieren, ab. Eine experimentelle Bestimmung des Aufbaus der Curiumisotope 243, 245, 246, 247 und damit die Möglichkeit eines Vergleichs mit Vorausberechnungen fehlt ganz. Zwar drängt sich zur Lösung dieses Problems die Anwendung der Isotopenverdünnungsanalyse, insbesondere der massenspektrometrischen Isotopenverdünnungsanalyse auf /12-14/, doch setzt die Verdünnungsanalyse das Vorhandensein eines geeigneten Indikators voraus. Außerdem muß die Konzentration des verwendeten Indikators, der zur quantitativen Bestimmung dient, hinreichend genau bekannt sein. In Ermangelung eines geeigneten Standards zur Kalibrierung des Indikators - als Indikator bietet sich Curium-248 an - konnte das Potential der massenspektrometrischen Isotopenverdünnungsanalyse zur Bestimmung der Konzentration und der Isotopenzusammensetzung des Elements Curium bisher nicht genutzt werden. So sind bis zum heutigen Tag weder umfassende noch genaue, experimentelle Daten zur Abbrandabhängigkeit der Curiumgenese in Leichtwasserreaktoren vorhanden. Insbesondere gibt es keine experimentellen Untersuchungen über den Einfluß von rückgeführtem Plutonium auf die Curiumbildungsrate.

## 2.2. Massenspektrometrische Isotopenverdünnungsanalyse als Methode der Wahl

Die Isotopenverdünnungsanalyse ermöglicht die quantitative Bestimmung von Nukliden, ohne daß dafür eine vollständige Abtrennung der zu analysierenden Komponente erforderlich ist. Nach Zugabe einer bekannten Menge eines Indikators zur Analysenprobe eines Isotopengemisches unbekannter Zusammensetzung wird ein Teil des Elements abgetrennt. Als Indikator dient ein Isotop, welches im ursprünglichen Isotopengemisch möglichst nicht vorkommen soll.

Wird nun das Mengenverhältnis des interessierenden Nuklids zum Indikator nuklid bestimmt, so ergibt sich daraus unmittelbar die Konzentration der zu bestimmenden Kernart in der Probenlösung. Zur Bestimmung der Isotopenverhältnisse eignet sich die Massenspektrometrie in besonderem Maß, da sie große Empfindlichkeit mit hoher Genauigkeit verbindet. Außerdem ist sie nicht, wie z. B. die  $\alpha$ -Spektrometrie, auf das Vorhandensein von  $\alpha$ -Nukliden beschränkt.

Da bislang keine massenspektrometrische Isotopenverdünnungsanalyse zur Bestimmung von Curiumkonzentrationen in Kernbrennstoffen vorhanden ist, soll untersucht werden, ob sich Curium-248 als Indikator eignet. Dieses Curiumisotop ist als Tochternuklid von Californium-252 in fast isotopenreiner Form zugänglich. Zur Kalibrierung des Indikators wird ein gravimetrischer Standard aus metallischem Curium-244 verwendet. Nach Zugabe des Indikators zur Brennstofflösung und weitgehender Abtrennung des Curium von Spaltprodukten und Aktiniden werden die Curiumisotope 242 bis 248 massenspektrometrisch bestimmt, womit bereits alle im LWR in nennenswerten Mengen entstehenden Curiumisotope quantifiziert sind.

2.2.1. Standard: Curium-244

Zur Kalibrierung des Curium-248-Indikators diene ein gravimetrischer Standard aus metallischem Curium-244. Dieses Curiummetall wurde am Europäischen Institut für Transurane, Karlsruhe durch Reduktion von  $\text{CmO}_2$  hergestellt /15/. Am 21.3.74 fand eine Reinigung statt und anschließend wurde das Metall, unter Inertgas in einer Glasampulle eingeschmolzen, aufbewahrt.

Am 11.12.79 wurde  $20.21 \pm 0.02$  mg Metall in wenig 6 M HCL aufgelöst und mit 8 M  $\text{HNO}_3$  eine Standardlösung mit einer Konzentration von  $5.235 \pm 0.005 \text{ E-7 g pro g Lösung}$  hergestellt (E-7 entspricht  $10^{-7}$ ). Am 31.8.81 ergab eine massenspektrometrische Isotopenverdünnungsanalyse mit Pu-239 als Indikator eine Pu-240 Konzentration von  $1.201 \pm 0.002 \text{ E-7 g pro g Standardlösung}$ . Die Konzentration an anderen Plutonium-Isotopen war  $8.0 \text{ E-11 g/g}$ .

Eine Abschätzung der He-4 Produktion zwischen 79 und 81 ergab eine Masse von  $4 \text{ E-10 g He-4 pro g Standardlösung}$ . Ebenfalls massenspektrometrisch wurden die Gewichtsverhältnisse der Curiumisotope 243, 245, 246, 247 und 248 zu 244 ermittelt (s. Tab. 1).

242/244	-
243/244	0.00100
245/244	0.03018
246/244	0.06611
247/244	0.00119
248/244	0.00060
$\Sigma$	0.09908

Tab. 1: Gewichtsverhältnisse der Curiumisotope im Standard

Die Konzentration an Cm-244 am 31.8.81 berechnet sich dann wie folgt:

$$\begin{array}{r} 523.5 \text{ ng/g Einwaage} \\ - 120.2 \text{ ng/g Pu} \\ - \underline{0.4 \text{ ng/g He-4}} \\ 402.9 \text{ ng/g Cm} \\ : 1.09908 \\ 366.6 \text{ ng/g Cm-244} \end{array}$$

Daraus ergibt sich für den 11.12.79 ein gravimetrisch bestimmter Wert  $K_s$  von  $9.665 \text{ E}14$  Atome (At) Cm-244 pro g Standardlösung mit einem Variationskoeffizienten VK kleiner als 0.2 %. Der Variationskoeffizient VK in % ist definiert als Quotient aus Standardabweichung  $\sigma$  und Mittelwert  $\bar{x}$ , multipliziert mit 100.

Da das Curiummetall nach seiner Herstellung mehrere Jahre bis zur Auflösung lagerte, konnte entsprechend seiner hohen Reaktivität eine Oxidation, auch unter den gewählten Aufbewahrungsbedingungen, nicht ausgeschlossen werden. Der gravimetrisch bestimmte Wert von  $K_s$  wurde deshalb radiometrisch überprüft. Als radiometrische Bestimmungsmethoden wurden gewählt:

Alphazählung, Alphaspektrometrie und Flüssigszintillation.

Zur  $\alpha$ -Zählung wurden drei Zählplättchen mit gewogenen Massen Standardlösung hergestellt. Die Plättchen wurden in einem Methan-Durchflußzähler FHT 650 B (ohne Fenster) der Firma Frieseke und Hoepfner gemessen. Als Zählgas fand Methan Verwendung. Da kein Cm-244 Standardpräparat zur Wirkungsgradbestimmung des  $\alpha$ -Zählers zur Verfügung stand, wurden Am-241, Pu-239 und U-233 Standards verwendet. Eine Abhängigkeit des Wirkungsgrades von der  $\alpha$ -Zerfallsenergie konnte nicht festgestellt werden. Es ergab sich ein Wert von  $6.50 \text{ E}7$  dpm pro g Standardlösung mit  $\text{VK} = 1.1 \%$ . Der Beitrag des

im Standard enthaltenen Cm-243 und Pu-240 zur  $\alpha$ -Zählrate wurde vernachlässigt, da er kleiner als 0.2 % war.

Außerdem wurden zur Bestimmung des Cm-244 Gehalts im Standard mittels  $\alpha$ -Spektrometrie /16/ vier Mischungen aus Curiumstandard und einem NBS-Pu-239-Standard hergestellt. Der Meßplatz bestand aus einem MIKRAS der Fa. Frieseke und Hoepfner und einem Halbleiterzähler der Fa. Siemens. Es ergab sich ein Wert 6.600 E7 dpm pro g Standardlösung mit VK = 0.42 %.

Als dritte radiometrische Bestimmungsmethode wurde die Flüssigszintillation gewählt /17, 18/. Gemessen wurde mit einem SL3000 der Fa. Intertechnique. Die Szintillatorflüssigkeit bestand aus einem käuflichen "Toluen Szintillator" der Fa. Packard (1.4-Bis-2-(5-phenyloxazolyl)-benzol (POPOP) 0.1 g/l, 2.5-Diphenyloxazol (PPO) 5 g/l), welchem 60 ml Di(2-Ethylhexyl)-Phosphorsäure (HDEHP) pro Liter als Komplexbildner zugesetzt waren. Aus vier Ansätzen ergab sich ein Wert von 6.568 E7 dpm pro g Standardlösung mit VK = 0.39 %.

Der Mittelwert aus den drei Methoden errechnet sich zu 6.556 E7 dpm pro g Lösung mit einem Variationskoeffizienten kleiner als 1 %. Dieses Ergebnis gilt für den 6.10.81. Mit einer spezifischen Aktivität von 1.796 E14 dpm pro g Cm-244 ergibt sich für den 11.12.79 ein Wert  $K_s$  von 9.663 E14 At Cm-244 pro g Standardlösung. Dieses Ergebnis bestätigt den gravimetrisch ermittelten Wert.

Zur Kalibrierung des Indikators wird  $K_s = 9.665$  E14 At/g verwendet. Dazu muß  $K_s$  unter Berücksichtigung der Halbwertszeit von Cm-244 jeweils auf den Bestimmungszeitpunkt von  $K_i$  korrigiert werden. Das Isotopenverhältnis Cm 248/244 im Standard ( $R_s$ ) beträgt 5.62 E-4 (April 80).

### 2.2.2. Indikator: Curium-248

Als Indikator für die MS-Isotopenverdünnungsanalyse von Curium bietet sich Curium-248 an.

Einerseits sind die im LWR produzierten Mengen an Cm-248 im Vergleich zu den anderen Curiumisotopen vernachlässigbar klein, so daß auf eine Bestimmung der Isotopenzusammensetzung der Probe ohne Indikator verzichtet werden kann. Andererseits steht Cm-248 als Abfallprodukt der Aufarbeitung von Californium-252-Neutronenquellen in ausreichender Menge zur Verfügung.

Die Abtrennung des Cm-248 vom Mutternuklid erfolgte in heißen Zellen durch Extraktionschromatographie /19/: Als Kolonnenmaterial dient auf Celite-545 adsorbierte Di(2-Ethylhexyl)-Phosphorsäure. Die in ca. 5 ml 0.1 M HNO<sub>3</sub> gelöste Californium-Probe wird auf die Kolonne aufgebracht. Das Curium wird mit wenigen ml 0.3 M HNO<sub>3</sub> eluiert (Kolonnenvolumen 0.6 ml), während das Californium auf der Kolonne verbleibt. Die Trennung findet bei Raumtemperatur statt.

Cm	R <sub>i</sub>	VK
242/248	2.8 E-5	66.
243/248	3.0 E-5	62.
244/248	2.1 E-5	62.
245/248	4.5 E-4	11.
246/248	3.18 E-2	0.34
247/248	1.5 E-4	42.

Tab. 2: Isotopenverhältnisse R<sub>i</sub> des Indikators (März 1980)

Es wurden ca. 10µg Cm-248 gewonnen mit einer Verunreinigung an Cf-252 von 20 ppm. Diese Werte ergaben sich aus Messungen in einem α-Spektrometer SA 41 der Fa. Intertechnique.

Die Indikatorlösung wurde mit 1.5 M Salpetersäure auf eine Konzentration  $K_i$  von etwa 30 ng Cm-248 pro g Lösung gebracht. Mit Hilfe des in 2.2.1. beschriebenen Cm-244-Standards wurde diese Lösung kalibriert.

Zur Kalibrierung wird eine Mischung aus etwa gleichen Mengen Indikator und Standard hergestellt. Diese Lösung wird gut durchmischt und mit konzentrierter Salpetersäure zur Trockene eingedampft. Danach wird mit ca. 30  $\mu$ l 1 M Salpetersäure aufgenommen und das Isotopenverhältnis Cm-248/-244 massenspektrometrisch bestimmt. Dies ergibt den Wert  $R_m$  der Mischung.

$K_i$  errechnet sich dann nach:

$$K_i = K_s \cdot \frac{W_s}{W_i} \cdot \frac{(R_m - R_s)}{1 - R_m : R_i} \quad (1)$$

K: Konzentration der Lösung in Atomen pro Gramm

W: Gewicht der Lösung in Gramm

R: Isotopenverhältnis Cm-248/244

i: Indikator

s: Standard (s. 2.2.1.)

m: Mischung aus Indikator und Standard

$R_m : R_i \ll 1$ : wird vernachlässigt.

Die zunächst verwendete Indikatorlösung II wurde in einer Glasflasche aufbewahrt. Diese Lösung zeigte eine lineare Erhöhung der Konzentration um 1.6 % innerhalb 100 Tagen (s. Abb. 2). Die Konzentrationserhöhung dürfte auf die Tatsache zurückzuführen sein, daß der Verschlußstopfen der Glasflasche nicht gefettet war, um möglichst wenig Fremdschubstanz in die Proben einzubringen, und deswegen Wasser verdampfen konnte.

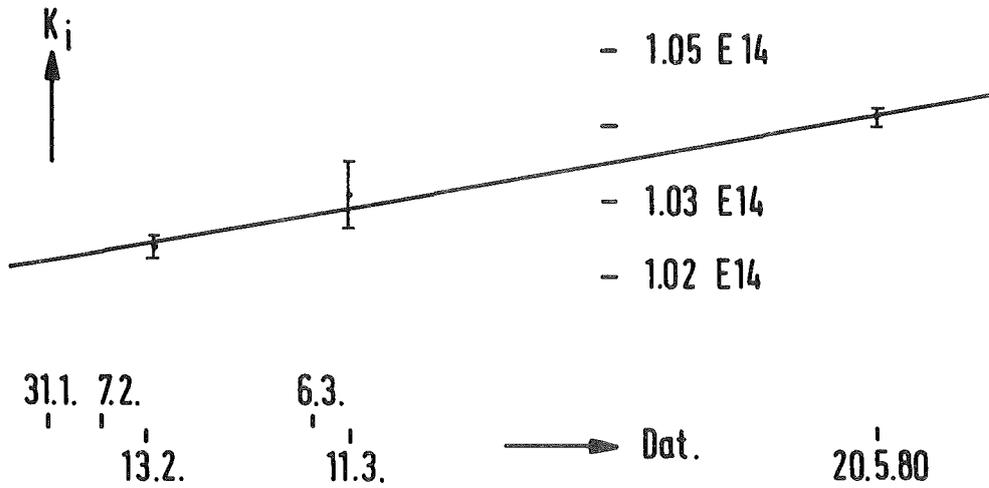


Abb. 2: Konzentration der Indikatorlösung II

Die dann verwendete Indikatorlösung III zeigte keine zeitliche Abhängigkeit der Konzentration (s. Abb. 3). Diese Lösung wurde in PE-Flaschen mit Schraubverschluß aufbewahrt und zeigte keine Verdampfungsverluste.

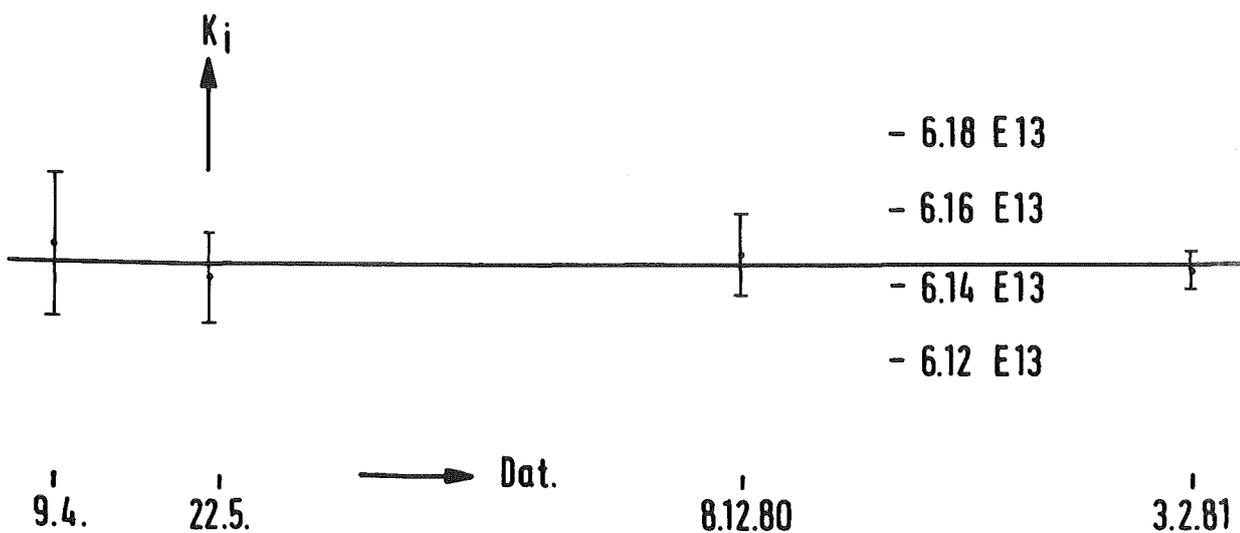


Abb. 3: Konzentration der Indikatorlösung III

Alle Punkte in Abb. 2 und 3 stammen aus je ein bis zwei verschiedenen Mischungen mit jeweils mindestens drei massenspektrometrischen Bestimmungen. Die Konzentrationen beider Indikatorlösungen zeigen einen Variationskoeffizienten von ca. 0.2 %. Die Daten zu Abb. 2 und 3 sind in Tab. 3 zu finden.

Indikator	Dat.	$K_s$	$K_i$	VK
II	13. 2.80	9.594 E14	1.024 E14	0.15
	11. 3.80	9.559 E14	1.031 E14	0.43
	20. 5.80	9.496 E14	1.041 E14	0.12
III	9. 4.80	9.544 E14	6.150 E13	0.32
	22. 5.80	9.501 E14	6.142 E13	0.21
	8.10.80	9.371 E14	6.148 E13	0.18
	3. 2.81	9.256 E14	6.144 E13	0.08

Tab. 3: Daten zu Abb. 1 und 2

### 2.2.3. Analysengang

Zur Auflösung der Proben wurde konzentrierte Salpetersäure mit einem Zusatz von Ammoniumfluorid verwendet. Bis auf die Probe 249 lösten sich alle Proben ohne Rückstand. Die Probe 249 enthielt Araldit (das Zweikomponentenharz Araldit wird zwischen Brennstoff und Brennstabhülle eingegossen, um die Pellets beim Zerschneiden der Brennstäbe zu fixieren) und konnte infolgedessen nicht zurückgewogen werden. Die diese Probe betreffenden Konzentrationsangaben beziehen sich deshalb auf die konzentrierte Lösung. Mit 8 M HNO<sub>3</sub> wurden Verdünnungen von ca. 0.3 mg Brennstoff pro g Lösung hergestellt.

Zur Durchführung der Analyse wird aus Proben- und Indikatorlösung eine Mischung hergestellt, in der die Mengen Cm-244 und Cm-248 etwa gleich groß sind. Diese Mischung wird mit konzentrierter Salpetersäure versetzt und auf einem Mixer gut geschüttelt. Danach dampft man zur Trockene ein.

Es wird mit 8 Tropfen 10 M HCl aufgenommen und die Lösung auf einen Anionenaustauscher aufgebracht. Als Austauscherharz dient 0.6 g Dowex 1X8, 200-400 mesh, welches sich in einer Säule mit 5 mm Innendurchmesser befindet. Es wird mit 1 ml, dann mit 2 ml 10 M HCl nachgespült. Uran und Plutonium verbleiben als Chlorokomplexe auf der Kolonne, während die Aktiniden und die Spaltprodukte eluiert werden /20-22/. Das Eluat wird eingedampft und der Anionenaustausch wiederholt, um Reste von Uran und Plutonium abzutrennen. Das wiederum eingedampfte Eluat wird mit 4 Tropfen 0.05 M HCl aufgenommen.

Aus dieser Lösung trennt man mittels Ionenaustauschchromatographie das Curium möglichst rein ab /23, 24/.

Dazu wird ein Kationenaustauscher mit Dowex 50WX8, 200-400 mesh, verwendet. Das Harz befindet sich in einer Säule mit 3 mm Innendurchmesser und hat eine Höhe von 72 mm. Die Säule wird mit 10 M HCl, 12 M NH<sub>4</sub>OH und 0.25 M  $\alpha$ -Hydroxyisobuttersäure, pH 4.6 (eingestellt mit NH<sub>4</sub>OH) konditioniert und anschließend tropft man die Probenlösung auf. Danach wird mit der eben genannten  $\alpha$ -HIBS eluiert. Das Curium befindet sich in der Fraktion von 1.2 bis 1.8 ml. Eine nicht vollständige Trennung der Curium- und Americiumfraktionen kann mit Hilfe des in 2.4. beschriebenen Verfahrens berücksichtigt werden. Dieser Trennungsgang lehnt sich an das Verfahren nach /25/ an.

Anschließend findet eine Na<sub>2</sub>O<sub>2</sub>-Oxidation statt: Dazu wird die Curiumfraktion mit konzentrierter Salpetersäure auf das doppelte Volumen gebracht und eingedampft. Auf einem Spiegelbrenner wird solange geglüht bis alle organischen Verunreinigungen zerstört sind, da diese die massenspektrometrischen Messungen stören würden. Eventuell muß erneut mit Salpetersäure versetzt sowie eingedampft und geglüht werden.

Danach wird mit ca. 30  $\mu$ l 1 M  $\text{HNO}_3$  aufgenommen und die Lösung auf einem Rheniumbändchen zur massenspektrometrischen Bestimmung eingedampft.

Für alle massenspektrometrischen Bestimmungen findet ein Massenspektrometer CH-5 der Fa. Varian Verwendung. Es wird in Zweibandtechnik gemessen, wobei Verdampfungs- und Ionisierungsband aus Rhenium gefertigt sind. Jede Messung besteht aus 10 scans. Zunächst mißt man bei niedriger Temperatur das Americium allein. Die Temperatur des Verdampfungsbandes beträgt etwa 1450°C, die des Ionisierungsbandes 2030°C. Danach werden Americium und Curium zusammen gemessen bei Temperaturen von 1600°C bzw. 2050°C /26, 27/. Von jeder Brennstoffprobe wurden mindestens drei Mischungen hergestellt. Jede Mischung wurde mindestens 3mal massenspektrometrisch gemessen.

Alle Arbeiten müssen in  $\alpha$ -dichten Handschuhkästen mit ausreichender  $\gamma$ -Abschirmung ausgeführt werden. Im Interesse möglichst hoher Genauigkeiten muß mit hinreichend großen Probenmengen gearbeitet werden. Hier setzt jedoch die Strahlendosisleistung eine gewisse Grenze. Die Dosisleistung am Arbeitsplatz betrug bei den bearbeiteten Probenmengen und nach einer Kühlzeit von ca. 6 Jahren bis zu 6.9 E-8 W/kg (25 mrem/h).

### 2.3. Untersuchte Proben

#### 2.3.1. Herkunft und Bestrahlungsgeschichte

Es wurden insgesamt 13 Brennstoffproben untersucht. Sie stammen aus dem KKW Obrigheim, einem Druckwasserreaktor mit 350 MW<sub>e</sub>. 10 Proben (738-747) sind Standard-UO<sub>2</sub>-Brennstoffe mit 2.83 bzw. 3 % Anreicherung an U-235 (s. Tab. 4). Drei weitere Proben (247-249) sind Mischoxidbrennstoffe mit rückgeführtem Plutonium. Die Anfangszusammensetzung dieser

Proben ist aus Tab. 6 zu ersehen. Tab. 4 bzw. 5 gibt weiter Auskunft über die Bestrahlungsgeschichte der Proben. Die Daten wurden vom Betreiber zur Verfügung gestellt /28/. An ausgewählten Stellen bestimmter Brennstäbe der Brennelemente 124, 210 und 251 wurden Pellets abgetrennt. Angaben über die Plazierung der Brennstäbe im Reaktor während der Bestrahlungszyklen sowie über die Stellen der Pelletentnahme aus den Brennstäben sind in /10/ und /28/ zu finden.

Probe	Bezeichnung	BE	Anreicherung U-235/Gew. %	Bestrahlungs- zyklen
738	D1-P1	124	3	2, 4, 5
739	E3-P2	124	3	2, 4, 5
740	E3-P4	124	3	2, 4, 5
741	G7-P1	124	3	2, 4, 5
742	G7-P3	124	3	2, 4, 5
743	G7-P5	124	3	2, 4, 5
744	M14-P1	124	3	2, 4, 5
745	M14-P4	124	3	2, 4, 5
746	G14-P3(1)	210	2,83	3, 4, 5
747	K14-P4(1)	210	2,83	3, 4, 5
247	330	251		5, 6, 7
248	425	251	s. Tab. 6	5, 6, 7
249	288	251		5, 6, 7

Tab. 4: Bezeichnungen und Bestrahlungszyklen der UO<sub>2</sub>- und MOX-Proben und Anfangszusammensetzung der UO<sub>2</sub>-Proben.

Zyklus	Bestrahlungszeit
2	30. 9.70 - 12.8.71
3	30. 9.71 - 7.9.72
4	5.10.72 - 1.9.73
5	25. 9.73 - 16.8.74
6	15. 9.74 - 6.6.75
7	7. 7.75 - 13.5.76

Tab. 5: Dauer der Bestrahlungszyklen

Probe	247	248,249
Nukliddichte/At/E-24 cm <sup>3</sup>		
U-234	.1032E-5	.1607E-5
U-235	.1486E-3	.1432E-3
U-236	-	.2450E-4
U-238	.2051E-1	.1991E-1
Pu-238	.2051E-6	.1150E-5
Pu-239	.4037E-3	.6373E-3
Pu-240	.9448E-4	.1494E-3
Pu-241	.1805E-4	.2860E-4
Pu-242	.3329E-5	.5341E-5
O	.4236E-1	.4180E-1
Am-241	~.18E-5	~.28E-5

Tab. 6: Anfangszusammensetzung der MOX-Proben

### 2.3.2. Abbrandbestimmung

Die Abbrandwerte der Proben 738-747 wurden bereits früher bestimmt /10/. Der Abbrand jeder Probe wurde jedoch nur durch einmalige Neodym-Analyse ermittelt. Dabei wurde die Nd-148-Konzentration mittels massenspektrometrischer Isotopenverdünnungsanalyse bestimmt. Außerdem zeigten sich bei einigen Doppelbestimmungen in den Labors in Ispra und Karlsruhe Unterschiede zwischen den gefundenen Abbrandwerten. Deshalb wurden die Abbrandbestimmungen wiederholt. Der Abbrand wurde  $\gamma$ -spektrometrisch anhand der Cäsium-137-Konzentration ermittelt. Dazu wurden definierte Mengen der salpetersauren Probenlösung auf Zählplättchen aufgebracht (zwei Plättchen pro Probe) und jedes Plättchen mehrmals in einem  $\gamma$ -Spektrometer IN 90 der Fa. Intertechnique gemessen.

Die Konzentration des Cäsium ergibt sich aus:

$$K_{Cs} = e^{\lambda t} \cdot Ips : (W \cdot K_p \cdot \eta \cdot \lambda \cdot RI_{137}) \quad (2)$$

$K_{Cs}$  : Konzentration von Cs-137 in Atomen pro g Brennstoff zum Entladezeitpunkt

$\lambda$  : Zerfallkonstante von Cs-137

$t$  : Zeitraum zwischen Entlade- und Meßzeitpunkt

$Ips$  : Impulse pro Sekunde

$W$  : Menge an Probenlösung in Gramm

$K_p$  : Konzentration der Probenlösung in g Brennstoff pro g Lösung

$\eta$  : Wirkungsgrad des Spektrometers

$RI_{137}$  : Relative Intensität der Cs-137-Linie

$\eta \cdot \lambda \cdot RI_{137} = 2.285 \text{ E-13 sec}^{-1}$

$K_{Cs}$  wird auf die Zahl der schweren Kerne vor der Bestrahlung pro g Brennstoff ( $K_s^0$ ) bezogen. Dies ergibt den Wert CsIMA, gleichbedeutend mit Cäsium pro ursprünglicher Metallatome (initial metal atoms). Die Werte  $K_s^0$  jeder Probe wurden

bereits früher über ein Isotopenanalysenverfahren /29/ ermittelt. Dieses Vorgehen ermöglicht es, eventuelle Verdünnungsfehler beim Auflösen der Proben zu eliminieren.

Tab. 7 zeigt die gemessenen Werte und die Ergebnisse.

Probe	$K_{Cs}$	VK	$K_S^{\circ}$	CsIMA
738	2.932 E 18	3.5	2.216 E 21	1.323 E-3
739	4.425 E 18	1.1	2.254 E 21	1.963 E-3
740	4.827 E 18	1.3	2.206 E 21	2.188 E-3
741	2.772 E 18	1.9	2.222 E 21	1.247 E-3
742	4.763 E 18	0.59	2.206 E 21	2.158 E-3
743	4.079 E 18	0.60	2.221 E 21	1.836 E-3
744	2.428 E 18	2.6	2.209 E 21	1.099 E-3
745	3.939 E 18	3.2	2.215 E 21	1.778 E-3
746	5.670 E 18	1.7	2.226 E 21	2.547 E-3
747	5.299 E 18	1.8	2.210 E 21	2.398 E-3

Tab 7: Cs-137 - Konzentration in UO<sub>2</sub>-Brennstoffen

Der Abbrand  $F_t$  berechnet sich nach:

$$F_t = K_f : (Y_f \cdot K_S^{\circ}) \quad (3)$$

$F_t$  : Abbrand in Atom %

$K_f$  : Konzentration der Kerne des Spaltprodukts f zum Entladezeitpunkt in Atomen pro g Brennstoff

$Y_f$  : Spaltausbeute von f

$K_S^{\circ}$  : Konzentration der schweren Kerne zum Beladezeitpunkt in Atomen pro g Brennstoff

Der Abbrand ist dem Wert  $K_f/K_S^{\circ}$  und damit CsIMA direkt proportional.

Die Bestimmung des Abbrandes über Neodym-148 bietet jedoch verschiedene Vorteile /25/. Insbesondere ist die Spaltausbeute für Nd-148 weitgehend unabhängig von der Energie des Spaltneutrons und vom Spaltmaterial. Dieses Verhalten zeigt sich beim Cäsium-137 weniger ausgeprägt /30, 31/.

Um diesen Einfluß von  $Y_{Cs}$  auf die Abbrandbestimmung zu verringern, wurde wie folgt vorgegangen:

Die Werte CsIMA wurden über dem früher ermittelten "Neodymabbrand"  $F'_t$  (Abb. 4) aufgetragen. Die Ausgleichsgerade wurde berechnet. Der zum betrachteten Wert CsIMA gehörende Abbrand in Atom % wurde bestimmt. Dies ergab den Abbrand  $F_t$ .

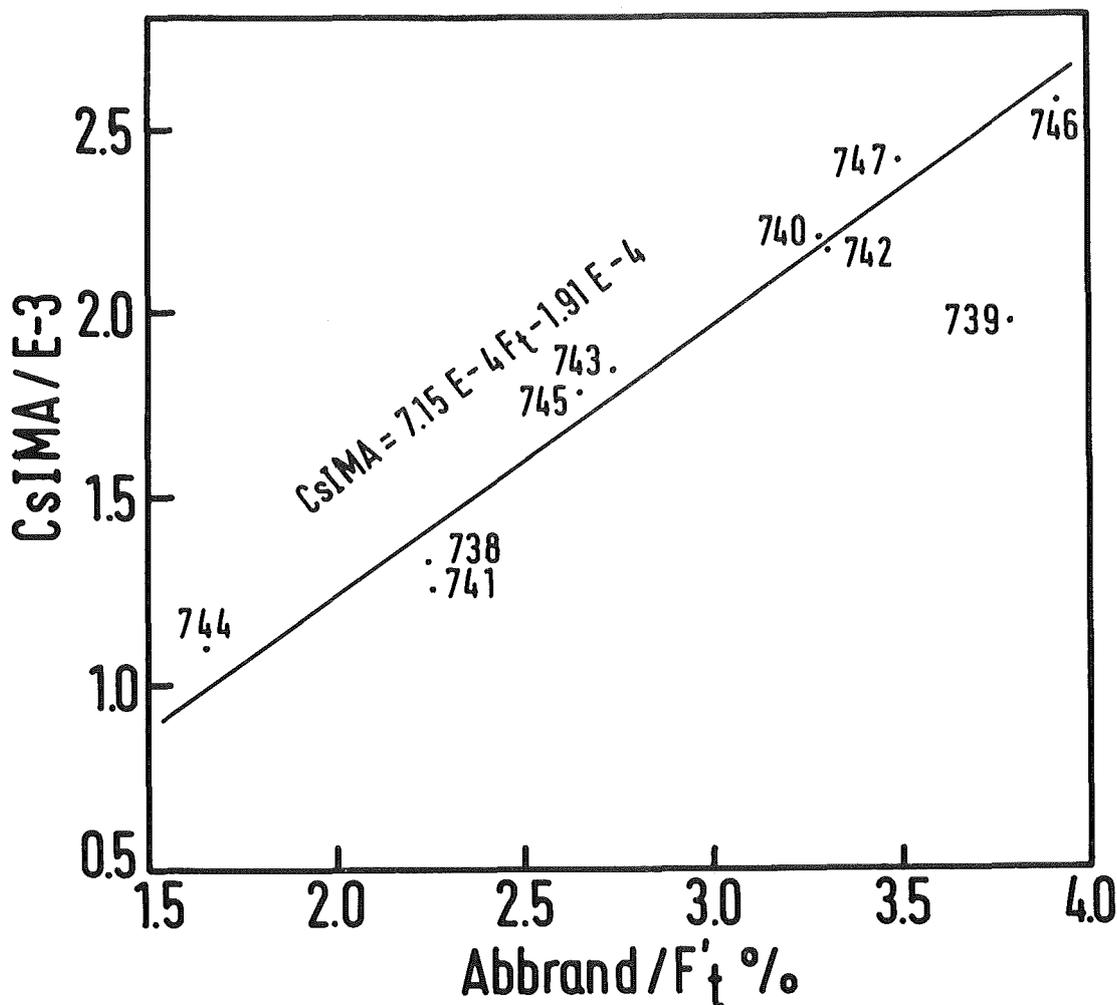


Abb. 4: Cs-137-Konzentration vs. "Neodymabbrand" für die Standardbrennstoffe

Tab. 8 zeigt die über Neodym und Cäsium bestimmten Abbrandwerte  $F'_t$  und  $F_t$ . Die Variationskoeffizienten der "Cäsium-abbrandwerte" liegen mit ca. 2.5 % (s. Tab. 7) im üblichen Rahmen von  $\gamma$ -spektrometrischen Abbrandbestimmungen über Cäsium-137.

Probe	738	739	740	741	742
$F'_t$ %	2.25	3.79	3.29	2.26	3.31
$F_t$ %	2.12	3.01	3.33	2.01	3.28
Probe	743	744	745	746	747
$F'_t$ %	2.74	1.66	2.65	3.92	3.50
$F_t$ %	2.83	1.80	2.75	3.83	3.62

Tab. 8: Über Neodym ( $F'_t$ ) und Cäsium ( $F_t$ ) bestimmte Abbrandwerte.

Die Neodym- und Cäsiumwerte stimmen relativ gut überein. Einzige Ausnahme ist die Probe 739. Wie bereits in /10/ zu sehen, scheint der "Neodymabbrandwert" zu hoch zu sein.

Die Ausgleichsgerade in Abb. 4 wurde deshalb ohne diesen Wert berechnet. Im folgenden werden für die Proben 738-747 die Abbrandwerte  $F_t$  verwendet.

Die Abbrandwerte der MOX-Proben 247-249 wurden im Rahmen des bereits erwähnten Isotopenanalysenverfahrens /29/ jeweils vier- bzw. fünfmal über die Neodym-148-Konzentrationen bestimmt.

Zur Bestimmung der Nd-148-Konzentrationen dienten massenspektrometrische Isotopenverdünnungsanalysen mit Nd-150 als Indikator. Die Auswertung erfolgt entsprechend Gleichung (4). Nach Gleichung (3) ergeben sich mit  $Y_f$  und  $K_s^o$  direkt die gesuchten Abbrandwerte. Für  $Y_f$  wird der Wert  $1.73 \text{ E-}2$  verwendet. Tab. 9 zeigt die Ergebnisse.

Probe	$K_S^{\circ}$	$F_t' \%$	VK
247	2.157 E21	3.45	2.4
248	2.222 E21	3.76	1.3
249	5.170 E19*	3.02	2.8

Tab. 9:  $K_S^{\circ}$  und Abbrandwerte für die MOX-Proben.

\* Atome pro g konzentrierter Lösung (s. 2.3.1.).

Zur Umrechnung des Abbrands von  $F_t \%$  in Gwd/t Schwermetall (s. Tab. 10) wird für die  $UO_2$ -Proben der Faktor 9.617, für die MOX-Proben der Faktor 9.823 verwendet. Da der Abbrand in Gwd/tSM proportional zu  $E \cdot F_t \%$  ist - wobei E die mittlere pro Spaltung freigesetzte Energie in MeV bedeutet - ergeben sich aus der Tatsache, daß E für Plutoniumbrennstoffe ca. 2.5 % größer ist als für Uranbrennstoffe die unterschiedlichen Umrechnungsfaktoren /10, 32/.

Im folgenden wird für tSM die Bezeichnung t verwendet.

Probe	738	739	740	741	742
Gwd/t	20.4	29.0	32.0	19.3	31.6
Probe	743	744	745	746	747
Gwd/t	27.3	17.3	26.5	36.8	34.8
Probe	247	248	249		
Gwd/t	33.9	36.9	29.7		

Tab. 10: Abbrandwerte der untersuchten Proben

#### 2.4. Auswertung

Die Konzentration  $K_{\text{Cm}}''$  der Curiumisotope 244, 245, 246, 247 in den untersuchten Probenlösungen ergibt sich aus:

$$K_{\text{Cm}}'' = \frac{K_i}{K_p} \cdot \frac{W_i}{W_p} \cdot \frac{R_m - R_i}{1 - R_m : R_p} \quad (4)$$

- $K_{\text{Cm}}''$  : Konzentration des betrachteten Curiumisotops in Atomen pro g Brennstoff
- $K_i$  : Konzentration der Indikatorlösung (s. 2.2.2.)
- $K_p$  : Konzentration der Probe in g Brennstoff pro g Lösung
- W : Gewicht der Lösung in Gramm
- R : Isotopenverhältnis: betrachtetes Cm-Isotop zu Cm-248
- p : Probe
- m : Mischung aus Probe und Indikator

Ändert sich die Konzentration des Indikators (s. Indikator II), so muß  $K_i$  auf den Mischzeitpunkt von Probe und Indikator bezogen werden.  $R_m : R_p$  kann vernachlässigt werden, da  $R_p$  etwa  $E5 R_m$  beträgt.

Gleichung (4) kann zur Bestimmung von Cm-242 und Cm-243 nicht angewendet werden. Da zu Cm-242 und Cm-243 isobare Americiumnuklide existieren und diese bei der zur Curiumbestimmung notwendigen höheren Temperatur am Massenspektrometer mitgemessen werden, entspricht  $R_m$  dem Verhältnis Cm+Am(242 bzw. 243) zu Cm-248. Bei den anderen Curiumisotopen gibt es dagegen keine störenden isobaren Nuklide.

Die Bestimmung der Curiumisotope der Massen 242 und 243 erfolgt deshalb durch Anwendung folgender Gleichung:

$$\frac{C3}{C4} = \left( \frac{(C3+A3) : C8 - R_i}{A1 : C8} - \frac{A3}{A1} \right) : \frac{C4 : C8 - R_i}{A1 : C8} \quad (5)$$

C3, C4, C8: Cm-243, Cm-244, Cm-248 in At %

A1, A3 : Am-241, Am-243 in At %

R<sub>i</sub> : s. Tab. 2

Eine entsprechende Gleichung gilt für Cm- bzw. Am-242.

Das Verhältnis Am-243/Am-241 wird bei niedriger Temperatur aufgenommen. Bei dieser Temperatur bilden sich noch keine Thermionen des Curiums. Bei höherer Meßtemperatur werden die Verhältnisse Cm-243 + Am-243 zu Am-241 und Cm-244 zu Am-241 bestimmt /26, 33, 34/. Entsprechend (5), mit der aus (4) errechneten Menge an Cm-244, ergibt sich die Konzentration an Cm-243 bzw. Cm-242 ( $K''_{\text{Cm}}$ ) unmittelbar.

$K''_{\text{Cm}}$  bedeutet die Konzentration des betrachteten Curiumisotops am Tage der jeweiligen Messung. Zur Vereinheitlichung der Ergebnisse werden diese Werte unter Berücksichtigung der entsprechenden Halbwertszeiten auf den Entladezeitpunkt der Brennstäbe aus dem Reaktor zurückgerechnet. Dies ergibt den Wert  $K'_{\text{Cm}}$ .

$$K'_{\text{Cm}} = K''_{\text{Cm}} \cdot e^{\lambda_{\text{Cm}} t} \quad (6)$$

$K'_{\text{Cm}}$  : Konzentration des betrachteten Curiumisotops in Atome pro g Brennstoff zum Entladezeitpunkt

$K''_{\text{Cm}}$  : entsprechend  $K'_{\text{Cm}}$  zum Meßzeitpunkt

$\lambda_{\text{Cm}}$  : Zerfallskonstante des betrachteten Curiumisotops

t : Zeitraum zwischen Entlade- und Meßzeitpunkt

Nach Gleichung (6) werden die Curiumisotope 243 und 244 zurückgerechnet. Für die Isotope 245, 246, 247 findet keine Korrektur statt, da die entsprechenden Halbwertszeiten groß sind gegen die Zeit t.

Zur Berechnung des Cm-242-Inventars zum Entladezeitpunkt ist die Bildung von Cm-242 aus Am-242m bzw. Am-242 während der Lagerzeit des Brennstoffes zu berücksichtigen. Die zum Entladezeitpunkt vorhandene Cm-242-Konzentration errechnet sich dann nach:

$$K'_{C2} = K''_{C2} e^{\lambda_{C2}t} - \frac{\lambda_{A2m} \cdot b \cdot c}{\lambda_{C2} - \lambda_{A2m}} K'_{A2m} \left[ e^{(\lambda_{C2} - \lambda_{A2m})t} - 1 \right] - c \cdot K'_{A2} \quad (7)$$

- $K'_{C2}$  : Konzentration Cm-242 in Atomen pro g Brennstoff zum Entladezeitpunkt  
 $K''_{C2}$  : entsprechend  $K'_{C2}$  zum Meßzeitpunkt  
 $K'_{A2m}$  : Konzentration Am-242m in Atomen pro g Brennstoff zum Entladezeitpunkt  
 $K'_{A2}$  : Konzentration Am-242 entsprechend  $K'_{A2m}$   
 $\lambda_{C2}$  : Zerfallskonstante von Cm-242 (4.258 E-3/d)  
 $\lambda_{A2m}$  : Zerfallskonstante von Am-242m (1.249 E-5/d)  
 $b$  : Am-242m I.T. (0.995) /35/  
 $c$  : Am-242  $\beta^-$  (0.827)  
 $t$  : s. Gleichung (6)

Da die in Gleichung (7) benötigten Konzentrationen an Am-242m bzw. Am-242 im Rahmen der vorliegenden Arbeiten nicht bestimmt wurden, mußten diese Werte anderweitig gewonnen werden. In Ermangelung experimenteller Werte wurden die Ergebnisse des Programms KORIGEN (s. 3.) herangezogen: Für  $K'_{A2m}$  bzw.  $K'_{A2}$  wurden die für den Entladezeitpunkt berechneten Konzentrationen an Am-242m bzw. Am-242 eingesetzt.

Abb. 5 verdeutlicht die Zeitabhängigkeit des Cm-242-Inventars, wobei der (kleine) Term  $c \cdot K'_{A2}$  nach Gleichung (7) unberücksichtigt bleibt.

Ohne Anwesenheit von Am-242m zum Entladezeitpunkt ( $t=0$ ) wird der zeitliche Verlauf der Cm-242-Konzentration durch die punktierte Gerade beschrieben. Die Konzentrationen von

Americium und Curium sind in willkürlichen Einheiten angegeben. Das berechnete Verhältnis Am-242m zu Cm-242 für  $t=0$  liegt zwischen 0.08 (gestrichelte Gerade) und 0.03 (durchgezogene Gerade), wobei der Americiumanteil mit steigendem Abbrand bei sonst gleichen Bedingungen abnimmt. Für die MOX-Proben liegt der Anteil nahe bei 0.08. Die eingezeichneten Analysenzeiten zeigen, daß für die MOX und besonders die  $UO_2$ -Proben der Americiumanteil im Brennstoff eine nicht zu vernachlässigende Rolle bei der Bestimmung des Cm-242-Inventars zum Entladezeitpunkt spielt (gestrichelte bzw. durchgezogene Kurve).

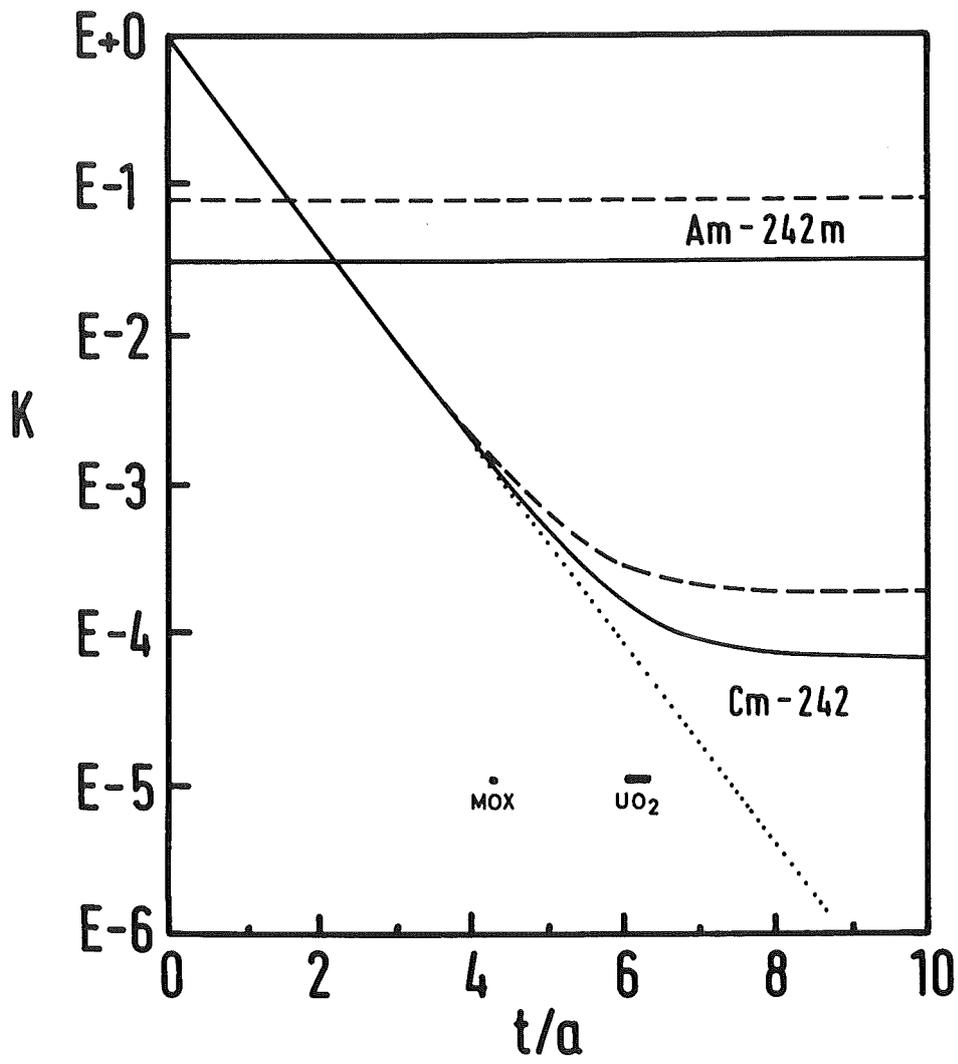


Abb. 5: Zeitabhängigkeit des Am-242- und Cm-242-Inventars

Die massenspektrometrische Bestimmung der Cm-242-Isotope nach obiger Methode führte nicht zu ausreichend genauen Resultaten. Durch den nicht unbeträchtlichen Zeitraum zwischen Entladezeitpunkt der Brennstäbe aus dem Reaktor und Analysenzeitpunkt war die Cm-242-Konzentration inzwischen auf einen Bruchteil ihres ursprünglichen Wertes gesunken (vgl. Abb. 5). Außerdem muß zur Berechnung des Cm-242-Inventars eine Korrektur wegen des störenden isobaren Americiumisotops nach Gleichung (5) durchgeführt werden. In dieser Gleichung sind Minuend und Subtrahend bei den gegebenen Bedingungen annähernd gleich groß: die Differenz zeigt also zwangsläufig einen großen Fehler. Abhilfe war hier durch die Anwendung der  $\alpha$ -Spektrometrie möglich. Dank eines günstigen  $\alpha$ -Aktivitätsverhältnisses (Cm-242:Cm-244 = 40.63 : 1) konnten die kleinen Konzentrationen Cm-242 noch mit akzeptabler Genauigkeit ermittelt werden.

$$K''_{C2} = ((SA_{C3} : SA_{C2}) K''_{C3} + (SA_{C4} : SA_{C2}) K''_{C4}) \cdot (I_{C2} : I_{C3+C4}) \quad (8)$$

$K''$  : s. Gleichung (7)

SA : spezifische Aktivität in Zerfällen pro Zeiteinheit

I : Impulse pro Zeiteinheit

$C2, C3, C4$  : Cm-242, Cm-243, Cm-244

Die Ergebnisse aus Gleichung (8) werden dann mit der Gleichung (7) korrigiert.

Die Curiumkonzentrationen in Atomen pro g Brennstoff ( $K'_{Cm}$ ) aus Gleichung (6) und (7) werden zu Vergleichszwecken umgerechnet in g Curium zum Entladezeitpunkt pro ursprünglicher t Schwermetall ( $K_{Cm}$ ):

$$K_{\text{Cm}} = K'_{\text{Cm}} \cdot m_{\text{A}} \cdot N_{\text{A}}^{-1} \cdot f_{\text{O}} \cdot E6 \quad (9)$$

$$K_{\text{Cm}} = (K'_{\text{Cm}} \cdot m_{\text{A}} \cdot E6) : (K_{\text{S}}^{\circ} \cdot 238) \quad (10)$$

- $K_{\text{Cm}}$  : Konzentration des betrachteten Curiumisotops zum Entladezeitpunkt in g pro ursprünglicher t Schwermetall.
- $K'_{\text{Cm}}$  : s. Gleichung (6) bzw. (7)
- $m_{\text{A}}$  : Masse des Isotops in atomaren Masseneinheiten
- $N_{\text{A}}$  : Avogadrosche Konstante (6.02238 E23/gAt)
- $f_{\text{O}}$  : Sauerstofffaktor (270u : 238u = 1.1345) zur Umrechnung von stöchiometrischem Oxid in Metall
- $K_{\text{S}}^{\circ}$  : Konzentration der schweren Kerne zum Beladezeitpunkt in Atomen pro g Brennstoff

Gleichung (9) muß zur Berechnung von  $K_{\text{Cm}}$  verwendet werden, wenn keine Werte  $K_{\text{S}}^{\circ}$  vorhanden sind. Für die vorliegenden Proben liegen die Werte  $K_{\text{S}}^{\circ}$  vor.

Die Berechnung von  $K_{\text{Cm}}$  erfolgt deshalb nach Gleichung (10) über die IMA-Werte ( $\text{CmIMA} = K'_{\text{Cm}} : K_{\text{S}}^{\circ}$ ). Dieses Vorgehen hat, wie bereits erwähnt, den Vorteil, u. a. eventuelle Verdünnungsfehler zu eliminieren. Fehlt der Wert  $K_{\text{p}}$ , wie dies bei der Probe 249 der Fall ist, so stellt die Benutzung von Gleichung (10) die einzige Möglichkeit dar,  $K_{\text{Cm}}$  zu bestimmen.

Eine Berücksichtigung der Massendiskriminierung ist bei der Bestimmung des Cm-244-Gehalts der Proben nicht notwendig, da durch die oben dargelegte Vorgehensweise sich ein Massendiskriminierungsfaktor Cm-244/Cm-248 herauskürzt: zunächst wird die Konzentration an Cm-248 aus dem Verhältnis Cm-248/Cm-244 bestimmt und dann unter Verwendung dieses Wertes die Konzentration an Cm-244 aus dem Verhältnis Cm-244/Cm-248 ermittelt.

Ein Massendiskriminierungsfaktor für die anderen Curiumisotope konnte nicht bestimmt werden, da es keine entsprechenden Curiumisotopenstandards gibt. Ein solcher Faktor dürfte von ähnlicher Größenordnung sein wie der für die verschiedenen Plutoniumisotope. Dort beträgt die Abweichung von 1 nur Bruchteile von Promillen.

Nachfolgend sind die für die Berechnung der Konzentrationen der verschiedenen Curiumisotope verwendeten Atommassen und Halbwertszeiten aufgeführt (Tab. 11). Außerdem sind in Tab. 12 am Beispiel der Probe 747 die Quelldaten zur Berechnung des Curiuminventars der untersuchten Proben nach Gleichung (4) bis (10) zusammengestellt.

Cm	$t_{1/2}$	$m_A/u$
242	162.8 a	242.059
243	28.5 a	243.061
244	18.11 a	244.063
245	(8500 a)	245.065
246	(4820 a)	246.067
247	(1.56E7 a)	247.069
248	(3.397E5 a)	248.071

Tab. 11: Atommassen und Halbwertszeiten

$K_i$             6.146 E13  
 $K_p$             3.102 E-4  
 $R_i$             s. Tab. 2

Meßdat. 3.10.80

747/1			$W_i$	3.5198 E-0	
			$W_p$	1.77255E+1	
$R_m 4$	1.7143 E-0	1.7058 E-0		1.7126 E-0	
$R_m 5$	9.2081 E-2	9.2029 E-2		9.2554 E-2	9.0911 E-2
$R_m 6$	4.4502 E-2	4.5265 E-2		4.5028 E-2	4.4561 E-2
$R_m 7$	3.112 E-4				
A3:A1	3.4345 E-1	3.4550 E-1		3.4716 E-1	3.4707 E-1
747/2			$W_i$	3.4895 E-0	
			$W_p$	2.19959E+1	
$R_m 4$	2.1488 E-0	2.1397 E-0		2.1392 E-0	
$R_m 5$	1.1568 E-1	1.1499 E-1		1.1501 E-1	1.1504 E-1
$R_m 6$	4.7668 E-2	4.7457 E-2		4.7532 E-2	4.7915 E-2
$R_m 7$	—				
A3:A1	3.4245 E-1	3.4410 E-1		3.4354 E-1	3.4435 E-1
747/3			$W_i$	3.8575 E-0	
			$W_p$	2.32540E+1	
$R_m 4$	2.0555 E-0	2.0508 E-0		2.0426 E-0	2.0507 E-0
$R_m 5$	1.1032 E-1	1.0920 E-1		1.0827 E-1	
$R_m 6$	4.8060 E-2	4.7971 E-2			
$R_m 7$	—				
A3:A1	3.4705 E-1				

Meßdat. 18.8.80

$I_{C2}:I_{C3+C4}$  6.5571 E-3 6.5197 E-3 6.6099 E-3

Meßdat. 15.7.80

747/4

(C3+A3):C8	2.2827 E-2	2.1268 E-2	2.0843 E-2
C4:C8	1.1399 E+0	1.1276 E+0	1.0829 E+0
A1:C8	2.9627 E-2	2.5428 E-2	2.3356 E-2

747/5

(C3+A3):C8	3.9802 E-2	5.0788 E-2
C4:C8	8.6245 E-1	8.2776 E-1
A1:C8	8.4304 E-2	1.2143 E-2

747/6

(C3+A3):C8	2.9926 E-2	2.6395 E-2
C4:C8	1.1940 E+0	1.2134 E+0
A1:C8	4.9550 E-2	3.9820 E-2

$K'_{A2m}$  4.99 E-1 g/tSM

$K'_{A2}$  3.87 E-2 g/tSM

Tab. 12: Quelldaten zur Berechnung von Probe 747

## 2.5. Ergebnisse und Fehlerdiskussion

Nach Kapitel 2.4. ergibt sich das Curiuminventar der untersuchten Brennstoffproben. Die experimentell ermittelten Curiumkonzentrationen ( $K_{\text{Cm}}$ ) in g pro t Schwermetall sind in Tab. 13 aufgelistet.

Die Ergebnisse für die Standardbrennstoffe zeigt Abb. 9. Die Konzentrationen der Curiumisotope der Massen 242 bis 247 zum Entladezeitpunkt sind durch die Zeichen +, · usw. dargestellt. Da sich der Bereich der Curiumkonzentrationen über fünf Größenordnungen erstreckt, wurde ein logarithmischer Maßstab gewählt. Der untersuchte Abbrandbereich von 17 bis 37 GWd/t erscheint im linearen Maßstab.

Die Cm-242-Konzentrationen liegen zwischen 5 und 50 g pro t Schwermetall, die Cm-243-Konzentrationen zwischen 40 und 500 mg pro t und die Cm-244-Konzentrationen zwischen 0.7 und 55 g pro Tonne. Die entsprechenden Werte von Cm-245 erstrecken sich von 15 bis 2500 mg und die von Cm-246 von 2.5 bis 400 mg. Für Cm-247 konnten nur Konzentrationswerte bei Proben mit einem höheren Abbrand als 30 GWd/t bestimmt werden. Sie liegen zwischen 0.9 und 4.5 mg pro Tonne. Die untere Nachweisgrenze für Curium bei den gewählten Bedingungen war etwa 0.5 mg Curium pro t Schwermetall.

Die Konzentrationswerte der untersuchten Curiumisotope nehmen mit steigendem Abbrand unterschiedlich stark zu. Cm-242 und Cm-243 zeigen einen flacheren Anstieg, während bei Cm-244 bis Cm-247 eine stärkere Abbrandabhängigkeit zu sehen ist. Dieses Verhalten ist in Übereinstimmung mit den beiden Bildungswegen der genannten Curiumisotope über Am-241 bzw. Pu-242.

Ebenfalls aus diesem Aufbauschema resultiert, daß die Curiumkonzentrationen für einen vorgegebenen Abbrand für Cm-243 kleiner als für Cm-242 und für Cm-247 < Cm-246 < Cm-245 < Cm-244 sind.

Für die Mischoxidbrennstoffe sind die experimentell bestimmten Curiumkonzentrationen in Abb. 11 zu sehen (große Zeichen). Im untersuchten Abbrandbereich von 30 bis 37 GWd/t liegen die Cm-242-Konzentrationen zwischen 60 und 90 g pro t Schwermetall,

Curium	242	243	244	245	246	247
Probe						
738	8.35 E+0	8.04 E-2	1.719 E+0	3.67 E-2	2.64 E-3	—
739	—	2.99 E-1	1.338 E+1	4.91 E-1	3.69 E-2	—
740	—	3.64 E-1	2.338 E+1	1.00 E+0	1.03 E-1	8.71 E-4
741	5.55 E+0	4.05 E-2	1.469 E+0	3.84 E-2	—	—
742	—	5.43 E-1	2.651 E+1	1.21 E+0	1.31 E-1	—
743	—	—	1.176 E+1	4.75 E-1	2.61 E-2	—
744	—	—	6.554 E-1	1.43 E-2	—	—
745	1.46 E+1	1.31 E-1	9.606 E+0	3.71 E-1	2.62 E-2	—
746	5.04 E+1	4.31 E-1	5.486 E+1	2.49 E+0	3.78 E-1	4.53 E-3
747	4.43 E+1	4.04 E-1	3.952 E+1	1.67 E+0	2.39 E-1	2.98 E-3
247	6.39 E+1	—	1.691 E+2	1.04 E+1	1.29 E+0	—
248	8.95 E+1	2.99 E+0	1.736 E+2	1.17 E+1	1.18 E+0	—
249	8.02 E+1	2.85 E+0	1.183 E+2	8.65 E+0	5.54 E-1	—

Tab. 13: Experimentell bestimmte Curiumkonzentrationen  $K_{Cm}$  in g/t

die Cm-243-Konzentrationen bei 3 g pro t. Der Cm-242-Gehalt von Probe 247 (33.9 GWd/t) ist im Vergleich zu den beiden anderen MOX-Proben deutlich niedriger.

Die Cm-244-Konzentrationen erstrecken sich von 120 bis 180 g/t, die entsprechenden Cm-245-Werte von 9 bis 12 g/t und die Cm-246-Werte von 0.6 bis 1.3 g pro t Schwermetall. Für die Probe 247 liegen die Konzentrationen der Curiumisotope der Massen 244 und 246 höher als im Vergleich zu den beiden anderen Proben erwartet wird. Curium 245 zeigt kein solches Verhalten.

Entsprechend den Verhältnissen bei den Standardbrennstoffen läßt sich ein, wenn auch nicht kontinuierlicher, Anstieg der Curiumkonzentrationen mit dem Abbrand erkennen.

Die während des Reaktorbetriebs aufgebauten Curiummengen sind zum Entladezeitpunkt für die Mischoxidbrennstoffe um fast eine Größenordnung größer als für die Standardbrennstoffe.

Die Variationskoeffizienten der ermittelten Daten für Cm-242, 243, 244, 245, 246 liegen bei  $< 10$ ,  $< 10$ ,  $< 0.5$ ,  $< 1$ ,  $< 10$  % bzw.  $< 3$  % für Cm-242 bei den MOX-Proben. Diese Werte resultieren aus der Streuung von  $(W_i:W_p) \cdot R_m$  bei den massenspektrometrisch bzw.  $I_{C2}:I_{C3+C4}$  bei den  $\alpha$ -spektrometrisch ermittelten Daten. Für Cm-247 wird kein Variationskoeffizient angegeben, da jeweils nur zwei bis drei Messungen zu einem Ergebnis führten. Die anderen Ergebnisse stammen aus jeweils 6 bis 12 Messungen.

Die hohe Ungenauigkeit der Cm-242-Bestimmung bzw. das Fehlen mehrerer Cm-242-Konzentrationen in den UO<sub>2</sub>-Proben ist hauptsächlich auf die geringen Mengen dieses Isotops in der Probenlösung zurückzuführen. War zum Entladezeitpunkt die Cm-242-Konzentration noch von derselben Größenordnung wie die Cm-244-Konzentration, so befand sie sich zum Meßzeitpunkt bereits unterhalb des Niveaus der Cm-246-Konzentration. Die höhere Cm-242-Konzentration in den MOX-Proben spiegelt sich wider im kleineren Betrag der entsprechenden Variationskoeffizienten.

Die relativ hohen Variationskoeffizienten der Cm-243-Werte resultieren hauptsächlich aus der Technik der stufenweisen Aufheizung am Massenspektrometer und der damit verbundenen

Korrektur des Am-243-Anteils. Minuend und Subtrahend in dieser Gleichung sind annähernd gleich groß, so daß selbst bei kleinen Fehlern dieser beiden Werte eine hohe Ungenauigkeit der Differenz resultiert. Unterschiedlich hohe Abtrennung des Americiums von der Curiumfraktion führte indes zu keiner signifikanten Verringerung des Variationskoeffizienten (der Americiumgehalt der Probenlösungen wurde im Verlauf der Experimente auf den halben bis zwanzigsten Teil der ursprünglich vorhandenen Menge reduziert). Wie nachfolgend gezeigt, ist eine Verringerung des Variationskoeffizienten ebenso wie bei den anderen Curiumisotopen nur durch eine weitere Vergrößerung der Probenmengen möglich. Die Probenmenge wird jedoch, wie bereits erwähnt, begrenzt durch die Strahlendosisleistung.

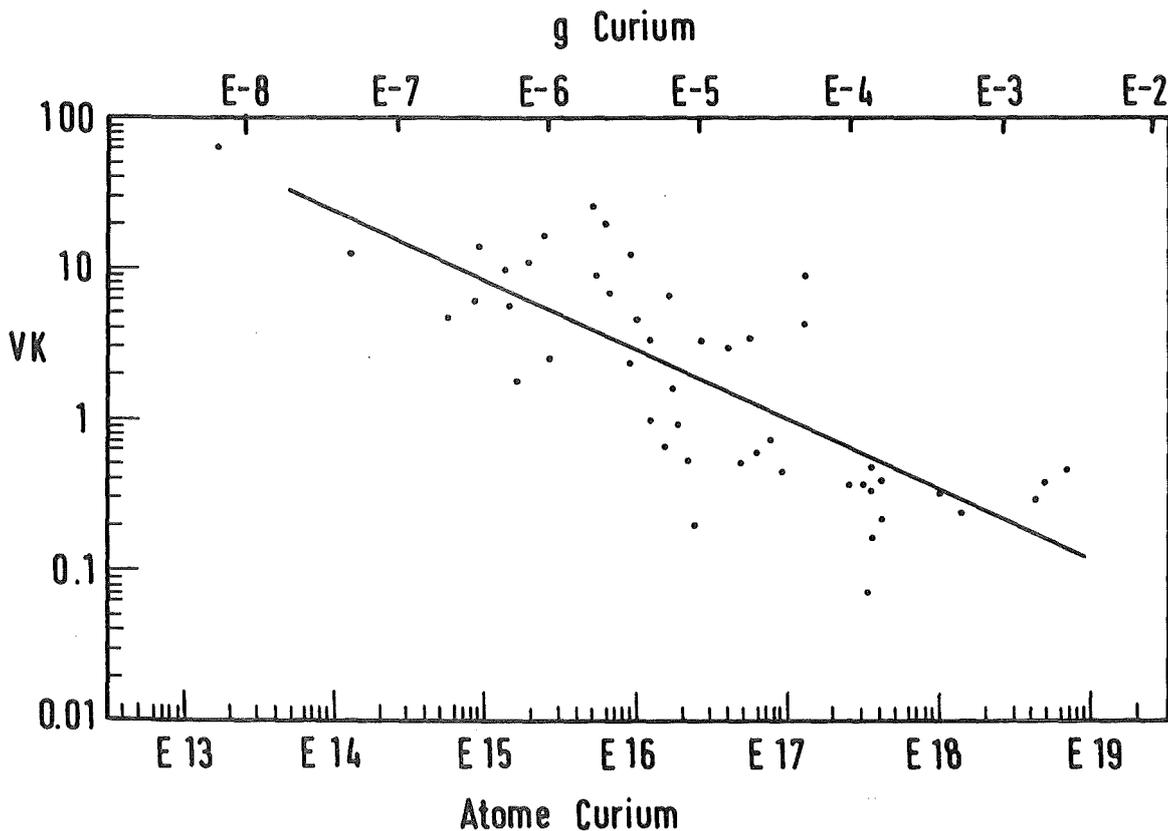


Abb. 6: Variationskoeffizient in Abhängigkeit von der eingesetzten Probemenge

Trägt man die pro Probe eingesetzte Menge der verschiedenen Curiumisotope gegen die erzielten Variationskoeffizienten der Bestimmung eben dieser Isotope auf, so ergibt sich eine Abhängigkeit entsprechend Abb. 6.

Unter der Annahme, daß 20 % der eingesetzten Probemenge auf das Verdampfungsband aufgetragen werden, zeigt sich, daß zur Erzielung eines Variationskoeffizienten von 0.2, 1, 10 % jeweils 2E-4, 8E-6, 6E-8 g Curium am Massenspektrometer zur Verfügung stehen müssen.

Zum eben diskutierten Fehler (resultierend aus  $(W_i:W_p) \cdot R_m$ ) addiert sich der Fehler aus der Streuung der anderen Glieder der Gleichungen (4) bis (10). Dieser zusätzliche Fehler dürfte 0.5 bis maximal 1 % betragen. Der resultierende Variationskoeffizient ergibt sich somit für die Curiumisotope der Massen 242 bis 246 zu  $\leq 10$ ,  $\leq 10$ ,  $\leq 1.5$ ,  $\leq 2$ ,  $\leq 10$  %.

Setzt man die über die IMA-Werte nach Gleichung (10) berechneten  $K_{Cm}$ -Werte gleich 100 % und vergleicht mit den  $K_{Cm}$ -Werten die unter Verwendung eines Sauerstofffaktors nach Gleichung (9) erhalten wurden, so ergibt sich eine Differenz von maximal  $\pm 1.1 \Delta$  %. Einzige Ausnahme ist die Probe 247 mit  $- 3.3 \Delta$  %. Eventuell enthielt auch diese Probe Araldit. Dies würde die gefundene Abweichung erklären.

Die insgesamt gute Übereinstimmung zwischen beiden Ergebnissen zeigt sowohl die Richtigkeit der der Berechnung der Curiumkonzentrationen über die IMA-Werte zugrundeliegenden Materialbilanz als auch das fehlerfreie Einwiegen und Verdünnen der Proben.

Eine graphische Darstellung der Analysenergebnisse sowie eine weitergehende Diskussion der ermittelten Werte folgt in Kapitel 4 bzw. 5.

### 3. Berechnung des Curiumaufbaus mittels KORIGEN

#### 3.1. KORIGEN: Kurze Beschreibung

KORIGEN ist ein Abbrand- und Zerfallsprogramm, welches, ausgehend vom Anfangsinventar eines KKW, das sich unter Neutronenbestrahlung einstellende Entladeinventar und nach der Entladung aus dem Reaktor das durch radioaktiven Zerfall veränderte Inventar berechnet /6, 36/. Es basiert auf dem Programm ORIGEN /37/, welches Brennstoffrechnungen für LWR und andere Reaktoren erlaubt. In der ursprünglichen ORIGEN-Fassung wurde nicht zwischen Druck- und Siedewasserreaktoren unterschieden und es konnten keine zuverlässigen Rechnungen für LWRs mit recycliertem Plutonium gemacht werden. Außerdem wurden die Wirkungsquerschnitte der Neutronenreaktionen über den Bestrahlungszeitraum konstant gehalten. Mit fortschreitendem Abbrand ändert sich jedoch das Neutronenenergiespektrum und somit auch die effektiven Wirkungsquerschnitte.

In KORIGEN kann mit abbrandabhängigen effektiven Einfang- und Spaltquerschnitten für die Aktiniden gerechnet werden. Außerdem unterscheidet es zwischen Druck- und Siedewasserreaktoren und erlaubt Rechnungen für LWRs mit recycliertem Plutonium.

Es können folgende Werte berechnet werden:

1. Jeweils vorhandene Mengen der einzelnen Isotope  
(Nuklidinventar in Gramm)
2. Anzahl der radioaktiven Zerfälle pro Sekunde, bei denen Alpha- oder Betateilchen emittiert werden  
(Aktivität in Curie)
3. Anzahl der pro Sekunde freigesetzten Gammaquanten und deren Energien
4. Anzahl der pro Sekunde freigesetzten Neutronen aus  $\alpha, n$ -Reaktionen und Spontanspaltungen
5. In Form von Wärme freigesetzte Energie (Watt)
6. Inhalations- und Ingestionsgefährdungspotential

Für die 13 untersuchten Proben wurden mittels KORIGEN die Aktinidenwerte, entsprechend Punkt 1, 4, 5 und 6 berechnet.

### 3.2. Eingabedaten

Nachfolgend sind die wichtigsten verwendeten Eingabedaten für KORIGEN aufgelistet. Die Bezeichnungen sind in der auf den folgenden Seiten auszugsweise abgedruckten Benutzeranleitung für KORIGEN erläutert. So ist die Bestrahlungsgeschichte auf Card E und G, die Anfangskonzentrationen der verschiedenen Brennstoffnuklide auf Card K zu finden.

Card A:           NLIBE = 2

Card B:           THERM = 0.701  
                  RES     = 0.304  
                  FAST    = 2.01  
                  INPT    = 0  
                  LPU     = -1

Card C:           KSB     = 1  
                  NGF     = 0

Card E:           POWER       s. Abb. 7

Card G:           T            s. Abb. 7

Card H:           BASIS = metric ton of heavy metal  
                  TUNIT = D

Card K:           INUCL, XCOMP

922350, 1.28 E+2

922380, 4.07 E+3

für Proben 738-745

922350, 1.20 E+2  
922380, 4.08 E+3 für Proben 746, 747

922340, 2.05 E-1  
922350, 2.95 E+1  
922380, 4.07 E+3  
942380, 4.07 E-2  
942390, 8.00 E+1  
942400, 1.87 E+1  
942410, 3.59 E+0  
942420, 6.60 E-1  
952410, 3.6 E-1 für Probe 247

922340, 3.23 E-1  
922350, 2.88 E+1  
922360, 4.92 E+0  
922380, 4.00 E+3  
942380, 2.31 E-1  
942390, 1.28 E+2  
942400, 3.00 E+1  
942410, 5.75 E+0  
942420, 1.07 E+0  
952410, 5.6 E-1 für Proben 248, 249

NEXT = 2

Card U1: ALLWQ = 33P3U ORNL 78 für Proben 738-747  
33P3RM ORNL 78 für Proben 247-249

Die angegebenen Werte sind entsprechend der "Korigen Input Reproduktion" auf drei Stellen gerundet.  
Aus dem experimentell ermittelten Abbrand jeder Probe und einem digitalisierten Leistungs-Zeit-Diagramm des KWO ergeben sich die Werte von Card E und G. Das Leistungsdiagramm (Abb. 7) wurde vom Reaktorbetreiber zur Verfügung gestellt /28/.

CARD A                   FORMAT(18A4,I3,I3,I2)

TITLE     A 72-CHARACTER ALPHAMERIC TITLE WHICH WILL BE PRINTED AS THE HEADING ON THE PRINTOUT OF THE NUCLEAR DATA LIBRARY

NLIBE     AN INTEGER THAT IDENTIFIES THE LIBRARY TO BE USED  
NLIBE = 1/2/3/4 FOR HTGR/LWR/LMFBR/MSBR

IPNUDA    AN INDICATOR THAT CONTROLS PRINTING OF A READABLE  
\*\*\*\*\* TABLE OF NUCLID CHAINS ON UNIT FT45F001  
IPNUDA = 0/1 : DATA ARE NOT PRINTED/ARE PRINTED

IPET      AN INDICATOR THAT CONTROLS PRINTING OF THE PROCESSED  
\*\*\* NUCLEAR DATA AND THE RGC-VALUES  
IPET = 0/1 : DATA ARE PRINTED/ARE NOT PRINTED

CARD 3                   FORMAT(4F10.5,7I2)

THERM     RATIO OF THE NEUTRON REACTION RATE FOR A 1/V-ABSORBER WITH A POPULATION OF NEUTRONS HAVING A MAXWELL-BOLTZMANN DISTRIBUTION OF ENERGIES AT ABSOLUTE TEMPERATURE, T, TO THE REACTION RATE WITH 2200-M/SEC NEUTRONS

RES       RATIO OF THE RESONANCE FLUX PER UNIT LETHARGY TO THE THERMAL NEUTRON FLUX

FAST      RATIO OF FLUX ABOVE ONE MEV TO THE FRACTION OF THE FISSION SPECTRUM ABOVE 1 MEV, DIVIDED BY THE THERMAL NEUTRON FLUX

ERR       A TRUNCATION ERROR LIMIT, 1.E-25 RECOMMENDED

NMD, NDAY, NYR   MONTH, DAY AND YEAR WHEN CASE IS RUN, TO HELP IN IDENTIFYING OUTPUT

MPCTAB    AN OUTPUT OPTION. IF MPCTAB = 0, THE OUTPUT TABLES WILL INCLUDE THE QUANTITIES OF AIR AND WATER THAT COULD BE CONTAMINATED TO THE RADIOACTIVITY CONCENTRATION GUIDE (RCG) VALUES FOR INHALATION AND INGESTION BY EACH OF THE RADIONUCLIDES. OTHERWISE THESE TABLES ARE OMITTED.

INPT      AN INPUT OPTION  
INPT = 0/1 : THE NUCLEAR DATA LIBRARY IS READ FROM UNIT 7 / IS READ FROM CARDS

IR        AN OUTPUT OPTION. IR = 0/1 : THE TRANSITION MATRIX IS NOT PRINTED/THE TRANSITION MATRIX IS PRINTED AS BEING CONSTRUCTED FROM THE DATA LIBRARY. IF IT IS MODIFIED ACCORDING TO THE BURN-UP DEPENDANCE OF THE ACTINIDE CROSS SECTIONS, IT WILL BE PRINTED AT TIME STEP IR, TOO. THIS PRINTOUT OF DECAY CONSTANTS, CROSS SECTIONS, MATRIX ELEMENTS IS A TOOL FOR CONTROLLING THE INPUT OF NUCLEAR DATA TO THE CODE.

LPU       AN OPTION FOR SECONDARY CONSTANT CROSS SECTION INPUT  
\*\*\* LPU = 0 : NO SECONDARY CONSTANT CROSS SECTION INPUT  
LPU > 0 : LPU GIVES THE NUMBER OF ACTINIDE NUCLIDES FOR WHICH THE NUCLEAR DATA LIBRARY SHALL BE MODIFIED INDEPENDENT OF BURN-UP; LPU < 31.  
LPU = -1 : UPDATED BURN-UP AVERAGED ONE GROUP CROSS SECTIONS FOR DIFFERENT TYPES OF REACTORS WILL BE READ FROM UNIT ISB AND/OR FROM CARDS.

CARD C

FORMAT(13I5)

MMN NUMBER OF TIME INTERVALS DURING IRRIDIATION PERIOD,  
MMN < 11.

MOUT TOTAL NUMBER OF INTERVALS FOR IRRIDIATION AND POST-  
IRRIDIATION PERIODS, MOUT < 11.

NOBLND NUMBER OF MATERIALS TO BE BLENDED, ENTER 0 OR 1 IF  
NO BLENDING IS TO BE DONE, NOBLND < 11 ( SEE COMMENT  
ON NOBLND BELOW )

INDEX AN INPUT INDICATOR. INDEX = 0/1 : POWER(M)/FLUX(M)  
WILL BE READ ON A SUBSEQUENT CARD. IF MNN = 0, INDEX  
IS NOT USED BY THE CODE IN THIS STEP.

NTABLE AN OUTPUT INDICATOR. IF NTABLE = 0, ALL ISOTCPES  
AND ALL TIMES WILL BE GIVEN IN THE OUTPUT.  
IF NTABLE = 1, ONLY SUMMARIES OF MOST IMPORTANT ISO-  
TOPES WILL BE GIVEN.

MSTAR AN OUTPUT INDICATOR. WHEN SUMMARIZING THE MOST IM-  
PORTANT ISOTCPES, THE CODE ELIMINATES THE ISOTOPES  
WHOSE VALUES ARE BELOW SOME THRESHOLD IN TIME PERIOD  
M = MSTAR (SEE CARD TYPE I).

NGO AN INDICATOR WHICH TELLS THE CODE WHETHER THE CAL-  
CULATION WILL BE CONTINUED IN A SUBSEQUENT SET OF  
TIMES, OR WHETHER A NEW CALCULATION WILL BE DONE.  
NGO < 0 : THIS INDICATES A NEW CALCULATION WITH NEW  
INITIAL CONDITIONS USING THE SAME NUCLEAR DATA. A  
CARD OF TYPE C WILL BE EXPECTED FOLLOWING CARD K OR  
N. IN CASE OF A BLANK CARD INSTEAD OF CARD C THE PRO-  
GRAM WILL STOP EXECUTION.  
NGO = 0 : THIS INDICATES A NEW CALCULATION WITH A  
NEW SET OF NUCLEAR DATA. A CARD OF TYPE A WILL BE  
EXPECTED FOLLOWING CARD K OR N.  
NGO > 0 : THIS INDICATES THAT THE PRESENT CALCULA-  
TION WILL BE CONTINUED. A CARD OF TYPE O FOLLOWING  
CARD K OR N WILL BE EXPECTED.

MPROS AN INDICATOR FOR CONTINUOUS CHEMICAL PROCESSING  
OPTION.  
MPROS = NUMBER OF GROUPS OF CHEMICAL ELEMENTS PRO-  
CESSED. MPROS = 0 FOR NO CHEMICAL PROCESSING.

MFEED CONTINUOUS FEED OPTION FOR FLUID FUEL REACTOR.  
MFEED = 0 FOR NO CONTINUOUS FEED; MFEED > 0 FOR CON-  
TINUOUS FEED.

JTO AN OUTPUT INDICATOR TO SELECT TABLES AND NUCLIDES  
\*\*\* OR ELEMENTS FOR PRINTING - SEE FOLLOWING TABLE.

KPL AN INDICATOR TO CONTROL STORAGE OF PROPERTIES OF  
\*\*\* IRRIDIATED OR DISCHARGED FUEL FOR PLOTTING PURPOSES  
ETC. KPL = 0/1/2 : NO STORAGE/STORAGE ON UNIT 20  
AND PRINTING SOME CONTROL INFORMATION ON UNIT 3/  
STORAGE ON UNIT 20 AND PRINTING OF COMPLETE CONTROL  
INFORMATION ON UNIT 3.  
NOTE : JOB CONTROL CARDS HAVE TO BE SPECIFIED FOR  
UNIT 3 AND 20.

KSB  
\*\*\* AN INDICATOR FOR SECONDARY BURN-UP DEPENDENT CROSS SECTION INPUT.  
KSB = 1 : FOR ACTINIDES THE CRIGEN CROSS SECTIONS CALCULATED FROM THE NUCLEAR DATA LIBRARY WILL BE REPLACED BY BURN-UP DEPENDENT CORRESPONDING CROSS SECTIONS READ FROM CARDS OR FROM UNIT ISB - SEE CARD T1.  
KSB = 0 : NO BURN-UP DEPENDENT CROSS SECTIONS WILL BE READ.

NGF  
\*\*\* AN INDICATOR FOR THE CHANGE OF SPECTRAL INDICES. TOGETHER WITH NGO = 0 ON THIS CARD A VALUE OF E.G. NGF = 6 TELLS THE CODE THAT AT THE BEGINNING OF THE NEXT SEQUENCE OF TIME STEPS THE CROSS SECTIONS WILL BE RECALCULATED WITH A NEW SET OF SPECTRAL INDICES AND THAT THE FINAL NUCLIDE VECTOR OF TIME STEP 6 WILL BE USED AS THE INITIAL VECTOR FOR THE SUBSEQUENT CALCULATION. FOLLOWING CARD K OR N CARDS OF TYPE A, B, (U1, U2) AND O WILL BE EXPECTED WITH MSUB = NGF = 6 IN OUR CASE ON CARD O.  
NGF = 0 : NO CHANGE OF SPECTRAL INDICES.

CARD E                   FORMAT(10E8.2)

(POWER(M),M=1,MMN)  
SPECIFIC THERMAL POWER OF FUEL IN IRRIDIATION PERIOD M (MW/UNIT OF FUEL). THERE MAY BE PERIODS OF ZERO POWER; HOWEVER, THERE MAY NOT BE TWO CONSECUTIVE ZERO-POWER INTERVALS, AND THE FINAL IRRIDIATION PERIOD MAY NOT HAVE ZERO POWER.

CARD G                   FORMAT(10E8.2)

(T(M),M=1,MDUT)  
ELAPSED TIME SINCE THE BEGINNING OF THE CALCULATION (MEASURED IN TERMS OF TUNIT).  
IF 0.LE.MMN.LT.MDUT THE TIME AFTER DISCHARGE REFERS TO DISCHARGE

CARD H                   FORMAT(10A4,F7.0,A3)

BASIS                   A 40-CHARACTER ALPHAMERIC TITLE THAT IS THE UNIT OF FUEL ON WHICH THE CALCULATION IS BASED AND THAT WILL BE PRINTED OUT AS THE BASIS FOR THE CALCULATION E.G. 'METRIC TON OF FUEL CHARGED TO REACTOR'.  
TCONST                  A FACTOR TO CONVERT THE INPUT VALUES OF T(M) INTO SECONDS E.G., TCONST = 3.155E7 IF VALUES OF T(M) ARE INPUT IN TERMS OF YEARS.  
TUNIT                   AN ALPHAMERIC DESIGNATION FOR THE INPUT UNITS OF T(M), E.G., ' D ' FOR DAYS.

CARD K           FORMAT(5(I6,E9.2),I5)

((INUCL(I),XCOMP(I)),I=1,5),NEXT

INUCL : NUCLIDE IDENTIFIER FOR AN ISOTOPE IN FRESH FUEL = ATOMIC NUMBER\*10000 + ATOMIC WEIGHT\*10 + IS, WHERE IS = 0/1 FOR GROUND STATE/ EXCITED STATE.

XCOMP : CONCENTRATION OF NUCLIDE INUCL IN FRESH FUEL

NEXT : INDICATOR GIVING THE TYPE OF THE 5 ISOTOPES ON THE CARD. THUS ALL FIVE MUST BE OF ONE TYPE.

- NEXT = 1 : ISOTOPES OF CLADDING AND STRUCTURAL MATERIALS IN GRAMATOMS
- 2 : HEAVY MATERIAL ISOTOPES IN GRAMATOMS
- 3 : FISSION PRODUCT ISOTOPES IN GRAMATOMS
- 4 : ELEMENTS OF CLADDING AND STRUCTURAL MATERIALS IN GRAMATOMS.
- 5 : ELEMENTS OF CLADDING AND STRUCTURAL MATERIALS IN GRAMS

CARD U1           FORMAT(6A8,2A8,1X,I5,5X,I5)

WQTIT   A 48-CHARACTER ALPHAMERIC TITLE FOR IDENTIFYING INPUT

\*\*\*\*  
(ALLWQ(I),I=1,2)

\*\*\*\*  
A 16-CHARACTER ALPHAMERIC NAME FOR IDENTIFYING THE REACTOR SPECTRUM DEPENDENT BURN-UP AVERAGED CROSS SECTIONS ON UNIT ISB (DSN=WIESE.INR238.KORIDATA.ORNLKFK : AVAILABLE FROM /2,3,4/ ON THE KORIDATA LIBRARY :  
33P3U\_\_\_ORNL\_78\_,33P3RU\_\_\_ORNL\_78\_,33P3RM\_\_\_ORNL\_78\_,  
27B4U\_\_\_ORNL\_78\_,27B4RU\_\_\_ORNL\_78\_,27B4RM\_\_\_ORNL\_78\_,  
33P3U\_\_\_KFK\_80\_\_\_,50P5U\_\_\_ORNL\_80\_.

WITH THE FOLLOWING MEANING :

FIRST TWO FIGURES : BURN-UP IN GWD/THM

FOLLOWING LETTER : P FOR PWR,B FOR BWR

FOLLOWING FIGURE : NUMBER OF CYCLES

LAST TWO LETTERS : U/RU FOR URANIUM FUEL IN A NORMAL LWR/IN A RECYCLE LWR

RM FOR MOX-FUEL IN A RECYCLE LWR

AT THE PRESENT THE BURN-UP AVERAGED CROSS SECTIONS 33P3U\_\_\_KFK\_80\_\_\_ AND 33P3U\_\_\_ORNL\_78\_\_\_ ARE IDENTICAL.

FORTRAN UNIT FROM WHICH THE ONE-GROUP CROSS SECTIONS WILL BE READ - SEE CARD T1.

ISB

\*\*\*

KTIW

\*\*\*\*

AN INDICATOR FOR PRINTING CROSS SECTIONS FROM UNIT ISB > 5. KTIW = 0/1 : PRINTED / NOT PRINTED.

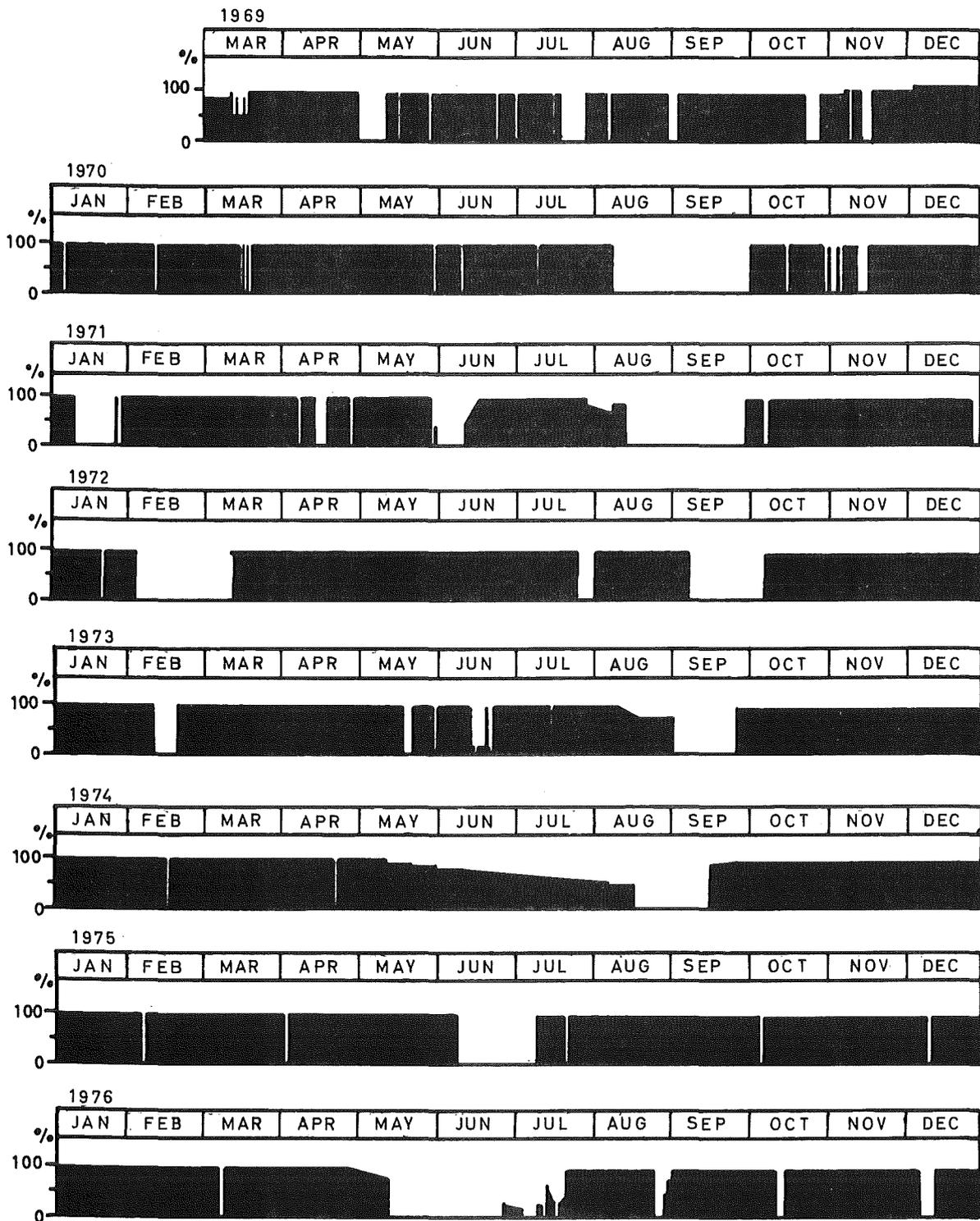


Abb. 7: Leistungsdiagramm KWO

### 3.3. Ergebnisse

Das für die untersuchten Proben mittels KORIGEN berechnete Nuklidinventar  $K_{\text{Cm}}$  in g pro t Schwermetall zeigt Tab. 14. In Abb. 9 sind die berechneten Curiumkonzentrationen für die Standardbrennstoffe gegen den Abbrand als Kurven aufgetragen. Die Konzentrationen von Cm-242 und Cm-243 zeigen einen flacheren, stetigen Anstieg zwischen 3.4 und 16 g pro Tonne Schwermetall bzw. zwischen 50 und 500 mg/t im untersuchten Abbrandbereich von 17 bis 37 GWd/t. Die Cm-244-Mengen liegen zwischen 0.8 und 40 g/t, diejenigen von Cm-245 zwischen 3.4 und 280 mg/t und die von Cm-246 zwischen 1.1 und 270 mg/t. Für Cm-247 wurden nur Konzentrationen für Abbrandwerte größer als 30 GWd/t eingezeichnet. Sie liegen zwischen 0.2 und 1.4 mg/t. Die Kurven der Curiumisotope 244 bis 247 zeigen keinen stetigen Verlauf über den untersuchten Abbrandbereich. Vielmehr sind die Werte für die Proben 747 und 746 (34.8 und 36.8 GWd/t) höher als aus dem Kurvenverlauf der Proben 737 bis 745 erwartet werden konnte. Dieses Verhalten resultiert aus der unterschiedlichen Anfangszusammensetzung und Bestrahlungsgeschichte von Brennelement 210 im Vergleich zu BE 124.

Die berechneten Curiumkonzentrationen für die Mischoxidbrennstoffe zeigt Abb. 11 als kleine Zeichen. Der Einfluß der unterschiedlichen Anfangszusammensetzung der Proben ist deutlich zu erkennen. So haben die beiden Proben (29.7 und 36.9 GWd/t) mit der gleichen Anfangsanreicherung von ca. 3.2 % spaltbarem Plutonium Curiumkonzentrationen zwischen: 63 und 78 g/t (Cm-242), 2.2 und 3.2 g/t (Cm-243), 60 und 110 g/t (Cm-244), 0.7 und 1.4 g/t (Cm-245) sowie 0.3 und 0.7 g pro Tonne Schwermetall (Cm-246). Die Werte der Probe mit einem Abbrand von 33.9 GWd/t (spaltbares Plutonium ca. 2.1 %) liegen tiefer (Cm-242, Cm-243) bzw. höher (Cm-244, Cm-246) als erwartet. Da die Bestrahlungsgeschichte für alle drei Mischoxidproben dieselbe war, ist dieses Verhalten einzig auf die unterschiedliche Anfangszusammensetzung zurückzuführen.

Curium	242	243	244	245	246	247
Probe						
738	4.83 E+0	8.63 E-2	1.81 E+0	8.58 E-3	3.47 E-3	8.26 E-6
739	1.06 E+1	2.73 E-1	1.02 E+1	6.04 E-2	3.86 E-2	1.41 E-4
740	1.30 E+1	3.69 E-1	1.65 E+1	1.04 E-1	7.57 E-2	3.11 E-4
741	4.27 E+0	7.21 E-2	1.40 E+0	6.40 E-3	2.42 E-3	5.40 E-6
742	1.27 E+1	3.56 E-1	1.55 E+1	9.68 E-2	6.94 E-2	2.81 E-4
743	9.33 E+0	2.25 E-1	7.53 E+0	4.30 E-2	2.54 E-2	8.63 E-5
744	3.35 E+0	4.94 E-2	8.13 E-1	3.39 E-3	1.11 E-3	2.19 E-6
745	9.01 E+0	2.11 E-1	6.78 E+0	3.80 E-2	2.14 E-2	6.95 E-5
746	1.62 E+1	4.91 E-1	4.03 E+1	2.80 E-1	2.68 E-1	1.40 E-3
747	1.52 E+1	4.33 E-1	3.15 E+1	2.11 E-1	1.85 E-1	9.00 E-4
247	5.62 E+1	2.54 E+0	1.14 E+2	1.51 E+0	8.97 E-1	7.34 E-3
248	7.77 E+1	3.20 E+0	1.13 E+2	1.39 E+0	6.89 E-1	4.73 E-3
249	6.26 E+1	2.22 E+0	6.04 E+1	6.69 E-1	2.66 E-1	1.46 E-3

Tab. 14: Berechnete Curiumkonzentrationen  $K_{Cm}$  in g/t

Weiterhin ist der Curiumaufbau für eine synthetische Probe mit der Anreicherung und der Bestrahlungsgeschichte von Brennelement 124, jedoch einem Endabbrand von 30.4 GWd/t aufgelistet. Für diese Probe ist der zeitliche Verlauf folgender Parameter in Tab. 15 zu finden:

Inventar der Curiumnuklide mit den Massen 242-247 in g, Neutronen aus  $\alpha$ ,n-Reaktionen und Spontanspaltungen aus Curium sowie Zahl der insgesamt freigesetzten Neutronen pro sec, durch Curium bzw. insgesamt durch Aktiniden freigesetzte Energie in Watt, Inhalations bzw. Ingestionsgefährdungspotential, resultierend aus Curium bzw. allen Aktiniden in m<sup>3</sup> Luft bzw. m<sup>3</sup> Wasser. Das Inhalations- bzw. Ingestionsgefährdungspotential gibt diejenige Menge an Luft bzw. Wasser an, die nötig ist, um ein gegebenes Volumen mit radioaktiven Substanzen auf die gemäß den Strahlungsbestimmungen maximal zulässige Menge an Aktivität zu verdünnen. Die Angaben beziehen sich auf 1 t Schwermetall.

Die Konzentrationen der Curiumisotope 242 bis 247 nehmen ihrer jeweiligen Halbwertszeit entsprechend ab. Die Cm-242-Konzentration zeigt eine weniger starke Abnahme als erwartet, da eine Nachbildung aus Am-242 stattfindet.

Es ist zu sehen, daß der überwiegende Anteil an der Neutronenstrahlung von abgebrannten Kernbrennstoffen in den ersten Jahren nach der Entladung aus Spontanspaltungen und  $\alpha$ ,n-Reaktionen des Curiums stammt.

Außerdem verursacht Curium bis zu 90 % der Wärmeproduktion der Aktiniden, wobei das Maximum ca. ein halbes Jahr nach dem Entladen liegt.

Des weiteren ist der nicht unerhebliche Beitrag des Elements Curium zum Inhalations- und Ingestionsgefährdungspotential zu erkennen.

An dieser Stelle muß darauf hingewiesen werden, daß die angeführten KORIGEN-Berechnungen auf dem Stand des Programms von September 1981 beruhen. Zum kommenden Jahreswechsel erwartete Programmänderungen, die u. a. Aktinidenwirkungsquerschnitte und Gefährdungsindizes betreffen, konnten nicht mehr berücksichtigt werden.

Zeit		Entl.	0.5 a	1 a	5 a	10 a	10 <sup>2</sup> a	10 <sup>3</sup> a	10 <sup>4</sup> a	10 <sup>5</sup> a
K <sub>Cm</sub> g/t	242	1.18E+1	5.43E+0	2.50E+0	6.11E-3	1.06E-3	6.99E-4	1.15E-5	-	-
	243	3.17E-1	3.13E-1	3.09E-1	2.81E-1	2.48E-1	2.78E-2	8.68E-12	-	-
	244	1.29E+1	1.27E+1	1.24E+1	1.06E+1	8.79E+0	2.81E-1	3.08E-16	-	-
	245	7.87E-2	7.87E-2	7.87E-2	7.87E-2	7.86E-2	7.81E-2	7.25E-2	3.48E-2	2.26E-5
	246	5.36E-2	5.36E-2	5.36E-2	5.35E-2	5.35E-2	5.28E-2	4.63E-2	1.24E-2	2.32E-8
	247	2.07E-4	2.07E-4	2.07E-4	2.07E-4	2.07E-4	2.07E-4	2.07E-4	2.07E-4	2.06E-4
	n(sf)	Cm	4.01E+8	2.62E+8	1.96E+8	1.23E+8	1.02E+8	3.71E+6	4.24E+5	1.13E+5
n(α,n)	Cm	1.16E+8	5.48E+7	2.66E+7	2.18E+6	1.77E+6	6.56E+4	1.63E+2	1.93E+1	7.88E-3
n/sec <sup>-1</sup>	ΣAkt.	5.26E+8	3.26E+8	2.32E+8	1.35E+8	1.14E+8	1.69E+7	6.00E+6	2.28E+6	7.21E+5
Q/Watt	Cm	1.47E+3	6.98E+2	3.40E+2	3.14E+1	2.55E+1	9.34E-1	2.29E-3	3.24E-4	1.33E-7
Q/Watt	ΣAkt.	3.23E+4	7.95E+2	4.42E+2	1.53E+2	1.65E+2	1.71E+2	5.10E+1	1.28E+1	8.34E-1
Inh.I.	Cm	2.92E13	1.75E13	1.19E13	6.32E12	5.22E12	1.79E11	3.92E08	1.36E08	5.70E04
Inh.I.	ΣAkt.	2.05E14	1.95E14	1.90E14	1.77E14	1.67E14	1.00E14	3.78E13	1.56E13	7.65E11
Ing.I.	Cm	3.85E10	1.94E10	1.05E10	2.61E09	2.15E09	7.48E07	1.92E05	5.75E04	2.42E01
Ing.I.	ΣAkt.	1.68E12	4.22E10	3.38E10	2.76E10	2.86E10	2.67E10	8.02E09	1.98E09	8.77E09

Tab. 15: Berechneter zeitlicher Verlauf verschiedener Brennstoffparameter (30.4 GWd/t)

Außerdem entsprechen die im Programm eingebauten Daten den Verhältnissen in einem Druckwasser-Modellreaktor mit einer Leistung von 1000 MWe, können also nicht vorbehaltlos auf das KWO übertragen werden. Dies gilt insbesondere für die Berechnung der MOX-Brennstoffe. Desweiteren ist zu berücksichtigen, daß der Auslegungsabbrand des Programms (Card U1) 33 GWd/t beträgt, hier jedoch bis 37 GWd/t gerechnet wurde.

#### 4. Die Isotopenkorrelationstechnik als alternative Bestimmungsmethode des Curiumaufbaus

##### 4.1. Kurze Beschreibung der Isotopenkorrelationstechnik

Während des Reaktorbetriebes werden Nuklide auf- und abgebaut. Die Nuklide stehen über ihre Wirkungsquerschnitte und Zerfallskonstanten in definierten Beziehungen zueinander. Diese Korrelationen zeigen sich zwischen verschiedenen Parametern /38-40/:

- Isotopenverhältnis bzw. prozentuale Isotopenhäufigkeit
- Nuklidgehalt bzw. Nuklidmasse
- abgeleitete Kernbrennstoffgrößen wie z.B. Abbrand, Anreicherung etc.

Es werden lineare sowie Korrelationen höherer Ordnung beobachtet. Aus diesem Verhalten der Nuklide ergeben sich verschiedene Anwendungsmöglichkeiten /41/:

- Kontrolle der Konsistenz von Analysendaten
- Verifikation von Betreiberdaten
- Entdeckung von abgezweigtem Material in der Spaltstoffflußkontrolle
- Prognose der Nuklidgenese

Die vierte Variante der Isotopenkorrelationstechnik - die Prognose der Nuklidgenese - wird im folgenden näher untersucht.

Als gegenüberzustellende Parameter bieten sich zur Abschätzung des Nuklidaufbaus einerseits die Menge des betrachteten Nuklids selbst, andererseits der Abbrand des zu untersuchenden Brennstoffes an. Der Abbrand eines Brennstoffes ist ein Wert, der meist bereits vom Reaktorbetreiber mit großer Genauigkeit angegeben werden kann. Läßt sich nun eine eindeutige Beziehung zwischen der Bildungsrate eines Nuklids und dem Abbrand herstellen, so ist innerhalb des Gültigkeitsbereiches dieser

Beziehung eine Prognose des Nuklidaufbaus möglich. Wie leicht einzusehen, ist diese Prognose um so zuverlässiger und genauer, je mehr Daten zur Verfügung stehen. Diese Daten müssen erst noch erarbeitet werden. Sind sie einmal vorhanden, so ist der Aufwand zur Ermittlung der Curiummenge verglichen mit Analysen oder Berechnungen wie KORIGEN, gering. Die Isotopenkorrelationstechnik stellt somit eine untersuchenswerte Alternative zur Bestimmung, in diesem Fall des Curiumaufbaus, dar.

#### 4.2. Anwendung der Isotopenkorrelationstechnik

Zur Verknüpfung der zum Entladezeitpunkt aus dem Reaktor vorliegenden Curiumnuklide mit dem Abbrand wird eine empirische Formel gesucht. Die Abgleichmethode ergibt, daß zu diesem Zweck Potenzfunktionen des Typs

$$y = ax^b \quad (11)$$

die besten Anpassungen liefern (42).

x: Abbrand in GWd/t

y: Konzentration des betrachteten Curiumnuklids in g/t

Die Kurvenanpassung kann auf die Lösung einer linearen Regression zurückgeführt werden, indem man Gleichung (11) in

$$\lg y = \lg a + b \lg x \quad (12)$$

transformiert.

Daraus ergeben sich für die Standardbrennstoffe die Regressionskoeffizienten a und b, das Bestimmtheitsmaß  $r^2$ , sowie die Schätzwerte bei gegebenem x,  $\hat{y}$  /43/:

Cm	a	b	$r^2$	$\hat{y}$ (27.5)	$\hat{y}$ (30.4)
242	3.40 E-4	3.30	0.986	1.92 E+1	2.67 E+1
243	8.45 E-7	3.73	0.902	1.97 E-1	2.86 E-1
244	4.49 E-8	5.818	0.996	1.06 E+1	1.90 E+1
245	4.57 E-11	6.893	0.989	3.81 E-1	7.61 E-1
246	2.01 E-14	8.47	0.989	3.13 E-2	7.33 E-2
247	7.40 E-22	12.0	0.974	1.50 E-4	5.01 E-4

Tab. 16: Kurvenanpassung für die  $UO_2$ -Brennstoffe

Abb. 8 zeigt sowohl die experimentell bestimmten Curiumkonzentrationen aus Tab. 13 als Funktion des Abbrands als auch die berechneten Regressionsgeraden.

Über den untersuchten Abbrandbereich von 17 bis 37 GWd/t können die experimentell bestimmten Konzentrationen jedes Curiumisotops durch jeweils eine Kurve beschrieben werden. Die Curiumbildungsrate ist also in diesem Sinn abbrandunabhängig.

Es ist außerdem kein Einfluß der unterschiedlichen Anfangszusammensetzung der Brennelemente 124 und 210 auf die Curiumbildung festzustellen (vgl. dazu Ergebnisse aus KORIGEN in Kap. 5).

Die hohen Werte des Bestimmtheitsmaßes  $r^2$  ( $0 \leq r^2 \leq 1$ ) zeigen die "Güte der Anpassung". Die relativ großen Variationskoeffizienten der Cm-243-Werte widerspiegeln sich im entsprechenden Wert für  $r^2$ . Die hohen Wert für  $r^2$  erlauben auch die Vorhersage der Schätzwerte  $\hat{y}$  - auf sie wird an anderer Stelle näher eingegangen werden - mit großer Genauigkeit. Mit anderen Worten: Würde man beliebige  $K_{Cm}$ -Werte bei der Berechnung der Regressionsgeraden nicht berücksichtigen und danach eben diese Werte mit den für den entsprechenden Abbrand berechneten Werten vergleichen, so wäre die gefundene Differenz gering. Das heißt, die gefundenen Potenzfunktionen bzw. allgemeiner formuliert, die Isotopenkorrelationstechnik stellen ein geeignetes Instrument zur Bestimmung von Curiumbildungsrate dar.

Eine entsprechende Aussage sollte auch für die Curiumgenese in den MOX-Brennstoffen gelten. Leider stehen hier nur drei Proben, diese zusätzlich mit zwei unterschiedlichen Anfangszusammensetzungen, zur Verfügung. Im Gegensatz zu den Standardbrennstoffen, bei welchen Anfangsanreicherung nicht stark voneinander abweicht (spaltbares Uran 2.83 bzw. 3 %), ist bei den MOX-Brennstoffen der Unterschied größer (spaltbares Plutonium 2.1 bzw. 3.3 %). Eine gemeinsame Kurvenanpassung für die drei MOX-Proben ist deshalb nicht mehr zulässig (vgl. dazu auch Abb. 11).

Um für spätere Vergleichsrechnungen trotzdem MOX-Daten zur Verfügung zu haben, werden die Schätzwerte  $\hat{y}$  nach Gleichung 11 bzw. 12 berechnet. Da der Referenzabbrand mit 30.4 GWd/t nahe am Abbrand der Probe 249 liegt (29.7 GWd/t), dürfte der aus dieser Methode resultierende Fehler wenige Prozent nicht überschreiten. Tab. 17 zeigt die gefundenen Werte  $\hat{y}$ .

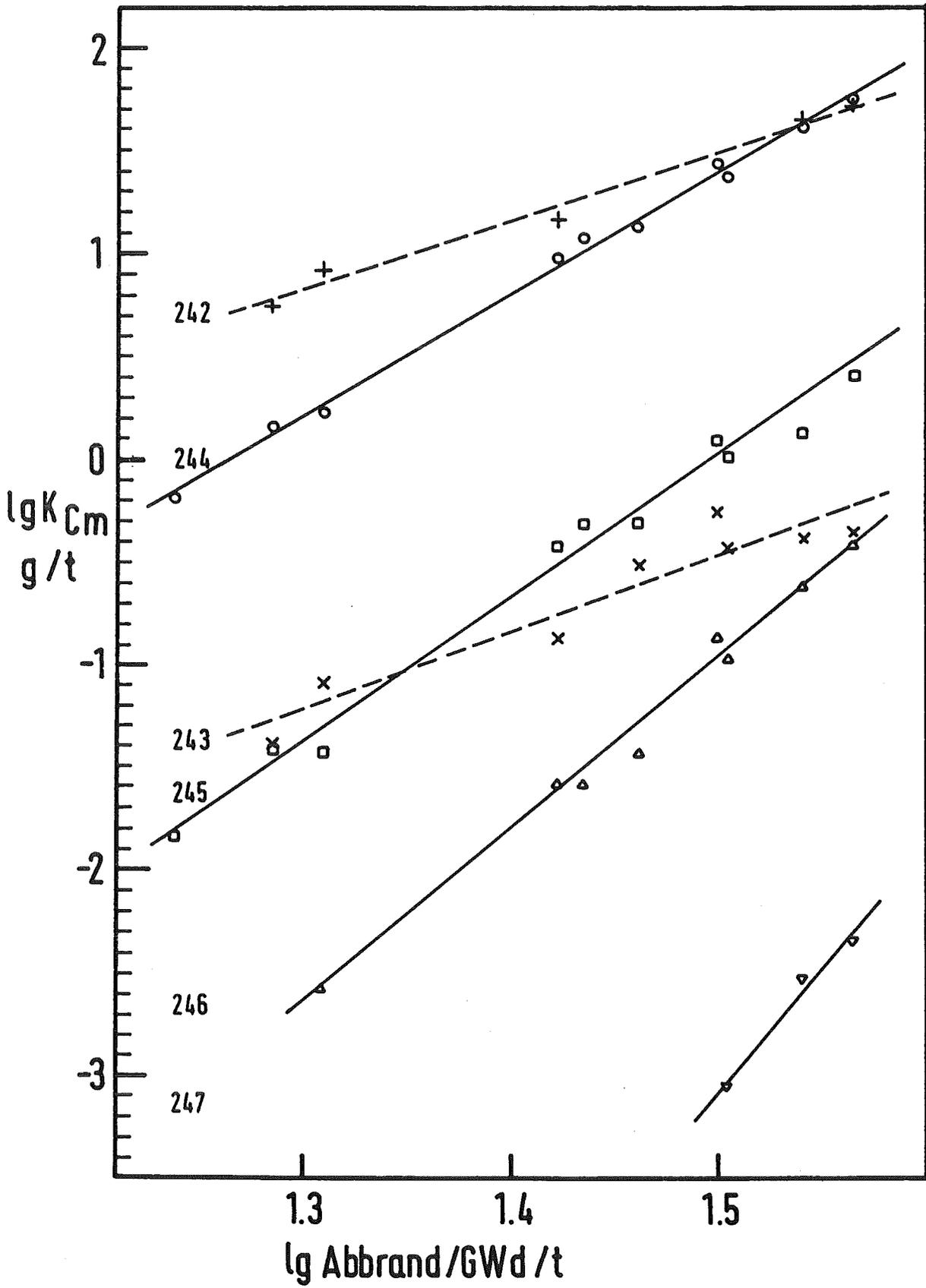


Abb. 8: Curiumkonzentrationen als Funktion des Abbrands

Cm	242	243	244	245	246
$\hat{y}$	8.11 E+1	2.87 E+0	1.23 E+2	8.93 E+0	6.01 E-1

Tab. 17: Schätzwerte  $\hat{y}$  (30.4) für die MOX-Brennstoffe

Vergleicht man die für den Referenzabbrand von 30.4 GWd/t in Standard- und MOX-Brennstoff gebildeten Curiummengen (Tab. 16 und Tab. 17), so zeigt sich, daß im Mischoxidbrennstoff die Curiumproduktion für die Isotope 242 bis 246 um den Faktor 3, 10, 6.5, 12, 8 größer ist. Dabei ist für beide Brennstoffarten die Anfangskonzentration an spaltbarem Material annähernd gleich groß (3 % spaltbares Uran bzw. 3.2 % spaltbares Plutonium).

In Kapitel 5 wird eine weitergehende Interpretation sowie ein Vergleich der Ergebnisse für die Standard- und Mischoxidbrennstoffe folgen.

An dieser Stelle läßt sich jedoch bereits die grundsätzliche Eignung der Isotopenkorrelationstechnik zur Bestimmung von Curiumbildungsraten konstatieren. Eine wesentliche Voraussetzung zur Anwendung der Methode ist, wie aus obigen Ausführungen zu entnehmen, eine breite Datenbasis. Erst sie ermöglicht eine genaue Prognose der Curiumgenese.

5. Vergleich der experimentellen Ergebnisse mit den Resultaten aus KORIGEN und der Isotopenkorrelationstechnik

Für die Standardbrennstoffe zeigt Abb. 9 sowohl die experimentell ermittelten Curiumkonzentrationen als Funktion des Abbrands als auch die mittels KORIGEN berechneten Konzentrationen. Die berechneten Werte werden als durchgezogene Linien dargestellt.

Folgende Punkte lassen sich feststellen:

Über den untersuchten Abbrandbereich von 17 bis 37 GWd/t zeigen die berechneten Curiumkonzentrationen für die Isotope 242 und 243 einen stetigen, für die Isotope 244 bis 247 dagegen keinen stetigen Verlauf. Dieses Verhalten resultiert aus der unterschiedlichen Anfangszusammensetzung und Bestrahlungsgeschichte der Brennelemente 124 und 210 (vgl. Tab. 4). Im Gegensatz dazu zeigen die experimentell ermittelten Konzentrationen aller Curiumisotope innerhalb der Fehlergrenzen über den untersuchten Abbrandbereich einen stetigen Verlauf (vgl. dazu auch Abb. 8).

Vergleicht man die experimentellen mit den aus KORIGEN berechneten Werten, ist ein unterschiedliches Maß von Übereinstimmung vorhanden.

Abb. 10 zeigt für einen niederen (19.3 GWd/t), einen mittleren (29.0 GWd/t) und einen hohen (36.8 GWd/t) Abbrand die relativen Abweichungen in den Nuklidkonzentrationen zwischen KORIGEN und Experiment. Außerdem sind in dieser Abbildung für einen Abbrand von 30.4 GWd/t die relativen Abweichungen zwischen KORIGEN und den mittels der Isotopenkorrelations-  
technik interpolierten Werten  $\hat{y}$  aufgezeigt.

Die relativen Abweichungen entsprechen dem Wert  $(\text{KORIGEN-Experiment})/\text{Experiment}$  in %.

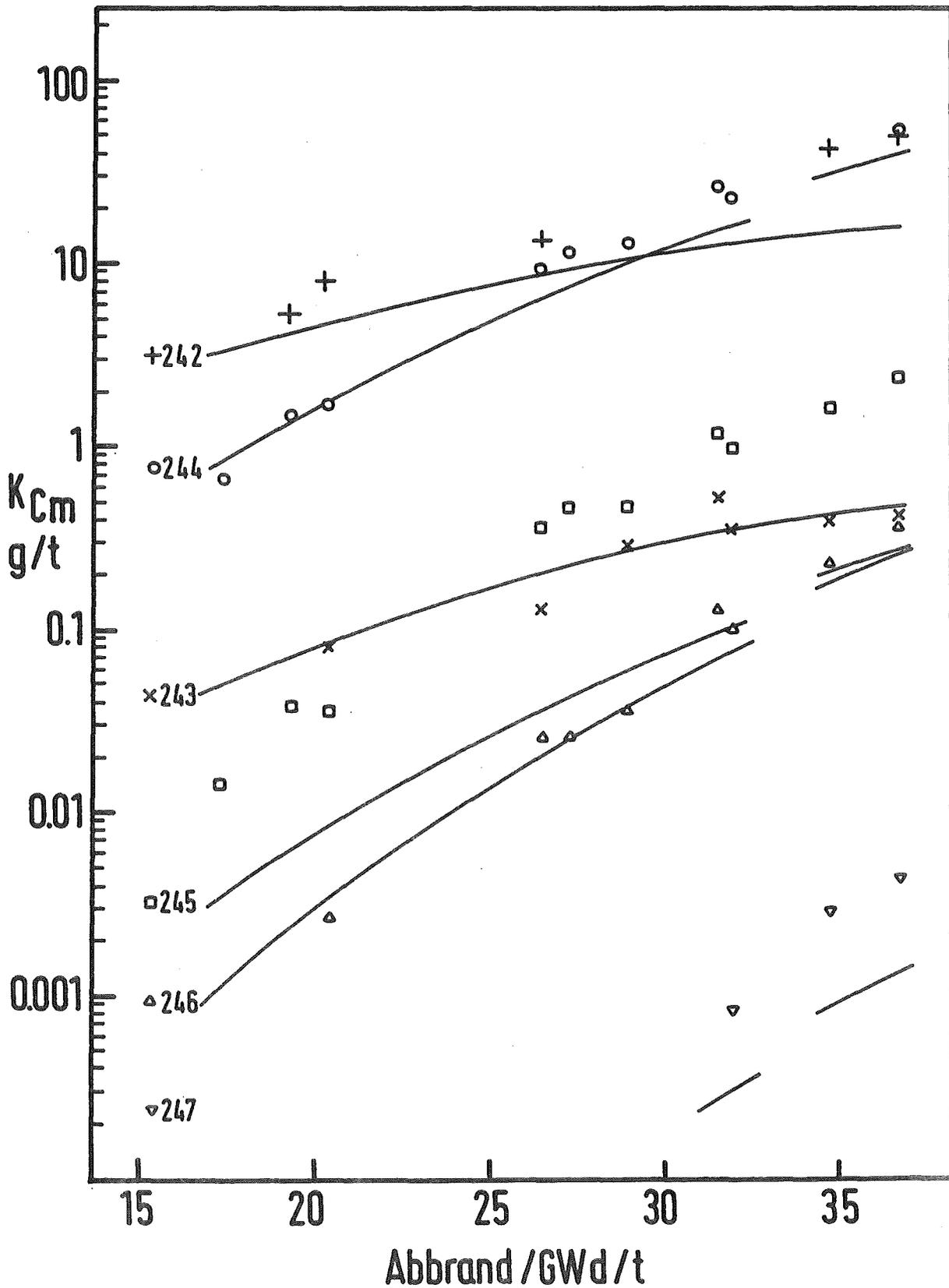


Abb. 9: Curiumkonzentrationen der Standardbrennstoffe als Funktion des Abbrands

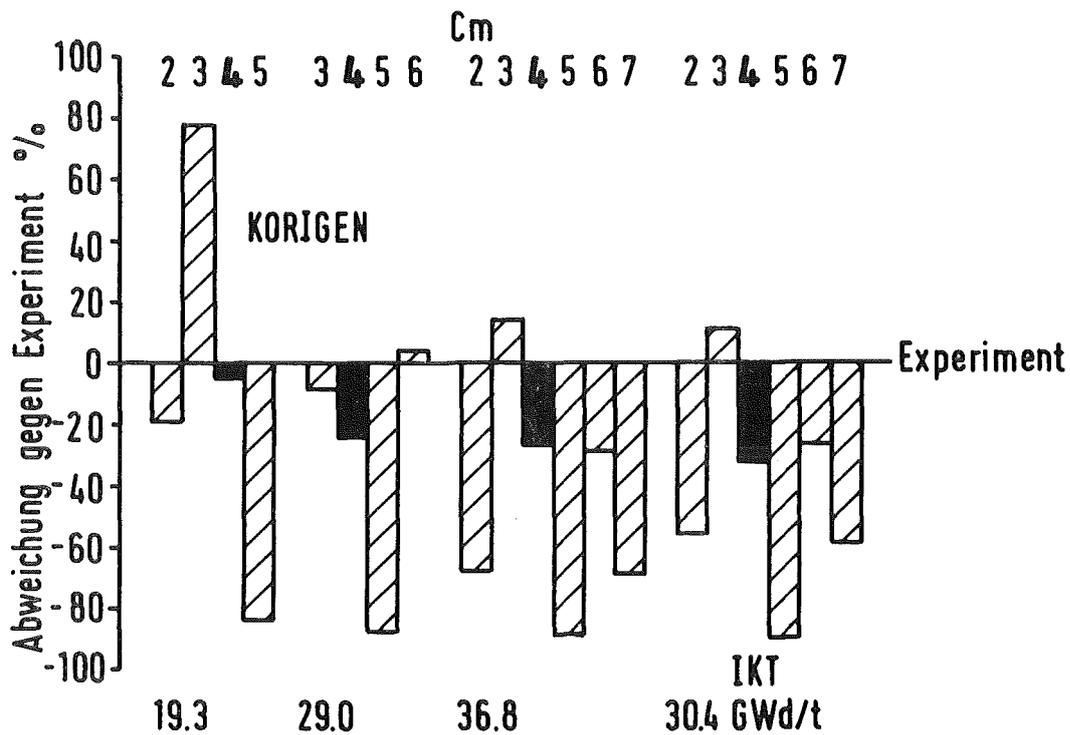


Abb. 10: Vergleich von KORIGEN mit den experimentellen Werten mittels relativer Abweichungen

Die relative Abweichung für die KORIGEN-Werte von Cm-242 beträgt etwa -50 % und nimmt mit steigendem Abbrand zu. Es ist zu berücksichtigen, daß bei der Bestimmung der experimentellen Cm-242-Konzentrationen eine rechnerische Korrektur der Curiumnachbildung nach Gleichung (7) mit aus KORIGEN entnommenen Americiumkonzentrationen gemacht wurde. Eine Verfälschung der Cm-242-Werte durch eventuell ungenau berechnete Americiumkonzentrationen dürfte jedoch in akzeptablem Rahmen bleiben.

Die Cm-243-Werte zeigen allgemein eine gute Übereinstimmung. Die relative Abweichung beträgt ca. 10 %, wobei die nicht unerheblichen Variationskoeffizienten der experimentellen Werte zu berücksichtigen sind. Dies dürfte in besonderem Maß für die Probe 741 (19.3 GWd/t) gelten. Die hier vorhandene große positive Abweichung kann kaum als repräsentativ betrachtet werden.

Die Cm-244-Konzentrationen zeigen relative Abweichungen von ca. -5 bis -30 %, wobei die Abweichung mit steigendem Abbrand größer wird. Da die Cm-244-Werte mit hoher Genauigkeit bestimmt werden konnten, scheinen ungenaue Daten für KORIGEN verwendet worden zu sein.

Die größte relative Abweichung ist bei den Cm-245-Werten zu finden. Sie beträgt dort knapp -90 % und ist weitgehend unabhängig vom Abbrand. Da die Cm-245-Konzentrationen ebenfalls mit hoher Genauigkeit bestimmt werden konnten, liegt die Vermutung nahe, daß in KORIGEN unzutreffende effektive Wirkungsquerschnitte für Bildung bzw. Spaltung dieses Curiumisotops verwendet werden.

Bei Cm-246 ist die Übereinstimmung hingegen wieder deutlich besser. Hier beträgt die relative Abweichung im allgemeinen weniger als -30 %. In Anbetracht der bei diesem Nuklid bereits nicht unerheblichen experimentellen Ungenauigkeiten kann die Übereinstimmung insgesamt als akzeptabel betrachtet werden.

Dies gilt insbesondere für die experimentell bestimmten Cm-247-Werte. Da sie nur als Schätzwerte betrachtet werden können, ist eine Abweichung von ca. -60 % nicht überraschend. Zusammenfassend läßt sich sagen, daß die mittels KORIGEN berechneten Curiumkonzentrationen meist deutlich unter den experimentell ermittelten Werten liegen, wobei die Abweichungen zum Teil vom Abbrand abhängen. Es ist auffällig, daß sowohl Cm-243 als auch Cm-246 eine relativ gute Übereinstimmung zwischen Rechnung und Experiment zeigen, während bei ihren direkten Vorläufern Cm-242 und Cm-245 (vgl. Abb. 1) die Übereinstimmung viel schlechter ist.

Nachfolgend werden die Ergebnisse für die MOX-Brennstoffe dargestellt. Abb. 11 zeigt die experimentell ermittelten (große Zeichen) und mit KORIGEN berechneten (kleine Zeichen) Curiumkonzentrationen als Funktion des Abbrands.

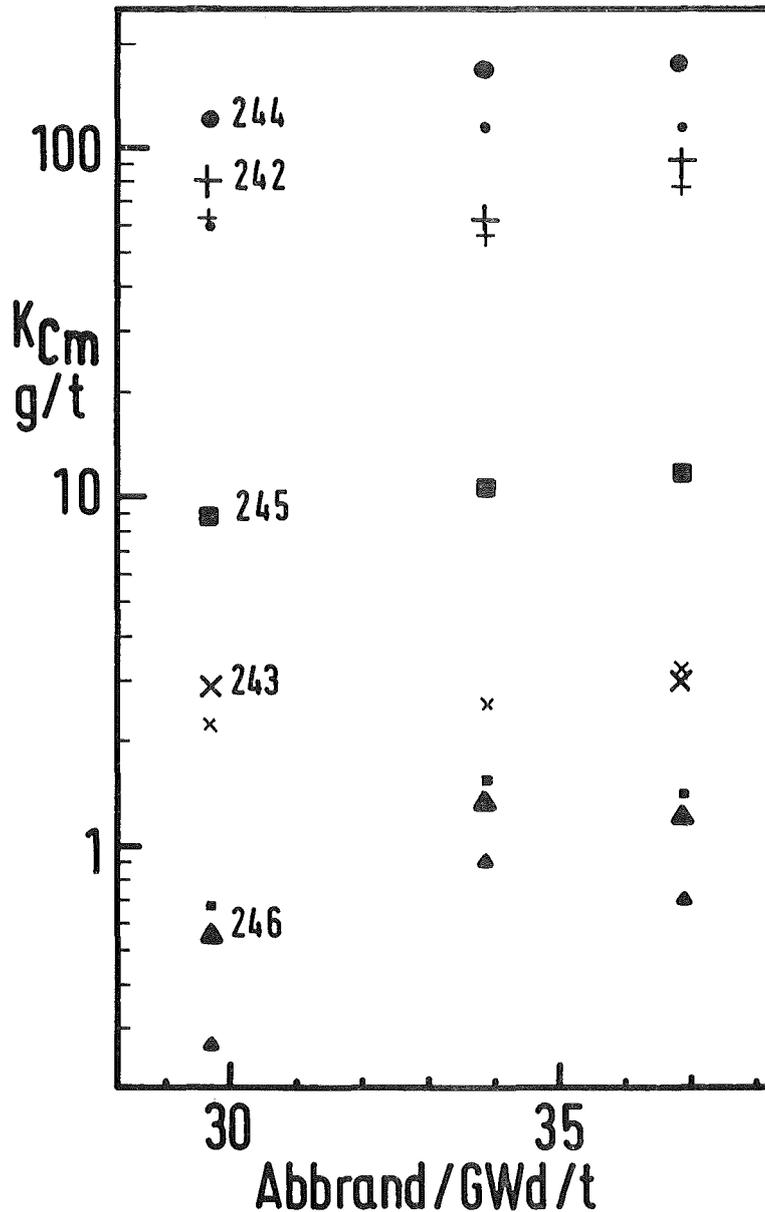


Abb. 11: Curiumkonzentrationen der MOX-Brennstoffe als Funktion des Abbrands

Da die Bestrahlungsgeschichte der drei eingezeichneten Proben gleich ist, geht der deutlich erkennbare Unterschied der Curiumbildungsrate allein auf das Konto der unterschiedlichen Anfangszusammensetzung und des verschiedenen integralen Neutronenflusses, dem die Proben ausgesetzt waren. In Übereinstimmung mit der Tatsache, daß die ursprüngliche Konzentration an spaltbaren Plutoniumisotopen in Probe 247 nur 2/3 der Konzentration in den beiden anderen Proben betrug, muß

der Neutronenfluß für diese Probe entsprechend größer gewesen sein. Dies wird durch den gleichen Abbrand für alle Proben bestätigt. Daraus erklären sich die verhältnismäßig hohen Konzentrationen des über Pu-242 gebildeten Curium 244 bis 246. Die über Am-241 aufgebauten Cm-242- und 243-Konzentrationen zeigen ein schwächeres Anwachsen mit dem Abbrand. Die relativen Abweichungen zwischen KORIGEN-Rechnung und Experiment entsprechen für die MOX-Proben weitgehend denen der Standardproben. In Tab. 18 sind die relativen Abweichungen für Probe 247 und 248 aufgelistet.

Curium	242	243	244	245	246
rel.Abw. (247)	-12.1	-	-32.6	-85.4	-30.5
rel.Abw. (248)	-13.2	+ 7.02	-34.9	-88.1	-41.6

Tab. 18: Relative Abweichung (KORIGEN-Experiment)/Experiment in % für die Curiumkonzentrationen der MOX-Proben

Die Ähnlichkeit der relativen Abweichungen der MOX-Brennstoffe mit den Abweichungen der Standardbrennstoffe ist augenfällig (vgl. Abb. 10). Über die Abbrandabhängigkeit der Abweichungen zwischen KORIGEN und Experiment kann in Ermangelung ausreichender Daten nichts ausgesagt werden.

Daß die experimentell gefundenen Curiumkonzentrationen als Funktion des Abbrands durch die Isotopenkorrelationstechnik gut wiedergegeben werden können, ist bereits gezeigt worden. Für die Mischoxidproben sind, da nicht genügend Daten bekannt sind, nur Abschätzungen des Curiumaufbaus möglich. Die für die Standardbrennstoffe erhaltenen Werte zeigen jedoch, daß bereits für weniger als ein Dutzend Daten pro Nuklid eine Beschreibung der Nuklidgenese mit hoher Genauigkeit möglich ist.

Vergleicht man die für den Referenzabbrand von 30.4 GWd/t mittels der Isotopenkorrelationsmethode bzw. KORIGEN berechneten Curiumkonzentrationen für die UO<sub>2</sub>-Brennstoffe, so zeigen sich nicht unerhebliche Unterschiede, wobei die über KORIGEN ermittelten Werte mit Ausnahme von Cm-243 kleiner sind als die über die IKT erhaltenen Werte.

Cm	K <sub>Cm</sub> <sup>IKT</sup>	K <sub>Cm</sub> <sup>KOR</sup>	Δ %
242	2.67 E+1	1.18 E+1	-55.8
243	2.86 E-1	3.17 E-1	+10.8
244	1.90 E+1	1.29 E+1	-32.1
245	7.61 E-1	7.87 E-2	-89.7
246	7.33 E-2	5.36 E-2	-26.9
247	5.01 E-4	2.07 E-4	-58.7

Tab. 19: Vergleich von Curiumkonzentrationen (30.4 GWd/t), berechnet aus IKT und KORIGEN (UO<sub>2</sub>-Brennstoff)

Ähnliche Abweichungen zeigen die MOX-Brennstoffe. Für die aus KORIGEN ermittelten Curiumkonzentrationen werden hier graphisch interpolierte Werte aus Abb. 11 verwendet.

Cm	K <sub>Cm</sub> <sup>IKT</sup>	K <sub>Cm</sub> <sup>KOR</sup>	Δ %
242	8.11 E+1	6.3 E+1	-22
243	2.87 E+0	2.4 E+0	-16
244	1.23 E+2	6.5 E+1	-47
245	8.93 E+0	7.2 E-1	-92
246	6.01 E-1	2.0 E-1	-67

Tab. 20: Vergleich von Curiumkonzentrationen (30.4 GWd/t), berechnet aus IKT und KORIGEN (MOX-Brennstoffe)

Offensichtlich sind in KORIGEN systematische Fehler vorhanden. Um die Größe der Abweichung von KORIGEN und der Isotopenkorrelationstechnik mit dem Experiment bewerten zu können, wurden für KORIGEN die mittleren systematischen Fehler  $\bar{M}_i$  für jedes Curiumisotop berechnet:

$$\bar{M}_i = \frac{\sum_{j=1}^n (y_i' - y_i)}{n} : n \quad (13)$$

$y_i'$  : Berechnete Curiumkonzentration des Isotops i (KORIGEN)

$y_i$  : Experimentell bestimmte Curiumkonzentration

n : Anzahl der Datenpaare

Dann wurden für die Isotopenkorrelationstechnik die mittleren Fehler der Schätzung der Curiumkonzentration y auf den Abbrand x die sog. Residualstreuungen bestimmt. Die Residualstreuung  $S_{y \cdot x}$  /44/ berechnet sich nach:

$$S_{y \cdot x} = \left[ \frac{\sum_{j=1}^n (y_i' - y_i)^2}{(n-2)} \right]^{1/2} \quad (14)$$

$y_i'$  : Berechnete Curiumkonzentration des Isotops i (IKT)

$y_i$  : Experimentell bestimmte Curiumkonzentration

n : Anzahl der Datenpaare

Die Residualstreuungen für KORIGEN ergeben sich unter Abzug des systematischen Fehlers nach:

$$S_{y \cdot x} = \left( \frac{\sum_{j=1}^n ((y'_i - y_i) - \bar{M}_i)^2}{n-2} \right)^{1/2} \quad (15)$$

$y'_i$  : Berechnete Curiumkonzentration des Isotops i (KORIGEN)  
 $y_i$  : Experimentell bestimmte Curiumkonzentration  
 $\bar{M}_i$  : Mittlerer systematischer Fehler von KORIGEN

Daraus ergeben sich für die verschiedenen Curiumisotope der Standardbrennstoffe die Werte nach Tab. 21.

Cm	242	243	244	245	246	247
$S_{y \cdot x}^{\text{IKT}}$	2.18	0.115	1.97	0.182	0.014	0.0006
$S_{y \cdot x}^{\text{KOR}}$	18.0	0.089	5.31	0.768	0.044	0.002

Tab. 21: Residualstreuungen von IKT und KORIGEN

Die Streuung  $S_{y \cdot x}$  geht davon aus, daß der Abbrand x keinen Fehler hat. Zur erschöpfenden statistischen Behandlung der Zusammenhänge Experiment-IKT-KORIGEN müßte zusätzlich die Standardabweichung des Abbrands berücksichtigt werden, da der tatsächliche Fehler von y dann geringer würde. Die Residualstreuungen für die Isotopenkorrelationstechnik sind beträchtlich kleiner als die für das Rechenprogramm KORIGEN, d. h. auch nach Korrektur des systematischen Fehlers von KORIGEN ist die Übereinstimmung IKT-Experiment besser als die KORIGEN-Experiment. Es ist zu berücksichtigen, daß strenggenommen die Residualstreuungen nur für das KWO gelten. Jedoch erstreckt sich nach /45/ der Gültigkeitsbereich der berechneten Korrelationen - zumindest für Cm-244 - über alle Leichtwasserreaktoren.

Zwar kann auch beim Aufstellen von Korrelationsgleichungen ein systematischer Fehler auftreten (dieser würde durch die Residualstreuung nicht erfaßt werden), jedoch zeigt die Isotopenkorrelationstechnik keinen so großen systematischen Fehler wie KORIGEN, da sie auf experimentellen Werten aufbaut, während Inventarrechenprogramme wie KORIGEN durch nicht die jeweiligen Verhältnisse berücksichtigende Wirkungsquerschnitte und der daraus resultierenden Fehlervergrößerung für die in der Aufbaukette weiter oben liegenden Nuklide besonders anfällig gegen systematische Fehler sind. Nach Anpassung der Wirkungsquerschnitte in geeigneter Weise müßte KORIGEN das gleiche leisten wie die Isotopenkorrelationsrechnung, jedoch wird auf jeden Fall ein größerer Input an Daten erforderlich sein.

Die Eignung der Isotopenkorrelationstechnik zur Vorhersage der aufgebauten Mengen von Curiumsisotopen im Leichtwasserreaktor ist offensichtlich, insbesondere unter Berücksichtigung der Tatsache, daß bei Vergrößerung der historischen Datenbasis eine weitere Steigerung der Prognosegenauigkeit bereits impliziert ist.

## 6. Prognose der Curiumproduktion bei unterschiedlicher Energiebereitstellung durch LWR

Zur Berechnung des bis zum Jahr 2000 vorhandenen Curiuminventars werden die von der Enquete-Kommission "Zukünftige Kernenergiepolitik" ausgearbeiteten Kernenergieprognosen zugrundegelegt /46/. Danach nimmt die installierte Kernkraftwerksleistung von 8.5 GWe im Jahr 1980 auf 40 GWe im Jahr 2000 zu. Der Anstieg erfolgt linear. Bis zum Jahr 1990 besteht die Leichtwasserreaktorkapazität aus Siedewasser- und Druckwassereaktoren im Verhältnis 1:2. Nach 1990 werden nur noch Druckwassereaktoren installiert. Diese sollen hinsichtlich ihres Natururanverbrauchs gegenüber den heutigen um 15 % besser sein. Da keine experimentellen Daten über die Curiumproduktion in solchen Anlagen vorliegen, wird von der Annahme ausgegangen, daß nach 1990 die gesamte LWR-Kapazität aus Druckwasserreaktoren heutiger Bauart besteht. Diese Annahme dürfte selbst dann die zukünftigen Verhältnisse bezüglich der Curiumproduktion gut wiedergeben, wenn der verbesserte Druckwasserreaktor tatsächlich gebaut werden sollte. Der verbesserte DWR hat einerseits eine kleinere jährliche Nachladung an Uran pro GWe, andererseits einen höheren mittleren Abbrand als der heute gebaute DWR. Da beide Effekte einen entgegengesetzten Einfluß auf die Curiumbildungsrate haben, wird unterstellt, daß sie sich annähernd kompensieren und damit die pro GWe produzierten Curiummengen gleich bleiben.

Die jährliche Nachladung an Uran beträgt für die SWR 28.2 t pro GWe und für die DWR 24.6 t pro GWe. Der mittlere Abbrand für den ersten Reaktortyp ist 27.5 GWd/t, für den zweiten Typ 30.4 GWd/t. Die abbrandabhängige Curiumproduktion wird als unabhängig vom Reaktortyp betrachtet /45/, wobei die für den DWR ermittelten Produktionsraten zugrundegelegt werden. Für die bei den oben genannten Abbrandwerte gebildeten Curiummengen werden die mittels der Isotopenkorrelations-technik berechneten Werte nach Tabelle 16 verwendet. Die im Jahr  $u$  produzierten Mengen der Curiumisotope  $i$   $Cm-i'_u$  berechnen sich dann nach:

$$Cm-i'_u = N_u \cdot E-3 \cdot \left( \frac{1}{3} \cdot U_S \cdot \hat{Y}_i(27.5) + \frac{2}{3} \cdot U_D \cdot \hat{Y}_i(30.4) \right) \quad (16)$$

bis zum Jahr 1990 und ab 1991 nach:

$$Cm-i'_u = N_u \cdot E-3 \cdot U_D \cdot \hat{Y}_i(30.4) \quad (17)$$

$Cm-i'_u$  : im Jahr u produzierte Menge des Curiumisotopes i  
in kg

$N_u$  : im Jahr u installierte KKW-Leistung in GWe

$U_{S/D}$  : jährliche Urannachladung in t pro GWe für  
Siede-/Druckwasserreaktor

$\hat{Y}_i$  : produzierte Konzentration des Curiumisotopes i  
in g pro t Schwermetall (Tab. 16)

Daraus berechnen sich die bis zum Jahresende u+n kumulativ  
angefallenen Mengen an Curium  $Cm-i_{u+n}$  zu:

$$\begin{aligned} Cm-i_u &= Cm-i'_u \\ Cm-i_{u+1} &= Cm-i_u \cdot e^{-\lambda_i t} + Cm-i'_{u+1} \\ &\cdot \\ &\cdot \\ Cm-i_{u+n} &= Cm-i_{u+n-1} \cdot e^{-\lambda_i t} + Cm-i'_{u+n} \end{aligned} \quad (18)$$

$Cm-i_{u+n}$  : bis zum Jahresende u+n kumulativ angefallene Menge  
des Curiumisotopes i in kg

$Cm-i'_{u+n}$  : Produktionsrate des Curiumisotopes i im Jahr u+n in kg

$\lambda_i$  : Zerfallskonstante des Curiumisotopes i

t : 1 Jahr

Jahr	KKW-Leistg. GWe	Curiummenge (Cm-i <sub>u+n</sub> )					
		242	243	244	245	246	247
1980	8.5	5.62 E+0	2.56 E-2	3.50 E+0	1.37 E-1	1.05 E-2	8.18 E-5
1982	11.7	8.75 E+0	1.94 E-1	1.20 E+1	4.86 E-1	3.72 E-2	2.91 E-4
1984	14.8	1.13 E+1	3.66 E-1	2.25 E+1	9.36 E-1	7.18 E-2	5.61 E-4
1986	18.0	1.37 E+1	5.70 E-1	3.47 E+1	1.49 E+0	1.14 E-1	8.91 E-4
1988	21.1	1.62 E+1	8.06 E-1	4.85 E+1	2.14 E+0	1.64 E-1	1.28 E-3
1990	24.3	1.87 E+1	1.07 E+0	6.39 E+1	2.89 E+0	2.22 E-1	1.73 E-3
1992	27.4	2.24 E+1	1.39 E+0	8.36 E+1	3.89 E+0	3.18 E-1	2.39 E-3
1994	30.6	2.51 E+1	1.74 E+0	1.05 E+2	5.00 E+0	4.25 E-1	3.12 E-3
1996	33.7	2.77 E+1	2.11 E+0	1.27 E+2	6.24 E+0	5.44 E-1	3.93 E-3
2998	36.9	3.03 E+1	2.51 E+0	1.51 E+2	7.59 E+0	6.74 E-1	4.82 E-3
2000	40.0	3.30 E+1	2.94 E+0	1.76 E+2	9.06 E+0	8.15 E-1	5.79 E-3

Tab. 22: Installierte KKW-Leistung und kumulative bis zum jeweiligen Jahresende vorliegende Curiummengen in kg.

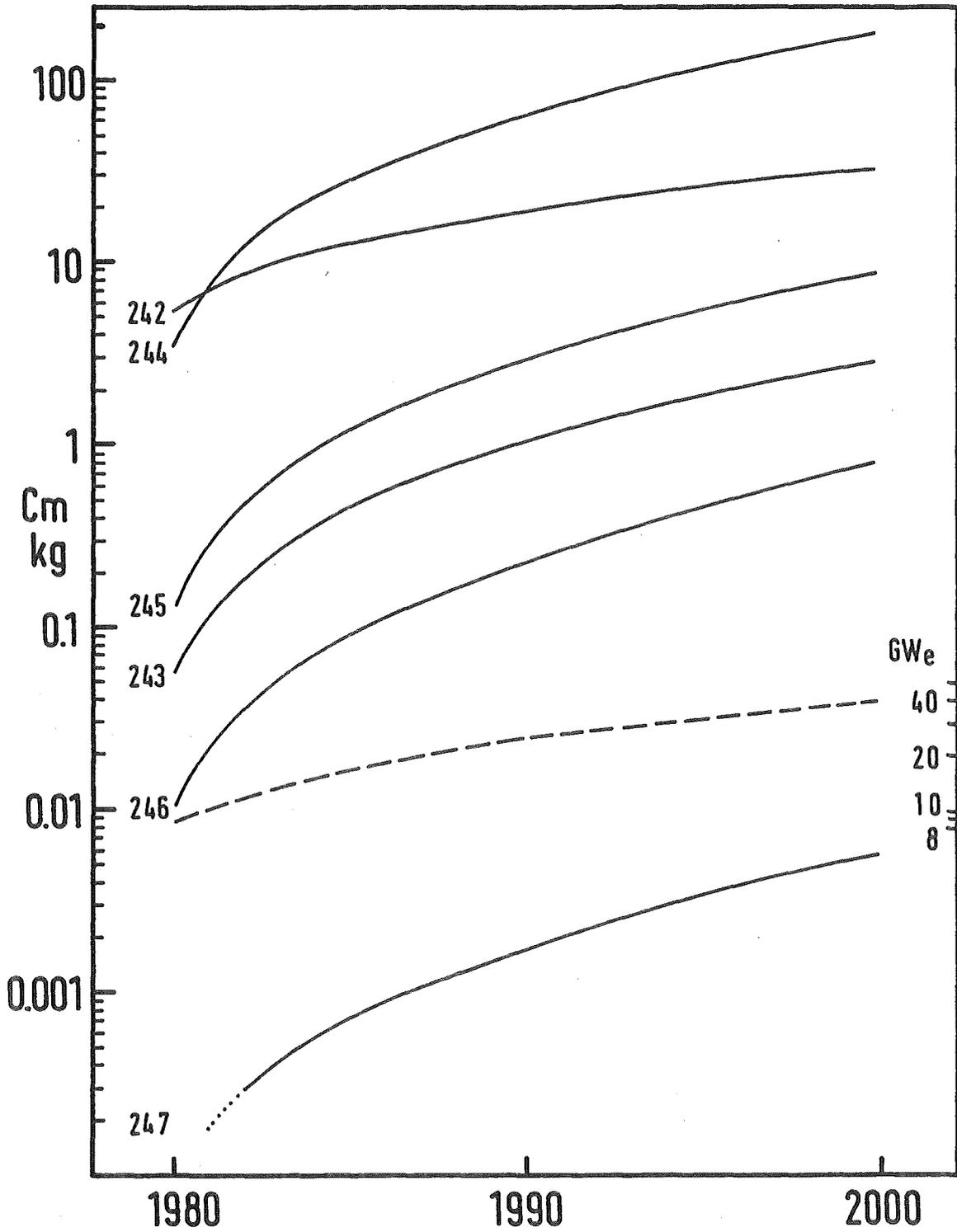


Abb. 12: Curiummenge als Funktion der installierten KKW-Leistung und der Zeit

In Tabelle 22 sind die bis zum jeweiligen Jahresende kumulativ gebildeten Mengen der verschiedenen Curiumisotope sowie die im jeweiligen Jahr erwartete installierte Kernkraftwerksleistung aufgelistet. In der Abbildung 12 sind die berechneten Curiummengen durchgezogen, die KKW-Leistung gestrichelt eingezeichnet.

Cm-242 wird bis zum Jahr 2000 in einer Menge von 30 kg vorliegen. Aufgrund der kurzen Halbwertszeit dieses Nuklids ist die jährliche Zunahme an vorhandenem Cm-242 relativ gering. Der Anteil von Cm-242 aus Am-242 macht sich im betrachteten Zeitraum von 20 Jahren noch nicht bemerkbar (vgl. Abb. 5). An Cm-243 und Cm-244 sind bis zum Jahr 2000 3 kg bzw. knapp 200 kg vorhanden. Der Mengenanstieg ist entsprechend der größeren Halbwertszeit dieser Nuklide größer als bei Cm-242. An Cm-245, Cm-246 und Cm-247 werden 9 kg, 0.8 kg und 6 g entstanden sein. Für diese Nuklide spielt der radioaktive Zerfall im betrachteten Zeitraum noch keine Rolle.

Sollten in Zukunft Mischoxidbrennstoffe in Leichtwasserreaktoren eingesetzt werden, so ist eine noch größere Curiumproduktion zu erwarten.

Da, wie oben angeführt, die Neutronenstrahlung zum überwiegenden Teil von den Curiumisotopen stammt, bestimmt das Curiuminventar in den entladenen Brennstoffen bzw. in den verfestigten Abfällen die Gefährdung bei der Handhabung. Die Wärmeabgabe bei der Zwischenlagerung wird ebenfalls in beträchtlichem Maß durch dieses Element beeinflusst. Gleiches gilt für das Inhalations- und Ingestionsgefährdungspotential. Diese für die Behandlung und Lagerung der Kernbrennstoffe bzw. Abfälle wichtigen Parameter werden durch die reaktorphysikalischen Rechnungen nicht korrekt wiedergegeben, so daß eine Anpassung der in den Rechenprogrammen verwendeten Werte nötig erscheint.

7. Literatur

- /1/ W. Seelmann-Eggebert, G. Pfennig, H. Münzel  
Karlsruher Nuklidkarte, Gersbach, 4. Aufl. (1974)
- /2/ R.M. Nunn  
IAEA-186, Vol. 1 (1976)
- /3/ S. Guardini, G. Guzzi  
Neutron Emission from Spent Fuels...  
EUR 6315e (1979)
- /4/ F.L. Culler et al.  
IAEA-CN-36/15 (1977)
- /5/ H. Birkenfeld, G. Hanse, H. Zahn  
Massenspektrometrische Isotopenanalyse  
VEB Deutscher Verlag d. Wissenschaft, Berlin
- /6/ H.W. Wiese, U. Fischer  
KORIGEN; ein Programm zur Bestimmung des nuklearen  
Inventars von Reaktorbrennstoffen im Brennstoffkreislauf  
KfK-3014 (in Vorbereitung)
- /7/ L. Koch, G. Cottone  
Tagungsberichte, Reaktortagung d. dtsh. Atomforums,  
Karlsruhe, 287 (1973)
- /8/ R. Berg, C. Foggi, L. Koch, R. Krämer, F.J. Woodmann  
Proceed. ESARDA-Symposium, Rom, 183 (1974)
- /9/ S. Guardini, G. Guzzi  
Post Irradiation Analysis of High Burn-Up LWR Fuel Elements  
EUR 6813 (Vol 2), Seite 865 (1980)
- /10/ P. Barbero et al.  
Post Irradiation Analysis of the Obrigheim PWR Spent Fuel  
EUR 6589en (1979)
- /11/ S. Guardini, G. Guzzi (ed)  
Unveröffentlicht
- /12/ L. Koch  
Atompraxis 15, 27 (1969)
- /13/ L. Koch  
Post Irradiation Isotope Analysis of Reactor Fuels Proceed-  
ings of a Panel on the Analytical Chemistry of Nuclear  
Fuels, 111, Wien (1972)

- /14/ L. Koch  
Quantitative Isotopenanalyse von Kernbrennstoffen  
i.d. Anwendung  
GDCH-Vortrag, Köln (1975)
- /15/ W. Müller, J. Reul, J.C. Spirlet  
La préparation de curium métallique de haute pureté  
Revue de Chimie Minérale, t.14, 212 (1977)
- /16/ B. L. Hampson, D. Tennant  
Simultaneous Determination of Actinide Nuclides...  
Analyst, Vol. 98, 873 (1973)
- /17/ D. Bogen, G. Welford  
Applications of Liquid Scintillation Spectrometry...  
International Symposium on Rapid Methods of Measuring  
Radioactivity in the Environment, Nürnberg (1971)
- /18/ H. Lefevre, A. Godement  
Le comptage des émetteurs alpha par scintillation liquide  
Radiochem. Radioanal. Letters, 17/3/197 (1974)
- /19/ E.P. Horwitz et al.  
The Separation of Microgramm Quantities of Cf-252 and  
Cm-248 by Extraction Chromatography  
ANL-7546 Chemistry (1969)
- /20/ K.A. Kraus, F. Nelson  
Proc. First Int. Conf. on Peaceful Uses of Atomic Energy  
Geneva, Vol. 17 (1955)
- /21/ I.M. Kalthoff, P.J. Elving  
Treatise on Analytical Chemistry Part II, Vol. 9  
Interscience (1962)
- /22/ C.J. Rodden  
TID-7029 (2nd edition) (1972)
- /23/ S.G. Thomson, B.G. Harvey, G.R. Choppin, G.T. Seaborg  
J. Am. Chem. Soc. 76, 6229 (1954)
- /24/ G.R. Choppin, R.J. Silva  
J. Inorg. and Nuclear Chem. 3, 153 (1956)
- /25/ L. Koch, G. Cottone, W. Geerlings  
Radiochimica Acta 10, 122 (1968)
- /26/ L. Koch, W. Geerlings  
Radiochimica Acta 11, 49 (1969)
- /27/ L. Koch, D. Steinert  
Simultaneous Multielement Precision Isotope Analysis...  
Advances in Mass Spectrometry, Vol. 8A (1979)
- /28/ Dr. Schlosser  
Private Mitteilung

- /29/ B. Brandalise, G. Cottone, A. Cricchio, F. Gerin, L. Koch  
Automatic Evaluation of Isotope Analysis of Nuclear Fuels  
EUR 5669en (1977)
- /30/ H.W. Walker  
Status of Fission Product Yield Data for Thermal Reactors  
AECL-4704 (1976)
- /31/ L. Koch et al.  
Cumulative Fast Reactor Fission Yields...  
EUR 6738en (1981)
- /32/ M.F. James  
Energy Released in Fission  
Journal of Nuclear Energie, Vol. 23, 517 (1969)
- /33/ L. Koch  
GDCH-Vortrag, Berlin (1967)
- /34/ H. Braun, L. Koch  
Reaktortagung, Hamburg, Tagungsberichte, 521 (1970)
- /35/ A. Cricchio  
Status and Requirements for Plutonium, Americium and  
Curium Nuclear Data...  
EUR 5698e (1977)
- /36/ H.W. Wiese  
Stand der im KfK verfügbaren Methoden und Daten zur  
Vorhersage des Verhaltens von LWR-Brennstoff im  
nuklearen Brennstoffkreislauf  
KfK-Nachrichten 11, 3 (1979)
- /37/ M.J. Bell  
ORIGEN-The ORNL Isotope Generation and Depletion Code  
ORNL-4628 (1973)
- /38/ H.H.PH. Moeken, H. Bokelund  
IAEA-SM-133/177 (1970)
- /39/ D.E. Christensen et al.  
ibid. 133/54
- /40/ L. Koch, H. Braun, A. Cricchio  
ibid. 133/25
- /41/ S. Guardini, G. Guzzi  
The Use of Isotopic Correlation Technique...  
Symposium on Isotopic Correlation, Stresa (1978)
- /42/ I.N. Bronstein, K.A. Semendjajew  
Taschenbuch der Mathematik, H. Deutsch, 9. Aufl. (1969)

- /43/ K.A. Brownlee  
Statistical Theory and Methodology in Science and  
Engineering  
John Wiley & Sons (1965)
- /44/ Draper and Smith  
Applied Regression Analysis  
John Wiley & Sons (1966)
- /45/ R. Wellum et al.  
ESARDA-Symposium on Isotopic Correlations...  
Stresa, Italy May 9-11 (1978)
- /46/ H.H. Hennies, P. Jansen, P. Klumpp  
Uran- und Plutoniumverfügbarkeit für Leichtwasser-  
reaktoren, Hochkonverter und Schnelle Brüter  
Reaktortechnik, Berichtsband der Fachtagung des  
dt. Atomforums, Bonn (1980)