

KFK-130

# KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

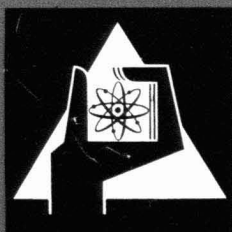
Juli 1962

KFK 130

Abteilung Reaktorbetrieb

Die homogene Vergiftung des Reaktors FR2 mit Borsäure  
während der Nullenergiemessungen

M. Diederichs, H. W. Glauner, H. Gräbner, D. Wintzer



**KERNREAKTOR**  
Bau- und Betriebs-Gesellschaft m. B. H.  
Verwaltung der Zentralbücherei

2. Apr 1963

KERNREAKTOR

BAU- UND BETRIEBS-GESELLSCHAFT M. B. H.

KARLSRUHE



Juli 1962

KFK 130

Abteilung Reaktorbetrieb

Die *homogene* Vergiftung des Reaktors FR2  
mit Borsäure während der Nullenergiemessungen

M. Diederichs, H. W. Glauner, H. Gräbner, D. Wintzer

**KERNREAKTOR**  
Bau- und Betriebs-Gesellschaft m. b. H.  
Verwaltung der Zentrallbücherei

Kernreaktor Bau- und Betriebs-Gesellschaft m. b. H.

Karlsruhe

## INHALTSVERZEICHNIS

	SEITE
1. EINFÜHRUNG	1
2. PHYSIKALISCHE GRUNDLAGEN	7
3. CHEMISCHE GRUNDLAGEN	16
4. VORVERSUCHE MIT BOR IM LABOR	19
5. VORVERSUCH MIT BOR IM REAKTOR	22
6. DURCHFÜHRUNG DER BORVERGIFTUNG	24
7. DURCHFÜHRUNG DER PHYSIKALISCHEN MESSUNGEN WÄHREND DER BORVERGIFTUNG	26
8. REINIGEN DES SCHWERWASSERS VON BOR	34

**KERNREAKTOR**  
Bau- und Betriebs-Gesellschaft m. b. H.  
Verwaltung der Zentralbibliothek

## 1. EINFÜHRUNG

Reaktoren, die einmal im Vollastbereich betrieben wurden, verlieren infolge der Aktivierung der einzelnen Bauelemente weitgehend ihre Zugänglichkeit. Deshalb versucht man, bei jeder Inbetriebnahme eines Reaktors möglichst viele Informationen über das Verhalten des betreffenden Reaktors bereits bei sehr kleinen Leistungen, d. h. im sogenannten "Nullenergiebereich", zu erhalten. Von besonderem Interesse sind dabei Aussagen über sein nukleares Verhalten, das u. a. bestimmt wird durch:

1. die Flußverteilung im Core,
2. die Größe der Überschußreaktivität,
3. die Größe der reaktorphysikalischen Konstanten,
4. die Reaktivitätswerte eingebrachter Proben, Regelorgane oder Brennelemente und
5. die Veränderung der Flußverteilung im Core durch eingebrachte Proben und dergleichen.

Für den Karlsruher Reaktor FR2 zeigen die Berechnungen, daß der Reaktor im kalten, frisch beladenen Zustand ca. 65 mk<sup>x)</sup> Überschußreaktivität besitzt und daher in diesem Zustand mit relativ weit eingefahrenen Trimmstäben (im folgenden TA-Stäbe genannt) betrieben werden muß, während bei späterem Vollastbetrieb die TA-Stäbe nur relativ wenig eintauchen (Einzelheiten siehe Abschnitt 2.6). Die Neutronenflußverteilung und der Reaktivitätswert beim Einsetzen von Brennelementen (im folgenden BE genannt) oder von Proben werden von der TA-Stabstellung stark beeinflusst. Im kalten, frisch beladenen Reaktor, wie er bei den Nullenergiemessungen vorlag, wird das Maximum des Neutronenflusses bei von oben eingefahrenen TA-Stäben (Eintauchtiefe je nach Beladungszustand bis zu 3/4 ihrer Länge) in den unteren Bereich des Cores verschoben. Ergebnisse von Messungen, die bei Vorliegen eines solchen Zustandes erhalten werden, lassen sich nur bedingt auf Vollastverhältnisse übertragen; das gilt insbesondere für Untersuchungen an den horizontalen Experimentierkanälen (vgl. Abb. 1).

---

<sup>x)</sup>  $1 \text{ mk} = 10^{-3} \frac{\Delta k}{k}$

Äquivalente Überlegungen gelten für ein kleines Core, das gerade der kritischen Anzahl von BE entspricht. Man hat also entweder ein zu plattes oder zu schlan - kes Core, wobei in beiden Fällen nicht mehr auf Vollast übertragbare geometri - sche Verhältnisse vorliegen.

Aus diesem Grunde sollten für die Messungen andere Wege zur teilweisen Kompen - sation der Überschußreaktivität des vollen Cores - gleichbedeutend einer Annähe - rung an Vollastreaktivitätseffekte - gesucht werden.

Als mögliche Wege boten sich an:

1. Absenkung des  $D_2O$ -Spiegels,
2. Einsatz von Thoriumstäben anstelle von Brennelementen in äußeren Positionen,
3. Einsatz einer größeren Anzahl schwächerer Absorber an den einzel - nen BE (Alu-Rohre oder Kobalt-Drähte),
4. Zumischung eines Absorbers zum  $D_2O$  (Bor- oder Cadmiumverbin - dungen).

Zu 1. Die  $D_2O$ -Spiegelabsenkung liefert gute Ergebnisse für die Flußverteilung in radialer Richtung. Aussagen über die Flußverteilung in vertikaler Richtung sind nur schwer verwertbar ,da die horizontalen Experimentierkanäle in ei - nem solchen Core asymmetrisch sitzen und die Reflektorwirkung oberhalb des Cores verändert wird. Das mittlere, materielle "buckling" entspricht nicht dem Vollastbetrieb. Aussagen über Reaktivitätswerte von Proben in Horizontalkanälen sind nur bedingt verwertbar.

Zu 2. Der Einsatz von Thoriumstäben bringt lokale Störungen, besonders im Hin - blick auf den schnellen Neutronenfluß;  $L^2$  wird verändert;  $k_{\infty}$  läßt sich nicht mehr exakt definieren. Aussagen bezüglich radialer Flußverteilung sind un - sicher; Aussagen in vertikaler Richtung sind auf den Vollastbetrieb übertrag - bar. Gefundene Reaktivitätswerte eingebrachter Proben entsprechen nicht den bei Vollastbetrieb zu erwartenden.

Zu 3. Die Verwendung von Kobaltdrähten oder Alu-Hülsen an den einzelnen BE zur Kompensation der vorhandenen Überschußreaktivität gestattet eine einigerma -

ßen homogene Vergiftung, obwohl die Mikroflußverteilung besonders bei Verwendung von Kobaltdrähten gestört wird. Durch entsprechende Materialverteilung auf die einzelnen BE-Positionen lassen sich die Vollastreaktivitätseffekte, was ihre radiale und vertikale Verteilung im Core anbelangt, weitgehend richtig simulieren. Ergebnisse von Messungen lassen sich auf den Vollastbetrieb in guter Annäherung übertragen. Zur Anbringung der Absorber müssen die BE aus dem Core gezogen und wiedereingesetzt werden. Zur Entfernung der Absorber nach Beendigung der Versuche ist dieser Vorgang nochmals erforderlich.

Zu 4. Die Vergiftung mit homogen dem  $D_2O$  zugemischten Absorbern liefert brauchbare Aussagen über die Flußverteilung sowohl in horizontaler als auch in vertikaler Richtung. Reaktivitätswerte eingebrachter Proben lassen sich recht genau ermitteln. Der Abbrand sowie die Xenon- und Samarium-Vergiftung lassen sich dabei nur im Hinblick auf ihren Mittelwert, nicht dagegen bezüglich der räumlichen Verteilung simulieren. Die Vergiftung kann stufenweise durchgeführt werden, wodurch gleichzeitig eine exakte Bestimmung der Überschußreaktivität möglich wird. Für die Verwendung von Cadmiumverbindungen (Cadmiumsulfat) sprach zunächst, daß diese in ihrem chemischen Verhalten besser bekannt waren als Bor und seine infrage kommenden Verbindungen. Bor ist jedoch vom physikalischen Standpunkt aus für diese Versuche besser geeignet, da der Absorptionsquerschnitt von Bor im Gegensatz zu Cadmium und sonstigen Absorbern über einen großen Energiebereich einen  $1/v$ -Verlauf hat, wodurch die Berechnung des Reaktivitätsbetrags der Vergiftungseffekte auf den Reaktor erleichtert wird. Deshalb wurden Versuche mit Borverbindungen durchgeführt, die letzten Endes zeigten, daß Borsäure vom chemischen Standpunkt für derartige Versuche in gleichem Maße geeignet ist wie Cadmiumsulfat.

Bei der Untersuchung der Frage, von welcher Möglichkeit nun während der Nullenergiemessungen Gebrauch gemacht werden sollte, schieden die  $D_2O$ -Spiegelabsenkung, der Einsatz von Thoriumstäben, die Verwendung von Kobaltdrähten und der Zusatz von Cadmiumsulfat aufgrund der oben geschilderten Nachteile aus, so daß letztlich zwischen Borzugabe und Alu-Rohren entschieden werden

mußte. Der materielle Aufwand (Herstellung der gegebenenfalls unterschiedlich starken Alu-Rohre einerseits und Bereitstellung einer zusätzlichen Reinigungsanlage zur Entfernung des Bors aus dem  $D_2O$  andererseits) hält sich etwa die Waage. Als Vorteil für die Borvergiftung waren der geringe Zeitaufwand und die einfache Handhabung der Vergiftung anzusehen.

Als mitbestimmend für die Wahl des Verfahrens muß das Anlagenrisiko berücksichtigt werden. Jede Manipulation mit BE ist mit einem gewissen Risiko behaftet. Für die Vergiftung mit lokalen Absorbieren (an mindestens 70 BE) wären mindestens 420 derartiger Manipulationen zusätzlich erforderlich gewesen.

Bei der Verwendung von Bor sind folgende Risiken zu berücksichtigen:

1. Wird durch den Zusatz von Borsäure zum  $D_2O$  im Core oder Kreislauf an irgendeiner Stelle Korrosion begünstigt?
2. Werden unzulässige Mengen Bor in irgendeiner Form auf den Oberflächen, insbesondere im Core, zurückbleiben?
3. Wie weit läßt sich das Bor wieder aus dem  $D_2O$  entfernen?

Alle drei Fragen konnten durch Laborversuche geklärt werden.

Korrosionsbegünstigende Einflüsse des Borsäurezusatzes konnten nicht festgestellt werden und sind bei den geringen Konzentrationen ( $< 10$  ppm) auch nicht zu erwarten (Einzelheiten siehe Abschnitt 4).

Für die maximal mögliche Reaktivitätseinbuße durch im Core zurückgebliebenes Bor war unter ungünstigsten Verhältnissen ein Wert von ca. 2 mk, bezogen auf 34 mk Gesamtvergiftung, zu erwarten. Eine derartige Reaktivitätseinbuße sinkt nach ca. 180 Tagen Vollast durch den Abbrand des Bors auf weniger als die Hälfte des ursprünglichen Wertes ab. Wenn weiter berücksichtigt wird, daß zur Kompensation der zu erwartenden Reaktivitätseinbuße ein Spickelement am Rande des Cores ausreicht, kann ein solcher Verlust als tragbar angesehen werden.

Damit konnte die Entscheidung zugunsten der Borzugabe gefällt werden. Um in der Frage etwa möglicher Borrückstände noch sicherer zu gehen, wurde vor der endgültigen Borzugabe ein Vorversuch mit 3,5 mk Gesamtvergiftung durchgeführt. (Einzel-



heiten siehe Abschnitt 5).

Nachdem durch diesen Vorversuch am Reaktor die Laborergebnisse bestätigt wurden und sichergestellt war, daß nicht mit größeren Borrückständen im Core oder  $D_2O$  zu rechnen ist, wurde mit den eigentlichen Versuchen begonnen. Wie in Abschnitt 2.6 dargestellt, beträgt die Reaktivitätsabnahme bei Vollast gegenüber dem kalten Reaktor 26 mk. Bei einem Abbrand von 1000 MWd/to verringert sich die Überschußreaktivität um weitere 12 mk, d.h. um insgesamt 38 mk. Für die Messungen zur Gewinnung von Aussagen über den Vollastbetrieb wurde deshalb eine mittlere Vergiftung von 34 mk angenommen. Diese wurde stufenweise durchgeführt, bis eine Reaktivitätsminderung von 34 mk erreicht war. In diesem Zustand wurden die meisten der vorgesehenen Messungen durchgeführt. Sorgfältige Vergleiche der Borkonzentration im  $D_2O$  mit der jeweils zugegebenen Bormenge (Bild 8) und die Tatsache, daß die Borkonzentration auch in Wochen nicht zurückging, berechtigten zusammen mit den Ergebnissen des Vorversuchs zu der Annahme, daß die tatsächlichen Borablagerungen an den Oberflächen wesentlich kleiner sind als die maximal erwarteten Werte. Damit war die Möglichkeit gegeben, die Borkonzentration über den für die Nachbildung der Vollastreaktivitätseffekte erforderlichen Wert von 34 mk hinaus zu steigern, bis nahezu die gesamte Überschußreaktivität weggenommen war. Dadurch ließ sich die Überschußreaktivität des Reaktors sehr exakt ermitteln; genauere Aussagen über die Wirksamkeit der TA-Stäbe und einige der physikalischen Konstanten des FR2 konnten erhalten werden (Einzelheiten siehe Abschnitt 7).

Nach Abschluß der Versuche, die sich über rund einen Monat erstreckten, wurde das Bor wieder aus dem  $D_2O$  entfernt. Vergleichende Messungen mit dem Zustand vor der Borvergiftung zeigen, daß die Reaktivitätseinbuße mit Sicherheit  $< 0,2$  mk ist, d.h.  $< 10$  % des maximal erwarteten Wertes.

Zusammenfassend läßt sich sagen, daß man die Borvergiftung zur Kompensation der Überschußreaktivität des kalten, frisch beladenen Reaktors auch bei  $D_2O$ -Reaktoren mit Vorteil einsetzen kann. Die in die Borvergiftung gesteckten Erwartungen haben sich in vollem Umfang erfüllt. Die Borvergiftung wird von der chemischen Seite her beherrscht. Die vorausberechneten Reaktivitätswerte der Borvergiftung wurden durch die Messungen bestätigt. Die reaktorphysikalischen Kon-

stanten, die bei der Auslegung des FR2 eingesetzt wurden, konnten weiter präzisiert werden. Es konnten wertvolle Grundlagen für den Einsatz von Borsäure, z.B. als zusätzliche Sicherheitsmaßnahme, geschaffen werden. Darüber hinaus ergeben sich für die praktische Durchführung der simulierten Vollastmessungen weitere Vorteile: alle Manipulationen für Flußmessungen, wie Umsetzen der BE, Einsetzen von Sonden ins Core, Messungen an offenen Experimentierkanälen, können in der Nullenergiephase der geringen Aktivität wegen unter wesentlich einfacheren Bedingungen als bei Vollast vorgenommen werden; Reaktivitätsbestimmungen, die an Periodenmessungen gebunden sind, lassen sich wegen des Anstiegs der Leistung um das 10- bis 30fache überhaupt nicht bei Vollast durchführen, da einerseits die thermischen Belastungen der BE zu hoch werden und andererseits die Ergebnisse durch die sich langsam aufbauenden Vollastreaktivitätseffekte (Xe, Temperatur) verfälscht werden.

Nach den Erfahrungen mit der Borvergiftung am FR2 sollte diese bei Nullenergiemessungen auch an  $D_2O$ -Reaktoren, insbesondere aber bei der Inbetriebnahme von Leistungsreaktoren mit relativ hoher Überschußreaktivität, von vornherein eingeplant werden, um auf einfache Weise viele Informationen zusätzlich und andere Informationen weniger mühsam als auf herkömmliche Weise zu gewinnen.

## 2. PHYSIKALISCHE GRUNDLAGEN

### 2.1 Allgemeines

Ziel der folgenden Betrachtung ist die Berechnung der für die Neutronenbilanz maßgebenden Größen  $k_{\infty}$ ,  $L_c^2$ ,  $B^2$ ,  $k_{geo}$  bei verschiedenen Borkonzentrationen und Spiegelhöhen des Moderators.

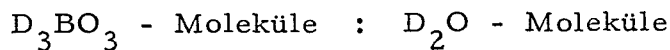
Zur Analyse der Neutronenbilanz des kritischen Reaktors bei verschiedenen Borkonzentrationen verwenden wir die kritische Gleichung der 2-Gruppen-Diffusionstheorie

$$k_{\infty} = k_{geo} \equiv (1 + L_c^2 B^2) (1 + \tau B^2) + \Delta k_{geo} \quad (1)$$

$\frac{1}{k_{geo}} = P$  ist die Verweilwahrscheinlichkeit für Neutronen im Core des kritischen Reaktors.  $\Delta k_{geo}$  ist ein Korrekturglied, das die Störung der Regelmäßigkeit des Core-Aufbaus durch die festen Einbauten berücksichtigt. Die übrigen Bezeichnungen in (1) sind üblich.

Bei der Beschreibung nicht kritischer Zustände des Reaktors verwenden wir das Konzept  $k_{eff} = \frac{k_{\infty}}{k_{geo}}$  und berechnen daraus die Reaktivität  $\rho = \frac{k_{eff} - 1}{k_{eff}}$

Uns interessieren Reaktivitätsbeiträge  $< 70$  mk bzw. Borkonzentrationen, die unterhalb  $10 \mu\text{g Bor/ml}$  liegen, bei denen also das Molekülverhältnis



bei  $2 \cdot 10^{-5}$  oder darunter liegt. Bei derartig geringen Borkonzentrationen dürfen wir die Änderung der makroskopischen Streuquerschnitte  $\Sigma_s$  im schnellen und thermischen Energiebereich vernachlässigen, da die mikroskopischen Streuquerschnitte der Borverbindung von der gleichen Größenordnung wie beim  $\text{D}_2\text{O}$  sind. Zu berücksichtigen bleiben die Effekte der thermischen und epithermischen Absorption im Moderator.

### 2.2 Faktoren, die als unabhängig von der Borkonzentration betrachtet werden dürfen

#### 2.2.1 Diffusionskonstante:

Dem Ausdruck

$$D = \frac{1}{3 \Sigma_s (1 - \bar{\mu})} \quad (2)$$

entsprechend, ist der relative Fehler, den wir beim Rechnen mit unveränderlicher Diffusionskonstante im Moderator machen, ebenso gering wie der relative Fehler in  $\Sigma_s$ . Entsprechend ist das Argument für  $\tau$ :

### 2.2.2 Fermialter $\tau$

Wenn wir im Rahmen des Fermi-Age-Modelles die Darstellung

$$\tau = \int_{E_0}^E \frac{D}{\xi \Sigma_s} \frac{dE}{E} \quad (3)$$

heranziehen, bleibt  $\tau$  praktisch unverändert. Zwar fußen (2) und (3) auf stark vereinfachenden Annahmen und führen zu ungenauen Ergebnissen, jedoch kommt es hier nur auf die Größenordnung der Effekte an.

### 2.2.3 Schnellspaltfaktor

Bei der Berechnung des Schnellspaltfaktors nach der Methode von Spinrad (als Moderatorinjektionswahrscheinlichkeit schneller Neutronen) vernachlässigen wir ohnehin Effekte der Rückstreuung schneller Neutronen aus dem Moderator in den Brennstoff. Erst recht können wir deren Änderung bei derartig geringen Änderungen der Streuwahrscheinlichkeit vernachlässigen.

### 2.2.4 Flußverhältnisse in der Wignerzelle

Um den Einfluß der Moderatorvergiftung auf die Flußverhältnisse in der Wignerzelle des FR 2 zu untersuchen, wurde eine Zellrechnung nach der Methode von Küsters und Ott durchgeführt. Danach ändert sich das Verhältnis  $\bar{\phi}^M / \bar{\phi}^U$  um weniger als 0,2%, wenn man von der Zelle mit unvergiftetem Moderator zu einer "vergifteten" Zelle übergeht, deren Moderatorabsorption um den Faktor 7 gesteigert wurde.\* (Dabei verringert sich die thermische Nutzung um etwa 10%). Die Änderung von  $\bar{\phi}^M / \bar{\phi}^U$  ist so gering, weil der makroskopische Absorptionsquerschnitt des Moderators bei den uns interessierenden Vergiftungen immer noch sehr klein gegenüber dem des Urans ist.

## 2.3 Einfluß der thermischen und epithermischen Absorption im Moderator auf $k_{00}$ bei verschiedenen Borkonzentrationen.

### 2.3.1 Mittelung des Absorptionsquerschnittes

Zur Berechnung der Absorptionsrate im Moderator ist dessen Absorptionswirkungsquerschnitt über das dort vorliegende Energiespektrum zu mitteln, wobei eigentlich noch die Ortsabhängigkeit des Spektrums in der Wignerzelle zu berücksichtigen ist.

---

\*) ungefähr ein Faktor 7 tritt bei der Vergiftung des FR 2- Moderators auf.

Von H. Kunze <sup>2)</sup> ist das FR 2-Spektrum  $\phi^M(E)$  im Moderator für die Mitte des Moderators ( $\phi^{MM}(E)$ ) und für das Gebiet an der Oberfläche der Brennelemente ( $\phi^{MO}(E)$ ) berechnet worden.

Mit  $\sigma_c^B(E) = 762 \sqrt{\frac{0,0253}{E}}$  barn \*)

ergibt sich für den energiegemittelten Einfangquerschnitt von Bor

$$\sigma_c^B = \frac{\int_0^{0,4eV} \sigma_c^B(E) \phi^M(E) dE}{\int_0^{0,4eV} \phi^M(E) dE} \quad (4)$$

$\sigma_c^B = 644,6$  barn wenn  $\phi^M(E) = \phi^{MM}(E)$  und

$\sigma_c^B = 632,8$  barn wenn  $\phi^M(E) = \phi^{MO}(E)$  gesetzt wird.

Der mit dem Fluß an den verschiedenen Orten der Wignerzelle gewichtete Mittelwert

$$\bar{\sigma}_c^B = \frac{\int_{\text{Mod.}} dV \bar{\sigma}_c^B(r) \phi(r)}{\int_{\text{Mod.}} dV \phi(r)} \quad (5)$$

wird zwischen den beiden Werten liegen, jedoch näher an 644,6 barn. Wir rechnen mit dem letzteren Wert, wobei der dadurch entstehende Fehler < 1% in  $\sigma_c^B$  einzuschätzen ist.

Für das verwendete D<sub>2</sub>O mit einer Konzentration von 99,81% erhalten wir bei Mittelung über das Spektrum in der Mitte des Moderators (für die Absorptionsquerschnitte von H<sub>2</sub>O und D<sub>2</sub>O wurde ein 1/v Verlauf angenommen).

$$\Sigma_c^M = N^{D_2O} \sigma_c^{D_2O} + N^{H_2O} \sigma_c^{H_2O} + N^B \sigma_c^B \quad (6a)$$

$$= 7,05 \cdot 10^{-5} + 3,61 \cdot 10^{-5} \cdot C_B \quad (6b)$$

Dabei ist C<sub>B</sub> die Borkonzentration in µg B/ml D<sub>2</sub>O.

2) H. Kunze: Untersuchungen zur Theorie ortsabhängiger Neutronenspektren in heterogenen Reaktoren, INR-Arbeitsbericht 23/61.

\*) Nach einer massenspektrometrischen Analyse der Fa. Tracerlab (Richmond) beträgt die B<sup>10</sup>-Konzentration des verwendeten Bors 19,71 ± 0,08 Atom-%. G. J. Safford et. al. (Nucl. Sci. Eng. 9, 99 (1961)) geben für diese B<sup>10</sup>-Konzentration  $\Sigma_c^B(2200 \text{ m/sec}) = (762 \pm 3)$  barn an.

Im folgenden verwenden wir  $\Sigma_c^M$  als Maß für die Borkonzentration bei der Berechnung der interessierenden Kenngrößen des Reaktors.

### 2.3.2 Thermische Nutzung f:

$$f = \frac{\Sigma_c^U \bar{\phi}_{V^U}^U}{\Sigma_c^U \bar{\phi}_{V^U}^U + \Sigma_c^M \bar{\phi}_{V^M}^M + \Sigma_c^{Al} \bar{\phi}_{V^{Al}}^{Al}} \quad (7)$$

ist in Abb. 2 in Abh. von  $\Sigma_c^M$  dargestellt.

Die mittleren Flüsse im Uran, Can, Kühlpalt, Führungsrohr und im restlichen Moderatargebiet wurden Berechnungen von H. Küsters <sup>3)</sup> entnommen.

### 2.3.3 Beitrag der epithermischen Absorption im Moderator

In der 4-Faktorenformel für  $k_{\infty}$  wäre der Beitrag der epithermischen Absorption im borvergifteten Moderator sinngemäß durch eine Verringerung von  $p$  zu beschreiben. Die Darstellung wird jedoch einfacher, wenn wir den Effekt durch einen Korrekturterm  $R$  ausdrücken, indem wir

$$k_{\infty} = \eta \mathcal{E} p f - R \quad (8)$$

schreiben. Von  $R$  ist dann zu fordern, daß  $R \cdot \Sigma_{aT} \cdot \phi_T \cdot V_{Zelle}$  den Betrag der epithermischen Absorption im Bor

$$N_{B_{Mod.}} \int dV \int_{0,4eV}^{\infty} \phi^M(r, E) \cdot \sigma_c^B(E) dE \quad (9)$$

richtig wiedergibt. Dabei kennzeichnet  $r$  den Ort in der Wignerzelle,  $\phi_T$  ist der mittlere thermische Fluß in der Zelle und unter  $\Sigma_{aT}$  ist

$$\Sigma_{aT} = \frac{\Sigma_c^U \bar{\phi}_{V^U}^U + \Sigma_c^{Al} \bar{\phi}_{V^{Al}}^{Al} + \Sigma_c^M \bar{\phi}_{V^M}^M}{\bar{\phi}_{V^U}^U + \bar{\phi}_{V^{Al}}^{Al} + \bar{\phi}_{V^M}^M} \quad (10)$$

zu verstehen.

In diesem Falle können wir nämlich die 2-Gruppen-Diffusionsgleichungen des homogenisierten, kritischen Cores in der Form

$$\begin{aligned} D_s \Delta \phi_s - \frac{D_s}{\tau} \phi_s + (\eta \mathcal{E} p f - R) \Sigma_{aT} \phi_T &= 0 \\ D_T \Delta \phi_T + \frac{D_s}{\tau} \phi_s - \Sigma_{aT} \phi_T &= 0 \end{aligned} \quad (11)$$

<sup>3)</sup> H. Küsters, INR-Notiz vom 8.4.1961

schreiben und werden zur kritischen Bedingung

$$(\eta \mathcal{E} \text{ pf} - R) = (1 + L_c^2 B^2) (1 + \tau B^2) \quad (12)$$

geführt.  $\eta \mathcal{E} \text{ pf} - R$  hat in diesem Falle die übliche Bedeutung von  $k_{\infty}$ .

Zur Auswertung der Bedingung (9) nähern wir das Moderatorspektrum auch im epithermischen Gebiet durch das Spektrum in der Mitte des Moderators an und nehmen zusätzlich an, daß der epithermische Fluß im Moderator einer Zelle konstant ist. Ein dadurch bedingter möglicher Fehler  $R$  von der Größenordnung 5 % kann in Kauf genommen werden. Nun läßt sich das Integral in (9) durch Berechnung des Verhältnisses

$$S = \frac{\int_{0,4\text{eV}}^{\infty} \phi^{\text{MM}}(E) \sigma_c^{\text{B}}(E) dE}{\int_0^{\infty} \phi^{\text{MM}}(E) \sigma_c^{\text{B}}(E) dE} \quad (13)$$

mit dem von H. Kunze berechneten Spektrum  $\phi^{\text{MM}}(E)$  sauber an die thermische Absorption im Moderator anschließen:

$$\int_{\text{Mod.}} dV \int_{0,4\text{eV}}^{\infty} \phi^{\text{M}}(r, E) \sigma_c^{\text{B}}(E) dE \approx V_{\text{Mod}} \int_{0,4\text{eV}}^{\infty} \phi^{\text{MM}}(E) \sigma_c^{\text{B}}(E) dE$$

und (9) wird:

$$R \sum_{aT} \phi_T V_{\text{Zelle}} = N^{\text{B}} \sigma_c^{\text{B}} V^{\text{M}} \bar{\phi}^{\text{M}} \cdot S$$

Nach einigen Umformungen erhält man

$$R = \frac{\sum_c^{\text{B}} \bar{\phi}^{\text{M}} V^{\text{M}}}{\sum_{c+f}^{\text{U}} \bar{\phi}^{\text{U}} V^{\text{U}}} f \cdot S \quad (14)$$

$\phi^{\text{M max.}} = \int_0^{0,4\text{eV}} \phi^{\text{MM}}(E) dE$  ist der thermische Fluß in der Mitte des Modera-

tors, wo er sein Maximum erreicht. Für  $S$  ergibt die graphische Integration nach (13)

$$S = 1,37 \cdot 10^{-2}$$

Die Größen  $R$  bzw.  $k_{\infty} = \eta \epsilon_{pf} - R$  sind in Abb. 3 bzw. Abb. 4, Kurve a, in Abhängigkeit von  $\Sigma_c^M$  dargestellt.

## 2.4 Berechnung von Parametern, die die Ausflußverluste des borvergifteten Reaktors bestimmen

Beim borvergifteten Reaktor ist bei der Berechnung der Ausflußverluste einerseits die Änderung der Diffusionslänge und andererseits - sofern ein Reflektor vorliegt - die Änderung der makroskopischen Flußverteilung, auch bei gleicher Geometrie, zu berücksichtigen.

### 2.4.1 Änderung der Diffusionslänge

Aus 
$$L_c^2 = \frac{D_T}{\Sigma_{aT}}$$

und 
$$\Sigma_{aT} = \frac{1}{f} \Sigma_{c+f}^U \frac{\bar{\phi}_{VU}^{UU}}{\bar{\phi}_{VU}^{UU} + \bar{\phi}_{VM}^{MM} + \bar{\phi}_{VA}^{AA}}$$

ergibt sich 
$$L_c^2 = f \frac{D_T}{\Sigma_{c+f}^U} \left( 1 + \frac{\bar{\phi}_{VM}^{MM} + \bar{\phi}_{VA}^{AA}}{\bar{\phi}_{VU}^{UU}} \right) \quad (15)$$

$L_c^2$  in Abhängigkeit von  $\Sigma_c^M$  ist in Abb. 5. aufgetragen.

$D_T$  ist die thermische Diffusionskonstante des homogenisierten Cores und wurde aus

$$\frac{1}{D_T} = \frac{\frac{1}{D_M} \bar{\phi}_{VM}^{MM} + \frac{1}{D_U} \bar{\phi}_{VU}^{UU} + \frac{1}{D_A} \bar{\phi}_{VA}^{AA}}{\bar{\phi}_{VM}^{MM} + \bar{\phi}_{VU}^{UU} + \bar{\phi}_{VA}^{AA}}$$

berechnet.

Im Reflektor macht sich die Änderung der Diffusionslänge nach

$$L_R^2 = \frac{1}{K_R^2} = \frac{D_T^M}{\Sigma_c^M}$$

wesentlich stärker als im Core bemerkbar. Damit hängt die Änderung der makroskopischen Flußverteilung im Reaktor zusammen.



### 2.4.2 Änderung der makroskopischen Flußwölbung

Bei gleichen geometrischen Bedingungen sinkt die Reflektorwirkung bei steigendem  $\Sigma_c^M$ , und die makroskopische Flußwölbung im Core erhöht sich. Rechnungen zur Bestimmung von  $B^2$  als Funktion von  $L_c^2$  und  $L_R^2$  nach 2.4.1 wurden auf der Z 22 für einen Coreradius von 118,8 cm (156 Brennelemente) durchgeführt. Das Ergebnis zeigt Abb. 6 a) für den Reaktor mit voller  $D_2O$ -Spiegelhöhe und 6 b) für den Reaktor mit jeweils kritischer  $D_2O$ -Spiegelhöhe. Das benutzte Programm entspricht der von W. Häfele 4) dargelegten Behandlungsweise und berechnet das horizontale und vertikale Buckling nach einem Iterationsverfahren im Rahmen der Zweigruppentheorie für das homogenisierte Core.

### 2.4.3 Einfluß der festen Einbauten im Core

Die Regelmäßigkeit des Cores ist durch Einbauten gestört; dazu gehören die horizontalen Bestrahlungskanäle, die Führungsrohre oder Absorberstäbe und die Aluminiumteile der Brennelemente im oberen Reflektor. Außerdem kann der FR-Stab nicht völlig aus dem Core gezogen werden.

Für ein ungestörtes Core ist der geometrische Eigenwert

$$k_{\text{geo}} = (1 + L_c^2 B^2) \cdot (1 + \tau B^2).$$

Für das durch feste Einbauten gestörte Core wird ein Korrekturterm  $\Delta k_{\text{geo}}^{\text{Einb.}}$  eingeführt, somit wird

$$k_{\text{geo}} = (1 + L_c^2 B^2) \cdot (1 + \tau B^2) + \Delta k_{\text{geo}}^{\text{Einb.}} \quad (16).$$

$\Delta k_{\text{geo}}^{\text{Einb.}}$  ist ein Maß für den Reaktivitätseinfluß der festen Coreeinbauten; der Wert ist von der Moderatorhöhe  $H$  abhängig.

Die Berechnung der Funktion  $\Delta k_{\text{geo}}^{\text{Einb.}}(H_{\text{eff}})$  wurde nach der Störungstheorie durchgeführt. Dabei wurde in vertikaler Richtung ein Sinusverlauf des schnellen und thermischen Flusses angenommen, entsprechend der jeweiligen  $D_2O$ -Höhe. In horizontaler Richtung wurden die mit Hilfe des Programmes von F. Stummel 5) berechneten heterogenen Flüsse und deren Adjungierte in den Störungsgleichungen verwandt. Dabei wurden die Beiträge der thermischen Absorption im Alu-

---

4) W. Häfele: Flußverteilungen nach der Zweigruppentheorie Arbeitsbericht 57/23

5) F. Stummel: Numerische Berechnung heterogener Reaktoren (Zt. Nukleonik)

minium und die der Moderatorverdrängung durch die Al-Rohre erfaßt. \* )  
Der Beitrag der Strahleffekte (streaming) in den Hohlrohren wurde für die (in das Core ragenden) C-Kanäle experimentell bestimmt, für die Reflektorkanäle vernachlässigt. Bei dieser Behandlung ergibt sich  $\Delta k_{\text{geo}}^{\text{Einb.}}$  (H), wie in Abb.7 dargestellt.

## 2.5 Überschußmultiplikation $k_{\infty} - k_{\text{geo}}$ im borvergifteten Reaktor bei voller $\text{D}_2\text{O}$ -Spiegelhöhe

$$k_{\infty} - k_{\text{geo}} = \eta \epsilon_{\text{pf}} - R - (1 + L_c^2 B^2) \cdot (1 + \tau B^2) - \Delta k_{\text{geo}}^{\text{Einb.}} \quad (17)$$

wurde in Abhängigkeit von  $\Sigma_c^M$  berechnet und ist in Abb. 8 dargestellt.

Die Abhängigkeit der einzelnen Faktoren von der Borkonzentration ist in Abs. 2.3 und 2.4 angegeben.

## 2.6 Reaktivitätsbetrachtungen

Der Reaktor hat im kalten Zustand eine relativ hohe Überschußreaktivität, die durch TA-Stäbe kompensiert werden muß. Die TA-Stäbe sind dabei bis zu 3/4 ihrer Länge eingefahren. Bei Vollast treten eine Reihe von Reaktivitätseffekten auf, durch die ein Teil der Überschußreaktivität verbraucht wird, so daß die TA-Stäbe weiter herausgezogen werden müssen. Von diesen Reaktivitätseffekten sind zu nennen:

- Temperatureffekte von Moderator und Uran
- Xe- und Sm-Vergiftung der Brennelemente
- Spaltproduktvergiftung
- Abbrand von Spaltmaterial

---

\*) Lokale Flußabsenkungen durch Absorption im Aluminium der Störvolumina wurden näherungsweise berücksichtigt.

Die folgende Tabelle zeigt die Reaktivitätsverhältnisse bei verschiedenen Leistungen und verschiedenen Beladungen:

Leistung	Abbrand	Looprohre	bei 157 BE $\rho_{ex}$ TA/FR	bei 153 BE+4 SE $\rho_{ex}$ TA/FR
Nulleistung	0	ausgebaut	65 mk 1361/0	94 mk 1553/0
Nulleistung	0	m. Nebenloop, leer m. Zentralloop, leer	48 mk 1204/0	68 mk 1385/0
Vollast	0	m. Nebenloop, leer m. Zentralloop, leer	22 mk 845/0	40 mk 1100/0
Vollast	1000 MWd/to	m. Nebenloop, leer m. Zentralloop, leer	10 mk 600/0	27 mk 930/0

Tabelle 1: Überschußreaktivität für verschiedene Betriebszustände des FR 2

es bedeuten:  $\rho_{ex}$  Überschußreaktivität  
 TA/FR kritische Stellung der 16 TA und des Feinregelstabes.  
 Bei einer Stellung von 2100 mm sind die TA-Stäbe ganz eingefahren.  
 BE Brennelement (je BE 33 kg nat. Uran)  
 SE Spickelement (Al-Uranlegierung: je SE 190 g U<sup>235</sup>; 760 g U<sup>238</sup>; 4480 g Al.

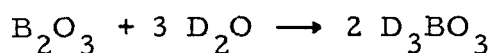
### 3. CHEMISCHE GRUNDLAGEN

#### 3.1 Herstellung der zur Vergiftung verwendeten Borverbindung

Die Vergiftung wurde mit Deuteroborsäure,  $D_3BO_3$ , durchgeführt. Wir haben diese Verbindung aus folgenden Gründen gewählt:

1. Die elektrische Leitfähigkeit des  $D_2O$  wird durch  $D_3BO_3$  bei Mengen von weniger als 10 ppm nur sehr gering erhöht,
2. eine pH-Änderung des  $D_2O$  tritt praktisch nicht ein und
3. die Verbindung ist sehr einfach darzustellen.

Deuteroborsäure bildet sich nach der Reaktionsgleichung:



Als Ausgangsmaterial dient Bor (III)-oxyd (Reinheitsgrad p.A., Merck-Nr. 164). Die Umsetzung mit Schwerwasser erfolgt in einem Extraktionsapparat einfacher Bauart, in welchem die Papierextraktionshülse zur Aufnahme des  $B_2O_3$  durch ein Edelstahl-Drahtnetz ersetzt ist. Das in einem 2-Liter-Kolben befindliche Schwerwasser wird mit einer PILZ-Heizhaube zum Sieden gebracht. Der Schwewasserdampf steigt durch die Boroxyd-Säule nach oben, wird am aufgesetzten Rückflußkühler kondensiert und tropft auf das Boroxyd. Das Kondenswasser reagiert nach obiger Gleichung, löst die gebildete Deuteroborsäure auf und läuft in den Extraktionskolben zurück.

Eine Extraktorfüllung beträgt ca. 500 g  $B_2O_3$  und etwa 1 Liter  $D_2O$ . Es wird Schwerwasser der Konzentration 99,78 Mol % verwendet. Die Dauer einer solchen Extraktion beträgt rund 4 Stunden.

Nach Verbrauch des Boroxyds läßt man den Kolbeninhalt abkühlen, wobei sich die Deuteroborsäure in Form von weißen, winzigen Kristallen ausscheidet. Die Borsäure wird unter Luftabschluß durch Absaugen entwässert; die restlichen Feuchtigkeitsspuren entfernt man im Vacuum-Trockenschrank bei 100 bis 110 °C in einigen Tagen bis zur Gewichtskonstanz. Das beim Absaugen zurückgewonnene  $D_2O$  wird für die folgenden Chargen wiederverwendet.

Es wurden insgesamt 3030 g  $D_3BO_3$  hergestellt. Der Verbrauch an  $D_2O$  betrug ca. 2,5 kg. Durch potentiometrische Titration wurde eine  $D_3BO_3$ -Konzentration von 99,60 Gew. % bestimmt.

### 3.2 Methoden der Bor-Bestimmung

Für die Bestimmung von Bor in Form von Borsäure standen uns drei verschiedene Methoden zur Verfügung:

1. Die Standard-Bor-Titration mit  $n/10$  oder  $n/100$  Natronlauge im Konzentrationsbereich von größer 0,1 mg Bor/ml Probelösung.
2. Die kolorimetrische Borbestimmung mit Karminsäure, die bei Bor-Konzentrationen im ppm-Bereich allein anwendbar ist. Die kolorimetrische Methode läßt sich natürlich auch bei größeren Borgehalten durchführen. In diesen Fällen muß jedoch die Lösung auf eine Borkonzentration von 1 - 10  $\mu\text{g B/ml}$  verdünnt werden. Der hierbei auftretende Fehler kann durch die Verwendung von amtlich geeichten Meßpipetten und Meßkolben auf ein Minimum reduziert werden.
3. Die potentiometrische Bortitration auf  $n/10$  NaOH-Lösung im Konzentrationsbereich von größer 0,1 mg B/ml Probelösung.

#### 3.2.1 Titrimetrische Bor-Bestimmung

$\text{H}_3\text{BO}_3$  wie auch  $\text{D}_3\text{BO}_3$  können aufgrund ihrer schwachen Acidität nur sehr schwierig direkt titriert werden. Setzt man jedoch einen mehrwertigen Alkohol, wie Glycerin, Sorbit oder Mannit, hinzu, so entsteht durch Komplexbildung eine mittelstarke einbasige Säure, die sich mit Natronlauge unter Verwendung von Phenolphthalein als Indikator relativ gut titrieren läßt. Zur Bestimmung des Bor-Gehaltes der Stammlösungen haben wir gegen  $n/10$  Salzsäure eingestellte NaOH-Lösungen verwendet. Als Alkoholzusatz wurde Mannit gewählt. Es wurde so viel zugesetzt, bis die Probelösung annähernd gesättigt war.

#### 3.2.2 Kolorimetrische Bor-Bestimmung

Karminsäure gibt mit Borsäure in konzentrierter Schwefelsäure einen Farbumschlag von rot nach blau, dessen Extinktion der Borsäure-Konzentration proportional ist. Die Analyse wird folgendermaßen durchgeführt:

Zu der neutralen Borsäurelösung, die sich in einem Quarz-Erlenmeyer-Kolben von 0,3 Liter Inhalt befindet und die nicht mehr als 200 ml betragen soll, werden 230 mg festes, borfreies Calciumhydroxyd zugesetzt. Auf den Schliff-Kolben wird ein Destillationsaufsatz mit Tropftrichter, Kühler und Vorstoß mit Destillations-Vorlage angebracht und das  $\text{D}_2\text{O}$  langsam mittels Heizhaube abdestilliert. Ist man gezwungen, aus einer größeren Menge Wasser (etwa 1 Liter) Bor anzureichern, so wird portionsweise  $\text{D}_2\text{O}$  aus dem Tropftrichter in den

Quarzdestillationskolben gegeben. Es wird so lange destilliert, bis ein schwach feuchter Calciumborat-Rückstand im Kolben zurückbleibt. Ein weiteres Erhitzen darf nicht vorgenommen werden, weil sonst das Borat in das Quarzglas einbrennt und dann nur sehr schwierig in Lösung zu bringen ist. Wichtig ist bei allen Eindampfprozessen, daß eine genügend hohe Calciumalkalität vorhanden ist, um zu vermeiden, daß Bor-Verluste auftreten und daß in Quarzgefäßen gearbeitet wird, da im alkalischen Medium durch den Bor-Gehalt der normalen Gerätegläser starke Verfälschungen der Resultate auftreten.

Zu dem Calciumborat-Rückstand wird genau 35,00 ml Karminsäure-Reagenz zugefügt und unter gelegentlichem Umschütteln die Bor-Verbindung aufgelöst. Die Reagenzlösung wird bereitet, indem man 1,00 g Karminsäure (Reinheitsgrad p.A., Merck-Nr. 211) in 1 Liter konzentrierter Schwefelsäure (95 - 97 %ig, p.A.-Grad, Merck-Nr. 731) auflöst. Diese Karminsäurelösung verdünnt man mit einem Gemisch von 4,0 Liter konzentrierter Schwefelsäure, 200 ml destilliertem Wasser und 10 ml konzentrierter Salzsäure (36 %ig, p.A.-Grad, Merck-Nr. 317) und läßt sie vor Gebrauch einige Tage stehen. Es ist ratsam, mit dieser Reagenzlösung vor Verwendung eine Eichkurve aufzustellen.

Nach fünfstündigem Stehen der Analysenprobe - diese Zeit ist für die vollständige Entwicklung der Farbe des Bor-Karminsäure-Komplexes notwendig - wird die Absorption der Analysenprobe bei einer Wellenlänge von  $610 \text{ m}\mu$  mit einem ZEISS-Spektralphotometer PMQ II in einer 1 cm-Küvette gemessen. Der Borgehalt wird aus der Eichkurve entnommen.

Der günstigste Meßbereich dieser Bestimmungsmethode liegt zwischen 1 und  $10 \mu\text{g B/Probe}$ , bei einem Meßfehler von etwa  $\pm 2 \%$

### 3.2.3 Potentiometrische Bor-Bestimmung

Diese Methode unterscheidet sich von der Standard-Bor-Titration lediglich dadurch, daß der Endpunkt der Bestimmung nicht wie dort mit Hilfe eines zugesetzten Indikators, der am Äquivalenzpunkt einen deutlichen Farbumschlag gibt, sondern elektrometrisch, und zwar durch Potentialmessung ermittelt wird. Während der Indikator nur den Äquivalenzpunkt der Titration erkennen läßt, erlaubt uns die Messung des Elektrodenpotentials den gesamten Titrationsverlauf in allen seinen Phasen zu registrieren. Sehr elegant und genau wird diese Titration bei Verwendung eines Potentiographen, - wir haben den E 336 der Dt. Metrohm verwendet -, der den gesamten Vorgang automatisch ablaufen läßt und so alle sub-

jektiven Fehler ausschaltet. Als Indikator-Elektrode diente hierbei eine kombinierte Glas-Kalomel-Elektrode. Titriert wurde mit n/10 NaOH-Lösung, die vorher genau gegen n/10 H Cl-Lösung eingestellt wurde. Für die Vorbehandlung der Deuteroborsäureproben gilt dasselbe wie unter 3.2.1 gesagte.

Wir haben den Verlauf der Titrationskurve in der differenzierten Form - dE/dt gegen ml n/10 NaOH - aufgenommen. Hierdurch wird die Auswertung erleichtert und beschränkt sich auf die Ablesung des Kurvenmaximums.

### 3.3 Analysenwerte der beiden Deuteroborsäure-Stammlösungen

Die Analysenwerte der beiden Deuteroborsäure-Stammlösungen sind in nachstehender Tabelle 2 zusammengefaßt:

Analysenmethode	Stammlösung II mg Bor/g Lg	Stammlösung III mg Bor/g Lg
Titration m. n/10 NaOH	4,249	3,784
Potentiometrisch	4,327	3,824
Kolorimetrisch	4,295	3,779
Mittelwert	<u>4,290</u>	<u>3,796</u>

Tabelle 2 : Analysendaten der Deuteroborsäure-Stammlösungen

## 4. VORVERSUCHE MIT BOR IM LABOR

### 4.1 Versuche zur Bestimmung der Ablagerung von Bor auf Metalloberflächen

Eine erste überschlägige Rechnung ergab, daß zur Simulierung der Lasteffekte von 34 mk eine Borvergiftung von etwa 4 µg Bor/ml D<sub>2</sub>O nötig ist. Vorversuche sollten zeigen, ob ein Niederschlag von Bor auf Al stattfindet, der nach Beendigung der Versuche und nach dem Reinigen des D<sub>2</sub>O über die Ionentauscher zu einem Reaktivitätsverlust führen würde. Dazu wurden folgende Untersuchungen gemacht:

#### 4.1.1 Bestimmung der Bor- bzw. Cd-Adsorption auf Al-Oberflächen durch Reaktivitätsmessungen.

Eine Anzahl von Al-Hülsen (eloxiert) unserer BE wurde für ca. 2 Monate in

Lösungen von Borsäure bzw. Cadmiumsulfat von einfacher, dreifacher und zehnfacher Konzentration der später beabsichtigten gebracht. Das Verhältnis Metalloberfläche / Lösungsmenge entsprach dem für die Vergiftung im Reaktor vorgesehenen Wert. Der  $Q$ -Wert dieser "getauchten" Hülsen wurde dann mit dem von nicht getauchten im FRM durch Periodenmessungen verglichen. Es zeigte sich, daß sich weniger als 1 % der gelösten Bor- bzw. Cd-Menge niederschlug. Diese Messungen waren trotz der Kleinheit der zu untersuchenden  $Q$ -Beträge sehr empfindlich, wie durch zusätzliche Messungen mit kleinsten Mengen Absorbersubstanz gezeigt werden konnte. So wurde durch eine probeweise an einer Al-Hülse angebrachte Cd-Pille von 17 mg ein Reaktivitätseffekt von  $6 \cdot 10^{-5}$  erzielt, während der  $Q$ -Unterschied von nicht getauchten und in 535 mg Cd getauchten Al-Hülsen innerhalb der Meßunsicherheit von  $\pm 1 \cdot 10^{-5}$  blieb, was einem möglichen Niederschlag von etwa 3 mg Cd oder 0,5 % der Gesamtmenge entspricht.

#### 4.1.2 Analytische Bestimmung der Bor-Adsorption auf Metalloberflächen.

Hierzu wurden folgende Metallproben untersucht:

V <sub>2</sub> A-Rohre	Werkstoff 4541
V <sub>4</sub> A-Rohre	Werkstoff 4571
Al-Rohre gebeizt	AlMg <sub>3</sub>
Al-Can-Rohre gebeizt, nicht eloxiert	Reinaluminium 99,5

Die Proben wurden in Stücken von 15 bis 20 cm Länge an Perlonfäden in eine etwa 10 ppm-Borsäurelösung in Kautexflaschen eingebracht und in unbewegter Lösung 100 bis 120 Tage stengelassen. Dieser Zeitraum wurde gewählt, weil vollkommene Einstellung des Adsorptionsgleichgewichtes erreicht werden sollte. Die Borsäurelösung wurde vor und nach dem Versuch analysiert, wobei jedoch eine kaum merkliche Abreicherung an Bor festzustellen war.

Nach einer Standzeit von im Mittel 110 Tagen wurden die Proben vorsichtig mit destilliertem Wasser abgespült und danach für 30 Tage in reines destilliertes Wasser gelegt. Durch diese Wässerung konnte ein Teil der adsorbierten Borsäure wieder in Lösung gebracht werden. (Siehe Spalte 6 der Tabelle 3).

Zur Bestimmung der auf den Metalloberflächen adsorbierten Borsäure wurden die Proben in Stücke von 5 bis 10 cm<sup>2</sup> geschnitten und die Oberflächenschichten mit verdünnter Natronlauge abgelöst. Der Borgehalt wurde mehrfach kolorimetrisch bestimmt und auf die Flächeneinheit umgerechnet. In Spalte 4 und 5 ist



die Gesamtmenge Bor, die sich auf den verschiedenen Metalloberflächen während der Kontaktdauer von 4 Monaten niedergeschlagen hat, angegeben. Bei den beiden Aluminiumproben liegen diese Werte infolge eines ungünstig gewählten Verhältnisses von Menge Versuchslösung zur Metalloberfläche relativ hoch. Eine Umrechnung auf Reaktorverhältnisse (ca. 0,5 ltr./dm<sup>2</sup>) ergibt bei Al 99,5 und AlMg<sub>3</sub> dagegen Mengen von 1.1 µg B/cm<sup>2</sup> (2,3 %) und 1.3 µg B/cm<sup>2</sup> (2,6 %).

Probe	Al 99,5	Al Mg <sub>3</sub>	V <sub>2</sub> A	V <sub>4</sub> A
Versuchsdauer [ d ]	103	125	119	90
Konz.d.Versuchslösg. [ ppm Bor ]	7,0	10,1	9,4	9,8
Verhältn.Borlösg.zu Ges.- Oberfl.d.Proben [ltr./dm <sup>2</sup> ]	0,18	0,19	0,47	0,32
Ges.Menge Bor auf Oberfl. [ µg/cm <sup>2</sup> ]	3,15	3,42	0,0124	0,0116
Entspr.% d.Ges.Bormenge der Versuchslösung	6,3	6,8	≪ 1	≪ 1
Bor gef.b. Wässerung 30 Tage [ µg/cm <sup>2</sup> ]	0,57	1,02	0,0028	0,0026

Tabelle 3 Adsorption von Bor auf verschiedenen Metalloberflächen

#### 4.2 Versuche zur Reinigung des Schwerwassers von Borsäure durch Ionenaustauscher

Zur Bestimmung des Reinigungseffektes sowie der statischen und nutzbaren Volumenkapazität (SVK, NVK) der im FR 2 verwendeten LEWATIT-Ionenaustauscherharze wurden verschiedene Versuche durchgeführt. Die Bedingungen dieser Experimente wurden so gewählt, (ausgen.Vers.I) daß ein Vergleich mit den Verhältnissen im FR 2 möglich war: analoge Säulenhöhe der Harze, gleiche Durchsatzgeschwindigkeit der Borsäurelösung (120 ltr/dm<sup>2</sup> h) und dasselbe Harzmischungsverhältnis von 3 Teilen Kationen - zu 1 Teil Anionen-Austauscher. Versuch I, die Bestimmung der SVK, wurde so durchgeführt, daß eine bestimmte Menge Mischbettharz mit einer bekannten, konzentrierten Borsäurelösung verührt und der Borüberschuß nach mehrstündigem Stehen zurücktitriert wurde. Bei den Durchlauf-Versuchen II und III wurde eine 10 ppm-Borsäurelösung durch die Harzsäule geschickt, bis im ablaufenden Wasser ein Anstieg des Borgehaltes festgestellt werden konnte. In gewissen Abständen wurden Proben entnommen und

der Borgehalt kolorimetrisch bestimmt.

Die durchgeführten Umlauf-Versuche IV und V gaben die Verhältnisse bei einer Bypass-Reinigung wieder. Auch hier wurde in der Harzsäule die vorgeschriebene Strömungsgeschwindigkeit von  $120 \text{ ltr/dm}^2 \text{ h}$  streng eingehalten. Analysiert wurden sowohl Feed- als auch Eluat-Borkonzentration. Die Zahl der Umläufe, die zu einem Restborgehalt von  $0,02 \text{ ppm}$  in der Gesamtwassermenge führten, war abhängig von der Beladung der Harze: Bei unbeladenen Harzen waren hierzu etwa 7 Umläufe, bei einer Beaufschlagung von ca. 30 % der NVK rund 9 Umläufe notwendig. Bis zum Bordurchbruch bei  $0,5$  bis  $0,6 \text{ m Äquivalenten Bor/ml Harz}$  wurden Trennfaktoren ( $C_{\text{Feed}}/C_{\text{Eluat}}$ ) von 300 und größer erreicht.

Die Ergebnisse dieser Versuche sind nachstehend zusammengefaßt:

Vers.Nr.	Art d. Versuche	Kapazität [ m Äquiv. B/ml Harz ]		Restmenge Bor im H <sub>2</sub> O ppm
I	Standvers.	SVK	1,24	-
II	Durchlauf	NVK	0,53	< 0,02
III	Durchlauf	NVK	0,48	< 0,02
IV	Umlauf	NVK	0,62	< 0,02
V	Umlauf	NVK	0,52	< 0,01

Tabelle 4: Restmengen Bor in H<sub>2</sub>O nach Durchlaufen der Ionenaustauscher

Nach diesen positiven Ergebnissen konnten die weiteren Vorbereitungen für die Borvergiftung in Angriff genommen werden.

### 5. VORVERSUCH MIT BOR IM REAKTOR

Obwohl zahlreiche Laborversuche gezeigt hatten, daß sich Borsäure für eine homogene Reaktorvergiftung verwenden läßt, wurde, um das Risiko von Reaktivitätsverlusten aufgrund einer irreversiblen Ablagerung von Bor im Reaktor zu vermeiden, ein weiterer Vorversuch im FR 2 selbst durchgeführt. Dazu wurde eine "Probevergiftung" gemacht, bei der wir eine kleine Menge Bor ins Schwerwasser einbrachten, die anschließend über Ionenaustauscher entfernt wurde.

Dieser Versuch hat gezeigt, daß auf den Metalloberflächen im Reaktorcore und im  $D_2O$ -Kreislauf keine nachweisbaren Borablagerungen stattfinden und daß sich die Borsäure mit Hilfe von Ionenaustauschern nahezu vollständig wieder aus dem Schwerwasser entfernen läßt.

Bei diesem Experiment wurde der Vergiftungsgrad auf etwa 1/10 des für die späteren Messungen vorgesehenen Betrages von 34 mk beschränkt, also auf rund 3,5 mk. Hierfür wurden  $0,47 \mu\text{g}$  Bor/ml  $D_2O$  berechnet. Bei einer Gesamt-Schwerwassermenge von  $28,7 \text{ to} = 25,99 \text{ m}^3 D_2O$  entspricht dies 12,21 g Bor bzw. 73,16 g Deuteroborsäure. Das Bor wurde in Form einer genau definierten konzentrierten Deuteroborsäurelösung eingebracht, und zwar besaß diese Stammlösung eine Konzentration von

2,436 mg B/g Lösung (titrimetrisch bestimmt)

2,426 mg B/g Lösung (potentiometrisch bestimmt)

2,400 mg B/g Lösung (kolorimetrisch bestimmt)

Im Mittel: 2,42 mg Bor/g Lösung.

Die Einfüllmenge betrug 5 205,0 g Stammlösung.

Umgerechnet auf die Gesamt- $D_2O$ -Menge bringt dieser Zusatz eine Konzentration von  $0,48 \mu\text{g}$  Bor/ml  $D_2O$ .

Nach einer Standzeit von ca. 30 Stunden im Reaktor wurde das Schwerwasser gereinigt. Es wurde im einfachen Durchlauf einmal über den Anionenharzbehälter und danach über das Mischbett - Harz gefahren und dabei folgende Borkonzentration im Schwerwasser gefunden:

Durchgang	Harzbehälter	Probeentn. Ort	gemess. Borkonzentr.
nach 1.	Anionenharz	Ventil 13.48	$0,026 \mu\text{g}$ B/ml $D_2O$
1.	Anionenharz	$30 \text{ m}^3$ -Behälter	$0,022 \mu\text{g}$ B/ml $D_2O$
1.	Anionenharz	Ventil 13.48	$0,022 \mu\text{g}$ B/ml $D_2O$
2.	Mischbettharz	$23 \text{ m}^3$ -Behälter	$0,011 \mu\text{g}$ B/ml $D_2O$

Tabelle 5: Restmengen Bor im  $D_2O$  des Reaktors nach Durchlaufen der Ionentauscher

Die analytisch bestimmte Restmenge Bor entspricht einem Reaktivitätsverlust von  $q = 0,08$  mk. Die Bestimmung der kritischen Stabstellung vor der Borzugabe und nach der Reinigung des  $D_2O$  ergab - innerhalb der Ableseunsicherheit der TA-Stabstellung von 1 mm entsprechend  $q \approx 0,1$  mk - den gleichen Wert. Die im Labor erhaltenen Ergebnisse sind damit ohne Einschränkung auf den Reaktor zu übertragen.

## 6. DURCHFÜHRUNG DER BORVERGIFTUNG

### 6.1 Borzugabe zum Schwerwasser

Die Zugabe der Borsäure-Stammlösung in den Reaktor erfolgte in mehreren Stufen, mit jeweils der gleichen Menge Bor. Zum Einfüllen wurde eine freie BE-Position benutzt. Nach jeder Zugabe wurde das  $D_2O$  durch Umpumpen gründlich durchmischt. Anschließend wurden Proben für die analytische Bestimmung der Borkonzentration entnommen.

### 6.2 Bestimmung der Borkonzentration im Schwerwasser des FR 2

Zur Analyse des Borgehaltes im Schwerwasser wurden nach guter Durchmischung aus dem  $D_2O$ -Kreislauf Proben entnommen. Die Entnahme erfolgte in der üblichen Weise mit Hilfe von 50 ml Injektionsspritzen durch das Entnahmevertil am  $5\text{ m}^3$  - oder  $23\text{ m}^3$ -Behälter bzw. Ventil 13.48 unterhalb der Reinigungsanlage. Je nach vorhandener Bor-Konzentration wurden Probemengen von 1000 bis 50 ccm  $D_2O$  gewählt. Ein Teil wurde für die Analyse selbst verwendet, der Rest wurde in Pyrex-Ampullen als Belegmuster eingeschmolzen. Für die Bestimmung des Nullwertes des nicht vergifteten Schwerwassers sind aus den Pumpen 1 P 2 und 1 P 4 je 150 ml  $D_2O$  entnommen und mit der Karminsäuremethode Nullanalysen durchgeführt worden. Der erhaltene Nullwert, im Mittel  $0,0071\ \mu\text{g B/ml } D_2O$ , wurde von den jeweiligen Analysenergebnissen abgezogen.

Zwischen berechneter und gefundener Borkonzentration im Reaktor ergaben sich Abweichungen von + 2.1 bis + 3.1 % (siehe Spalte 6 in Tabelle 6). Diese Differenz rührt wahrscheinlich daher, daß nicht die gesamte, den Berechnungen zugrunde gelegte Schwerwassermenge an der Borvergiftung teilgenommen hat.

Die Analysenwerte für die einzelnen Vergiftungsstufen sind in Tabelle 6 angegeben.

Vergift. Stufe	D <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> -Stamm- lösung Konzen- tration	Menge Stammlsg. (g)	berechn. x) Bor-Konz. µg B/ml	gefunden. Bormenge im Reaktor µg B/ml	Abweichung in %
1 + 2	Lösg. II 4,290 mg B pro g Lösung	8724	1,44	1,47	+ 2,1
3	"	4362	2,16	2,21	+ 2,3
4	"	4362	2,88	2,94	+ 2,1
5	"	4362	3,60	3,68	+ 2,2
6	"	4362	4,32	4,42	+ 2,3
7 + 8	Lösg. III 3,796 mg B pro g Lösung	9827,4	5,75	5,93	+ 3,1
9 + 10	"	9827,4	7,19	7,40	+ 2,9
11 1/2	"	7756,7	8,26	8,50	+ 2,9
11 5/6	"	1637,9	8,50	8,74	+ 2,8

Tabelle 6: Analysenwerte der Vergiftungsstufen.

Zugegebene Bormenge und analysierte Borkonzentration im D<sub>2</sub>O des FR 2 sind in Abbildung 8 dargestellt.

x) Hierbei wurde eine D<sub>2</sub>O-Menge von 28,7 t = 25,986 m<sup>3</sup> zugrundegelegt.

## 7. DURCHFÜHRUNG DER PHYSIKALISCHEN MESSUNGEN WÄHREND DER BORVERGIFTUNG

### 7.1 Allgemeine Beschreibung der Messungen

Nach den Untersuchungen am unvergifteten Core stand der Reaktor für etwa einen Monat für die hier beschriebenen Messungen mit Borvergiftung zur Verfügung. Es wurden hauptsächlich Messungen mit Corekonfigurationen, also Beladungen, wie sie später im Betrieb zu erwarten sind, durchgeführt. Messungen am Core ohne Einbauten, die reaktortheoretisch von Interesse gewesen wären, mußten wegen der Begrenzung der zur Verfügung stehenden Zeit in den Hintergrund treten, so daß speziell auf diesem Gebiet einige Probleme, deren Lösung wünschenswert gewesen wäre, nicht angegangen werden konnten.

Die durchgeführten Messungen lassen sich zeitlich in folgende Hauptabschnitte unterteilen:

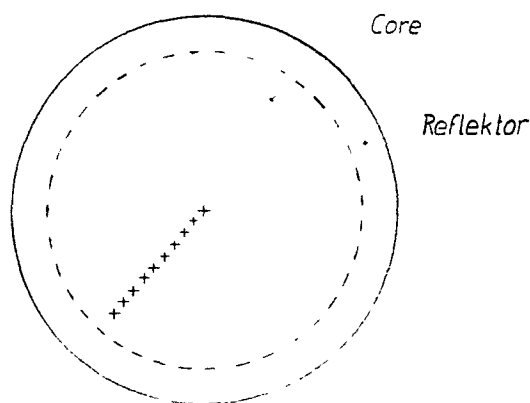
- 1.) Zugabe einer Probemenge Bor in den Reaktor und anschließendes Reinigen des  $D_2O$  mit Ionentauschern (s. Abs. 5). Dauer: 2 Tage.
- 2.) Vergiften des Reaktors in 6 Stufen entsprechend einem Gesamt- $\rho$ -Verlust von 34 mk, der einem Leistungsbetrieb des Reaktors nach einigen 100 MWd/to entspricht. Ermittlung der krit. TA-Stabstellung und der krit.  $D_2O$ -Spiegelhöhen bei den verschiedenen Vergiftungsstufen. Dauer: 3 Tage.
- 3.) Nach 6 Vergiftungsstufen entsprechend 34 mk wurden bei den jetzt simulierten Vollastverhältnissen Messungen der Neutronenflußverteilung im Reaktor ohne Einbauten, mit Einbauten und mit Beladungen, sowie die zugehörigen  $\rho$ -Messungen durchgeführt. Dauer: ca. 3 Wochen.
- 4.) Es wurde weiter stufenweise Bor zugegeben, bis die gesamte Überschußreaktivität verbraucht war, d.h. bis die TA-Stäbe ganz herausgezogen waren. Ermittlung der krit. TA-Stellungen und der krit.  $D_2O$ -Spiegelhöhen bei diesen weiteren Vergiftungsstufen. Dauer: ca. 1 Woche.

Die Meßergebnisse werden im folgenden wiedergegeben.

### 7.2 Flußmessungen

Die Bestimmung der Neutronenflußverteilung im Core und in einigen Horizontalkanälen wurde bei einer Vergiftung von 34 mk durchgeführt. Dazu wurden mit

Hilfe sog. Folienträger Au-Sonden und Cu-Bänder durch Isotopenkanalpositionen von oben in das Core gebracht. Die Auszählung der aktivierten Sonden erfolgte mit  $2\pi$ -Methandurchflußzählern. Durch Einbau mehrerer Träger an verschiedenen Corepositionen und durch Anwendung schwenkbarer Träger wurde der Flußverlauf in einer senkrechten Ebene erfaßt, die als 'Standard-Meßebe' bezeichnet wurde. (siehe Skizze).



Aufsicht auf das Core

+ Positionen der Folienträger (Au-Sonden bzw. Cu-Bänder).

In dieser Standardebene wurden folgende Beladungszustände ausgemessen:

Core mit 157 BE, keine zusätzlichen Einbauten

Core mit 152 BE, Zentralloop 130  $\emptyset$  leer, Nebenloop 130  $\emptyset$  leer.

Core mit 148 BE und 4 SE um das leere Zentralloop

Core mit 148 BE und 4 SE um das mit Eisenrohr 121/114  $\emptyset$  beladene Zentralloop.

Weiterhin wurden bestimmt:

Flußverlauf im Horizontal-Kanal C 3 a) ohne

b) mit 4 SE vor dem Kanal

Flußverlauf im Horizontal-Kanal R 4 a) ohne

b) mit 4 SE vor dem Kanal

Flußverlauf im Horizontal-Kanal D 2

Als typisches Beispiel für die Messungen im unvergifteten und im vergifteten Reaktor wird die vertikale Flußverteilung auf der Coreachse gezeigt. (s. Abb. 9)

Die Beschreibung und die Ergebnisse sämtlicher Flußmessungen sind im Internen Arbeitsbericht Nr. 61/124 : "Flußmessungen am FR 2" enthalten.

7.3 Reaktivitätsmessungen bei voller Spiegelhöhe im Core mit 157 BE ohne zusätzliche Einbauten

7.3.1 Kritische Stabstellungen bei verschiedenen Borkonzentrationen.

Die bei verschiedenen Borkonzentrationen ermittelten kritischen Stabstellungen sind in Tabelle 7, Spalte 3, aufgeführt. Die höchste Borkonzentration bei den Experimenten betrug  $8,74 \mu\text{g}/\text{cm}^3$ . Durch Periodenmessungen nach Ziehen des Feinregelstabes wurde dabei eine Überschußreaktivität von 1,5 mk festgestellt, die einer weiteren Erhöhung der Borkonzentration um  $0,19 \mu\text{g}/\text{cm}^3$  entspricht. In diesem Sinne entsteht die letzte Zeile in Tabelle 7 durch Extrapolation.

Stufe Bor	Borkonz. $\mu\text{g}/\text{ml}$	TA/FR krit.	$k'_{\infty}$	$k_{\text{geo}}$	$\rho_{\text{ex}}$ mk
0	0	1315/1000	1,2280	1,1458	67,0
2	1,47	1206/1000	1,2135	1,1457	55,9
3	2,21	1143/1000	1,2064	1,1457	50,4
4	2,94	1076/1000	1,1993	1,1456	44,8
5	3,68	999/1000	1,1924	1,1455	39,3
6	4,42	919/1000	1,1856	1,1455	33,8
8	5,93	710/1000	1,1717	1,1454	22,4
10	7,40	430/1000	1,1586	1,1453	11,5
11 1/2	8,50	0/508	1,1489	1,1451	3,3
11 5/6	8,74	0/263	1,1468	1,1451	1,5
extrapoliert:	8,93	0/0	1,1451	1,1451	0

Tabelle 7:  $k_{\infty}$  und  $k_{\text{geo}}$  bei voller  $\text{D}_2\text{O}$ -Spiegelhöhe; siehe auch Abb. 4 .

Nach Abb. 4, Kurve b, bzw. Gl. (16) ist bei einer Borkonzentration von  $8,93 \mu\text{g}/\text{cm}^3$  bei voller Moderatorhöhe  $k_{\text{geo}} = 1,1433$ . Für  $k_{\infty}$  wurde 1,1387 berechnet. Da der relative Verlauf von  $k_{\infty}$  mit der Borkonzentration nur mit geringen Unsicherheiten behaftet ist, ist es zweckmäßig, die Größe  $\eta \epsilon_p$  so anzupassen, daß  $k_{\infty}$  für den mit  $8,93 \mu\text{g Bor}/\text{cm}^3$  "voll" vergifteten Reaktor mit  $k_{\text{geo}}$  übereinstimmt. Da auch die Abhängigkeit von  $k_{\text{geo}}$  von der Borkonzen-



tration bei voller Moderatorhöhe gut bekannt ist (Abb.4, Kurve b), stehen ziemlich sichere Zahlenwerte für die Berechnung der Überschußreaktivität  $q_{ex} = \frac{k'_{\infty} - k_{geo}}{k_{\infty}}$ , die jeweils durch die Absorberstäbe kompensiert wird, zur Verfügung. (Der Strich über  $k_{\infty}$  soll die beschriebene Anpassung kennzeichnen).

Die Werte von  $k'_{\infty}$ ,  $k_{geo}$ ,  $q_{ex}$  sind ebenfalls in Tabelle 7 aufgeführt. Abb.10 zeigt  $q_{ex}$  als Funktion der Borkonzentration im Moderator.

Die Eichung der TA-Stäbe erhält man aus obiger Tabelle 7, Spalte  $q_{ex}$ . Der bisher festgehaltene FR-Stab wurde bei den letzten Borstufen gezogen; berücksichtigt man dieses unter Verwendung der FR-Eichkurve (s. Abb. 13), so erhält man für die 16 TA-Stäbe:

TA-Stellung	mk
0	0
430	6,0
710	15,9
919	27,2
999	32,8
1076	38,2
1143	43,9
1206	49,4
1315	60,5

Tabelle 8: Reaktivität der TA-Stäbe

Die Kurve ist in Abb. 11 aufgetragen. Zum Vergleich sind die durch Pulsmessungen und Periodenmessungen erhaltenen Werte mit eingetragen.

### 7.3.2 Gesamtüberschußreaktivität

Die Überschuß-Reaktivität des kalten unvergifteten Reaktors mit 157 BE und der krit. TA/FR-Stellung von 1315/1000 erhält man zu

$$\underline{\rho_{ex} = 67,0 \text{ mk}}$$

### 7.4 Reaktivitätsmessungen bei abgesenktem Spiegel; Core mit 157 BE, ohne zusätzliche Einbauten

#### 7.4.1 Kritische D<sub>2</sub>O-Spiegelhöhe bei verschiedenen Borkonzentrationen.

Bei gezogenen Absorberstäben wurde bei verschiedenen Borkonzentrationen die kritische D<sub>2</sub>O-Spiegelhöhe bestimmt. Der Einfluß von Temperaturunterschieden auf die kritische Spiegelhöhe wurde durch kleine Korrekturen berücksichtigt. Die Ergebnisse (zuzüglich der Extrapolationslängen) zeigt Tabelle 9, Spalte 2.

Um zu prüfen, inwieweit die in Abschnitt 2 dargelegten Vorstellungen über die Verweilwahrscheinlichkeit zureffend sind, wurde  $k_{geo}$  nach Gl.(16) für die jeweils kritischen Moderatorhöhen bei verschiedenen Borkonzentrationen berechnet. Ein Vergleich der so entstandenen Kurve b in Abb.4 mit dem Verlauf von  $k_{\infty}$  (Kurve a) zeigt die Abweichungen. Zahlenwerte sind in Tabelle 9 aufgeführt.

	Borkonz. μg/cm <sup>3</sup>	H <sub>krit.</sub>	k <sub>geo</sub>	k <sub>∞</sub>
	0	161,15	1,2210	1,2208
	2,21	175,90	1,2011	1,1995
	4,42	194,45	1,1820	1,1787
	5,93	208,00	1,1691	1,1651
	7,40	228,15	1,1568	1,1521
	8,50	246,79	1,1480	1,1425
	8,74	255,70	1,1452	1,1403
extrapoliert:	8,93	263,50	1,1433	1,1387

Tabelle 9: kritische Spiegelhöhe,  $k_{geo}$  bei kritischer Spiegelhöhe und  $k_{\infty}$  bei verschiedenen Borkonzentrationen.

### 7.4.2 Ermittlung der Wanderfläche $M^2$

Die bei den verschiedenen Borkonzentrationen gemessenen kritischen Spiegelhöhen werden zur Bestimmung der Wanderfläche  $M^2 = L^2 + \tau$  herangezogen. Änderungen in der Spiegelhöhe lassen sich mit guter Genauigkeit in Änderungen im Buckling  $B^2$  umrechnen. Daraus ergeben sich die entsprechenden Änderungen in  $k_{geo}$  (Gl. (1)). Man muß nun  $M^2$  so wählen, daß die aus den verschiedenen Spiegelhöhenmessungen sich ergebenden Änderungen in  $k_{geo}$  gleich den Änderungen in  $k_{\infty}$  sind, die sich durch die entsprechenden Borzugaben ergeben. Letztere lassen sich aus der gemessenen Borkonzentration mit einer Genauigkeit von etwa 4 % berechnen.

Wendet man Gl. (1) jeweils auf das vergiftete und das unvergiftete Core an, so entsteht durch Differenzbildung nach einfachen Umformungen:

$$M_o^2 (B_o^2 - B^2) = \eta \epsilon p (f_o - f) + R - (\Delta k_{geo_o}^{Einb.} - \Delta k_{geo}^{Einb.}) - (L_o^2 - L^2) B^2 - \tau (L_o^2 B_o^4 - L^2 B^4) \quad (18)$$

Dabei bezieht sich der Index o auf die Werte für das unvergiftete Core. Die rechte Seite von Gl. (18), die mit  $F (B_o^2 - B^2)$  bezeichnet sei, ist wegen der Zuordnung von  $B^2$  zur jeweiligen Borkonzentration (experimentell) und der jeweiligen Borkonzentration zu  $f$  (theoretisch nach Gl. (7)) als Funktion von  $B_o^2 - B^2$  berechenbar. Gl. (18) ist so geschrieben, daß  $F (B_o^2 - B^2)$  beim Auftragen gegen  $B_o^2 - B^2$  eine Gerade ergibt, aus deren Neigung  $M^2$  abzulesen ist.

Die beiden letzten Terme in Gl. (18), die gegenüber dem ersten Glied eine kleine Korrektur darstellen, lassen sich genügend genau mit Hilfe der theoretischen Werte für  $L^2$  und  $\tau$  berechnen. In ihnen ist die Änderung des Diffusionslängenquadrats mit der Borkonzentration berücksichtigt. Die Änderung von  $\Delta k_{geo}^{Einb.}$  kann Abb. 7 entnommen werden.

In Abb. 12 ist  $F (B_o^2 - B^2)$  als Funktion von  $B_o^2 - B^2$  aufgetragen.

Aus der Neigung der in Abb. 12 eingezeichneten Geraden ergibt sich

$$M_o^2 = (323 \pm 15) \text{ cm}^2$$

Der theoretische Wert liegt mit  $305 \text{ cm}^2$  (für eine Moderator­temperatur von  $25 \text{ }^\circ\text{C}$ ) merklich niedriger. Faßt man die Unsicherheit in der Diffusionskonstanten für  $\text{D}_2\text{O}$  ( $\approx 2 \%$ ) und im Absorptionsquerschnitt des homogenisierten Cores ( $\approx 2 \%$ ) ins Auge, so wird die Größe der Abweichung verständlich.

Um ein ungefähres Maß für die Sicherheit der einzelnen Punkte in Abb. 12 zu vermitteln, sind Fehlergrenzen eingetragen, denen folgende Annahmen zugrunde liegen:

1.  $f_0 - f$  kann mit einer Unsicherheit von  $\pm 3 \%$  aus der gemessenen Bor­konzentration berechnet werden.
2.  $\eta \epsilon_p$  ist bis auf  $\pm 1 \%$  genau bekannt.
3. Die Änderung des geometrischen Eigenwertes durch die unterschiedliche Wirkung der festen Einbauten bei den verschiedenen Spiegelhöhen ist bis auf  $\pm 20 \%$  richtig erfaßt worden.

### 7.5 Eichung des Feinregelstabes bei verschiedenen Borkonzentrationen; Reaktor ohne zusätzliche Einbauten.

Durch Periodenmessungen wurde der Feinregelstab (FR-Stab) bei verschiedenen Borkonzentrationen, d.h. bei verschieden tief eingefahrenen TA-Stäben reaktivitätsmäßig geeicht. Dabei zeigt sich, daß die Eichkurve um so symmetrischer wird, je weiter die TA-Stäbe durch steigende Borzugabe gezogen werden; dieses ist verständlich. Weiter ist auffällig, daß der gesamte  $\rho$ -Wert des FR-Stabes bei niedrigen und hohen Borkonzentrationen, d.h. bei ein- und ausgefahrenen TA-Stäben praktisch gleich bleibt. (siehe Abb. 13).

Aus Messungen am vergifteten Reaktor kann man erkennen, daß sich durch das Einbauen von Loops und Beladungen der Reaktivitätswert des FR-Stabes wesentlich stärker verändert, siehe Bericht über die "Reaktivitätsmessungen am FR2". Da bei Periodenmessungen die Leistung auf etwa das 10- bis 30-fache der Ausgangsleistung steigt, ist bei Vollast eine Aufnahme der FR-Eichkurve nicht möglich. Die Bedeutung der durch die Borvergiftung erhaltenen Eichkurve für Vollastverhältnisse wird dadurch besonders deutlich.

### 7.6 Wichtung von Absorbern und BE

Bei einer Vergiftung von 34 mk wurden Reaktivitätsmessungen von Brennelementen und Absorbern, die in Is.-Kanälen eingesetzt waren, durchgeführt, und zwar:

1. Wichtung von Spickelementen auf verschiedenen Corepositionen,
2. Wichtung von Einbauten im Zentralloop 130  $\emptyset$  und in Is.-Kanälen,
3. Wichtung eines Cd-Absorbers auf der Coreachse bei verschiedenen Borkonzentrationen. Man erhält damit bis auf kleine Störungen, die von verschiedenen relativen Flußeinwirkungen des Cd-Absorbers an verschiedenen Positionen auf der Coreachse herrühren, den relativen Verlauf der Einflußfunktionen  $\emptyset \emptyset^+$  in achsialer Richtung bei verschiedener Eintauchtiefe der TA-Stäbe (siehe Abb. 14).

Die Beschreibung und die Ergebnisse dieser Messungen sind im Bericht "Reaktivitätsmessungen am FR 2" enthalten.

## 8. REINIGEN DES SCHWERWASSERS VON BOR.

### 8.1 Allgemeine Angaben

Die Borentfernung aus dem Schwerwasser erfolgte durch Ionenaustauscher. Für diesen Zweck wurden LEWATIT-Anionenharze (CA-Nr. 9088) der Farbenfabriken BAYER, Leverkusen, verwendet. Dieses Austauschermaterial hat für Borsäure eine nutzbare Volumenkapazität von ca. 0,5 Äquivalenten Bor pro Liter Harz. Es wurden 100 Liter Anionenaustauscher mit einer Gesamtkapazität von rund 540 g Bor eingesetzt. Die eingebrachte Bormenge betrug 232 g, was einer Harzbeaufschlagung von ca. 43 % der maximalen Aufnahmefähigkeit entspricht.

### 8.2 Deuterieren der Ionentauscherharze

Für die Entfernung der Borsäure aus dem Schwerwasser wurden 100 Liter LEWATIT-Anionenaustauscher (CA-Nr. 9088) verwendet. Diese mußten vor dem Einsatz deuteriert werden.

Hierzu diene folgende Anlage: Als  $D_2O$ -Vorratsbehälter wurde das Schwerwasserfaß selbst verwendet; es wurde so hoch aufgestellt, daß der Faßinhalt durch statischen Druck in die stehende Harzkolonne von unten eingespeist werden konnte. Das am oberen Ende der Kolonne austretende  $H_2O$  bzw.  $D_2O$  wurde vor dem Auffanggefäß durch ein im By-pass geschaltetes Refraktometer dauernd überwacht. Ein Kühler sorgte für konstante Temperierung des zu messenden Ablauf-Wassers auf  $20^\circ C$ . An der Ablaufleitung befand sich ferner ein Ansatz mit Hahn für Probenentnahmen. Er diene gleichzeitig zur Entlüftung der Ablaufleitung um zu verhindern, daß Gasblasen in das Refraktometer gelangen und eine Ablesung unmöglich machen.

Vor der Deuterierung wurden die Harze unter weichlichem Wasserzusatz in den Austauscherbehälter eingeschlämmt. Dies ist notwendig, um die Bildung von Luftpolstern in der Säule, die später zu Kanalbildungen führen können, einzuschränken. Eine mehrstündige Spülung mit vollentsalztem Wasser in Deuterierungsrichtung, also von unten nach oben, wurde angeschlossen, bis die elektrische Leitfähigkeit auf kleiner  $10 \mu S/cm$  abgesunken war.

Nun erst wurde der Harzbehälter mit dem Schwerwasser-Vorratsgefäß verbunden und mit einer Strömungsgeschwindigkeit von 75 ml/min (4,5 ltr/h) das Leichtwasser in Harz und Behälter durch Schwerwasser verdrängt. Nach 23 Stunden erschien das erste  $D_2O$  in der Ablaufleitung, nach weiteren 12 Stunden

waren die Harze vollständig deuteriert, am Ablauf wurde ein konstanter Endwert von 99,835 Mol % D<sub>2</sub>O gemessen.

Insgesamt kamen 152,70 kg Schwerwasser mit einer Konzentration von 99,855 Mol % D<sub>2</sub>O zum Einsatz. Hiervon blieben 78 Gew % im Harzbehälter, 9,6 Gew % fielen in Form abgereicherter Fraktionen an und 12,4 Gew % konnten nahezu unverändert zurückgewonnen werden.

### 8.3 Durchführung der Reinigung

Die Entfernung des Bors aus dem Schwerwasser wurde so durchgeführt, daß zweimal über den Anionenharzbehälter und dann über das Mischbettharz gereinigt wurde. Zwischen den einzelnen Durchgängen wurde jedesmal der gesamte D<sub>2</sub>O-Kreislauf umgespült, um auch diejenigen borhaltigen D<sub>2</sub>O-Mengen zu erfassen, die beim Reinigungsgang in Leitungen, Toträumen usw. zurückblieben.

### 8.4 Ergebnisse der Reinigung

Nach den einzelnen Reinigungsschritten wurden aus dem Schwerwasser Proben entnommen und der Borgehalt bestimmt. Die Werte sind im folgenden zusammengefaßt:

Reinigungsgang	Harzbehälter	Probeentn.Ort	Analysenwert
nach 1. Durchgang	Anionenharzbeh.	30 m <sup>3</sup> -Tank	0,029 µg B/ml D <sub>2</sub> O
nach 1. Umspülung	---	5 m <sup>3</sup> -Tank	0,166 µg B/ml D <sub>2</sub> O
nach 2. Durchgang	Anionenharzbeh.	30 m <sup>3</sup> -Tank	0,024 µg B/ml D <sub>2</sub> O
nach 2. Umspülung	---	23 m <sup>3</sup> -Tank	0,045 µg B/ml D <sub>2</sub> O
nach 3. Durchgang	Mischbett-Beh.	5 m <sup>3</sup> -Tank	0,024 µg B/ml D <sub>2</sub> O

Tabelle 10: Restmengen Bor im D<sub>2</sub>O des FR 2

Der letzte Analysenwert entspricht einer Reaktivität von 0,2 mk. Die Bestimmung der kritischen TA-Stellung zeigte jedoch keinen Reaktivitätsverlust, der über die Messunsicherheit von 0,1 mk hinausgeht.

Der Unterschied zwischen chemischer und physikalischer Messung der Restbor-menge im D<sub>2</sub>O nach der Reinigung ist darauf zurückzuführen, daß bei der analy-

tischen Bestimmung in diesem niedrigen Konzentrationsbereich ( $\sim 0,02 \mu\text{g Bor/ml}$ ) das Bor aus etwa 500 ml  $\text{D}_2\text{O}$  angereichert werden muß. Dabei macht sich der geringfügige Gehalt des  $\text{D}_2\text{O}$  an anderen Bestandteilen, die von der Messung nicht erfaßt werden, als Störeinfluß bemerkbar, so daß ein höherer Borgehalt vorge-tauscht wird.

An dem inzwischen ausgebauten Al-Tank und sonstigen Coreeinbauten wurden keine nachweisbaren Borrückstände hinterlassen.



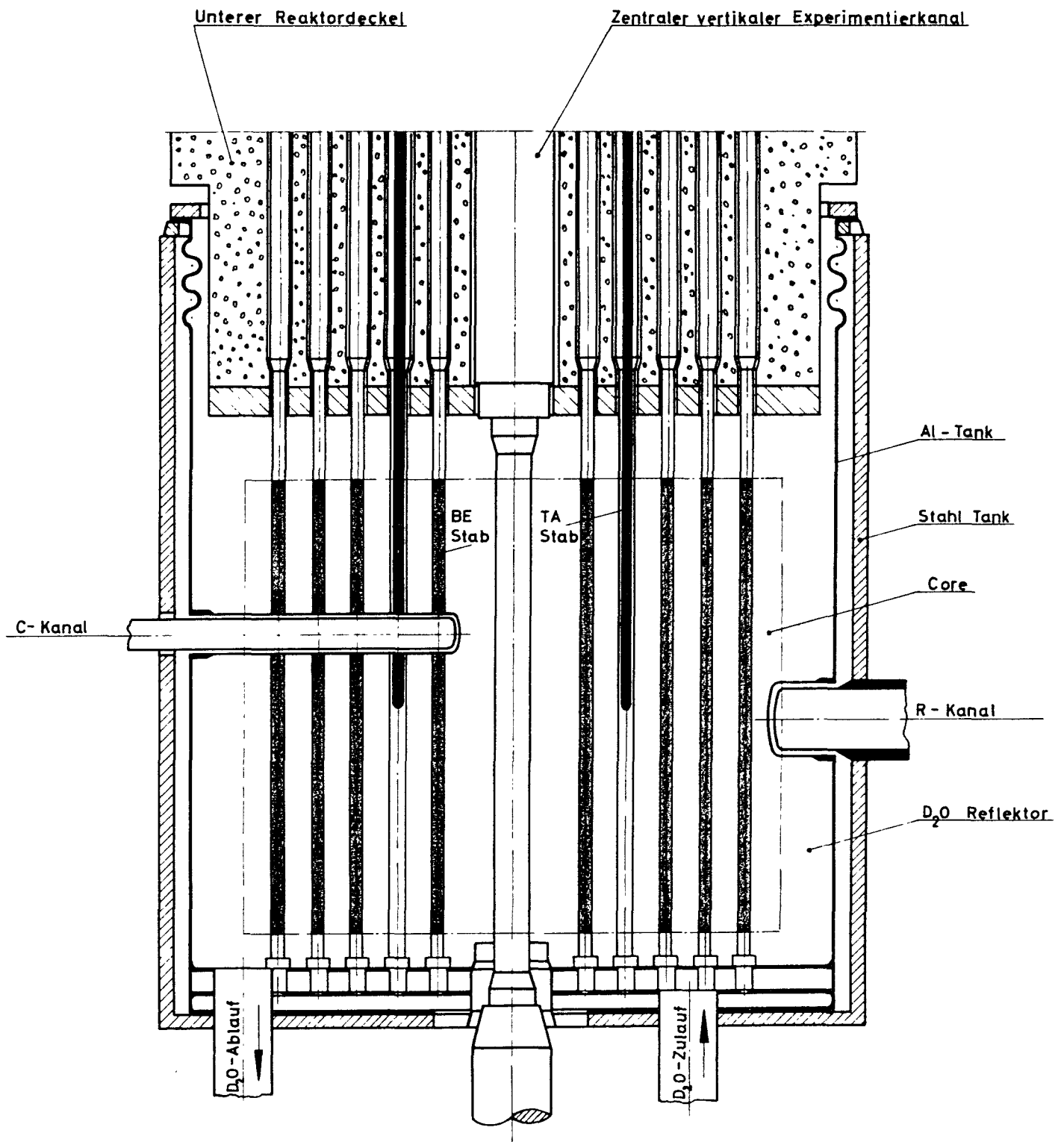


Abb.1 Vertikaler Schnitt durch das Core des FR 2 (vereinfacht)



Abb. 2 Thermische Nutzung  $f$  in Abhängigk. vom therm. Absorptionsquerschnitt des Moderators

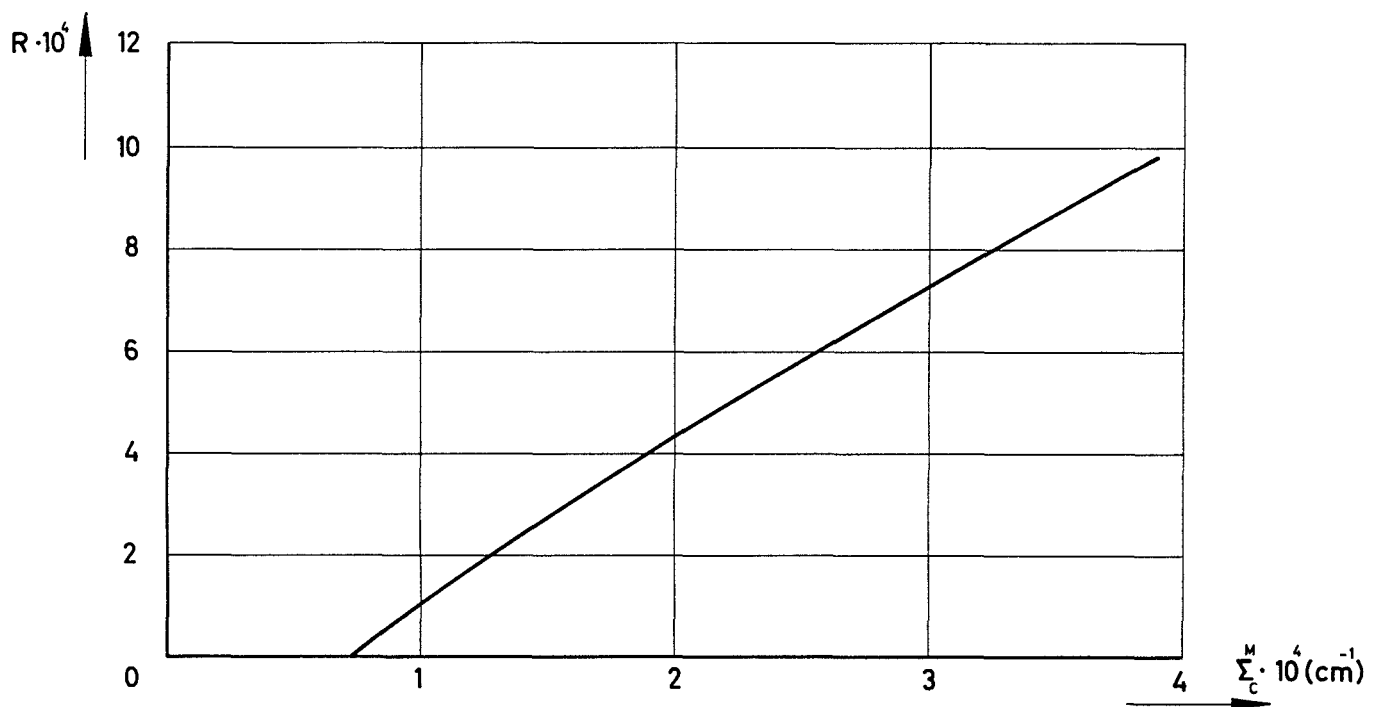
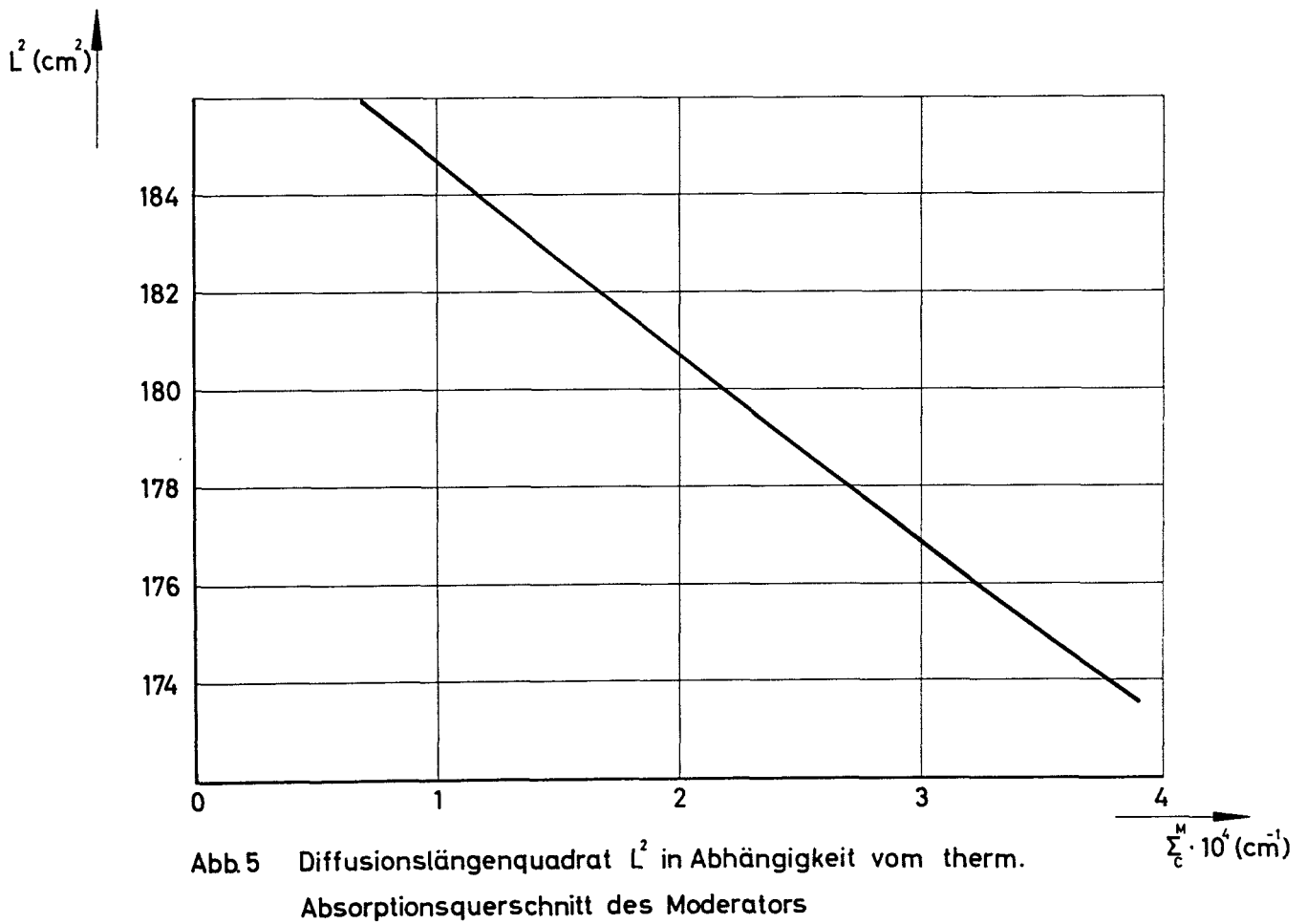
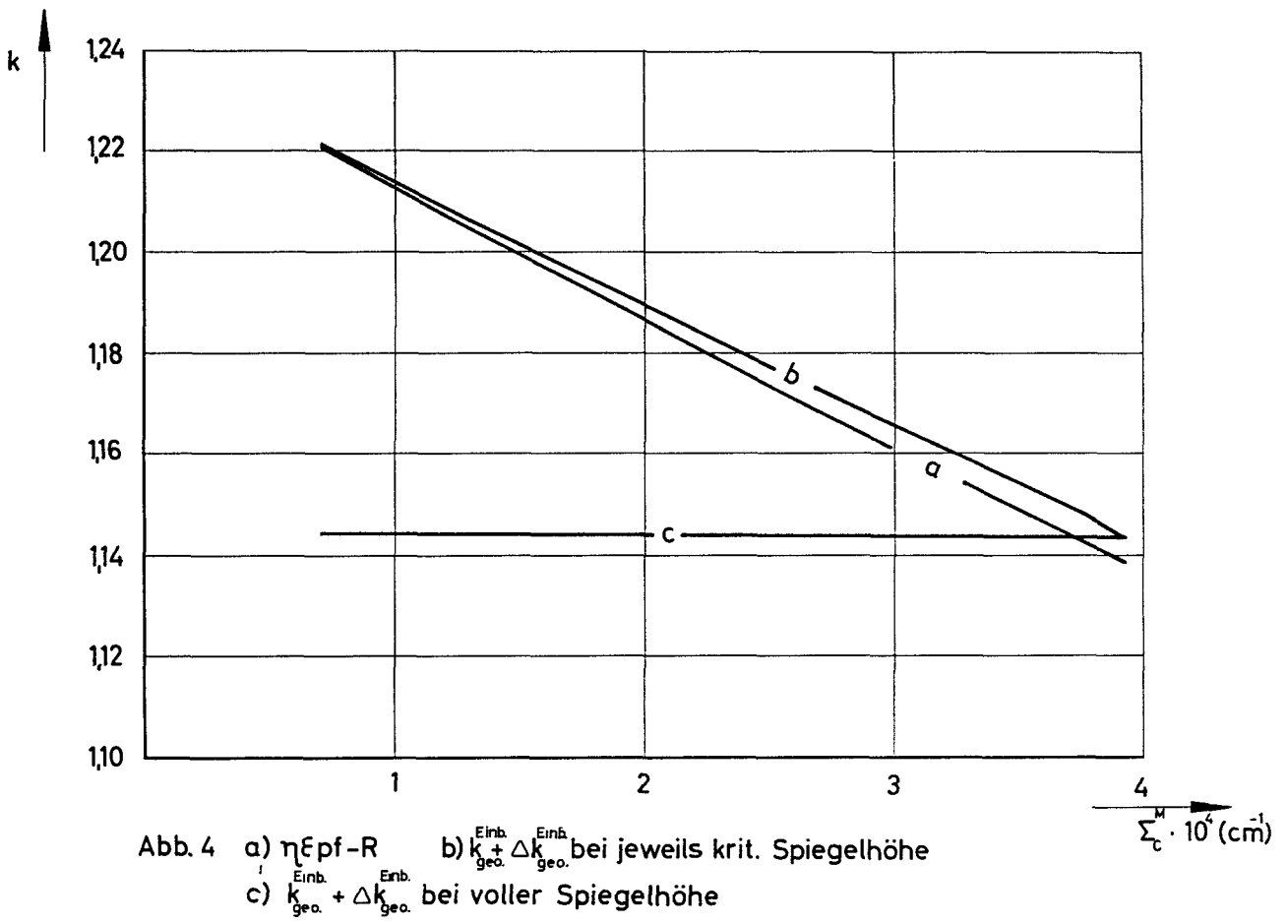


Abb. 3 Verminderung  $R$  von  $k_{\infty}$  durch epithermische Absorption in Abhängigkeit vom thermischen Absorptionsquerschnitt des Moderators



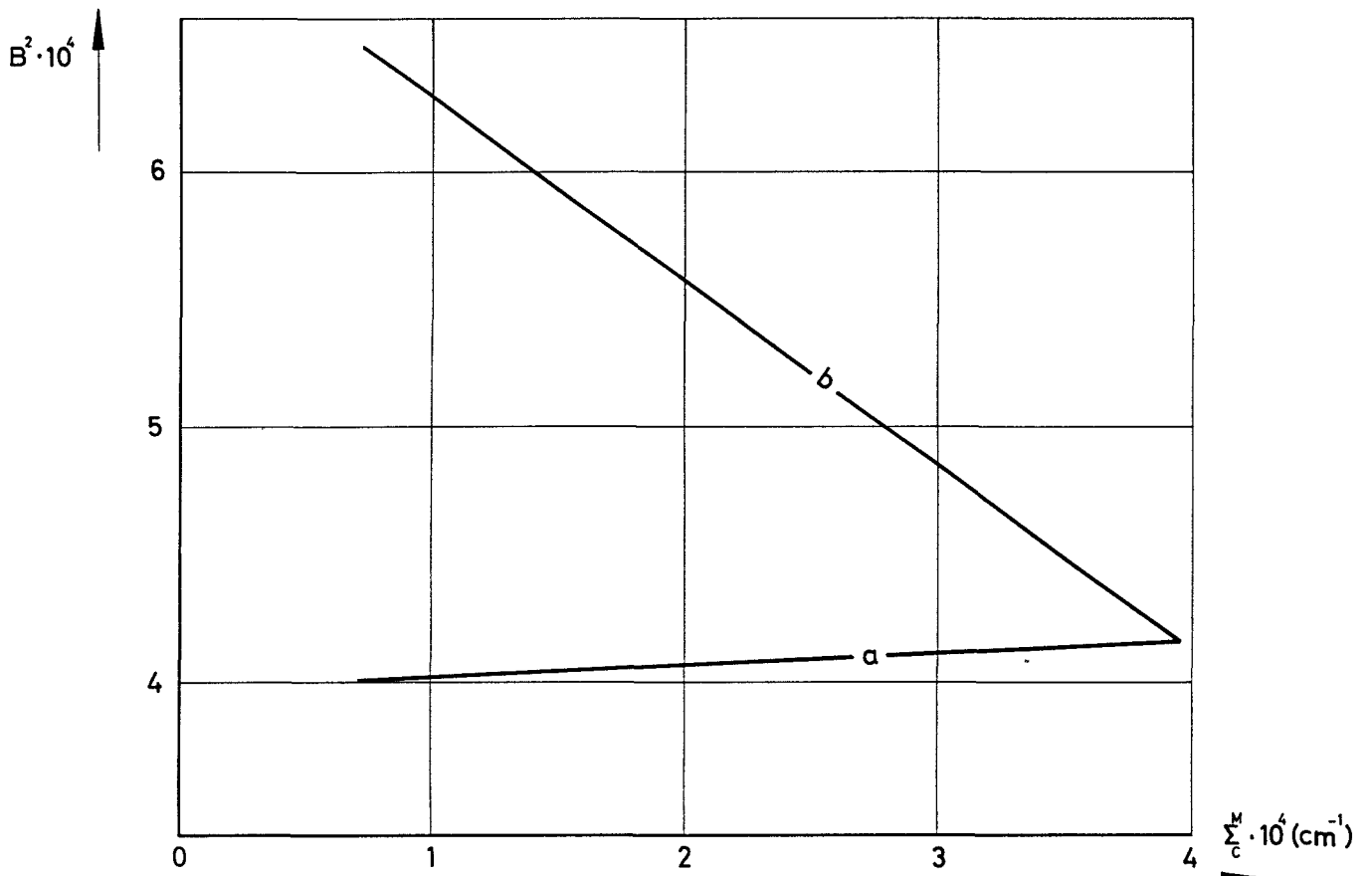


Abb. 6 Flußwölbung  $B^2$  in Abhängigkeit v therm. Absorptionsquerschnitt des Moderators  
 a) für volle Spiegelhöhe b) für die jeweils kritische Spiegelhöhe (s. Abschnitt 24)

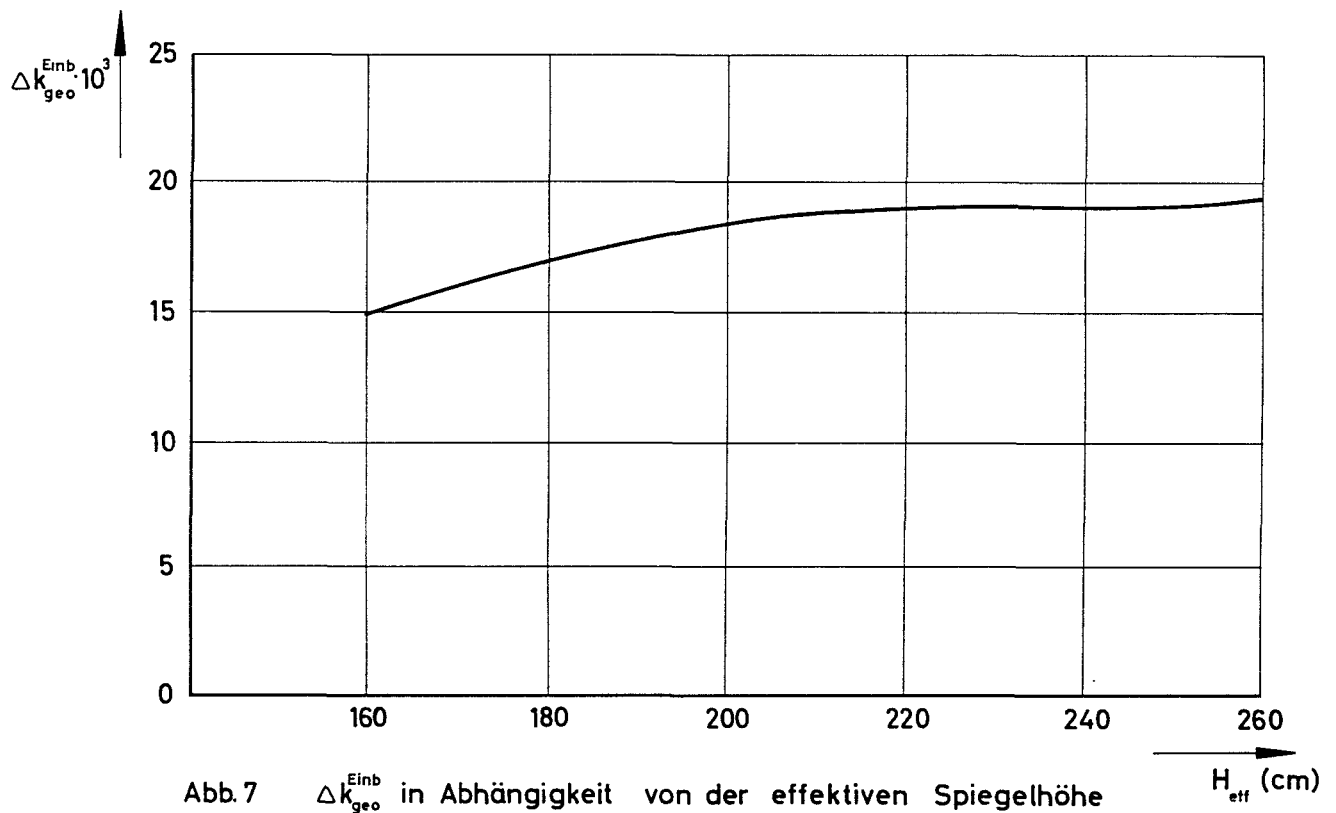
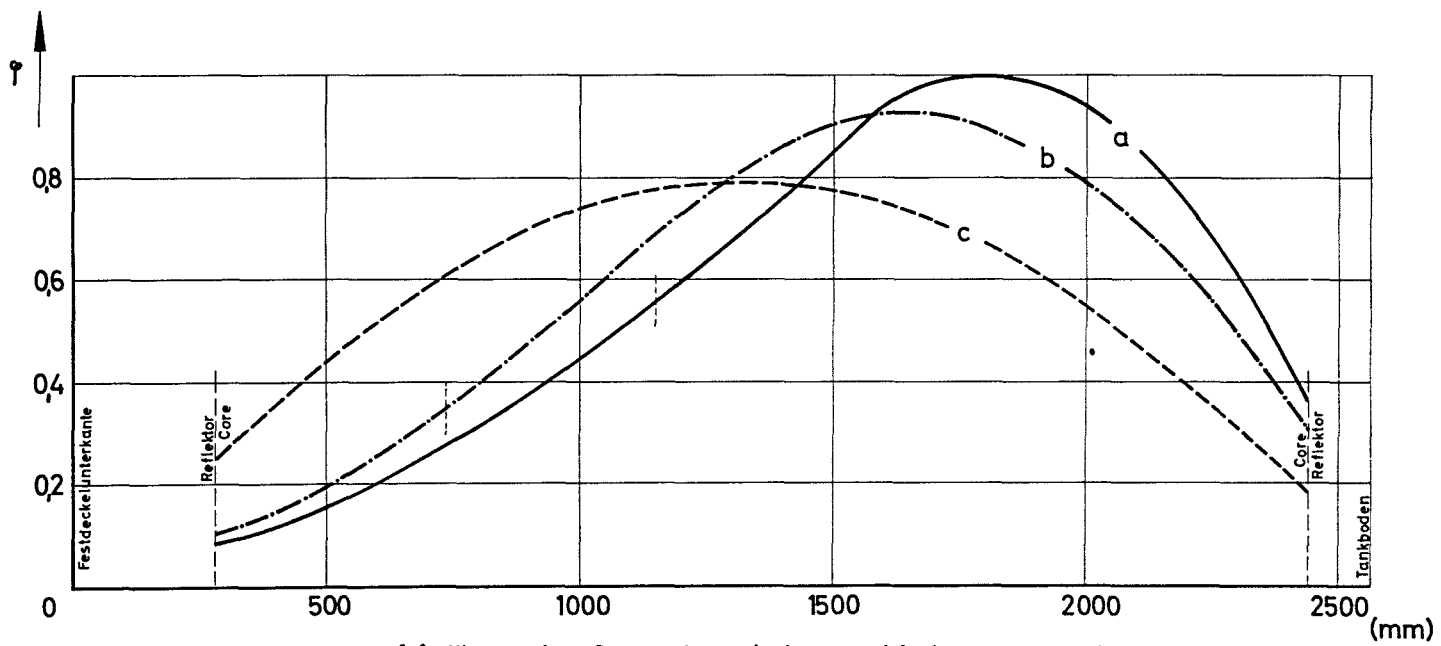
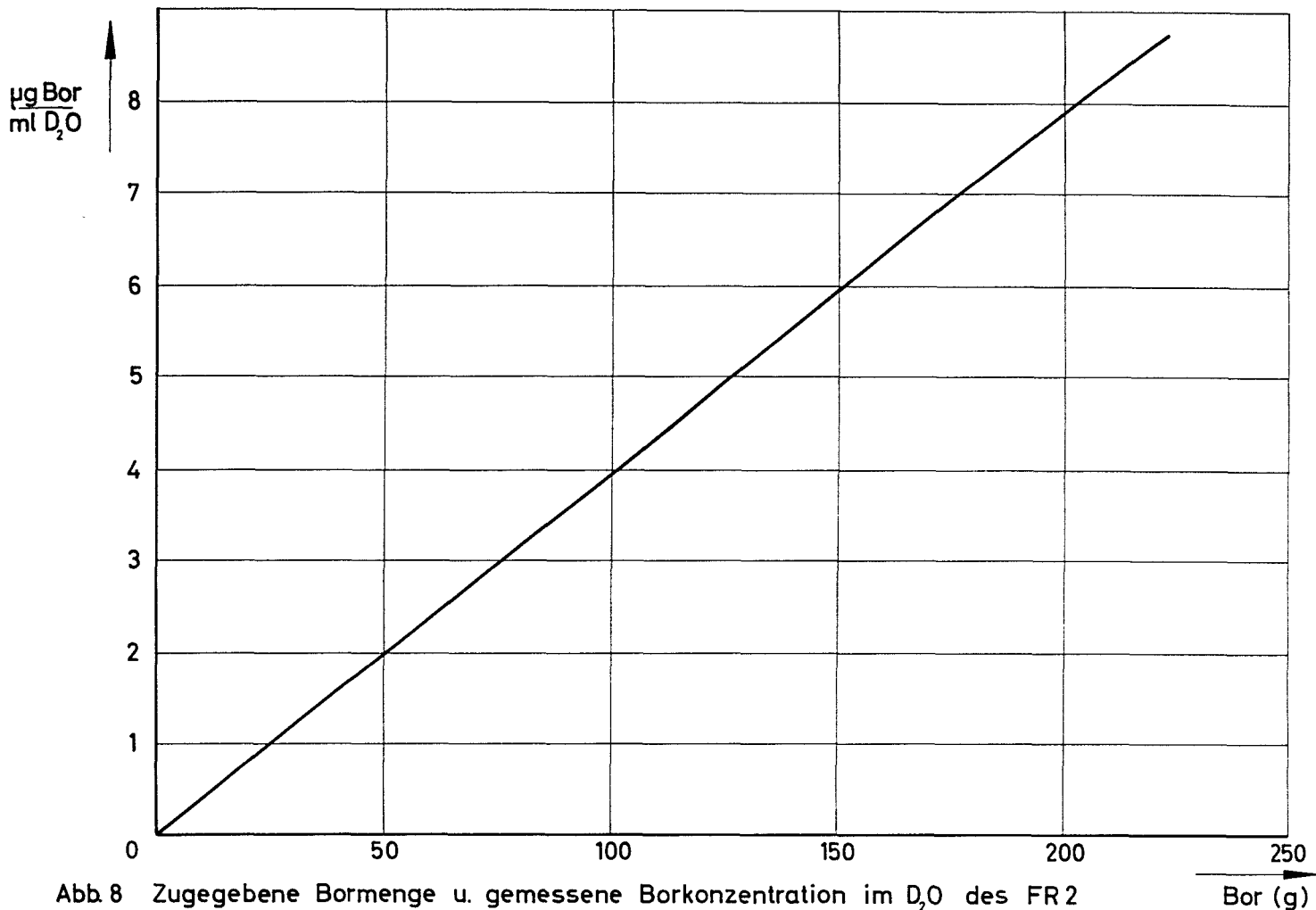


Abb. 7  $\Delta k_{\text{geo}}^{\text{Einb}}$  in Abhängigkeit von der effektiven Spiegelhöhe



- a) Reaktor mit 157 BE, keine zusätzlichen Einbauten; Trimmstäbe auf 1130 mm eingefahren
- b) Reaktor mit 157 BE, keine zusätzlichen Einbauten; Borvergiftung 34 mk; Trimmstäbe auf 720 mm eingefahren
- c) Reaktor mit 153 BE und mit Fe-Rohr im Zentralloop; Borvergiftung 34 mk; Trimmstäbe ganz ausgefahren

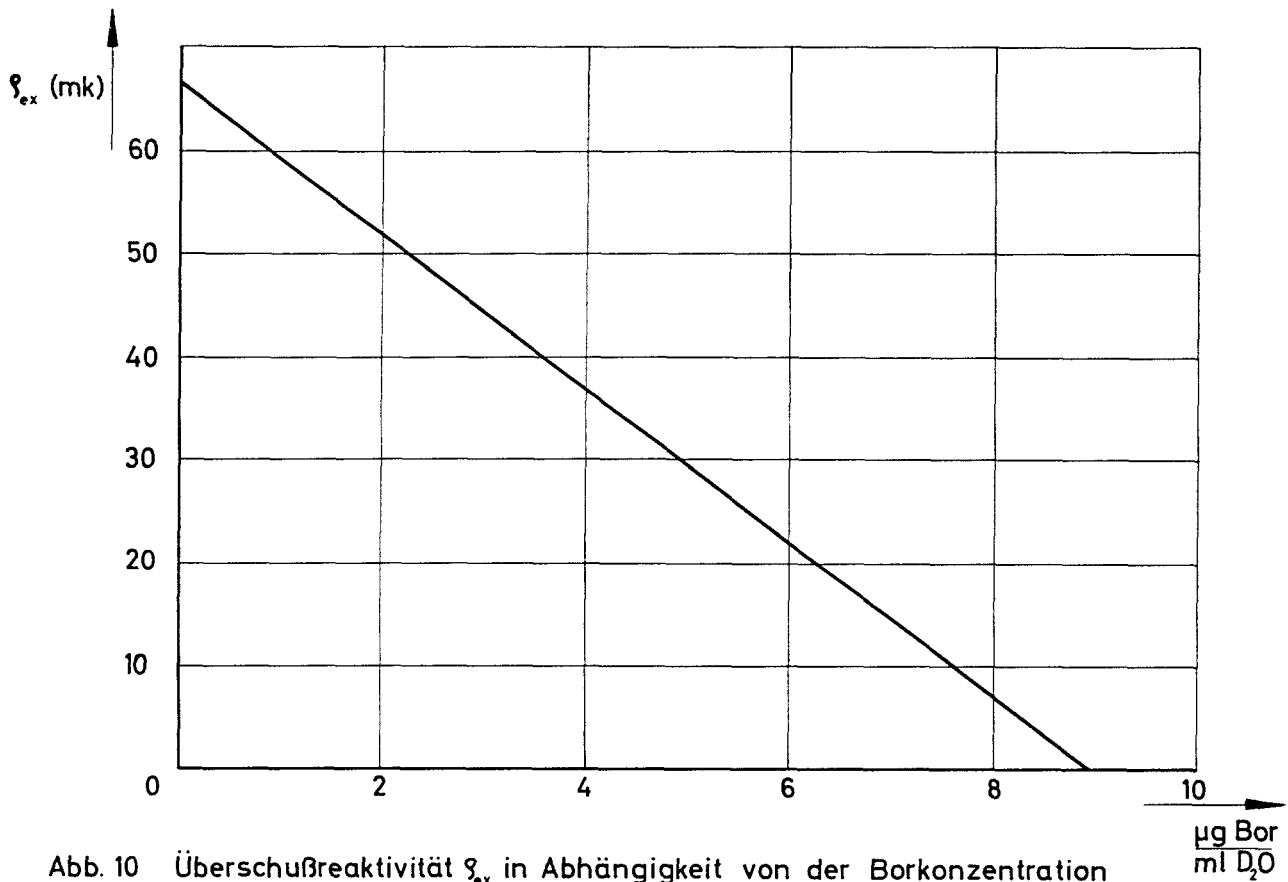


Abb. 10 Überschußreaktivität  $\xi_{ex}$  in Abhängigkeit von der Borkonzentration

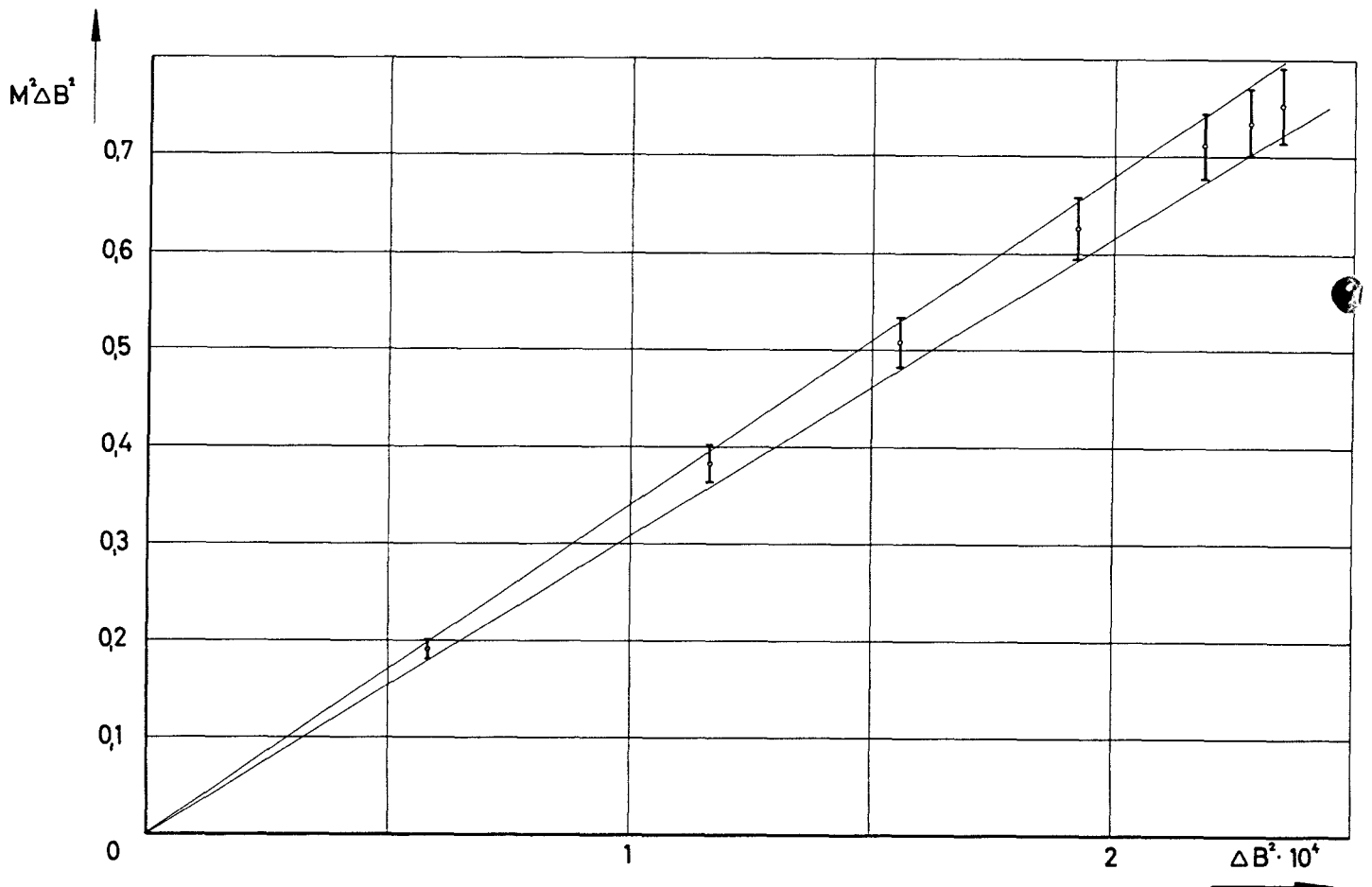


Abb. 12 Bestimmung der Wanderfläche  $M^2$  aus Spiegelhöhenmessungen bei verschiedenen Borkonzentrationen

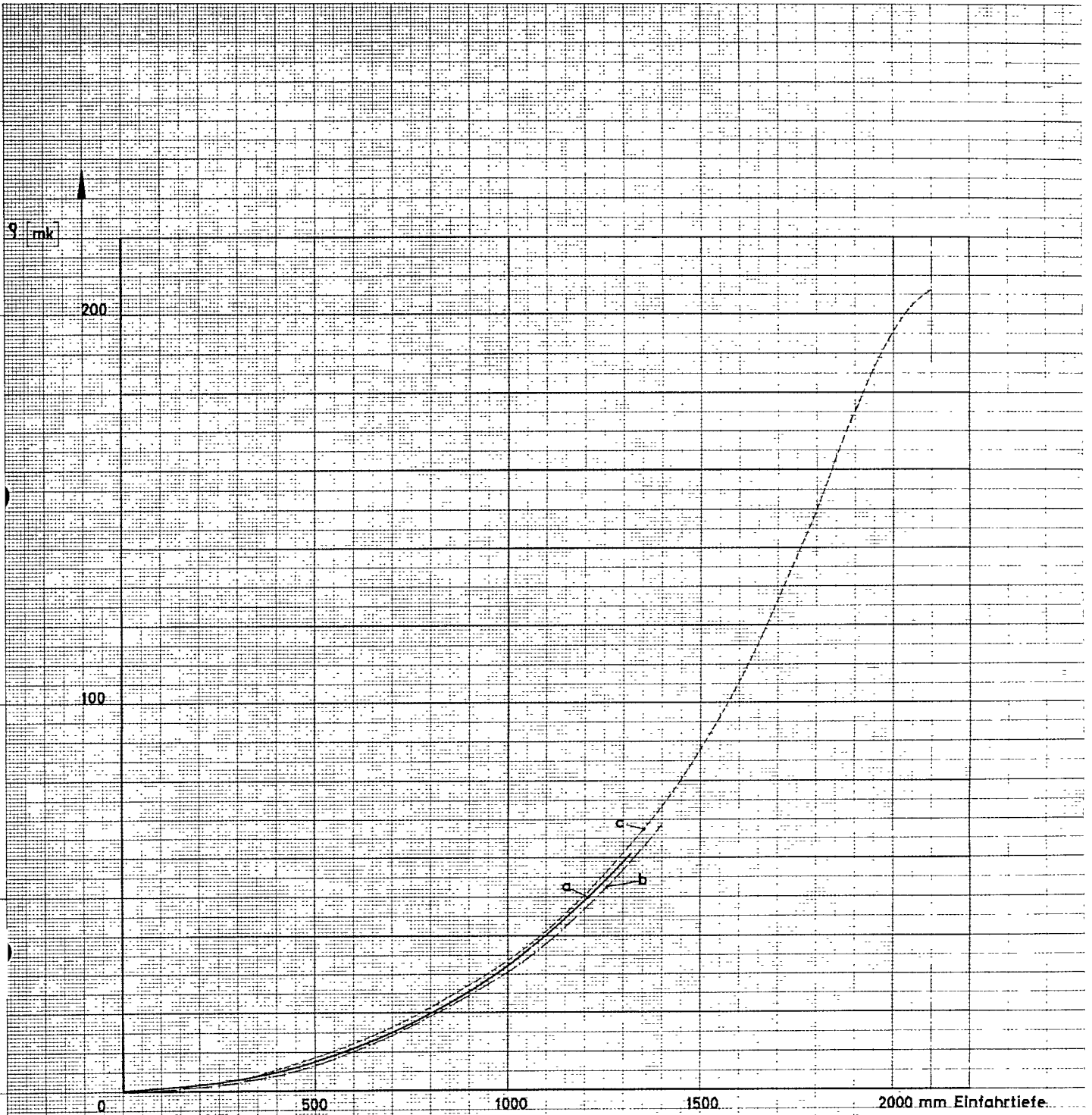


Abb 11 Reaktivitätswirkung der 16 Trimmstäbe in Abhängigkeit von der Einfahrtiefe

- a) aus Messungen am borvergifteten Reaktor
- b) aus Periodenmessungen im unvergifteten Reaktor bei verschiedenen Beladungszuständen
- c) aus Pulsmessungen

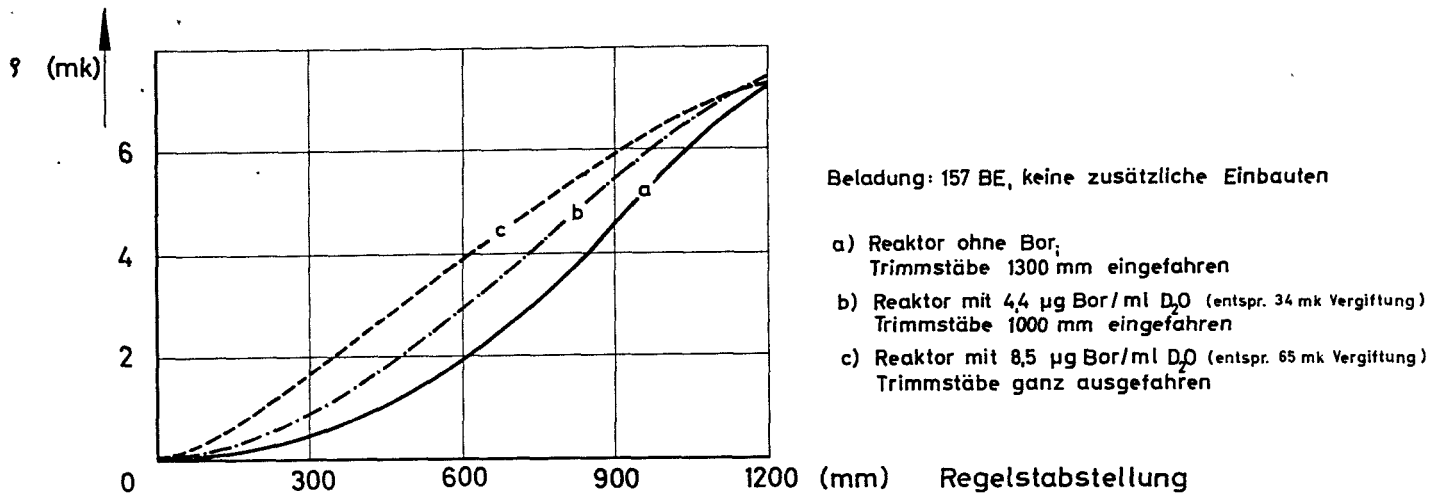


Abb 13 Reaktivitätswirkung des Regelstabes bei verschiedenen Borkonzentrationen bzw. bei verschiedenen Trimmstabstellungen

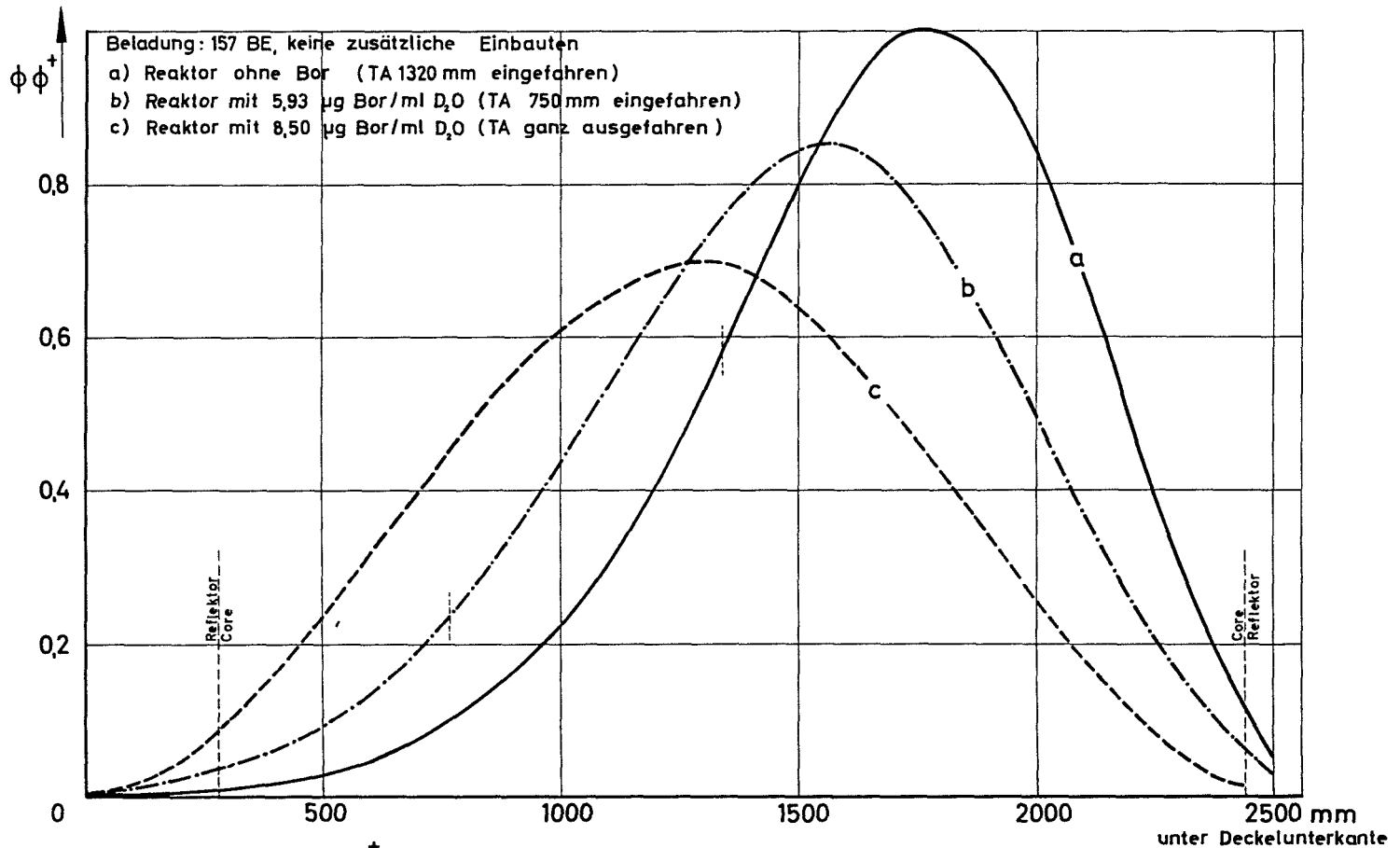


Abb. 14 Einflußfunktion  $\phi\phi^+$  längs der Coreachse bei verschiedenen Borkonzentrationen bzw. verschiedenen Trimmstabstellungen