

**KERNFORSCHUNGSZENTRUM  
KARLSRUHE**

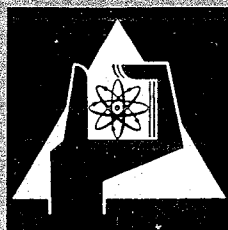
März 1966

KFK 438

Abteilung Reaktorbetrieb

Bestrahlungsmöglichkeiten und Sicherheitsbetrachtungen für  
einfache Bestrahlungen im Reaktor FR 2

W. Dienst, W. Marth



GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M. B. H.

KARLSRUHE



## **Bestrahlungsmöglichkeiten und Sicherheitsbetrachtungen für einfache Bestrahlungen im Reaktor FR 2**

### **Irradiation possibilities and safety considerations concerning simple irradiations at the reactor FR 2**

Von W. Dienst und W. Marth Aus dem Kernforschungszentrum Karlsruhe, Abteilung Reaktorbetrieb

#### **1. Einleitung**

Für größere Bestrahlungsexperimente an Forschungsreaktoren werden i. allg. umfangreiche Konstruktions- und Sicherheitsberichte angefertigt und z. T. auch veröffentlicht. Dagegen werden sog. einfache Bestrahlungen von kleinen Proben, die keine speziellen Kühl-, Meß- und Beladungsvorrichtungen benötigen, vielfach routinemäßig durchgeführt, ohne daß die innerbetrieblichen Regelungen Außenstehenden zur Kenntnis gelangen. Daher soll hier ein Überblick über die Bestrahlungsmöglichkeiten und -bedingungen sowie über die Grundzüge der Sicherheitsbetrachtung für einfache Bestrahlungen im FR 2 gegeben werden.

Die Durchführung einer Bestrahlung setzt die Kenntnis einer Reihe von Auslegungsdaten der Bestrahlungspositionen voraus. Dies sind in erster Linie die geometrischen Dimensionen der Kanäle, ihre Neutronen- und Gammaflußdichten, Reaktivitätsbegrenzungen und schließlich die Kühlung der Proben an den einzelnen Positionen. Diese Daten werden erfahrungsgemäß bei der Planung einer Bestrahlung benötigt und sollen deshalb für den FR 2 anhand von Abbildungen und Tabellen beschrieben werden.

#### **2. Auslegungsdaten der Bestrahlungsorte**

##### *2.1 Bestrahlungspositionen*

Fig. 1 zeigt einen Querschnitt durch den FR 2 und gibt eine Übersicht über die vorhandenen Bestrahlungspositionen. Das sind im wesentlichen die Horizontal- und Vertikalkanäle der Spaltzone sowie die Kanäle der thermischen Säule. Sämtliche Kanäle sind luftgekühlt; ihre Abmessungen sind aus Tab. 1 ersichtlich.

Die *Horizontalkanäle* sind runde Durchbrüche im Betonschirm, die mit Stahlrohren ausgekleidet sind und sich im Gußeisenschirm fortsetzen. Je nachdem, ob die Tankrohre nur bis in den Reflektor reichen, bis nahezu in die Mitte der Spaltzone ragen, quer durch die Spaltzone hindurchgehen oder tangential an der Spaltzone vorbeilaufen, werden die Horizontalkanäle als R-Kanäle, C-Kanäle, D-Kanäle oder T-Kanäle bezeichnet. Bei den D-Kanälen und beim T-Kanal werden jeweils die Kanalmündungen West und Ost unterschieden.

Für Kurzzeitbestrahlungen ist im D1-Kanal eine pneumatische *Rohrpost* eingebaut, die Bestrahlungen zwischen einigen Sekunden und 2 bis 3 Stunden erlaubt. Die Abmessungen der Kapsel sind aus Fig. 2 ersichtlich.

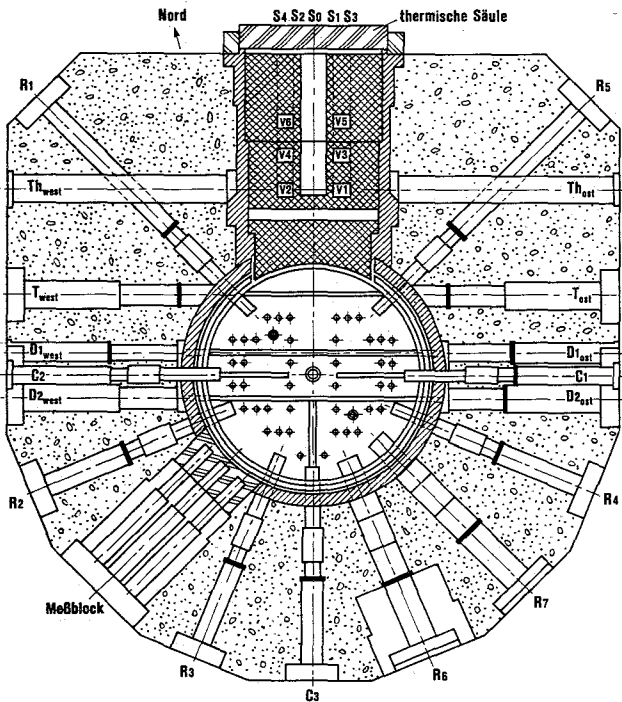


Fig. 1: Querschnitt durch den FR 2 mit Darstellung der Bestrahlungspositionen

Fig. 1: Cross section through FR 2 with irradiation positions indicated

Im Graphitblock (*thermische Säule*) befinden sich die in Tab. 1 aufgeführten Kanäle. Bei Bedarf kann die thermische Säule auch ganz oder teilweise ausgeräumt werden, um Platz für voluminöse Experimente zu schaffen.

Wichtige Experimentiereinrichtungen am FR 2 sind der vorzugsweise für Brennstoffbestrahlungen bestimmte *Zentralkanal* sowie die beiden exzentrisch angeordneten *Nebkanäle*.

Der Großteil der Bestrahlungen am FR 2 wird in den 41 *Isotopenkanälen* durchgeführt. Das Kapselträgerrohr kann mittels einer teilautomatischen Wechsellmaschine während des Reaktorbetriebs be- und entladen werden.

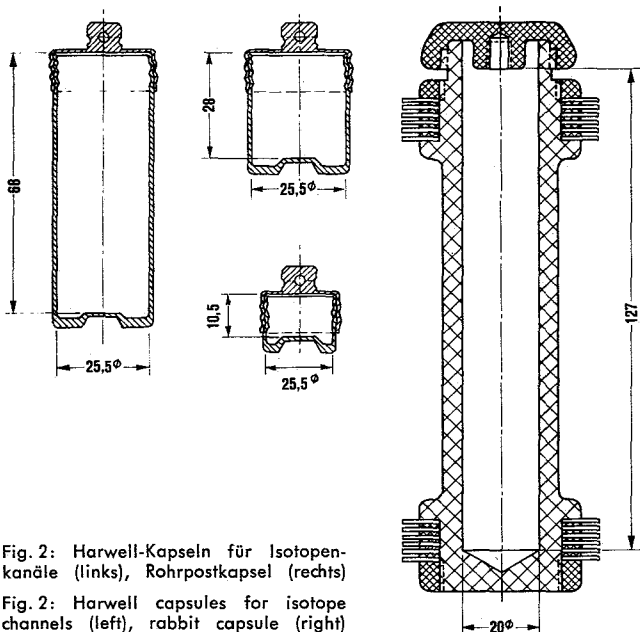


Fig. 2: Harwell-Kapseln für Isotopenkanäle (links), Rohrpostkapsel (rechts)

Fig. 2: Harwell capsules for isotope channels (left), rabbit capsule (right)

Als Probenkapseln werden die sog. Harwellkapseln verwendet (Fig. 2). Neben den Schraubkapseln sind noch verschweißbare Kapseln gleicher Größe in Gebrauch. Ein Isotopenkanal kann bis zu 29 große Kapseln aufnehmen.

## 2.2 Angaben über Flußdichten

Entscheidend für die Auswahl eines Bestrahlungskanals ist neben den geometrischen Verhältnissen seine Neutronen- und Gammaflußdichte. Tab. 1 vermittelt einen Überblick über alle Positionen, wobei jeweils die Maximalwerte zugrunde gelegt sind<sup>1</sup>.

An die Genauigkeit einer derartigen Aufstellung sind keine übertriebenen Forderungen zu stellen. Neben den Schwierigkeiten der Flußdichtemessung selbst (insbesondere bei der Flußdichte schneller Neutronen) zwingen die fast ständig wechselnden äußeren Parameter, wie Reaktorkernbesetzung, Abbrand, Trimmstabstellung usw. zur Bildung von Mittelwerten. Der Einfluß der Trimmstabstellung ist aus Fig. 3 ersichtlich. Sie gibt den Verlauf der thermischen Neutronenflußdichte im Isotopenkanal 37/23 in Abhängigkeit von der Eintauchtiefe der Trimmstäbe wieder.

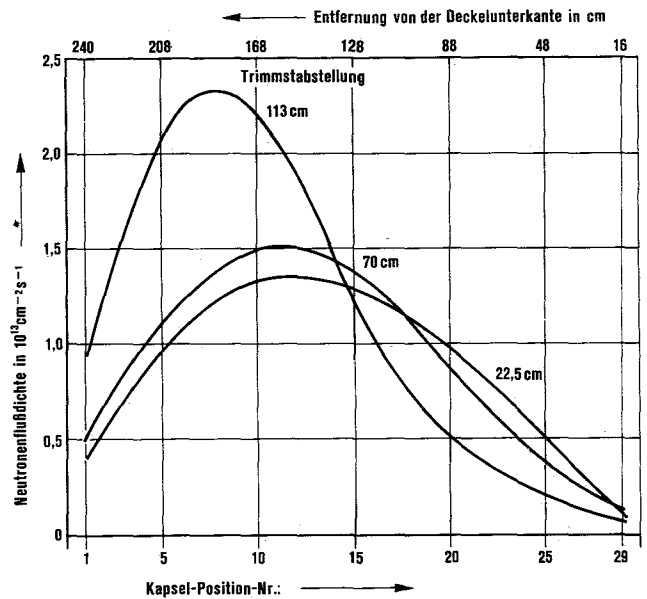


Fig. 3: Verlauf der thermischen Neutronenflußdichte längs des Isotopenkanals 37/23 (in Abhängigkeit von der Trimmstabstellung, Reaktorleistung 12 MW)

Fig. 3: Thermal-neutron flux density alongside of isotope channel 37/23 (as function of the position of the shim rod, reactor power 12 MW)

Die schnelle Neutronenflußdichte wurde mit Schwellwertsonden (P, Ni, Fe, Al) gemessen und unter Annahme eines Spaltspektrums auf eine Energieuntergrenze von 1 MeV umgerechnet. Die Gammaflußdichte ist in die Übersicht einbezogen wegen der Rolle, die sie bei der Aufheizung und Strahlenschädigung von Proben spielt. Die (z. Z. noch unvollständigen) Messungen wurden mit Filmdosimetern und lithiumaktivierten Glassonden gemacht.

Bei ausgedehnten Bestrahlungsobjekten, wie Kolbenringen, Laufbüchsen usw. kann ein starker Gradient der Flußdichte am Bestrahlungsort sehr störend sein. Um eine homogene Aktivierung solch voluminöser Proben zu erzielen, wurde deshalb in den V1-Kanal der thermischen Säule eine rotierende Bestrahlungsvorrichtung, der sog. Drehteller, eingebaut. Auf ihm werden die Proben befestigt und während der Aktivierung gedreht, so daß der am Rand der Spaltzone vorhandene Gradient der Flußdichte ausgeglichen wird.

## 2.3 Der Einfluß der Reaktivität

Das Einbringen einer Bestrahlungsprobe in die Spaltzone stört i. allg. das dynamische Gleichgewicht zwischen Neu-

<sup>1</sup> Alle folgenden Angaben und Ausführungen beziehen sich auf die bisherige Reaktorleistung von 12 MW. Bis Sommer 1966 ist eine Leistungssteigerung auf 43 MW vorgesehen.

**Tab. 1: Strahlenphysikalische Größen und Querschnittsdimensionen an den Experimentierpositionen**  
Reaktorleistung 12 MW

Experimentierposition	Maximale Flußdichte thermischer Neutronen $\text{cm}^{-2} \text{s}^{-1}$	Maximale Flußdichte schneller Neutronen (Energie > 1 MeV) $\text{cm}^{-2} \text{s}^{-1}$	Maximale Ionendosisleistung von Gammastrahlung R/h	Innenquersmaße der Kanäle bzw. Schutzrohre
<b>Horizontalkanäle</b>				
R1-R5	$5 \cdot 10^{12}$	$1 \cdot 10^{11}$	$1,2 \cdot 10^7$	134 mm $\phi$
R6-R7	$5 \cdot 10^{12}$	$1 \cdot 10^{11}$	$1,2 \cdot 10^7$	290 mm $\phi$
Cl-C3	$2,5 \cdot 10^{13}$	$1,3 \cdot 10^{12}$	$2 \cdot 10^8$	132 mm $\phi$ (Reflektor) 54 mm $\times$ 132 mm (Spaltzone)
D1-D2	$3 \cdot 10^{13}$	$1,5 \cdot 10^{12}$	$2 \cdot 10^8$	55 mm $\phi$
T	$8 \cdot 10^{12}$	$4 \cdot 10^{11}$	$2 \cdot 10^7$	55 mm $\phi$
<b>Thermische Säule</b>				
S0	$1,2 \cdot 10^{11}$	$3 \cdot 10^8$	$5 \cdot 10^4$	400 mm $\times$ 596 mm
S1, S2	$1,2 \cdot 10^{11}$	$3 \cdot 10^8$	$5 \cdot 10^4$	100 mm $\times$ 100 mm
S3, S4	$8 \cdot 10^{10}$	$2,0 \cdot 10^8$	$1,7 \cdot 10^4$	200 mm $\times$ 200 mm
Th	$9 \cdot 10^{10}$	$2,8 \cdot 10^8$	$1,9 \cdot 10^4$	200 mm $\times$ 200 mm
V1, V2	$9 \cdot 10^{10}$	$2 \cdot 10^8$	$2,3 \cdot 10^4$	200 mm $\times$ 200 mm
V3, V4	$1,8 \cdot 10^{10}$	$6 \cdot 10^8$	$4,6 \cdot 10^3$	200 mm $\times$ 200 mm
V5, V6	$3,8 \cdot 10^9$	$2 \cdot 10^8$	$8 \cdot 10^2$	200 mm $\times$ 200 mm
<b>Vertikalkanäle</b>				
Zentralkanal 47/19	$3,4 \cdot 10^{13}$	$4,3 \cdot 10^{11}$	$2 \cdot 10^8$	200 mm $\phi$
Nebenkanaal 40/12	$1,9 \cdot 10^{13}$	$5,5 \cdot 10^{11}$	$1,2 \cdot 10^8$	130 mm $\phi$
Nebenkanaal 54/26	$1,7 \cdot 10^{13}$	$5 \cdot 10^{11}$	$1 \cdot 10^8$	130 mm $\phi$
Isotopenkanäle	$1,0 \cdot 10^{13}$ bis $3,9 \cdot 10^{13}$	$0,5 \cdot 10^{12}$ bis $2 \cdot 10^{12}$	$0,5 \cdot 10^8$ bis $2 \cdot 10^8$	30 mm $\phi$

tronenerzeugung und Absorption. Ein Maß für die Abweichung vom Gleichgewichtszustand, bei dem die Neutronenzahl zeitlich konstant bleibt, ist die Reaktivität [1, 2]. Die Größe der Reaktivität einer Bestrahlungsprobe hängt im wesentlichen ab vom Bestrahlungsort im Reaktorkern und ihrem makroskopischen Absorptionsquerschnitt  $\Sigma$ . Unter Berücksichtigung dieser Eigenschaft ist folgende Einteilung am FR 2 gebräuchlich:

schwache Absorber  $\Sigma L < 0,3$ ,  
starke Absorber  $0,3 < \Sigma L < 3$ ,  
schwarze Absorber  $\Sigma L > 3$ .

L bedeutet hierbei eine charakteristische Länge der Probe. Da die  $\Sigma$ -Werte einen ersten Eindruck vom Absorptionsvermögen einer Probe vermitteln, wird ihre Angabe in den Bestrahlungsanträgen fast aller Reaktoren verlangt. Dies ist auch beim FR 2 der Fall. Tab. 2 gibt einen Überblick über die Massenabsorptionskoeffizienten  $\Sigma/\rho$  ( $\rho$  Dichte) für die am häufigsten in Frage kommenden Elemente.

#### 2.4 Die nukleare Aufheizung von Proben

Bestrahlungsproben werden im Reaktor durch eine Reihe von Einzelprozessen aufgeheizt. Die wichtigsten sind

1. Kernspaltung in der Probe,
2. Streuung und Absorption von Gammaquanten aus der Spaltzone,
3. Absorption von prompten Gammaquanten, die bei Neutroneneinfang und inelastischer Streuung von Neutronen in der Probe emittiert worden sind,
4. Absorption der Beta- und Gammastrahlung von Folgekernen,
5. elastische Streuung schneller Neutronen.

Bei spaltbaren Materialien ist Prozeß 1 naturgemäß vorherrschend, und es genügt, ihn allein in Rechnung zu setzen. Fig. 4 gibt dazu als Beispiel die spezifische Wärmeleistung von Uran; Parameter ist der Grad der Anreicherung an U 235.

Für die Materialerwärmung nichtspaltbarer Stoffe sind im wesentlichen die Prozesse 2 bis 5 verantwortlich. Ihre Beiträge sind durch die entsprechenden Wirkungsquerschnitte gegeben sowie durch die Spektren der Flußdichte am Bestrahlungsort. Kalorimetrische Messungen und rechnerische Abschätzungen sind u. a. bei [3] zu finden. In praxi ist die Berechnung der Energieabsorption vor allem deswegen schwierig, weil die spektrale Zusammensetzung der schnellen

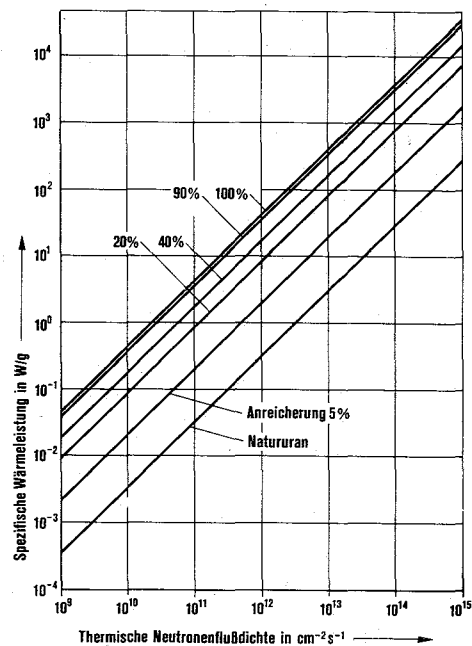


Fig. 4: Spezifische Wärmeleistung von Natururan und angereichertem Material in Abhängigkeit von der thermischen Neutronenflußdichte (Reaktorleistung 12 MW)

Fig. 4: Specific thermal power of natural uranium and enriched material as function of thermal-neutron flux density (reactor power 12 MW)

Neutronen- und Gammaflußdichten meist nur ungenügend bekannt ist. Am FR 2 wurden deshalb direkte Messungen mit einem Kalorimeter durchgeführt, um die Erwärmung einiger wichtiger Materialien zu erhalten. Die Ergebnisse werden in Fig. 5 mitgeteilt [3].

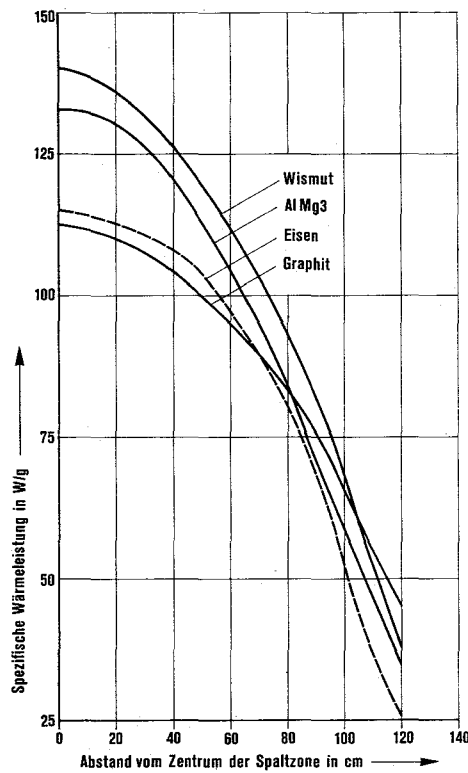


Fig. 5: Spezifische Wärmeleistung (in mW/g, nicht in W/g) verschiedener Reaktorstrukturmaterialien [3] (Reaktorleistung 12 MW)

Fig. 5: Specific thermal power (in mW/g, not in W/g) of different reactor structural materials [3] (reactor power 12 MW)

### 3. Sicherheitsaspekte bei Probenbestrahlungen

#### 3.1 Bestrahlungskapseln und Probenumhüllungen

Von Bestrahlungskapseln oder Probenumhüllungen wird im wesentlichen folgendes erwartet:

1. geringe oder vertretbare Schädigung ihrer mechanischen Eigenschaften durch die Reaktorstrahlung,
2. Beständigkeit gegen einen chemischen Angriff der Proben-substanz oder ihrer Zersetzungsprodukte,
3. genügende Festigkeit beim Aufbau eines inneren Gas-druckes durch Verdampfung oder Zersetzung der Proben-substanz.

Sehr übersichtliche Bedingungen ergeben sich bei der Verwendung abgeschmolzener Quarzglasampullen, die in vielen kritischen Fällen als Innenbehälter eingesetzt werden. Eine wesentliche Schädigung ihrer mechanischen Eigenschaften durch die Reaktorstrahlung ist nicht zu erwarten; dasselbe gilt für einen möglichen chemischen Angriff durch den Ampulleninhalt. Richtwerte für die Innendruckfestigkeit wurden durch Berstversuche mit Wasserdampf-füllung bei Temperaturen von 280 bis 340°C gewonnen. Sie lagen für gängige Ampullen von 10 und 20 mm Durchmesser bei 120 bzw. 95 at; die Ergebnisse streuten von 65 bis 150 at bzw. 75 bis 115 at. Auf Grund dieser Versuche wurde der zulässige Druckaufbau in einer abgeschmolzenen Quarzglasampulle auf 20 at bei Raumtemperatur begrenzt.

Auch für Aluminiumkapseln und -hülsen ist die Schädigung der mechanischen Eigenschaften durch die Reaktorstrahlung

Tab. 2: Massenabsorptionskoeffizienten

Element	Massenabsorptionskoeffizient cm <sup>2</sup> /g	Element	Massenabsorptionskoeffizient cm <sup>2</sup> /g
Ag	0,35	N	7,6 · 10 <sup>-2</sup>
Al	5,57 · 10 <sup>-3</sup>	Na	0,013
Ar	9,45 · 10 <sup>-3</sup>	Nb	7,5 · 10 <sup>-3</sup>
As	3,46 · 10 <sup>-2</sup>	Nd	0,19
Au	0,29	Ne	8,12 · 10 <sup>-2</sup>
B	42	Ni	4,72 · 10 <sup>-2</sup>
Ba	5,15 · 10 <sup>-3</sup>	O	7,6 · 10 <sup>-6</sup>
Be	6,7 · 10 <sup>-4</sup>	Os	4,84 · 10 <sup>-2</sup>
Bi	1,03 · 10 <sup>-4</sup>	P	3,84 · 10 <sup>-3</sup>
Br	5,0	Pa	0,52
C	2,0 · 10 <sup>-4</sup>	Pb	5,38 · 10 <sup>-4</sup>
Ca	6,5 · 10 <sup>-3</sup>	Pd	4,54 · 10 <sup>-2</sup>
Cd	13,2	Pr	4,84 · 10 <sup>-2</sup>
Ce	3,1 · 10 <sup>-3</sup>	Pt	2,72 · 10 <sup>-2</sup>
Cl	0,62	Pu	2,59
Co	0,38	Ra	5,32 · 10 <sup>-2</sup>
Cr	3,59 · 10 <sup>-2</sup>	Rb	5,23 · 10 <sup>-3</sup>
Cs	0,12	Re	0,27
Cu	3,65 · 10 <sup>-2</sup>	Rh	0,87
Dy	3,52	Ru	1,52 · 10 <sup>-2</sup>
Er	0,62	S	9,7 · 10 <sup>-3</sup>
Eu	17,1	Sb	2,82 · 10 <sup>-2</sup>
F	5,88 · 10 <sup>-5</sup>	Sc	0,32
Fe	2,28 · 10 <sup>-2</sup>	Se	9,38 · 10 <sup>-2</sup>
Ga	2,42 · 10 <sup>-2</sup>	Si	3,31 · 10 <sup>-3</sup>
Gd	177	Sm	22,5
Ge	2,04 · 10 <sup>-2</sup>	Sn	3,23 · 10 <sup>-3</sup>
H	0,19	Sr	8,26 · 10 <sup>-3</sup>
He	1,12 · 10 <sup>-3</sup>	Ta	6,99 · 10 <sup>-2</sup>
Hf	0,35	Tb	0,17
Hg	1,14	Te	2,23 · 10 <sup>-2</sup>
Ho	0,23	Th	1,97 · 10 <sup>-2</sup>
In	1,00	Ti	7,3 · 10 <sup>-2</sup>
Ir	1,38	Tl	1,005 · 10 <sup>-2</sup>
J	3,33 · 10 <sup>-2</sup>	Tm	0,45
K	3,22 · 10 <sup>-2</sup>	U	1,94 · 10 <sup>-2</sup>
Kr	0,21	V	5,9 · 10 <sup>-2</sup>
La	3,86 · 10 <sup>-2</sup>	W	6,27 · 10 <sup>-2</sup>
Li	6,17	Xe	0,16
Lu	0,38	Y	8,9 · 10 <sup>-3</sup>
Mg	1,73 · 10 <sup>-3</sup>	Yb	0,12
Mn	0,14	Zn	1,01 · 10 <sup>-2</sup>
Mo	1,7 · 10 <sup>-2</sup>	Zr	1,25 · 10 <sup>-3</sup>

so geringfügig, daß sie die Sicherheit der Bestrahlungsversuche praktisch nicht beeinflußt. Dagegen kann hier ein Korrosionsangriff durch starke Basen stattfinden, die auch durch Hydrolyse der Proben-substanz in Kristallwasser und hygroskopisch aufgenommenem Wasser oder durch Zersetzung unter der Einwirkung der Reaktorstrahlung freigesetzt werden können. Weiterhin ist ein möglicher Angriff durch Metalle, die mit Aluminium relativ niedrig schmelzende Legierungen bilden, und vor allem durch Quecksilber und Quecksilberverbindungen zu berücksichtigen.

Für den Einsatz der nicht gasdichten verschraubten Aluminiumkapseln vom Harwell-Typ ist die Innendruckfestigkeit nur beim Auftreten eines Druckstoßes durch das Bersten eines gasdichten Innenbehälters von Bedeutung. Bei etwa 10 at Innendruck werden die Kapseldeckel aus den gerollten Gewinden gerissen; Kapseln jedoch, deren Deckel im Gewinde verschweißt worden waren, rissen erst bei etwa 30 at. Die in der Form dem Harwell-Typ angepaßten verschweißten Aluminiumkapseln zeigten eine Innendruckfestigkeit der Schweißnaht von (18 ± 3) at. Die entsprechenden Werte für zugereißte oder mit Araldit-Gießharz zugekittete Aluminiumhülsen, die als innere Probenbehälter Verwendung finden (Durchmesser 7 mm, Wanddicke 0,5 mm, Länge 30 mm) lagen bei (4,5 ± 2,5) at bzw. oberhalb von 15 at Überdruck.

Beim Einsatz von Polyäthylenkapseln, -hülsen oder -beuteln steht meistens die Schädigung der mechanischen Eigenschaften durch die Reaktorstrahlung im Vordergrund der Sicherheitsbetrachtung, während die Möglichkeit eines chemischen An-

griffes durch die Probensubstanz i. allg. keine Rolle spielt; die Kapseltemperatur muß auf maximal etwa 100 °C begrenzt bleiben. Spezielle Bestrahlungsversuche und Erfahrungen aus Routinebestrahlungen am FR 2 ergaben, daß Polyäthylenbehälter in 2 Stunden (maximale Rohrpostbestrahlungszeit am FR 2) bei einer Dosisleistung der Reaktorstrahlung von etwa 10<sup>8</sup> rad/h keine Schäden erleiden, die ihre Einsatzfähigkeit grundsätzlich in Frage stellen [4].

Die verschiedenen Typen von Polyäthylenbehältern halten folgende innere Überdrücke aus:

verkittete Hülse (mit 16 mm Durchmesser, 2 mm Wanddicke, 30 mm Länge und Araldit-Kittung)		(3,5 ± 2,5) at;
verschweißter Beutel (aus 0,15 mm dicker Folie)	30 mm breit	(1,3 ± 0,2) at,
	80 mm breit	(0,31 ± 0,02) at,
	200 mm breit	(0,18 ± 0,01) at.

Für die Gasundichtigkeit von mit Rundschnur Gummi gedichteten Rohrpostkapseln, von geschweißten Beuteln aus 0,15-mm-Folie mit 2·80 mm × 150 mm Oberfläche und von mit Araldit verkitteten Hülsen ergaben sich unter einem inneren Überdruck (Luft) von 1 at folgende Werte:

gedichtete Rohrpostkapsel	(6 ± 3) · 10 <sup>-4</sup> Torr l/s,
verschweißter Beutel	(4 ± 1,5) · 10 <sup>-5</sup> Torr l/s,
verkittete Hülse	(2,5 ± 1) · 10 <sup>-4</sup> Torr l/s.

### 3.2 Sicherheitstechnische Einordnung der Probensubstanzen

Beim FR 2 werden aus praktischen Gründen die Probensubstanzen in Gruppen eingeteilt, die karteimäßig als Liste A und Liste B erfaßt sind. In Liste A werden die sog. unbedenklichen Bestrahlungsproben geführt, deren Bestrahlung keiner besonderen Einschränkung unterliegt. Liste B erfaßt die übrigen Substanzen, die aufgrund einer ihrer Eigenschaften eine Störung am Reaktor verursachen könnten. Sie unterliegen gewissen schriftlich niedergelegten Beschränkungen, wie z. B. der Menge, der Verpackung, der Neutronenflußdichte oder der Bestrahlungsdauer.

Für die Einordnung von Probensubstanzen als unbedenkliche Bestrahlungsproben (Liste A) gelten folgende Kriterien:

1. Die Probensubstanz darf in Luft kein unterhalb 600 °C schmelzendes oder stark sublimierendes Oxyd bilden und unterhalb 600 °C keine nennenswerte Reaktion mit dem Aluminiumkapselmaterial zeigen (Korrosion!).
2. Der Schmelzpunkt, die Sublimations- oder Zersetzungstemperatur der Probensubstanz muß oberhalb 600 °C liegen (Druckaufbau!).
3. Die Probensubstanz darf keine Spaltstoffe und kein Bor, Lithium oder Cadmium enthalten (Spaltprodukte, Erwärmung!).

Typische Beispiele von Substanzen aus der unter diesen Kriterien aufgestellten Liste A gibt die Tab. 3 an. Die Stoffeigenschaften in dieser und in den folgenden Tabellen wurden vor allem den unter [5] und [6] angegebenen Handbüchern entnommen.

Tab. 3: Unbedenkliche Probensubstanzen

Substanz	Dichte g/cm <sup>3</sup>	Schmelzpunkt °C
Al	2,70	660
Au	19,3	1063
KCl	1,98	776
MoO <sub>3</sub>	4,69	795
Sm <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	7,43	2300

In Liste B wird eine Substanz dann geführt, wenn bei der Bestrahlung ein Korrosionsangriff auf die Bestrahlungskapsel oder eine merkliche Zersetzung oder ein unzulässig hoher Temperaturaufbau zu erwarten ist. Daneben werden Spalt-

stoffe wegen der in Verbindung mit der Spaltprodukt- und Wärmeerzeugung sich ergebenden Problematik grundsätzlich unter B geführt.

Weiterhin sind einige Vorschriften über maximal zulässige Reaktivitätsbeiträge und Aktivitätswerte zu beachten; ihre Einhaltung ist jedoch unproblematisch und i. allg. nicht Gegenstand der Sicherheitsbetrachtungen.

Im folgenden werden die Gesichtspunkte, unter denen die Eingruppierung in Liste B erfolgt, zusammengestellt und anhand von Beispielen erläutert.

### 3.21 Korrosion

Ein chemischer Angriff kann durch Reaktion des Aluminiums der Kapsel mit niedrig schmelzenden Metallen und Verbindungen oder mit stark hygroskopischen Substanzen, die Wasserdampf aus der Umgebung aufnehmen, erfolgen. Dabei kann die Reaktion auch durch Hydrolyse der hygroskopischen Substanzen verursacht werden.

Einige bisher in Liste B aufgenommene Substanzen dieser Gruppe sind unter Angabe der kritischen Eigenschaft in Tab. 4 zusammengestellt. Zur Gewährleistung der erforderlichen Sicherheit ist für diese Substanzen die Verpackung in einem chemisch resistenten Innenbehälter, i. allg. in einer (nicht unbedingt verschlossenen) Quarzglasampulle, vorgeschrieben.

Eine gewisse Sonderstellung in der hier behandelten Gruppe von Probensubstanzen nehmen Quecksilber und Quecksilberverbindungen ein. Bereits bei Raumtemperatur wird ein heftiger Oxydationsangriff auf Aluminium ausgelöst und schreitet ohne Verbrauch des Quecksilbers fort. Deshalb sind hier die zusätzliche Verpackung der Quarzglasampulle in einer geschlossenen Stahlhülse und ein zweiter gasdichter Verschluss durch Verschweißen der Stahlhülse oder Verwendung einer verschweißten Bestrahlungskapsel vorgeschrieben.

Tab. 4: Korrosive und niedrig schmelzende Probensubstanzen

Substanz	Dichte g/cm <sup>3</sup>	kritische Eigenschaften
Cs <sub>2</sub> CO <sub>3</sub>		stark hygroskopisch, Hydrolyse
HgO	11,14	Zersetzung 500 °C, Bildung von Hg
NaHCO <sub>3</sub>	2,19	Zersetzung 270 °C, Bildung von NaOH
Se	4,79	Schmelzpunkt 217 °C

### 3.22 Zersetzung

Die in der Praxis wichtigste akute Gefährdung der Bestrahlungsvorrichtungen und ihres Betriebes ergibt sich durch die Freisetzung von Gasen aus Probensubstanzen während der Bestrahlung. Sie kann durch die direkte Einwirkung der Reaktorstrahlung oder durch die Erwärmung infolge der Strahlungsabsorption verursacht werden. Es muß dann gesichert sein, daß die Innendruckfestigkeit der gasdichten Probenbehälter durch die Ansammlung der aus der Probensubstanz freigesetzten Gasmengen nicht überschritten wird.

3.221 *Thermische Freisetzung.* Die Voraussetzung für eine mögliche thermische Zersetzung während der Bestrahlung mit folgender Korrosionswirkung gasförmiger Zersetzungsprodukte erfüllen vor allem die Gruppen der Ammoniumverbindungen, Nitrate und Edelmetallchloride; die Chloride können darüber hinaus eine Kontamination mit radioaktivem Chlor verursachen.

Ebenfalls für eine radioaktive Verunreinigung der Betriebsräume und der Abluftkanäle kommen durch mögliche Verdampfung während der Bestrahlung vor allem Jod, Phosphor, Schwefel und einige Metalloxyde in Betracht.

Bei thermischer Freisetzung von Gasen vernachlässigbarer Korrosionswirkung und Aktivität ist – wie für alle in diesem Abschnitt erfaßten Substanzen – der Druckaufbau zu berücksichtigen, falls das Experiment eine gasdichte Verpackung erfordert. Das gilt z. B. für thermisch leicht

**Tab. 5: Bei Erwärmung Gase oder Dämpfe freigebende Probensubstanzen**

Substanz	Dichte g/cm <sup>3</sup>	kritische Eigenschaft
CuSO <sub>4</sub>	3,60	Zersetzung 200 °C
Re <sub>2</sub> O <sub>7</sub>	8,2	Sublimation 300 °C
RuCl <sub>3</sub>	3,11	Zersetzung 500 °C
TeO <sub>2</sub>	5,67	Sublimation 450 °C

zersetzbare Oxyde, Hydride, Carbonate, organische Verbindungen, Hydroxyde, kristallwasserhaltige Substanzen und selbstverständlich Wasser und wäßrige Lösungen.

Einige der bisher in die Liste B aufgenommenen Substanzen dieser Gruppe sind unter Angabe der kritischen Eigenschaften in Tab. 5 zusammengestellt.

**3.222 Zersetzung durch Strahlungswirkung.** Eine direkte Zersetzung durch Strahlungsabsorption (auch ohne Erwärmung) unter Gasfreigabe ist vor allem für wäßrige Lösungen und für organische Probensubstanzen zu erwarten. Allerdings geben auch Ammoniumverbindungen, Nitrate und verschiedene kristallwasserhaltige anorganische Substanzen durch Strahlungswirkung nennenswerte Gasmengen frei [7].

Die Geschwindigkeit der Zersetzung unter Bestrahlung wird durch den sog. G-Wert erfaßt. Für organische Substanzen kann der G-Wert in erster Näherung als unabhängig von der Strahlungsart angesehen werden, so daß die Wirkung der verschiedenen Reaktorstrahlungskomponenten nicht getrennt betrachtet zu werden braucht [4].

Wenn die durch Strahlungsabsorption verursachten Änderungen chemischer Bindungen überwiegend zur Bildung jeweils eines Gasmoleküles führen, stimmt der G-Wert praktisch mit dem Zahlenwert der spezifischen Gasfreisetzung in µmol/g Mrad überein. Dieser Fall entspricht der ungünstigsten Deutung des G-Wertes im Rahmen einer Sicherheitsbetrachtung.

Da die aus den meisten zur Bestrahlung kommenden organischen Substanzen freigesetzten Gase nicht nennenswert korrosiv oder radioaktiv sind, ist bei der Sicherheitsbetrachtung i. allg. nur der Gasdruckaufbau in gasdichten Probenbehältern zu berücksichtigen.

In Tab. 6 sind einige von der Liste B erfaßte Substanzen – vor allem thermoplastische Kunststoffe – unter Angabe ihrer spezifischen Gasfreisetzung zusammengestellt [7–9].

**Tab. 6: Durch Strahlungswirkung Gase freigebende Probensubstanzen**

Substanz	Gasfreigabe µmol/g Mrad	Strahlenbeständigkeit der mechanischen Eigenschaften bis zu einer Dosis von
Ba(NO <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	0,6	
Celluloseacetat	0,9	0,7 · 10 <sup>8</sup> rad
Polyäthylen	3	5 · 10 <sup>8</sup> rad
Hostaphan	0,2	10 · 10 <sup>8</sup> rad
Polystyrol	0,01	100 · 10 <sup>8</sup> rad
wäßr. Lösungen (bis 1 N)	0,5–1,3	

### 3.23 Erwärmung

Die Erwärmung der Proben während der Bestrahlung erfolgt für die meisten Probensubstanzen überwiegend durch Streuung von Neutronen- und Gammastrahlung und durch Absorption von Gammastrahlung. Die zugeführte spezifische Wärmeleistung hängt in diesem Fall nicht entscheidend von der Art der Probensubstanz ab.

Nur wenige Probensubstanzen zeigen eine weitaus stärkere Erwärmung durch Kernreaktion hoher spezifischer Energiefreisetzung und -absorption. Zu ihnen gehören vor allem Cadmium, Lithium und Bor sowie selbstverständlich alle Spaltstoffe mit ihren Verbindungen auf Grund ihrer (n, γ)-, (n, α)- oder (n, f)-Reaktionen. In Tab. 7 sind die durch eine thermische Neutronenflußdichte von 10<sup>13</sup> cm<sup>-2</sup> s<sup>-1</sup> erzeugten spezifischen Wärmeleistungen für sehr dünne Proben (d. h. ohne Berücksichtigung einer Selbstabschirmung) bzw. für Cadmium in 1 mm dicker Schicht angegeben.

Einer erheblichen Erwärmung durch Kernreaktionen unterliegen auch Probensubstanzen mit hohem Neutroneneinfangquerschnitt, auf deren (n, γ)-Reaktion überwiegend Betazerfälle relativ kurzer Halbwertszeit folgen. Zu ihnen gehören z. B. Mn, As, Rh, Ag, In, J, Eu, Dy, Re, Ir, Au. Die spe-

zifischen Wärmeleistungen betragen hier jedoch (bei 10<sup>13</sup> cm<sup>-2</sup> s<sup>-1</sup>) nur etwa 0,1 bis 1 W/g und machen keine besondere Eingruppierung der betroffenen Substanzen erforderlich. Für Eu und Dy sind die Verhältnisse allerdings durch die hohe Selbstabschirmung kompliziert.

Für die in Tab. 7 aufgeführten Elemente und ihre Verbindungen gelten alle in den vorangehenden Abschnitten begründeten Sicherheitsvorschriften sinngemäß unter Berücksichtigung der zu erwartenden relativ sehr hohen Proben Temperaturen.

Cadmiumblech-Hülsen, die öfters zur Abschirmung der thermischen Neutronen Verwendung finden, sind durch Sondervorschrift in solchen Formen und Anordnungen zur Bestrahlung zugelassen, für die die maximale Temperatur der Hülsen sicher unterhalb des Cadmium-Schmelzpunktes bleibt.

**Tab. 7: Probensubstanzen mit hoher spezifischer Wärmeleistung durch Kernreaktionen**

Element oder Nuklid	Reaktion	Spezifische Wärmeleistung* W/g
B	n, α	160
Cd	n, γ	0,9
Li	n, α	45
Pu 239	n, f	550
Natururan	n, f	2,9
U 235	n, f	420

\* Bei einer Flußdichte thermischer Neutronen von 10<sup>13</sup> cm<sup>-2</sup> s<sup>-1</sup>.

### 3.24 Spaltstoffe

**3.241 Thermisch zersetzliche Uranverbindungen.** Die Mengengrenzung für die häufig verwendeten Verbindungen Uranyl-nitrat und Ammoniumdiuranat ist so festgelegt, daß die Wärmeleistung in jeder Probe auf 1 W beschränkt wird. Diese entspricht bei einer Neutronenflußdichte von etwa 3 · 10<sup>13</sup> cm<sup>-2</sup> s<sup>-1</sup> ungefähr einer maximalen Menge von 0,25 g (für Verbindungen des natürlichen Urans). Die für den Fall der Freisetzung korrosiver oder radioaktiver Gase geforderte Verpackung (Abschnitt 3.22) ist für Spaltstoffe wegen der möglichen Freigabe radioaktiver Spaltgase allgemein vorgeschrieben. Alle in Liste B aufgenommenen Spaltstoffe müssen in einer abgeschmolzenen Quarzglasampulle verpackt werden.

**3.242 Uranoxyd (UO<sub>2</sub>, U<sub>3</sub>O<sub>8</sub>).** Die Vorschriften gehen von der Forderung aus, daß die Proben Temperatur nirgends 1000 °C überschreiten darf. Unterhalb dieser Temperatur ist keine Zersetzung und keine nennenswerte Spaltgasfreigabe durch Diffusion zu erwarten. Weiterhin soll der U-235-Gehalt des Uranoxyds vorläufig auf 20% beschränkt bleiben.

Dies hat zur Folge:

1. Die maximale Spaltungswärmeleistung beträgt 50 W je Probe.
2. Die maximale längenbezogene Spaltungswärmeleistung (je Längeneinheit der zur Verpackung verwendeten Quarzglasampulle) beträgt 10 W/cm.
3. Die Quarzglasampulle muß in eine zentrale Bohrung eines die ganze Bestrahlungskapsel füllenden Aluminiumzylinders eingesetzt werden, der auf dem Boden der Kapsel dicht aufliegt und mit der Ampulle einen höchstens 0,1 mm breiten Spalt bildet, oder von einer Packung gut wärmeleitenden Materials (Aluminiumgrieß, gestampfte Aluminiumfolie) umgeben sein.

Bleibt die Spaltungswärmeleistung auf maximal 5 W je Probe beschränkt, so ist die Verpackung der Ampulle in der Bestrahlungskapsel beliebig, sofern sich nur Ampullen- und Kapselboden berühren.

Neben diesen Vorschriften müßte bei hohem Uranabbrand in pulverförmigen Uranoxydproben unter Umständen auch der Druckaufbau durch gasförmige Spalt- und Zerfallsprodukte, vor allem Xenonisotope, berücksichtigt werden.

**3.243 Plutonium.** Die in den vorangehenden Abschnitten erläuterten Bestrahlungsvorschriften für Uran und Uranverbindungen gelten selbstverständlich sinngemäß auch für Plutonium enthaltende Proben. Zusätzlich ist jedoch eine Sicher-



heitsbetrachtung bezüglich der hohen Radiotoxizität des Plutoniums erforderlich, die vor allem dem Gesundheitsschutz für das Bedienungspersonal der Bestrahlungsvorrichtungen dient. Diese ist — soweit sie die Alpha-Aktivität der Proben betrifft — sinngemäß auch auf Neptunium- und Thoriumverbindungen anzuwenden (Erzeugung von Pu 238 bzw. U 233!).

Da es zweifellos recht schwierig ist, in diesem Zusammenhang wohlbegründete Mengenbegrenzungen und Verpackungsvorschriften festzulegen, wurde vorläufig eine sehr vorsichtige Regelung getroffen:

Für Plutoniummengen bis zu 1 mg (entsprechend 60  $\mu$ Ci) wird die Verpackung in einer abgeschmolzenen Quarzglasampulle als ausreichend angesehen. Für größere Plutoniummengen ist eine doppelte gasdichte Verpackung vorgeschrieben. Die Mengenbegrenzung ergibt sich hier aus den allgemeinen Bestrahlungsvorschriften für Spaltstoffe<sup>2</sup> (maximal zulässige Spaltungswärmeleistung 50 W) zu maximal 50 mg Pu 239 (entsprechend 3 mCi). Für die Bestrahlungen von nicht pulverförmigen metallischen

<sup>2</sup> Bei 43 MW Reaktorleistung

Legierungen, z. B. Aluminiumblechen oder -folien, mit sehr niedrigem Plutoniumgehalt lassen sich sinnvollerweise wesentlich großzügigere Regelungen treffen.

(Eingegangen am 28. 10. 1965)

#### Literatur

- [1] Beckurts, K., und K. H. Wirtz: Neutron Physics. Berlin: Springer-Verlag 1964
- [2] Suckow, W.: Kernenergie 7, 310 (1964)
- [3] Kapulla, H., und H. Schülken: IAEA In-Pile Dosimetry Panel. Wien: IAEA 1964
- [4] Collins, C. G., und V. P. Calkins: Radiation damage to elastomers, plastics and organic liquids. Bericht APEX-261 (1956)
- [5] Handbook of Chemistry and Physics. 43rd edition. Cleveland, Ohio: The Chemical Rubber Publishing Co. 1961
- [6] Gmelins Handbuch der anorganischen Chemie. 8. Auflage. Weinheim, Berlin: Verlag Chemie 1923-65
- [7] Taylor, K. J., und G. T. Rogers: Bericht AERE-R-3409 (1962)
- [8] Schnabel, W.: Kunststoffe, ihr Wesen und Verhalten gegenüber ionisierender Strahlung. Deutsches Atomforum e. V., Information 2.11 11/2000 (1962)
- [9] Bach, N. A.: Arbeiten über Strahlenchemie. Berlin: Akademie-Verlag 1960

