

**KERNFORSCHUNGSZENTRUM**  
**KARLSRUHE**

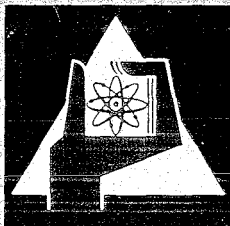
Januar 1970

KFK 1175

Institut für Angewandte Reaktorphysik

Integrale Experimente an schnellen Nullenergiereaktoren

P. Engelmann



GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M. B. H.  
KARLSRUHE



# Integrale Experimente an schnellen Nullenergiereaktoren<sup>1</sup>

Von P. Engelmann

Institut für Angewandte Reaktorphysik, Kernforschungszentrum Karlsruhe

## Zusammenfassung

Schnelle integrale Experimente erfüllen eine wichtige Aufgabe bei der Entwicklung schneller Leistungsreaktoren. Ihre Ergebnisse ermöglichen eine Überprüfung der verwendeten Datensätze und Rechenmethoden und erlauben es dadurch, die Unsicherheiten in den Auslegungsparametern abzuschätzen und zu reduzieren. Die vorliegende Arbeit gibt einen Überblick über Arten und Aufgaben integraler Experimente und über die verwendeten Meßmethoden. Dabei werden der Stand der Meßtechnik und die für eine systematische Überprüfung von Kerndaten erforderlichen Weiterentwicklungen und Verfeinerungen der Methoden diskutiert. Abschließend werden die Wege aufgezeigt, die von den integralen Meßdaten zur Verbesserung von Datensätzen führen.

## Abstract

### Integral experiments in fast zero power reactors

Fast integral experiments play an important role in the development of fast power reactors. The experimental results can be used to check the nuclear data sets as well as the methods used in design calculations. In this way the uncertainties in the prediction of design parameters can be estimated and reduced. This report gives a survey on the various kinds of fast integral experiments and their purpose. The experimental techniques used in these experiments are described. Further improvement of some of the methods is necessary especially for a systematic check of nuclear data. At the end of the paper the various ways are discussed which lead from integral data to improved data sets.

## EURATOM KEYWORDS

MEASUREMENT	ZEPHYR
MOCKUP	ERRORS

## 1. Einleitung

Kritische Experimente dienen dazu, durch Messung integraler Parameter Informationen zu gewinnen, die für die neutronenphysikalische Auslegung von Reaktoren von Interesse sind. Sie können entweder zur Überprüfung der Rechenergebnisse für einen geplanten Leistungsreaktor dienen oder zu allgemeinen Parameterstudien für die Überprüfung der Kerndaten. Kritische Experimente für schnelle Reaktoren sind deshalb besonders wichtig, weil in die Berechnung dieser Reaktoren wegen des breiten Neutronenspektrums die Kerndaten der Spalt- und Brutstoffe, Struktur- und Kühlmaterien von 10 MeV herab bis in den eV-Bereich eingehen. Diese Kerndaten werden überwiegend durch differentielle Messungen an Beschleunigern, Pulsreaktoren und neuerdings auch bei unterirdischen Kernexplosionen gewonnen. Bei Beginn der Schnellreaktorentwicklung war die Kenntnis der Kerndaten sehr lückenhaft und ist auch heute noch teilweise zu ungenau, um neue Reaktoren mit der für die Sicherheitsbeurteilung und wirtschaftliche Optimierung erforderlichen Exaktheit berechnen zu können. Wie groß diese Unsicherheiten z. T. noch sind, wurde vor etwa einem Jahr besonders deutlich, als neue Messungen des Verhältnisses vom Einfang- zum Spaltquerschnitt von Pu 239, des wichtigsten Spaltstoffes für schnelle Reaktoren, eine Korrektur des bisherigen Wertes um

etwa 50% im Bereich < 15 keV notwendig machten [1]. Stark in der Diskussion sind heute auch noch die Einfangquerschnitte von U 238, des wichtigsten Brutstoffes, die Kerndaten der höheren Plutoniumisotope, die im Gleichgewichtszustand schneller Brutreaktoren sehr empfindlich das neutronenphysikalische Verhalten mitbestimmen, und die Wirkungsquerschnitte der Spaltproduktkerne.

Die resultierenden Unsicherheiten bei der Auslegung neuerartiger schneller Reaktoren sind heute noch in der Größenordnung  $\pm 2\%$  in  $k$ ,  $\pm 0,06$  in der Brutrate,  $\pm 20\%$  im Dopplerkoeffizienten,  $\pm 50\%$  im Kühlmittel-Reaktivitätskoeffizienten und mehr als  $\pm 50\%$  in den Auswirkungen der Spaltproduktvergiftung.

Die Wunschliste für differentielle Messungen ist so groß, daß noch viele Jahre vergehen werden, bis alle erforderlichen Daten mit der gewünschten Genauigkeit verfügbar sein können. Die große Zahl der heute existierenden schnellen Nullenergiereaktoren und die Verfeinerung der Meßmethoden bei integralen Experimenten hat jedoch eine systematische Überprüfung der Kerndaten mit Hilfe schneller kritischer Experimente eingeleitet, die erwarten läßt, daß die Datenunsicherheiten nunmehr rasch reduziert werden können. Diese Experimente ermöglichen darüber hinaus auch eine Überprüfung der Rechenmethoden, z. B. für Kontrollstäbe, Kanäle, Einbauten usw.

Im folgenden soll zunächst eine kurze Beschreibung des prinzipiellen Aufbaus der heutigen schnellen Nullenergiereaktoren gegeben werden, um dabei auf die experimentellen Möglichkeiten und Probleme hinzuweisen. Anschließend wird auf die Meßgrößen und Meßmethoden eingegangen und zum Schluß gezeigt, auf welche Weise die Ergebnisse integraler Experimente zur Verbesserung von Kerndatensätzen genutzt werden können.

## 2. Anlagen zur Durchführung schneller kritischer Experimente

Die älteste Anlage ist der amerikanische schnelle Nullenergiereaktor ZPR-3 in Idaho, der seit 1955 in Betrieb ist [2; 3]. Er besteht, wie auch die späteren amerikanischen Anlagen ZPR-6 und 9 und ZPPR, aus einer festen und einer dagegen beweglichen Hälfte, die jeweils aus einer Matrix quadratischer Stahlrohre gebildet werden. In diese Rohre werden Schubladen geschoben, welche die Reaktormaterialien in Form von Plättchen aufnehmen. Die Anordnung wird nach dem Beladen durch Zusammenfahren der beiden Hälften kritisch gemacht, wobei zum Feinabgleich einige der Schubladen als »Regelstäbe« teilweise ausgefahren werden können.

Die europäischen Anlagen dagegen, der ZEBRA-Reaktor in England, die BFS in der Sowjetunion, die französische MASURCA und unsere SNEAK in Karlsruhe, haben einen anderen Aufbau [3]. Sie sind ungeteilt und bestehen aus durchgehenden, vertikal angeordneten Brennelementrohren (Fig. 1), welche unmittelbar die Einzelbausteine aufnehmen. ZEBRA, BFS und SNEAK verwenden Plättchen (Fig. 2), MASURCA

<sup>1</sup> Vorgelegt bei der Reaktortagung 1969 des Deutschen Atomforums e.V., Frankfurt (Main), 15. bis 18. April 1969.

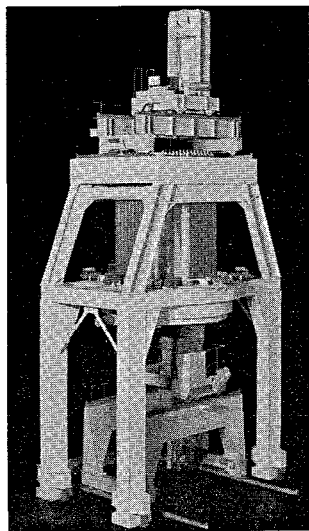


Fig. 1: Modell des Versuchsaufbaus  
Fig. 1: Model of the SNEAK reactor

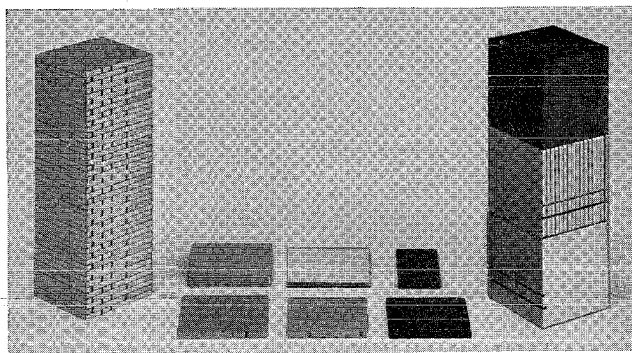


Fig. 2: SNEAK-Einzelbausteine  
Fig. 2: Material pieces used for the construction of SNEAK assemblies

Stäbchen. Beide Bauprinzipien – das amerikanische und das europäische – haben Vor- und Nachteile, die mehr auf sicherheitstechnischer und betrieblicher Seite liegen [4] als in der Qualität der neutronenphysikalischen Messungen und die deshalb hier nicht näher erörtert werden sollen.

Von der Neutronenphysik her sind alle diese Anlagen weitgehend gleich: Der Aufbau aus Plättchen bzw. Stäbchen gestattet es, schnelle Systeme unterschiedlicher Größe, Geometrie und Zusammensetzung aufzubauen und zu untersuchen. Diese Flexibilität wird durch eine heterogene Struktur erkauf, die sich deutlich von der eines Leistungsreaktors unterscheidet und Auswirkungen auf die integralen Meßgrößen hat. Diese Auswirkungen sind um so größer, je heterogener der Aufbau für die Neutronen erscheint: in schnellen Systemen mit sehr hartem Neutronenspektrum spielt die Feinstruktur des Aufbaus keine große Rolle, da die Wirkungsquerschnitte klein, d. h. die mittleren freien Weglängen der Neutronen groß sind. Stoßen die Neutronen im Mittel nur alle 5 cm, so sehen sie das aus 3 mm dicken Plättchen aufgebaute System praktisch als homogen. Bei niedrigeren Energien, insbesondere im Resonanzbereich, kann dagegen das gleiche Plättchen als optisch dick erscheinen. Bei SNEAK haben wir etwas an Flexibilität geopfert und die Hauptquelle der Heterogenitätseffekte beseitigt, indem wir Spalt- und Brutstoff in den Plättchen bereits im etwa richtigen Verhältnis gemischt

haben. Beim Plutonium sind wir sogar so weit gegangen, es als Mischoxid  $PuO_2, UO_2$  zu verwenden. Die Unsicherheiten, die aus den Heterogenitätskorrekturen erwachsen, sind bei uns sehr klein.

Alle Nullenergieanlagen weichen vom Leistungsreaktor noch dadurch ab, daß sie bei Raumtemperatur betrieben werden. Bei den modernen Anlagen sorgt eine Luftkühlung für die Abfuhr der Spaltwärme, die nur im Bereich einiger Watt bis etwa 1 kW liegt, und der Zerfallswärme des Plutoniums, die mit 2 bis 3 W/kg in einer großen Pu-Anordnung wie dem ZPPR in Idaho mehrere kW Dauerleistung erreichen kann. Die Luftkühlung soll vornehmlich für Temperaturkonstanz bei den Messungen sorgen. Für spezielle Experimente – insbesondere für Dopplermessungen und Studien des Na-Void-Effektes – ist es möglich, Reaktorzonen oder Materialproben im Reaktor aufzuheizen oder auch in Teilbereichen Material mit der echten Gitterstruktur des Leistungsreaktors einzusetzen [5; 6].

Die Nullenergieanlagen besitzen i. allg. vielseitige Möglichkeiten für die Durchführung von Experimenten. So können z. B. in der SNEAK (Fig. 3) 2 Horizontalkanäle und beliebig viele Vertikalkanäle geschaffen werden, um Detektoren bzw. Materialproben einzubringen, darin zu verfahren oder zu oszillieren. In den Horizontalkanal kann man auch das Target einer Neutronenquelle für gepulste Experimente einführen. Er wäre auch für die Extraktion eines Neutronenstrahles aus dem Core geeignet.

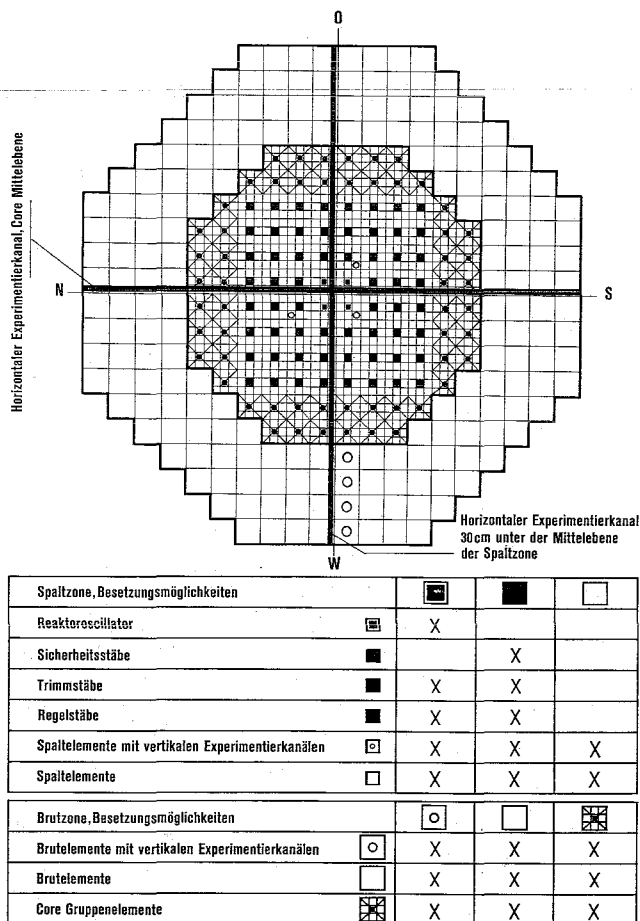


Fig. 3: SNEAK-Corequerschnitt  
Fig. 3: SNEAK loading plan

### 3. Integrale Experimente

Die integralen Experimente können wir in 3 Gruppen einteilen:

3.1. *Kritische Experimente für geplante Leistungsreaktoren*, bei denen an einem in Geometrie und Zusammensetzung möglichst genauen Nachbau des Reaktors spezielle Auslegungs- und Sicherheitsparameter gemessen bzw. überprüft werden. Hauptziel ist i. allg. die Festlegung der Anreicherung des Brennstoffs für die Brennelementfabrikation und die Beurteilung des Steuersystems, wo oftmals geklärt werden muß, ob natürliches Bor oder B-10 in Frage kommt. Als Beispiel für solche »mock-up«-Experimente möchte ich die Anordnungen ZPR-3/47 für den SEFOR [7; 8] und SNEAK-4 anführen, die zur Untersuchung des schnellen Core des KNK-Reaktors dienen [9]. In enger Abstimmung mit der Fa. Interatom haben wir hier vor allem die Leistungsverteilung, den Dopplereffekt, den Reaktivitätswert der Steuerstäbe und den Einfluß von Anreicherungsänderungen gemessen. Da die Geometrie dieser »mock-ups« meist sehr kompliziert ist, sind die Meßergebnisse nur für den gerade interessierenden Fall von Nutzen.

3.2. *Projektorientierte kritische Experimente*, die z. B. dem Studium einer speziellen Klasse von schnellen Reaktoren dienen.

Zu dieser Gruppe möchte ich die Experimente an SNEAK-3 zählen [10; 11; 12], in denen das neutronenphysikalische Verhalten dampfgekühlter schneller Reaktoren mittlerer Größe untersucht werden sollte. In relativ kurzer Zeit und mit begrenzten Brennstoffvorräten wurden hier experimentelle Parameterstudien durchgeführt, bei denen der Einfluß der Brennstoffart (U bzw. Pu), der Wasserstoffkonzentration (Dampfdruck), der Hüllmaterialart (Stahl bzw. Inconel) und des Gehaltes an Spaltprodukten (Abbrandverhalten) erfaßt werden sollte.

Während die Urananordnungen 3A einen einheitlichen Core-aufbau mit einer sehr einfachen Zellstruktur hatten, mußten

die Messungen an den Plutoniumanordnungen 3B in Mehrzonentechnik durchgeführt werden, weil nicht genügend Pu verfügbar war (Fig. 4). Auch die Hüllmaterial- und Spaltproduktmessungen konnten aus Zeit- und Kostengründen nur in Teilbereichen des Core vorgenommen werden. Diese Art von Experimenten gibt bereits wertvolle Hinweise auf die Eignung der Datensätze und erlaubt es, durch systematischen Vergleich von Theorie und Experiment Fehler in den Kerndaten zu lokalisieren. Die Aussagekraft ist jedoch durch den teils zu komplizierten Aufbau oder Mangel an Zeit für Präzisionsmessungen meist geringer als bei der folgenden 3. Gruppe von integralen Experimenten.

3.3. *Saubere kritische Experimente* (sog. »clean criticals«), bei denen an geometrisch einfachen, aus relativ wenigen Materialien aufgebauten Systemen umfangreiche, gezielte und sehr genaue Messungen zur Überprüfung von Kerndaten durchgeführt werden.

In diese Gruppe fallen mehrere kleine Urananordnungen, die Ende der fünfziger und Anfang der sechziger Jahre am ZPR-3 aufgebaut worden sind. Davey hat in einer ersten umfassenden Studie [13] einen systematischen Vergleich zwischen Rechnungen und integralen Meßwerten durchgeführt und daraus Verbesserungen des damals vielbenutzten 16-Gruppen-Yom-Satzes [14] abgeleitet. Die Meßtechniken waren jedoch seinerzeit noch nicht weit genug entwickelt, so daß heute von diesen Messungen nur noch wenige Daten, vor allem die kritischen Massen, verwendet werden können.

Für große schnelle Reaktoren mit Plutonium existieren noch sehr wenig saubere kritische Experimente. Die bisher wertvollsten waren die von A. M. Broomfield und W. G. Davey entworfenen Anordnungen 48, 49, 50, 53, 54 des ZPR-3, die in den letzten Jahren aufgebaut und untersucht worden sind [15; 16]. Assembly 48 wurde bereits vor der Durchführung der Experimente zu einem internationalen Vergleich von Rechnungen herangezogen [17] und anschließend von verschied-

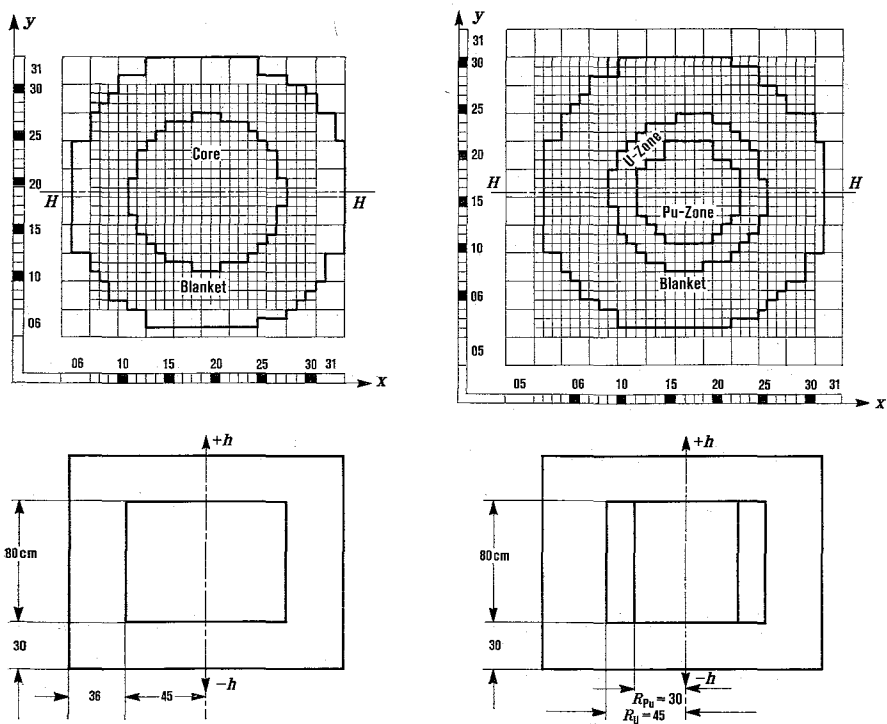


Fig. 4: Geometrie und Aufbau der Anordnungen SNEAK 3A-2 und 3B-2

Fig. 4: Geometry and unit cell of the assemblies SNEAK 3A-2 and 3B-2

denen Gruppen nachgerechnet [18; 19]. Entsprechende Experimente mit etwas unterschiedlicher Fragestellung sind in SNEAK für 1970, d. h. nach Abschluß der laufenden Messungen für den Natrium-Prototyp SNR, geplant.

Einen Sonderfall dieser Kategorie bilden die sog. Nullreaktivitätsexperimente, die in letzter Zeit vor allem in England [20], den USA [21] und auch bei uns in SNEAK-5 durchgeführt wurden [44]. Bei ihnen wird eine Zone, in der  $k_{\infty} \equiv \nu \Sigma_f / \Sigma_a = 1$  ist, durch eine umgebende Treiberzone kritisch gemacht. Im Innern der  $k_{\infty} = 1$ -Zone verlaufen die Flußdichten völlig flach. Dadurch verschwinden die Leckageterme, und Neutronenbilanzmessungen werden erleichtert. Dies ermöglicht es, z. B. auch meßtechnisch nicht unmittelbar zugängliche Größen wie die Absorptionsrate im Pu 239 aus der Differenz zu ermitteln und damit den Pu- $\alpha$ -Wert, d. h.  $(\sigma_{\alpha}/\sigma_f)$  Pu 239, zu bestimmen.

#### 4. Meßgrößen und Meßmethoden

Es soll jetzt kurz auf die Meßgrößen und Meßmethoden bei schnellen integralen Experimenten eingegangen werden.

Die noch immer wichtigste Meßgröße ist die kritische Masse, daneben haben heute Reaktionsraten bzw. Reaktionsratenverhältnisse, Reaktivitätswerte von Materialien und der Dopplerkoeffizient besondere Bedeutung erlangt. Außerdem werden oftmals das Neutronenflußspektrum und teilweise das adjungierte Spektrum, die Zerfallskonstante  $\beta/l$  der prompten Neutronen und der Kühlmittel-Reaktivitätseffekt gemessen.

Die *kritische Masse* ergibt sich unmittelbar aus dem kritischen Experiment. Sie wird meist durch Heterogenitätskorrekturen und einfache Korrekturen für den stufenförmigen Rand usw. auf die Masse einer homogenen Anordnung in idealer Geometrie umgerechnet, bevor sie mit Rechnungen verglichen wird. Bei *Mehrzonencores mit Uran- und Plutoniumzonen* kann die kritische Masse des reinen Plutonium-Core mit Hilfe der Technik der progressiven Substitution von Pu-Elementen in das U-Core recht genau abgeschätzt werden [22].

Die Messung von *Reaktionsraten* ist in den letzten Jahren sehr verfeinert worden [23]. Während man früher zur Spaltatenmessung meist kleine Parallelplattenkammern, sog. Kirnkammern [24], oder kleine zylindrische Kammern benutzte, verwendet man heute vorwiegend Folien aus Spalt- und Brutstoffen, die im Reaktor aktiviert und danach in einer Zählapparatur ausgezählt werden. Letztere Methode hat den Vorteil, daß man die Raten in einer Weise messen kann, wie sie in die Neutronenbilanz des Reaktors eingehen: Die Spaltatenrate von U 235 wird mit Uranfolien bestimmt, die in ein Brennstoffplättchen eingelegt werden. Wenn man ein solches Plättchen von z. B. 3 mm Dicke aufbohrt und das Loch mit einem Folienstapel füllt, kann man die echte Ratenverteilung mit allen Abschirm- und Selbstmultiplikationseffekten im Plättchen direkt messen. Eine andere Möglichkeit, die lokale Spaltatenverteilung zu messen, bieten die Spaltspurdetektoren aus Glimmer oder Makrofol, die im Reaktor neben einer Spaltstofffolie eingesetzt werden [25]. Die aus dem Spaltstoff in die Folie eindringenden Spaltprodukte erzeugen darin durch Bildung von Gitterfehlern Spuren, die durch Ätzen deutlich gemacht werden können. Von besonderer Bedeutung ist bei dieser Methode die Möglichkeit, die Ratenverteilung innerhalb des Brennstoffs zu messen. Hierbei werden Folien in ein Brennstoffplättchen oder zwischen 2 Plättchen eingesetzt und im Reaktor bestrahlt. Die Zahl der Spaltungen bzw. die Spaltatenverteilung kann nach der Bestrahlung unter dem Mikroskop ausgezählt werden. Die Spaltaten können somit gut und genau gemessen werden. Auch die wichtige Einfangrate von U 238 kann über die Np-239-Aktivität sehr genau be-

stimmt werden [26]. Nicht direkt zugänglich dagegen sind z. Z. noch die Einfangraten im U 235 und Pu 239 sowie in den wichtigsten Strukturmaterialien, da sie auf stabile bzw. ohnehin in großen Mengen vorhandene Kerne führen.

Die Reaktionsraten werden meist zur Spaltatenrate in U 235 bzw. in Pu 239 ins Verhältnis gesetzt und dann mit den berechneten Ratenverhältnissen verglichen. Man erhält hieraus Hinweise auf über das Spektrum des Systems gemittelte Ratenabweichungen, die mit Hilfe zusätzlicher Messungen, z. B. Materialwert- und Spektromessungen, Auskunft über Wirkungsquerschnittsfehler oder Spektromessungen liefern.

Information über das Neutronenspektrum liefern insbesondere die Verhältnisse von Reaktionsraten mit stark unterschiedlicher Spektralempfindlichkeit, z. B. von einer Reaktion, die erst oberhalb einer bestimmten Energieschwelle einsetzt (Spaltung von Th 232, U 234, U 238, Np 237, Pu 240) zu einer Reaktion, die nicht wesentlich vom Spektrum abhängt wie die Spaltung von U 235.

Aus Reaktionsratenmessungen kann man auch die Bruttoreate ermitteln. Sie ist in einem Plutoniumreaktor mit reinem Pu 239 als Spaltstoff definiert als

$$BR_{\text{Core}} = \frac{{}^{239}\text{Pu Erzeugung durch Einfang im } {}^{238}\text{U}}{{}^{239}\text{Pu Verbrauch durch Spaltung und Einfang}} = \frac{{}^{238}\text{U}_c / {}^{239}\text{Pu}_f}{{}^{239}\text{Pu}_c / {}^{239}\text{Pu}_f} = \frac{{}^{238}\text{U}_c / {}^{239}\text{Pu}_f}{{}^{239}\alpha}$$

wobei z. B.  ${}^{238}\text{U}_c / {}^{239}\text{Pu}_f$  das über das Corevolumen integrierte Verhältnis der Einfangrate in U 238 zur Spaltatenrate in Pu 239 ist. Das Verhältnis  ${}^{239}\alpha$  im Nenner ist, wie bereits erwähnt, nicht direkt meßbar, aber in typischen schnellen Reaktoren klein gegen 1, so daß der berechnete Wert eingesetzt werden kann, ohne die Unsicherheit der BR-Bestimmung wesentlich zu erhöhen.

Bereits die Reaktionsraten  $R_i = \int_0^{10\text{MeV}} \Phi(E) \sigma_i(E) dE$  stellen eine integrale Meßgröße dar. Der *Reaktivitätswert von Reaktormaterialien* im Reaktorzentrum ist jedoch eine noch wesentlich integralere Größe. Im einfachsten Fall eines reinen Absorbers oder Spaltstoffes  $i$  ist im Multigruppenbild

$$\Delta k_i \sim \sum_k \Phi_k \Phi_k^+ \sigma_{ik}$$

bei einem Streumaterial wird

$$\Delta k \sim \sum_{k,j} \Phi_k \sigma_{i,k \rightarrow j} (\Phi_j^+ - \Phi_k^+)$$

Materialwerte von Streuern hängen also stark vom energetischen Verlauf der Adjungierten ab, der durch die unmittelbare Umgebung der Meßprobe beeinflusst werden kann. Erst relativ spät hat man erkannt, wie wichtig die Probengröße und die Feinstruktur der Umgebung der Probe für die Interpretation der Materialwertmessungen sind. Wir haben in Karlsruhe einerseits Rechenprogramme entwickelt, die mit Hilfe einer Stoßwahrscheinlichkeitsbehandlung diese Effekte berücksichtigen, andererseits bemühen wir uns, geeignete, quasihomogene oder zumindest nicht durch Einbauten gestörte Umgebungen zu schaffen und die erforderliche Probengröße durch Verbesserung der Meßgenauigkeit bei der Reaktivitätsmessung zu verringern [45]. Gute und saubere Materialwertmessungen mit Spalt- und Brutstoffen sowie Absorbieren sind einmal in Ergänzung zu den Ratenmessungen wertvoll, Materialwerte von Streuern geben Hinweise auf Fehler im Adjungiertenverlauf.

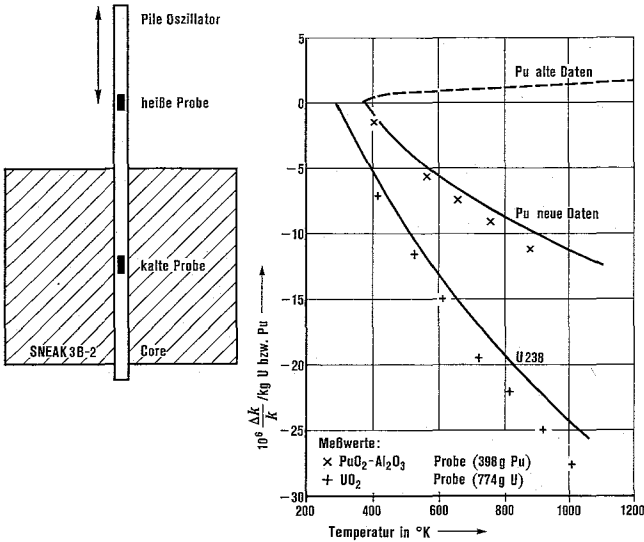


Fig. 5: Dopplermessungen in SNEAK 3B-2  
 Fig. 5: Doppler experiments in SNEAK 3B-2

Die Methoden zur Messung des Dopplerkoeffizienten von Spalt- und Brutstoffen und zur Interpretation der Ergebnisse wurden in den vergangenen Jahren vor allem in Argonne [27] und Karlsruhe [28] vervollkommen. Die Meßtechnik zur Dopplermessung besteht darin, eine kleine Materialprobe im Reaktor aufzuheizen und die resultierende Reaktivitätsänderung aus dem Flußverlauf zu bestimmen. Zur Verbesserung der Meßgenauigkeit tauscht man dabei periodisch 2 Proben – eine heiße und eine kalte – mit einem Pile-Oszillator aus. Eine andere, etwas aufwendigere Methode zur Dopplermessung besteht darin, eine größere Corezone mit einem Gas ( $CO_2$ ) periodisch aufzuheizen und abzukühlen. Dieses Verfahren wurde erstmals in ZEBRA angewendet [30] und in abgeänderter Weise auch für SNEAK entwickelt [31]. Während die Dopplermessungen ursprünglich nur dazu dienten, Information für den Dopplereffekt als sicherheitstechnisch wichtige Größe von Leistungsreaktoren zu liefern, haben sie in jüngster Zeit auch eine Anwendung zur Klärung von Kerndatenunsicherheiten gefunden. So konnten wir im vergangenen Jahr durch ein von E. A. Fischer entworfenes, spezielles Dopplerexperiment mit  $PuO_2$ -Proben eine rasche Aussage über den wahrscheinlich richtigen  $\alpha$ -Wert von  $Pu239$  gewinnen, indem die Meßwerte unter Zugrundelegung der unterschiedlichen Pu-Daten nachgerechnet wurden (s. Fig. 5) [29].

Die Kenntnis des Neutronenspektrums ist einerseits wichtig, um die Resultate der Ratenmessungen genauer auf Querschnittsfehler interpretieren zu können, andererseits gibt das Spektrum auch direkte Hinweise auf die Streuquerschnitte und spiegelt die Resonanzstruktur wider. Bisher konnten aus Spektrumsmessungen jedoch noch keine wesentlichen Schlüsse gezogen werden, weil nur Teilbereiche des Energieintervalls der genauen Messung zugänglich waren (s. Fig. 6, [9]). Rückstoßprotonenspektrometer, d. h. wasserstoff- bzw. methangefüllte Zähler, überstreichen nach den jüngsten Verbesserungen den Bereich von 1 keV bis über 1 MeV [32], unterhalb 10 keV kann man Resonanzanalysen verwenden, die als Sandwich aktiviert werden, um die Resonanz- und Nichtresonanzaktivierung trennen zu können [33]. An einigen Nullenergieanlagen steht auch ein Beschleuniger zur Verfügung, mit

dem der unterkritische Reaktor gepulst werden kann. In diesem Fall kann das Neutronenspektrum vom eV-Bereich bis herauf zu etwa 0,5 MeV mit der Flugzeitmethode kontinuierlich gemessen werden. Am wenigsten Informationen liegen bei hohen Energien vor. Über die  ${}^6Li(n, \alpha)t$ -Reaktion gelingt es, mit  ${}^6Li$ -Halbleiterspektrometern im Bereich 1 bis 6 MeV zu messen, die Genauigkeit hängt jedoch u. a. am Querschnittsverlauf für die  ${}^6Li$ -Reaktion [34].

Während man das Neutronenspektrum mit hoher Energieauflösung messen kann, gelingt dies beim adjungierten Spektrum noch nicht. Dies ist jedoch auch nicht unbedingt erforderlich, da die Adjungierte oder Neutroneneinflußfunktion nur schwach von der Energie abhängt. Wir haben in Karlsruhe sehr genaue Messungen mit einem ganzen Satz von Neutronenquellen unterschiedlicher Emissionsspektren durchgeführt und waren dadurch erstmals in der Lage, durch einen Faltungsprozeß das adjungierte Spektrum zu gewinnen [11]. Als Quellen stehen u. a. die Spontanspaltquelle Cf 252, einige  $(\alpha, n)$ -Quellen wie Am-Be, Am-Li, Am-B und die Photoneutronenquelle Sb-Be zur Verfügung. Spalt- und  $(\alpha, n)$ -Quellen haben ein breites Spektrum, während die Sb-Be-Quelle ein Linienspektrum bei 24 keV besitzt. Gemessen wird der Wert der Quellneutronen aus der Änderung des Flußverlaufes beim Einbringen der Quelle in den Reaktor.

Die Zerfallskonstante  $\beta/l$  der prompten Neutronen kann aus gepulsten Experimenten [35] oder aus dem Neutronenrauschen bestimmt werden. Hierfür wurden gerade in Karlsruhe von D. Stegmann und seinen Mitarbeitern eine Reihe neuer Methoden entwickelt bzw. für schnelle Reaktoren erschlossen [36; 37]. Bei homogenen Anordnungen geben alle Meßverfahren übereinstimmende Resultate. Der  $\beta/l$ -Wert kann hier u. a. auch als Spektralindex für den unteren Energiebereich dienen. Bei Zonenbeladungen, insbesondere bei Zonen mit stark unterschiedlichem Neutronenspektrum, ist die Interpretation der Meßwerte dagegen noch nicht eindeutig gelungen [11].

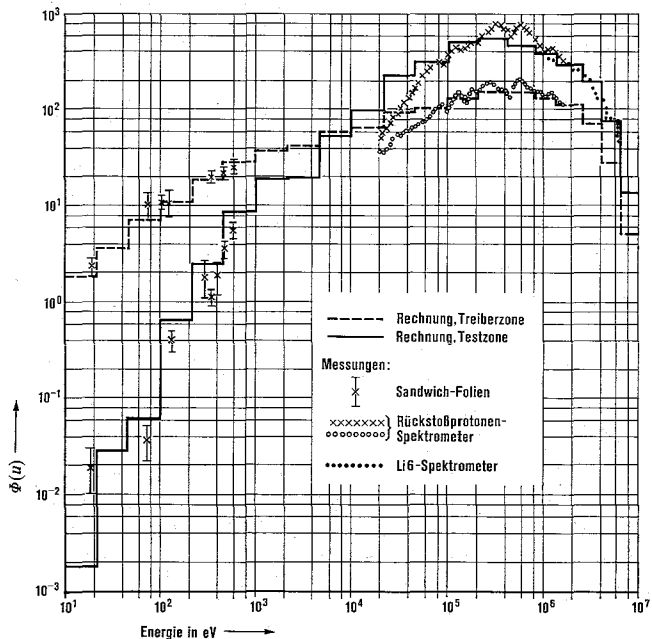


Fig. 6: Neutronenspektrum in SNEAK 4A

Fig. 6: Comparison of experimental and calculated neutron spectra in SNEAK 4A.

5. Anwendung der Ergebnisse integraler Experimente zur Verbesserung von Datensätzen

Hat man Meßdaten von einer Reihe kritischer Anordnungen zur Verfügung, so kann man durch systematischen Vergleich dieser Werte mit Rechnungen Schlüsse auf Kerndatenfehler ziehen. Insbesondere gelingt dies, wenn die kritischen Anordnungen gut geplant waren. So ist z. B. eine Serie von Anordnungen, die U 235, U 238 und Graphit in unterschiedlichem Verhältnis enthalten, geeignet zur Beurteilung der Urdaten in verschiedenen Energiebereichen. Um Information über Stahl bzw. Natrium zu erhalten, kann man in dieser Serie U-238 ganz oder teilweise durch Stahl bzw. Graphit ganz oder teilweise durch Natrium ersetzen. Eine entsprechende Serie braucht man dann noch für Pu als Spaltstoff. Sehr weiche Spektren kann man durch Moderation mit Polyäthylenfolien erzeugen.

Für den Vergleich stehen prinzipiell zwei Wege offen:

Der erste Weg, den wir in Karlsruhe bisher gegangen sind [38], besteht darin, die Meßwerte mit den besten verfügbaren Rechenmethoden und Datensätzen nachzurechnen. Durch kritische Sichtung der Ergebnisse, vor allem für  $k_{eff}$ , Ratenverhältnisse, Spektren, Materialwerte und Dopplereffekt, erhält man zunächst qualitative Hinweise. Z. B. ergab sich aus den Messungen an SNEAK-3, daß der Einfangquerschnitt von U 238 in den bei uns verwendeten Datensätzen im keV-Bereich überschätzt wird, daß der Spaltquerschnitt von Pu 239 unterschätzt wird und daß die Pu-240-Daten stark unterreaktiv sind, d. h., daß hier das Verhältnis von Einfang zu Spaltung überschätzt wird. Diese Hinweise geben Anlaß, die den Multigruppensätzen zugrundeliegenden mikroskopischen Daten noch einmal gründlich zu überprüfen und evtl. neuere Messungen zur Beurteilung heranzuziehen. In den vorliegenden Fällen waren die integralen Ergebnisse tatsächlich z. T. im Einklang mit neuen differentiellen Messungen. Die Datensätze werden dann unter Berücksichtigung der neuen differentiellen Daten modifiziert und diese modifizierten Sätze erneut an den integralen Daten überprüft, wobei sich meist eine wesentlich bessere Übereinstimmung ergibt. Bleiben Fragen offen, so werden neue integrale oder differentielle Messungen zu ihrer Klärung angeregt. Diese Datenauswertung und Verbesserung wird bisher vornehmlich von den nationalen Gruppen durchgeführt. So hat für die USA das Brookhaven National Cross Section Center einen Satz ausgewerteter Best-Daten, den sog. ENDF/B File, zusammengestellt, der unter Mitwirkung vieler Gruppen laufend überprüft und modifiziert wird, in Karlsruhe wird ebenso die Kerndatensammlung KEDAK laufend verbessert.

In diesem Rahmen wurden in den USA jetzt 10 kritische Anordnungen ausgewählt, die für die Prüfung der Kerndatensätze geeignet sind. Diese Serie umfaßt Cores mit Uran und Plutonium als Spaltstoff, mit sehr harten und stärker moderierten Spektren. Erste Ergebnisse liegen für 3 Anordnungen vor [39]: die ZPR-3 Anordnungen 11 und 48 sowie Godiva. ZPR-3/11 ist ein relativ kleines Uran-Core, das besonders gut ausgemessen wurde: Es wurde im ZPR-3 nochmals als Anordnung 22 aufgebaut und dann als 1. Anordnung sowohl des ZPR-6 als auch von ZEBRA wiederholt. Anordnung 48 ist das größte saubere Pu-Core, dessen Daten verfügbar sind, und Godiva ist eine reine unreflektierte Kugel aus hoch angereichertem Uran-Metall mit einem sehr harten Neutronenspektrum. Die unmittelbar aus den Best-Werten ENDF/B berechneten Daten (Tab.1) stimmten sehr schlecht. Deshalb wurden vom ANL 3 weitere in sich konsistente Datensätze erstellt, die sich im Verlauf der Spalt- und Einfangquerschnitte

von U 235, U 238, Pu 239 unterscheiden. Diese Sätze basieren auf Messungen mit verschiedenen experimentellen Methoden und Standards. Ein weiterer Satz, Set 4, stellt den gewichteten Mittelwert der Sätze 1 bis 3 dar. Keiner dieser 4 Sätze lieferte jedoch befriedigende Übereinstimmung für alle 3 Anordnungen. Deshalb wurden noch 2 weitere Sätze erstellt, »Set 4 Adjusted« und »Set 4 Adjusted B«. In Set 4 Adjusted wurden die Einfang- und Spaltquerschnitte von Pu 239 soweit angehoben, wie es die Fehlergrenze der Messungen zuläßt, und der Einfangquerschnitt auf die untere Fehlergrenze reduziert. Diese Anpassung ergibt sehr gute Übereinstimmung für die  $k_{eff}$ -Werte und die Ratenverhältnisse außer für Anordnung 11. Bei Set 4 Adjusted B wurden zusätzlich die Einfang- und Spaltquerschnitte von U 235 und der Spaltquerschnitt von U 238 an die obere Fehlergrenze angehoben, und man sieht, daß jetzt auch für Anordnung 11 der  $k_{eff}$ -Wert besser stimmt. Diese Sätze werden jetzt noch an den anderen ausgewählten Anordnungen getestet.

Dieses Vorgehen stellt schon einen Übergang zum zweiten Weg dar, der darin besteht, die Datensätze, d. h. vor allem die Multigruppensätze, direkt an integrale Meßdaten anzupassen. Hierfür wurden in den letzten Jahren mehrere Rechenprogramme geschrieben [40 bis 43], die vor allem in England und Frankreich angewendet werden. In diesen Rechenprogrammen werden die Multigruppensätze unter Anwendung unterschiedlicher, physikalisch möglichst plausibler Randbedingungen so angepaßt, daß die Summe der quadratischen Abweichungen beim Vergleich zwischen Meßwerten und Rechenwerten für eine bestimmte Größe einen Minimalwert annimmt. Diese Verfahren haben sich in der Praxis als recht erfolgreich erwiesen, obwohl die zur Anpassung durchgeführten Querschnittsänderungen nicht eindeutig sind, weil prinzipiell auch ein physikalisch falscher Datensatz eine Reihe von integralen Ergebnissen gut wiedergeben kann. Die Gefahr, mit diesem Verfahren in die Irre geleitet zu werden,

Tab. 1: Vergleich von Rechnung und Experiment für die Anordnungen ZPR 3/11, ZPR 3/48 und Godiva

G, f und p bedeuten, die Übereinstimmung ist »good«, »fair« und »poor«. Die Zahlen geben die Abweichung (Rechnung-Experiment)/Experiment in Prozent an. Die Ratenverhältnisse beziehen sich jeweils auf das Zentrum der Anordnung [39].

Table 1: Summary of agreement between calculation and experiment. G, f, and p correspond to good, fair, and poor agreement. Numbers are percent difference (Calc-exp)/exp. Reaction ratios are for center of assembly.

	ZPR-3 Assembly 11		ZPR-3 Assembly 48				GODIVA
Wirkungsquerschnitt	239f 235f		239f 235f	238c* 239f	238c 235f		
Set	k	(1%)**	k	(1%)**	(6%)**	(5%)*	k
ENDF/B	p	p	p	f	f	G	p (G)***
	-2,4	-7	-1,3	-5	+8	+3	+2,1 (+0,8)
Set 1	p	f	G	f	f	f	
	-3,4	-5	-0,1	-3	+10	+6	
Set 2	p	p	p	f	p	f	
	-6,2	-7	-4,2	-5	+12	+6	
Set 3	p	p	p	p	f	G	
	-5,9	-7	-4,5	-6	+10	+4	
Set 4	p	p	p	p	f	G	
	-4,7	-7	-2,7	-5	+10	+5	p
Set 4 Adjusted	p	G	G	G	G	G	
	-3,4	-1	±0,5	-1	+2	+1	
Set 4 Adjusted B	G	f	G	f	G	G	
	-1,1	-5	+0,8	-3	+2	-1	p
							+0,1
ENDF/B except U 238-c Set 4	G	p	G	f	G	G	
	-0,8	-7	-0,3	-5	+5	0	

\* Experimenteller Wert aus dem Verhältnis dieser beiden Reaktionen zur U 235-Spaltung

\*\* Experimentelle Genauigkeit

\*\*\* ENDF/B Wirkungsquerschnittswerte für U 235 und U 238 über 2,2 MeV geändert in diejenigen von W.G.Davey, Nucl.Sci.Eng. 32, 33 (1968)



wird natürlich desto geringer, je genauer die integralen Daten sind und je mehr Ergebnisse von unterschiedlichen Anordnungen in die Auswertung einbezogen werden.

Es erscheint sinnvoll, beide Wege zu kombinieren, d. h., man sollte sich dieser Programme bedienen, um die Materialfülle zu einer überschaubaren Menge von Hinweisen für Datenabweichungen zu reduzieren, jedoch eine Anpassung dann erst nach einer Überprüfung der fraglichen differentiellen Daten vornehmen. Auf diese Weise kann eine Fehladjustierung weitgehend ausgeschlossen werden.

Es ist zu erwarten, daß die heute noch bestehenden Datenunsicherheiten durch systematische, weltweite Bemühungen auf diesem Gebiet in den nächsten Jahren wesentlich reduziert werden können.

(Received on 28. 5. 1969)

#### Literatur

- [1] Schomberg, M. G., M. G. Sowerby, F. W. Evans: Fast reactor physics, IAEA. Vol. I, 289 (1968)
- [2] Cerutti, B. C.: Nucl. Sci. and Eng. I, 126-134 (1956)
- [3] Thalgott, F. W., A. R. Baker, S. G. Carpenter: Critical assemblies. ANS 100, 225-243 (1965)
- [4] Engelmann, P., et al.: Fast reactor physics, IAEA. Vol. II, 35 (1968)
- [5] Engelmann, P., et al.: KFK-471 (1966)
- [6] LMFBR program plan. WASH-1109, 9. Physics 125 (1968)
- [7] McVean, R. L., et al.: ANL-7320, 560-568 (1966)
- [8] Reynolds, A. B., S. L. Stewart: ANL-7320, 569-585 (1966)
- [9] Eitner, D., P. Engelmann, R. Ruppert: Physics considerations in the design of and mock up experiments in SNEAK for KNK-II. Proceedings of the BNES Conf., London, June 1969, p. 201-212; auch KFK 1036 (1969)
- [10] Stegemann, D., et al.: Fast reactor physics, IAEA. Vol. II, 79 (1968)
- [11] Schröder, R., et al.: KFK-847 (1968)
- [12] Edelmann, M., E. A. Fischer, F. Helm, R. Schröder: Physics measurements in the SNEAK-facility on steam-cooled fast reactor systems with uranium and plutonium fuel. Proceedings of the BNES Conf., London, June 1969, p. 113-135
- [13] Davey, W. G.: Nucl. Sci. and Eng. 19, 259-273 (1964)
- [14] Yiftah, S., D. Okrent, P. A. Moldauer: Fast reactor cross sections. New York: Pergamon Press 1960
- [15] Bromfield, A. M., et al.: ANL-7320, 205 (1966)
- [16] Loewenstein, W. B., I. F. Zartman: Fast reactor physics, IAEA. Vol. I, 49 (1968)
- [17] Davey, W. G.: ANL-7320, 57 (1966)
- [18] Pitterle, T. A., M. Yamamoto: APDA-201 (1967)
- [19] Greebler, P., et al.: GEAP-5271 (1967)
- [20] Arnold, M. J., et al: Fast reactor physics, IAEA. Vol. II, 429 (1968)
- [21] Reactor development program progress report. ANL-7518, 23 (Nov. 1968)
- [22] Helm, F.: KFK-975 (1969)
- [23] Böhme, R., H. Seufert: KFK-811 (1968)
- [24] Kirn, F. S.: Neutron detection, dosimetry and standardizations, IAEA. Vol. 2, 497 (1962)
- [25] Gold, R., R. J. Armani, J. H. Roberts: Nucl. Sci. and Eng. 34, 13-32 (1968)
- [26] Bayer, A., H. Seufert, D. Stegemann: ANL-7320, 663 (1966)
- [27] Till, C. E., et al.: ANL-7320, 319 (1966)
- [28] Fischer, E. A.: ANL-7320, 350 (1966)
- [29] Fischer, E. A.: KFK-844 (1969)
- [30] Baker, A. R., R. C. Wheeler: ANL-7120, 553 (1965)
- [31] Dänert, U.: Reaktortagung 1969 des Deutschen Atomforums e. V., Frankfurt (Main), 15. bis 18. 4. 1969
- [32] Larson, J. M., J. E. Powell: ANS-Transactions 11, No. 2, 635 (Nov. 1968)
- [33] Connolly, T. J., F. de Kruijf, J. J. Schmidt: KFK-718 (1968)
- [34] Bluhm, H.: Neutronenspektroskopie mit einem Li<sup>6</sup>F-Halbleiterspektrometer. Diplomarbeit, TH Karlsruhe 1967 (unveröffentlicht)
- [35] Garelis, E., J. L. Russel: Nucl. Sci. and Eng. 16, 263 (1963)
- [36] Edelmann, M.: Externer Bericht Nr. INR-4/68-15. Kernforschungszentrum Karlsruhe (1967)
- [37] Seifritz, W., D. Stegemann: Nukleonik 9, 169-179 (1967)
- [38] Küsters, H., et al.: KFK-793 (1968)
- [39] Reactor development program process report. ANL-7548, 4-8 (Jan. 1969)
- [40] Baker, A. R.: ANL-7320, 116 (1966)
- [41] Hemment, P., E. D. Pendelbury: ANL-7320, 88 (1966)
- [42] Gandini, A., et al.: ANL-7320, 107 (1966)
- [43] Barré, J. Y., J. Ravier: Fast reactor physics, IAEA. Vol. I, 205 (1968)
- [44] Böhnelt, K., et al.: A Fast Reactor Lattice Experiment for Investigation of  $k_{\infty}$  and Reaction Rate Ratios in SNEAK Assembly 5, wird veröffentlicht als KFK-Bericht
- [45] Oosterkamp, W. J.: KFK 1036 (1969)

# Literature-Information

## International Symposium on Luminescence The Physics and Chemistry of Scintillators

Editors: Professor Dr. N. Riehl, Physics-Department, Munich, Professor Dr. H. Kallmann, Radiation and Solid State Laboratory-Department of Physics, New York University, New York.

XVI, 472 pages containing 334 illustrations and 64 tables. Size: 15 x 22.8 cm, cloth-bound; Price: DM 68.—  
**The book comprises a collection of reviews and short lectures (together with the discussions) in three languages, 23 in German, 28 in English and 15 in French.**

**Readers:** Scientists, research workers, engineers, nuclear physicists, solid-state physicists, chemists, biologists; research departments of universities, colleges and technical schools, and all other research centres for physics, chemistry and biology including those in industry; techno-scientific libraries.

## Incidents and Radiation Accidents in Nuclear Plants (20 Years of World-Wide Experience)

### Vorkommnisse und Strahlenunfälle in kerntechnischen Anlagen — Aus 20 Jahren internationaler Erfahrung

By Dr.-Ing. Erich H. Schulz †, Berlin/München

XII, 416 pages, 68 illustrations, 38 general tables, and 12 large tables summarising some 1,000 individual reports; cloth bound; Price: DM 128.—. Language: German.

**Readers:** Politicians, scientists, physicists, chemists, technologists, doctors and medical research workers in reactor and research centres, in industrial development departments, institutes and laboratories; ministries and public authorities including the railways, public transport, post-office and police; technical associations in industry; techno-scientific institutes and libraries; teachers and students of natural science and technology; libraries of universities, colleges and technical schools; insurance companies, officials for material testing, technical and trade supervisory bodies; people responsible for transport of fissionable material and radioisotopes by rail, road, ship and air.

## Spark Chambers

By O. C. Allkofer, Professor of Physics, University of Kiel with the cooperation of W. D. Dau and C. Grupen  
XII, 247 pages, 215 illustrations and 25 tables; size 15 x 22,8 cm; cloth-bound; Price: DM 60.—.  
**Language: English.**

**Readers:** Scientists engaged on research in the fields of accelerators for elementary particles, cosmic radiation, space research and nuclear medicine; teachers and students of physics at Universities; libraries of universities and of research institutes.

## Tabelle spezifischer Gammastrahlenkonstanten

### Table of Specific Gamma Ray Constants

### Tableau des constantes spécifiques des rayonnements gamma

By Dr. Dieter Nachtigall, Euratom, Geel/Belgien

unter Mitarbeit von R. Barthelemy, D. Gelly, H. Meloni, H. van de Beek und W. van Suetendael  
VIII, 98 Seiten; Format 11 x 17,5 cm; kartoniert-cellophaniert; Price: DM 9.80. **Language: German, English, French.**

## The Origin of Cosmic Radiation and the Expansion of the Universe

By Professor Dr. Erich Bagge, Kiel, Director of the Institute for Pure and Applied Nuclear Physics of the Christian Albrechts University, Kiel.

VIII, 64 pages, 8 figures, format 11 x 17.5 cm, bound in boards-cellophaned; Price: DM 9.80; **Language: English.**

## Water Desalting and Nuclear Energy

By Michel d'Orival, Paris

192 pages, 42 illustrations and photographs, and 32 tables, format 11 x 17,5 cm, bound in boards-cellophaned; Price: 14.80. **Language: English.**



**Verlag Karl Thiernig KG**

**8 München 90 - Postfach 900740**