

**KERNFORSCHUNGSZENTRUM
KARLSRUHE**

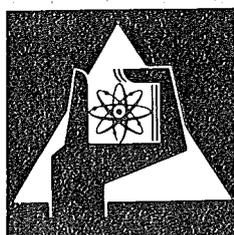
Februar 1974

KFK 1917

Institut für Neutronenphysik und Reaktortechnik
Projekt Actiniden

Berechnung der Absorptionsraten von ^{237}Np
und ^{241}Am bei Reaktorbestrahlungen

J. Klunker



**GESELLSCHAFT
FÜR
KERNFORSCHUNG M.B.H.**

KARLSRUHE

Als Manuskript vervielfältigt

Für diesen Bericht behalten wir uns alle Rechte vor

GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M. B. H.
KARLSRUHE

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

KFK 1917

PACT 46

Institut für Neutronenphysik und Reaktortechnik
Projekt Actiniden

Berechnung der Absorptionsraten von ^{237}Np
und ^{241}Am bei Reaktorbestrahlungen

J. Klunker

Gesellschaft für Kernforschung mbH., Karlsruhe

Zusammenfassung

Zur Berechnung der ^{238}Pu -Ausbeute bei Bestrahlungen von ^{237}Np oder ^{241}Am in Reaktoren sind das Neutronenflußspektrum und die Selbstabschirmung zu berücksichtigen. Es werden hier Formeln, Tabellen und Kurven angegeben, die für die Bestrahlung von Stäben und 3-Stabbündeln eine sehr einfache Ermittlung der Absorptionsraten erlauben, sofern das Verhältnis $\frac{\phi_{\text{epi}}}{\phi_{\text{th}}}$ des Reaktors bekannt ist. Den Daten liegen numerische Berechnungen effektiver Resonanzintegrale von ^{237}Np und ^{241}Am zugrunde, wobei der Einfluß der unteren Energiegrenze detailliert untersucht wird. Die berechneten Resonanzintegrale stimmen befriedigend mit Messungen überein.

Calculation of ^{237}Np and ^{241}Am Absorption Rates in Reactor Irradiations

Abstract

To calculate the yield of ^{238}Pu from ^{237}Np or ^{241}Am reactor irradiations neutron spectrum and self shielding effects have to be taken into account. In this report equations, tables and diagrams are given which allow to determine easily the absorption rates of rods and 3 rod bundles provided that the ratio $\frac{\phi_{\text{epi}}}{\phi_{\text{th}}}$ of a reactor is known. The results are based on numerical calculations of the effective resonance integrals of ^{237}Np and ^{241}Am with special emphasis on the lower cut off energy. The calculated resonance integrals agree satisfactory with measurements.

Inhaltsverzeichnis

	Seite
1. Einleitung	1
2. Berechnung der Selbstabsorption in Absorberstäben	3
2.1. Thermischer Energiebereich	3
2.2. Epithermischer Energiebereich	5
3. Absorption in Np-237	11
3.1. Absorption im thermischen Energiebereich	11
3.2. Das Resonanzintegral bei "unendlicher" Verdünnung	11
3.3. Effektive Resonanzintegrale für Np-237-Stäbe	13
4. Absorption in Am-241	15
4.1. Absorption im thermischen Energiebereich	15
4.2. Das Resonanzintegral bei "unendlicher" Verdünnung	15
4.3. Effektive Resonanzintegrale für Am-241-Stäbe	16
5. Zusammenfassung für den epithermischen Bereich	19
Literaturverzeichnis	20

1. Einleitung

Eine gute Vorhersage der Ausbeuten an ^{238}Pu bei Bestrahlungen von ^{237}Np und ^{241}Am erhält man nur, wenn man die richtigen Mittelwerte für Neutronenfluß und Wirkungsquerschnitt verwendet. Dazu werden im folgenden Formeln, Daten und Kurven angegeben, die es erlauben, die Absorptionsraten zu bestimmen, wenn vom Reaktorbetreiber Angaben über den ungestörten Neutronenfluß vorliegen.

Bei Bestrahlungen in thermischen Reaktoren kann man gut zwei Neutronenanteile unterscheiden: Die thermischen Neutronen, welche näherungsweise eine Maxwellverteilung besitzen mit einer Temperatur, die etwas über der des Moderators liegt, und die epithermischen Neutronen, die näherungsweise ein $\frac{1}{E}$ -Spektrum besitzen. Für die Energieabhängigkeit des Neutronenflusses $\phi(E)$ gilt dann:

$$\phi(E) dE = \phi_{th} \frac{E}{kT} e^{-\frac{E}{kT}} \frac{dE}{kT} \quad E \leq E_g$$

(1)

$$\phi(E) dE = \phi_{epi} \frac{dE}{E} \quad E \geq E_g$$

$\frac{\phi_{epi}}{\phi_{th}}$ ist für die verschiedenen Reaktortypen unterschiedlich und im heterogenen Reaktor schwach ortsabhängig. E_g ist die Energie, bei der thermischer und epithermischer Fluß gleich groß werden. Es ist für praktische Zwecke meist eine genügend gute Näherung anzunehmen, daß dort der eine Spektrumstyp abrupt in den anderen übergeht.

Ist N die Zahl der Absorberatome pro cm^3 , V das Absorbervolumen und $\sigma_a(E)$ der Wirkungsquerschnitt für die betrachtete Einfangreaktion, so ist die Reaktionsrate:

$$(2) \quad R = NV \int \sigma_a(E) \phi(E) dE$$

Durch Einbringen des Absorbers wird der Neutronenfluß niedriger als er vorher war. Dies gilt besonders im Innern der Probe. Man muß in Gl.(2) den tatsächlichen Fluß einsetzen; aus praktischen Gründen verwendet man aber den ungestörten Fluß und berücksichtigt die Flußdepression durch Verwendung eines verringerten Wirkungsquerschnitts bzw. durch Multiplikation mit einem Faktor $f < 1$, der Selbstabschirmfaktor genannt wird. f ist abhängig vom Wirkungsquerschnitt σ_a sowie von Atomzahl und Dicke des Absorbers. Da σ_a mit der Neutronenenergie variiert, gilt dies auch für f . Im thermischen Energiebereich ist die Berechnung eines mittleren Selbstabschirmfaktors einfach, im epithermischen Gebiet, wo der Wirkungsquerschnitt eine Resonanzstruktur aufweist, ist die Berechnung schwierig, sie muß entweder detailliert für jede Resonanz oder punktweise mit sehr schmalen Energiegruppen durchgeführt werden.

2. Berechnung der Selbstabsorption in Absorberstäben

2.1. Thermischer Energiebereich

SCHÜCKLER hat kürzlich die Neutronenflußdepression in Absorberstäben im thermischen Energiebereich untersucht /1/. Dabei zeigte es sich, daß in sehr guter Näherung die mittlere Flußdepression gleich der Flußdepression beim mittleren Querschnitt ist: $\bar{f}(\Sigma_a R) = f(\bar{\Sigma}_a R)$. Daher braucht man im thermischen Energiebereich nur

(1) den über das Spektrum gemittelten Querschnitt

$$\bar{\sigma}_a \text{ bzw. } N\bar{\sigma}_a = \bar{\Sigma}_a$$

(2) f als Funktion von $\Sigma_a R$

zu kennen. Die Berechnung des mittleren Querschnitts erfolgt durch Integration von σ_a über eine Maxwellverteilung.

Wenn $\sigma_a \sim \frac{1}{v}$, läßt sich die Integration analytisch ausführen und man erhält

$$(3) \quad \bar{\sigma} = \frac{\sqrt{\kappa}}{2} \sigma_0 \sqrt{\frac{T_0}{T}}$$

Dabei ist σ_0 der Querschnitt bei $E = kT_0$. $T_0 = 293 \text{ }^\circ\text{K}$ ($T =$ Neutronentemperatur).

Bei geringen Abweichungen vom $\frac{1}{v}$ -Verlauf wird

$$(4) \quad \bar{\sigma} = \frac{\sqrt{\kappa}}{2} g \sigma_0 \sqrt{\frac{T_0}{T}}$$

wobei $g(T)$, der sogenannte Westcott-Faktor, aus numerischen Rechnungen für verschiedene Isotope tabelliert vorliegt.

Die effektive Neutronentemperatur T erhält man z.B. nach der Formel von COVEYOU für einen schweren Gas-Moderator /2, S.205/

$$T = T_0 \left(1 + 0,91 A \frac{\Sigma_a(kT_0)}{\Sigma_s} \right)$$

Mit $f = \frac{2}{A}$ und $\frac{\phi_{epi}}{\phi_{th}} = \frac{\Sigma_a}{\xi \Sigma_s}$ ist

$$(5) \quad \frac{T}{T_0} = 1 + 1,82 \frac{\phi_{epi}}{\phi_{th}}$$

Nach Messungen von BURKART und REICHARDT ist in einem Wasser-Moderator /2,S.335/

$$(6) \quad \frac{T}{T_0} = 1 + 1,33 \frac{\phi_{epi}}{\phi_{th}}$$

Damit wird

$$(7) \quad \frac{\bar{\sigma}}{\sigma_0} = \frac{\sqrt{\pi}}{2} \frac{1}{\sqrt{1 + 1,33 \frac{\phi_{epi}}{\phi_{th}}}}$$

In Abb.1 ist der Zusammenhang zwischen $\frac{\bar{\sigma}}{\sigma_0}$ und $\frac{\phi_{epi}}{\phi_{th}}$ dargestellt. Für Leichtwasserreaktoren liegt $\frac{\phi_{epi}}{\phi_{th}}$ in der Gegend von 0,03 bis 0,16; bei Forschungsreaktoren treten Extremwerte für $\frac{\phi_{epi}}{\phi_{th}}$ von 0,016 (FR2) und 0,2 (BR2) auf.

Bei Zylindergeometrie und einem reinen Absorber, bei dem keine Streuung auftritt, ist f nur eine Funktion des Produktes $\Sigma_a \cdot R$ (R =Zylinderradius) und kann analytisch berechnet werden /2,3/. Abb.2 zeigt den Zusammenhang. Die Formel gilt auch noch für den Fall mit Streuung, sofern $\Sigma_a > \Sigma_s$. Die Berechnung der thermischen Absorptionsrate ergibt sich damit wie folgt:

Mit dem vom Reaktor her bekannten Verhältnis $\frac{\phi_{epi}}{\phi_{th}}$ bestimmt man aus Gl.(7) oder Abb.1 $\bar{\sigma}$. Ist $\frac{\phi_{epi}}{\phi_{th}}$ nicht bekannt, so kann man für einen Leichtwasser-Reaktor mit $\frac{\phi_{epi}}{\phi_{th}} = 0,06$ rechnen. Damit berechnet man $\Sigma_a R = N \bar{\sigma} R$ und sucht in Abb.2 das zugehörige f . Die Zahl der Absorptionsprozesse je cm^3 und sec ergibt sich dann zu

$$(8) \quad R_{th} = N \bar{\sigma} \cdot f \phi_{th}$$

Bei Isotopengemischen ist darauf zu achten, daß zur Selbstabschirmung alle Isotope beitragen, d.h.

$$\Sigma_a = N_1 \sigma_a^{(1)} + N_2 \sigma_a^{(2)} + \dots$$

wenn N_i und $\sigma_a^{(i)}$ die Atomzahl und der Absorptionsquerschnitt des Isotops i sind (Einfang- und Spaltquerschnitt). In Gl. (8) ist jedoch für $\bar{\sigma}$ nur der Wirkungsquerschnitt des betrachteten Isotops einzusetzen.

2.2. Epithermischer Energiebereich

Nach Gl. (1) und Gl. (2) ergibt sich die epithermische Absorption je cm^3 in einem $1/E$ -Fluß zu

$$(9) \quad R_{\text{epi}} = N \phi_{\text{epi}} \int_{E_g}^{\infty} \sigma_a \frac{dE}{E}$$

Das Integral wird Resonanzintegral RI_{∞} genannt. Die Neutronenflußdepression durch den Absorber führt zu einer Verringerung der Absorption, und man erhält ein "effektives Resonanzintegral" RI_{eff} . Im Fall einer homogenen Verteilung von Moderator- und Absorberatomen ist /2,4/

$$(10) \quad RI_{\text{eff}} = \int_{E_g}^{\infty} \frac{\sigma_a(E) dE}{\left(1 + \frac{\sigma_s^{\text{Res}}(E) + \sigma_a(E)}{\sigma_p}\right) E}$$

Dabei ist $\sigma_a(E)$ der Absorptionsquerschnitt, $\sigma_s^{\text{Res}}(E)$ der reine Resonanz-Streuquerschnitt, ($\sigma_s^{\text{Res}}(E) = \sigma_s(E) - \sigma_p$) und σ_p der auf ein Absorberatom bezogene Potentialquerschnitt ($\sigma_p = \frac{\Sigma_{\text{sm}}}{N} + \sigma_{\text{pot}}$; Σ_{sm} ist der makroskopische Streuquerschnitt des Moderatormaterials, σ_{pot} der Potentialquerschnitt des Absorberkerns). Für $N \rightarrow 0$ wird $RI_{\text{eff}} = RI_{\infty}$. Mit Hilfe der Breit-Wigner-Formel zur Darstellung des Resonanzquerschnitts läßt sich das Integral berechnen in

$$(11) \quad RI_{\text{eff}} = \frac{RI_{\infty}}{\sqrt{1 + \frac{\sigma_0}{\sigma_p}}}$$

wobei $RI_{\infty} = 2\pi^2 \lambda_R^2 g \frac{\Gamma \Gamma_Y}{\Gamma E_R}$ das Resonanzintegral bei unendlicher Verdünnung und $\sigma_0 = 4\pi \lambda_R^2 g \frac{\Gamma_n}{\Gamma}$ ist.

$\lambda_R = \frac{\lambda_R}{2\pi}$ ist die reduzierte Wellenlänge eines Neutrons mit Resonanzenergie,

g ist hier der Kernspinfaktor

Γ_n die Streubreite

Γ_Y die Strahlungsbreite

Γ die totale Breite

und E_R die Energie im Maximum der Resonanz.

Bei heterogener Verteilung von Absorber- und Moderatormaterial, also z.B. für Np-Stäbe in einem D₂O-Moderator, ist /4, S.64/

$$(12) \quad RI_{\text{eff}} = \frac{RI_{\infty}}{\sqrt{1 + \frac{\sigma_0}{b\sigma_p}}}$$

mit $b = 1 + \frac{1}{\sigma_p N \bar{l}}$ \bar{l} ist dabei die mittlere Sehnenlänge des Absorbers;

es gilt

$$(13) \quad \bar{l} = \frac{4V}{S} ,$$

wenn V das Volumen und S die Oberfläche des Absorbers sind. Diese einfache Umformung vom heterogenen zum homogenen Fall durch Einführung eines "äquivalenten Streuquerschnitts" $b\sigma_p$ ist gültig für schmale Resonanzen und basiert auf der rationalen Approximation von WIGNER für die Resonanz-Entkommwahrscheinlichkeit $P_0 = \frac{1}{1 + \Sigma_t \bar{l}}$.

Für breite Resonanzen läßt sich ebenfalls eine Formel für das

Resonanzintegral angeben. Zu berücksichtigen ist noch, daß alle Resonanzen dopplerverbreitert sind (die Breit-Wigner-Form beschreibt die natürliche Linienbreite), daß mehrere Stäbe, z.B. in einem Reaktor, sich gegenseitig abschirmen und daß benachbarte Resonanzen sich durch eine Flußabsenkung abschirmen können. Bei Resonanzabsorbern mit mehr als 100 Resonanzen wird daher die genaue Berechnung des gesamten Resonanzintegrals ein recht mühsamer Prozeß.

Das Programm RABBLE /5/ bietet eine Möglichkeit, effektive Resonanzintegrale in zylindrischen und ebenen heterogenen Anordnungen zu berechnen. Wesentliche Eingabegrößen sind der mikroskopische Wirkungsquerschnitt in Resonanzparameterdarstellung, Geometriedaten, Atomzahldichten und Energiegruppeneinteilung. Das Programm berechnet Stoßdichten in einzelnen Zonen in sehr schmalen Lethargieintervallen ($\Delta u < \Gamma_\gamma$) und daraus unter anderem mittlere effektive Wirkungsquerschnitte für größere Energiebereiche.

Möglichkeiten zur Überprüfung der Ergebnisse von RABBLE sind der Vergleich der "unendlich verdünnten" Resonanzintegrale mit Meßwerten und der Vergleich der Resonanzintegrale einer einzelnen Resonanz bei verschiedenen Atomzahldichten mit Werten, die sich aus der Formel (12) ergeben. Für eine Resonanz mit den Parametern $E_0 = 36,8$ eV; $\Gamma_u = 31,1$ meV; $\Gamma_\gamma = 28,0$ meV; $g=1$ und mit Atomzahldichten, die über vier Zehnerpotenzen variieren, ergibt sich eine gute Übereinstimmung mit der Formel (siehe Abb.3). Der Vergleich der unendlich verdünnten Resonanzintegrale mit Literaturwerten ist ebenfalls zufriedenstellend (vgl. Abschn. 3 und 4).

Im folgenden werden die effektiven Resonanzintegrale in Abhängigkeit vom Produkt aus Atomzahldichte und mittlerer Sehnenlänge des Stabs angegeben. Als Parameter wird außerdem die untere Energiegrenze des Integrals variiert. Die Integration beginnt bei der Energie E_g , bei der das Maxwellspektrum in den $1/E$ -Verlauf einmündet, und wird formal bis Unendlich geführt. Für verschiedene Reaktoren ist diese

Untergrenze des epithermischen Bereiches verschieden, sie hängt wieder von $\phi_{\text{epi}}/\phi_{\text{th}}$ ab. In Abb.4 ist E_g in Einheiten von kT_0 als Funktion des Flußverhältnisses dargestellt, und zwar für den Fall, daß die Neutronentemperatur $T=T_0$ ist, sowie für den Fall, daß T ebenfalls von $\phi_{\text{epi}}/\phi_{\text{th}}$ abhängig ist.

Zur Interpolation zwischen den einzelnen, mit RABBLE gewonnenen Werten für RI_{eff} läßt sich eine Formel verwenden, die man leicht aus Gleichung (12) herleiten kann. Aus dieser Gleichung folgt nämlich

$$(14) \quad RI_{\text{eff}} = RI_{\infty} \frac{1}{\sqrt{1+K N \bar{l}}}$$

wobei

$$K = \frac{\sigma_0}{1+N\bar{l}\sigma_{\text{pot}}+\Sigma_{\text{sm}}\bar{l}}$$

nur schwach von N und \bar{l} abhängt und in erster Näherung als konstant angenommen werden kann.

Aus den numerisch berechneten Werten von RI_{∞} und RI_{eff} für verschiedene N und \bar{l} wird ein Mittelwert für K bestimmt. Man erhält damit in Gl.(14) eine Näherungsformel, aus der sich sofort für jedes $N\bar{l}$ im Interpolationsbereich das effektive Resonanzintegral ergibt. Gleichung (14) wird dabei nur auf den Energiebereich $0,2 \text{ eV} - E_M$ angewandt. E_M ist die Energie der höchsten Resonanz, deren Parameter bekannt sind. Für Energien größer als E_M werden statistische Parameter zur Berechnung des lethargieintegrierten Absorptionsquerschnitts verwendet. Dabei ist anzunehmen, daß in diesem Energiebereich die Resonanzselbstabschirmung vernachlässigbar ist. Man erhält daher einen konstanten Beitrag $RI_{\text{unaufgelöst}}$ zum gesamten effektiven Resonanzintegral, unabhängig von der Geometrie und der Anreicherung des Absorberstabs.

Die Absorptionsquerschnitte von Np-237 und Am-241 haben unterhalb $0,2 \text{ eV}$ nahezu einen $1/v$ -Verlauf. Die Lethargieintegrale

$RI_{1/v}$ in diesem Energiebereich sind daher als Funktion der unteren Grenzenergie E_g analytisch darstellbar:

$$\begin{aligned}
 RI_{1/v} &= \int_{E_g}^{0,2 \text{ eV}} \sigma_{th} \sqrt{\frac{E_{th}}{E}} \frac{dE}{E} = \\
 (15) \quad &= 2\sigma_{th} \left(\sqrt{\frac{E_{th}}{E_g}} - \sqrt{\frac{E_{th}}{0,2}} \right) \\
 &= 2\sigma_{th} \left(\sqrt{\frac{E_{th}}{E_g}} - 0,354 \right)
 \end{aligned}$$

Durch Vergleich der analytisch und der für alle Anreicherungen und Stabdurchmesser numerisch berechneten Werte der Lethargieintegrale im Energiebereich von 0,1 eV bis 0,2 eV ergab sich, daß die Abweichungen vom $1/v$ -Verlauf zwar erheblich sind, durch die Resonanzselbstabschirmung (bei Np-237 bis 8%, bei Am-241 bis 24%) jedoch zum Teil kompensiert werden, so daß die durch die Verwendung von Gl.(15) entstehenden Fehler, bezogen auf das gesamte effektive Resonanzintegral, gering sind (siehe Abschnitt 3.3 und 4.3).

Die epithermische Reaktionsrate wird somit

$$(16) \quad R_{epi} = N \phi_{epi} \left(RI_{1/v} + \frac{RI_{\infty}}{\sqrt{1+K N \bar{I}}} + RI_{\text{unaufgelöst}} \right)$$

Sie läßt sich nicht wie im Thermischen aus tabellierten Wirkungsquerschnitten und einer einzigen Funktion f bestimmen, da die verschiedenen Wirkungsquerschnittsintegrale und der Parameter K für das jeweilige Isotop numerisch berechnet werden müssen.

Dies geschieht im folgenden für Np-237- und Am-241-Oxid in 10- bis 30-prozentiger Anreicherung in Aluminiumoxidstäben mit Durchmessern bis zu 2,8 cm. Da bei den Bestrahlungen im Reaktor jeweils drei Stäbe zu einem Bündel zusammengefaßt werden, treten zusätzlich zur Selbstabsorption in einem Stab

auch gegenseitige Abschirmungseffekte der eng benachbarten Stäbe auf. Die Stäbe sind in der Dreierkonfiguration so angeordnet, daß die Achsen der drei Stäbe auf einem Teilkreis mit einem Radius R' liegen, der etwa doppelt so groß ist wie der Stabradius R , d.h. $R' \approx 2R$. Mit verschiedenen Modellen wurde untersucht, wie die gegenseitige Abschirmung am besten zu erfassen ist, wenn man in Zylindergeometrie rechnen muß. Ein Hohlzylinder mit dem Innenradius R_i und Außenradius R_a , dessen innere Oberfläche $1/3$, die äußere Oberfläche $2/3$ der Gesamtoberfläche der 3-Stab-Konfiguration und dessen Volumen gleich dem Gesamtvolumen der 3 Stäbe ist ($R_i=R$, $R_a=R'=2R$), scheint am ehesten die tatsächlichen Verhältnisse anzunähern.

Dem Formalismus der Näherungsformel (14) entsprechend, d.h. als Folge der rationalen Approximation von Wigner, hängt das effektive heterogene Resonanzintegral eines Hohlzylinders nur von dessen mittlerer Sehnenlänge \bar{l} ab, die sich aus der Formel

$$(17) \quad \bar{l} = \frac{4V}{S} = \frac{2}{R_a} (R_a^2 - R_i^2) = 3R$$

berechnet. Das bedeutet, daß die zusätzliche Absorption in einem 3-Stab-Bündel gegenüber einem Einzelstab einfach durch eine Erhöhung der mittleren Sehnenlänge, hier um 50%, näherungsweise erfaßt werden kann.

Das RABBLE-Programm bietet nun die Möglichkeit, die Güte dieser Näherung zu überprüfen. Die numerischen Rechnungen ergaben, daß in einem repräsentativen Fall ($\bar{l} = 1,2$ cm, $R_a = 0,8$ cm, $R_i = 0,4$ cm, 10% Absorber) der Unterschied zwischen einem Vollzylinder und einem Hohlzylinder gleicher mittlerer Sehnenlänge nur 0,75% beträgt, d.h. daß Gleichung (14) auch für Hohlzylinder anwendbar ist.

3. Absorption in Np-237

3.1. Absorption im thermischen Energiebereich

Der thermische Einfangquerschnitt bei $v = 2200$ m/sec von Np-237 ist 170 ± 1 b /6/ und hat im Bereich des Maxwellspektrums einen $1/v$ -Verlauf, d.h. man kann $g=1$ annehmen. Am Beispiel eines Leichtwasserreaktors mit $\phi_{\text{epi}}/\phi_{\text{th}} = 0,06$ wird σ und f berechnet.

$$\frac{T}{T_0} = 1 + 1,33 \frac{\phi_{\text{epi}}}{\phi_{\text{th}}} = 1,08; \quad E_g = 6 kT_0 \text{ aus Abb.4;}$$

$$\frac{\bar{\sigma}}{\sigma_0} = \frac{\sqrt{\pi}}{2} \sqrt{\frac{T_0}{T}} = 0,853; \quad \bar{\sigma} = 145 \text{ b}$$

Für einen typischen Absorberstab ist $R = 0,4$ cm und $N = 10^{-3}$ cm⁻³ und damit $\Sigma_a R = 0,058$. Aus Abb.2 ergibt sich $f=0,92$, so daß der effektive abgeschirmte thermische Absorptionsquerschnitt $133,5$ b groß ist.

3.2. Das Resonanzintegral bei "unendlicher" Verdünnung

Der einzige gemessene Wert des "unendlich verdünnten" Resonanzintegrals von Neptunium 237 wird als "Exzess-Resonanzintegral" mit 870 ± 130 b angegeben /7/. Nach Addition des $1/v$ -Anteils

$$RI_{1/v} = \int_{E_g}^{\infty} \sigma_{\text{th}} \sqrt{\frac{E_{\text{th}}}{E}} \frac{dE}{E} = 2\sigma_{\text{th}} \sqrt{\frac{E_{\text{th}}}{E_g}}$$

erhält man mit einer unteren Abschneide-Energie $E_g = 0,1265$ eV und $\sigma_{\text{th}} = 170$ b

$$RI_{\infty} = 1022 \pm 130 \text{ b .}$$

In zufriedenstellender Übereinstimmung mit diesem Wert berechnet das Programm RABBLE aus Resonanzparametern /6/ den Wert von RI_{∞} zu $950,2$ b. Die Darstellung des Resonanzquerschnitts mit Breit-Wigner-Parametern liefert dabei den zu niedrigen thermischen

Querschnitt von 27 b. In den 950 b für RI_{∞} ist daher eine Korrektur des $1/v$ -Anteils in Höhe von 128 b enthalten; außerdem ist der Beitrag der unaufgelösten Resonanzen ($E_M=129,48$ eV), der mit Hilfe von statistischen Parametern bestimmt werden kann /6/, in Höhe von 46,5 b berücksichtigt.

RI_{∞} wurde für 5 verschiedene untere Energiegrenzen berechnet, die Werte sind in Tabelle 1 dargestellt. Da der Querschnitt im Gebiet zwischen 0,1 und 0,2 eV ungefähr $1/v$ -Verlauf hat, kann man $RI_{\infty}(E_g)$ auch analytisch angeben:

$$\begin{aligned}
 RI_{\infty}(E_g) &= RI_{\infty}(0,2 \text{ eV}) + RI_{1/v}(E_g) - RI_{1/v}(0,2) \\
 &= RI_{\infty}(0,2 \text{ eV}) + 2\sigma_{th} \sqrt{E_{th}} \left(\frac{1}{\sqrt{E_g}} - \frac{1}{\sqrt{0,2}} \right)
 \end{aligned}$$

Die so berechneten Resonanzintegrale weichen nur geringfügig von den RABBLE-Werten ab, wie aus Tabelle 1 und Abb.5 ersichtlich ist.

Tabelle 1 RI_{∞} von Np-237 in Abhängigkeit von der unteren Energiegrenze E_g des Resonanzintegrals

E_g [$\bar{\text{eV}}$]	0,2	0,17	0,145	0,1265	0,1
RI_{∞} [$\bar{\text{b}}$]	916,5	927,9	939,5	950,2	969,9
$RI_{\infty}(E_g=0,2)$ + $RI_{1/v}$ nach Gl. (15)	916,5	927,4	938,3	948,1	967,5

Tabelle 2 Lethargieintegral des Absorptionsquerschnitts von Np-237 zwischen 0,1 eV und 0,2 eV

$RI_{1/v} / 6 /$ (nach Gl. (15) mit $\sigma_{th} = 170 \text{ b}$)	RI_{eff} (numerisch ber.)		
	$\frac{N}{\bar{\text{Atome/cm}^3}$	$\frac{NI}{\bar{\text{Atome/cm}^2}$	$\frac{RI_{eff}}{\bar{\text{b}}}$
51	0	0	53,4
	$0,5226 \cdot 10^{21}$	$0,418 \cdot 10^{21}$	52,4
	$1,1386 \cdot 10^{21}$	$0,91 \cdot 10^{21}$	51,6
	$1,875 \cdot 10^{21}$	$1,50 \cdot 10^{21}$	50,4
	$0,5226 \cdot 10^{21}$	$1,50 \cdot 10^{21}$	49,8
	$1,875 \cdot 10^{21}$	$2,25 \cdot 10^{21}$	49,2

3.3. Effektive Resonanzintegrale für Np-237-Stäbe

Zur Bestrahlung im Reaktor geeignet sind Stäbe von etwa 1 cm Durchmesser, die 10-30% Gewichtsanteile NpO_2 im Cermet enthalten.

Die numerisch berechneten Werte von RI_{eff} für verschiedene NpO_2 -Anreicherungen und Stabdurchmesser entsprechen in guter Näherung dem Funktionsverlauf von Gl.(14), wie aus Abb.6 ersichtlich ist. Der Parameter K in Gl.(14) wurde als Mittelwert aus 12 verschiedenen Rechnungen bestimmt, es ergab sich $K=864 \pm 17 \text{ } \overline{[\text{cm}^2]}$. Für den Bereich der unaufgelösten Resonanzen wurde der konstante Betrag von 46,5 b (vgl. Abschnitt 3.2.) zum effektiven Resonanzintegral hinzugefügt. Für den Bereich unterhalb 0,2 eV ergab sich der additive Term

$$(6) \quad RI_{1/v} = 340 \left(\frac{0,0253}{E_g \overline{[eV]}} - 0,354 \right)$$

In Tabelle 2 sind für $E_g=0,1$ eV als Funktion von Anreicherung und Stabdicke die nach dieser Formel und die numerisch berechneten Integrale angegeben. Man sieht, daß die Unterschiede nicht groß sind und bezogen auf den Gesamtwert des Resonanzintegrals einen Fehler von weniger als 0,5% bewirken, d.h. vernachlässigt werden können.

Der Fehler, der durch die Verwendung der Näherungsformel (14) als Ersatz für die numerischen Rechnungen entsteht, ist im gesamten Gültigkeitsbereich kleiner oder ungefähr gleich 1% (vgl. Tabelle 3). Somit lautet die Näherungsformel zur Berechnung des effektiven Resonanzintegrals von Np-237

$$(18) \quad RI_{\text{eff}}(E_g, N \bar{I}) = 340 \left(\sqrt{\frac{0,0253}{E_g}} - 0,354 \right) + \frac{870}{\sqrt{1+864 N \bar{I}}} + 46,5 \overline{[b]}$$

Sie liegt den ausgezogenen Kurven in Abb.6 zugrunde. Sie ist

gültig für

$$0,1 \text{ eV} \leq E_g \leq 0,2 \text{ eV}$$

$$0 \leq N \bar{I} \leq 2,25 \cdot 10^{-3} \quad \langle \bar{\text{cm}}^{-2} \rangle$$

$$0 \leq N \leq 1,8 \cdot 10^{-3} \quad \langle \bar{\text{cm}}^{-3} \rangle$$

$$0,23 \leq \bar{I} \leq 2,87 \quad \langle \bar{\text{cm}} \rangle$$

Es ist zu beachten, daß N stets in $10^{24} \frac{\text{Atome}}{\text{cm}^3}$ anzugeben ist.

Die diesem Gültigkeitsbereich entsprechenden Werte von RI_{eff} liegen zwischen 560 und 970 b (vgl. Abb.6). Die Genauigkeit des so berechneten effektiven Resonanzintegrals ist ohne Berücksichtigung eventueller Ungenauigkeiten in den Kerndaten mit $\pm 2\%$ anzugeben.

Tabelle 3 Effektives Resonanzintegral von Np-237 für $E_g=0,2 \text{ eV}$ ohne den Anteil der unaufgelösten Resonanzen (Maximalenergie der numerischen Rechnungen 600 eV, höchste aufgelöste Resonanz bei 129,48 eV)

N $\langle \bar{\text{Atome/cm}}^3 \rangle$	\bar{I} $\langle \bar{\text{cm}} \rangle$	$N\bar{I}$ $\langle \bar{\text{Atome/cm}}^2 \rangle$	RI_{eff} (numerisch) $\langle \bar{\text{b}} \rangle$	RI_{eff} (Gl.14) $\langle \bar{\text{b}} \rangle$
0	0,8	0	870	870
0,5226 10^{21}	0,8	0,418 10^{21}	745	746
1,1386 10^{21}	0,8	0,91 10^{21}	649	650
1,875 10^{21}	0,8	1,50 10^{21}	572,5	575
0,5226 10^{21}	2,87	1,50 10^{21}	569	575
1,875 10^{21}	1,2	2,25 10^{21}	514	508

4. Absorption in Am-241

4.1. Absorption im thermischen Energiebereich

Der thermische Einfangquerschnitt von Am-241 ist 582 b /8/. Aufgrund der in /8/ angegebenen Meßpunkte kann man im thermischen Bereich einen $1/v$ -Verlauf annehmen, d.h. $g=1$. Für das Beispiel des Leichtwasserreaktors in 3.1. ergibt sich der mittlere thermische Absorptionsquerschnitt zu $\sigma=496$ b, und für den Stab mit $R=0,4$ cm und $N=10^{-3}$ cm⁻³ ist $f=0,8$. Die Selbstabschirmung beträgt hier also bereits 20%, der effektive Wirkungsquerschnitt ist 397 b.

4.2. Das Resonanzintegral bei "unendlicher" Verdünnung

Es existieren mehrere Meßwerte des nicht selbst-abgeschirmten Resonanzintegrals von Am-241, die allerdings alle aus Cadmium-Differenzmessungen stammen. Da in der Gegend der Cd-Abschneidegrenze und darunter noch zwei sehr hohe Resonanzen liegen, hängt der Wert des Resonanzintegrals von der Dicke des Cd-Blechs ab /9/, es liegen Meßwerte zwischen 1100 und 2700 b vor /10-13/. Mit einer unteren Energiegrenze von 0,55 eV berechnet PEARLSTEIN /8/ aus Breit-Wigner-Resonanzparametern ein Resonanzintegral von 1390 b, mit RABBLE ergibt sich für denselben Energiebereich 1400 b. Aus der Messung von SCHUMAN /9/, die am besten mit diesen Zahlen übereinstimmt, ist für die Bildung des 242 g Am mit einer Halbwertszeit von 16 Stunden im Resonanzbereich ein Anteil von ca. 80% zu entnehmen. Bei der Neutronenabsorption im thermischen Bereich wird das Isomer 242 g Am ebenfalls zu etwa 80% gebildet.

Da bei der Bestrahlung in thermischen Reaktoren die untere Energiegrenze des $1/E$ -Spektrums wesentlich unter der Cd-Abschneidegrenze liegt, wurden mit RABBLE die Resonanzintegrale für 5 verschiedene untere Grenzenergien E_g zwischen 0,1 eV und 0,2 eV berechnet, die Ergebnisse sind in Tabelle 4 und in Abb.7 dargestellt.

In diesen Werten ist die Korrektur des $1/v$ -Verlaufs bis zu $\sigma_{th}=582$ b und ein Anteil von 122 b für die unaufgelösten Resonanzen enthalten, zu dessen Berechnung wieder die statistischen Resonanzparameter aus /6/ verwendet wurden. Im Bereich von 0,1 eV bis 0,2 eV ist die Abweichung vom $1/v$ -Verlauf erheblich, jedoch beträgt der Unterschied der $1/v$ -Integrale zu den numerisch berechneten Werten, bezogen auf das gesamte RI nicht mehr als 2%. Bei Auftreten von Resonanzselbstabschirmung wird dieser Unterschied teilweise kompensiert (vgl. Abschnitt 4.3.).

4.3. Effektive Resonanzintegrale für Am-241-Stäbe

Auf numerischem Wege wurden wieder für Absorberanreicherungen von 10 bis 30% und Stabdurchmesser von 0,23 bis 2,87 cm effektive Resonanzintegrale mit unteren Energiegrenzen zwischen 0,1 eV und 0,2 eV bestimmt. In Abb.8 sind die berechneten Werte und die der angepaßten Näherungsformel entsprechenden Kurven für $E_g = 0,2$ eV und 0,1 eV als Funktion des Produkts $N \cdot \bar{l}$ dargestellt. Der Parameter K in Gl.(14) wurde als Mittel aus 12 Werten zu 3333 ± 69 $[\text{cm}^2]$ bestimmt. Für den Bereich der unaufgelösten Resonanzen ($E_M = 43,25$ eV) wird der konstante Beitrag von 122 b zum Resonanzintegral hinzugefügt. Für den Bereich unterhalb 0,2 eV ergibt sich der Term

$$RI_{1/v} = 1164 \left(\sqrt{\frac{0,0253}{E_g}} - 0,354 \right)$$

In Tabelle 5 sind für $E_g=0,1$ eV das nach dieser Formel und als Funktion von $N \cdot \bar{l}$ die numerisch berechneten Integrale angegeben.

Man sieht, daß die Unterschiede mit wachsender Resonanzselbstabschirmung kleiner werden und, bezogen auf das gesamte Resonanzintegral, einen Anteil von 2,5% nicht überschreiten.

Tabelle 4 RI_{∞} von Am-241 in Abhängigkeit von der unteren Energiegrenze E_g des Resonanzintegrals

E_g [\bar{eV}]	0,2	0,17	0,145	0,1265	0,1
RI_{∞} [\bar{b}]	3033	3098	3153	3198	3276
RI_{∞} ($E_g=0,2$) + $RI_{1/v}$ nach Gl. (15)	3033	3070	3107,5	3141	3207,5

Tabelle 5 Lethargieintegral des Absorptionsquerschnitts von Am-241 zwischen 0,1 eV und 0,2 eV

$RI_{1/v}$ [\bar{b}] (nach Gl. (15) mit $\sigma_{th}=582$ b)	RI_{eff} (numerisch berechnet)		
	N [$\bar{Atome/cm^3}$]	$N\bar{l}$ [$\bar{Atome/cm^2}$]	RI_{eff} [\bar{b}]
174,5	0	0	243
	0,515 10^{21}	0,412 10^{21}	229
	1,1219 10^{21}	0,898 10^{21}	215
	1,8476 10^{21}	1,478 10^{21}	202
	0,515 10^{21}	1,478 10^{21}	194
	1,8476 10^{21}	2,217 10^{21}	185

Der Fehler, der durch die Verwendung der Näherungsformel (14) als Ersatz für die numerischen Rechnungen entsteht, ist im gesamten Gültigkeitsbereich nicht größer als 2,5%, wie aus Tabelle 6 hervorgeht.

Die Näherungsformel zur Berechnung des effektiven Resonanzintegrals von Am-241-Stäben lautet also

$$(19) \quad RI_{eff}(E_g, N \bar{l}) = 1164 \left(\sqrt{\frac{0,0253}{E_g}} - 0,354 \right) + \frac{2911}{\sqrt{1+3333 N \bar{l}}} + 122 \bar{b}$$

Der Gültigkeitsbereich ist derselbe wie bei Np-237 (vgl.3.3.), die Werte von RI_{eff} liegen zwischen 3276 und 1123 b (vgl. Abb.6). Die Genauigkeit der so berechneten Resonanzintegrale ist ohne Berücksichtigung eventuell vorhandener Ungenauigkeiten in den Kerndaten mit $\pm 5\%$ anzugeben.

Tabelle 6 Effektives Resonanzintegral von Am-241 für $E_g=0,2$ eV ohne den Anteil der unaufgelösten Resonanzen (Maximalenergie der numerischen Rechnungen 130 eV, höchste aufgelöste Resonanz bei $E_M = 43,25$ eV)

N $\langle \bar{N} \text{Atome/cm}^3 \rangle$	\bar{l} $\langle \bar{l} \text{cm} \rangle$	$N\bar{l}$ $\langle \bar{N} \text{Atome/cm}^2 \rangle$	RI_{eff} (numerisch) $\langle \bar{b} \rangle$	RI_{eff} (Gl.14) $\langle \bar{b} \rangle$
0	0,8	0	2911	2911
0,515 10^{21}	0,8	0,412 10^{21}	1904	1889
1,1219 10^{21}	0,8	0,898 10^{21}	1456	1472
1,8476 10^{21}	0,8	1,478 10^{21}	1188	1195
0,515 10^{21}	2,87	1,478 10^{21}	1168	1195
1,8476 10^{21}	1,2	2,217 10^{21}	1001	1006

5. Zusammenfassung für den epithermischen Bereich

Zur Übersicht sei noch einmal dargestellt, wie man die epithermische Reaktionsrate für einen Stab oder ein 3-Stab-Bündel bestimmen kann.

Bei vorgegebenem $\phi_{\text{epi}}/\phi_{\text{th}}$ bestimmt man aus Abb.4 E_g mit $kT_0 = 0,0253$ eV. Damit erhält man RI_{∞} von Np-237 aus Abb.5, von Am-241 aus Abb.7. Mit der Atomzahl N [10^{24} cm^{-3}] und dem Stabradius R [cm], somit $\bar{l}=2R$ für den Einzelstab und $\bar{l}=3R$ für das 3-Stab-Bündel, läßt sich dann aus Gl.(18) das effektive Resonanzintegral RI_{eff} von Np-237 und aus Gl.(19) RI_{eff} von Am-241 berechnen. Dabei ist der 2. Term in Gl.(18) auch aus Abb.6 als Funktion von $N \bar{l}$ abzulesen, ebenso der 2. Term in Gl.(19) aus Abb.8. Mit $R_{\text{epi}} = N \phi_{\text{epi}} RI_{\text{eff}}$ erhält man schließlich die gesuchte epithermische Reaktionsrate, wobei zu berücksichtigen ist, daß bei Am-241 nur 80% der entstehenden Am-242-Atome zur Bildung von Pu-238 zur Verfügung stehen.

Literaturverzeichnis

- /1/ SCHÜCKLER, M.:
Neutronenabsorption in zylindrischen Stäben;
Diplomarbeit Karlsruhe 1973
- /2/ BECKURTS, K.H. und WIRTZ, K.:
Neutron Physics; Springer-Verlag Berlin (1964)
- /3/ CASE, K.M., de HOFFMANN, F., PLACZEK, G.:
Introduction to the Theory of Neutron Diffusion;
Vol.1, Los Alamos Scientific Laboratory (1953)
- /4/ DRESNER, L.:
Resonance Absorption in Nuclear Reactors"
Pergamon Press (1960)
- /5/ KIER, P.H. und ROBBA, A.A.:
RABBLE, A Program for Computation of Resonance Absorption
in Multi-region Reactor Cells;
ANL-7326 (1967)
- /6/ HINCKELMANN, B.:
Microscopic Neutron Nuclear Data and 5-group cross
sections for the Actinides ^{231}Pa , ^{232}U , ^{234}U , ^{236}U ,
 ^{237}U , ^{237}Np , ^{238}Np , ^{236}Pu , ^{238}Pu , ^{241}Am , ^{242}Cm ;
KFK 1186 (1970)
- /7/ TATTERSALL, R.B., ROSE, H., PATTENDEN, S.K., JOWITT, D.:
Journal of Nuclear Energy A12, 32 (1960)
- /8/ PEARLSTEIN, S.:
Cross Sections for Transuranium Element Production;
BNL-982 (1966)

- /9/ SCHUMAN, R.P.:
WASH 1136, 53 (1969)
- /10/ DEAL, R.A. und SCHUMAN, R.P.:
WASH 1053, 76 (1964)
- /11/ SCHUMAN, R.P.:
WASH 1124, 72 (1968)
- /12/ BAK et al.:
Atomnaja Energija 23, 316 (1967)
- /13/ HELLSTRAND, E. et al.:
BNL-Report Nr. 50242 (1970)

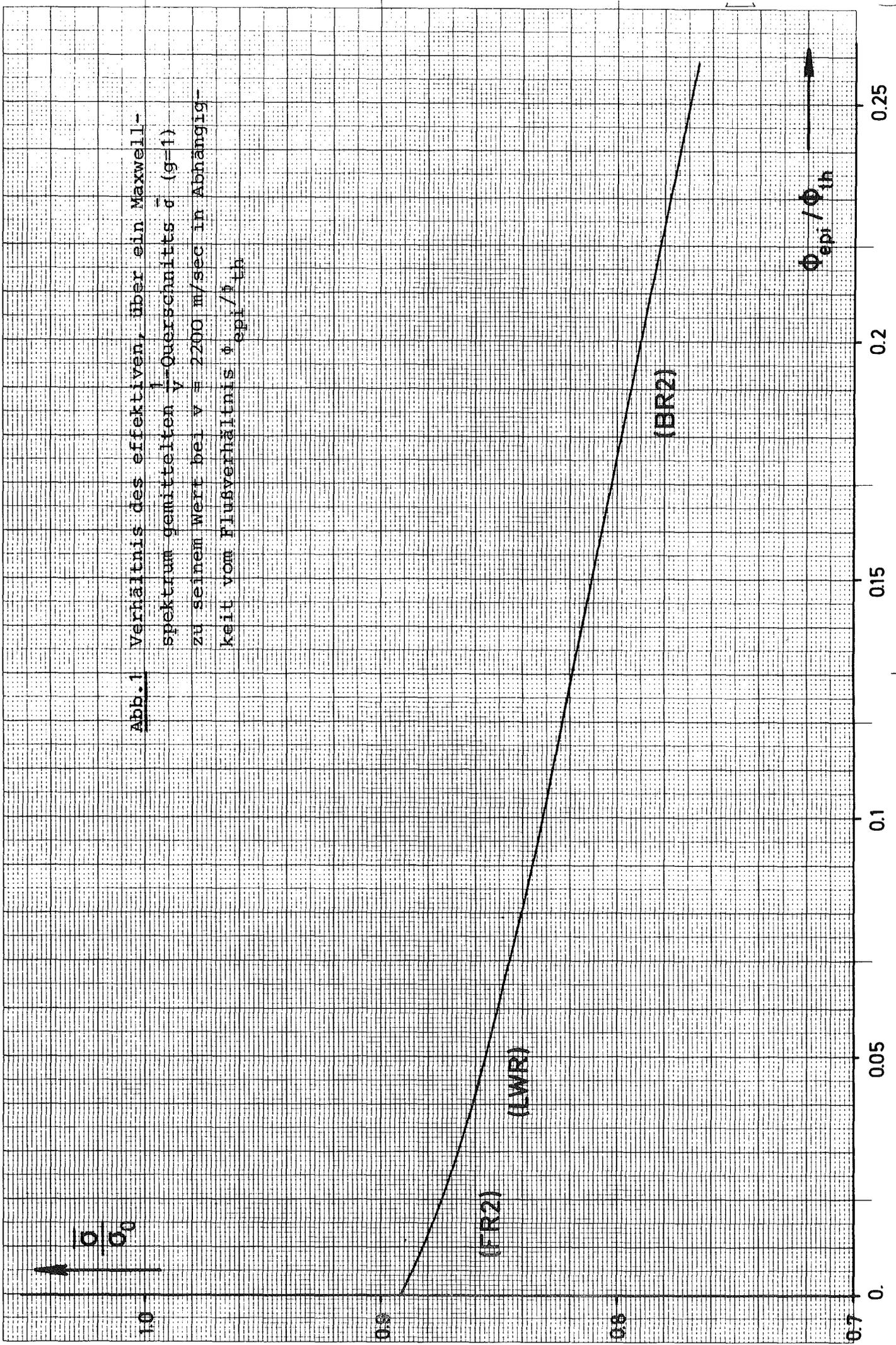
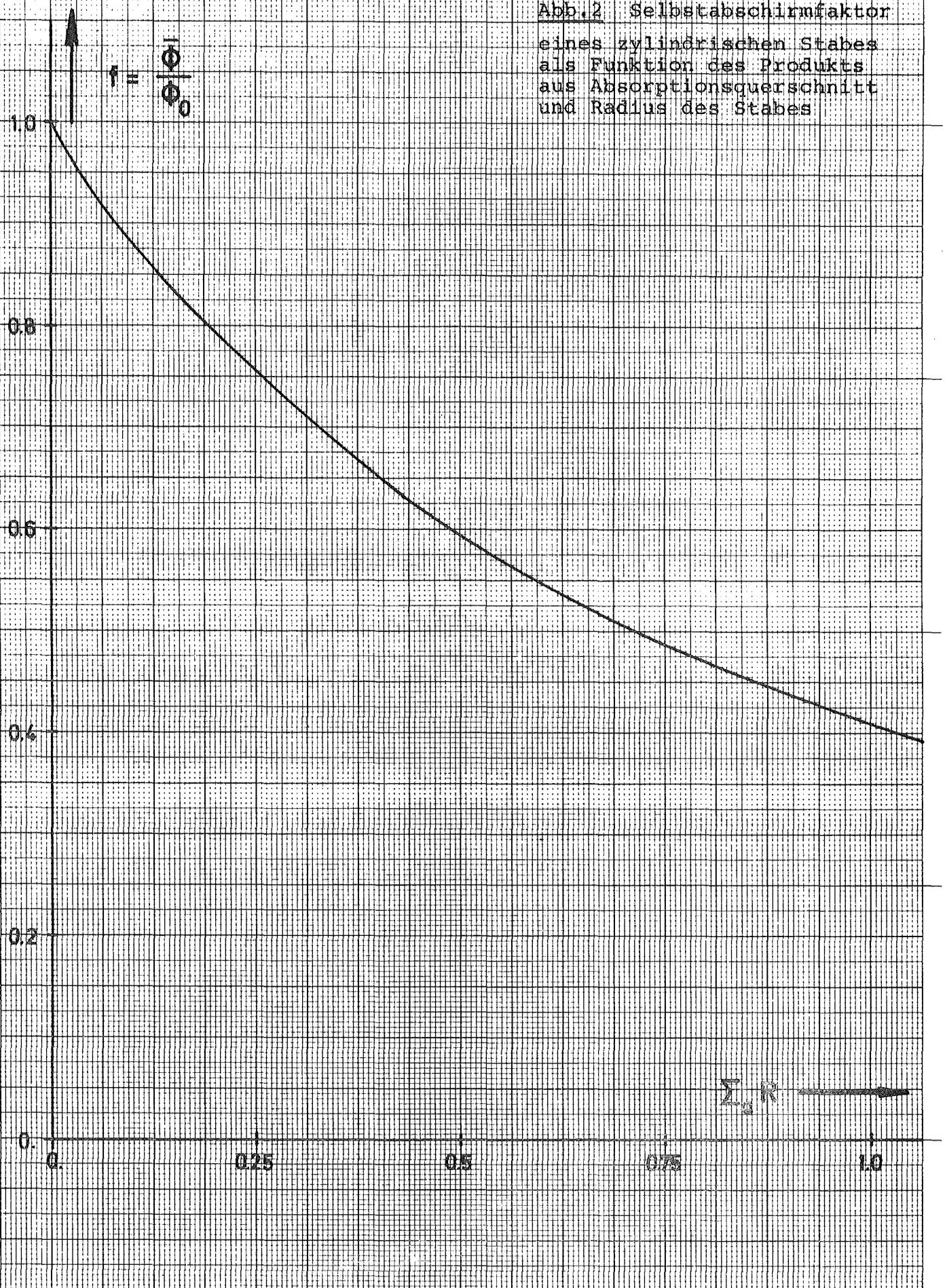


Abb.1 Verhältnis des effektiven, über ein Maxwell-
spektrum gemittelten \bar{v} -Querschnitts σ ($g=1$)
zu seinem Wert bei $v = 2200$ m/sec in Abhängig-
keit vom Flußverhältnis $\frac{\phi_{\text{epi}}}{\phi_{\text{th}}}$

Abb. 2 Selbstabschirmfaktor
eines zylindrischen Stabes
als Funktion des Produkts
aus Absorptionsquerschnitt
und Radius des Stabes



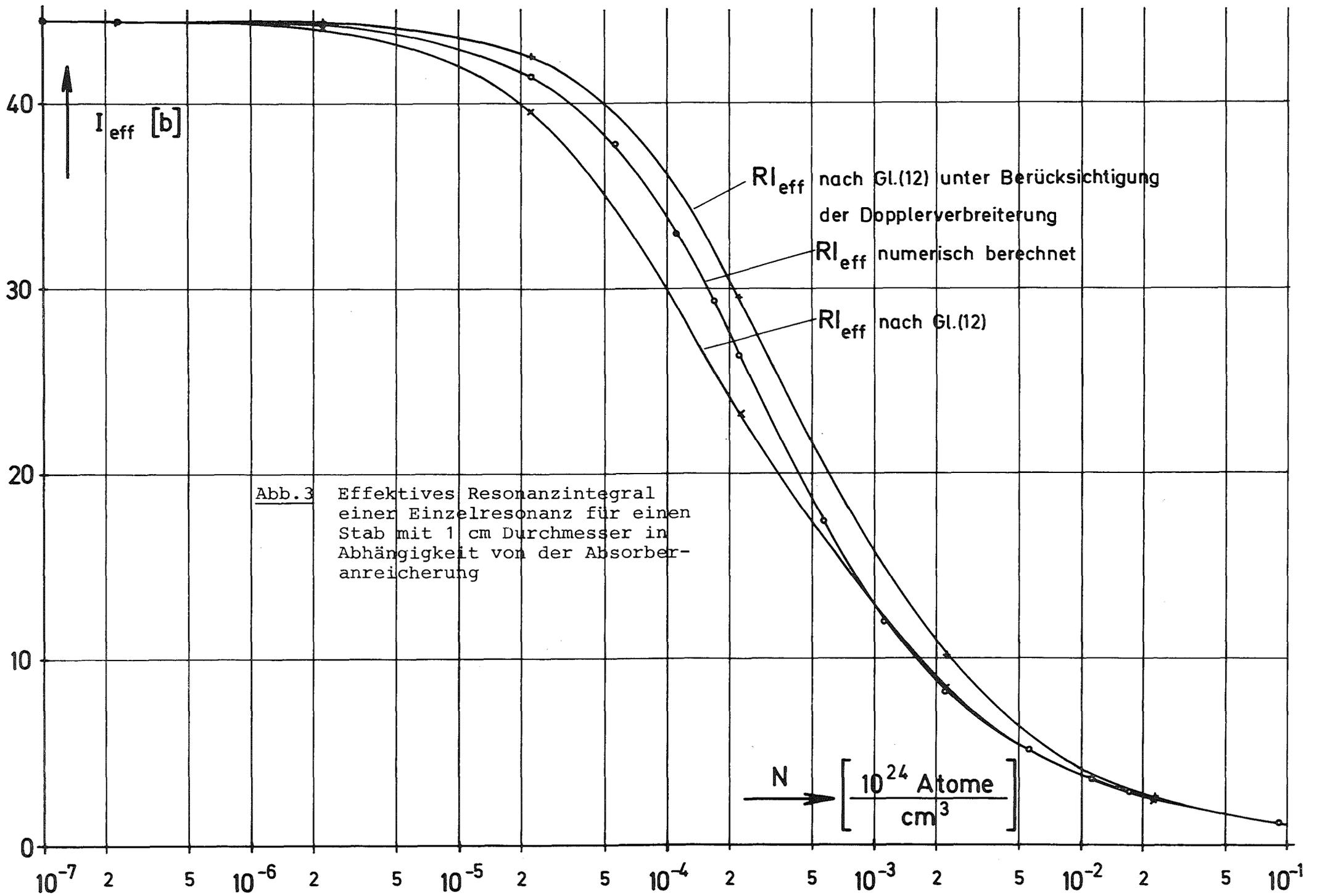
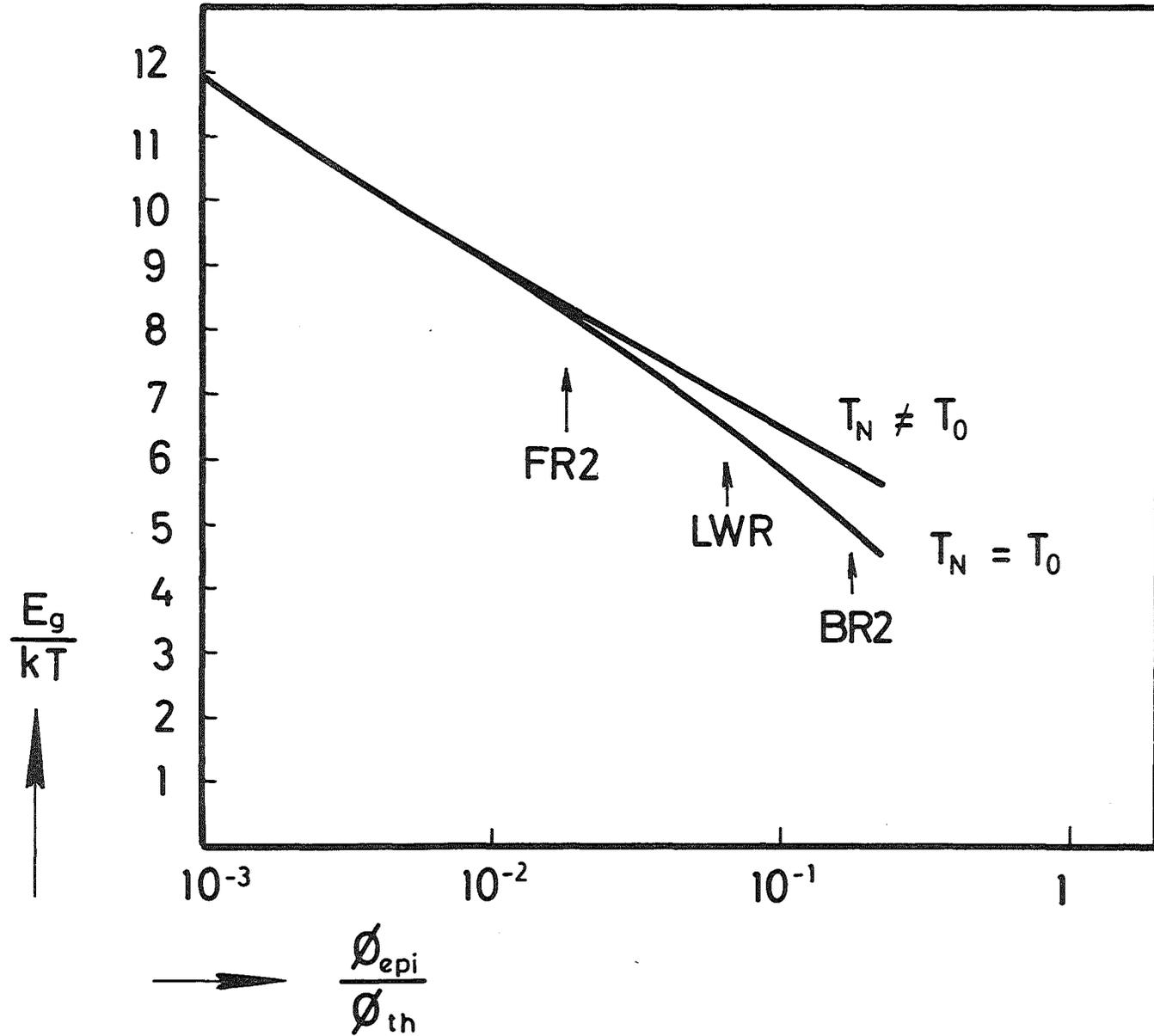


Abb.4 Abhängigkeit der Grenzenergie E_g zwischen thermischem und epithermischem Spektrum vom Verhältnis des epithermischen zum thermischen Fluß $\phi_{\text{epi}}/\phi_{\text{th}}$



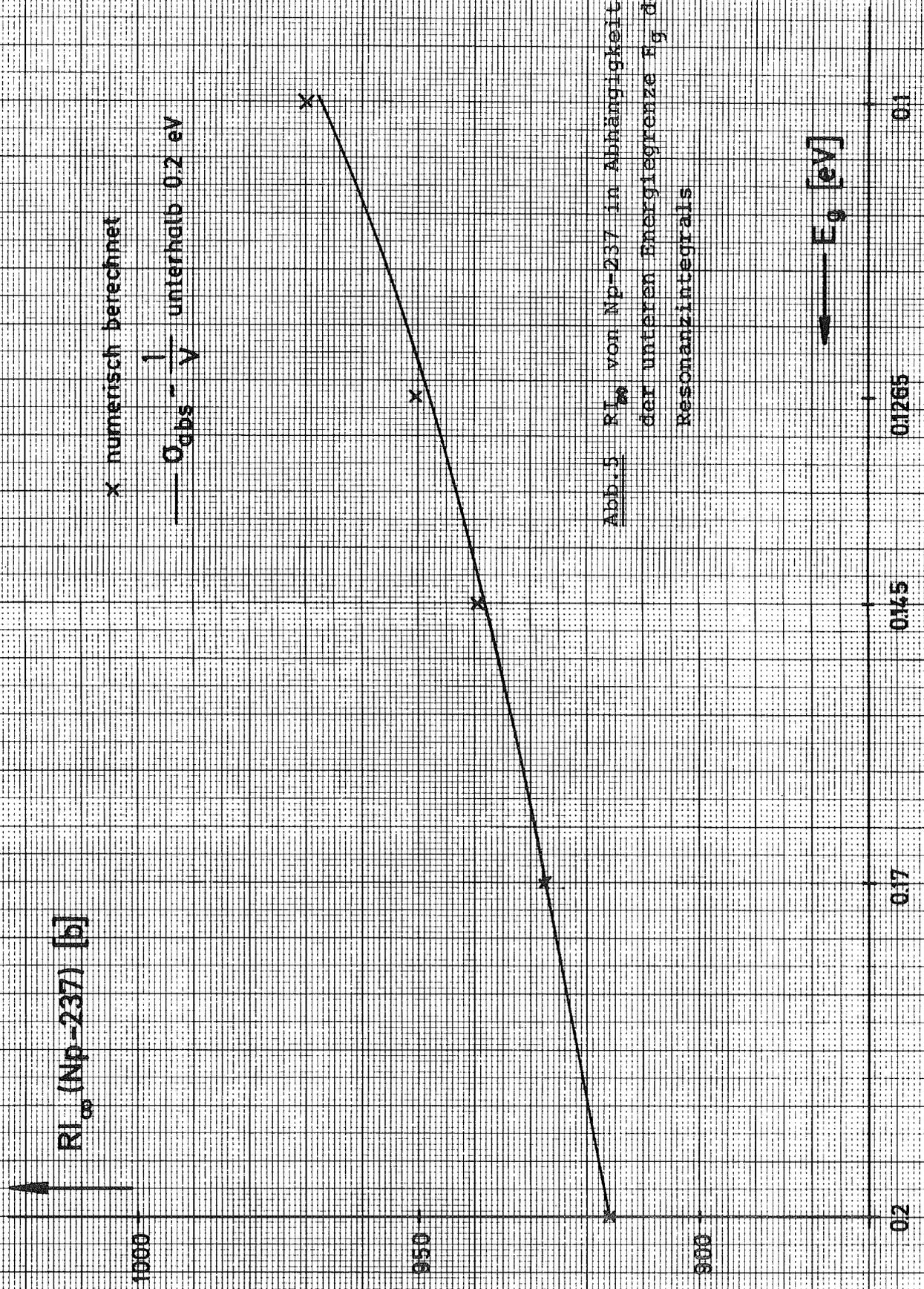
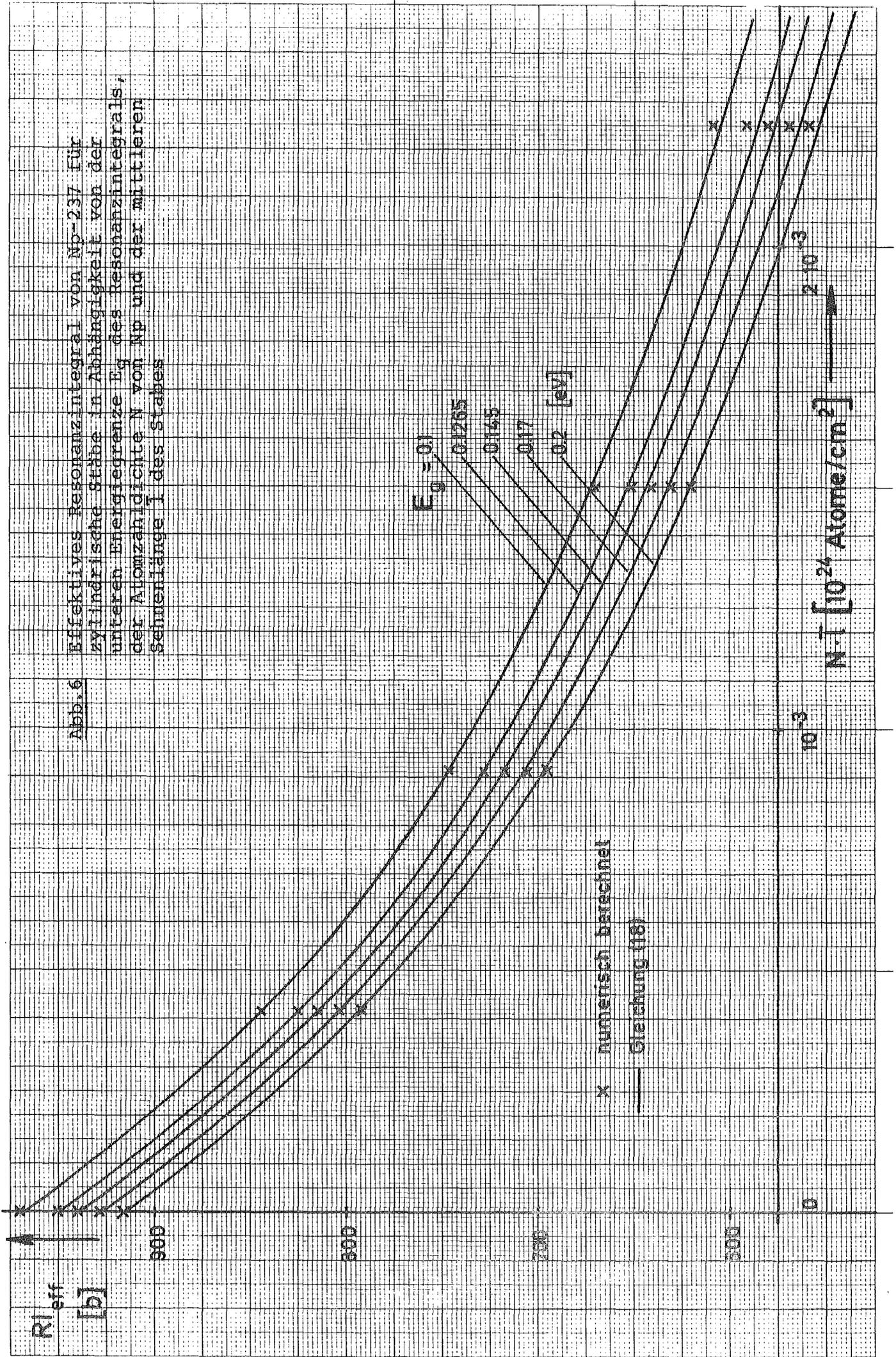


Abb. 5 RI_{∞} von Np-237 in Abhängigkeit von der unteren Energielgrenze E_0 des Resonanzintegrals

Abb. 6 Effektives Resonanzintegral von Np-237 für zylindrische Stäbe in Abhängigkeit von der unteren Energiegrenze E_g des Resonanzintegrals, der Atomzahldichte N von Np und der mittleren Stablänge \bar{l} des Stabes



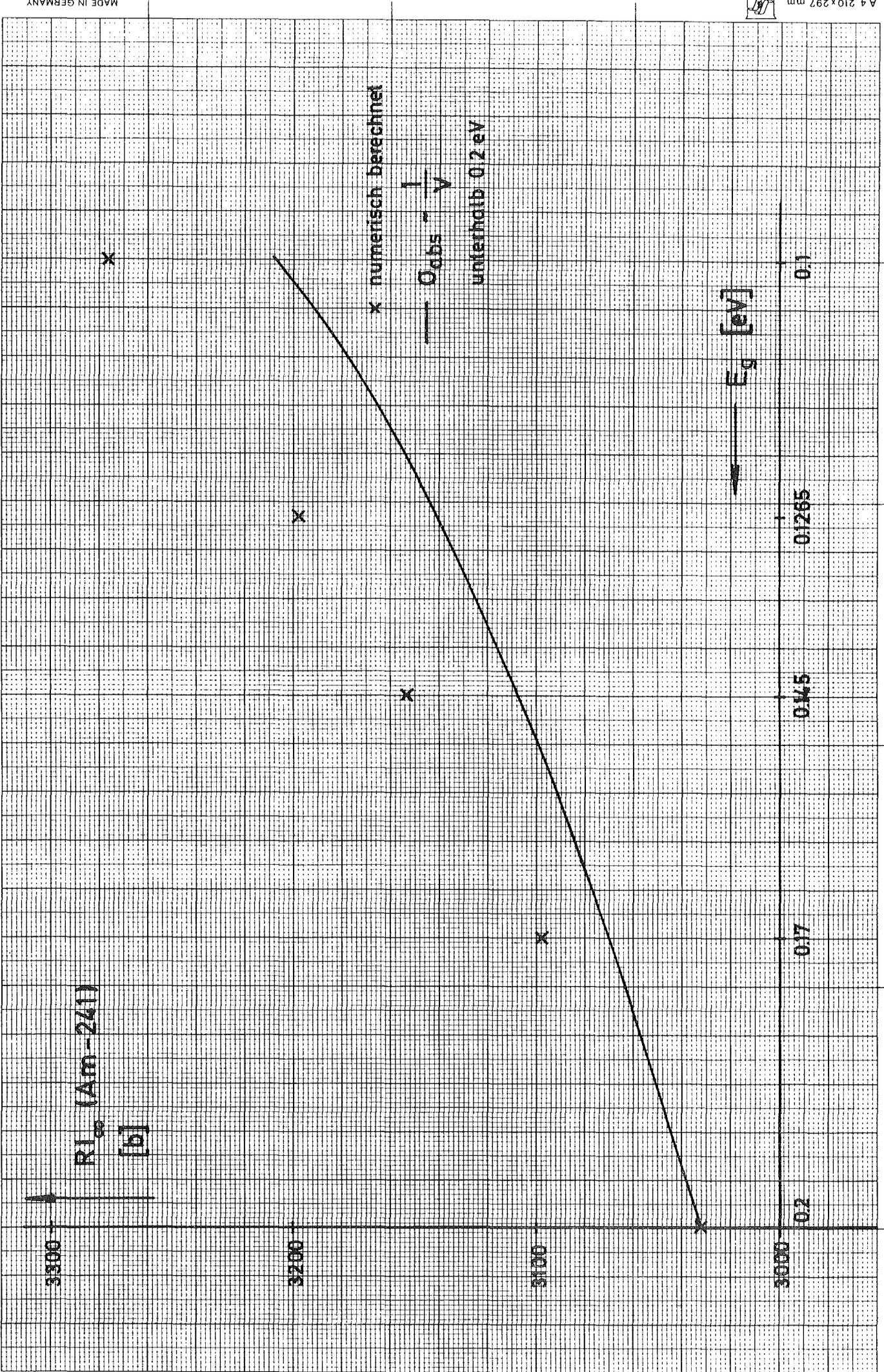
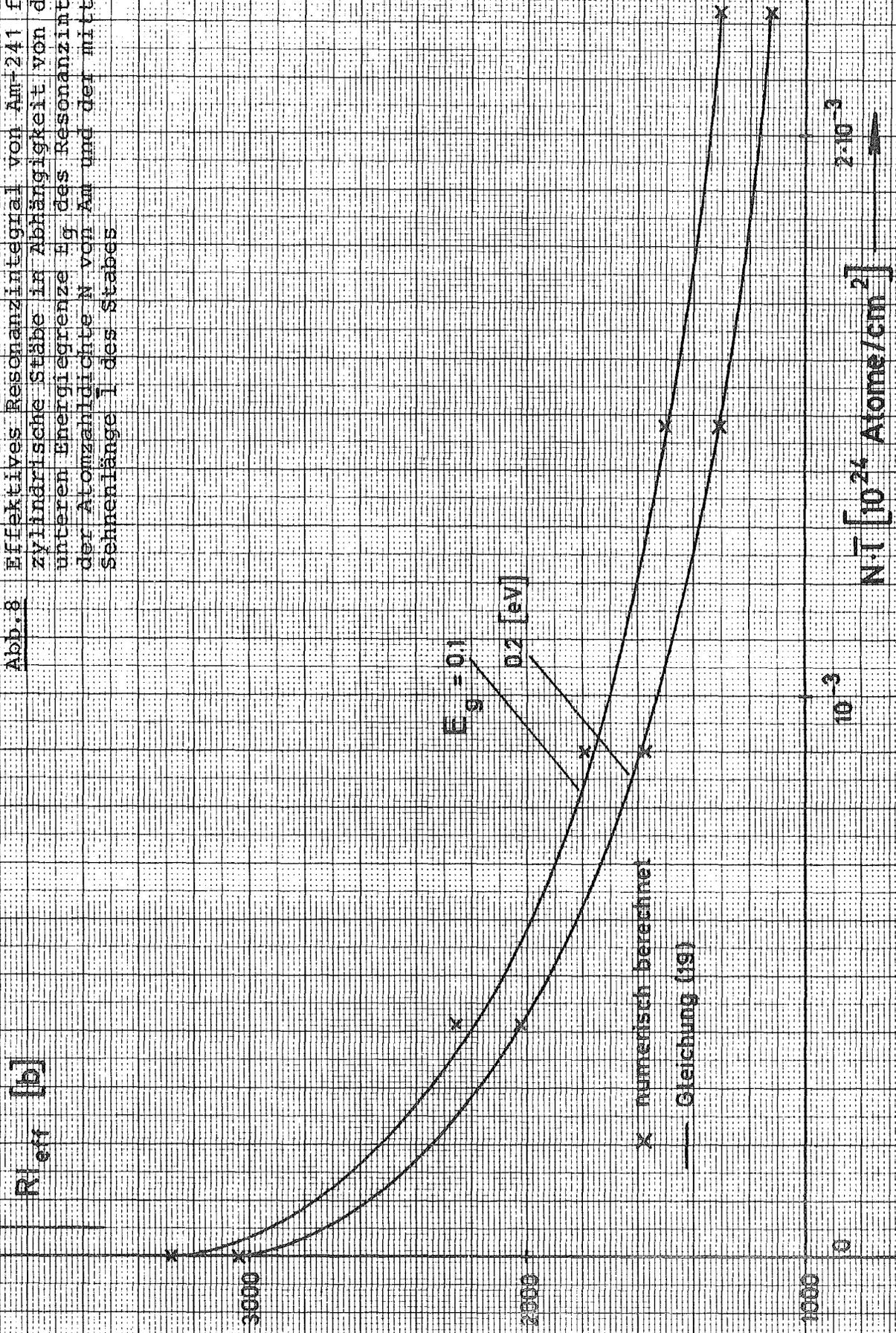


Abb.7 RI_{∞} von Am-241 in Abhängigkeit von der unteren Energiegrenze E_g des Resonanzintegrals

$R_{eff} [b]$

Abb. 8 Effektives Resonanzintegral von Am-241 für zylindrische Stäbe in Abhängigkeit von der unteren Energiegrenze E_g des Resonanzintegrals, der Atomzahldichte N von Am und der mittleren Sehnenlänge \bar{l} des Stabes



x numerisch berechnet
 — Gleichung (19)

$E_g = 0.1$
 $0.2 [eV]$

$N \cdot \bar{l} [10^{24} \text{ Atome/cm}^2]$