

**KERNFORSCHUNGSZENTRUM
KARLSRUHE**

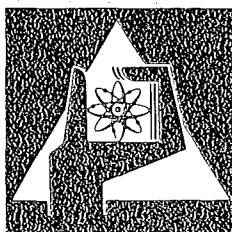
Juni 1976

KFK 2292

Institut für Neutronenphysik und Reaktortechnik
Projekt Spaltstoffflußkontrolle

**Die Bestimmung von Uran 235 in frischen
Brennelementen für Siedewasserreaktoren mit einer
Antimon-Beryllium-Quelle**

K. Baumung, K. Böhnel



**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 2292

Institut für Neutronenphysik und Reaktortechnik
Projekt Spaltstoffflußkontrolle

Die Bestimmung von Uran 235 in frischen Brennelementen für Siedewasserreaktoren mit einer Antimon-Beryllium-Quelle

K. Baumung

K. Böhnel

Gesellschaft für Kernforschung m.b.H., Karlsruhe

Zusammenfassung

Bestrahlt man ein LWR-Brennelement mit Neutronen einer Sb-Be-Quelle, so ist die Zahl der Spaltneutronen ein Maß für seinen U-235-Gehalt. Es wird gezeigt, daß sich die Spaltneutronen bei Verwendung von Rückstoßproportionalzählrohren mit geeigneter Impulshöhendiskriminierung zuverlässig vom Quelluntergrund trennen lassen. Die Untersuchungen des Zählrohrfüllgases ergeben, daß Methan wegen der besseren γ -n-Diskriminierung Helium-4 vorzuziehen ist. Eine bessere Ausnutzung der Neutronen erzielt man durch Nickelreflektoren. Es wird eine Meßanordnung beschrieben, in der die Nachweiswahrscheinlichkeit für Spaltstoff an den verschiedenen Brennstabpositionen um weniger als 10 % vom Mittelwert abweicht. Da die erzielbare Genauigkeit stark von der Temperatur abhängt, wurde deren Einfluß auf die verschiedenen Systemkomponenten gemessen. Die schließlich angegebene Meßanordnung ergibt bei einer Antimonaktivität von 10 Ci bei einer Stunde Meßzeit einen statistischen Fehler von 0,5 % für ein Brennelement mit 2,5 % Anreicherung.

Assay of fresh fuel elements of boiling water
reactors for their U-235 content with an
Sb-Be-source

Summary

When irradiating an LWR fuel element with neutrons from a Sb-Be-source, the number of fission neutrons is a measure of its content of U-235. It is shown that fission neutrons can be reliably distinguished from the source background by using recoil proportional counters together with proper pulse height discrimination. Investigations of the filling gas suggest to prefer methane to He-4 because of better γ -n-discrimination. Better utilization of the source neutrons is attained by nickel reflectors. A measuring device is described in which the detection probability of fissile material at the various fuel pin positions differs by less than 10 % from the average. Since the precision depends strongly on the temperature its effects on the various components of the system were determined. The finally described apparatus allows a statistical precision of 0,5 % when measuring a fuel element with 2,5 % enrichment for 1 hour with a Sb activity of 10 Ci.

1. Einleitung

Eine der möglichen Materialbilanzzonen /1/ im Brennstoffzyklus für Leichtwasserreaktorbrennstoff ist das Auslieferungslager für fertige Elemente in einer Brennelementefabrik. Dabei wäre die Uranbestimmung im assemblierten Brennelement (BE) eine Schlüsselmessung /1/, die bei der Übernahme eines solchen BE oder bei einer Inventur durchgeführt werden kann. Während für die Qualitätskontrolle die Bestimmung des Gesamtgehalts an Spaltstoff in einem BE nur den Charakter einer Verifikation hat, genügt sie für die Bilanzierung im Rahmen der Spaltstoffflußkontrolle.

Ziel der vorliegenden Untersuchung war es, Spezifikationen für eine Meßanlage zur zerstörungsfreien Bestimmung des Gesamtgehalts von U-235 in nichtvergifteten Brennelementen für Siedewasserreaktoren zu erstellen. Sie bildet die Fortführung und den Abschluß von Experimenten, über die erstmals 1971 berichtet wurde /2/.

2. Auswahl des Meßverfahrens

2.1. Passive Methoden

Die Forderung nach einer einfachen Meßmethode läßt zunächst an passive Verfahren denken, die auf dem radioaktiven Zerfall der sie bestimmenden Isotope basieren. Das interessierende Isotop ^{235}U geht durch α -Zerfall (Halbwertszeit = $7,1 \cdot 10^8$ a), bzw. in geringem Maß auch durch Spontanspaltung (Halbwertszeit = $1,8 \cdot 10^{17}$ a) in Zustände niedriger Energie über. Wegen der großen Halbwertszeit kann die Spontanspaltung nicht verwendet werden ($3 \cdot 10^{-4}$ Spaltungen/(g·s)). Die α -Zerfallsrate des ^{235}U ist mit $0,8 \cdot 10^5$ /g·sec zu klein, um die freigesetzte Energie durch Kalorimetrie messen zu können.

Die mit dem α -Zerfall des ^{235}U einhergehende 185 keV- γ -Strahlung hat im Brennstoff nur eine geringe Reichweite (Halbwertsdicke in UO_2 0,5 mm). Sie kann unter bestimmten Voraussetzungen zur Messung an einzelnen Brennstäben ausgenutzt werden /3/, für ganze Brennelemente ist sie jedoch wegen der Selbstabschirmung unbrauchbar.

2.2. Aktive Methoden

Von den aktiven Verfahren scheidet diejenigen, die auf der Spektrometrie von Einfang- γ -Strahlung /4/ beruhen, wegen des dazu benötigten Reaktors als Neutronenquelle aus. Aus dem gleichen Grunde werden auch Reaktivitätsmessungen /6/ nicht weiter betrachtet.

Verfahren, die auf der Messung der verzögerten γ -Strahlung nach der Spaltung beruhen /3,5/, können wegen deren geringer Durchdringungsfähigkeit bei BE nicht eingesetzt werden. Da wir wegen der Notwendigkeit, einen LINAC zu verwenden, auch die Verfahren verwerfen, die mit hochenergetischer Bremsstrahlung Spaltungen induzieren, /12/ müssen wir nur noch den Nachweis über neutroneninduzierte Spaltung betrachten.

Für den U-235-Nachweis in gering angereicherten BE schränken die folgenden Forderungen den Energiebereich der induzierenden Neutronen ein:

- a) Das Spektrum soll einen so geringen Anteil über der Spaltschwelle haben, daß der wesentliche Anteil der Spaltungen in ^{235}U stattfindet.
- b) Das Spektrum soll einen so geringen Anteil im Resonanzbereich des ^{238}U haben, daß im BE die Selbstabschirmung keine Rolle spielt.

- c) Verwendet man die Quelle nicht im gepulsten Betrieb mit der Messung der verzögerten Neutronen, sondern im stationären Betrieb, so muß a) so verschärft werden, daß die induzierten Spaltneutronen von den Primärneutronen energetisch unterschieden werden können.

Bei den Verfahren, die hochenergetische Neutronenquellen (Kalifornium oder 14 MeV-Neutronengeneratoren) zusammen mit Moderatoren verwenden ("spectrum tailoring" /8/), lassen sich (b) und (a) nicht gleichzeitig erfüllen. Dies gelingt mit einem Van-de-Graaff-Generator bei Verwendung der (p,n)-Reaktion an Lithium /7/. Wegen des apparativen Aufwands betrachten wir diese Möglichkeit hier nicht weiter.

Eine weitere Möglichkeit bietet die Sb-Be-Quelle. ^{124}Sb , das im Reaktor durch Neutronenaktivierung erzeugt wird, hat eine Halbwertszeit von 60 Tagen und emittiert γ -Strahlung von 1,7 MeV. Diese erzeugt an ^9Be Photoneutronen von etwa 26 keV mit kleineren Anteilen bei 360 keV und 550 keV /10/. Diese Neutronenenergien liegen einerseits unter der Spaltschwelle von ^{238}U (Forderung a), andererseits über dem Resonanzgebiet (Forderung b). In Rückstoßproportionalzählrohren lassen sich die Spaltneutronen durch Impulshöhendiskrimination von den Quellneutronen unterscheiden, womit Forderung c erfüllt ist. Die Methode, mit den Photoneutronen von Be das Brennelement zu bestrahlen und gleichzeitig die Neutronen der induzierten Spaltung zu messen, scheint die mit dem geringsten Aufwand zu verwirklichende zu sein. In einer Versuchsanordnung wurde deshalb untersucht, welche Probleme bei der praktischen Durchführung auftreten und welche Meßgenauigkeit erreicht werden kann.

3. Versuchsdurchführung

3.1. Mechanischer Aufbau

Die Meßapparatur wurde freistehend in einem mit Schwerbetonsteinen abgetrennten Teil einer Experimentierhalle aufgebaut. Mittels einer einfachen Fernbedienung kann eine im Handel erhältliche ^{124}Sb -Quelle von 23 mm Durchmesser und 65 mm Höhe aus dem im Boden eingelassenen Quellschacht in ein Berylliumgehäuse von 14 mm Wandstärke eingebracht werden.* Darin werden nominell $13,9 \cdot 10^6$ n/(sec·Ci) freigesetzt. Die Quelle wurde im Reaktor FR2 auf 100 Ci aktiviert, so daß Neutronenquellstärken von einigen 10^8 n/s zur Verfügung standen. Die Quelle befand sich in etwa 1 m Höhe in einer 15 cm starken biologischen Abschirmung aus Bleisteinen. Die Zählrohre werden durch ein 15 cm starkes und 40 cm hohes massives Bleisegment vor der intensiven γ -Strahlung abgeschirmt (vgl. Abb. 3a). Davor ist, symmetrisch zur Quellebene, das Brennelementmodell auf einem Drehteller um seine Längsachse drehbar angeordnet. Der Abstand der Drehachse zur Quelle beträgt 37 cm.

Das Brennelement (BE) besteht aus 7x7 Stäben, die in einem Aluminiumrahmen mit einem Gitterabstand von 18.7 mm angeordnet sind. Zur Abschirmung raumgestreuter thermalisierter Quellneutronen ist das BE in 1 mm starkes Cd-Blech gehüllt.

Die Brennstäbe sind 550 mm lang und haben einen äußeren Durchmesser von 16 mm. Das Hüllrohr besteht aus Zirkaloy 2 mit 0.8 mm Wandstärke. Der Brennstoff liegt in Form von UO_2 -Pellets vor mit Anreicherungen von 2% ^{235}U (49 Stäbe) und 2.5% (24 Stäbe). Die Pelletsäule ist 505 mm hoch und enthält 653 g UO_2 pro Stab. Außerdem stehen 49 Stäbe mit Bleifüllung zur Verfügung.

Die 8 Protonenrückstoßproportionalzählrohre bestehen aus 1 mm starkem Edelstahlrohr. Sie haben einen Außendurchmesser von 45 mm, eine aktive Länge von 1 m und sind mit Methan von 3 at

*) Quelle mit der Bezeichnung ABC 2 und Berylliummantel H.529 des Radiochemical Centre, Amersham

gefüllt. Sie können auf einer kreisförmigen Halteschiene auf einem Durchmesser von 29 cm konzentrisch zum BE verschoben werden und sind symmetrisch zur Quellebene angeordnet.

Im Verlauf der Experimente wurden Neutronenreflektoren aus Titan- bzw. Nickelblechen sowohl hinter der Quelle als auch in zwei Konfigurationen um das BE herum eingesetzt (Aufbau 2 und 3 in Abb. 3).

3.2. Meßelektronik

Die Zählrohre sind einseitig mit einer Schutzringanordnung versehen, an der die volle Betriebsspannung von 3600 V liegt. Je 2 Zählrohre sind parallel auf einen Vorverstärker geschaltet, der sich unmittelbar an den Zählrohren im hohen Strahlungsfeld der Quelle befindet. Der Arbeitswiderstand beträgt 10 M Ω . Unmittelbar hinter der ladungsempfindlichen Eingangsstufe des Vorverstärkers (ELSCINT CA-N-270) durchlaufen die Impulse ein LRC-Netzwerk mit einer Zeitkonstanten von etwa 30 ns. Dadurch werden, wie in Abschnitt 4.1. noch beschrieben wird, die störenden γ -Impulse in ihrer Amplitude gegenüber den Neutronenimpulsen etwa um den Faktor 3 reduziert. Damit wird die Gefahr von Pile-up an der frühest möglichen Stelle optimal reduziert.

Die Gauß-geformten Impulse gelangen danach in die hinter der Betonabschirmung zugänglichen Hauptverstärker (ELSCINT CAV-N-1, modifiziert) und in die Einkanaldiskriminatoren (ELSCINT SCA-N-4). Außer den Zählraten wurden folgende Größen gemessen (Abb.4) und periodisch während des Meßzyklus registriert:

HV	Die gemeinsame Hochspannung der Zählrohre.
U_D	Die Diskriminatorspannung jedes der vier Meßkanäle.
"220 V"	Eine der Netzspannung proportionale Referenzspannung.
T_1, T_2	Die Temperatur eines der Zählrohre sowie die Gehäuse-temperatur des zugehörigen Vorverstärkers.

Zur Messung der Gleichspannungen und der Werte der Thermo-
widerstände (NTC) wird ein extern programmierbares Digital-
voltmeter (DANA DVM Modell 5333) mit einer Anzeige von 5 De-
kaden + 20% Überlauf verwendet.

Die Datenerfassung und Experimentsteuerung geschieht in einem
CAMAC-System. Dazu gehören ein 8K-Rechner vom Typ HP 2100A,
ein Controller Borer HP-CC Type 1531, sowie ein Überrahmen
mit den folgenden Einschüben:

- (1) 3 Quadscaler für die 4 Meßkanäle und den Monitor
(BORER Quad-Scaler Type 1004), wobei je 2 12-bit-
Zähler zu einem 24-bit-Zähler zusammengeschaltet
sind.
- (2) 1 SIEMENS Timer, dessen Zeitbasis durch zwei zu-
sätzliche Dekadenuntersetzer auf 1 kHz herunter-
geteilt wird, um zu häufige Alarme beim Überlauf
des Timers zu vermeiden. Die Steuerung der Zähler-
gates erfolgt über externe Verbindungen.
- (3) 1 Realzeituhr (LEM-52/25.2), die Tage, Stunden und
Minuten anzeigt. Mit Hilfe der Uhr können einfach
Anfangs- und Endzeiten der Meßzyklen festgehalten
und beispielsweise der radioaktive Zerfall der Sb-
Quelle über mehrere Meßperioden hinweg laufend
korrigiert werden.
- (4) Zwei 15-Kanal-Multiplexer (BORER Type 1701). Ein MPX
wird dazu verwendet, um verschiedene Analsignal-
quellen bzw. die Thermowiderstände an das DVM anzu-
schließen. Mit dem zweiten Multiplexer (MPX 2) wird
bei einer Meßserie periodisch die Diskriminatorschwelle
eines Meßkanals heruntersgesetzt (vgl. 4.4.).
- (5) 1 Input-Output-Register (BORER Type 1031), über das
die Funktion und die Meßbereiche des Digitalvoltmeters
gesteuert und seine Meßergebnisse übernommen werden.

Für die Steuerung des Timers und des Digitalvoltmeters sowie für die Abfrage der Realzeituhr wurden zur Vereinfachung der Bedienung ASSEMBLER-Unterprogramme geschrieben. Die Funktion der verschiedenen Moduln kann an einem Sichtgerät überprüft werden. Die Meßergebnisse werden wahlweise über Lochstreifen oder/und Fernschreiber ausgegeben. Zum Einlesen der Programme bzw. Programmsysteme steht ein optischer Lochstreifenleser zur Verfügung.

3.3. Auswertung

Das Meßprogramm des Kleinrechners gestattet die Eingabe der Dauer eines Meßzyklus sowie die Zahl der Meßzyklen. Während eines Meßzyklus wird alle 20 s die Messung der Zählraten unterbrochen, um die Analogsignale zu erfassen. Nach Ablauf eines Meßzyklus (typisch 100 s) werden die Zählraten sowie die Mittelwerte der Analogsignale über Lochstreifen ausgegeben. Die Meßzeit des Digitalvoltmeters (250 ms pro Meßwert) sowie die Ausgabe verlängern die reine Meßzeit um etwa 10%. Zu Beginn und am Ende des Programms werden Datum und Uhrzeit sowie die Gesamtdauer der Messung über den Fernschreiber ausgedruckt.

In Auswerteprogrammen werden zunächst die Zählraten auf mögliche Störungen hin untersucht. Meßwerte, die mehr als 4σ über dem Mittelwert liegen, bzw. Meßwerte, deren zugehörige Monitorzählrate entsprechend abweicht, werden als gestört betrachtet und aussortiert. Sodann werden die Zählraten bezüglich des stationären Untergrundes und der Abnahme von Quellstärke und Quelluntergrund durch den radioaktiven Zerfall des Sb-124 korrigiert. Schließlich wird eine Korrektur vorgenommen, die die Abweichung der die Zählrate beeinflussenden Parameter (z.B. Temperatur) gegenüber einem Sollwert berücksichtigt. Ausgedruckt werden die Mittelwerte der Zählraten sowie zur Kontrolle der Güte der Messung die Zahl der brauchbaren Einzelmessungen.

Die Gesamtmeßzeit wurde so gewählt, daß die statistische Genauigkeit der Zählraten besser als 1% war, in praxi zwischen 5 und 60 Minuten bei einer Beladung des Elements mit 565 g ^{235}U .

4. Vergleich der Zählgase CH_4 und ^4He

Die hier beschriebene Meßmethode beruht im wesentlichen darauf, Spaltneutronen in Gegenwart eines Untergrundes von γ -Strahlung und niederenergetischen Neutronen zu zählen. Die Möglichkeit dazu ist durch die Verwendung von Rückstoßproportionalzählrohren (ZR) gegeben, wobei nach der von der Energie des nachgewiesenen Teilchens abhängigen Impulshöhe diskriminiert wird. Die langsamer ansteigenden γ -Impulse werden durch Differentiation mit einer geeigneten Zeitkonstanten gegenüber den Neutronenimpulsen zusätzlich unterdrückt. Als Rückstoßkerne kommen ^1H oder ^4He in Betracht /2,10/. Als Argumente für das ^4He -Zählrohr gegenüber dem CH_4 -Zählrohr sind besonders der Verlauf des Streuquerschnitts (vgl. Abb.2 nach /12/) und die Anisotropie der Streuung zu werten. Der Streuquerschnitt besitzt ein ausgeprägtes Maximum bei 1 MeV und bevorzugt dadurch Spalt gegenüber den niederenergetischen Quellneutronen. Die bevorzugte Vorwärtsstreuung des ^4He -Kerns verringert die Streuung der Energiewerte der Rückstoßkerne (vgl. /10/ oder Kurve 4 in Abb.5), was für die Stabilität der Diskriminatoreinstellung günstig ist. Weiterhin spricht die niedrigere Betriebsspannung für ^4He . Gegen das ^4He -Zählrohr spricht der hohe Fülldruck, der nötig ist, um gleiche Empfindlichkeiten wie mit CH_4 -gefüllten Protonrückstoßzählern zu erhalten. Um die Entscheidung für ein bestimmtes Zählgas experimentell abzusichern, wurden die 4 in Tabelle 4.1. aufgeführten Zählrohre untersucht.

Tabelle 4.1. Verwendete Zählrohre

Bezeichnung	Hersteller	Füllgas	Fülldruck [at]	Durchmesser [mm]	Betriebsspannung [V]
B	Berthold	CH ₄	3	45	3600
M1	Reuter Stokes	CH ₄	3	38,5	2200
M2	"	CH ₄	4,5	38,5	2600
HE	"	He	18	38,5	1400

4.1. Energieeichung der Zählrohre

Die zur Normierung der Impulshöhenspektren benötigte Energieeichung wurde über die ${}^3\text{He}(n,p)t$ -Reaktion mit ihrem Q-Wert von 764 keV durchgeführt. Im He-ZR wurde der natürliche ${}^3\text{He}$ -Gehalt ($1,37 \cdot 10^{-4}\%$) ausgenützt, im CH₄-ZR vom Typ B wurden Spuren von ${}^3\text{He}$ eingebracht. Die Anstiegszeiten der Impulse im Methan sind so kurz, daß im Verstärker Zeitkonstanten $\tau \leq 0,1 \mu\text{s}$ verwendet werden können. Mit 50 ns wurde der 764 keV-Peak mit 6% Halbwertsbreite aufgelöst. Im Helium sind die Anstiegszeiten so lang, daß mit $\tau = 1 \mu\text{s}$ der Peak gerade erkennbar wurde. Die Impulshöhenspektren wurden so normiert, daß gleiche Impulshöhe gleicher Neutronenenergie entspricht.

4.2. Nachweis von monoenergetischen Neutronen

Es wurden die Impulshöhenspektren für 1 MeV-Neutronen am van-de-Graaff-Generator aufgenommen, wobei die Zählrohrachse auf das Target wies (Abb.5). Aus der Abhängigkeit von der Betriebsspannung wurde die Gasverstärkung gewonnen, die im folgenden auf 10 eingestellt wurde. Die zugehörigen Spannungen stehen in Tabelle 4.1. Der beim He-ZR notwendige Wert ist sehr viel niedriger als der für die CH₄-ZR.

Wandeffekte, die ein "Abschmelzen" der Impulshöhenverteilung zu kleineren Impulsen hin zur Folge haben, nehmen mit wachsendem Druck und Durchmesser ab, d.h. die Kurven 1 und 3 in Abb.5 verlaufen flacher als Kurve 2.

Das Energieauflösungsvermögen nimmt mit wachsendem Druck ab, wie man am hochenergetischen Teil des Spektrums erkennt. Der Effekt ist für ^4He besonders ausgeprägt (Kurve 4). Dabei werden auch die Impulsanstiegszeiten länger.

4.3. γ -n-Diskriminierung

Die wegen des kleinen (γ, n) -Wirkungsquerschnitts am ^9Be notwendigen hohen γ -Quellstärken führen zu großen Untergrundzählraten, wenn nicht genügend Blei als Abschirmung verwendet wird. Man kann den γ -Anteil am Untergrund aber auch elektronisch stark reduzieren.

Der Nachweis von γ -Strahlen erfolgt über schnelle Elektronen, die durch Compton-Prozesse aus der Zählrohrwand freigesetzt werden. Die spezifische Ionisation der Elektronen im Zählgas (Ionenpaare pro Wegeinheit) ist klein. Dadurch ergeben sich Ionisationsspuren von der Länge des Zählrohrdurchmessers, was lange Sammelzeiten und damit lange Anstiegszeiten des γ -Impulses zur Folge hat. Protonen dagegen werden auf kurzen Strecken abgebremst und führen zu schnellen Impulsanstiegen. Durch Anpassung der Zeitkonstanten des Verstärkers an die Anstiegszeit der Protonimpulse werden die Amplituden der langsameren γ -Impulse verkleinert. Durch Messung der Häufigkeitsverteilung der Impulse als Funktion der zwei Parameter Impulshöhe und Impulsanstieg (Amplitude des mit der Verstärkerzeitkonstanten "differenzierten" Impulses) konnte die n- γ -Diskriminierung in Abhängigkeit von der Zeitkonstanten bestimmt werden. Abb.6a zeigt einen "Horizontalschnitt" durch die Verteilung, gemessen mit ZR M2 bei der Zeitkonstanten $\tau = 50$ ns. Zur Verdeutlichung wurden in Abb.6b schematisch zwei Kurven konstanter Häufigkeit

herausgezeichnet. Die Steigungen der verschiedenen Äste der Verteilung sind ein Maß für die Anstiegszeit t_A der Impulse, die als die Zeit definiert ist, die der Impuls benötigt, um von 10% auf 90% der maximalen Amplitude anzusteigen. Es existiert eine maximale Steigung, die von Impulsen mit Anstiegszeiten $t_A \leq \tau$ herrührt. Sind die Anstiegszeiten länger, so resultiert ein Ast geringerer Steigung. Das Verhältnis der beiden Steigungen gibt an, wie stark die Amplitude der langsameren Impulse reduziert wird. In Abb.7 ist die n- γ -Diskriminierung für die Zählrohre B und HE als Funktion der Zeitkonstanten dargestellt. Aus dieser Darstellung sieht man, daß das Methan-ZR ein besseres Diskriminationsvermögen besitzt. Außerdem wird deutlich, daß die Anstiegszeiten für das Helium-ZR etwa um den Faktor 10 höher liegen, was bei hohen Zählraten zu größeren Pile-up-Problemen führt.

4.4. Unterscheidung von Spaltneutronen und Untergrund

Für die Zählrohre B und HE, bei denen die Energieeichung durchgeführt werden konnte, wurden die Impulshöhenspektren des γ -Untergrunds, der Quellneutronen (zusammen mit der γ -Strahlung) sowie des die Spaltneutronen enthaltenden Gesamtsignals gemessen.

Das γ -Spektrum (Kurvenpaar 1 in Abb.8a) liegt bei HE aus zwei Gründen relativ höher als beim ZRB. Erstens übernehmen die ^4He -Kerne maximal 16/25 der Neutronenenergie und erscheinen damit relativ kleiner, zweitens konnte nur bei einer γ -n-Diskrimination von 1,3 gemessen werden, da die Verstärkerzeitkonstanten wegen der sonst nicht durchführbaren Energieeichung relativ groß sein mußten (CH_4 -ZR B mit $\tau = 50 \text{ ns}$, He-ZRHE mit $\tau = 1 \mu\text{s}$)
 Kurvenpaar 2 zeigt die Impulshöhenverteilung des Quelluntergrunds (Neutronen + γ -Strahlung, aufgenommen mit Aufbau 2, Abb.3a in der Position von Meßkanal II, wobei die Brennstäbe zur Realisierung ähnlicher Bedingungen durch Bleistäbe er-

setzt wurden). Die weit größere Empfindlichkeit des CH_4 -ZR für die 26 keV-Neutronen führt zu einem deutlich sichtbaren pile-up und zeigt den erwarteten Vorteil des HE-ZR. Die weiteren im Quellspektrum vorhandenen Anteile von 360 keV und 550 keV dagegen werden durch die bevorzugte Vorwärtstreuung des ^4He hervorgehoben und verschlechtern im Energiebereich von 400-600 keV, verglichen mit dem CH_4 -Zählrohr, das Signal-zu-Untergrund-Verhältnis.

Das Kurvenpaar 3 zeigt den Gesamteffekt bei einer Beladung des Brennelements mit 49 Stäben von 2% Anreicherung, entsprechend 565 g ^{235}U . Im Energiebereich von 400-600 keV ist demnach das Methan dem He überlegen. Legt man die Diskriminatorschwelle über diesen Bereich, so sind die beiden Typen äquivalent.

Die Verteilungen in Abb.8a wurden bei einer ^{124}Sb -Aktivität von 10 Ci aufgenommen. In der Praxis wird man zur Erzielung kurzer Meßzeiten jedoch höhere Werte verwenden. Dabei spielen Pile-up-Effekte eine Rolle. Deren Abhängigkeit von der Quellstärke und dem Ort des Zählrohrs ist aus Abb.8b für das Methan-ZR zu entnehmen. Die Impulshöhenverteilungen wurden an der Anordnung 2 (Abb.3a) gemessen, Kurvenpaar 1 und 3 wurden mit Meßkanal II bei ^{124}Sb -Aktivitäten von 80 Ci bzw. 10 Ci gemessen. Das Kurvenpaar 2 zeigt die Verhältnisse für Meßkanal IV, also im Quellstrahlungsschatten des Brennelements, ebenfalls bei einer Aktivität von 80 Ci. Die Pile-up-Effekte werden dann wesentlich von den Quellneutronen hervorgerufen. Für die He-gefüllten ZR erwartet man größere Effekte, so daß insgesamt Methan als Füllgas vorzuziehen ist.

Für die in Aufbau 1 realisierte Geometrie beträgt die totale Nachweiswahrscheinlichkeit ϵ für ein im Brennelement freigesetztes Spaltneutron bei einer Diskriminatorschwelle von 600 keV, Meßkanal IV,

$$\epsilon = 1,5 \cdot 10^{-4}$$

die spezifische Zählrate s , bezogen auf die Aktivität der Quelle und die Anreicherung

$$s = 4 \cdot 10^{-2} / (\text{sec} \cdot \text{Ci} \cdot \% \text{ Anreicherung})$$

4.5. Zusammenfassung der Zählrohruntersuchungen

- Der Gasverstärkungsprozeß läuft in dem CH_4 -Zählrohr um mehr als den Faktor 10 schneller ab als im He-ZR.
- Durch Differentiation der Zählrohrimpulse mit geeigneten Zeitkonstanten kann man n- γ -Diskriminierungen von 3 bis 3,5 mit CH_4 - und 2 bis 2,5 mit He-Zählrohren erreichen.
- Für eine Meßanlage mit Sb-Be-Neutronen ist Methan als Zählgas dem Helium vorzuziehen.
- Bei Zählrohren im Quellstrahlungsschatten kann man die Diskriminatorschwelle fest bei 600 keV setzen. Dann beträgt das Signal-zu-Untergrund-Verhältnis bei ^{124}Sb -Aktivitäten von 100 bis 10 Ci (entsprechend einer Abnahme der Quellaktivität über 200 Tage) rund 100:1. Verwendet man Zählrohre in der Nähe der Quelle, dann sollte man die Diskriminatorschwelle je nach Aktivität der Quelle zwischen 600 und 1200 keV legen.

5. Reflektoruntersuchungen:

Die hohe Aktivität des ^{124}Sb , die einem sowohl in der Handhabung der Quelle als auch in der Impulsverarbeitung gewisse Beschränkungen auferlegt, läßt eine Verbesserung der Neutronenökonomie wünschenswert erscheinen. Eine Möglichkeit hierzu bietet die Verwendung von Neutronenreflektoren, wie sie in Abb. 3a und 3b dargestellt ist.

Als Reflektormaterial bieten sich Nickel und Titan an, da diese Metalle im Energiebereich um 20 keV Streuresonanzen aufweisen (vergl. Abb. 9). Ein 20 mm dicker Reflektor hinter der Quelle soll die Neutronen zurückstreuen, die die Quelle nicht in Richtung Brennelement verlassen. Bei ausreichender Höhe (40 cm), also annähernd 2π -Geometrie, wurde mit Nickel eine Erhöhung der Nutzzählrate um rund 60 % erzielt (Ti 47 %). Die Tatsache, daß trotz des höheren Streuquerschnittes des Titans im Energiebereich der Photoneutronen (theoretischer Wert $E_n = 26 \pm 1,5$ keV, vergl. [107]) der Effekt für Nickel größer ist, läßt darauf schließen, daß ein großer Teil der Neutronen bereits im Be-Konverter der Quelle zu niedrigeren Energien hin gestreut wird (mittlerer Energieverlust pro Stoß $\Delta E = 5$ keV). Im Resonanzbereich der Streuquerschnitte beträgt die mittlere freie Weglänge in den Reflektoren nur wenige Millimeter, so daß die Neutronen dort weiter Energie verlieren (im Mittel 1 keV pro Stoß). Insgesamt wird das Spektrum so weich, daß die Resonanz des Nickels oberhalb 15 keV den Reflektorgewinn bestimmt.

Dies gilt insbesondere für die Reflektoren hinter den Zählrohren (Höhe 60 cm, Breite 50 cm, Krümmungsradius 20 cm), da die mittlere Energie der Quellneutronen allein in dem 15 cm dicken Bleisegment von $E_n = 26$ keV auf $\bar{E}_n = 21$ keV reduziert wird (vergl. [107]). In Abb. 10 ist der Reflektorgewinn in Abhängigkeit von der Dicke dargestellt. Der Gewinn ist für die Zählrohrgruppe IV, die am weitesten von der Quelle entfernt ist, mit 55 % für 13 mm Ni und mit 37 % für 20 mm Ti am größten. Dabei bringen die Reflektoren in diesen beiden Fällen jeweils 20 % Zählratengewinn allein

durch Rückstreuung von Spaltneutronen in die Zählrohre. Dieser Anteil am Reflektorgewinn nimmt mit der Entfernung vom Reflektor ab und verschwindet für die Zählrohrgruppe I. Die Tatsache, daß man noch keine Sättigung des Reflektorgewinns erreicht hat, ist vermutlich vor allem der Rückstreuung der Spaltneutronen zuzuschreiben (Σ_{total} für Spaltneutronen beträgt etwa $0,18 \text{ cm}^{-1}$ für Ti und $0,29 \text{ cm}^{-1}$ für Ni).

Bei der im folgenden Abschnitt beschriebenen Untersuchung von Geometrieeffekten wurden für eine Meßreihe mit 2 je 16 mm dicken Nickelreflektoren (vergl. Abb. 3b, Aufbau 3) eine Erhöhung der Zählrate um den Faktor 2,3 für die Zählrohrgruppen I bis III gemessen.

Insgesamt kommt man für die Verwendung von Reflektoren zu folgendem Ergebnis:

- Als Reflektormaterial für die Neutronen einer Sb-Be-Quelle ist Nickel besonders geeignet
- Die Erhöhung der Zählrate für die in Abb. 3b gezeigte Anordnung beläuft sich auf einen Faktor 3.65 und setzt sich zusammen aus:
 - (1) Erhöhung der nutzbaren Quellstärke: Faktor 1.6
 - (2) Erhöhung der Spaltrate im Element: Faktor 1.9
 - (3) Erhöhung der Spaltneutronennachweiswahrscheinlichkeit: Faktor 1.2
- Die Reflektordicke sollte etwa eine Transportweglänge für Spaltneutronen $1/\Sigma_{\text{tr}} = 3,5 \text{ cm}$ betragen.

6. Geometrieeffekte

Eine wichtige Bedingung, die an die Meßmethode gestellt werden muß, ist die Unabhängigkeit der Nachweiswahrscheinlichkeit vom Ort des Spaltstoffs im Brennelement, eine Forderung, die bei den vorliegenden Geometrieverhältnissen nicht leicht zu erfüllen ist.

Das Spektrum und vor allem die Intensität der induzierenden Neutronen hängt außer von den im vorangehenden Abschnitt diskutierten Größen wesentlich vom Ort im Brennelement ab. Dasselbe gilt für die Nachweiswahrscheinlichkeit von Spaltneutronen, da sich durch die Nähe der Zählrohre zum Brennelement starke Raumwinkelunterschiede ergeben. Einen Einblick in die Abhängigkeit von Spaltrate und Spaltneutronennachweiswahrscheinlichkeit vom Azimutwinkel zeigen die Kurven in Abb. 11, die mit einer kleinen ^{235}U -Spaltkammer bzw. mit einer ^{252}Cf -Quelle von 10^4n/s an der Anordnung 1 (vergl. Abb. 3a) in der Mittelebene des Brennelements (BE) in den Eckpositionen gemessen wurden

Zur quantitativen Untersuchung der Ortsabhängigkeit wurde ein hoch angereicherter Stab in 10 Positionen der BE-Matrix eingesetzt und das BE während der Messungen mit einer Frequenz von 0,5 Hz um die Längsachse gedreht. Die relative Zählratenerhöhung durch den zusätzlichen Spaltstoff ist in Abb. 12 für die verschiedenen Zählrohrgruppen dargestellt. Da sich für die Zählrohrgruppe 3 die gegenläufigen Änderungen von Spaltrate und Nachweisempfindlichkeit entlang des BE-Durchmessers offenbar gerade kompensieren, ergeben sich dafür die besten Ergebnisse: Die Nachweiswahrscheinlichkeit ist im Rahmen der Meßgenauigkeit unabhängig vom Ort des Spaltstoffs.

Die Verwendung des Reflektors hinter den Zählrohren in Anordnung 2 läßt einen flacheren Flußverlauf und damit eine Verschlechterung der oben erwähnten Kompensation erwarten. Da der Reflektor außerdem Rückstreuung der Spaltneutronen gerade in den reflektornahen Positionen erhöht, werden in dieser Konfiguration die Eckstäbe von den Zählrohrgruppen bevorzugt gemessen. In Tab. 6.1 sind die

Ergebnisse der Messungen ohne Reflektor und mit Reflektor in Anordnung 2 gegenübergestellt. Die Ortsabhängigkeit wird durch den Reflektor so stark verändert, daß sie nicht mehr akzeptabel ist.

Meßkanal	I		II		III		IV	
	M	E	M	E	M	E	M	E
ohne Refl.	18	33	18,5	31,5	21,5	28	26	25,5
mit Refl.	16,5	29	18	29,5	20	26,5	22	29

Tabelle 6.1

Relative Zählratenerhöhung $\langle \bar{x} \rangle$ durch Einsetzen eines hochangereicherten Stabes in die Brennelementmitte (M) bzw. in eine Eckposition (E) für Aufbau 2.

Da der Intensitätsgewinn durch den Reflektor einen großen Vorteil bringt, wurde versucht, die Nachteile mit einer Art Rotationskollimationsmethode $\langle \bar{13} \rangle$ wieder zu beseitigen. Dabei wird (Anordnung 3, Abb.3b) der Reflektor von einem Spalt (120 mm) durchbrochen, hinter dem die Detektoren stehen. Die Bevorzugung der Randzonen, insbesondere der Ecken, durch Reflexion der Spaltneutronen in die Zählrohre wird dadurch vermieden. Des weiteren wird der Einfluß der Randzonen durch die Kollimation verringert, da sie sich während einer Umdrehung auch durch Schatten- und Halbschattengebiete bewegen und nur bei Durchgang durch den Spalt einen wesentlichen Beitrag zur Zählrate liefern, wohingegen die zentralen Bereiche des BE während der ganzen Umdrehung für die Zählrohre sichtbar bleiben.

Die Ergebnisse der Messungen für die 10 verschiedenen Matrixpositionen und die verschiedenen Zählrohrgruppen sind in Abb.12b dargestellt. Es zeigt sich, daß die hinteren Zählrohrgruppen diesmal die mittleren Bereiche des Brennelements gegenüber den Randbereichen leicht bevorzugen!

Die Zählrohrgruppe IV im Inneren des Reflektors bevorzugt weiter-

hin die Randbereiche des Brennelements. Da sich innerhalb des Reflektors mehr Zählrohre unterbringen lassen als im Spalt und die Zählrate durch den Gewinn an rückgestreuten Spaltneutronen etwa 20 % höher ist, wird man, wenn es auf kurze Meßzeiten ankommt, auf diese Zählrohrpositionen nicht verzichten. Die Zählratenbeiträge der einzelnen Stäbe für die Zählrohre im Spalt und die innerhalb des Detektors sind unabhängig voneinander und weisen sogar gegenläufige Tendenzen auf.

Bezeichnet man die Menge des Brennstoffs im i -ten Stab des aus I Stäben bestehenden Brennelements mit m_i und den Beitrag eines Gramms davon zur Zählrate Z_j der j -ten Zählrohrgruppe mit z_{ij} , so gilt

$$Z_j = \sum_{i=1}^I m_i z_{ij}$$

Wichtet man die einzelnen Zählrohrgruppen mit Faktoren w_j , so kann man eine "Systemantwort" Z konstruieren:

$$Z = \sum_j w_j Z_j = \sum_j \sum_i w_j m_i z_{ij} = \sum_i m_i \sum_j w_j z_{ij}$$

Im allgemeinen wird der Beitrag $z_i = \sum_j w_j z_{ij}$ aus Stab i zur Systemzählrate von i abhängen. Diese Ortsabhängigkeit läßt sich verkleinern, wenn man die Gewichte so bestimmt, daß $S = \sum_i (z_i - \sum_j w_j z_{ij})^2$ minimal wird. Dadurch läßt sich schreiben:

$z_i \approx \sum_j w_j z_{ij}$ und damit als Maß für die Gesamtmasse $M = \sum_i m_i$:

$$Z \approx \sum_i m_i z' = z' \cdot \sum_i m_i$$

Eine solche Optimierung wurde mit den in Abb. 12b angeführten z_{ij} durchgeführt. Abb. 12c zeigt die Ortsabhängigkeit der linear kombinierten Zählraten z'_i bezogen auf die mittlere Zählrate z_0 pro Stab.

Es stellt sich heraus, daß es möglich ist, bei Ausnutzung der

günstigen Eigenschaften der Reflektoren die Ortsabhängigkeit der Spaltstoffnachweiswahrscheinlichkeit in radialer und azimuthaler Richtung bei dieser Meßmethode auf 10 % für einen einzelnen Stab zu reduzieren. Bezogen auf den gesamten Spaltstoffgehalt des Brennelements bedeutet dies eine Unsicherheit von 0,2 %.

Bei der Messung von ganzen BE ergibt sich die Notwendigkeit, über die Gesamtlänge des BE zu integrieren. Man benötigt dazu eine Vorrichtung, die es erlaubt, das Brennelement während der Messung rotierend und unter Einhaltung der radialen Abstände entlang der Längsachse durch die Meßapparatur zu verfahren.

7. Stabilitätsfragen

Wie schon einleitend zu Kapitel 3 erwähnt wurde, ergab die wiederholte Messung einer bestimmten Brennelementzusammensetzung Abweichungen, die weit außerhalb der statistischen Genauigkeit lagen. Als mögliche Störquellen wurden Schwankungen der Diskriminatorschwellen, der Hochspannung, sowie Temperatureffekte angenommen. Zur Klärung des Phänomens wurden deshalb die in Abschnitt 3.2. genannten Größen, nämlich Diskriminatorspannungen, Hochspannung, Zählrohr- und Vorverstärkertemperatur von Meßkanal IV, die Netzspannung sowie für Kanal IV eine Kontrollzählrate, in einem Dauerversuch registriert.

Da die Drifteffekte bei kleinen Zählraten in den statistischen Schwankungen untergehen, wurde zur Untersuchung der Temperaturabhängigkeit die Kreuzkorrelationsfunktion

$$KK_x(\tau) = \int_0^{\text{Ende}} x(t+\tau) T(t) dt$$

der verschiedenen zeitabhängigen Größen $x(t)$ mit der Zählrohrtemperatur $T(t)$ berechnet. Es stellt sich heraus, (vergl. Abb. 13) daß die Zählrate, aber auch die Diskriminatorschwelle

und die Hochspannung, mit der Temperatur verknüpft sind. Der geringe Phasenunterschied der T, HV-Korrelationsfunktion gegenüber der T-Autokorrelationsfunktion läßt darauf schließen, daß diese Abhängigkeit vor allem durch das Hochspannungssiebglied und den Spannungsteiler verursacht wird, die wie das Zählrohr der Raumtemperatur direkt ausgesetzt sind. Der Einkanaldiskriminator befindet sich in einem Geräteschrank und folgt der Raumtemperatur entsprechend mit einer Verzögerung von etwa 40 min. Die Zählrate folgt der Temperatur ebenfalls verzögert.

Die Abhängigkeit der Zählrate von Diskriminatorschwelle und Hochspannung läßt sich durch die Aufnahme von Plateaukurven experimentell bestimmen. Es zeigt sich, daß man eine korrigierte Zählrate Z_0 aus der gemessenen Zählrate Z aus der Beziehung

$$Z_0 = Z \cdot \exp\left(-k_1 \cdot (HV - HV_0)\right) \cdot \exp\left(k_2 \cdot (U_D - U_{D0})\right)$$

erhält, wobei für den speziellen Fall galt

$$\begin{aligned} k_1 &= 2,83 \cdot 10^{-3}/V \\ k_2 &= 4,33 \cdot 10^{-3}/mV \end{aligned}$$

Der Index 0 deutet auf die Parameter zum Anfangszeitpunkt der Messung hin.

Da die Temperaturabhängigkeit dieser beiden Parameter HV und U_D bestimmt wurde (vgl. Tab. 7.1.), konnten die über sie wirksamen Temperaturschwankungen bestimmt werden. Berechnet man nun die Korrelationsfunktion der korrigierten Zählraten mit der Temperatur, so zeigt sich, daß weiterhin eine, etwa um den Faktor 3 reduzierte, Temperaturabhängigkeit der Zählrate besteht. Die Untersuchung der Vorverstärker-Hauptverstärker-Kombination aber ergab eine Abnahme der Verstärkung mit der Temperatur (vgl. Tab. 7.1.), die aus einer Abnahme im Vorverstärker und einer schwachen Zunahme im Hauptverstärker resultiert. Die verbleibende Zunahme der Zählrate mit der Temperatur beruht auf dem im folgenden beschriebenen Zählrohr-effekt.

In Abb. 14 ist die Abhängigkeit der Zählrate von der Zählrohrtemperatur für verschiedene Strahlungsfelder dargestellt. Die Zunahme der Zählrate beruht demnach vor allem auf der Zunahme der γ -Zählrate. Die Vermutung, daß die Temperaturerhöhung eine Beschleunigung des Gasverstärkungsprozesses und durch Veränderung der Anstiegszeiten eine Änderung der γ - n -Diskriminierung zur Folge hat, konnte nicht bestätigt werden: Zwei-Parameter-Messungen der in Kapitel 4 beschriebenen Art zeigten, daß sich nicht die Anstiegszeiten, wohl aber selektiv die Amplituden der γ -Impulse mit der Temperatur ändern. Dies wurde auch durch Messung mit sehr langen Zeitkonstanten ($5\mu\text{s}$) bestätigt, bei denen die Amplitude unabhängig vom Anstieg ist.

Der Grund für diesen Zählrohreffekt ist in der unterschiedlichen spezifischen Ionisation von Rückstoßkernen und schnellen Elektronen zu suchen. Die hohe Ionisation durch die Protonen führt zu einer räumlichen eng begrenzten Wolke freier Ladungsträger. Die hohe Konzentration der Ladungsträger führt zu Sättigungserscheinungen im Gasverstärkungsprozeß: der "Ladungsverstärker" Zählrohr ist übersteuert.

Im vorliegenden Fall wurden die Zählrohre offensichtlich mit einer so hohen Spannung betrieben, daß die Protonenimpulse bei dem angestrebten Wert der Gasmultiplikation von 10 bereits in die Nähe dieses Grenzwerts der Gasverstärkung kommen. Bei derselben Betriebsspannung sind die γ -Nachweisprozesse wegen der kleinen spezifischen Ionisation noch weit von solchen Sättigungserscheinungen entfernt. Dies hat zur Folge, daß einmal die Gasverstärkung insgesamt höher ist, und daß sich andererseits die Temperaturabhängigkeit des Gasverstärkungsprozesses auswirken kann, die im Fall der Protonenimpulse durch die Übersteuerung unsichtbar bleibt. Der Zahlenwert für diesen Zählrohreffekt ist ebenfalls in Tabelle 7.1. angegeben.

Tabelle 7.1.: Relative Zählratenänderungen bei 20°C:

Parameter	Temperaturgang $\Delta P/P$ pro °C	Einfluß auf die Zählrate $\Delta Z/Z$ pro °C
Hochspannung	+ 2,5 x 10 ⁻⁴	+ 0,25 %
Diskr.schwelle	- 1 x 10 ⁻⁵	0,005 %
Verstärkung	- 7 x 10 ⁻⁴	- 0,7 %
Zählrohreffekt	-	+ 0,85 %
Summe		+ 0,4 %

Der resultierende Wert von 0,4 %/°C gilt für eine Diskriminatorschwelle von 600 keV und hängt stark von der Lage der Schwelle im Pulshöhenspektrum ab.

Die Hochspannung zeigt außerdem eine Abhängigkeit von der Netzspannung von + 0,11 % pro Prozent Netzspannungsänderung, entsprechend einer Zählratenänderung von + 1 %.

Die Kontrollzählrate (bei stark herabgesetzter Diskriminatorspannung) rührt vor allem von überlagerten Quellneutronenimpulsen her. Die Schwankungen des Pile-up sind offensichtlich nicht mit der Temperatur korreliert und so hoch, daß sie alle anderen Effekte überdecken. Die Kontrollzählrate ist weder mit der Temperatur noch mit der Nutzzählrate korreliert und kann demnach zur Driftkorrektur nicht herangezogen werden.

Zusammenfassend ist zum Driftproblem festzuhalten

- Die Zählratenschwankungen gehen auf Temperatur- und Netzspannungsänderungen zurück.

- Als kritisch erweisen sich die Temperaturabhängigkeit der Verstärkung und der Hochspannung, sowie der Zählrohreffekt
- Die Schwankungen pro Grad liegen abhängig von der Diskriminatorschwelle in der Größenordnung $\pm 1 \%$.
- Die Drifteffekte, insbesondere der Zählrohreffekt, wirken sich auf die Wahl der Diskriminatorschwelle aus. Nimmt man eine Drift = Null an, so ist die Genauigkeit der Messung durch die statistische Genauigkeit von Zählrate und Untergrundzählrate bestimmt. Die Forderung nach Minimalisierung des Fehlers für eine vorgegebene Meßzeit ergibt eine relativ niedrige Diskriminatorschwelle bei kleinem Signal-zu-Untergrund-Verhältnis (SUV).

Im realistischen Fall, also beim Auftreten von Driften, führt die gleiche Forderung zu einer hohen Diskriminatorschwelle in einem möglichst flachen Bereich der Plateaukurve und, wegen des Zählrohreffekts, zu großem SUV.

Wie aus den Abbildungen 8a und 8b zu entnehmen ist, ändert sich das SUV für Zählrohre im Quellstrahlungsschatten oberhalb 600 keV nicht mehr, so daß diese Schwelle, in Übereinstimmung mit dem Ergebnis von Kap. 4, als guter Kompromiß gelten darf. Werden Zählrohre verwendet, die der Quellstrahlung ausgesetzt sind, so sollte die Diskriminatorschwelle den jeweils herrschenden Verhältnissen (Quellstärke, SUV) angepaßt werden.

- Die Betriebsspannung sollte so gewählt werden, daß die Protonenimpulse noch nicht zu Sättigungserscheinungen des Gasverstärkungsprozesses führen. Dadurch verschwindet zwar die Abhängigkeit der Zählrate von der Zählrohrtemperatur nicht (weil dann die Impulshöhe der Protonen auch temperaturabhängig wird), wohl aber werden die Amplituden des γ -Untergrundes stark reduziert, wodurch sich das SUV verbessert. In diesem Fall sollte man dann wegen der kleinen Amplituden rauscharme Vorverstärker verwenden.

8. Zusammenfassung

Es wurde eine Meßanlage zur Bestimmung des ^{235}U -Gehaltes frischer SWR-Brennelemente an einem Versuchsaufbau untersucht. Die Messung des Spaltstoffs erfolgt über neutroneninduzierte Spaltung. Die Messung beruht auf dem Nachweis der prompten Spaltneutronen in Gegenwart der induzierenden 26 keV-Neutronen einer Sb-Be-Quelle mittels Rückstoßproportionalzählrohren. Aus den Ergebnissen der beschriebenen Experimente lassen sich folgende Spezifikationen für eine Meßanlage ableiten:

8.1. Neutronenquelle

Die Neutronenquelle wird in die ^{124}Sb - γ -Quelle und einen topfförmigen ^9Be -Konverter aufgeteilt. Damit kann die Neutronenproduktion "abgeschaltet" und die Handhabung erleichtert werden. Bei Verwendung der in 5.2. spezifizierten Zählrohre können Messungen mit ^{124}Sb -Aktivitäten zwischen 10 Ci und 100 Ci ohne Veränderungen an der Apparatur durchgeführt werden. Bei einer Halbwertszeit von 60.5 d bedeutet dies, daß man nach der Aktivierung der γ -Quelle in einem Reaktor auf 100 Ci rund 200 Tage Meßzeit zur Verfügung hat, wenn man die Meßdauer pro Brennelement auf 60 Min beschränkt. Stehen längere Meßdauern zur Verfügung, so kommt man auch mit Aktivitäten unter 10 Ci aus.

Dies gilt aber nur unter der Bedingung, daß die Neutronenökonomie durch den Einsatz von Reflektoren verbessert wird:

Als Reflektormaterial ist Nickel gut geeignet, die Reflektordicke sollte 3,5-4 cm betragen. Der Reflektor hinter der Quelle sollte möglichst einen Raumwinkel von 2π erfassen, es empfiehlt sich ein die Quelle halbumfassendes Zylinderring-

segment von etwa 40 cm Höhe (vergl. Abb.3b). Der Reflektor um das Brennelement herum sollte eine Höhe von etwa 100 cm haben und von der Quelle aus gesehen einen möglichst großen Raumwinkel erfassen. Dies bedeutet, daß das Brennelement möglichst nahe an die Quelle gebracht und möglichst eng von den Reflektoren umgeben werden sollte. Auf der der Quelle gegenüberliegenden Seite wird ein Kollimatorspalt von etwa 12 cm Breite in Richtung der Längsachse freigelassen, hinter dem die Zählrohre aufgebaut werden (Abb.3b). Der durch die Verwendung dieser Reflektoren erzielbare Zählratengewinn beträgt über 350 %.

3.2. Detektoren:

Als Detektoren werden methangefüllte Protonrückstoßproportionalzählrohre verwendet. Die Länge der Zählrohre sollte 100 cm betragen. Durchmesser und Gasdruck sollten nicht zu hoch gewählt werden, weil die Impulse dadurch langsamer werden, und sich somit die Gefahr von Pile-up vergrößert. Als Richtwerte können 50 mm Durchmesser und 3at Methan gelten. Zur Vermeidung von Pile-up sollten die Zählrohre bei Spannungen betrieben werden, bei denen der Gasverstärkungsprozeß für Protonenimpulse noch nicht seinen Sättigungszustand erreicht hat. (Eine weitere Erhöhung über diesen Wert hinaus würde im wesentlichen die Amplitude der γ -Impulse erhöhen und so das Signal-zu-Untergrund-Verhältnis verschlechtern.) Dies bedeutet in der Praxis Gasverstärkungswerte von 2-5. Daraus ergibt sich die Notwendigkeit, rauscharme Vorverstärker zu verwenden. Zur Reduzierung von Pile-up sollten höchstens zwei, besser nur ein Zählrohr an einen Vorverstärker angeschlossen sein. Zur n- γ -Diskriminierung sollten die Zählrohrimpulse möglichst schon im Vorverstärker mit einer Zeitkonstante von max. 50ns differenziert werden. Zum Schutz vor Störimpulsen, die durch Kriechströme an der Anodendurchführung des Zählrohrs entstehen können, sollte diese von einem Schutzring umgeben sein, der auf Arbeitspotential liegt.

Zur Energieeichung wird ein Zählrohr mit einer kleinen Zugabe von ^3He benutzt ($^3\text{He}(n,p)t + 765 \text{ keV}$). Für Detektoren im Quellstrahlungsschatten des Brennelements, also hinter dem Kollimatorspalt kann die Diskriminatorschwelle fest auf 600 keV eingestellt werden. Geht man von 1 Stunde Meßzeit bei einer minimalen Aktivität von 10 Ci aus, so genügen 6 Zählrohre in der Anordnung wie auf Abb.3b.

Für kürzere Meßzeiten können auch Detektoren innerhalb des Reflektors eingesetzt werden. Deren Diskriminatorschwellen sollten wegen des stark von der Quellstärke abhängigen Signal-zu-Untergrund-Verhältnisses während des Abklingens der Quelle den jeweils herrschenden Bedingungen angepaßt werden.

8.3. Aufbau und Meßanlage

Zum Ausgleich der radialen und azimutalen Ortsabhängigkeit der Nachweiswahrscheinlichkeit muß das Brennelement während der Messung mit einer Frequenz von einigen 0.1 Hz um seine Längsachse gedreht werden. Zum Ausgleich der axialen Ortsabhängigkeit muß es während der Meßzeit entlang der Längsachse einmal in voller Länge und unter Einhaltung der radialen Abstände durch die eigentliche Meßapparatur (Quelle, Reflektoren und Zählrohre) verfahren werden. Um die Messung nicht durch das Strukturmaterial eines Tragegerüsts zu stören, sollte das Element vertikal und frei hängend, etwa mittels einer Spindel, durch die Meßapparatur transportiert werden.

Für den Aufbau der Meßapparatur kann die Anordnung 3, Abb.3b, als Anhaltspunkt dienen. Wenn keine Zählrohre innerhalb des Reflektors eingesetzt werden, so kann man den Abstand des Reflektors zum Brennelement verringern.

Im Bereich der Zählrohre und des Reflektors, also etwa 100 cm oberhalb bis 100 cm unterhalb der Quellebene muß eine Abschirmung aus 1 mm starkem Cd-Blech angebracht werden, die das Brennelement als Rohr umgibt und raumgestreute, thermalisierte Quellneutronen absorbiert.

8.4. Meßgenauigkeit:

Wegen der Abnahme der Quellstärke durch radioaktiven Zerfall und wegen der Drifteffekte werden die Messungen, vor allem bei längeren Meßpausen, immer gegen ein Standardelement vorgenommen, das in seiner Geometrie und Anreicherung den zu untersuchenden Brennelementen möglichst nahe kommt. Die erreichbare Genauigkeit hängt außer von der Genauigkeit und Ähnlichkeit des zum Vergleich herangezogenen Standards von folgenden Faktoren ab:

8.4.1 Ortsabhängigkeit der Nachweiswahrscheinlichkeit

Die Beiträge der einzelnen Stäbe zum Meßsignal weichen in der Versuchsanordnung 3, Abb.3b, bis zu 30 % voneinander ab. Bezogen auf das ganze Brennelement bedeutet dies eine Unsicherheit von 0,6 %. Wird beispielsweise einer der Brennstäbe durch eine Attrappe ersetzt, so kann je nach dessen Position das Meßergebnis bis zu 0,6 % vom tatsächlichen ^{235}U -Gehalt abweichen. Durch Optimierung der Spaltbreite auf die Abmessungen des Brennelements oder Linearkombination des Signals aus den Ergebnissen mehrerer Meßkanäle nach der in Kap. 6 beschriebenen Art sollte obiger Fehler jedoch auf weniger als 0,3 % reduziert werden können.

Die axiale Abhängigkeit wird mit der Bewegung des Brennelements durch die Meßanlage eliminiert, weil dabei alle Bereiche des Elements eine bestimmte Meßposition durchlaufen.

8.4.2 Statistische Genauigkeit:

Die statistische Genauigkeit der Spaltneutronenzählrate beträgt für folgenden Fall

- ^{124}Sb -Aktivität 10 Ci, also Ende der vorgeschlagenen Lebensdauer
- Versuchsaufbau wie in Abb.3b
- 3 Zählrohrpaare hinter dem Kollimatorspalt
- Anreicherung des Brennstoffs 2,5 % ^{235}U
- Meßzeit 60 Min

0,5 % bei einem Signal-zu-Untergrundverhältnis von etwa 100. Die Untergrundzählrate rührt von der natürlichen Radioaktivität sowie von überlagerten Quellstrahlungsimpulsen her. Der Wert der Untergrundzählrate könnte exakt mit einem Brennelement gemessen werden, das nur ^{238}U enthält. Er kann näherungsweise bei Verwendung mehrerer Standards verschiedener Anreicherung extrapoliert oder mit einem Dummy aus Bleistäben gemessen werden.

8.4.3 Drifteffekte

Je nach Art der verwendeten elektronischen Geräte und wegen des durch γ -Strahlung verursachten Zählrohreffekts (vergl. Abs. 7.4.) können Temperaturschwankungen von 1°C Zählratenschwankungen bis zu 1 % zur Folge haben. Unter Umständen wirken sich auch Netzspannungsschwankungen auf die Zählrate aus. Daraus ergeben sich folgende Forderungen

- 1) Die Meßanlage sollte bei möglichst konstanten Temperaturen betrieben werden (Klimaanlage).

- 2) Zur Vermeidung von Netzspannungsschwankungen (etwa durch Belastungsänderungen) sollte eine Stabilisierung vorgenommen werden.
- 3) Zur Vermeidung des Zählrohreffekts sollten die Zählrohre bei kleinen Gasverstärkungen (2-5) betrieben und eine sorgfältige Abschirmung der Zählrohre gegen die γ -Strahlung der Quelle vorgenommen werden.

Für Ihre Unterstützung bei der Durchführung dieser Arbeit danken wir den Herren H. Massier und P. Kreuter sowie der Betriebsmannschaft des van-de-Graaff-Beschleunigers. Herr M. Kühle hat uns mit vielen Anregungen und Diskussionen unterstützt.

Literatur

- /1/ IAEA
The structure and content of agreements between the agency and states required in connection with the treaty on the non-proliferation of nuclear weapons INFCIRC/153, Wien 1971
- /2/ K. Baumung, K. Böhnel, M. Kühle
Fuel Element Assay with an Sb-Be-Source, Int. Meeting on Nondestr. Assay and Identification Techniques, Ispra, Sept. 1971
- /3/ J. Wolff
Einige Anwendungsmöglichkeiten der hochauflösenden Gammaskopie zur Spaltstoffbestimmung KFK-Ext. Bericht, INR 4/71-33, März 1971
- /4/ W. Michaelis
Non-Destructive Analysis of Nuclear Fuels by Radiative Neutron Capture
Atomkernenergie 14, 5 (1969)
- /5/ H.O. Menlove, R.A. Forster, J.L. Parker, D.B. Smith
252Cf Assay System for FBR Fuel Pins
LA-5071-M
- /6/ M. Kühle
Untersuchungen an der ANEX über die Anwendbarkeit von Reaktivitätsmessungen zur Spaltstoffflußkontrolle KFK 1040 (1969)
- /7/ C.R. Weisbin, R.H. Augustson, J.S. Hendricks, A.E. Evans, G.D. Turner and K. Böhnel
Nondestructive assay of Power Reactor Fuel Assemblies
Nucl. Techn. 15, 455 (1972)
- /8/ R.H. Augustson, H.O. Menlove, R.B. Walton, L.V. East, A.E. Evans, M.S. Krick
Development of Techniques for Active and Passive Assay of Fissionable Materials; Safeguards Techniques II, IAEA, 1970, 53

- /9/ M. Lalovic, H. Werle
The Energy Distribution of Antimony-Beryllium Photoneutrons
Journ. Nucl. Energy, 24 (1970) 123
- /10/ H.O. Menlove, R.A. Forster, R.H. Augustson, A.E. Evans,
R.B. Walton
Characteristics of He-Gas Tubes for Fast-Neutron-Detection
LA-4605-MS, 1970, 13
- /11/ D.J. Hughes and R.B. Schwartz ed.
Neutron Cross Sections, BNL 325
- /12/ T. Gozani, D.E. Rundquist, R.O. Ginaven, R.L. Bramblett
New Developments in Nuclear Material Assay Using
Photonuclear Reactions.
Safeguards Techniques II, IAEA, 1970, 143

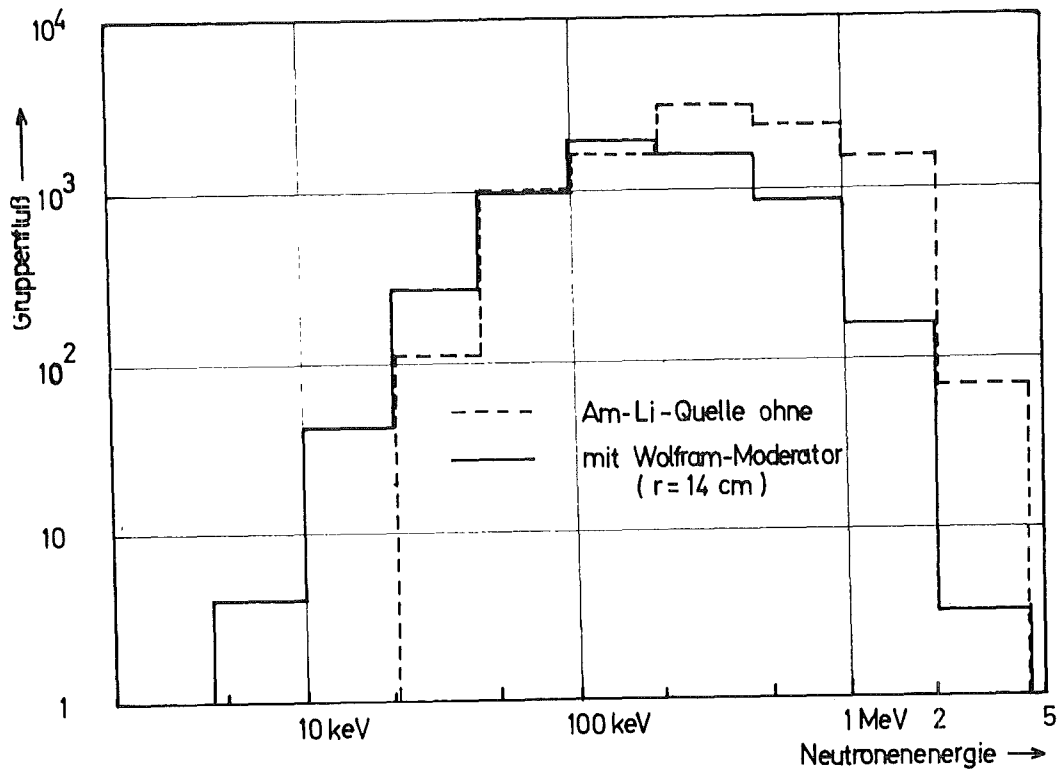


Abb. 1 Neutronenspektrum einer Am-Li-Quelle

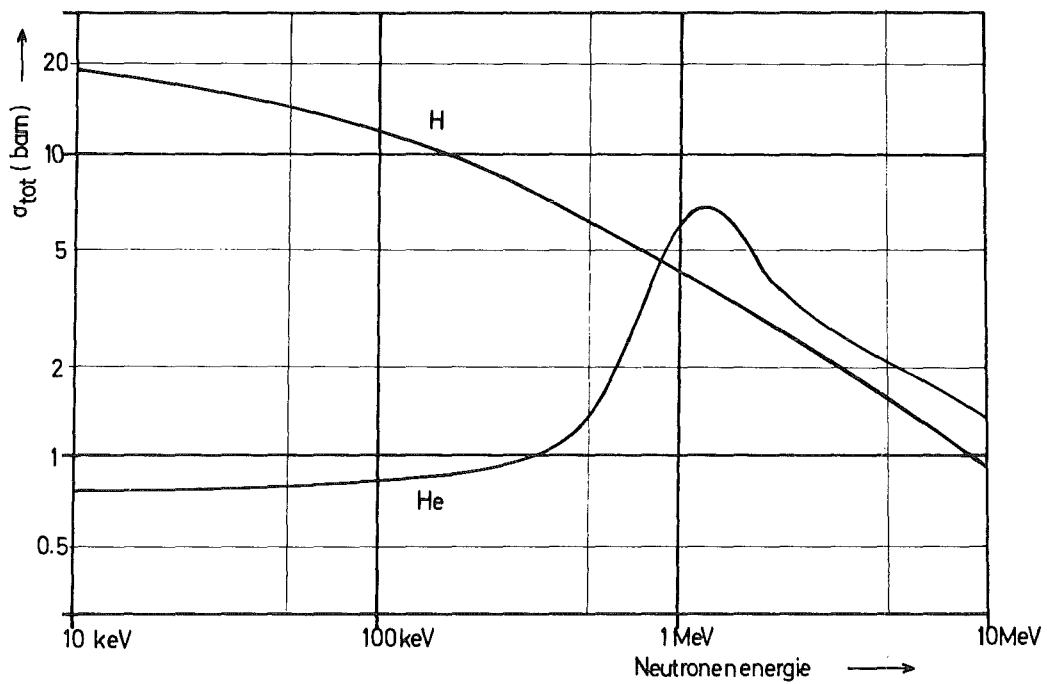
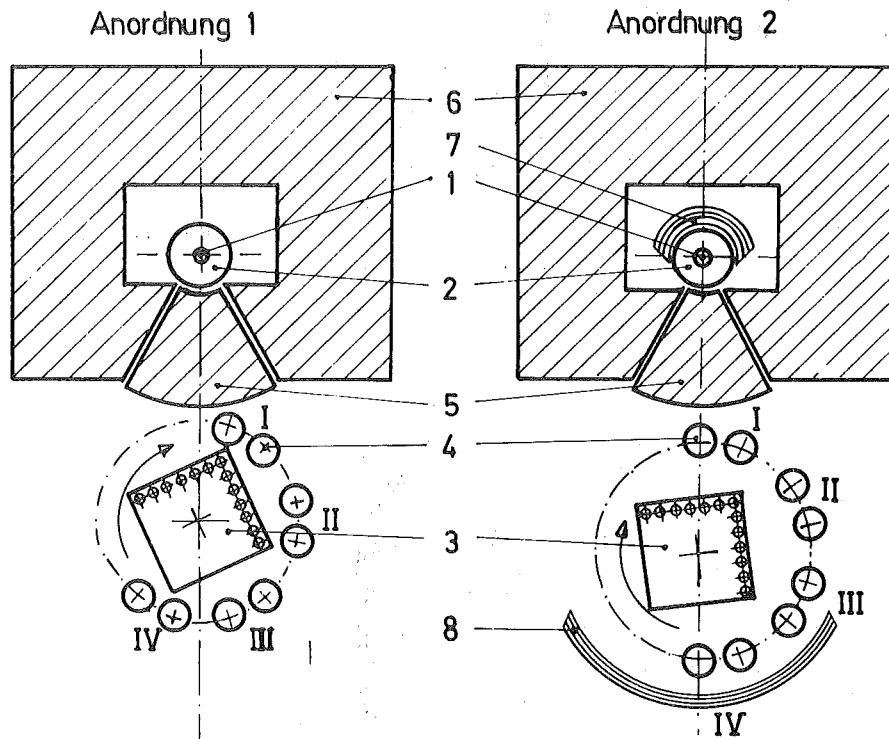


Abb. 2 Totaler Wirkungsquerschnitt von ^1H und He



- | | |
|----------------------------------|-------------------------|
| 1 ^{124}Sb -Quelle | 5 Bleisegment |
| 2 ^9Be -Konverter | 6 Bleiziegelabschirmung |
| 3 SWR-Brennelement (7x7 Stäbe) | 7 Ni-Reflektor 20 mm |
| 4 p-Rückstoßproportionalzählrohr | 8 Ni-Reflektor |

Abb. 3a Versuchsanordnungen 1 und 2

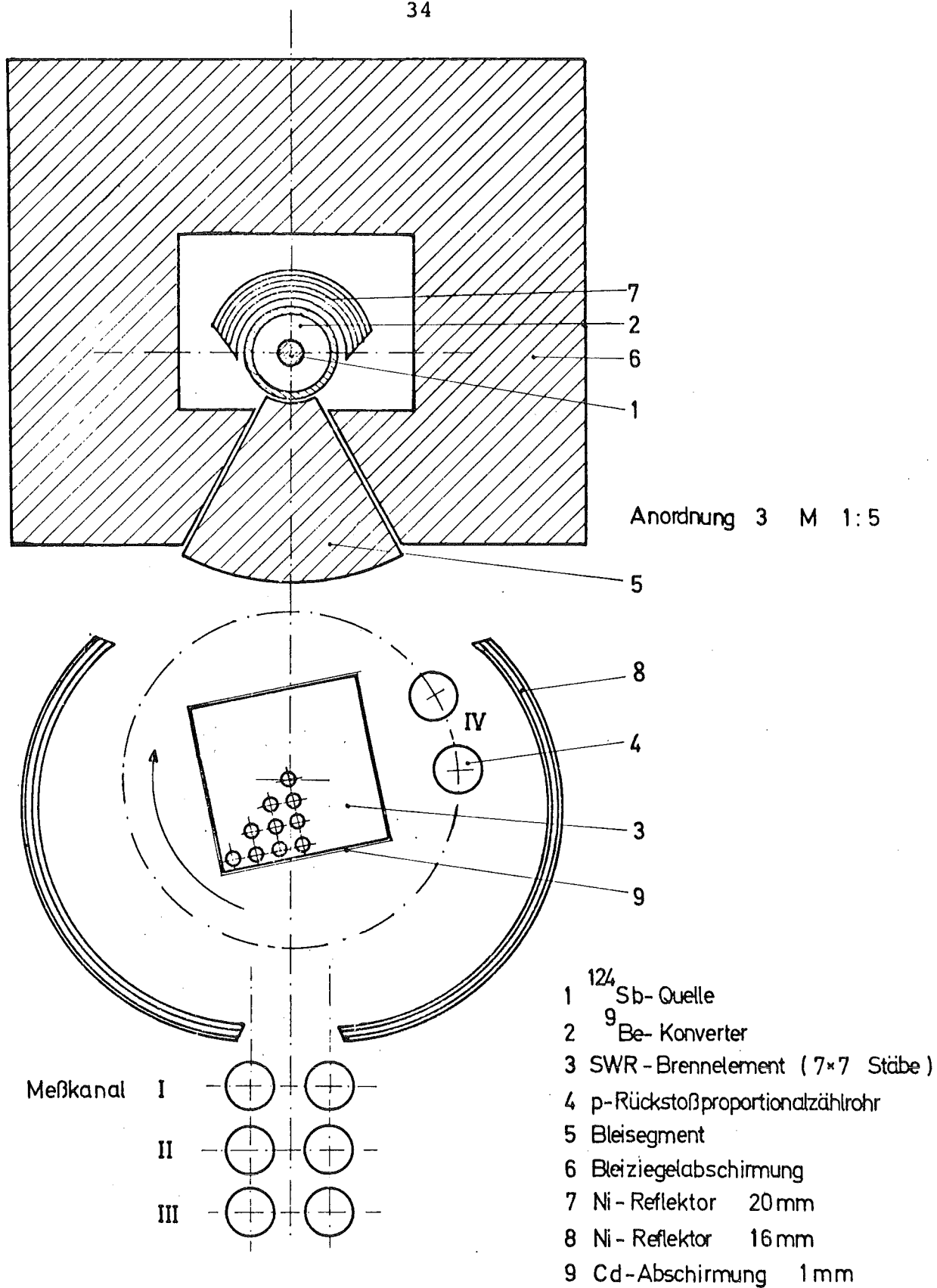
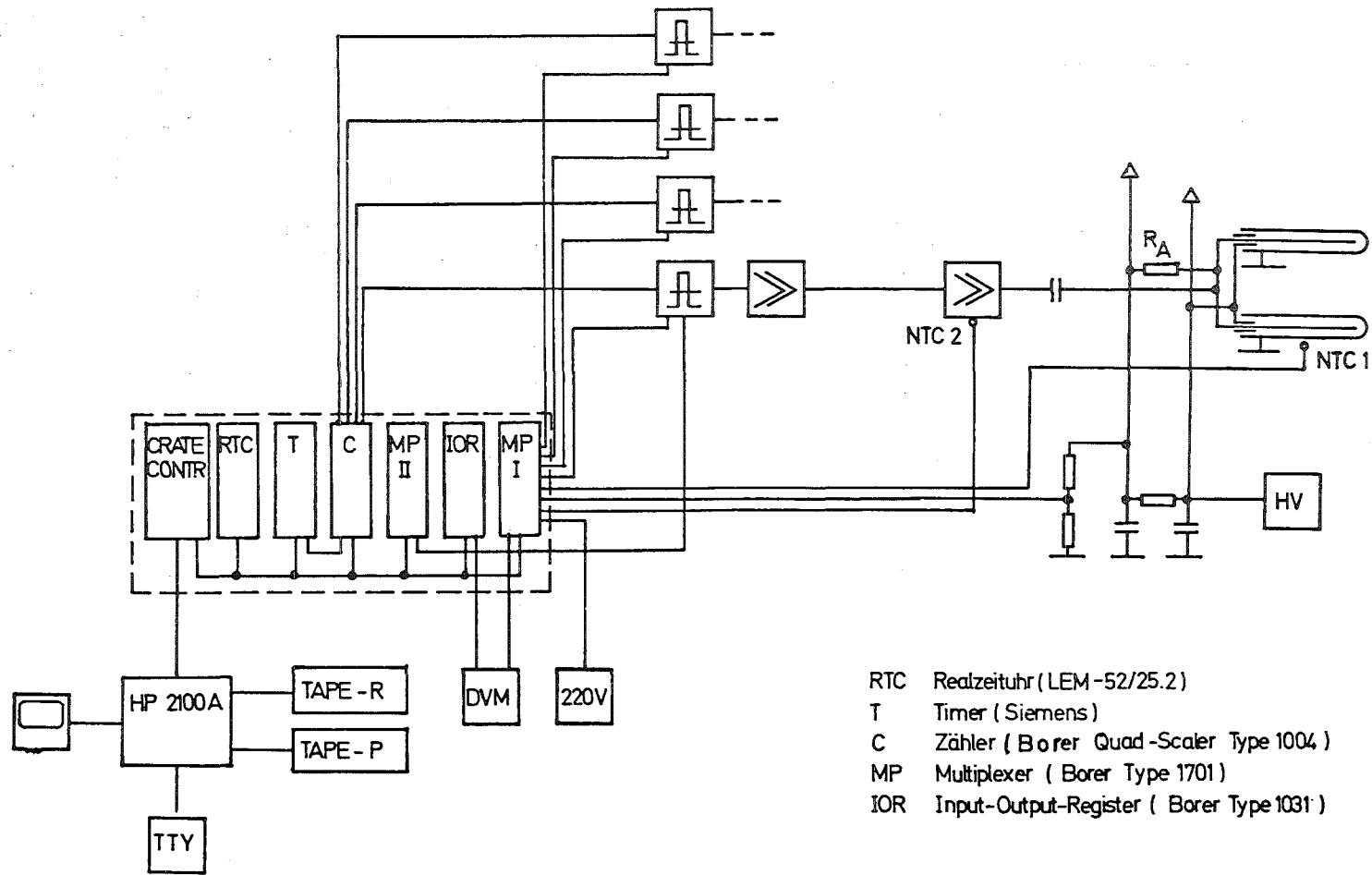


Abb. 3b Versuchsanordnung



- RTC Realzeituhr (LEM-52/25.2)
- T Timer (Siemens)
- C Zähler (Borer Quad-Scaler Type 1004)
- MP Multiplexer (Borer Type 1701)
- IOR Input-Output-Register (Borer Type 1031)

Abb. 4 Blockschaltbild der Meßelektronik

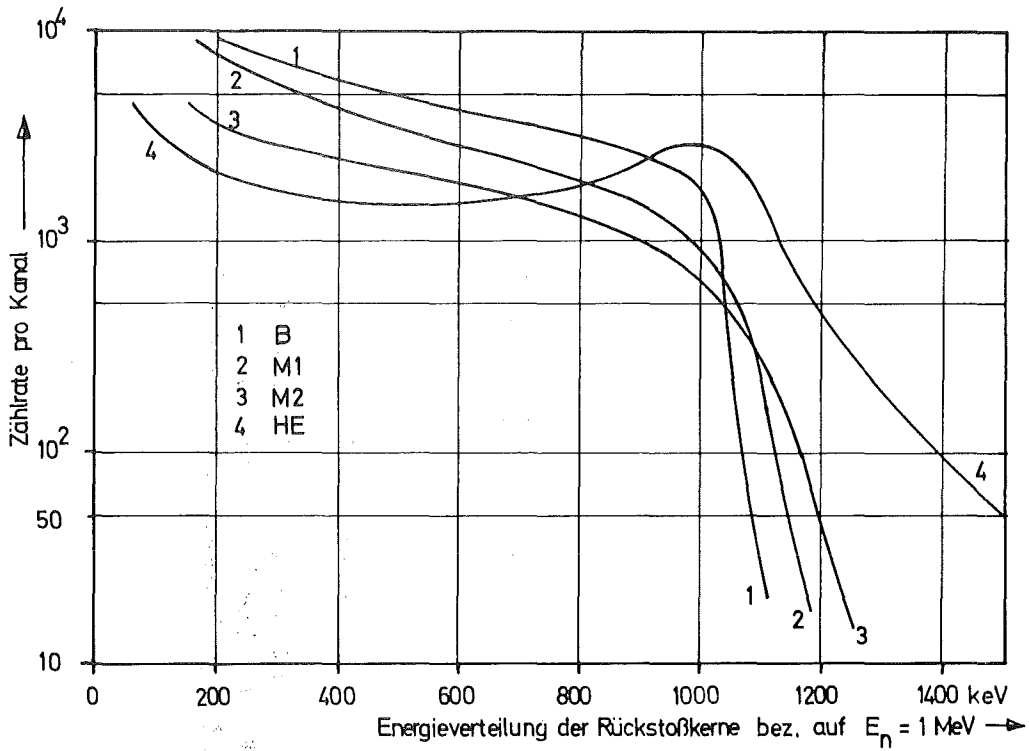


Abb. 5 Impulshöhenspektren verschiedener Zählrohre (1 MeV von der Graaff Neutronen)

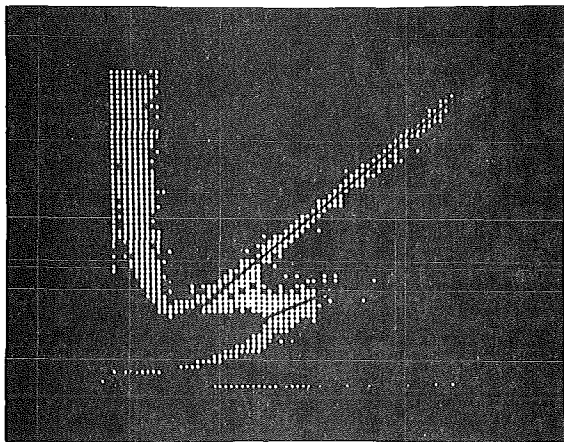


Abb. 6a

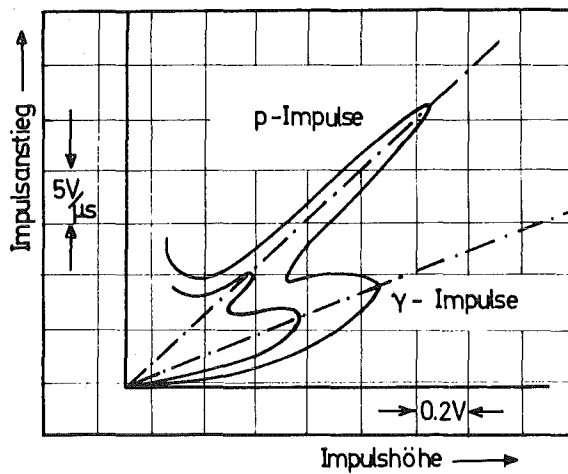


Abb. 6b

Häufigkeitsverteilung der Zählrohrimpulse als Funktion der beiden Parameter Impulshöhe und Impulsanstieg. Horizontalschnitt durch die Verteilung: a) Bildschirmfoto, b) zwei daraus abgeleitete Höhenlinien.

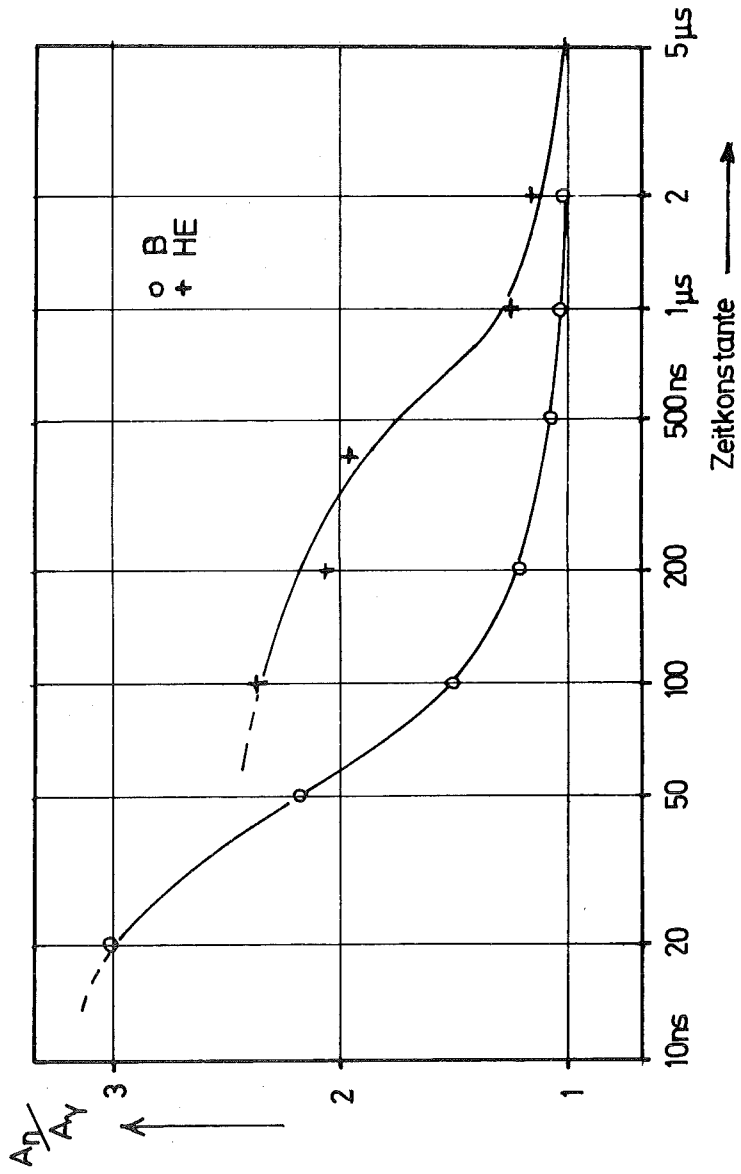


Abb. 7 γ -n-Diskriminierung als Funktion der Zeitkonstante

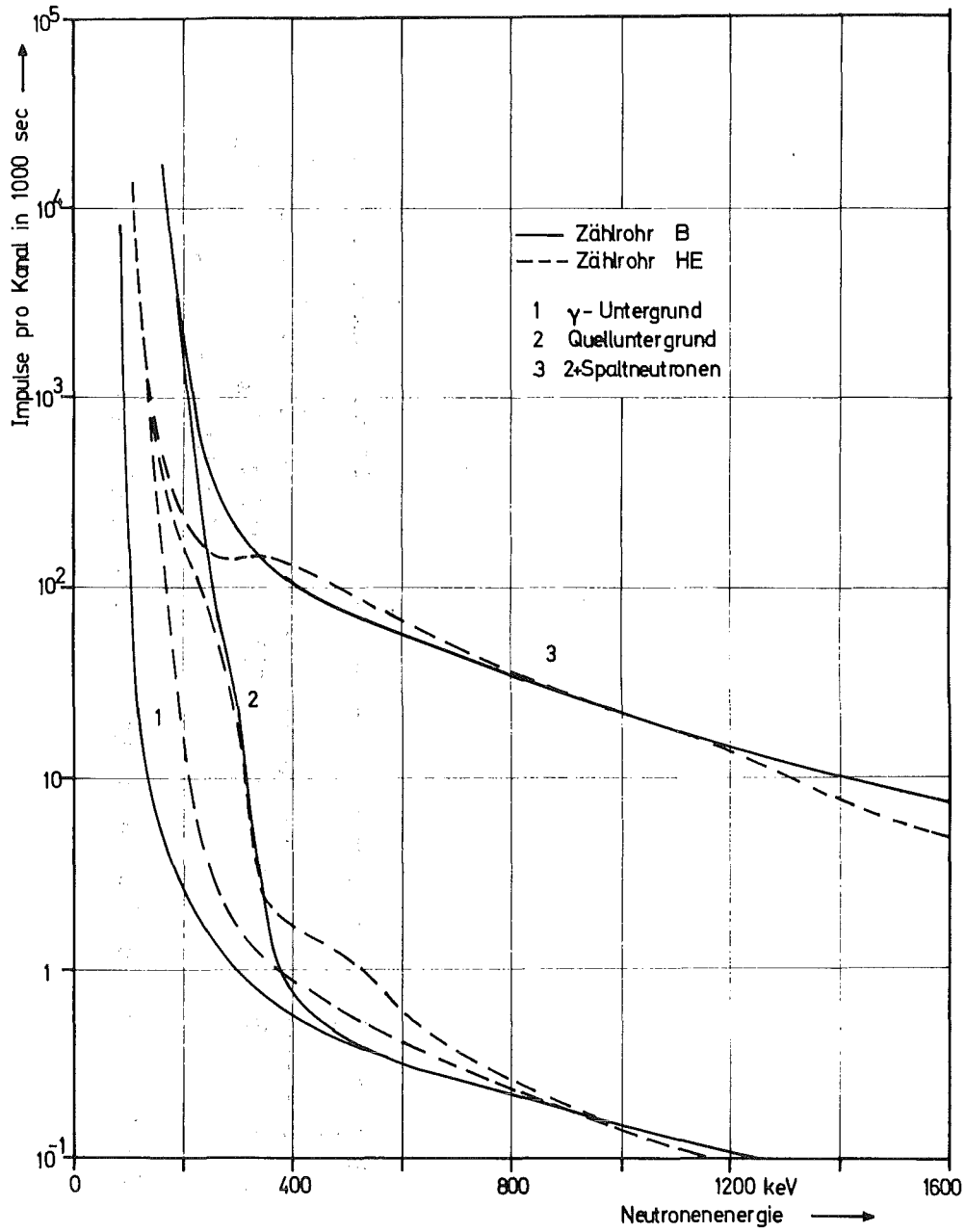


Abb. 8a Impulshöhenspektren von CH_4 und He-Zählrohren

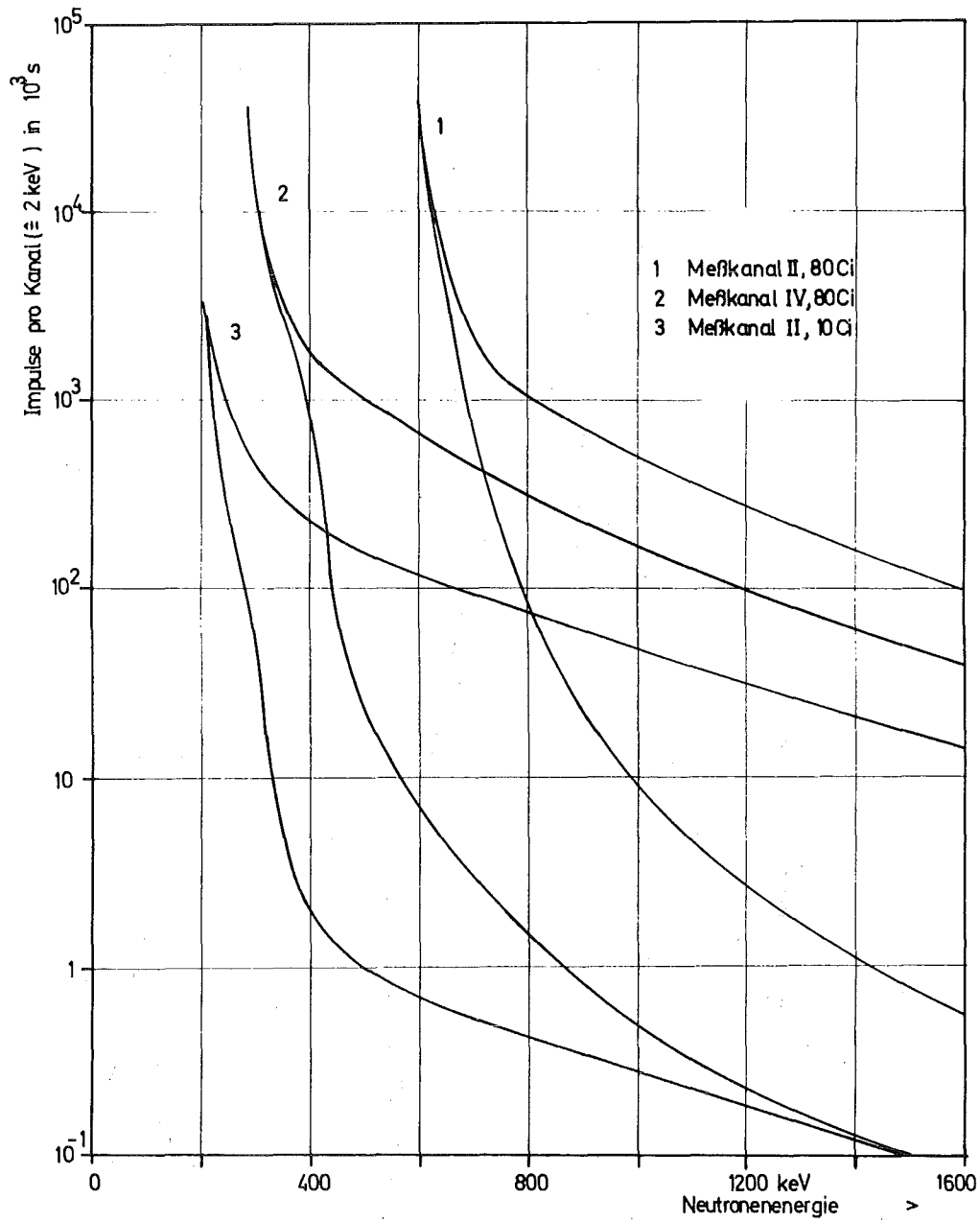


Abb. 8 b Impulshöhenspektren (Quelluntergrund bzw. Quelluntergrund + Spaltneutronen) bei verschiedenen Quellintensitäten

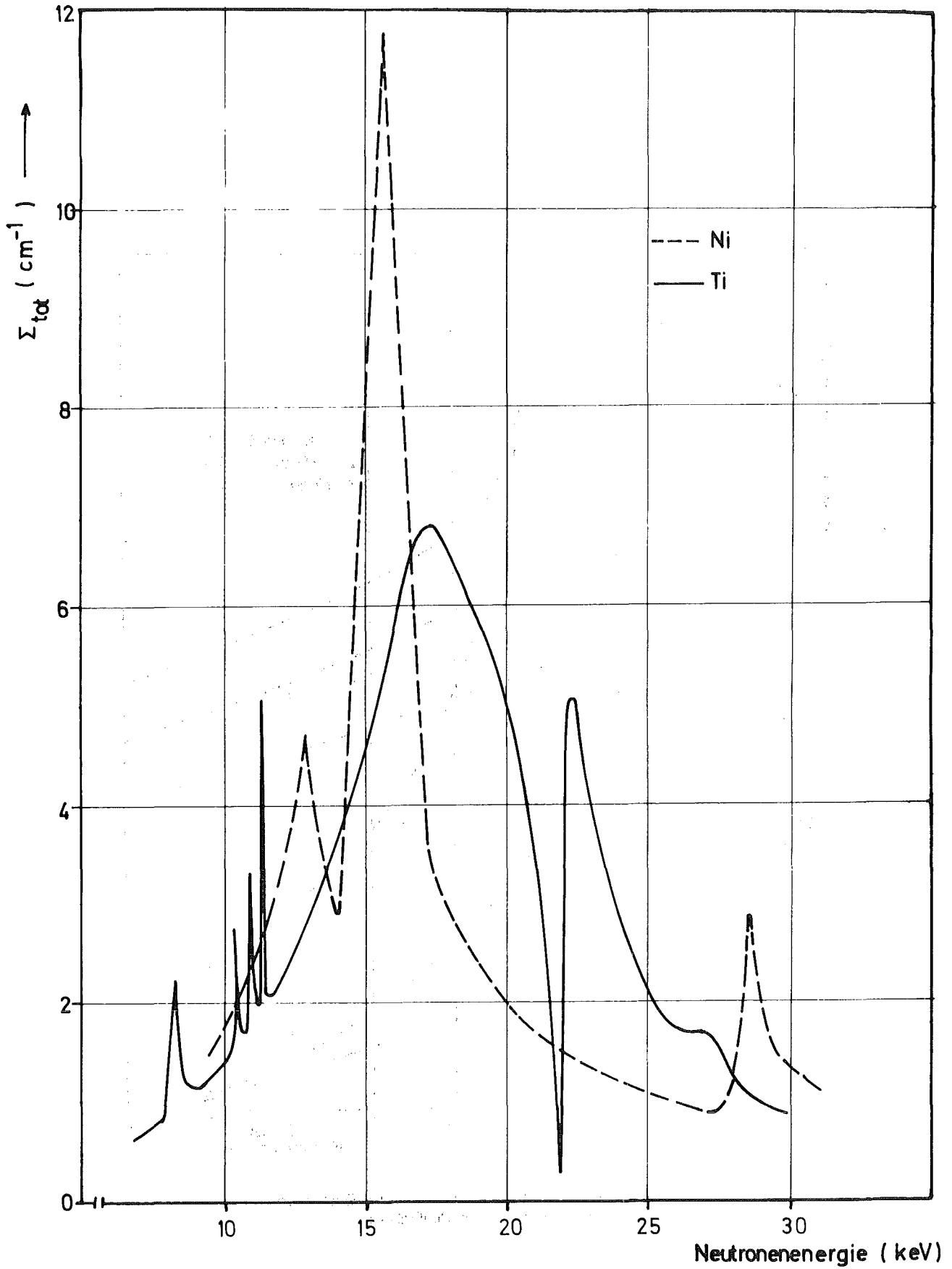


Abb. 9 Makroskopischer Wirkungsquerschnitt von Nickel und Titan

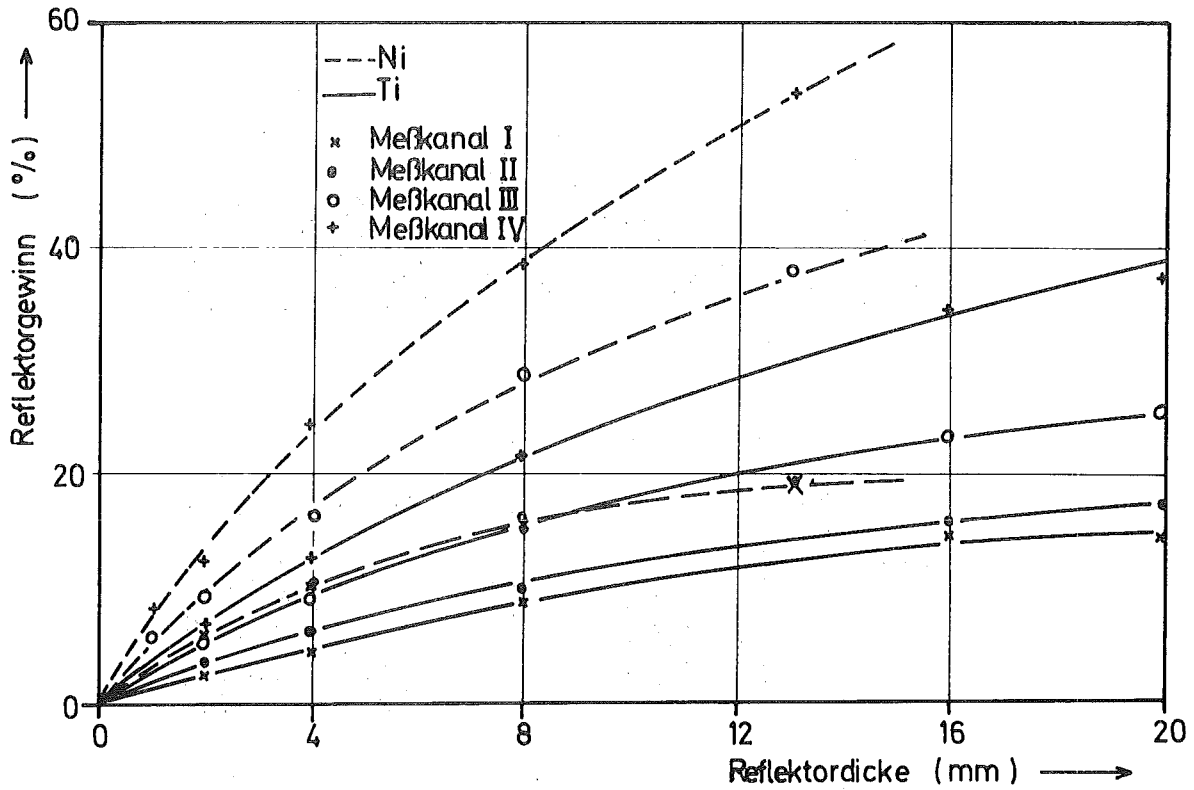


Abb. 10 Zählratengewinn als Funktion der Dicke des Reflektors hinter den Zählrohren (Anordnung 2)

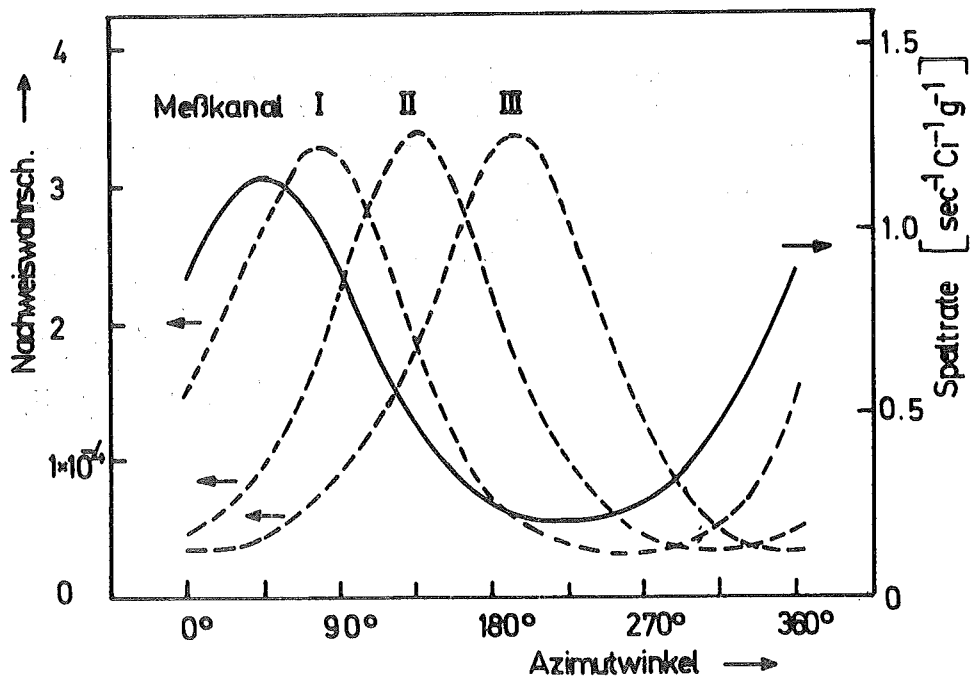


Abb. 11 Abhängigkeit der Spaltrate bzw. der Spaltneutronennachweiswahrscheinlichkeit vom Azimutwinkel (Anordnung 1)

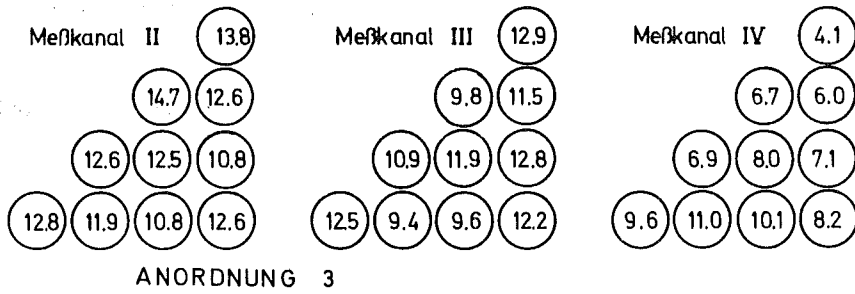
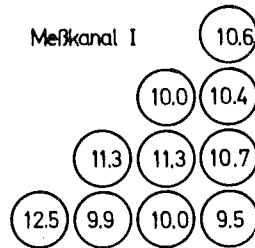
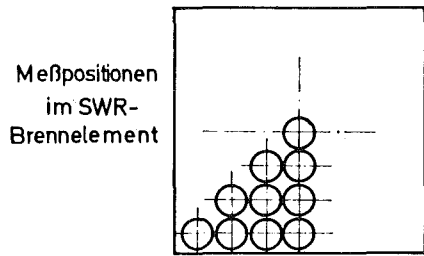
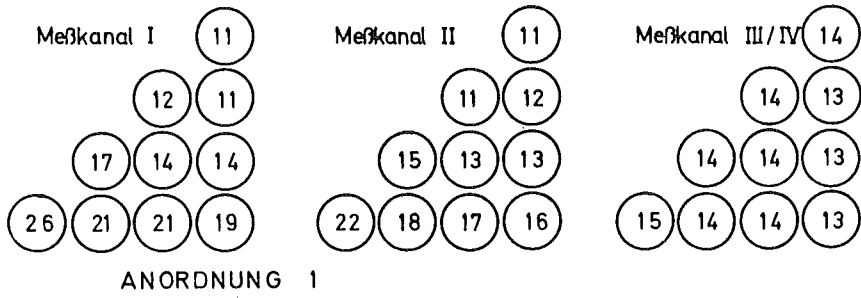
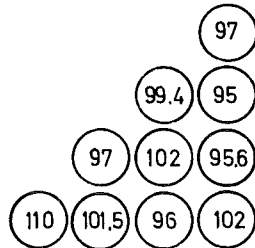


Abb. 12 a Relative Erhöhung der Zählrate durch Einsetzen eines hochangereicherten Brennstabs in verschiedene Gitterpositionen (%)

Abb. 12 b Kombiniertes Signal $\sum_{j=1}^IV w_j z_{ij}$ in % des mittleren Stabsignals



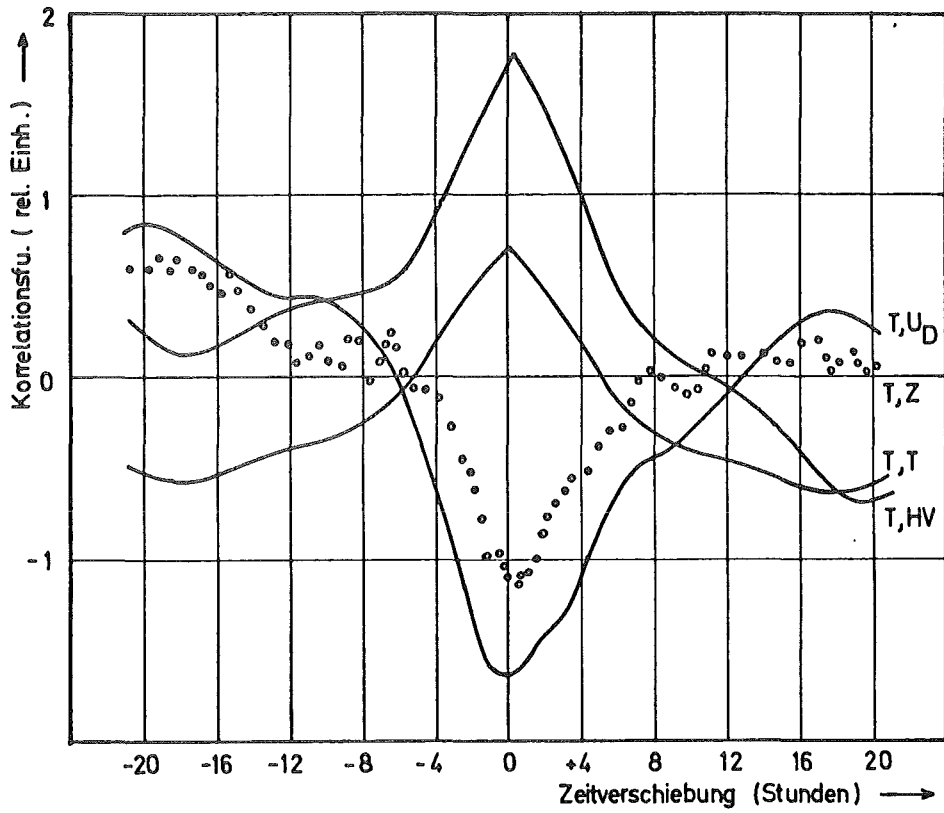


Abb. 13 Temperaturkorrelationsfunktionen

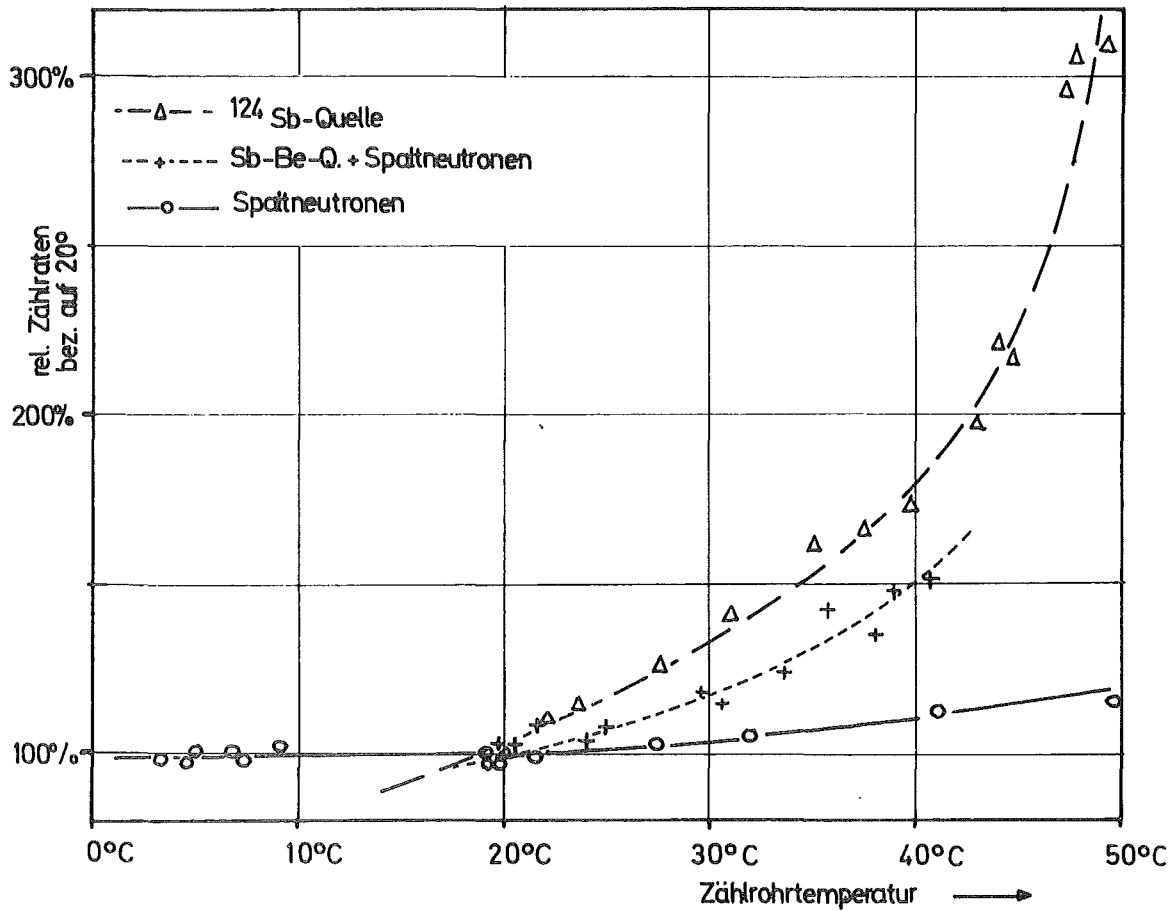


Abb. 14 Abhängigkeit der Zählrate von der Zählrohrtemperatur