

Untersuchungen zur Anwendung der Isotopenrelations-  
technik bei Nachbestrahlungsuntersuchungen und der  
Überwachung von Spaltstoffen

Zur Erlangung des akademischen Grades eines

DOKTOR-INGENIEURS

von der Fakultät für Maschinenbau  
der Universität Karlsruhe (TH)

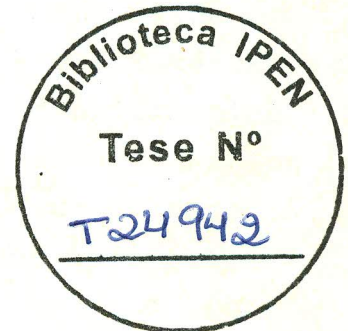
genehmigte

D I S S E R T A T I O N

von

Marco Antonio Saraiva Marzo  
(Mestre em Ciencias e Tecnologia Nucleares)

aus Sao Paulo, Brasilien



Tag der mündlichen Prüfung: 11. Dezember 1981  
Hauptreferent: Prof. Dr.-Ing. Anton Bayer  
Korreferent: Prof. Dr.-Ing. Dieter Stegemann

Diese Dissertation wird als Bericht der  
Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH  
veröffentlicht (KfK 3264)

*Ao Prof.  
Hervasio com  
um muito obrigado  
pelo apoio e incentivo  
Marzo*

Untersuchungen zur Anwendung der Isotopenrelationstechnik bei Nachbestrahlungsuntersuchungen und der Überwachung von Spaltstoffen.

#### ZUSAMMENFASSUNG

Eine umfassende Analyse von bestrahlten Brennstoffen zeigt, daß die theoretische Vorhersage von Isotopenrelationen für Aktinide und wichtige Spaltprodukte in Druckwasserreaktoren sehr zufriedenstellend ist. Vergleiche der theoretischen Ergebnisse mit einer Vielzahl von Meßergebnissen aus Analysen aufgelöster Brennstoffe einzelner Brennelemente von Druckwasserreaktoren demonstrieren die Brauchbarkeit der benutzten Daten und Methoden: alle berechneten Werte liegen im Rahmen der Zwischenlaborabweichungen.

Die Sensitivität einer Vielzahl von Isotopenrelationen bezüglich Reaktorparametern wie Abbrand, Anfangsanreicherung, Borkonzentration, Moderator/Brennstoff-Verhältnis usw. wurde theoretisch bestimmt. Auf der Basis dieser Sensitivitätsuntersuchung wurde ein Konzept zur Anwendung der Isotopenrelationstechnik zur Entdeckung von Meßfehlern bei Nachbestrahlungsanalysen, zur Identifikation von irrtümlichen Brennstoffvertauschungen und zur Identifikation von Brennstoffabzweigungen erarbeitet. Die Basis dieses Konzepts ist die Anwendung verschiedener selektiv sensitiver Isotopenrelationen bezüglich der Reaktorparameter. Aus Richtung und Größe der Abweichung der mit den Meßdaten bestimmten Relationen von den theoretischen Relationswerten wird ein Schluß über Meßfehler bei der Analyse oder über Brennstoffvertauschung gezogen. Die Anwendung dieses Konzepts wurde an theoretischen und experimentellen Beispielen erfolgreich überprüft.

## Investigation on the Application of the Isotopic Correlation Technique in Post-Irradiation Analysis and Safeguards

### ABSTRACT

An extensive analysis of irradiated fuel shows that the theoretical prediction of isotopic ratios for actinides in PWRs is very satisfactory. Comparisons of theoretical results with those from post-irradiation measurements demonstrate the capability of the used data and methods: all calculated values are within the range of the interlaboratory deviations.

Sensitivities for a variety of isotopic ratios on reactor parameters as burn-up, enrichment, boron concentration, fuel-to-moderator-ratio, etc. have been calculated. On the basis of these sensitivity studies, a recipe has been worked out how to apply the isotopic correlation techniques to safeguarding fissile material. The capability of this recipe is demonstrated for realistic situations. The essential characteristic of the proposed method lies in the application of several (e.g. six) selectively sensitive (with respect to the reactor parameters) isotopic correlations. Theory is used as a verified tool in deciding on erroneous measurements, accidental or intentional fuel substitution or diversion. The proposed recipe is verified with simulated as well as with realistic, actually observed examples.

Inhaltsverzeichnis:

1.	Einleitung	1
1.1	Allgemeines	1
1.2	Problemstellung	7
2.	Experimentelle Grundlage der Isotopenrelationen	10
2.1	Bestimmung der Spaltstoffmenge in den kerntechnischen Anlagen	10
2.2	Bestimmung der Spaltstoffmenge in abgebrannten Brennstoffen mit Isotopenrelationen	15
2.2.1	Anwendung von Isotopenrelationen zur Bestimmung der Pu-Menge abgebrannter Brennelemente im Lagerbecken	15
2.2.2	Anwendung von Isotopenrelationen zur Bestimmung der Pu-Menge der Auflöserchargen in einer Wiederaufarbeitungsanlage	17
3.	Theoretische Grundlage der Isotopenrelationen	24
3.1	Abbrandgleichungen zur Berechnung der Isotopenkonzentrationen	24
3.2	Theoretische Betrachtung zur Linearität der (Pu/U)/D <sup>235</sup> -Relation	28
3.3	Das Zell-Abbrand-Programm HAMKOR zur Berechnung des Nuklidinventars	38
3.4	Sensitivität der Isotopenkonzentrationen und -relationen bezüglich der nuklearen Daten und der methodischen Approximationen	45
3.5	Absicherung der Rechenergebnisse am Experiment	50
3.6	Untersuchung der Sensitivität der Isotopenrelationen bezüglich Parametern von Leichtwasserreaktoren	59
3.6.1	Betrachtete Parameteränderung in der Sensitivitätsuntersuchung	59
3.6.2	Ergebnisse der Sensitivitätsuntersuchung	64
4.	Erstellung eines Konzepts zur Anwendung von Isotopenrelationen bei der Überwachung von Spaltstoffen	131
5.	Experimentelle Absicherung des Konzepts zur Anwendung von Isotopenrelationen	151
6.	Anwendungsmöglichkeiten von Isotopenrelationen zur Überwachung von Spaltstoffen	159
7.	Zusammenfassung und Schlußfolgerungen	169
8.	Literaturverzeichnis	173

## 1. EINLEITUNG

### 1.1 Allgemeines

Die Überwachung des nuklearen Brennstoffkreislaufs hat als Ziel die rechtzeitige Entdeckung einer Abzweigung signifikanter Mengen spaltbaren Materials, das zur Herstellung von Kernwaffen oder für unbekannte Zwecke verwendet werden kann. Ferner soll die Überwachung eine solche Abzweigung durch das Risiko frühzeitiger Entdeckung abschrecken /1/.

Die Begriffe "signifikante Menge" und "rechtzeitige Entdeckung" werden von der International Atomic Energy Agency (IAEA) quantifiziert. Unter "signifikante Menge" versteht man zur Zeit die kleinste Menge von nuklearem Material, die notwendig ist, um einen nuklearen Sprengstoff herzustellen: 8 kg Pu-Oxid mit 60% Pu<sup>239</sup>-Gehalt, 75 kg U<sup>235</sup> im niedrig angereicherten Uran (ca. 3%) oder 25 kg U<sup>235</sup> im hoch angereicherten Zustand (93%). Entdeckungszeit ist der nötige Zeitraum, um das abgezweigte Material in eine geeignete Form zur Herstellung eines Sprengstoffs umzuwandeln. Für Wiederaufarbeitungsanlagen wird eine Entdeckungszeit von 1-3 Wochen bei einer abrupten Abzweigung und von 1 Jahr bei einer zeitlich gestreckten Abzweigung festgesetzt /2/.

Die Anwendung dieser quantifizierten Überwachungsziele stellt ein schwieriges Problem dar vor allem in großen Wiederaufarbeitungsanlagen und führt zu der Notwendigkeit, vorhandene Überwachungskonzepte zu prüfen und gegebenenfalls neue Techniken zu entwickeln.

Ein modernes Überwachungssystem für Brennstoffe thermischer Reaktoren basiert auf der Annahme, daß die Uran- und U<sup>235</sup>-Mengen der frischen Brennelemente bei der Fabrikation verifiziert werden können. Darüber hinaus setzt man voraus, daß diese Mengen durch verschiedene Umschließungs- und Beobachtungsmaßnahmen (Containment and Surveillance) überwacht werden können bis zum Zeitpunkt der Brennelementauflösung am Eingang der Wiederaufarbeitungsanlage, in dem die Brennelemente ihre Identität verlieren /3/. Der Spaltstofffluß wird in der Wiederaufarbeitungsanlage durch

eine geeignete Kombination von Eingangs- und Ausgangsmessungen (Materialbilanzierung), Umschließungs- und Beobachtungsmaßnahmen überwacht /4,5/. Umschließungs- und Beobachtungsmaßnahmen stellen rein technische und administrative Probleme dar, auf die hier nicht näher eingegangen wird.

Eine der Aufgaben einer überbetrieblichen internationalen Überwachung einer kerntechnischen Anlage ist die Überprüfung der vom Betreiber durchgeführten Materialbilanzierung an "strategischen Punkten" dieser Anlage /6/. Nach Möglichkeit sollte ein vom Betreiber unabhängiges und effektives Verfahren eingesetzt werden.

In dieser Arbeit wird untersucht, in wie weit die ab Anfang der siebziger Jahre entwickelte Isotopenrelationstechnik\* ein derartiges Kontrollverfahren bildet und wie diese optimal eingesetzt werden kann.

Die Grundlage dieser Technik läßt sich wie folgt skizzieren: Der mathematische Ansatz zur Bestimmung der Pu-Konzentration nach der Brennstoffentladung aus dem Reaktor bildet folgende Gleichung:

$$Pu(t) = \left( \frac{Pu(t)}{U(t)} \right) \cdot \left( \frac{U(t)}{U(o)} \right) \cdot U(o) \quad (1.1)$$

Darin sind  $Pu(t)$  und  $U(t)$  die Pu- und U-Konzentrationen zur Zeit  $t$ ,  $U(o)$  ist die Urkonzentration zur Zeit Null (frischer Brennstoff).  $U(o)$  kann bei der Brennstoff-Fabrikation durch Wägung mit einer Unsicherheit kleiner als 0.5% gemessen werden /7/. Das  $U(t)/U(o)$ -Verhältnis kann über eine Abbrandanalyse ermittelt werden. Eine Fehlerbetrachtung zeigt /8/, daß selbst bei einer Unsicherheit von 10% bei der Abbrandbestimmung nur eine geringe Unsicherheit von etwa 0.2% für das  $U(t)/U(o)$ -Verhältnis resultiert. Wenn  $Pu(t)/U(t)$  genau genug bestimmt werden kann, läßt sich  $Pu(t)$  entsprechend genau ermitteln (s. Abschnitt 2.2). Die Aufgabe liegt auf eine genaue Bestimmung des  $Pu(t)/U(t)$ -Verhältnisses.

---

\*Isotopenrelationen werden in der Literatur häufig mathematisch nicht ganz korrekt als Isotopenkorrelationen bezeichnet.

Bei bisherigen Analysen abgebrannter Brennstoffe aus verschiedenen Druckwasserreaktoren wurde eine im Rahmen der experimentellen Unsicherheiten lineare Relation zwischen dem  $Pu(t)/U(t)$ -Verhältnis und der  $U^{235}$ -Abreicherung ( $D^{235} = U^{235}$ -Anfangsanreicherung -  $U^{235}$ -Anreicherung zur Zeit  $t$ ) beobachtet /9/, nämlich:

$$\frac{Pu(t)}{U(t)} = c \cdot D^{235}(t) \quad (1.2)$$

Die Analysen zeigten weiterhin, daß für einen vorgegebenen Druckwasserreaktor der Koeffizient  $c$  dieser Relation hauptsächlich von der Anfangsanreicherung des Brennstoffs abhängt. Wenn der Koeffizient  $c$  für den Brennstoff gut bekannt ist, kann man bei Messung der  $U^{235}$ -Anreicherungen einen unmittelbaren Rückschluß auf das  $Pu(t)/U(t)$ -Verhältnis ziehen, so daß schließlich die gemessene Pu-Konzentration leicht überprüft werden kann.

Weitere Analysen und Experimente /10,11,12/ zeigen, daß auch andere Relationen zur  $Pu/U$ - und somit zur Pu-Bestimmung angewendet werden können. In /13/ wird z.B. die  $(Pu/U)/(Pu^{240}/Pu^{239})$ -Relation angegeben, wie sie bei der Nachbestrahlungsanalyse des Brennstoffs vom YANKEE-Reaktor beobachtet wurde. Die gefundene Relation ist ebenfalls linear und läßt sich wie folgt schreiben

$$\frac{Pu}{U} = R \cdot \left( \frac{Pu^{240}}{Pu^{239}} \right) + S \quad (1.3)$$

darin sind  $R$  und  $S$  Koeffizienten, die von der Anfangsanreicherung des Brennstoffs und vom Reaktortyp abhängen.

Zur Bestimmung des Abbrandes können Relationen zwischen dem Abbrand und den Konzentrationen oder dem Konzentrationsverhältnis verschiedener Spaltprodukte bzw. Schwerisotope angewendet werden /14,15/. Die Relation

$$\text{Abbrand} = P \cdot \left( \frac{Cs^{134}}{Cs^{137}} \right) + Q \quad (1.4)$$

wurde bei abgebranntem Brennstoff verschiedener Leichtwasserreak-

toren festgestellt /15,16/. Darin sind P und Q Koeffizienten, die von der Anfangsanreicherung, vom Reaktortyp und von der Leistungsgeschichte abhängen. Das  $(\text{Cs}^{134}/\text{Cs}^{137})$ -Verhältnis kann durch  $\gamma$ -Spektrometrie gemessen werden, so daß der Abbrand über die Relation bestimmt werden kann. Solche Relationen eignen sich zur unabhängigen Überprüfung der Abbrandangabe des Reaktorbetreibers.

In /17/ wird die Relation

$$\text{Abbrand} = A \cdot \left( \frac{\text{Xe}^{132}}{\text{Xe}^{131}} \right) + B \quad (1.5)$$

angegeben, die ebenfalls bei Nachbestrahlungsanalysen verschiedener Leichtwasserreaktoren festgestellt wurde. A und B sind Koeffizienten, die schwach von der Anfangsanreicherung und vom Reaktortyp abhängen. Während der Auflösung des abgebrannten Brennstoffs wird das Spaltgas Xe aufgefangen und das  $\text{Xe}^{132}/\text{Xe}^{131}$ -Verhältnis durch Massenspektrometrie bestimmt, so daß der Abbrand über diese Relation ermittelt werden kann.

Andere Experimente haben gezeigt, daß eine große Anzahl Isotopenkonzentrationen und Isotopenkonzentrationsverhältnisse von schweren Elementen (U und Pu) in einfacher Beziehung zueinander stehen /18,19/, wie z.B. die Relationen  $\text{U}^{235}/\text{U}^{236}$  und  $(\text{U}^{235}/\text{U}^{238}) / (\text{Pu}^{240}/\text{Pu}^{239})$ .

In /20,21/ wird beschrieben, wie man unter Verwendung solcher Isotopenrelationen Meßergebnisse überprüfen kann: aus der Differenz zwischen Relationswerten früherer Analysen und denen der aktuellen Messungen läßt sich ein fehlerhafter Relationswert leicht feststellen. Die Methode macht jedoch keine genaue Aussage, welche Variable zu dieser fehlerhaften Isotopenrelation geführt hat. Außerdem ist es fragwürdig, ob eine für einen bestimmten Brennstoff bei einer früheren Analyse beobachtete Relation für die aktuellen Meßergebnisse weiterhin gilt, da die Isotopenrelationen meistens von den Reaktorparametern und der

Betriebsweise des Reaktors abhängen. Dieses Verfahren hat ferner den Nachteil, daß die alten Analysendaten gesammelt werden müssen. Um dieses umfangreiche Informationsvolumen, das aus Nachbestrahlungsanalysen verschiedener Reaktoren entsteht, zu speichern, wurden Datenbanken angelegt. Zur Zeit gibt es in der Welt sieben Institutionen mit solchen Datenbanken /22/: Batelle Institut (USA), ISPRA (Italien), TU-Karlsruhe (BRD), CEC (Luxemburg), CEN-Mol. (Belgien), IAEA (Österreich) und JAERI (Japan).

Theoretische Untersuchungen zu Isotopenrelationen wurden bisher meistens im Rahmen der Behandlung der Abbrandgleichungen mit Hilfe von Abbrandprogrammen durchgeführt, um die empirisch beobachteten Isotopenrelationen nachzuvollziehen. In /23/ wurden die Isotopenrelationen  $U^{236}/U^{235}$ ,  $(Pu/U)/D^{235}$ ,  $(Pu/U)/(Pu^{242}/Pu^{240})$ ,  $(Pu/U)/(Pu^{240}/Pu^{239})$  und  $(Pu^{242}/Pu^{240})/(Pu^{240}/Pu^{239})$  für den Brennstoff vom TRINO- und YANKEE-Druckwasserreaktor mit maximalem Abbrand von ca. 20 000 MWd/tU nachgerechnet. Außerdem wurde die Abhängigkeit dieser Isotopenrelationen von der Anfangsanreicherung, vom Moderator/Brennstoff-Verhältnis, vom Hüllmaterial und von der Methode der Reaktivitätskontrolle untersucht. In den wenigen untersuchten Fällen wurden jedoch die möglichen Änderungsbereiche dieser Reaktorparameter für Leichtwasserreaktoren nicht überdeckt. In /24/ wurden die Relationen  $(Cs^{134}/Cs^{137})/Abbrand$  und  $(Eu^{154}/Cs^{137})/Abbrand$  für den Brennstoff von 3.1%  $U^{235}$ -Anfangsanreicherung aus dem TRINO-Reaktor berechnet. Die Abhängigkeit dieser Relationen von zwei verschiedenen Leistungsgeschichten wurde ermittelt. In /11/ wurden die Relationen  $(Pu/U)/D^{235}$ ,  $(Pu/U)/(\frac{Pu^{242}}{Pu^{240}} \cdot \frac{Pu^{239}}{Pu^{240}})$  und  $(Pu^{242}/Pu^{240})/(Pu^{240}/Pu^{239})$  für den Brennstoff der Siedewasserreaktoren HUMBOLDT BAY und BROWNS FERRY mit maximalem Abbrand von ca. 16 000 MWd/tU berechnet. In /25/ wurden Schwerisotopenrelationen für einen Schnellbrüterreaktor ermittelt. Dabei wurde festgestellt, daß einige Relationen wie z.B.  $(Pu/U)/D^{235}$  auch für diesen Reaktortyp gebildet werden können.

Weitere theoretische Arbeiten untersuchen grundsätzlich den zeitlichen Verlauf einer Relation. In /26/ wurde mit Hilfe eines einfachen Modells für den Pu-Aufbau die  $(\text{Pu}/\text{U})/D^{235}$ -Relation untersucht. Es ergab sich eine Abweichung von der Linearität von ca. 3% zwischen 0 und 25 000 MWd/tU-Abbrand. Dabei ist der Verlauf oberhalb 25 000 MWd/tU unbekannt. In /27/ wurden analytische Approximationen für die Relationen  $(\text{Pu}^{242}/\text{Pu}^{240})/(\text{Pu}^{241}/\text{Pu}^{239})$  und  $(\text{Pu}^{242}/\text{Pu}^{241})/(\text{Pu}^{240}/\text{Pu}^{239})$  abgebrannter Pu-Brennelemente eines Druckwasserreaktors erstellt. Dabei wurden die effektiven Wirkungsquerschnitte als abbrandunabhängig angenommen.

Andere theoretische Untersuchungen beschäftigen sich mit der Anwendung verschiedener Relationen für bestimmte Zwecke. In /28/ wurde die Anwendung des  $(\text{Cs}^{134}/\text{Cs}^{137})$ -Aktivitätsverhältnisses zur Detektion beschädigter Brennstäbe eines Brennelements untersucht. In /29,30/ werden die  $(\text{Pu}/\text{U})/(\text{Pu}^{240}/\text{Pu}^{239})$ ,  $(\text{Pu}/\text{U})/(\frac{\text{Pu}^{239}}{\text{Pu}^{240}} \cdot \frac{\text{Pu}^{242}}{\text{Pu}^{240}})$  und  $(\text{Pu}/\text{U})/(\frac{\text{Pu}-\text{Pu}^{239}}{\text{Pu}})$  für den Brennstoff des SENA-CHOOT-Druckwasserreaktors mit einer dem Experiment angepaßten Rechenmethode berechnet. Dabei wird empfohlen, theoretische und experimentelle Methoden gemeinsam zu verwenden, um die Pu-Konzentration bestrahlter Brennstoffe zu bestimmen.

Ausgehend von dieser kurzen Zusammenstellung, die sich auf die Erfahrungen der theoretischen und experimentellen Untersuchungen im Rahmen der Isotopenrelationstechnik bezieht, wird im Abschnitt 1.2 die spezifische Fragestellung dieser Arbeit entwickelt.

## 1.2 Problemstellung

Die Isotopenrelationstechnik wird bisher als flankierende Maßnahme für die Spaltstoffflußkontrolle angesehen. Gegenstand dieser Arbeit ist es, festzustellen, ob Isotopenrelationen beweiskräftig bei Einsatz theoretischer Verfahren, also nicht nur auf der Basis einzelner empirischer Befunde und Extrapolationen, zur

- (i) Überprüfung der Meßanalysedaten bei ungestörtem Betrieb
- (ii) Identifikation von irrtümlichen Brennstoffvertauschungen und
- (iii) Identifikation von absichtlichen Brennstoffabzweigungen eingesetzt werden können.

Die bisher benutzte Methode zur Überprüfung der Meßanalysedaten basiert auf der Anwendung von Isotopenrelationen, die aufgrund von Analysen bei bisherigen Wiederaufarbeitungskampagnen empirisch ermittelt wurden. Die Isotopenrelationen hängen meistens von den Reaktor- und Brennelementparametern und der Betriebsweise des Reaktors ab. Um sie zuverlässig als Technik anwenden zu können, müssen die Isotopenrelationen für die in der aktuellen Kampagne wiederaufgearbeiteten Brennstoffe abgesichert sein. Das bedeutet, daß (1) der Relationskoeffizient im von den Brennstoffen überdeckten Abbrandbereich und (2) die Relationskoeffizienten für die Reaktor- und Brennelementparameter bekannt sein müssen.

In dieser Arbeit werden für die Überprüfung und Extrapolation der Isotopenrelationen theoretische Verfahren entwickelt, deren Qualifikation gezeigt wird. Bei Einsatz theoretischer Verfahren können Isotopenrelationen abgesichert werden, die experimentell mit zerstörungsfreien Methoden oder mit direkten Methoden bestimmt werden. Fragwürdige Extrapolationen empirisch beobachteter Relationswerte können damit vermieden werden.

Der erste Schwerpunkt dieser Arbeit ist die Verifikation des theoretischen Verfahrens zur Berechnung der Isotopenrelationen. Es stellt sich die Frage:

- (A) Wie genau ist das theoretische Verfahren zur Berechnung der Isotopenrelationen?

Um diese Frage zu beantworten, werden die Rechenergebnisse mit Meßergebnissen aus Analysen aufgelöster Brennstoffe einzelner Brennelemente verschiedener Leichtwasserreaktoren verglichen.

Der zweite Schwerpunkt dieser Arbeit bildet die Erarbeitung eines eindeutig methodischen Vorgehens zur Anwendung der Isotopenrelationen. Eine wichtige Aufgabe zur Erstellung eines solchen Konzepts ist es, die geeignetsten Isotopenrelationen für den beabsichtigten Zweck auszuwählen. Dazu sind folgende Fragen im einzelnen zu beantworten:

- (B) Wie verlaufen die Isotopenrelationen von 0 bis über  $36\,000 \frac{\text{MWd}}{\text{tU}}$  - Abbrand? Dieser Abbrandbereich überdeckt die möglichen Abbrandwerte bestrahlter Brennelemente von Leichtwasserreaktoren. Ferner: Weisen diese Zusammenhänge auf eine allgemein gültige Gesetzmäßigkeit hin?
- (C) Wie hängen die Isotopenrelationen von den wichtigsten Parametern eines Leichtwasserreaktors ab, nämlich der Anfangsanreicherung, dem Moderator/Brennstoff-Volumenverhältnis, der Dicke der Brennstabhülle, der Bor-Konzentration im Moderator, der Leistungsgeschichte und der Abklingzeit nach der Brennstoffentladung aus dem Reaktor? Um festzustellen, welche Isotopenrelationen sensitiv oder unsensitiv bezüglich der oben genannten Parameter sind, benötigt man die vollständige Kenntnis des Verlaufs der Relation über den möglichen Änderungsbereich dieser Parameter für Leichtwasserreaktoren.

Um die Anwendungsmöglichkeiten der Isotopenrelationen für die Spaltstoffflußkontrolle im nuklearen Brennstoffkreislauf einzugrenzen, müssen schließlich die folgenden Fragen geklärt werden:

- (D) Wie können durch Vergleich der Rechenergebnisse mit experimentellen Ergebnissen die Isotopenrelationen zur Entdeckung von Meßfehlern bei der Analyse systematisch und effektiv angewendet werden und welche Meßfehler können dabei entdeckt werden?
- (E) Welche irrtümlichen Brennstoffvertauschungen im nuklearen Brennstoffkreislauf können mit Isotopenrelationen nachgewiesen werden?
- (F) Welche absichtlichen Brennstoffabzweigungen im nuklearen Brennstoffkreislauf können mit Isotopenrelationen nachgewiesen werden?

Die Beantwortung dieser Frage geschieht auf der Basis verschiedener Vertauschungs- und Abzweigungsstrategien für den nuklearen Brennstoffkreislauf von Leichtwasserreaktoren.

Der rechtzeitige Nachweis von Brennstoffabzweigungen im Sinne der IAEA-Überwachungsziele wird nicht untersucht. Bei der Lösung des Fragenkomplexes der Arbeit wird der mögliche Beitrag der Isotopenrelationen bei vorgegebenen IAEA-Überwachungszielen untersucht und festgelegt.

Die experimentellen Ergebnisse im Rahmen der Isotopenrelations-technik und deren Bedeutung zur Bestimmung der Spaltstoffmengen im nuklearen Brennstoffkreislauf werden in Kapitel 2 vorgestellt. Danach werden in Kapitel 3 die theoretischen Grundlagen der Isotopenrelationen diskutiert: Das Zell-Abbrand-Programm HAMKOR zur Berechnung der Isotopenrelationen wird an Hand von Meßergebnissen verifiziert (erster Schwerpunkt). Die Abhängigkeit der Isotopenrelationen von den wichtigsten in-pile und out-of-pile Parametern eines Leichtwasserreaktors wird ermittelt. Kapitel 4 und Kapitel 5 beschäftigen sich damit, ein Konzept zur beweiskräftigen Anwendung der Isotopenrelationen zu entwickeln und dieses an experimentellen Ergebnissen abzusichern (zweiter Schwerpunkt). Schließlich werden in Kapitel 6 die Anwendungsmöglichkeiten von Isotopenrelationen untersucht.

## 2. Experimentelle Grundlage der Isotopenrelationen

Die experimentellen Befunde über die Isotopenrelationen werden in diesem Kapitel vorgestellt und erläutert.

Es werden zunächst die gegenwärtige Lage bei der Bestimmung der Spaltstoffmengen und die dabei gefundenen Genauigkeiten in den kerntechnischen Anlagen erörtert. Daraus läßt sich erkennen, für welche Zwecke im Zusammenhang mit der Überwachung des Spaltstoffflusses Isotopenrelationen eingesetzt werden könnten. Danach werden die bisherigen experimentellen Ergebnisse über die Anwendungen der Isotopenrelationen im nuklearen Brennstoffkreislauf erörtert. Es wird gezeigt, wie überhaupt und mit welcher Genauigkeit Isotopenrelationen experimentell bestimmt werden können.

Es wird der offene Kreislauf des Brennstoffs von Leichtwasserreaktoren mit niedrig angereichertem Uran betrachtet.

### 2.1 Bestimmung der Spaltstoffmenge in den kerntechnischen Anlagen

Eine Urananreicherungsanlage wird mit Natururan, das in gasförmigem Zustand ( $\text{UF}_6$ ) vorliegt, beschickt. Am Ausgang der Anlage erhält man angereichertes Uran von 1.5 bis 4.0%  $\text{U}^{235}$  Anfangs-

anreicherung. Die  $U^{235}$ -Anreicherung wird durch Massenspektrometrie ermittelt. Die erreichte Genauigkeit ist besser als 0.2% / 31/. Die Uranmasse wird durch Wägung mit einem statistischen Fehler von 0.2% gemessen /32/. Aufgrund der geringen Meßgenauigkeit bei leicht durchführbaren U- und  $U^{235}$ -Bestimmungen kommt die Anwendung der Isotopenrelationstechnik zur Erstellung einer Materialbilanzierung in einer Anreicherungsanlage nicht in Betracht.

Das  $UF_6$  wird nach der Urananreicherung zur Fabrikationsanlage der Brennelemente geliefert. Die Materialbilanzierung wird dort durch Wägung der Materialien und Einsatz massenspektrometrischer Meßverfahren erstellt. Die Bestimmung der U-Masse der frischen Brennelemente erfolgt durch Wägung der Pelletsäulen mit einer Ungenauigkeit kleiner als 0.5% / 7 /. Wegen der geringen Ungenauigkeit bei der U-Bestimmung wird der Einsatz von Isotopenrelationen zur Erstellung der Materialbilanzierung in einer Fabrikationsanlage auch nicht betrachtet. Die Verifikation der  $U^{235}$ -Anreicherung des Brennstoffs erfolgt durch zerstörungsfreie  $\gamma$ -spektrometrische Analyse der Brennstäbe. Die erreichte Genauigkeit liegt bei 0.3% /33/. Die Verifikation der  $U^{235}$ -Anfangsanreicherung eines ganzen Brennelementbündels beschränkt sich auf die  $\gamma$ -spektrometrische Analyse der äußeren Brennstäbe (ca. 30% eines DWR-Brennelements). Die Anfangsanreicherung der inneren Brennstäbe kann wegen der Abschirmung der äußeren Stäbe nicht verifiziert werden. Zur Überwachung des Spaltstoffflusses ist es daher notwendig abzusichern, daß keine Vertauschung von Brennstäben stattgefunden hat. Die Anwendung von von der Anfangsanreicherung abhängigen Isotopenrelationen, welche bei Nachbestrahlungsanalysen bestimmt werden, könnte eine Brennstoffvertauschung in der Fabrikationsanlage nachweisen (s. 2.2).

Kernbrennstoffe befinden sich in einem Kernkraftwerk an drei verschiedenen Stellen, nämlich im Lagerbecken frischer Brennelemente, im Reaktorkern und im Lagerbecken abgebrannter Brennelemente. In einem Kernkraftwerk wird eine Materialbilanzierung nicht erstellt, da sich die Nuklide während der Bestrahlung auf- und abbauen. Die Überwachung des Spaltstoffflusses erfolgt durch Umschließungs- und Beobachtungsmaßnahmen. Im Lagerbecken abgebrannter Brennelemente eines 1300-MWe-Druckwasserreaktors befinden sich ca. 200-300 Brennelemente. Die Überwachung soll absichern, daß keine Vertauschung von Brennelementen im Lagerbecken stattfindet. Es ist also wichtig, ein schnelles und genaues Verfahren zur Bestimmung des Pu-Gehalts der Brennelemente im Lagerbecken einzusetzen. Isotopenrelationen gemeinsam mit zerstörungsfreien Meßverfahren könnten ein solches Verfahren bilden (s. Abschnitt 2.2).

Die abgebrannten Brennelemente werden nach der Entladung aus dem Reaktor normalerweise zum Zwischenlager gebracht und später nach einer Abklingzeit von ca. 1-7 Jahren zur Wiederaufarbeitungsanlage. Die Bestimmung der Spaltstoffmenge erfolgt im Bilanzierungstank kurz nach der Auflösung der Brennelemente und im Produktionsbereich an U- und Pu-Nitratlösungen.

Die routinemäßige Pu-Bestimmung im Eingangstank wird mit der sogenannten Volumen-Konzentrations-Methode /44/ durchgeführt. Diese Methode basiert auf der Messung des Volumens  $V$  [l] und der Dichte  $\rho$  [g/l] der Lösung im Eingangstank. Die Pu-Masse ( $M_{Pu}$ ) wird bestimmt durch:

$$(2.1) \quad M_{Pu} = N_{Pu} \cdot V \cdot \rho \quad [g]$$

$N_{Pu}$  ist darin die Plutoniumkonzentration in der Lösung [gPu/g Lösung].  $N_{Pu}$  wird durch eine massenspektroskopische Isotopenverdünnungsanalyse /34/ bestimmt.

Tab. 2.1 zeigt die erwarteten Meßunsicherheiten bei Messungen der Pu-Menge in den verschiedenen Bereichen einer Referenzanlage mit 1000 t U/a-Kapazität (1000 jato) /35/.

Meßobjekt	Pu-Durchfluß kg Pu/a	Meßmethode	Meßungenauigkeit (2 $\sigma$ )	Fehler in Pu-Menge (kg/a)
Eingangstank	10000	Analytik + Volumen	1	100
Produktausgang	10000	Analytik + Wägung	0.3	30
Feedklär- schlamm	20	Analytik oder Neutronen	30	7
Hülsen	10	Neutronen oder Gamma	100	10
HAW	40	Analytik oder Neutronen	50	20
MAW, LAW	3	Analytik + Volumen	50	1.5
Rezykliertes Material	<100	Analytik	<1	<1

Tab. 2.1: Pu-Bestimmung in Eingangs-, Ausgangs- und Abfallströmen bezogen auf eine 1000 jato Referenzanlage /35/

Nach Tabl 2.1 ist ein Fehler in der Pu-Menge im Eingangstank von ca. 100 kg Pu/a möglich. Dieses Ergebnis zeigt, daß die Pu-Bestimmung am Eingangstank eine zentrale Rolle bei der Erstellung einer Materialbilanzierung in einer Wiederaufarbeitungsanlage spielt.

Die Pu-Bestimmung des Betreibers der Wiederaufarbeitungsanlage wird bisher durch unabhängige Analysen der Proben in einem zweiten Labor überprüft. Abgesehen vom großen Aufwand, der bei der Wiederholungsmessung in einem zweiten Labor entsteht, ist noch zu erwähnen, daß der Zeitraum zwischen Probennahme und Analyse in einem zweiten Labor einige Monate betragen kann. Die Materialbilanzierung kann deshalb nur verspätet abgeschlossen werden. Außerdem kann der Atomzerfall bis zur Wiederholungsmessung wegen der Unsicherheit in den Zerfallkonstanten die Meßunsicherheit noch zusätzlich vergrößern. Nach Möglichkeit sollte also ein unabhängiges und effektives (schnelles und genaues) Verfahren zur Überprüfung der Materialbilanzierung vom Betreiber eingesetzt werden. In diesem Zusammenhang erscheint die erste Einsatzmöglichkeit von Isotopenrelationen in einer Wiederaufarbeitungsanlage: Die Isotopenrelationen könnten eingesetzt werden, um ein unabhängiges und effektives Kontrollverfahren zu erstellen.

Um die zweite Einsatzmöglichkeit der Isotopenrelationen in einer Wiederaufarbeitungsanlage darzustellen, betrachtet man das gegenwärtige Überwachungssystem des nuklearen Brennstoffkreislaufs (vgl. 1.1). Die Spaltstoffmengen werden vom Ausgang der Fabrikation bis zum Eingang der Wiederaufarbeitungsanlage durch Umschließungs- und Beobachtungsmaßnahmen überwacht. Es ist fraglich, ob diese Maßnahmen allein zur Überwachung des Spaltstoffs genügen. Nach Möglichkeit sollte also ein Verfahren eingesetzt werden, das zu einer effektiveren Kontrolle des Spaltstoffes bei Entdeckungen von Brennstoffvertauschungen beiträgt. Isotopenrelationen, die z.B. von der Anfangsanreicherung oder vom Reaktortyp abhängen, könnten zur Erstellung eines solchen Kontrollverfahrens beim Nachweis von Brennstoffvertauschungen eingesetzt werden.

Aus der oben beschriebenen Situation bei der Bestimmung der Spaltstoffmengen in den kerntechnischen Anlagen können die Einsatzmöglichkeiten von Isotopenrelationen zur Kontrolle des Spaltstoffflusses wie folgt zusammengefaßt werden:

- (a) Isotopenrelationen könnten zur Bestimmung der Spaltstoffmengen abgebrannter Brennelemente im Lagerbecken angewendet werden.
- (b) Isotopenrelationen könnten zur Überprüfung der vom Wiederaufarbeiter erstellten Materialbilanzierung eingesetzt werden.
- (c) Isotopenrelationen könnten zur Identifikation von Brennstoffvertauschungen im nuklearen Brennstoffkreislauf eingesetzt werden.

## 2.2 Bestimmung der Spaltstoffmenge in abgebrannten Brennstoffen mit Isotopenrelationen

Die experimentellen Ergebnisse bei der Bestimmung der Spaltstoffmenge in abgebrannten Brennstoffen mit Isotopenrelationen werden vorgestellt und diskutiert.

### 2.2.1 Anwendung von Isotopenrelationen zur Bestimmung der Pu-Menge abgebrannter Brennelemente im Lagerbecken

Experimentell wurden Relationen zwischen dem Pu/U-Verhältnis und dem  $\text{Cs}^{134}/\text{Cs}^{137}$ - bzw.  $\text{Eu}^{154}/\text{Cs}^{137}$ -Konzentrations- oder Aktivitätsverhältnis ermittelt. Die Verhältnisse  $\text{Cs}^{134}/\text{Cs}^{137}$  und  $\text{Eu}^{154}/\text{Cs}^{137}$  werden durch zerstörungsfreie  $\gamma$ -Spektroskopie gemessen. Aus dem gemessenen Verhältnis kann über die Relation unmittelbar auf das  $\frac{\text{Pu}}{\text{U}}$ -Verhältnis rückgeschlossen werden. Die Pu-Menge wird durch die Multiplikation von  $\frac{\text{Pu}}{\text{U}}$  mit der U-Masse bestimmt. Die U-Masse entspricht dem vom Brennelementhersteller angegebenen Wert mit einer Korrektur für den Abbrand.

Ein Vorteil des  $\gamma$ -spektrometrischen Meßverfahrens liegt in der Durchführung von Relativmessungen. Die bei Absolutmessungen auftretenden Schwierigkeiten vor allem in der Kalibrierung des Meßapparates mit Standardquellen können vermieden werden /36/. Ein weiterer Vorteil liegt darin, daß die Messung sehr schnell (10-30 min) durchgeführt werden kann. Die erreichte Genauigkeit bei der Messung der Konzentrationsverhältnisse  $\text{Cs}^{134}/\text{Cs}^{137}$  und  $\text{Eu}^{154}/\text{Cs}^{137}$  in abgebrannten Brennelementen liegt bei 2-4% /37/.

Tsuruta /38/ hat mittels  $\gamma$ -Spektroskopie 8 Brennstäbe des Brennelements A-20 des 45 MWe-Siedewasserreaktors JPDR-I analysiert. Die Brennstäbe hatten 2.6%  $\text{U}^{235}$ -Anfangsanreicherung. Eine Relation zwischen dem Aktivitätsverhältnis  $\text{Cs}^{134}/\text{Cs}^{137}$  und dem  $\frac{\text{Pu}}{\text{U}}$ -Verhältnis wurde ermittelt. Das Pu/U-Verhältnis wurde durch Massenspektrometrie bestimmt. Die Relation läßt sich wie folgt ausdrücken:

$$(2.2) \quad \frac{\text{Pu}}{\text{U}} = C_1 \left( \frac{\text{Cs}^{134}}{\text{Cs}^{137}} \right) \cdot e^{-C_2 \left( \frac{\text{Cs}^{134}}{\text{Cs}^{137}} \right)}$$

mit  $C_1 = 0.0372 \pm 0.0013$  und  $C_2 = 2.50 \pm 0.40$

Danach wurde die Pu-Menge von 57 Brennelementen gleicher Anfangsanreicherung mit Hilfe der Relation (Gl. 2.2) und Meßwerten von  $\text{Cs}^{134}/\text{Cs}^{137}$  bestimmt. Der benutzte U-Wert war der vom Brennelementhersteller angegebene mit einer Korrektur für den Abbrand. Die mit der Isotopenrelation ermittelte Pu-Menge (5.5 kg) stimmt besser als 2% mit der gemessenen Pu-Menge in der Wiederaufarbeitungsanlage (5.4 kg) überein.

In anderen Experimenten wurden auch Relationen zwischen dem Abbrand und dem Aktivitätsverhältnis,  $(\text{Abbrand})/(\text{Cs}^{134}/\text{Cs}^{137})$ ,  $(\text{Abbrand})/(\text{Eu}^{154}/\text{Cs}^{137})$  ermittelt. Diese Relationen können zur Bestimmung des Abbrands angewendet werden. Die erreichte Genauigkeit liegt bei 2-10% /39,40,41/.

Die Genauigkeiten der Pu- und Abbrandbestimmungen mit den Spaltproduktrelationen hängen von der Anwendung eines als Referenz benutzten Brennelements ab (Brennelement A-20 bei der Analyse der Brennelemente des JPDR-I-Reaktors), da verschiedene in-pile und out-of-pile Parameter (Abbrand, Anfangsanreicherung, Leistungsgeschichte, usw) die Relationen beeinflussen können. Eine zuverlässige routinemäßige Pu-Bestimmung im Lagerbecken erfordert daher die vollständige Kenntnis der Sensitivität der Spaltproduktrelationen bezüglich der wichtigsten in-pile und out-of-pile Parameter von Leichtwasserreaktoren.

Eine weitere zerstörungsfreie Methode zur Bestimmung der Pu-Menge und des Abbrands abgebrannter Brennelemente im Lagerbecken wird in /42/ beschrieben. Die Methode basiert auf der passiven oder aktiven Neutronenmessung und ihrer Interpretation mittels der Relation zwischen  $\text{Cm}^{244}$  und Abbrand bzw. Plutonium. Es könnte gezeigt werden, daß eine Genauigkeit von  $\pm 2\%$  bei der Abbrand- und Pu-Bestimmung für DWR-Brennelemente mit hohem Abbrand (über 20 GWd/tU) erreicht werden kann, vorausgesetzt die Anfangsanreicherung ist bekannt. Wenige experimentelle Ergebnisse über die Abhängigkeit des Cm-Aufbaus von dem Abbrand liegen vor /42/. Zur routinemäßigen Anwendung dieses Verfahrens müssen die Einflüsse der wichtigsten in-pile und out-of-pile Parameter auf die Relationen zwischen dem Cm-Aufbau und dem Pu-Gehalt vollständig bestimmt werden.

### 2.2.2 Anwendung von Isotopenrelationen zur Bestimmung der Pu-Menge der Auflöserchargen in einer Wiederaufarbeitungsanlage

Sehr viele Relationen mit dem  $\frac{\text{Pu}}{\text{U}}$ -Verhältnis wurden experimentell an abgebrannten Brennstoffen in Wiederaufarbeitungsanlagen ermittelt. Diese Isotopenrelationen können zur Bestimmung des  $\frac{\text{Pu}}{\text{U}}$ -Verhältnisses bzw. der Pu-Menge von Auflöserchargen im Eingangstank angewendet werden. An Hand eines Beispiels soll die Anwendung der Isotopenrelationen erläutert werden:

Zur Bestimmung der Pu-Menge von 12 Auflöserchargen mit 3.36%  $U^{235}$ -Anfangsanreicherung des SENA-Druckwasserreaktors (266 MWe) wurden folgende Isotopenrelationen benutzt /43/:

$$(2.3) \quad \frac{Pu}{U} = K_1 \cdot U^{236} \quad (g/t)$$

$$(2.4) \quad \frac{Pu}{U} = K_2 \cdot (100 - Pu^{239}) \quad (g/t)$$

Darin ist  $U^{236}$  der  $U^{236}$ -Anteil im Uran im Prozent.  $Pu^{239}$  ist der prozentuale Anteil dieser Isotope im Plutonium.  $K_1$  und  $K_2$  sind Koeffizienten, die bei einer früheren Meßanalyse von Brennelementen des SENA-Reaktors ermittelt wurden:  $K_1 = 26917 \pm 1.3\%$ ,  $K_2 = 252.7 \pm 1.4\%$ . Aus der  $U^{236}$ - und  $Pu^{239}$ -Angabe des Wiederaufarbeiters wurde über die Relationen das  $\frac{Pu}{U}$ -Verhältnis bestimmt. Die Pu-Masse wurde durch die Multiplikation des  $\frac{Pu}{U}$ -Mittelwertes (Gl. 2.3-2.4) mit der U-Masse bestimmt. Die U-Masse entspricht dem vom Brennelementhersteller angegebenen Wert mit einer Korrektur für den Abbrand. Die mit diesem Verfahren bestimmte Pu-Masse (75.26 kg) stimmt bis auf ca. 0.5% mit dem vom Wiederaufarbeiter angegebenen Wert (74.88 kg) überein. Diese Differenz liegt also innerhalb der Meßunsicherheit bei der routinemäßigen Pu-Bestimmung mit der Volumen-Konzentrationsmethode. Dieses Ergebnis zeigt: Bei gut abgesicherten Relationen kann die Pu-Menge im Eingangstank so genau wie mit der Volumen-Konzentrationsmethode bestimmt werden.

Zur Pu-Bestimmung mit Isotopenrelationen brauchen nur Isotopenkonzentrationen ( $U^{236}$ ,  $Pu^{239}$  im oben beschriebenen Experiment) oder Isotopenkonzentrationsverhältnisse gemessen zu werden. Keine Elementkonzentration (U oder Pu) muß gemessen werden. Damit entfällt die Bestimmung des Volumens der Lösung im Auflöserstank, welche bei der Volumen-Konzentrations-Methode notwendig ist. Das ist von Bedeutung für die Überwachung, da das Lösungsvolumen im Eingangstank nicht verifiziert werden kann /44/.

Isotopenrelationen werden zur Überprüfung der Meßanalyseedaten von abgebrannten Brennstoffen angewendet. Für diesen Zweck werden meistens Isotopenrelationen betrachtet, welche einen linearen Verlauf zeigen. Sie sind also im Rahmen der experimentellen Unsicherheiten unabhängig vom Abbrand des Brennstoffs. In der sogenannten "Interne Konsistenzprüfung" /21/ werden Werte von linearen Relationen von verschiedenen Brennelementen verglichen. Die betrachteten Brennelemente haben gleiche Anfangsanreicherung und wurden im selben Reaktor bestrahlt. Die Relationswerte müssen sich im Bereich der statistischen Meßfehlerbreite reproduzieren. Ein Relationswert, der außerhalb dieses Bereiches liegt, wird als zweifelhaft bezeichnet. Die Messung für dieses Brennelement muß also wiederholt werden. In der Regel wird eine statistische Meßfehlerbreite  $2 S$  angenommen.  $S$  ist die Standardabweichung des Mittelwertes der Relation für alle Meßproben. Ein Relationswert außerhalb des  $2S$ -Bereiches wird mit 93% Sicherheit als zweifelhaft identifiziert ("Ausreißer") /45/. Der Hauptnachteil der "internen Konsistenzprüfung" liegt darin, daß sich systematische Fehler nicht identifizieren lassen. Ferner ergeben sich oft Standardabweichungen größer als 3%, weshalb die Identifikation von zweifelhaften Relationswerten dann fragwürdig ist.

Eine zweite benutzte Prozedur zur Überprüfung der Meßanalyseedaten mit Isotopenrelationen ist die sogenannte "Konsistenzprüfung mit historischen Daten" /21/. Die Meßdaten der aktuellen Wiederaufarbeitungskampagne eines Reaktors werden mit den Meßdaten früherer Wiederaufarbeitungskampagnen des gleichen Reaktors oder eines ähnlichen Reaktors verglichen. Aus der Differenz zwischen den beiden Meßdaten läßt sich ein zweifelhafter Relationswert feststellen. Die Nachteile bei der Anwendung dieser Prozedur sind:

- (i) es ist fragwürdig, ob eine für einen bestimmten Brennstoff bei einer früheren Analyse beobachtete Relation für die aktuellen Meßergebnisse weiterhin gilt. Die Isotopenrelationen hängen meistens von Reaktorparametern ab und fragwürdige Extrapolationen können notwendig sein;

(ii) die alten Analysedaten müssen gesammelt werden. Um dieses umfangreiche Informationsvolumen, das aus Nachbestrahlungsanalysen verschiedener Reaktoren entsteht, zu speichern, müssen große Datenbanken angelegt werden. Damit vergrößert sich der Aufwand zur Überprüfung der Meßanalysedaten.

Bei der Anwendung der "internen Konsistenzprüfung" und der "Konsistenzprüfung mit historischen Daten" zur Überprüfung der Meßanalysedaten werden die Ursachen für den abweichenden Relationswert nicht erkannt. Diese Methoden stellen deshalb kein eindeutiges Konzept zur Anwendung von Isotopenrelationen dar.

Wesentlich bei einer zuverlässigen Anwendung von Isotopenrelationen bei der Überprüfung der Meßanalysedaten ist, die Genauigkeit bei der experimentellen Bestimmung der Isotopenrelationen festzustellen. Die behauptete Genauigkeit bei der massenspektrometrischen Bestimmung von Pu/U, U- und Pu-Isotopenkonzentrationen ist kleiner als 1%. Bei routinemäßigen Messungen in Wiederaufarbeitungsanlagen treten jedoch größere Abweichungen zwischen Meßwerten von verschiedenen Labors auf.

In /43/ werden mittlere Abweichungen von 4% in  $U^{235}$ -Konzentrationen, 5.5% in  $U^{236}$ -Konzentrationen und 3% im Pu/U-Verhältnis bei Messungen von zwei Labors berichtet. Im Rahmen des ICE-Experiments /46/ wurden die U- und Pu-Konzentrationen sowie die Isotopenzusammensetzung von 5 KWO-Brennelementen von vier Labors massenspektrometrisch bestimmt. Die vorläufigen Ergebnisse zeigen die folgenden mittleren Abweichungen in Prozent zwischen den Ergebnissen von den vier Labors für Isotopenkonzentrationen und -relationen /47/:

U <sup>235</sup> :	0.7	Pu/U:	2.5
U <sup>236</sup> :	0.9	(Pu/U)/D <sup>235</sup> :	2.5
Pu <sup>239</sup> :	2.7	(Pu/U)/U <sup>236</sup> :	2.2
Pu <sup>240</sup> :	2.7	(Pu/U)/(100-Pu <sup>239</sup> ):	2.8
Pu <sup>241</sup> :	2.5	(Pu/U)/(Pu <sup>240</sup> /Pu <sup>239</sup> ):	2.7
Pu <sup>242</sup> :	3.3	(Pu/U)/[ $\frac{-Pu^{239}}{Pu^{240}} \cdot \frac{Pu^{242}}{Pu^{240}-7}$ ]:	4.6

Zur Pu- und Abbrandbestimmung an aufgelösten Brennstoffen in Wiederaufarbeitungsanlagen werden Isotopenrelationen von Spaltgasen ebenfalls experimentell untersucht: (Pu/U)/(Xe<sup>132</sup>/Xe<sup>131</sup>), (Pu/U)/(Kr<sup>84</sup>/Kr<sup>83</sup>), (Pu/U)/(Xe<sup>132</sup>/Xe<sup>134</sup>), (Pu/U)/(Kr<sup>84</sup>/Kr<sup>86</sup>), (Abbrand)/(Xe<sup>132</sup>/Xe<sup>131</sup>), (Abbrand)/(Kr<sup>84</sup>/Kr<sup>83</sup>) / 18 /. Die Spaltgase werden während der Brennstoffauflösung gesammelt und homogenisiert. Die Konzentrationsverhältnisse der Spaltgase werden mittels Massenspektrometrie bestimmt. Der Zeitraum für die massenspektrometrische Bestimmung beträgt ca. 1 Woche / 48/. Der wichtigste Vorteil der Relationen von Spaltgasen liegt darin, daß sie nicht von der Rückführung plutoniumhaltiger Lösung in den Auflösertank beeinflusst werden. Diese Rückführung kann aus innerbetrieblichen Gründen in Wiederaufarbeitungsanlagen erforderlich sein.

Bei der Messung des Kr<sup>84</sup>/Kr<sup>83</sup>, Xe<sup>132</sup>/Xe<sup>131</sup>, Kr<sup>84</sup>/Kr<sup>86</sup>- und Xe<sup>132</sup>/Xe<sup>134</sup>-Verhältnisses werden Standardabweichungen von ca. 0.3% angegeben /49/. Eine vollständige Analyse der Genauigkeit bei der Pu- und Abbrandbestimmung mit Spaltgasrelationen wurde nicht durchgeführt. In /50/ wird aufgrund der Meßanalyse eines KWO-Brennelements eine Genauigkeit von ca. 3-5% bei der Pu-Bestimmung mit der Relation (Pu/U)/(Kr<sup>84</sup>/Kr<sup>83</sup>) erwähnt. In /17/ wird die Abbrandbestimmung durch die Relation (Abbrand)/(Xe<sup>132</sup>/Xe<sup>131</sup>) mit einer Genauigkeit von ca. 5% durchgeführt.

Da die Meßanalyse von Spaltgasen nicht routinemäßig in Wiederaufarbeitungsanlagen durchgeführt wird, liegen wenige experimen-

telle Ergebnisse über die Sensitivität der Spaltgasrelationen bezüglich der Reaktor- und Brennelement-Parameter vor. Zu einer zuverlässigen Anwendung der Spaltgasrelationen sollen deshalb die Einflüsse der Reaktor- und Brennelement-Parameter auf die Relationen vollständig ermittelt werden.

Empirisch beobachtete Isotopenrelationen können zur Bestätigung der anfänglichen Zusammensetzung des Brennstoffs, die vom Brennelementhersteller angegeben wurde, angewendet werden. Damit könnte eine Vertauschung von Brennelementen verschiedener Anfangsanreicherung, welche vor der Auflösung der Brennelemente stattgefunden hat, identifiziert werden.

Ein Beispiel der Anwendung von Isotopenrelationen zur Bestimmung der Anfangsanreicherung des Brennstoffes wird in /19/ angegeben: Bei der Wiederaufarbeitung des U-Core vom YANKEE-Druckwasserreaktors (130 MWe) wurden 11 t Brennstoff behandelt. Der Brennstoff hat nach Angabe des Brennelementherstellers 4.1%  $U^{235}$ -Anfangsanreicherung. Der Abbrand liegt zwischen 9.7 und 25.6 Gwd/tU. Es wurden 11 Auflöserchargen je mit 1 t Brennstoff gebildet. Aus den Meßanalysedaten des Wiederaufarbeiters wurde die folgende lineare Relation gewonnen:

$$(2.5) \quad \frac{Pu}{U} = 22006 - 5338 W^{235}$$

Darin ist  $W^{235}$  die  $U^{235}$ -Anreicherung des Brennstoffs. Da der frische Brennstoff kein Pu-Gehalt hatte ( $Pu/U = 0$  zur Zeit Null), konnte die Anfangsanreicherung mittels der Gl. 2.5 gefunden werden:  $W_0 = 4.123\%$ . Der bestimmte Wert ist nur ca. 0.5% größer als der vom Brennelementhersteller angegebene Wert ( $W_0^{235} = 4.100\%$ ). Eine Vertauschung von Brennstoffen verschiedener Anfangsanreicherungen kann also damit ausgeschlossen werden.

Bei diesem Verfahren soll die lineare Relation gut abgesichert sein. Wenn die Abbrandwerte der Brennelemente eng zusammen liegen und die lineare Relation nicht gut abgesichert ist, können große Fehler (>10%) bei der Bestimmung der  $U^{235}$ -Anfangsanreicherung

rung wegen der Extrapolation der Meßergebnisse auftreten. Eine Aussage über Brennstoffvertauschung ist in diesem Fall fragwürdig.

Isotopenrelationen werden auch verwendet, um den Abbrand der aufgelösten Brennelemente am Eingang der Wiederaufarbeitungsanlage zu bestimmen. In /29/ wurden Abbrandwerte, die man mit den Relationen  $(\text{Abbrand})/D^{235}$ ,  $(\text{Abbrand})/(\Delta U^{236})$ ,  $(\text{Abbrand})/(\text{Pu}/\text{U})$  und  $(\text{Abbrand})/\text{Cs}$  erhält, mit dem Abbrandwert der bisher benutzten Nd-Methode /36/ verglichen. Das Experiment wurde an bestrahlten Brennelementen der Reaktoren Ardennes (250 MWe-DWR), Mühlberg (300 MWe-SNR) und Stade (630 MWe-DWR) durchgeführt. Die mittleren Abweichungen zwischen den Abbrandwerten sind in Tab. 2.2 zusammengefaßt. Die Abbrandwerte, die mit Isotopenrelationen ermittelt wurden, weichen weniger als 2% von den mit der Nd-Methode bestimmten Abbrandwerten ab. Die Abweichungen liegen innerhalb der Ungenauigkeit der Abbrandbestimmung mit der Nd-Methode von 2% bis 5%.

Methode	Mittlere Abweichung (%)		
	Ardennes	Mühlberg	Stade
Nd-D <sup>235</sup>	0.68	1.05	0.04
Nd-ΔU <sup>236</sup>	0.66	1.72	0.92
Nd-Pu/U	-	-	0.69
Nd-Cs	-	0.59	-

Tab. 2.2: Vergleich der Methoden zur Bestimmung des Abbrandes für die Reaktoren Ardennes, Mühlberg und Stade /29/

Nachdem die experimentellen Ergebnisse bei der Bestimmung der Spaltstoffmenge und die dabei gefundenen Genauigkeiten in den Kernanlagen und bei der Anwendung von Isotopenrelationen erörtert wurden, wird in Kapitel 3 auf die theoretischen Grundlagen der Isotopenrelationen eingegangen.

### 3. Theoretische Grundlage der Isotopenrelationen

Wenn im Rahmen dieser Arbeit theoretische Verfahren gegenüber der bisherigen Anwendung stärker eingesetzt werden, müssen sie sehr sorgfältig an Experimenten überprüft werden. Dies ist der erste Schwerpunkt der vorliegenden Untersuchung.

Die experimentellen Ergebnisse des Kapitels 2 zeigen, daß die Isotopenrelationen meistens von den Reaktor- und Brennelementparametern beeinflußt werden. Um die Relationen theoretisch abzusichern, ist es notwendig festzustellen, wie sie von den wichtigsten Parametern eines Leichtwasserreaktors abhängen, nämlich Abbrand, Anfangsanreicherung, Moderator/Brennstoff-Verhältnis, Dicke der Brennstab-Hülle, Bor-Konzentration im Moderator, Leistungsgeschichte und Abklingzeit nach der Brennstoffentladung aus dem Reaktor. Ferner stellt sich die Frage, ob der empirisch beobachtete Zeitverlauf einer Relation auf eine allgemein gültige Gesetzmäßigkeit hinweist. Diese Frage wird am Beispiel der zur Bestimmung des Pu-Gehalts abgebrannter Brennstoffe wichtigen  $(\text{Pu}/\text{U})/\text{D}^{235}$ -Relation untersucht.

Das Zell-Abbrand-Programm HAMKOR zur Berechnung der Relationsverläufe über die möglichen Änderungsbereiche der oben zitierten Parameter wird vorgestellt und verifiziert. Die Rechenergebnisse werden mit einer Vielzahl von Meßergebnissen aus Analysen aufgelöster Brennstoffe einzelner Brennelemente von Druckwasserreaktoren verglichen.

#### 3.1 Abbrandgleichungen zur Berechnung der Isotopenkonzentrationen

Die zeitliche Änderung der Konzentration  $N^i(\vec{n}, t)$  eines Isotops  $i$  an jedem Ort  $\vec{n}$  des Reaktors wird durch die Summe aller Beiträge, die zum Auf- und Abbau des Isotops führen, angegeben:

$$(3.1) \quad \frac{dN^i(\vec{n}, t)}{dt} = C^{i-1}(\vec{n}, t) + K^j(\vec{n}, t) - A^i(\vec{n}, t) - K^i(\vec{n}, t)$$

Darin bedeuten:

$C^{i-1}(\vec{n}, t)$  die makroskopische Reaktionsrate für den Aufbau des Isotops  $i$  durch Neutroneneinfangprozesse des Isotops  $i-1$ ;  
 $K^j$  die makroskopische Reaktionsrate für den Aufbau des Isotops  $i$  über radioaktiven ( $\alpha, \beta$ ) Zerfall des Isotops  $j$ ;  
 $A^i$  die makroskopische Reaktionsrate für die Neutronenabsorption am Isotop  $i$ ;  
 $K^i$  die makroskopische Reaktionsrate für den radioaktiven Zerfall des Isotops  $i$ .

Die makroskopischen Reaktionsrate in Gl. (3.1) können wie folgt ausgedrückt werden:

$$(3.2) \quad C^{i-1}(\vec{n}, t) = N^{i-1}(\vec{n}, t) \int_0^{00} \sigma_c^{i-1}(\vec{n}, E, t) \cdot \phi(\vec{n}, E, t) dE$$

$$A^i(\vec{n}, t) = N^i(\vec{n}, t) \int_0^{00} \sigma_a^i(\vec{n}, E, t) \cdot \phi(\vec{n}, E, t) dE$$

$$K^i(\vec{n}, t) = \lambda^i \cdot N^i(\vec{n}, t)$$

Man definiert den energiegemittelten effektiven Neutronenwirkungsquerschnitt für die Reaktion  $x$  ( $a =$  Absorption,  $c =$  Einfang,  $f =$  Spalt) des Isotops  $i$  am Ort  $\vec{n}$  zur Zeit  $t$

$$(3.3) \quad \sigma_x^i(\vec{n}, t) = \frac{\int_0^{00} \sigma_x^i(\vec{n}, E, t) \phi(\vec{n}, E, t) dE}{\int_0^{00} \phi(\vec{n}, E, t) dE}$$

und die totale Neutronenflußdichte am Ort  $\vec{n}$  zur Zeit  $t$ :

$$(3.4) \quad \phi(\vec{n}, t) = \int_0^{00} \phi(\vec{n}, E, t) dE$$

$$(3.5) \quad \frac{dN^i(\vec{n}, t)}{dt} = N^{i-1}(\vec{n}, t) \sigma_c^{i-1}(\vec{n}, t) \phi(\vec{n}, t) - N^i(\vec{n}, t) \sigma_a^i(\vec{n}, t) \phi(\vec{n}, t) + \lambda^j N^j(\vec{n}, t) - \lambda^i N^i(\vec{n}, t)$$

Darin ist  $\lambda^i$  die Zerfallskonstante des Isotops  $i$ .

Zur Lösung der Gl. (3.5) ist es notwendig, die vom Ort und Zeit abhängigen effektiven Neutronenwirkungsquerschnitte  $\sigma_x^i(\vec{n}, t)$  und die totale Neutronenflußdichte  $\phi(\vec{n}, t)$  zu ermitteln. Dazu wird normalerweise eine Vereinfachung in  $\vec{n}$  angenommen:  $\phi(\vec{n}, t)$  und  $\sigma_x^i(\vec{n}, t)$  werden diskret in  $\vec{n}$  gerechnet und dann über einem Volumen  $V$  gemittelt.

Bei Integration von Gl. (3.5) über das Volumen  $V$  erhält man:

$$(3.6) \quad \frac{dN^i(t)}{dt} = \frac{\int_V N^{i-1}(\vec{n}, t) \sigma_c^{i-1}(\vec{n}, t) \phi(\vec{n}, t) d\vec{n}}{\int_V N^{i-1}(\vec{n}, t) d\vec{n}} \cdot N^{i-1}(t) - \frac{\phi(t)}{\frac{1}{V} \int_V \phi(\vec{n}, t) d\vec{n}} - \frac{\int_V N^i(\vec{n}, t) \sigma_a^i(\vec{n}, t) \phi(\vec{n}, t) d\vec{n}}{\int_V N^i(\vec{n}, t) d\vec{n}} \cdot N^i(t) + \lambda^j N^j(t) - \lambda^i N^i(t)$$

Darin sind: (3.7)  $N^i(t) = \frac{1}{V} \int_V N^i(\vec{n}, t) d\vec{n}$  die mittlere Konzentration des Isotops  $i$  im Volumen  $V$ ; und (3.8)  $\phi(t) = \frac{1}{V} \int_V \phi(\vec{n}, t) d\vec{n}$  die mittlere Neutronenflußdichte im Volumen  $V$ .

Aus Gl. (3.6) erhält man

$$(3.9) \quad \frac{dN^i(t)}{dt} = N^{i-1}(t) \sigma_c^{i-1}(t) \phi(t) - N^i(t) \sigma_a^i(t) \phi(t) + \lambda^j N^j(t) - \lambda^i N^i(t)$$

mit

$$(3.10) \quad \sigma_x^i(t) = \frac{\int_V N^i(\vec{n}, t) \sigma_x^i(\vec{n}, t) \phi(\vec{n}, t) d\vec{n}}{\frac{1}{V} \int_V \phi(\vec{n}, t) d\vec{n} \cdot \int_V N^i(\vec{n}, t) d\vec{n}}$$

$\sigma_x^i(t)$  ist der effektive mittlere mikroskopische Neutronenwirkungsquerschnitt für die Reaktion x im Volumen V. Er enthält die Ortsverteilung der Nuklidkonzentration und der Neutronenflußdichte als Wichtungsfunktion. Wählt man die Zonen so aus, daß sowohl die Nuklidkonzentration als auch die Neutronenflußdichte nur schwach ortsabhängig sind, läßt sich  $\sigma_x^i(t)$  schreiben:

$$(3.11) \quad \sigma_x^i(t) = \frac{1}{V} \int \sigma_x^i(\vec{n}, t) d\vec{n}$$

Die Zeitabhängigkeit von  $\sigma_x^i$  kommt hauptsächlich folgendermaßen zustande: Bei zunehmendem Aufbau von Nukliden mit Resonanzabsorption, z.B.  $\text{Pu}^{240}$  mit ausgeprägtem Neutroneneinfang bei 1.058 eV, tritt eine mit der Zeit zunehmende Neutronenflußabsenkung auf, die erstens  $\sigma_c(\text{Pu}^{240})$  reduziert (energetische Resonanzselbstabschirmung) und die zweitens die Wirkungsquerschnitte der anderen Nuklide verändert. Diese Veränderung kann bei einigen Nukliden (z.B.  $\text{U}^{238}$ ) eine Vergrößerung des  $\sigma$ , bei anderen (z.B.  $\text{U}^{235}$ ,  $\text{Pu}^{239}$ ) eine Verkleinerung sein. Die zeitlichen Vorläufe von  $\sigma_a$  und  $\sigma_c$  werden meist numerisch mit Hilfe von Abbrand- und Reaktorspektrumsrechnungen ermittelt, da wegen der komplexen Wechselspiele der Resonanzmaterialien eine analytische Darstellung von  $\sigma_x(t)$  nicht möglich ist. Die zeitlichen Verläufe der Neutronenwirkungsquerschnitte der wichtigsten U- und Pu-Isotope wird in Abschnitt 3.3 diskutiert.

### 3.2 Theoretische Betrachtung zur Linearität der (Pu/U)/D<sup>235</sup>-Relation

Die (Pu/U)/D<sup>235</sup>-Relation wird üblicherweise definiert durch:

$$(3.12) \quad \frac{(Pu/U)}{D^{235}} = \left( \frac{\text{Masse Pu in Gramm}}{\text{Masse U in Gramm}} \right) / \left( \text{Änderung der U}^{235}\text{-Anreicherung in \%} \right)$$

Die bisherigen experimentellen Befunde zu dieser Relation zeigen innerhalb der Meßgenauigkeit einen konstanten (Pu/U)/D<sup>235</sup>-Wert für Abbrände von unter 10000 bis etwa 30000 MWd/tU<sub>0</sub>.

Da der Schwerpunkt bei der Überwachung von Brennstoffen in erster Linie auf dem Plutoniuminventar liegt, spielt in der Isotopenrelationstechnik die (Pu/U)/D<sup>235</sup>-Relation, die bei bekannter U<sup>235</sup>-Abreicherung, D<sup>235</sup>, einen unmittelbaren Rückschluß auf das (Pu/U)-Verhältnis und so eine Überprüfung der im Eingangstank der Wiederaufarbeitungsanlage von deren Betreiber gemessenen (Pu/U)-Wert ermöglicht, eine große Rolle.

In diesem Abschnitt sollen die folgenden Fragen geklärt werden: Wie verändert sich das (Pu/U)-Verhältnis mit dem Abbrand von U<sup>235</sup> und insbesondere bis zu welchem Abbrand ist die (Pu/U)/D<sup>235</sup>-Relation linear?

Wir möchten zuerst die bisherigen theoretischen Untersuchungen zu dieser Frage zusammenfassen.

Weisbin und Thorpe /51/ haben erstmals theoretisch die Linearität zwischen dem Pu-Aufbau und dem U<sup>235</sup>-Aufbau untersucht. Sie haben die Pu<sup>239</sup>-Konzentration (Pu<sup>239</sup>) als Funktion der zeitlichen Änderung der U<sup>235</sup>-Konzentration  $\int A^{235}(t) = U_0^{235} - U^{235}(t)$ ; U<sup>235</sup> in Atom/cm<sup>3</sup> nach einer Taylor-Entwicklung in  $A^{235}/U_0^{235}$  ausgedrückt, wie folgt:

$$(3.13) \quad \frac{\text{Pu}^{239}(t)}{\text{U}_o^{238}} = \frac{\sigma_c^{238}(t)}{\sigma_a^{235}(t)} \left[ - \frac{A^{235}(t)}{\text{U}_o^{235}} - \left( \frac{\sigma_a^{239}(t) - \sigma_a^{235}(t)}{\sigma_a^{235}(t)} \right) \frac{\left( \frac{A^{235}(t)}{\text{U}_o^{235}} \right)^2}{2} + \dots \dots \dots \right]$$

Es wurde in dieser Untersuchung angenommen, daß:

- (a) es nur zwei Spaltisotope ( $\text{U}^{235}$  und  $\text{Pu}^{239}$ ) im Reaktor gibt
- (b) der Abbrand von  $\text{U}^{238}$  vernachlässigbar ist, d.h.  $\text{U}^{238}(t) = \text{konstant}$
- (c) der effektive Absorptionswirkungsquerschnitt von  $\text{U}^{235}$  und der effektive Einfangwirkungsquerschnitt von  $\text{U}^{238}$  abbrandunabhängig sind, d.h.  $\sigma_a^{235}(t) = \text{konstant}$  und  $\sigma_c^{238}(t) = \text{konstant}$
- (d)  $\text{Pu}^{239}(t=0) = 0$

Für kleine Abbrände (<5 GWd/t U) ist wegen  $\frac{A^{235}}{\text{U}_o^{235}} \ll 1$  der zweite Term in Gl. 3.13 vernachlässigt worden, so daß:

$$(3.14) \quad \frac{\text{Pu}^{239}(t)}{\text{U}_o^{238}} \approx \frac{\sigma_c^{238}}{\sigma_a^{235}} \cdot \frac{1}{\text{U}_o^{235}} \cdot A^{235}(t)$$

der  $\text{Pu}^{239}$ -Aufbau proportional zur Änderung der  $\text{U}^{235}$ -Konzentration mit dem Abbrand ist.

Die Annahme eines konstanten  $\sigma_a^{235}$ -Wertes und von  $\frac{A^{235}}{\text{U}_o^{235}} \ll 1$  schränken jedoch die Analyse für Leichtwasserreaktoren ein:

$\sigma_a^{235}$  ändert sich für solche Reaktoren um ca. 20% für Abbrände zwischen 0 und 25 GWd/t U. Außerdem ist der zweite Term in Gl. (3.13) bei 25 GWd/t U-Abbrand ca. 30% des ersten Terms und kann nicht vernachlässigt werden.

Prezbindowski /26/ hat analytisch die zeitliche Änderung der Pu-Konzentration als Funktion der zeitlichen Änderung der  $\text{U}^{235}$ -Abreicherung wie folgt ausgedrückt:

$$(3.15) \quad \frac{\frac{d(\text{Pu})}{dt}}{\frac{d(\text{D}^{235})}{dt}} = \frac{F^{235}}{1 + \frac{\sigma_c^{235}(t)}{\sigma_f^{235}(t)}}$$

$$\left[ \frac{U^{238}(t)\sigma_c^{238}(t) - (\text{Pu}^{239}(t)\sigma_f^{239}(t) + \text{Pu}^{241}(t)\sigma_f^{241}(t))}{P - F^{238} U^{238}(t)\sigma_f^{238}(t)\phi(t)} - \frac{(\text{Pu}^{239}(t)\sigma_f^{239}(t) + \text{Pu}^{241}(t)\sigma_f^{241}(t))}{\phi(t)} \right]$$

Darin sind  $F^i$  die Energiefreisetzung bei der Spaltung des Isotops  $i$ ,  $\phi(t)$  die Neutronenflußdichte und  $P$  die erzeugte Leistung.

Die wichtigsten Annahmen in dieser Untersuchung sind:

- (i) der Abbau der Pu-Konzentration durch Neutronenabsorption in  $\text{Pu}^{242}$  ist vernachlässigbar
- (ii) die Leistung  $P$  ist konstant
- (iii) die  $\text{U}^{238}$ -Konzentration ist konstant:  $U^{238}(t) = U^{238}(t=0) = U_0^{238}$ .

Mit der Einsetzung berechneter Werte für den YANKEE-Reaktor in Gl. (3.15) wurde eine Änderung der  $(\text{Pu}/\text{U})/\text{D}^{235}$ -Relation von ca. 3% zwischen 7.5 und 25 Gwd/t U-Abbrand festgestellt. Die Ergebnisse deuten jedoch auf größere Abweichungen von der Linearität für Abbrände oberhalb 25 Gwd/t U hin, was nicht den experimentellen Befunden entspricht.

In /25/ wurde die  $(\text{Pu}/\text{U})/\text{D}^{235}$ -Relation für den Brennstoff eines Schnellbrüterreaktors gerechnet. Es ergibt sich wie bei Leichtwasserreaktoren einen näherungsweise konstanten Wert der  $(\text{Pu}/\text{U})/\text{D}^{235}$ -Relation für Abbrände zwischen 0 und 90 Gwd/t U.

Zur Klärung der Frage, welcher Verlauf der  $(\text{Pu}/\text{U})/\text{D}^{235}$ -Relation für Abbrände über 25 Gwd/t U in modernen Leichtwasserreaktoren zu erwarten ist, und wie dieser Verlauf theoretisch interpretiert werden kann, wird im folgenden unter Verwendung eines einfachen

Modells für den Pu-Aufbau die  $(\text{Pu}/\text{U})/D^{235}$ -Relation untersucht. Der Autor hat die Untersuchung der  $(\text{Pu}/\text{U})/D^{235}$ -Relation als erstes im Zusammenhang mit der vorliegenden Arbeit durchgeführt /52/. Das einfache Modell für den Pu-Aufbau wird nur für die Untersuchung der  $(\text{Pu}/\text{U})/D^{235}$ -Relation benutzt werden. In den weiteren Untersuchungen im Rahmen dieser Arbeit wird ein vollständiges Modell für den Pu-Aufbau betrachtet werden.

Das vereinfachte Modell für den Pu-Aufbau ist charakterisiert durch die folgenden Vernachlässigungen:

(a) die zeitliche Verzögerung des Pu-Aufbaus durch die schnellen  $\beta$ -Übergänge (Halbwertszeiten  $T_{1/2} < 10$  Tage):

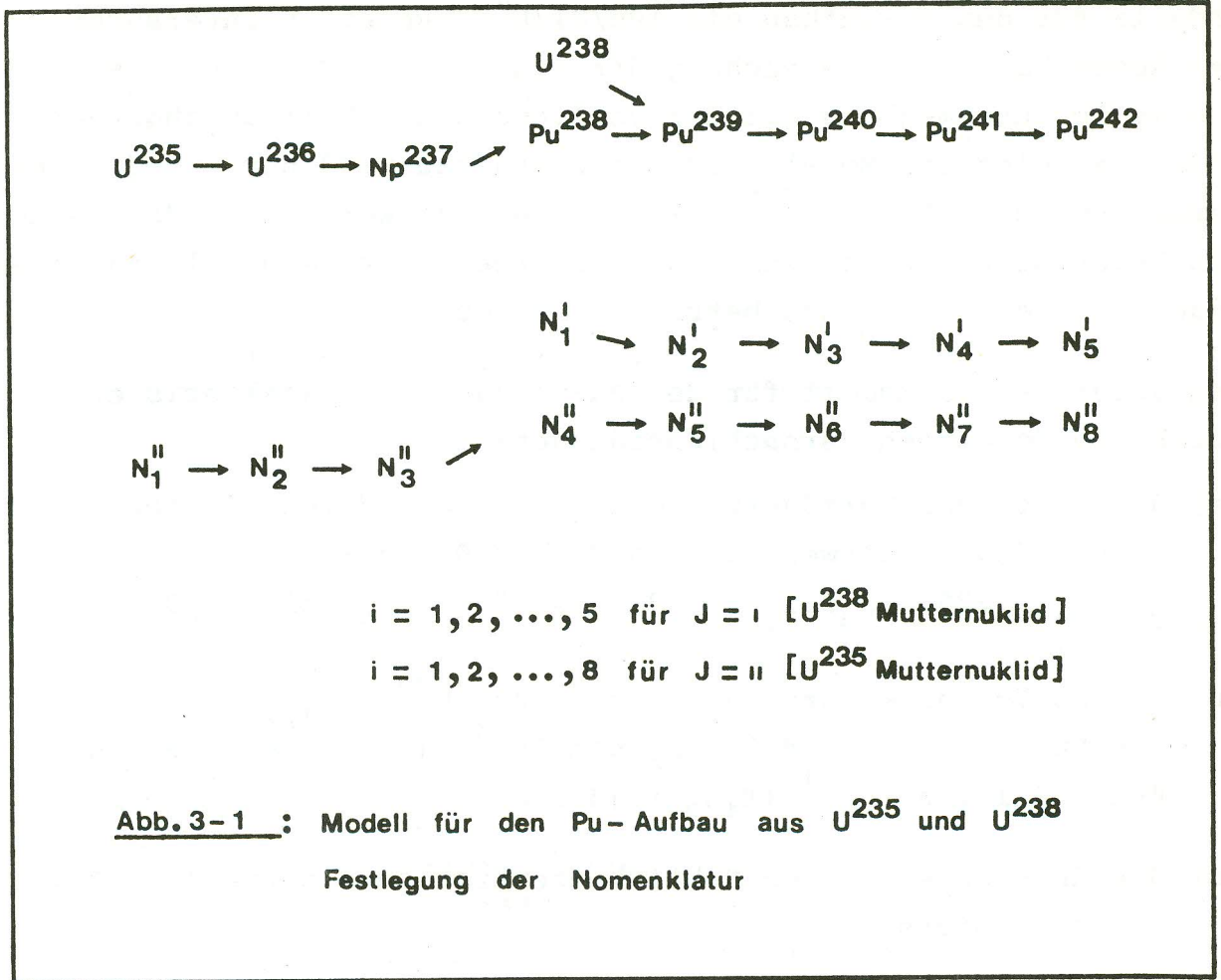


(b) die Pu-Verluste durch  $\alpha$ -Zerfall von  $\text{Pu}^{238}$  ( $T_{1/2} = 86.4$  a), von  $\text{Pu}^{239}$  ( $T_{1/2} = 24400$  a), von  $\text{Pu}^{240}$  ( $T_{1/2} = 6600$  a) und  $\beta$ -Zerfall von  $\text{Pu}^{241}$  ( $T_{1/2} = 13.2$  a).

(c) die Änderungen in den Nuklidkonzentrationen durch  $(n,2n)$ -,  $(n,3n)$ -Prozesse

(d) die Bildung von  $\text{Pu}^{238}$  durch  $\alpha$ -Zerfall von  $\text{Cm}^{242}$  ( $T_{1/2} = 163$  Tage).

Abb. 3.1 zeigt die reduzierte Nuklidkette, durch die, ausgehend von den Mutternukliden  $\text{U}^{238}$  und  $\text{U}^{235}$ , durch Neutroneneinfang unter Abbrennen der spaltbaren Isotope Plutonium aufgebaut wird. In Abb. 3.1 wird auch die benutzte Nomenklatur vorgestellt.



Aus der Definition der  $(Pu/U)/D^{235}$ -Relation in Gl. 3.12 können wir schreiben:

$$(3.16) \quad \frac{(Pu/U)}{D^{235}} = 10^4 \frac{M^{Pu}}{M^U \cdot \left[ \frac{M_O^{U^{235}}}{M_O^U} - \frac{M^{U^{235}}}{M^U} \right]}$$

- mit:
- $M^{Pu}$  = Masse Pu in Gramm
  - $M^U$  = Masse U in Gramm
  - $M^{U^{235}}$  = Masse  $U^{235}$  in Gramm

In der Nomenklatur in Abb. 3.1 läßt sich  $(\text{Pu/U})/D^{235}$  als

$$(3.17) \quad \frac{(\text{Pu/U})}{D^{235}} = 10^4 \frac{\sum_{i=2}^5 (237+i) N_i^I + \sum_{i=4}^8 (234+i) N_i^{II}}{|P_o \cdot 238 \cdot N_1^I - P'_o \cdot 235 \cdot N_1^{II}|}$$

schreiben. Darin ist:

$$(3.18) \quad P_o = \frac{235 N_{10}^{II}}{235 N_{10}^{II} + 238 N_{10}^I} \quad \text{die } U^{235}\text{-Anfangsanreicherung}$$

und

$$(3.19) \quad P'_o = \frac{238 N_{10}^I}{235 N_{10}^{II} + 238 N_{10}^I} \quad \text{die } U^{238}\text{-Anfangsanreicherung.}$$

Zur Berechnung von  $(\text{Pu/U})/D^{235}$  nach (3.17) benötigt man  $N_i^I$  und  $N_i^{II}$ . Nach Gl. (3.9) genügen die Nuklidkonzentrationen  $N_i^J$  der Uran- und Plutoniumisotope dem System von Diff.Gl.:

$$(3.20) \quad \frac{dN_1^J(t)}{dt} = - \sigma_{a,1}^J(t) \phi(t) N_1^J(t)$$

$$(3.21) \quad \frac{dN_i^J(t)}{dt} = - \sigma_{a,i}^J(t) \phi(t) N_i^J(t) + \sigma_{c,i-1}^J(t) \phi(t) N_{i-1}^J$$

mit  $i = 2, \dots, 5$  für  $J=I$   
 $2, \dots, 8$  für  $J=II$

mit den Anfangswerten bei  $t = 0$  (Bestrahlungsanfang):

$$(3.22) \quad \begin{aligned} N_1^J(0) &= N_{10}^J > 0 & i &= 2, \dots, 5 \quad \text{für } J=I \\ & & & 2, \dots, 8 \quad \text{für } J=II \\ N_i^J(0) &= 0 \end{aligned}$$

Zur Ermittlung einer analytischen Lösung der Abbrandgleichungen werden hier die Querschnittsverläufe durch Stufenfunktionen in  $t$  dargestellt:

$$(3.23) \quad \sigma_{x,i}^J(t) = \sigma_{x,i}^{J,m} = \text{konstant} \quad \text{für} \quad t_{m-1} < t \leq t_m; \quad t_0 = 0$$

$$m = 1, 2, \dots, M$$

$$x = a, c, f$$

Bezeichnet man die Lösungen von Gl. (3.20) für  $t_{m-1} < t \leq t_m$  mit  $N_{i,m}^J(t)$ , setzt man  $N_{i,m}^J(t_m) = N_i^{J,m}$ , und definiert man

$$(3.24) \quad n_m^J(t) = e^{-\int_{t_{m-1}}^t dt' \sigma_{a,1}^J(t') \phi(t')} \quad , \quad t_{m-1} < t \leq t_m$$

so findet man:

$$(3.25) \quad N_{i,m}^J(t) = \prod_{l=1}^i N_l^{J,m-1} \cdot F_{i,l}^{J,m} \left[ n_m^J(t) \right]$$

mit

$$(3.26) \quad F_{i,l}^{J,m}(x) = \sigma_{c,1}^{J,m} \cdot \sigma_{c,1+1}^{J,m} \dots \sigma_{c,i-1}^{J,m} \cdot \prod_{\substack{j=1 \\ K \neq j}}^i \frac{x^{\sigma_{a,j}^{J,m} / \sigma_{a,1}^{J,m}}}{(\sigma_{a,k}^{J,m} - \sigma_{a,j}^{J,m})}$$

Gl. (3.25) sind die Lösungen des Gl. Systems (3.20-3.21), wenn  $\sigma_{a,k}^{J,m} \neq \sigma_{a,j}^{J,m}$ ; dies ist bei den hier beteiligten U- und Pu-Isotopen stets erfüllt.

Weiter findet man, daß:

$$(3.27) \quad n_m^{II}(t) = \left[ n_m^I(t) \right]^{\sigma_{a,1}^{II,m} / \sigma_{a,1}^{I,m}}$$

Das bedeutet, daß nach Berechnung der  $U^{235}$ -Konzentration  $N_{1,m}^I(t)$  oder bei Verwendung dieser Größe als neuer Variable alle anderen Nuklidkonzentrationen aus der  $U^{235}$ -Konzentration abgeleitet werden können. Dies ist von Bedeutung, da sich auch der Abbrand von

$t=0$  bis  $t_m$ ,  $B(t_m)$ , durch die Nuklidkonzentrationen und damit die  $U^{235}$ -Konzentration allein ausdrücken läßt:

$$(3.28) \quad B(t_m) = \frac{\bar{B}}{N_{10}^{II} + \frac{238}{235} N_{10}^I} \cdot \sum_{J=I}^{II} \sum_{K=1}^m \sum_{i=1}^5 \epsilon_i^J (1 - \gamma_i^{J,K})$$

$$\prod_{j=1}^i \gamma_j^{J,K} \cdot \gamma_{j+1}^{J,K} \cdots \gamma_{i-1}^{J,K} \left[ N_{i,k}^J(t_{m-1}) - N_{i,k}^J(t_m) \right]$$

mit  $\epsilon_i^J$  = Spaltenergiefreisetzung,

$$\gamma_j^{J,K} = \frac{\sigma_{c,j}^{J,K}}{\sigma_{a,j}^{J,K}}$$

Darin ist die Konstante  $\bar{B} = 9.52 \times 10^5$  MWd/t U der theoretische Energieinhalt einer Tonne  $U^{235}$ .

Die Elimination der  $U^{235}$ -Konzentration liefert die Nuklidkonzentrationen und schließlich durch Gl. (3.17) die  $\frac{(Pu/U)}{D^{235}}$ -Relation.

Bevor wir die numerischen Ergebnisse, die mit der oben beschriebenen Prozedur erzielt wurden, vorstellen, wollen wir die Bereitstellung abbrandabhängiger effektiver Neutronenwirkungsquerschnitte erläutern.

Das Neutronenspektrum und die Selbstabschirmung variieren mit den Nuklidkonzentrationen. Dadurch werden die effektiven mikroskopischen Neutronenwirkungsquerschnitte abbrandabhängig (vgl. Abschnitt 3.2), was einen starken Einfluß auf die  $\frac{(Pu/U)}{D^{235}}$ -Relation hat (Abb. 3.2 obere und untere Kurve). Zur zuverlässigen Berechnung der  $(Pu/U)/D^{235}$ -Relation müssen daher abbrandabhängige Wirkungsquerschnitte eingesetzt werden.

Dies geschieht hier durch Einsatz des erprobten Zell-Programms HAMMER /53/ und des Abbrandprogramms KÖRIGEN /54/ sowie durch Zugriff auf die Karlsruher Kerndatenbibliothek KEDAK-3 /55/ und die zugehörigen Verarbeitungsprogramme. Mit MIGROS-3 /56/ wurden unter Berücksichtigung der Gitterheterogenität (Wignersche

Rationale Näherung) Gruppenquerschnitte für unendliche Verdünnung und Selbstabschirmfaktoren bestimmt. Die daraus ermittelten effektiven Gruppenquerschnitte wurden mit einem durch HAMMER berechneten Neutronenspektrum auf eine Gruppe kondensiert. In diesem Spektrum wird der Einfluß von  $B^{10}$  (Kritikalitätskontrolle)  $Xe^{135}$ ,  $Sm^{149}$  und anderen Spaltprodukten berücksichtigt. Der Einfluß dieser Materialien auf die Selbstabschirmfaktoren wurde als vernachlässigbar ermittelt ( $\delta\sigma_a/\sigma_a < 0.02\%$ ).

Abb. 3.2 zeigt den mit Gl. (3.17) berechneten  $(Pu/U)/D^{235}$ -Verlauf mit dem Abbrand für den Brennstoff von 3.2%  $U^{235}$ -Anfangsanreicherung eines 1300 MWe-Druckwasserreaktors. Bei starker Abnahme um etwa 20% für Abbrände bis etwa 10 000 MWd/t U ist der Verlauf schwach fallend bis etwa 28 000 MWd/t U mit nachfolgendem schwachen Anstieg. Im Abbrandbereich 20 000-45 000 MWd/t U

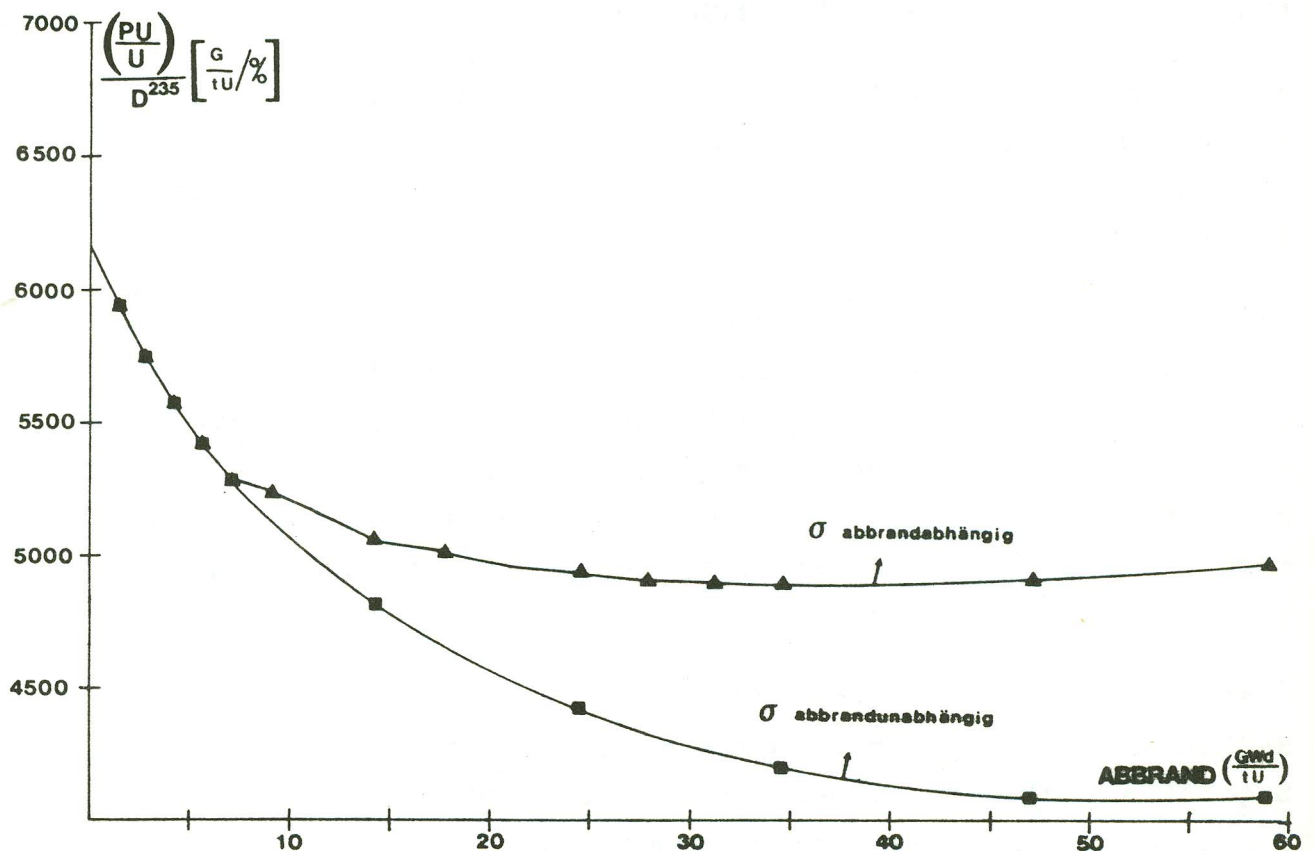


Abb.3.2 : RELATION  $(Pu/U)/D^{235}$  - Sensitivität bezgl. WQ - Abbrandabhängigkeit

variiert die Relation um ca.  $\pm 0.65\%$ . Die numerische Lösung der Gl. (3.17) liefert also die theoretische Absicherung der experimentell für Abbrände bis etwa 30 000 MWd/t U als linear innerhalb der Meßgenauigkeit ermittelten  $(Pu/U)/D^{235}$ -Relation. Aus den Modellrechnungen ergibt sich eine Fortsetzung der Linearität bis zu Abbränden sogar über 40 000 MWd/t U hinauf.

In Abb. 3.2 wird auch der Einfluß der abbrandabhängigen Neutronenwirkungsquerschnitte auf die  $(Pu/U)/D^{235}$ -Relation erläutert: Unter Verwendung abbrandunabhängiger Neutronenwirkungsquerschnitte ergibt sich eine deutliche Abweichung von der Linearität mit einer Absenkung des Relationswertes bis 25% zwischen 10 000 und 40 000 MWd/t U Abbrand. Um festzustellen, welches Gewicht den Wirkungsquerschnitten einzelner Nuklide dabei zukommt, wurde der Verlauf der Relation unter Konstanzhaltung der Querschnitte für jeweils ein Nuklid berechnet. Bei allen betrachteten Nukliden, ausgenommen  $Pu^{242}$ , dessen Querschnittsverlauf keine Rolle spielt, führt die Nichtberücksichtigung der Querschnittsänderung mit dem Abbrand zu einer Unterschätzung der  $(Pu/U)/D^{235}$ -Werte. Mit Ausnahme von  $U^{235}$  nimmt diese Unterschätzung mit dem Abbrand zu. Entsprechend dem großen Anteil von  $Pu^{239}$  am Pu-Inventar - das Modell liefert  $Pu^{238}:Pu^{239}:Pu^{240}:Pu^{241}:Pu^{242} = 1:53:21:18:7$  bei etwa 35 000 MWd/t U Abbrand - und der ausgeprägten Reduzierung von  $\sigma_a(Pu^{239})$  um 20% in diesem Abbrandintervall hat die Abbrandabhängigkeit der  $Pu^{239}$ -Wirkungsquerschnitte das größte Gewicht. Sie liefert eine Absenkung der  $(Pu/U)/D^{235}$ -Werte bis zu 8% und erzeugt so eine deutliche Abweichung von der Linearität. Der Einfluß von  $Pu^{240}$  und in geringerem Ausmaß von  $Pu^{241}$  ist wichtig hauptsächlich für Abbrände oberhalb etwa 30 000 MWd/tU.  $U^{235}$  wird bereits unterhalb 15 000 MWd/t U Abbrand wirksam, jedoch deutlich weniger als  $Pu^{239}$ .

Zusammenfassend wird bezüglich der Linearität von  $Pu/U$  in Abhängigkeit von der  $U^{235}$ -Abreicherung folgendes festgestellt:

(a) Ein streng linearer Zusammenhang liegt nicht vor.

- (b) Die Ermittlung der  $(Pu/U)/D^{235}$ -Relation auf der Basis eines einfachen Modells für den Pu-Aufbau liefert eine Konstanz der  $\frac{(Pu/U)}{D^{235}}$ -Werte bis auf  $\pm 0.65\%$  zwischen 10 000 und 40 000  $\frac{MWd}{t U}$  Abbrand
- (c) Die Relation ist sensitiv vor allem bezüglich der Abbrandabhängigkeit der  $Pu^{239}$ - und  $Pu^{240}$ -Wirkungsquerschnitte.

Die durchgeführte Untersuchung liefert die theoretische Interpretation und Untermauerung der experimentell für Abbrände bis etwa 30 000  $MWd/t U$  als konstant innerhalb der Meßgenauigkeit ermittelten  $(Pu/U)/D^{235}$ -Relation. Aus den Modellrechnungen ergibt sich eine Fortsetzung dieses Verlaufs bis zu Abbränden über 40 000  $MWd/t U$ .

### 3.3 Das Zell-Abbrand-Programm HAMKOR zur Berechnung des Nuklidinventars

Das vereinfachte Modell des Pu-Aufbaus, das für die Untersuchung der  $(Pu/U)/D^{235}$ -Relation verwendet wurde, kann zur Bestimmung der Isotopenrelationen, die Spaltprodukte oder Transplutone enthalten, nicht benutzt werden, da in diesem Fall zusätzliche Nuklidketten mitberücksichtigt werden müssen. Die Brennstoffzusammensetzung und der Abbrand werden aus einem System von Differential-Gleichungen (vgl. Abschnitt 3.1) berechnet. Für ihre Lösung müssen die anfängliche Brennstoffzusammensetzung, die effektiven Neutronenwirkungsquerschnitte einer Brennstoffzone zu einer bestimmten Zeit und die Leistungsgeschichte der Brennstoffzone angegeben werden.

Für Abbrandrechnungen bei Leichtwasserreaktoren wurde im Rahmen dieser Arbeit das Zell-Abbrand-Programm HAMKOR aus der Kopplung einer modifizierten Version des Zellprogramms HAMMER mit dem Abbrandprogramm KORIGEN entwickelt. HAMKOR besteht im wesentlichen aus zwei Teilen:

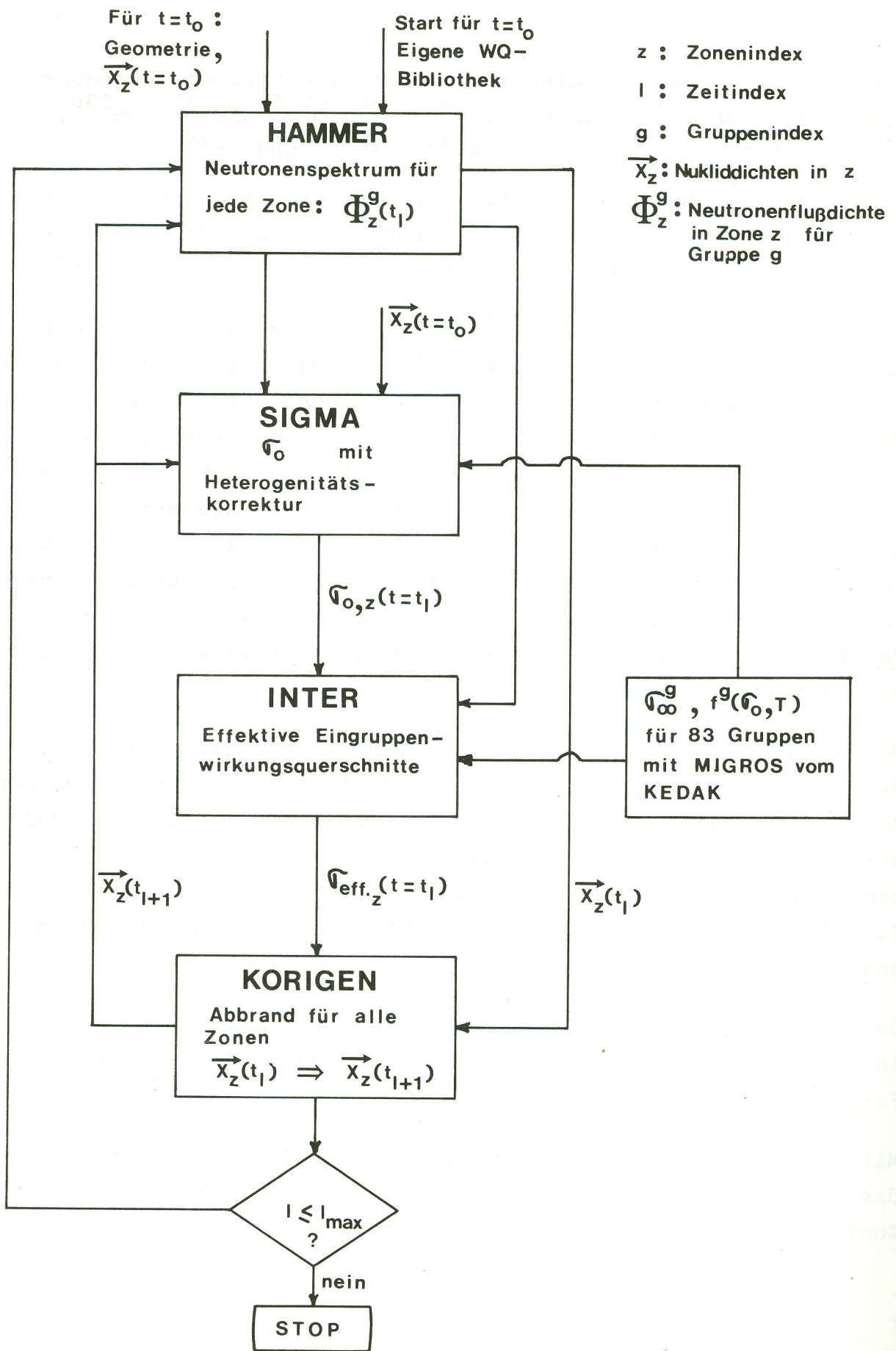
- Erzeugung effektiver mikroskopischer Eingruppenwirkungsquerschnitte für die Aktiniden  $U^{235}$ ,  $U^{236}$ ,  $U^{238}$ ,  $Np^{237}$ ,  $Pu^{238}$ ,  $Pu^{239}$ ,  $Pu^{240}$ ,  $Pu^{241}$ ,  $Pu^{242}$ ,  $Am^{241}$ ,  $Am^{243}$  und  $Cm^{244}$ .
- Lösung der Abbranddifferentialgleichungen mit den ermittelten effektiven Eingruppenwirkungsquerschnitten und der Reaktor- oder Brennelementleistungsgeschichte.

Bei der Ermittlung der effektiven mikroskopischen Wirkungsquerschnitte in Leichtwasserreaktoren spielt die heterogene Struktur des Reaktorkerns eine besondere Rolle: Wegen der ausgeprägten Absorptionsresonanzen werden die Neutronen hauptsächlich an der Oberfläche der Brennstäbe absorbiert. Um das Neutronenspektrum im Brennstoff zu ermitteln, müssen dafür Näherungsverfahren auf der Basis der Neutronentransporttheorie eingesetzt werden. In Leichtwasserreaktoren kann man annehmen, daß das Reaktorgitter in eine große Zahl gleicher Zellen aufgeteilt wird, so daß die Neutronenverteilung in einer solchen Einheitszelle charakteristisch für alle anderen Zellen ist.

Der grundsätzliche Aufbau des Programms HAMKOR ist in Abb. 3.3 dargestellt. Die Brennstoffzone der Einheitszelle kann in mehrere Zonen (maximal 5 Zonen) aufgeteilt werden, deren Geometrie und anfängliche Nuklidkonzentrationen in der Eingabe zu spezifizieren sind. Mit Hilfe einer eigenen Gruppenkonstantenbibliothek für 83 Energiegruppen berechnet HAMMER für jede Energiegruppe  $g$  und Zone  $z$  die Neutronenflußdichte  $\phi_z^g$ .

Der effektive Neutronenwirkungsquerschnitt für die Reaktion  $x$  in einer Energiegruppe  $g$  wird im HAMKOR mit Hilfe des Bondarenkos Formalismus berechnet /57/.

Mit den gleichen schon im HAMMER benutzten Nukliddaten berechnet das Unterprogramm SIGMA die Untergrundquerschnitte  $\sigma_0$  für jede Zone und Gruppe. Die Untergrundquerschnitte  $\sigma_0$  werden einer Hete-



**ABB. 3.3 :** SCHEMATISCHE DARSTELLUNG DES AUFBAUS DES PROGRAMS HAMCOR

rogenitätskorrektur unterworfen, die die räumliche Selbstabschirmung unter Verwendung einer im Rahmen dieser Arbeit abgeleiteten Äquivalenzrelation berücksichtigt. Die Äquivalenzrelation wird mit dem folgenden Ansatz entwickelt:

$$(3.29) \quad \sigma_{O_I}^{\text{Het}}(E) = \sigma_{O_I}^{\text{Hom}}(E) + \frac{1}{N_I \cdot y(\Sigma_t)}$$

Darin sind:  $\sigma_{O_I}^{\text{Hom}}$  der Untergrundquerschnitt des Isotops I in einer homogenen Mischung,  $\sigma_{O_I}^{\text{Het}}$  der Untergrundquerschnitt des Isotops I in einer heterogenen Mischung,  $N_I$  die Konzentration des Isotops I in der Mischung und  $y(\Sigma_t)$  eine effektive energieabhängige Sehnenlänge des Brennstoffs.  $\sigma_{O_I}^{\text{Hom}}$  wird definiert durch /57/:

$$(3.30) \quad \sigma_{O_I}^{\text{Hom}}(E) = \frac{1}{N_I} \sum_{J \neq I} N_J \sigma_t^J(E)$$

Zur Ableitung der Gl. (3.29) wird eine rationale Näherung für die Entkommwahrscheinlichkeit der Neutronen aus dem Brennstoff  $P_O(\Sigma_t)$  benutzt:

$$(3.31) \quad P_O(\Sigma_t) = \frac{1}{1 + \Sigma_t y(\Sigma_t)}$$

Hieraus kann  $y(\Sigma_t)$  ermittelt werden

$$(3.32) \quad y(\Sigma_t) = \frac{1 - P_O(\Sigma_t)}{\Sigma_t P_O(\Sigma_t)}$$

$P_O(\Sigma_t)$  wird mit dem Programm PMNBIC /58/ genau berechnet. Bei Verwendung der Gl. (3.31) wird einerseits die Einfachheit der Wignerschen Rationalen Approximation erhalten, andererseits wird der Fehler durch Anwendung einer energieunabhängigen mittleren Sehnenlänge des Brennstoffs bei der Wignerschen rationalen Approximation vermieden.

Aus Gl. (3.29) und Gl. (3.32) erhält man:

$$(3.33) \quad \sigma_{O_I}^{\text{Het}}(E) = \sigma_{O_I}^{\text{Hom}}(E) + \frac{P_O(\Sigma_t) \cdot \Sigma_t}{N_I [1 - P_O(\Sigma_t)]}$$

Die Betrachtung der effektiven energieabhängigen Sehnenlänge des Brennstoffs (Gl. 3.32) unter Erhaltung der Neutronenentkommwahrscheinlichkeit in dieser Arbeit wurde unabhängig von der von Kirby und Karam in /59/ für die Berechnung des effektiven Resonanzintegrals heterogener Systeme angegebenen Methode gemacht.

Die Entkommwahrscheinlichkeit  $P_0(\Sigma_t)$  wird einer Dancoff-Korrektur für die Berücksichtigung des Gitter-Effekts unterworfen. Die Dancoff-Faktoren werden im HAMKOR mit der Sauer-Methode /60/ berechnet.

Die gruppen- und zonenabhängigen  $\sigma_0$ -Werte werden dem Unterprogramm INTER übergeben. Dieses liest unendlich verdünnte Gruppenkonstante und f-Faktoren für 83 Energiegruppen aus einer Bibliothek, welche zu einem früheren Zeitpunkt aus der Karlsruher Kerndatenbibliothek KEDAK-3 mit Hilfe des zugehörigen Verarbeitungsprogramms MIGROS-3 erzeugt wurde. INTER interpoliert die gelesenen f-Faktoren für den richtigen  $\sigma_0$ -Wert. Damit werden dann effektive Gruppenkonstanten für 83 Gruppen berechnet, und mit Hilfe des von HAMMER erzeugten Spektrums auf eine Gruppe kondensiert.

Unter Verwendung dieser Eingruppenwirkungsquerschnitte, sowie von Daten aus einer eigenen Bibliothek berechnet nun das Abbrandprogramm KORIGEN für jede Brennstoffzone einen neuen Nuklid-dichtevektor. Diese neuen Dichten können wieder an HAMMER zurückgegeben werden, und der Ablauf beginnt von neuem.

Die Änderung der effektiven Wirkungsquerschnitte kann wegen der Spektrums- und Mischungsabhängigkeit über den betrachteten Abbrandzeitraum ausgeprägt sein. Abb. 3.4 zeigt als Beispiel den Verlauf des effektiven  $\text{Pu}^{239}$ -Einfangwirkungsquerschnitts mit dem Abbrand, der mit HAMKOR für den Brennstoff von 3.1%  $\text{U}^{235}$ -Anfangsanreicherung des KWO-Druckwasserreaktors berechnet wurde. Der  $\text{Pu}^{239}$ -Einfangwirkungsquerschnitt nimmt um ca. 20% für Abbrände bis etwa 25 000 MWd/t U ab.

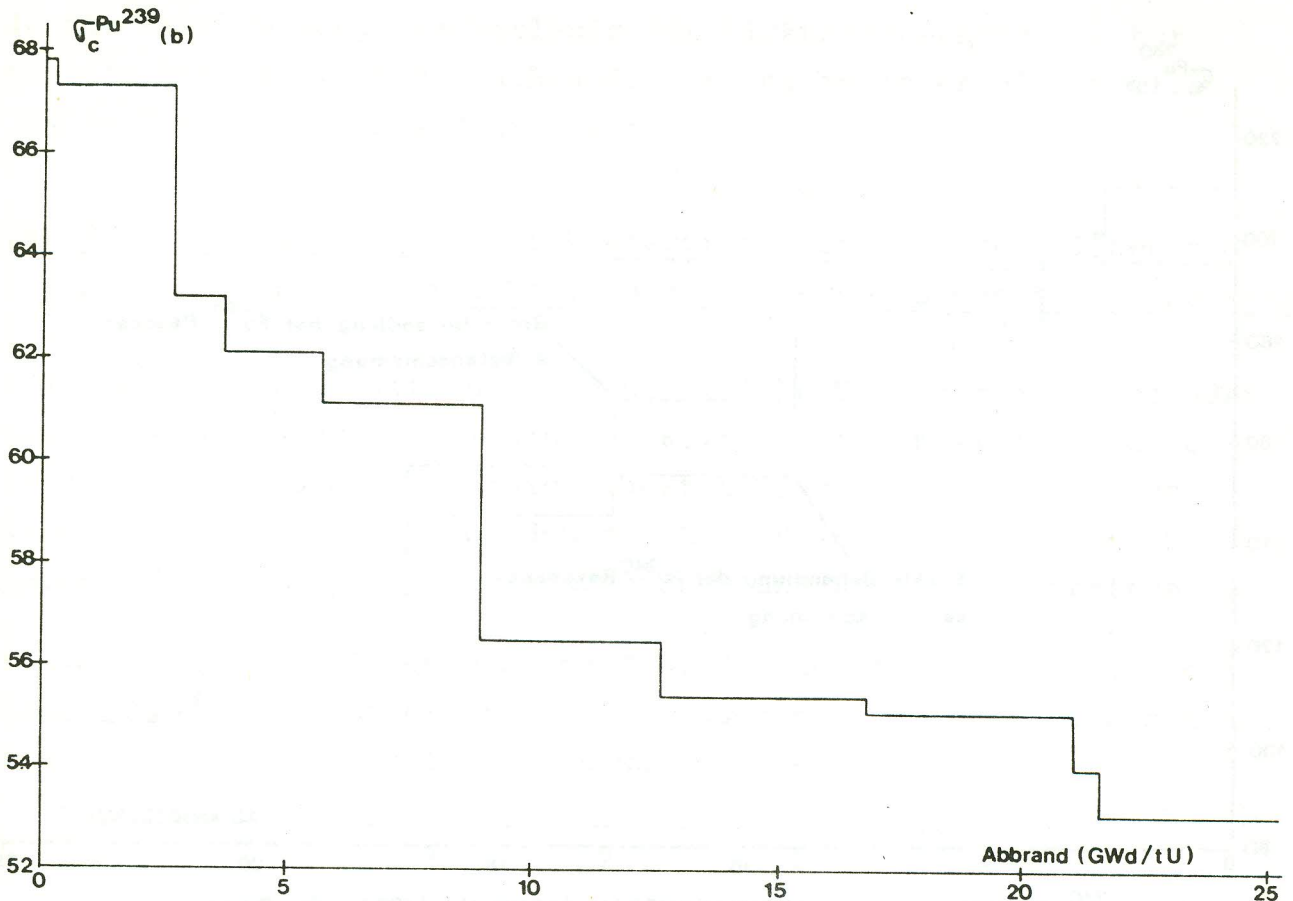


Abb. 3.4 :  $Pu^{239}$  - EFFEKT. 1 GR - EINFANGWIRKUNGSQUERSCHNITT [1300 MWe - DWR]

Der  $Pu^{240}$ -Einfangswirkungsquerschnitt mit ausgeprägter Resonanz bei 1.058 eV nimmt mit dem Abbrand stark ab wegen der energetischen Resonanzselbstabschirmung. In der HAMMER-Energiegruppenstruktur liegt die  $Pu^{240}$ -Resonanz bei 1.058 eV innerhalb einer Gruppe mit Energiegrenzen 0.834-1.125 eV. Diese Darstellung erweist sich als nicht hinreichend für die Berechnung des  $Pu^{240}$ -Einfangswirkungsquerschnittes. Es wurde deshalb der vom Zell-Programm WIMS-D /61/, das die  $Pu^{240}$ -1.058 eV-Einfangsresonanz aufgrund einer sehr feinen Energiegruppeneinteilung exakt behandelt, berechnete zeitliche Verlauf des  $Pu^{240}$ -Einfangswirkungsquerschnittes übernommen. Abb. 3.5 zeigt die Verläufe des  $Pu^{240}$ -Einfangswirkungsquerschnittes mit dem Abbrand.

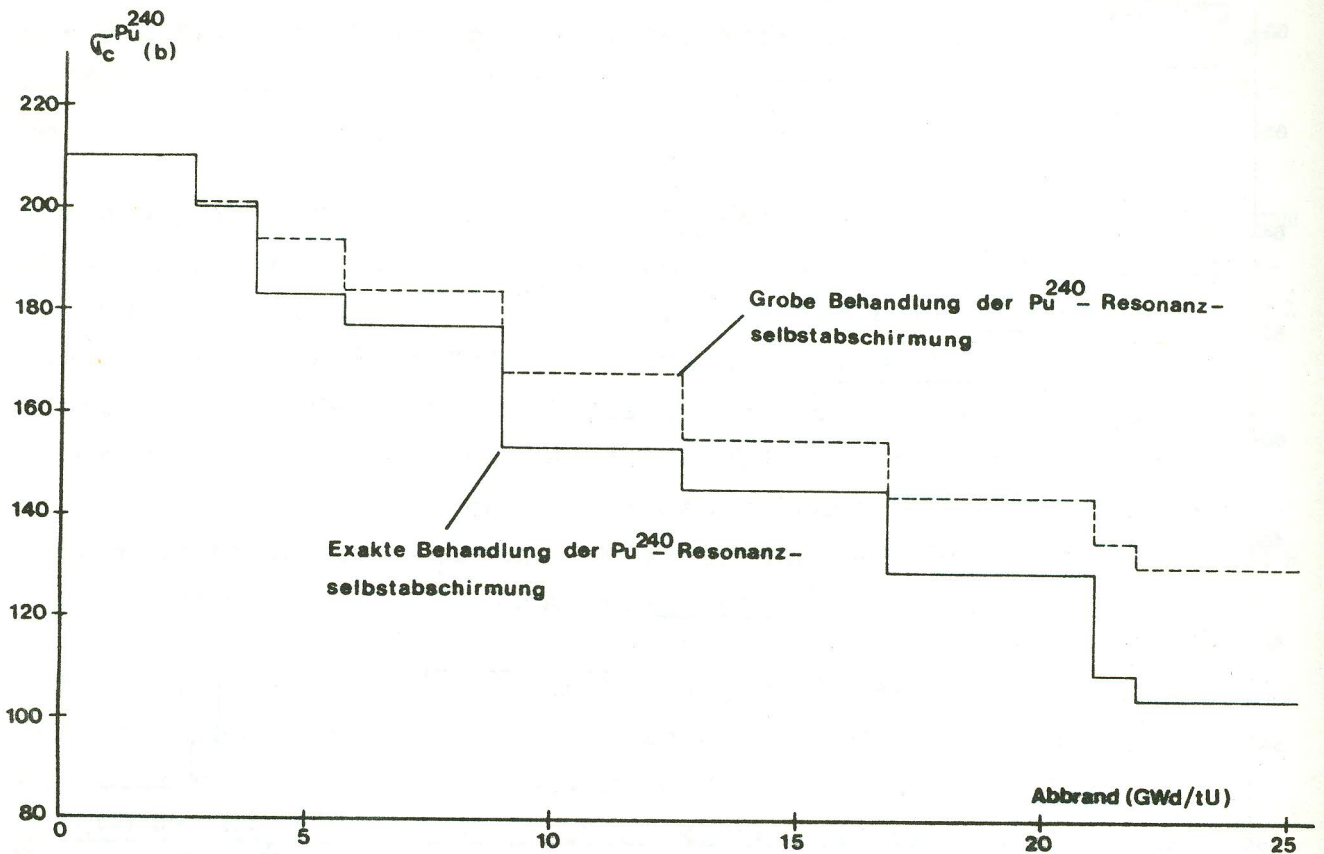


Abb.3.5 : Pu<sup>240</sup>-EFFEKT. 1 GR-EINFANGWIRKUNGSQUERSCHNITT [1300 MWe - DWR]

Der Pu<sup>240</sup>-Einfangwirkungsquerschnitt nimmt um etwa 50% für Abbrände bis 25 GWd/t U ab. Mit der HAMMER-Energiegruppenstruktur bei Berücksichtigung des Bondarenkos Formalismus nimmt der Pu<sup>240</sup>-Einfangwirkungsquerschnitt dagegen nur 37% ab im selben Abbrandbereich. Die grobe Behandlung der Pu<sup>240</sup>-Resonanzselbstabschirmung bei der 1-Gruppen-Darstellung bei 1.058 eV führt zu einer Unterschätzung der Pu<sup>240</sup>-Konzentration um ca. 12% und einer Überschätzung der Pu<sup>241</sup>- und Pu<sup>242</sup>-Konzentration von ca. 5% bzw. 7% bei 30 GWd/t U-Abbrand in einem 1300 MWe-DWR. Die Konzentrationen von U<sup>235</sup>, U<sup>236</sup>, U<sup>238</sup> und Pu<sup>239</sup> werden von der groben Behandlung der Pu<sup>240</sup>-Resonanzselbstabschirmung nicht beeinflusst.

Für die Beschreibung des Verlaufs der Wirkungsquerschnitte hat sich die Unterteilung des Abbrandzeitraums in Intervalle von ca. 5 GWd/t U als ausreichend erwiesen.

### 3.4 Sensitivität der Isotopenkonzentrationen und -relationen bezüglich der nuklearen Daten und der methodischen Approximationen

In diesem Abschnitt wird untersucht, welche Unsicherheiten bei der Berechnung von Konzentrationen und Relationen der wichtigsten U- und Pu-Isotope durch die Unsicherheiten in den nuklearen Daten zustande kommen. Daneben werden die Einflüsse der methodischen Approximationen auf die Konzentrationen und Relationen ermittelt.

Die aus Referenz /52/ entnommene Tab. 3.1 zeigt die derzeitigen Unsicherheiten der Eingruppenwirkungsquerschnitte für die wichtigsten U- und Pu-Isotope für Leichtwasserreaktoren.

Isotope	U <sup>235</sup>	U <sup>238</sup>	Pu <sup>239</sup>	Pu <sup>240</sup>
$\frac{\delta \sigma_c}{\sigma_c}$	2.6	2.6	2.4	9.1
$\frac{\delta \sigma_f}{\sigma_f}$	2.2	-	1.3	-

Tab. 3.1: Unsicherheiten in %, in den Eingruppenwirkungsquerschnitten für Leichtwasserreaktoren /52/

Für die Sensitivitätsuntersuchung wurde das Abbrandprogramm KORIGEN benutzt. KORIGEN berücksichtigt alle Nuklidketten für den Auf- und Abbau der U- und Pu-Isotope.

Es wurden zunächst die maximalen Unsicherheiten in den Konzentrationen und Relationen wie folgt bestimmt: (a) Die Variationsbreite von Konzentrations- und Relationswerten infolge des Unsicherheitsbandes gemäß Tab. 3.1 wurde ermittelt. (b) Bei der Berechnung der Konzentrationen und Relationen wurde stets die Richtung der

Unsicherheit pessimistisch gewählt, d.h. die Gesamtunsicherheit vergrößert. Die so bestimmten maximalen Unsicherheiten in % sind in Tab. 3.2 (zweite Spalte) zusammengestellt. Sie sind größer als 4% für alle wichtigen U- und Pu-Isotopenkonzentrationen und Isotopenrelationen. Die maximalen Unsicherheiten entsprechen nicht den Abweichungen von HAMKOR-Rechnung zum Experiment. Die maximalen Unsicherheiten stellen eine extrem ungünstige und unwahrscheinliche Kombination von Unsicherheiten der Wirkungsquerschnitte dar. Daher wurde eine andere realistischere Kombination von Unsicherheiten in den Wirkungsquerschnitten betrachtet. Die Wahl dieser Kombination basiert auf veröffentlichten Ergebnissen und auf dem Vergleich mit experimentellen Ergebnissen im Rahmen dieser Arbeit. Die Unsicherheiten in % in den Eingruppenwirkungsquerschnitten bei dieser Kombination sind:

$U^{235}$	$\sigma_c:$	+2.6	$Pu^{239}$	$\sigma_c:$	+2.4
$U^{235}$	$\sigma_f:$	+2.2	$Pu^{239}$	$\sigma_f:$	-1.3
$U^{238}$	$\sigma_c:$	-2.6	$Pu^{240}$	$\sigma_c:$	-9.1

Die Unsicherheiten in den Isotopenkonzentrationen und -relationen bei der ausgewählten Kombination von Unsicherheiten in Wirkungsquerschnitten sind in Tab. 3.2 (3. Spalte) aufgetragen. Die Unsicherheiten in diesem Fall sind viel kleiner (bis ein Faktor 3) als die maximalen Unsicherheiten, mit Ausnahme von  $U^{235}$ ,  $(Pu/U) / (Pu^{240}/Pu^{239})$  und  $(Pu/U) / \left[ \frac{-Pu^{239}}{Pu^{240}} \cdot \frac{Pu^{242}}{Pu^{240}} \right]$ . Die mittleren Abweichungen der theoretischen Ergebnisse zum Experiment - der Vergleich der theoretischen Ergebnisse mit Experimenten wird in Abschnitt 3.5 ausführlich diskutiert - und die mittleren Abweichungen zwischen Labors werden ebenfalls in Tab. 3.2 zusammengestellt (4. und 5. Spalte). Die mittleren Abweichungen zum Experiment sind für die wichtigsten U- und Pu-Isotopenkonzentrationen und Isotopenrelationen kleiner als die Unsicherheiten in der Rechnung in Spalte 3. Die mittleren Abweichungen zwischen HAMKOR-Rechnung und

	Maximale Unsicherheiten (extremere ungünstiger Fall)	Unsicherheiten bei wahrscheinlicherer Kombination der Datenfehler	Mittlere Abweichung der HAWKOR-Rechnung zum Experiment	Mittlere Abweichung zwischen Meßergebnissen verschiedener Labors	Auswirkung bei Halbierung der Unsicherheiten in den Wirkungsquerschnitten
$U^{235}$	4.7	4.7	2.0	0.7	2.0
$U^{236}$	3.9	1.6	1.8	0.9	2.2
$Pu^{238}$	9.8	3.0	9.3*	-*	3.5
$Pu^{239}$	4.4	2.4	0.6	2.7	1.8
$Pu^{240}$	11.2	7.5	4.7	2.5	6.2
$Pu^{241}$	6.9	3.1	5.6	2.5	3.9
$Pu^{242}$	8.9	2.7	8.1	3.3	4.4
$(Pu/U)/D^{235}$	5.2	1.7	2.2	2.5	1.6
$(Pu/U)/U^{236}$	5.5	1.8	0.4	2.2	2.4
$(Pu/U)/(100-Pu^{239})$	4.7	3.0	1.7	2.8	1.3
$(Pu/U)/(Pu^{240}/Pu^{239})$	10.3	9.2	2.9	2.7	5.3
$(Pu/U)/( \frac{Pu^{239}}{Pu^{240}} \cdot \frac{Pu^{242}}{Pu^{240}} )$	21.9	21.2	3.7	4.6	11.7

Tab. 3.2: Unsicherheiten der Rechnung bedingt durch Unsicherheiten in den Wirkungsquerschnitten und Vergleich mit der mittleren Abweichung zum Experiment sowie mit den zwischen-Labor-Abweichungen

Alle Ergebnisse in Prozent.

\*Vergleich mit Messungen von nur einem Labor, da andere Labors keine Korrektur zum  $Pu^{238}$ -Aufbau aus  $Cm^{242}$  gemacht haben.

Experiment für die Isotope  $U^{235}$ ,  $U^{236}$ ,  $Pu^{240}$  und  $Pu^{241}$  entsprechen näherungsweise dem Unsicherheitsband, verursacht durch halbierte Unsicherheiten in den Wirkungsquerschnitten in Tab. 3.1 (s. 6. Spalte in Tab. 3.2).

Die Ergebnisse in Tab. 3.2 qualifizieren somit die HAMKOR benutzten KEDAK-3 Wirkungsquerschnitte.

In Tab. 3.3 wird die Sensitivitätsuntersuchung der U- und Pu-Isotopenkonzentrationen und Isotopenrelationen bezüglich verschiedener methodischer Approximationen zusammengefaßt. Die Zahlen sind prozentuale Abweichungen bei Annahme der jeweiligen Approximation zur HAMKOR-Rechnung.

Die Annahme von abbrandunabhängigen Wirkungsquerschnitten wirkt vor allem auf die  $Pu^{239}$ ,  $Pu^{240}$ - und  $Pu^{242}$ -Konzentrationen und auf die Relationen mit dem Pu/U-Verhältnis.

Ohne die Dancoff-Korrektur, d.h. bei Vernachlässigung der Einflüsse der Nachbarbrennstäbe auf einen Brennstab, wird der Pu-Aufbau um ca. 20% überschätzt. Dies wird von dem dadurch entstehenden größeren Neutroneneinfang in  $U^{238}$  bewirkt. Da die  $Pu^{239}$ -Konzentration und somit die Neutronenspaltung in  $Pu^{239}$  überschätzt werden, wird der Abbrand von  $U^{235}$  bei konstanter Leistung ca. 13% unterschätzt.

Die Anwendung der wignerschen rationalen Approximation zur Berechnung der Neutronenentkommwahrscheinlichkeit aus dem Brennstoff wirkt hauptsächlich über den Abbrand von  $U^{235}$  und den Aufbau von  $Pu^{239}$  und  $Pu^{241}$ . Die wignersche rationale Approximation führt zum Fehler bis ca. 10% in den Relationen mit dem Pu/U-Verhältnis.

Bei Vernachlässigung der Heterogenitätskorrektur (vgl. 3.3) werden die Pu-Isotopenkonzentrationen und Isotopenrelationen bis ca. 30% unterschätzt.

Die Ergebnisse in Tab. 3.3 zeigen die Wichtigkeit der Berücksichtigung in HAMKOR von abbrandabhängigen Wirkungsquerschnitten, der Dancoff-Korrektur, der Heterogenitätskorrektur und der genauen Entkommwahrscheinlichkeit der Neutronen aus dem Brennstoff, um Isotopenkonzentrationen und Isotopenrelationen zuverlässig zu berechnen.

Methodische Approximation	Abbrandunabhängige Wirkungsquerschnitte	Vernachlässigung der Dancoff-Korrektur	Anwendung der wignerschen rationalen Approximation	Vernachlässigung der Heterogenitätskorrektur
$U^{235}$	-2.4	13.3	-3.0	-15.6
$U^{236}$	-4.0	-3.8	0.5	3.2
$Pu^{238}$	7.2	-3.3	1.0	2.7
$Pu^{239}$	-22.1	31.7	-6.2	-26.1
$Pu^{240}$	-28.3	4.6	-1.1	-5.3
$Pu^{241}$	5.5	26.5	-5.1	-22.7
$Pu^{242}$	23.1	6.4	-1.8	-7.4
$(Pu/U)/D^{235}$	-17.5	29.5	-5.5	-23.5
$(Pu/U)/U^{236}$	-13.3	28.2	-5.1	-21.9
$(Pu/U)/(100-Pu^{239})$	-23.2	31.0	-6.7	-27.2
$(Pu/U)/(Pu^{240}/Pu^{239})$	-9.6	55.1	-9.4	-37.1
$(Pu/U) / \left( \frac{Pu^{239}}{Pu^{240}} \cdot \frac{Pu^{242}}{Pu^{240}} \right)$	-55.4	-3.7	1.4	5.6

Tab. 3.3: Sensitivität der Pu- und U-Isotopenkonzentrationen und Isotopenrelationen bezüglich der methodischen Approximationen: Prozentuale Abweichungen bei der Annahme der Approximation zur HAMKOR-Rechnung (1300 MWe-DWR 33 Gwd/t U-Abbrand)

### 3.5 Absicherung der Rechenergebnisse am Experiment

Zur Absicherung der Zuverlässigkeit des Programms HAMKOR für die Berechnung der Isotopenkonzentrationen wurden dessen Ergebnisse mit denen von chemischen Nachbestrahlungsanalysen an LWR-Brennstoff verglichen.

Die Rechnungen wurden für folgende Brennelemente von Druckwasserreaktoren durchgeführt:

- (a) Brennelemente Nr. 168, 170, 171, 172 und 176 des 280 MWe-Obrigheim Reaktors. Sie wurden drei Zyklen im Reaktor bestrahlt und erreichten Abbrände zwischen 27 und 29.3 GWd/tU. Die Brennelemente wurden im Rahmen des ICE-Experiments /46/ in der Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe (WAK) aufgelöst und von vier Labors mittels Massenspektrometrie analysiert. Die  $U^{235}$ -Anfangsanreicherung aller Brennelemente beträgt 3.1 w/o. Der Abbrand wurde aus dem  $Nd^{148}$ -Gehalt im Brennstoff bei Isotopenverdünnungsanalysen von nur einem Labor gemessen. Jede Auflösecharge der WAK bestand aus einem halben Brennelement des Obrigheim-Reaktors. Für die Brennelemente Nr. 168, 172 und 176 wurde die zeitliche Änderung der Leistungsdichte ( $W/cm^3$ ) im Brennstoff vom Reaktorbetreiber angegeben. Die Analyseergebnisse der Isotopenkonzentrationen wurden in IMA (Atom per initial Metallatom) für jede Auflösecharge angegeben.
- (b) Brennelement B05 des 660 MWe-H.B. Robinson-Reaktors. Dieses Brennelement wurde nach der Entladung aus dem Reaktor 669 Tage abgekühlt und in Oak Ridge National Laboratory aufgelöst. Seine Isotopenzusammensetzung wurde massenspektrometrisch bestimmt. Das Brennelement hat 2.561 w/o  $U^{235}$ -Anfangsanreicherung. Der mit der  $Nd^{148}$ -Methode gemessene Abbrand hat den Wert 31.3 MWd/t U. Die Ergebnisse der Messungen wurden in Einheiten von Atom-% der Isotope eines Elements angegeben.

Tab. 3.4 zeigt die wichtigsten Eingabedaten der Brennelemente des Obrigheim-Reaktors und des Robinson-Reaktors für das Programm HAMKOR.

FALL	ROBINSON	KWO
	1 Brennelement	5 Brennelemente
$U^{235}$ -Anfangsanreicherung (w/o)	2.561	3.10
Innerer Canningradius (cm)	0.4647	0.46587
Äußerer Canningradius (cm)	0.5359	0.53802
Gitterabstand (cm)	1.43	1.5061
Mittlere Brennstofftemperatur ( $^{\circ}C$ )	649	755
Mittlere Canningstemperatur ( $^{\circ}C$ )	322	332
Mittlere Moderatortemperatur ( $^{\circ}C$ )	300	299
Bestrahlungszyklen im Reaktor	2	3
Mittlerer Bor-Gehalt im Moderator (ppm)	450	450

Tab. 3.4: Wichtigste Eingabedaten für das Programm HAMKOR

Mit der vorgegebenen Leistungsdichte als Funktion der Zeit für die Brennelemente Nr. 168, 172 und 176 wurde der Abbrand gerechnet. In Tab. 3.5 werden Meß- und Rechenwerte des Abbrandes verglichen.

Brennelement-Nr.	Gemessener Abbrand (Gwd/tU)	Berechneter Abbrand (Gwd/t)	$\frac{C-E}{E} * 100$
168	29.35	28.79	-1.9
172	27.89	26.72	-4.2
176	28.76	28.55	-0.7

Tab. 3.5: Vergleich zwischen berechneten und gemessenen Abbrandwerte für KWO-Brennelemente

Die Abweichungen der Rechenwerte zu den Meßwerten sind kleiner als 5% und liegen also innerhalb der Meßungenauigkeit bei der Abbrandbestimmung mit der  $Nd^{148}$ -Methode.

In Tab. 3.6 sind die theoretisch und experimentell (Mittelwert von vier Labors) bestimmten Pu- und U-Konzentrationen und entsprechenden relativen Abweichungen in % für die Auflösecharge des KWO-Reaktors zusammengestellt. Die relativen Abweichungen in U- und Pu-Isotopenkonzentrationen zum Experiment werden in Abb. 3.6 mit den Zwischen-Labor-Abweichungen verglichen. Aufgrund der Abweichungen zwischen den Labors schließt man, daß die Rechnungen mit den Messungen innerhalb der Fehlergrenzen übereinstimmen.

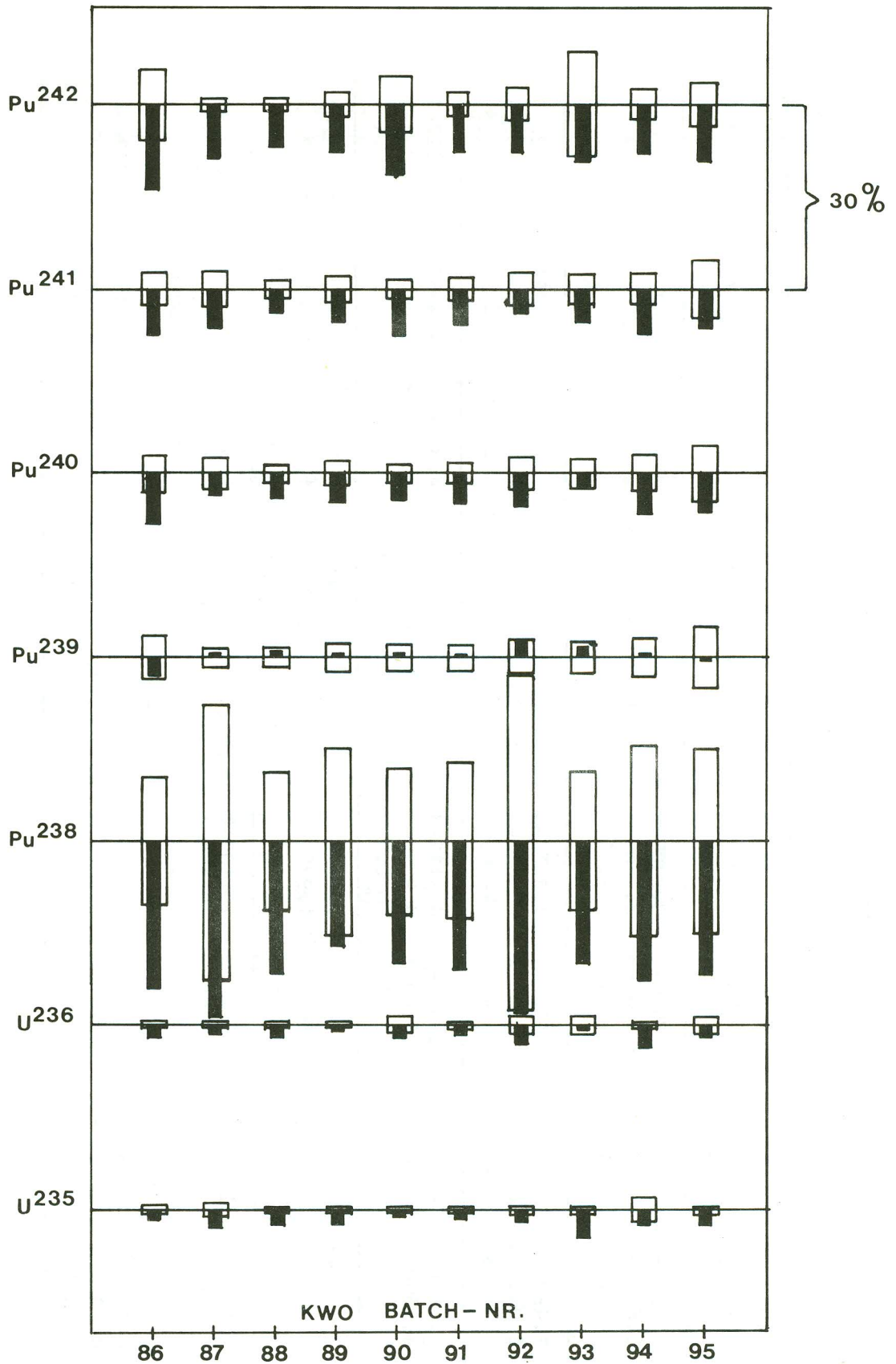
Abb. 3.7 zeigt die relativen Abweichungen in % zwischen theoretischen und experimentellen (Mittelwert von vier Labors) Werten einiger wichtiger schwerer Isotopenrelationen und die mittleren Abweichungen zwischen den verschiedenen Labors für die Auflösecharge des KWO-Reaktors. Die relativen Abweichungen zum Experiment liegen im Rahmen der beobachteten Abweichungen zwischen den Labors.

Abb. 3.8 zeigt die relativen Abweichungen in % zwischen theoretischen und experimentellen Werten der Konzentrationsverhältnisse von Spaltprodukten für die Auflösecharge des KWO-Reaktors. Die Konzentrationsverhältnisse von Spaltprodukten wurden nur von einem Labor (ITU-Karlsruhe) gemessen /46/. Die berechneten Konzentrationsverhältnisse stimmen mit den Meßwerten gut überein: die mittleren Abweichungen zum Experiment bleiben unter 3%.

BATCH Nr.	86	87	88	89	90	91	92	93	94	95
Abbrand GWD/t U	28.40	30.30	28.27	29.04	29.52	27.99	26.54	29.24	25.93	28.08
U <sup>235</sup>	9.8321-3	9.0938-3	9.9543-3	9.6012-3	9.2488-3	9.9982-3	10.727-3	9.1784-3	11.083-3	10.042-3
C	9.6621-3	8.8291-3	9.7335-3	9.3765-3	9.1623-3	9.8525-3	10.543-3	9.2813-3	10.828-3	9.8049-3
Δ	-1.7	-2.9	-2.2	-2.3	-0.9	-1.5	1.7	-4.5	-2.3	-2.4
U <sup>236</sup>	3.7642-3	3.8679-3	3.7601-3	3.7770-3	3.8383-3	3.7246-3	3.6529-3	3.7677-3	3.6201-3	3.7416-3
C	3.6887-3	3.8077-3	3.6887-3	3.7363-3	3.7601-3	3.6649-3	3.5459-3	3.7363-3	3.4983-3	3.6649-3
Δ	-2.0	-1.6	-1.9	-1.1	-2.0	-1.6	-2.9	-0.8	-3.4	-2.0
Pu <sup>238</sup>	1.1864-4	1.4992-4	1.1374-4	1.1506-4	1.2364-4	1.1053-4	1.1676-4	1.2022-4	0.9354-4	1.1320-4
C	0.9020-4	1.0447-4	0.8924-4	0.9543-4	0.9852-4	0.8734-4	0.7687-4	0.9614-4	0.7258-4	0.8805-4
Δ	-24.0	-30.3	-21.5	-17.1	-20.3	-21.0	-34.2	-20.0	-22.4	-22.2
Pu <sup>239</sup>	5.0558-3	4.9151-3	4.8589-3	4.9430-3	4.9112-3	4.9017-3	4.6949-3	4.8484-3	4.7867-3	4.9222-3
C	4.9024-3	4.9500-3	4.9024-3	4.9500-3	4.9262-3	4.9024-3	4.8310-3	4.9262-3	4.8072-3	4.9024-3
Δ	-3.0	0.7	0.9	0.1	0.3	0.02	2.9	1.6	0.4	-0.4
Pu <sup>240</sup>	2.0091-3	2.0483-3	1.9073-3	1.9804-3	2.0206-3	1.9094-3	1.7947-3	1.9617-3	1.7826-3	1.9462-3
C	1.8372-3	1.9800-3	1.8301-3	1.8824-3	1.9324-3	1.8158-3	1.7040-3	1.9181-3	1.661-3	1.8182-3
Δ	-8.6	-3.3	-4.0	-4.9	-4.3	-4.9	-5.2	-2.2	-6.8	-6.6
Pu <sup>241</sup>	1.0889-3	1.1271-3	1.0367-3	1.0878-3	1.1100-3	1.0471-3	0.9666-3	1.0684-3	0.9650-3	1.0609-3
C	1.0043-3	1.0566-3	0.9995-3	1.0305-3	1.0233-3	0.9876-3	0.9281-3	1.0114-3	0.8924-3	0.9900-3
Δ	-7.8	-6.3	-3.6	-5.3	-7.8	-5.7	-4.0	-5.3	-7.5	-6.7
Pu <sup>242</sup>	4.0217-4	4.4174-4	3.6813-4	3.9524-4	4.2966-4	3.6341-4	3.2293-4	4.0889-4	3.0469-4	3.7236-4
C	3.4745-4	4.0457-4	3.4269-4	3.6411-4	3.8077-4	3.3555-4	2.9748-4	3.7125-4	2.8082-4	3.3793-4
Δ	-13.6	-8.4	-6.9	-7.9	-11.4	-7.7	-7.9	-9.2	-7.8	-9.2

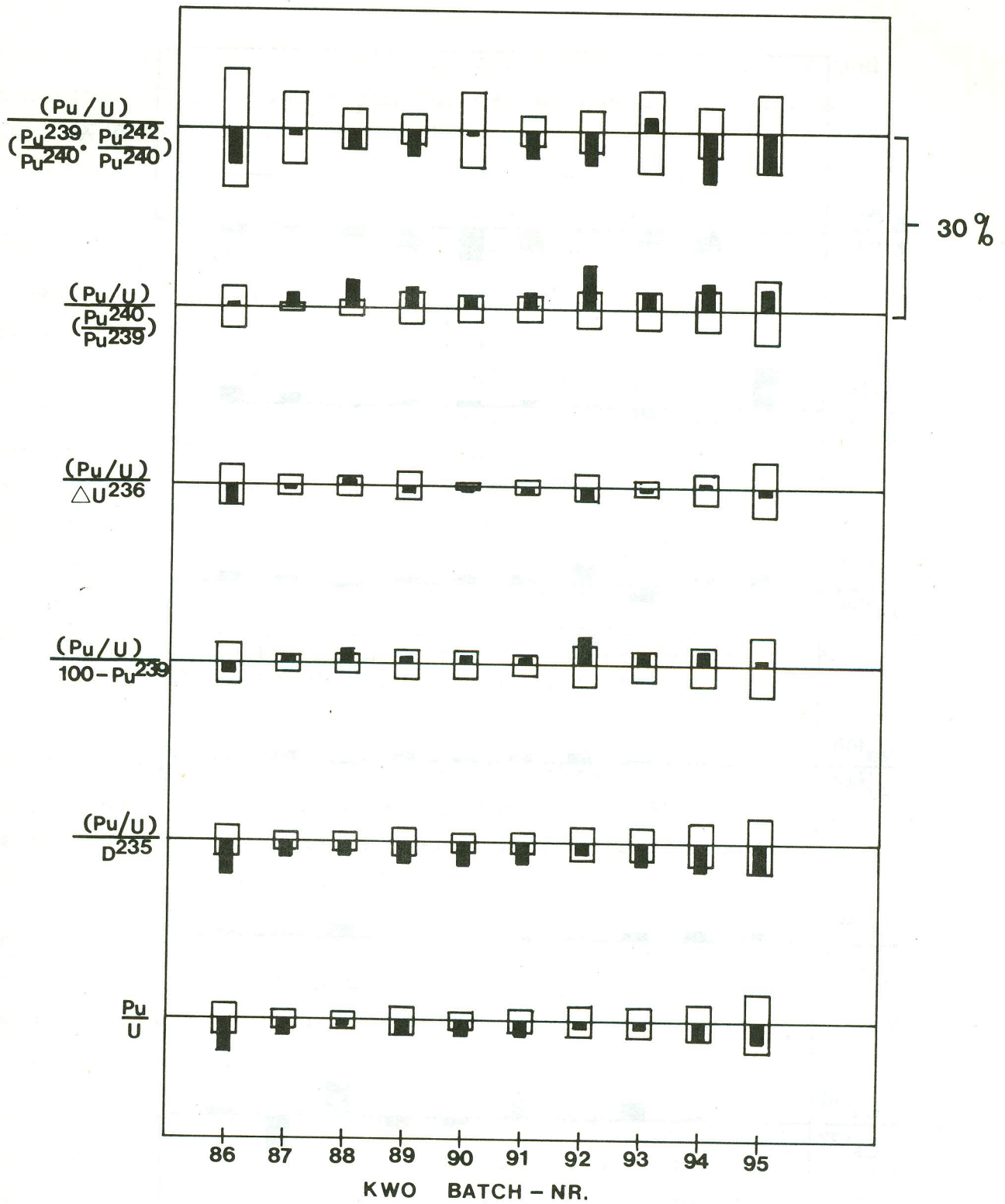
Tab. 3.6: Vergleich zwischen theoretischen (HAMKOR) und experimentellen Ergebnissen (Mittelwert von vier Labors) für Brennelemente vom Obrigheim-Reaktor. Isotopenkonzentrationen in IMA. E = Experiment; C = Rechnung;

$$\Delta = \frac{C-E}{E} \times 100 (\%)$$



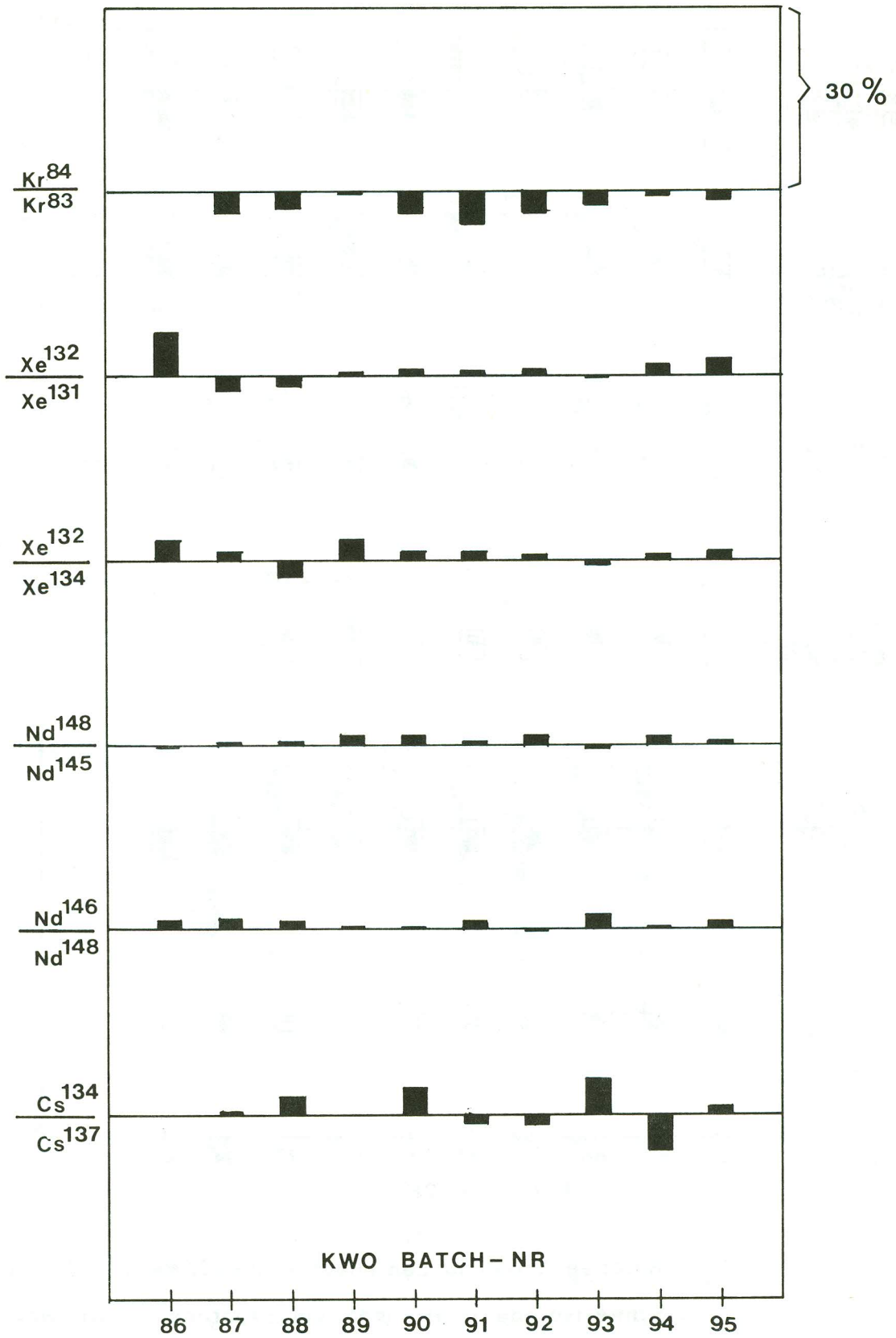
**ABB.3.6:** Relative Abweichungen (Rechn. - Mess.) / Mess. [%] von U- und Pu- Isotopenkonzentrationen zum Experiment (Mittelwert von vier Labors) für KWO - Batches (Abbrand = 25 - 30 GWd/tU)

□ = Zwischen-Labor Abweichungen (1σ)      ■ = Rechn. - Exp. Abweichungen



**Abb.3.7:** Relative Abweichungen (Rech. - Mess.) / Mess. [%] von Schwerisotopenrelationen zum Experiment (Mittelwert von vier Labors) für KWO-Batches (Abbrand = 25 - 30  $\frac{GWd}{tU}$ )

= Zwischen-Labor Abweichungen ( $1\sigma$ )
  = Rechn. zum Exp. Abweichungen



**ABB.3.8**: Relative Abweichungen [Rechn. - Mess.] / Mess. [%] von Spaltproduktverhältnissen zum Experiment [TU-Messwerte] für KWO-BATCHES [Abbrand = 25 - 30 GWd/tU]

Tab. 3.7 zeigt den Vergleich zwischen den theoretischen und experimentellen Ergebnissen für das Brennelement B05 des Robinson-Reaktors.

	Experiment	HAMKOR	$\frac{H-E}{E} \times 100$
U-235	0.653	0.652	-0.15
U-236	0.347	0.336	-3.17
U-238	98.99	99.00	0.01
Pu-238	1.56	1.408	-9.74
Pu-239	55.79	56.83	1.86
Pu-240	24.91	23.24	-6.70
Pu-241	12.29	12.90	4.96
Pu-242	5.45	5.61	3.49

Tab. 3.7: Vergleich zwischen den theoretischen und experimentellen Ergebnissen für das Brennelement B05 des Robinson-DWR. Isotopenhäufigkeiten in atom-%.

Die Rechnungen zeigen für die wichtigsten U- und Pu-Isotope eine gute Übereinstimmung mit den Messungen: Die Abweichungen der Rechenwerte zum Experiment liegen innerhalb der experimentellen Unsicherheiten (vgl. Tab. 3.2).

In Abb. 3.9 sind schließlich die mittleren Unsicherheiten bei der Berechnung der Isotopenrelationen von U, Pu und Spaltprodukten zusammengefaßt. Sie wurden aus den relativen Abweichungen zum Experiment bestimmt.

Aus den verschiedenen Vergleichen der HAMKOR-Ergebnisse mit Meßanalysedaten schließt man: Die gute Übereinstimmung der Rechnungen mit den Messungen bestätigt die Zuverlässigkeit des Programms HAMKOR für die Berechnung der Isotopenrelationen von U, Pu und wichtigen Spaltprodukten. Die Unsicherheiten bei der theoretischen Bestimmung von Isotopenrelationen liegen innerhalb der experimentellen Unsicherheiten.

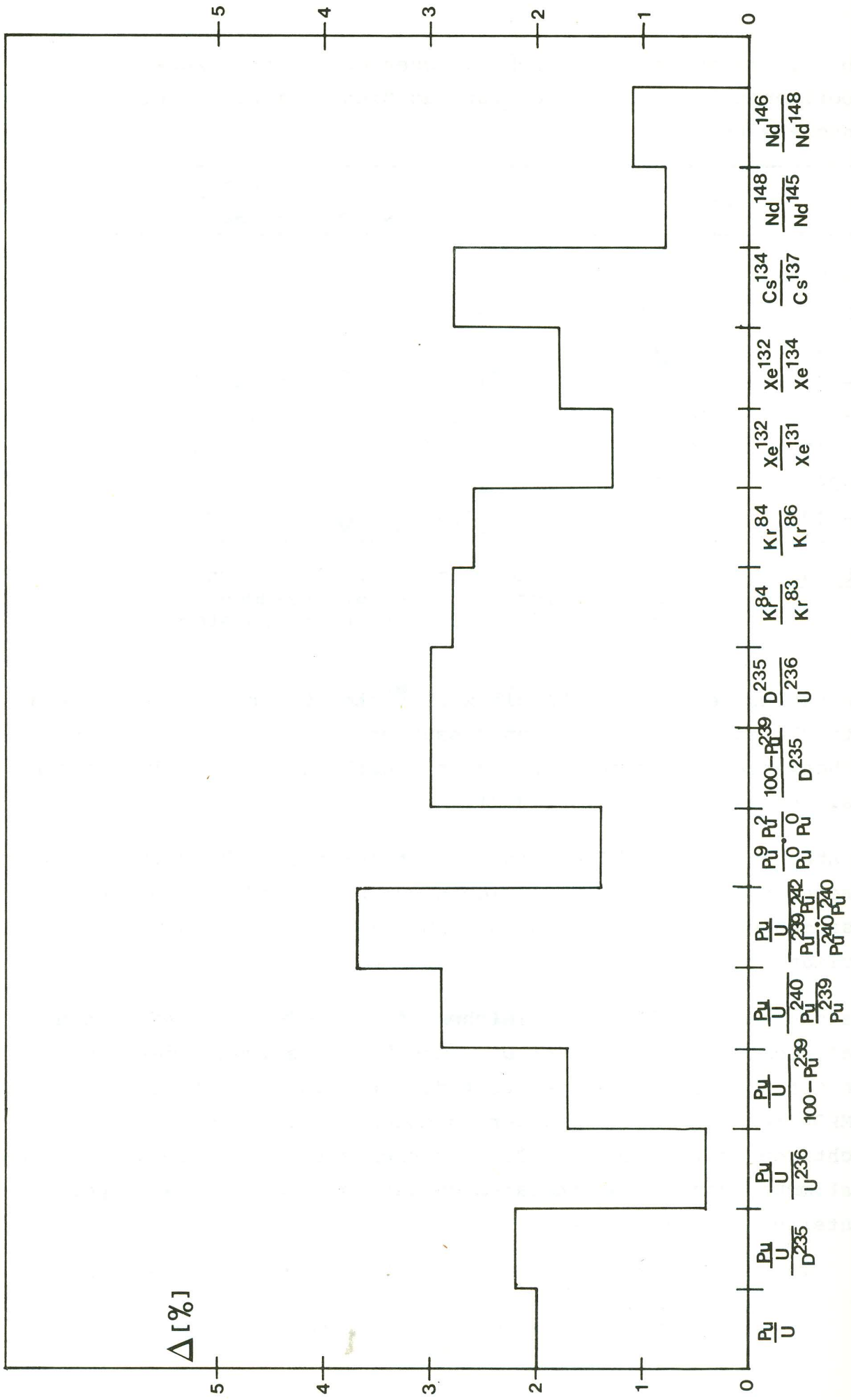


Abb. 3-9 : Mittlere Unsicherheiten bei der Berechnung der Relationen

### 3.6 Untersuchung der Sensitivität der Isotopenrelationen bezüglich Parametern von Leichtwasserreaktoren

Um festzustellen, welche Isotopenrelationen sensitiv oder un-sensitiv bezüglich der einzelnen Reaktor- und Brennelement-Parameter sind, werden die Verläufe von ausgewählten Isotopenrelationen (Tab. 3.8) über die möglichen Änderungsbereiche der folgenden Parameter für Leichtwasserreaktoren ermittelt: Abbrand,  $U^{235}$ -Anfangsanreicherung, Moderator/Brennstoff-Volumenverhältnis, Bor-Konzentration im Moderator, Dicke der Brennstab-Hülle, Leistungsgeschichte, Leistungsdichte, Nachbestrahlungszeit. Weitere physikalisch wichtige Reaktor- und Brennelement-Parameter können auf die oben zitierten wichtigsten Parameter zurückgeführt werden.

Die Isotopenrelationen in Tab. 3.8 wurden wegen der praktischen Wichtigkeit ausgewählt: Sie enthalten Isotopenkonzentrationen, die im Analytiklabor einer Wiederaufarbeitungsanlage durch Massenspektrometrie oder  $\gamma$ -Spektrometrie routinemäßig gemessen werden können (U, Pu, Cs, Eu, Nd, Xe, Kr), die im Lagerbecken bestrahlter Brennelemente  $\gamma$ -spektrometrisch (Cs, Eu) oder mittels Neutronenmessungen (Cm) bestimmt werden können (vgl. 2.2).

#### 3.6.1 Betrachtete Parameteränderung in der Sensitivitätsuntersuchung

Zur Ermittlung der Abhängigkeit der Isotopenrelationen von den in-pile und out-of-pile Parametern wurden die folgenden Variationen der einzelnen Parameter betrachtet:

##### (a) Abbrand

Die Isotopenrelationen wurden für Abbrände von unter 10 000 bis über 40 000  $\frac{\text{MWd}}{\text{t U}}$  berechnet. Dieser Abbrandbereich überdeckt sowohl die Abbrände der bisher wiederaufgearbeiteten Brennstoffe von Leichtwasserreaktoren als auch die Abbrände, die in modernen Reaktoren zu erwarten sind.

1.	$(\text{Pu}/\text{U}) / \text{D}^{235}$	12.	$\frac{(\text{Pu}^{240}/\text{Pu}^{239})}{\text{D}^{235}}$
2.	$(\text{Pu}/\text{U}) / (100 - \text{Pu}^{239})$	13.	$\text{Cs}^{134} / \text{Cs}^{137}$
3.	$(\text{Pu}/\text{U}) / \Delta \text{U}^{236}$	14.	$\text{Eu}^{154} / \text{Cs}^{137}$
4.	$\frac{(\text{Pu}/\text{U})}{(\text{Pu}^{240}/\text{Pu}^{239})}$	15.	$\text{Xe}^{132} / \text{Xe}^{131}$
5.	$\frac{(\text{Pu}/\text{U})}{\left[ \frac{-\text{Pu}^{239}}{\text{Pu}^{240}} \cdot \frac{\text{Pu}^{242}}{\text{Pu}^{240}} - 7 \right]}$	16.	$\text{Xe}^{132} / \text{Xe}^{134}$
6.	$\frac{(\text{Pu}/\text{U})}{(\text{Cs}^{134} / \text{Cs}^{137})}$	17.	$\text{Kr}^{84} / \text{Kr}^{83}$
7.	$\frac{(\text{Pu}/\text{U})}{(\text{Eu}^{154} / \text{Cs}^{137})}$	18.	$\text{Kr}^{84} / \text{Kr}^{86}$
8.	$\text{D}^{235}$	19.	$\text{Nd}^{148} / \text{Nd}^{145}$
9.	$\text{U}^{236} / \text{U}_0$	20.	$\text{Nd}^{146} / \text{Nd}^{148}$
10.	$\text{D}^{235} / \Delta \text{U}^{236}$	21.	$\frac{\text{Pu}-\text{Pu}^{239}}{\text{Abbrand}}$
11.	$\frac{(100 - \text{Pu}^{239})}{\text{D}^{235}}$	22.	$\frac{\text{Cm}^{244}}{\text{Pu}}$

Tab. 3.8: Isotopenrelationen, deren Sensitivität bezüglich der Reaktorparameter untersucht wurden.

(b)  $\text{U}^{235}$ -Anfangsanreicherung

Die Isotopenrelationen wurden für  $\text{U}^{235}$ -Anfangsanreicherungen von 1.9, 2.5, 3.2, 3.5 und 4.0 w/o berechnet. BIBLIS als moderner deutscher Druckwasserreaktor hat z.B. 3 Anfangsanreicherungs-zonen mit 1.9, 2.5 und 3.2 w/o  $\text{U}^{235}$ -Anfangsanreicherung (zur Erzeugung einer flacheren radiativen Leistungsverteilung).

Einige Reaktoren haben jedoch in der äußeren Corezone Brennstoff von 4.0 w/o  $U^{235}$ -Anfangsanreicherung. Siedewasserreaktoren benutzten Brennelemente, deren mittlere  $U^{235}$ -Anfangsanreicherung zwischen 1.9 und 2.5 w/o variieren.

(c) Moderator/Brennstoff-Volumenverhältnis:

Die folgenden Moderator/Brennstoff-Volumenverhältnisse wurden berücksichtigt: 1.6, 1.8, 2.0 und 2.2. Dieser Bereich enthält die üblichen Auslegungsparameter eines Druckwasserreaktors. BIBLIS als moderner Druckwasserreaktor hat ein Moderator/Brennstoff-Verhältnis von 2.0 /62/. Siedewasserreaktoren z.B. Gundremmingen, haben ein Moderator/Brennstoff-Verhältnis von 1.6 /63/.

(d) Dicke der Brennstabhülle

Die Dicke der Hülle wurde mit folgenden Werten in mm betrachtet: 0.6525, 0.7250, 0.7975. Dieser Bereich enthält die benutzten Dicken der Hülle in Leichtwasserreaktoren von 0.6 bis 0.8 mm.

(e) Bor-Gehalt im Moderator

Die Rechnungen wurden für mittlere Bor-Konzentrationen im Wasser von 0, 400, 600, 800 und 1000 ppm durchgeführt. Die Bor-Konzentration in einem DWR vom Typ BIBLIS ändert sich im ersten Bestrahlungszyklus von 1600 ppm am Anfang bis 0 am Ende des Zyklus /64/, entsprechend einem Mittelwert von 800 ppm. Andere Druckwasserreaktoren, wie z.B. KWO, haben einen mittleren Bor-Gehalt im Moderator von 450 ppm /65/. Der betrachtete Bereich (0-100 ppm) kann als extremer Änderungsbereich angesehen werden.

(f) Leistungsdichte

Die Leistungsdichten im Brennstoff wurden mit folgenden Werten in W/g betrachtet: 20, 40, 60. 40 W/g entspricht der normalen Leistungsdichte in einem 1300-MWe-DWR /66/. Die Leistungsdichte ändert sich maximal um ca. 30% von Brennelement zu Brennelement /66/ und der betrachtete Änderungsbereich (20-60 W/g) kann als extremer Bereich angesehen werden.

(g) Leistungsgeschichte

Drei verschiedene Leistungsgeschichten, die typisch für den Reaktorbetrieb sind, wurden berücksichtigt. Die Leistungsprofile sind in Abb. 3.10 dargestellt. Es wird im Fall:

- (g1) die Bestrahlung bei konstanter Leistungsdichte in drei Intervallen von je ca. 1 Jahr mit dazwischenliegenden Pausen von je ca. 2 Monaten angenommen; das entspricht dem normalen Betrieb eines Reaktors mit 2 Pausen für Umladungen.
- (g2) die Bestrahlung bei konstanter Leistungsdichte in drei Intervallen von je ca. 1 Jahr mit dazwischenliegenden Pausen von 2 Monaten bzw. einer längeren Pause von 6 Monaten für eine Defektreparatur.
- (g3) die Bestrahlung mit stufenförmig veränderlicher Leistungsdichte in drei Intervallen von je ca. 1 Jahr mit dazwischenliegenden Pausen von je ca. 2 Monaten.

Um ein Vergleich zwischen den Fällen zu erleichtern, ist der erreichte Abbrand jeweils derselbe.

(h) Nachbestrahlungszeit

Die Werte der Isotopenrelationen wurden nach einer Abklingzeit von 7 Jahren berechnet, entsprechend der heutzutage angenommenen Abklingzeit bei der Auslegung einer Wiederaufarbeitungsanlage.

Die typischen Brennelement-Auslegungsparameter deutscher Druck- und Siedewasserreaktoren sind in Tab. 3.9 zusammengefaßt. Sie können als Basisfall angesehen werden, mit dem alle anderen Fälle verglichen werden können.

Parameter	DWR	SWR
Innerer Canningradius (cm)	0.4650	0.5398
Äußerer Canningradius (cm)	0.5375	0.62705
Gitterabstand (cm)	1,43	1,9228
Mittlere $UO_2$ -Temperatur ( $^{\circ}C$ )	833	700
Mittlere Canningtemperatur ( $^{\circ}C$ )	344	332
Kühlmitteltemperatur im mittleren Kanal ( $^{\circ}C$ )	310	287
Moderator/Brennstoff-Verhältnis	1.965	2.600
$U^{235}$ -Anfangsanreicherung (w/o)	3.2	1.9
Mittlere Leistungsdichte im Brennstoff ( $w/cm^3$ )	350	250
Mittlerer Bor-Gehalt im Wasser (ppm)	600	-
Bestrahlungszeit (Volllast-tage)	1000	1000

Tab. 3.9: Brennelement-Auslegungsdaten für DWR und SWR (Basisfall)

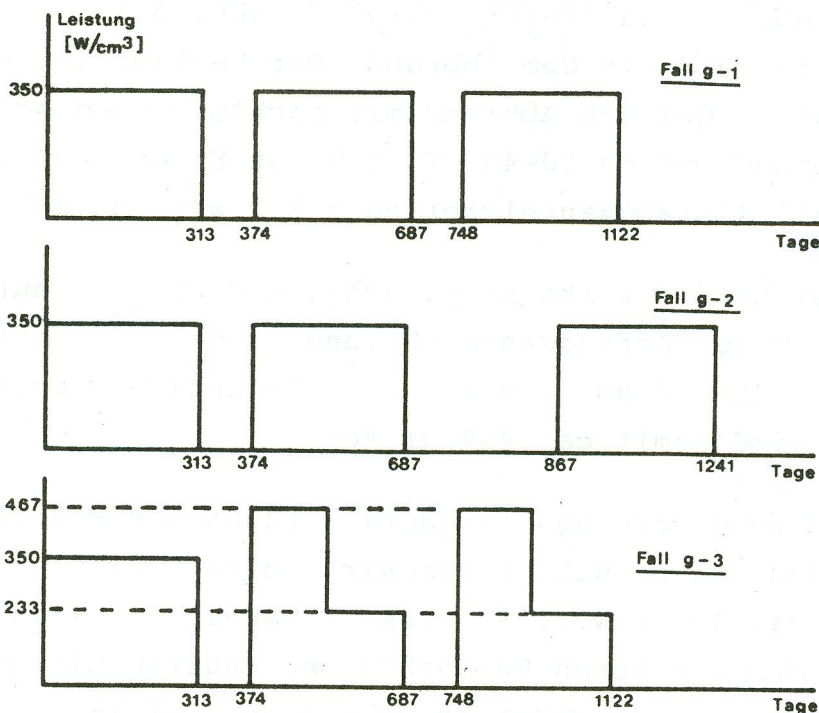


Abb. 3.10: Leistungsprofile zur Untersuchung des Einflusses der Leistungsgeschichte auf die Isotopenrelationen

### 3.6.2 Ergebnisse der Sensitivitätsuntersuchung

In diesem Abschnitt werden die Ergebnisse der Sensitivitätsuntersuchung der ausgewählten Isotopenrelationen bezüglich der in Abschnitt 3.5.1 genannten in-pile und out-of-pile Parameter von Leichtwasserreaktoren angegeben. Es wird festgestellt, welche Relationen sensitiv oder insensitiv bezüglich der einzelnen Parameter sind.

Im folgenden werden die wichtigsten Eigenschaften der untersuchten Isotopenrelationen in der in Tab. 3.8 angegebenen Reihenfolge beschrieben:

(1)  $(Pu/U)/D^{235}$ -Relation:

In der Relation bezeichnen Pu die Plutoniummasse in g, U die Uranmasse in t, und  $D^{235}$  die  $U^{235}$ -Abreicherung in %. In Abb. 3.11 ist  $\frac{Pu}{U}$  als Funktion von  $D^{235}$  für verschiedene Anfangsanreicherungen (1.9, 2.5 und 3.2 w/o) und Moderator/Brennstoff-Volumenverhältnisse ( $M/B = 1.8, 2.0$  und  $2.2$ ) dargestellt. Die Relation ist näherungsweise linear bis über 40 000 MWd/t U Abbrand und läßt sich wie folgt ausdrücken  $(Pu/U) = K \cdot D^{235}$ . Abb. 3.12 zeigt den Verlauf der Steigung K mit dem Abbrand. Der Verlauf ist schwach fallend bis etwa 30 GWd/t U Abbrand mit nachfolgendem schwachen Anstieg. Im Abbrandbereich 20-40 GWd/t U hat K den Wert  $4213 \pm 0.9\%$  für den Basisfall (Anfangsanreicherung = 3.2 w/o und  $M/B = 2.0$ ).

Die Anfangsanreicherung wirkt hauptsächlich über  $D^{235}$  auf die Relation: mit kleinerer Anfangsanreicherung nimmt  $D^{235}$  stark ab (um ca. 30% von 3.2 w/o auf 1.9 w/o  $U^{235}$ -Anfangsanreicherung) und der Wert von K wird somit ca. 45% größer.

Die Spektrumshärtung, die aus der Herabsetzung des  $M/B$ -Verhältnisses um 10% und 20% resultiert, bewirkt eine Zunahme des  $(Pu/U)/D^{235}$ -wertes um ca. 10% bzw. 25%. Diese Abhängigkeit wird hauptsächlich durch den stärkeren Pu-Aufbau bei engerem Gitter verursacht, da mit der Spektrumshärtung mehr Neutronen im  $U^{238}$ -Resonanzgebiet (40 V - 5 keV) eingefangen werden.

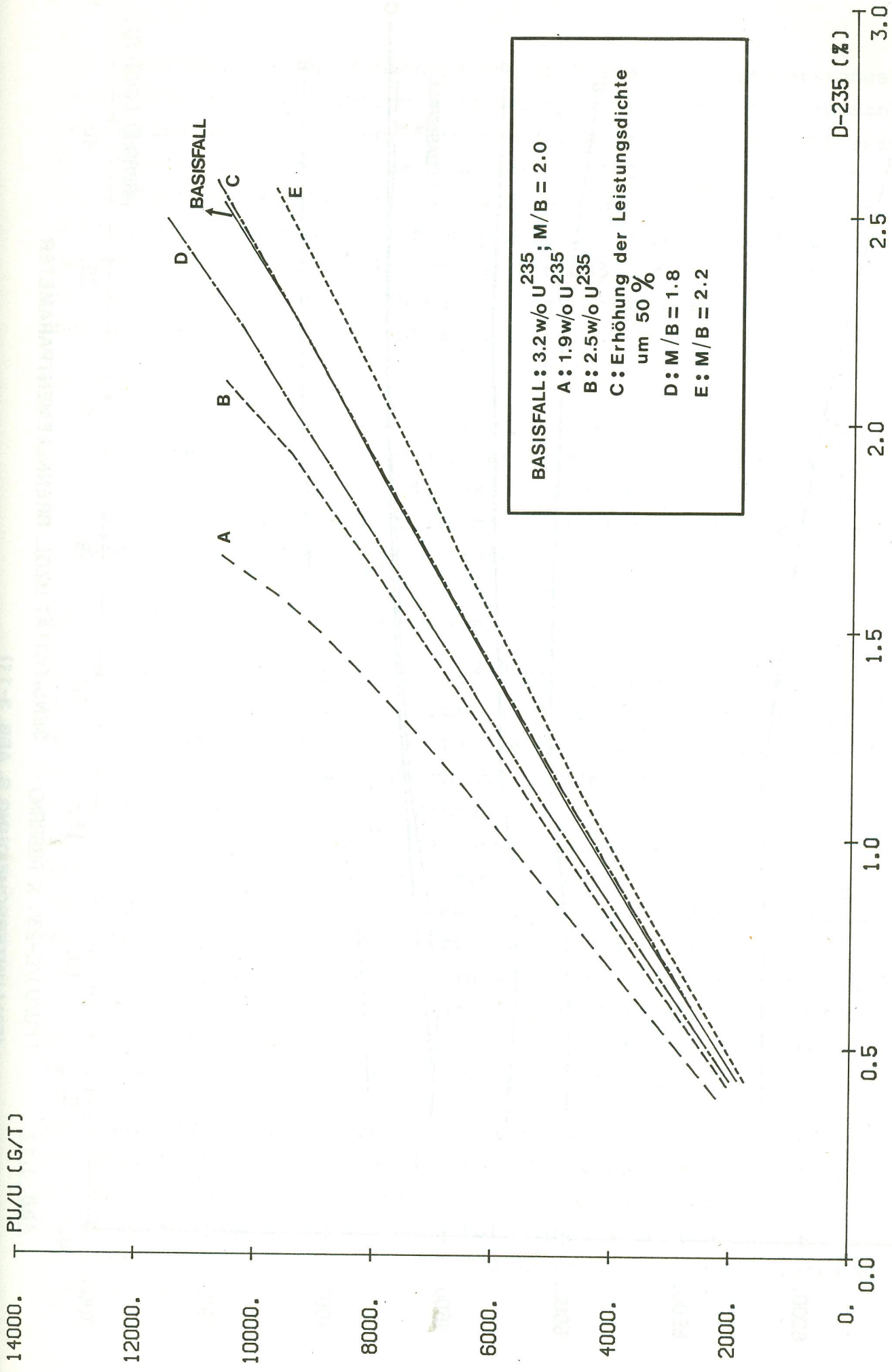
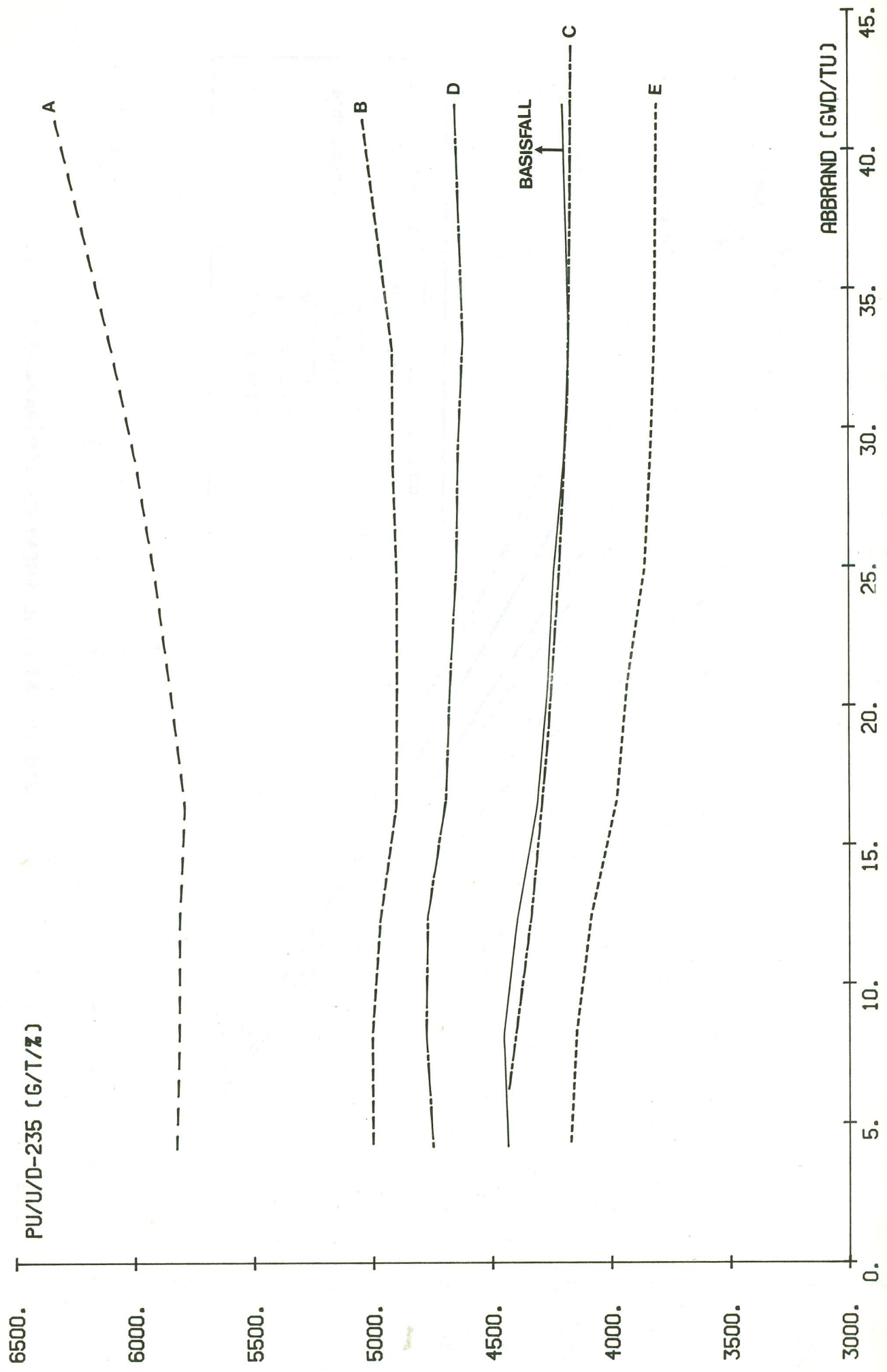


FIG. 3.11 PU/U X D-235

SENSITIVITÄT BZGL. BRENNELEMENTPARAMETER



**ABB. 3.12** (PU/U)/D-235 X ABBRAND — SENSITIVITÄT BZGL. BRENNLEMENTPARAMETER  
(FALLUNTERSCHIEDUNG S. ABB. 3-11)

Die Einflüsse der Bor-Konzentration im Wasser und der Leistungsgeschichte auf die Relation sind geringer als die der Anfangsanreicherung und des M/B-Verhältnisses: Die Erhöhung des mittleren Bor-Gehalts im Moderator um etwa 30% (von 600 ppm auf 800 ppm) vergrößert die Relation bei 33 GWd/t U Abbrand ca. 2%. Die verschiedenen Leistungsgeschichten bewirken bis ca. 1% Änderung des Reaktionswertes. Ebenfalls ist der Einfluß der Abklingzeit auf die Relation gering: nach 7 Jahren wird der Relationswert ca. 3% kleiner als der Wert bei der Entladungszeit.

Ergebnis:

- Die  $(Pu/U)/D^{235}$ -Relation ist sensitiv bezüglich der  $U^{235}$ -Anfangsanreicherung und des Moderator/Brennstoff-Verhältnisses und insensitive bezüglich der anderen Parameter. Die Verwendung dieser Relation erfordert die genaue Kenntnis der Anfangsanreicherung und des M/B-Verhältnisses.

(2)  $(Pu/U)/(100-Pu^{239})$ -Relation

In dieser Relation bezeichnet  $Pu^{239}$  die prozentuale Häufigkeit dieser Isotope im Plutonium. Abb. 3.13 zeigt den Verlauf von  $Pu/U$  als Funktion von  $(100-Pu^{239})$ . Die Relation ist näherungsweise linear im ganzen Abbrandbereich und hat den Wert  $212.4 \pm 0.3\%$  zwischen 20 und 40 GWd/t U Abbrände für den Basisfall. Der Verlauf von  $(Pu/U)/(100-Pu^{239})$  mit dem Abbrand ist in Abb. 3.14 dargestellt. Der Relationswert steigt mit der  $U^{235}$ -Anfangsanreicherung: für 3.2%-Anfangsanreicherung ist der mittlere Relationswert ca. 15% größer als der Wert für Anfangsanreicherung von 1.9% im Abbrandbereich von 20 bis 40 GWd/t U. Die Relation ist ebenfalls sensitiv bezüglich des M/B-Verhältnisses: die Verkleinerung des M/B-Verhältnisses um ca. 10% erhöht den mittleren Relationswert zwischen 20 und 40 GWd/t Abbrände um ca. 12%.

Die Erhöhung des mittleren Bor-Gehalts im Moderator um etwa 30% vergrößert die Relation bei 33 GWd/t U Abbrand ca. 3%. Die Einflüsse der Leistungsgeschichte und der Leistungsdichte auf die Relation spielen eine geringere Rolle (maximale Änderung der Relation von etwa 1% bei 33 GWd/t U-Abbrand) und können vernachlässigt werden.

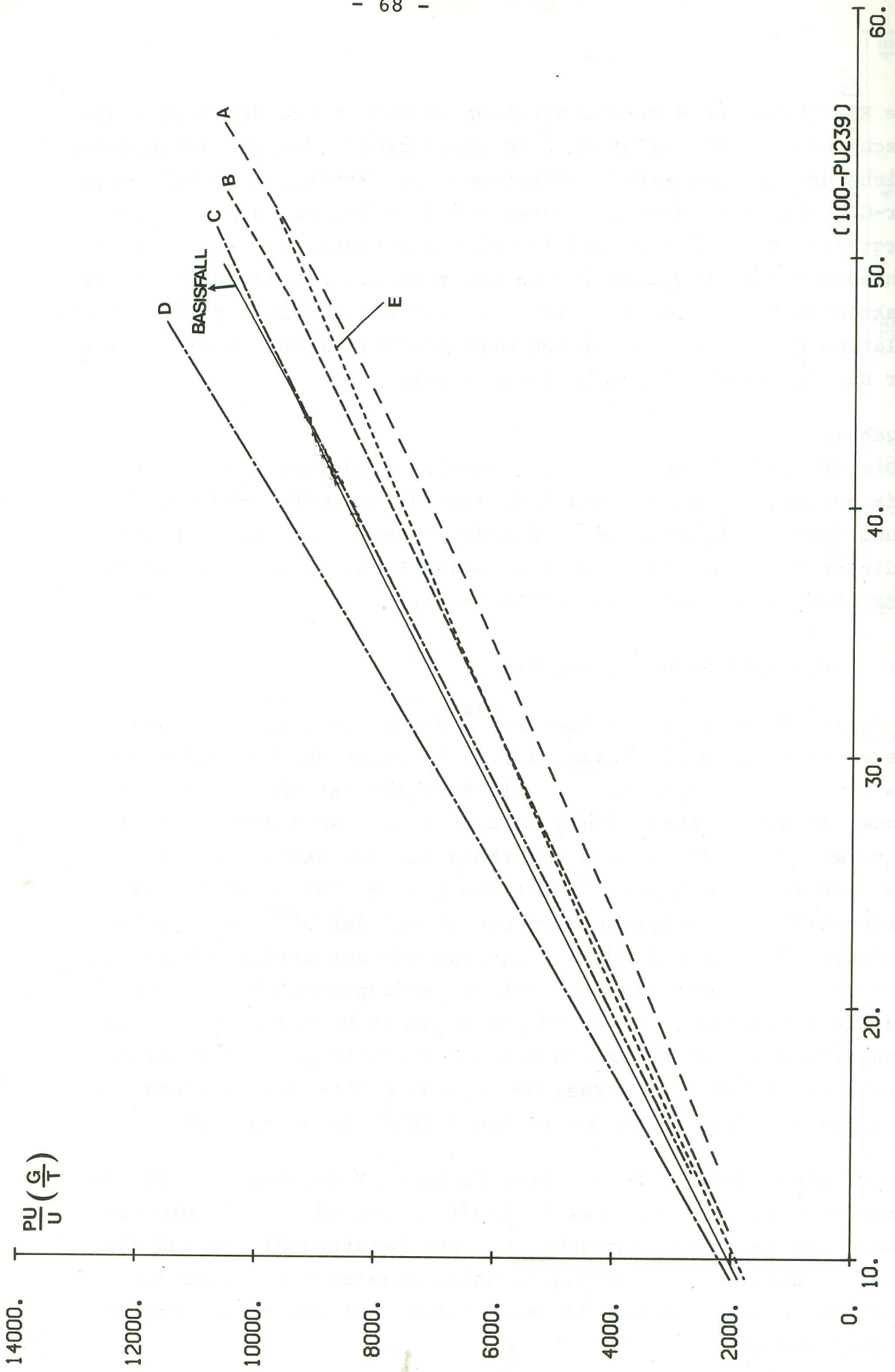


ABB. 3.13 PU/U/(100-PU239) RELATION - SENSITIVITÄT BZGL. BRENNNELEMENTPARAMETER (FALLUNTERSCHIEDUNG S. ABB. 3-11)

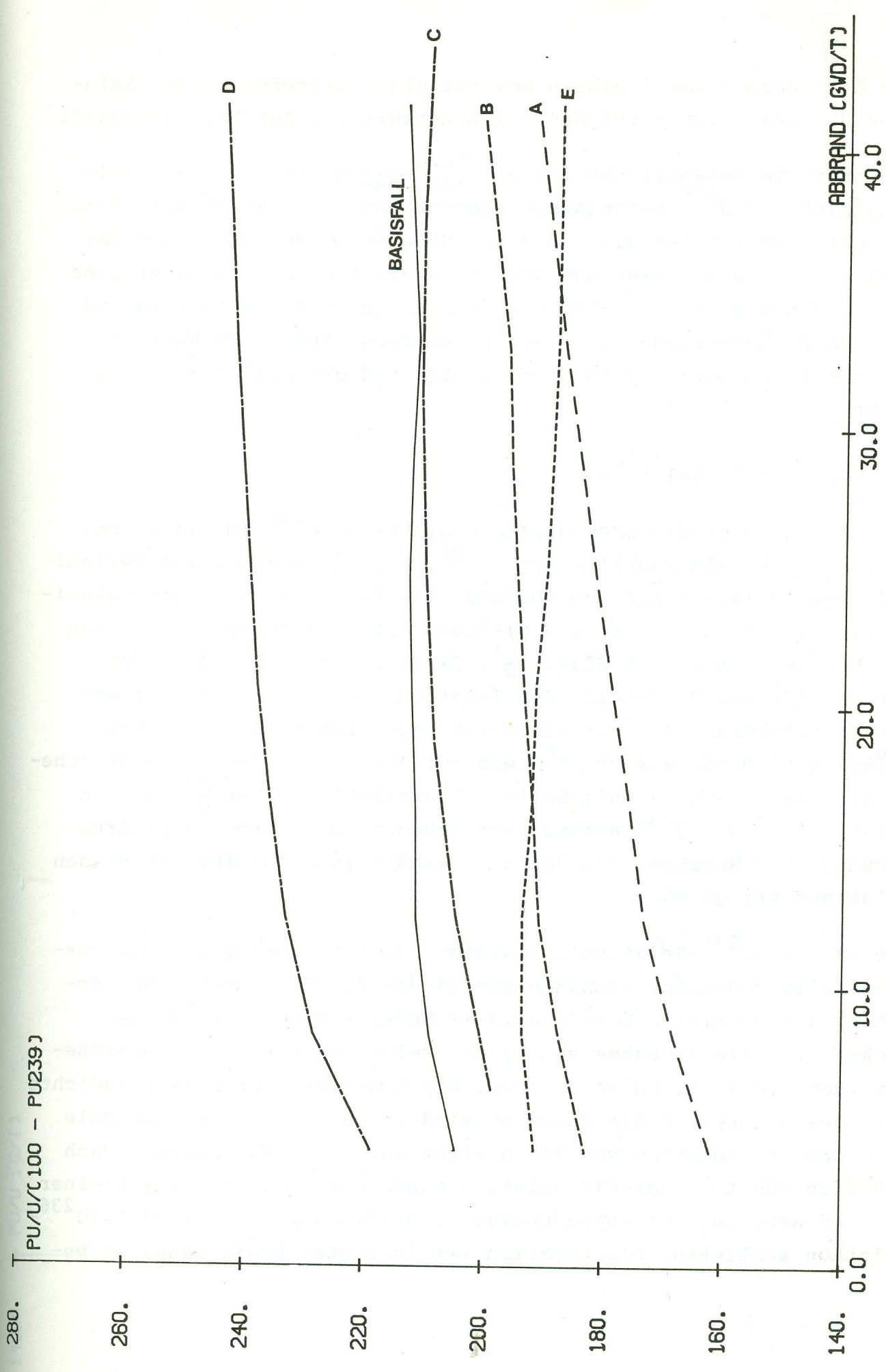


ABB. 3-14 SENSITIVITÄT DER  $PU/U/c100 - PU239$  - RELATION  
(FALLUNTERSCHIEDUNG S. ABB. 3-11)

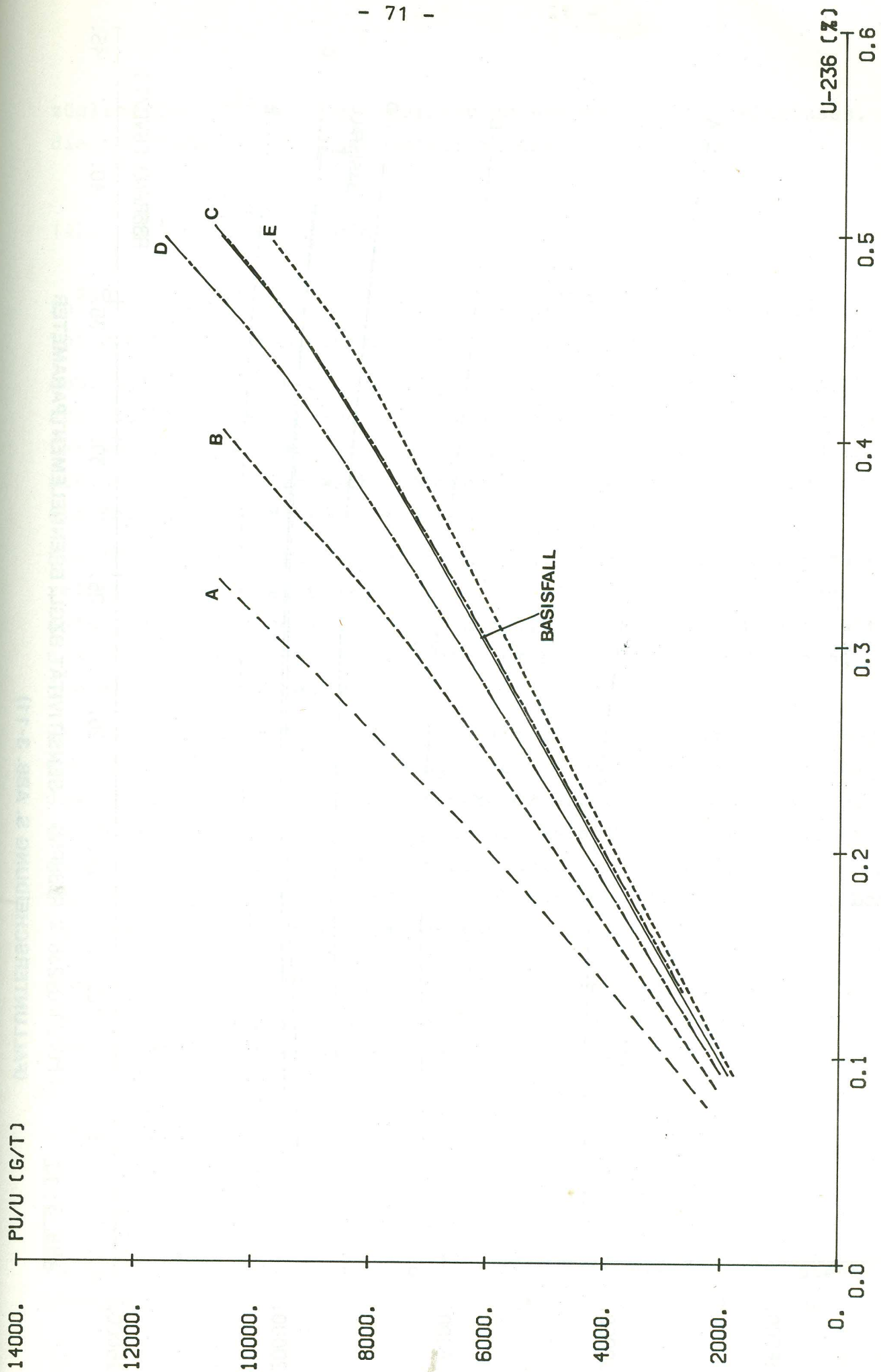
Die Abklingzeit von 7 Jahren bewirkt eine Vergrößerung der Relation um 3.6% bezogen auf den Relationswert bei der Entladungszeit.

Ergebnis: Im wesentlichen ist die  $\frac{\text{Pu}/\text{U}}{(100-\text{Pu}^{239})}$ -Relation sensitiv bezüglich der  $\text{U}^{235}$ -Anfangsanreicherung und des M/B-Verhältnisses, weniger sensitiv bezüglich des Bor-Gehalts im Moderator und der Abklingzeit. Die Verwendung dieser Relation erfordert daher eine genaue Kenntnis der  $\text{U}^{235}$ -Anfangsanreicherung des Brennstoffs und des M/B-Verhältnisses des Reaktors während eine grobe Kenntnis des mittleren Bor-Gehalts im Moderator und der Abklingzeit ausreichen.

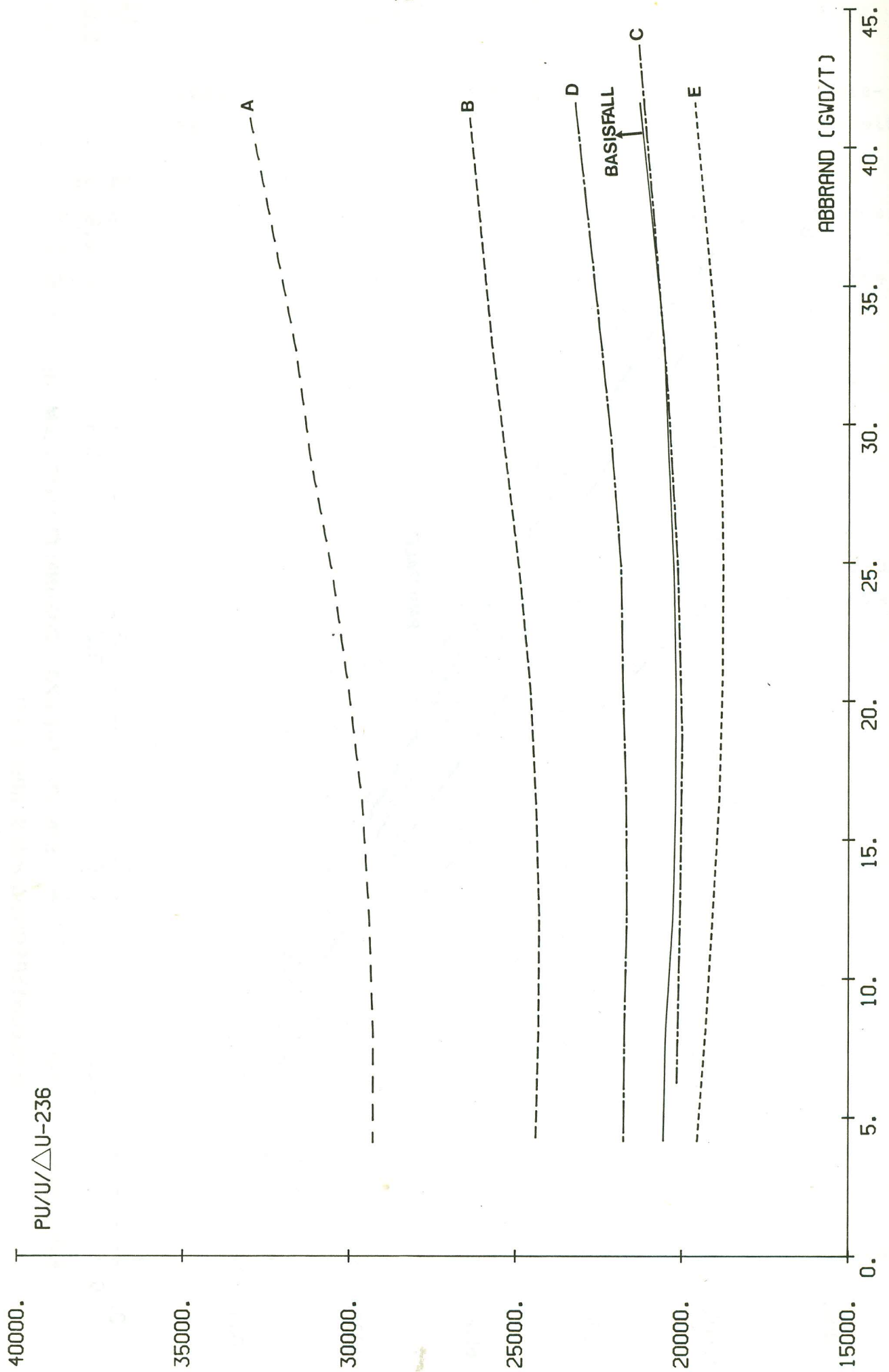
(3)  $(\frac{\text{Pu}}{\text{U}})/\Delta\text{U}^{236}$ -Relation

$\Delta\text{U}^{236}$  bezeichnet das prozentuale Gewicht von  $\text{U}^{236}$  im Uran. Abb. 3.15 zeigt  $\frac{\text{Pu}}{\text{U}}$  als Funktion von  $\Delta\text{U}^{236}$ . Abb. 3.16 zeigt den Verlauf der  $\frac{\text{Pu}/\text{U}}{\Delta\text{U}^{236}}$  Relation mit dem Abbrand. Die Relation ist näherungsweise linear bis ca. 30 GWd/t U mit nachfolgendem schwachen Anstieg und hat den Mittelwert  $20549 \pm 2.2\%$  zwischen 20 und 40 GWd/t U Abbrand für den Basisfall. Die Relation hängt stark von der Anfangsanreicherung ab: mit kleinerer Anfangsanreicherung nimmt  $\frac{(\text{Pu}/\text{U})}{\Delta\text{U}^{236}}$  zu (um ca. 42% von 3.2 w/o auf 1.9 w/o  $\text{U}^{235}$ -Anfangsanreicherung). Das M/B-Verhältnis bewirkt hauptsächlich über  $\frac{\text{Pu}}{\text{U}}$  auf die Relation, da der  $\text{U}^{236}$ -Aufbau sehr schwach vom Neutronenspektrum abhängt. Die Herabsetzung des M/B-Verhältnisses um 10% erhöht den Relationswert um 9%.

Die  $(\text{Pu}/\text{U})/\Delta\text{U}^{236}$ -Relation ist weniger sensitiv bezüglich des Bor-Gehalts im Moderator (Zunahme von 2% des Relationswertes bei Erhöhung des mittleren Bor-Gehalts im Moderator um 30%) und der Dicke der Hülle (Zunahme von 2% des Relationswertes bei Vergrößerung der Dicke der Hülle um 10%). Die Einflüsse der Leistungsdichte und -geschichte auf die Relation sind vernachlässigbar (maximale Änderung der Relation von 1% in allen untersuchten Fällen). Nach 7 Jahren Kühlzeit hat die Relation einen Wert von ca. 2.9% kleiner als den Wert bei der Entladungszeit. Man kann für die  $(\text{Pu}/\text{U})/\Delta\text{U}^{236}$ -Relation schließen: Die Relation ist in erster Linie sensitiv be-



**ABB. 3-15** PU/U X U-236 - SENSITIVITÄT BZGL. BRENNLEMENTPARAMETER  
(FALLUNTERSCHIEDUNG S. ABB. 3-11)



**ABB. 3-16** (PU/U)/U-236 X ABBRAND SENSITIVITÄT BZGL. BRENNELEMENTPARAMETER  
(FALLUNTERSCHIEDUNG S. ABB. 3-11)

zöglich der  $U^{235}$ -Anfangsanreicherung und des M/B-Verhältnisses, die zur Verwendung dieser Relation bekannt sein müssen.

$$(4) \quad \left( \frac{\text{Pu}}{\text{U}} \right) / \left( \frac{\text{Pu}^{240}}{\text{Pu}^{239}} \right) - \text{Relation}$$

$\text{Pu}^{240}$  und  $\text{Pu}^{239}$  bezeichnen in der  $\frac{(\text{Pu}/\text{U})}{(\text{Pu}^{240}/\text{Pu}^{239})}$  - Relation die Teilchenzahldichten dieser Isotope in Atome/cm<sup>3</sup>.

Abb. 3.17 zeigt (Pu/U) als Funktion vom  $\frac{\text{Pu}^{240}}{\text{Pu}^{239}}$ -Verhältnis und in Abb. 3.18 ist der Verlauf der Relation mit dem Abbrand dargestellt. Der Relationswert steigt etwa 10% bis ca. 15 GWd/t U Abbrand an, mit nachfolgender schwachen Abnahme: zwischen 20 und 40 GWd/t U hat die Relation den Mittelwert  $22950 \pm 2.2\%$ .

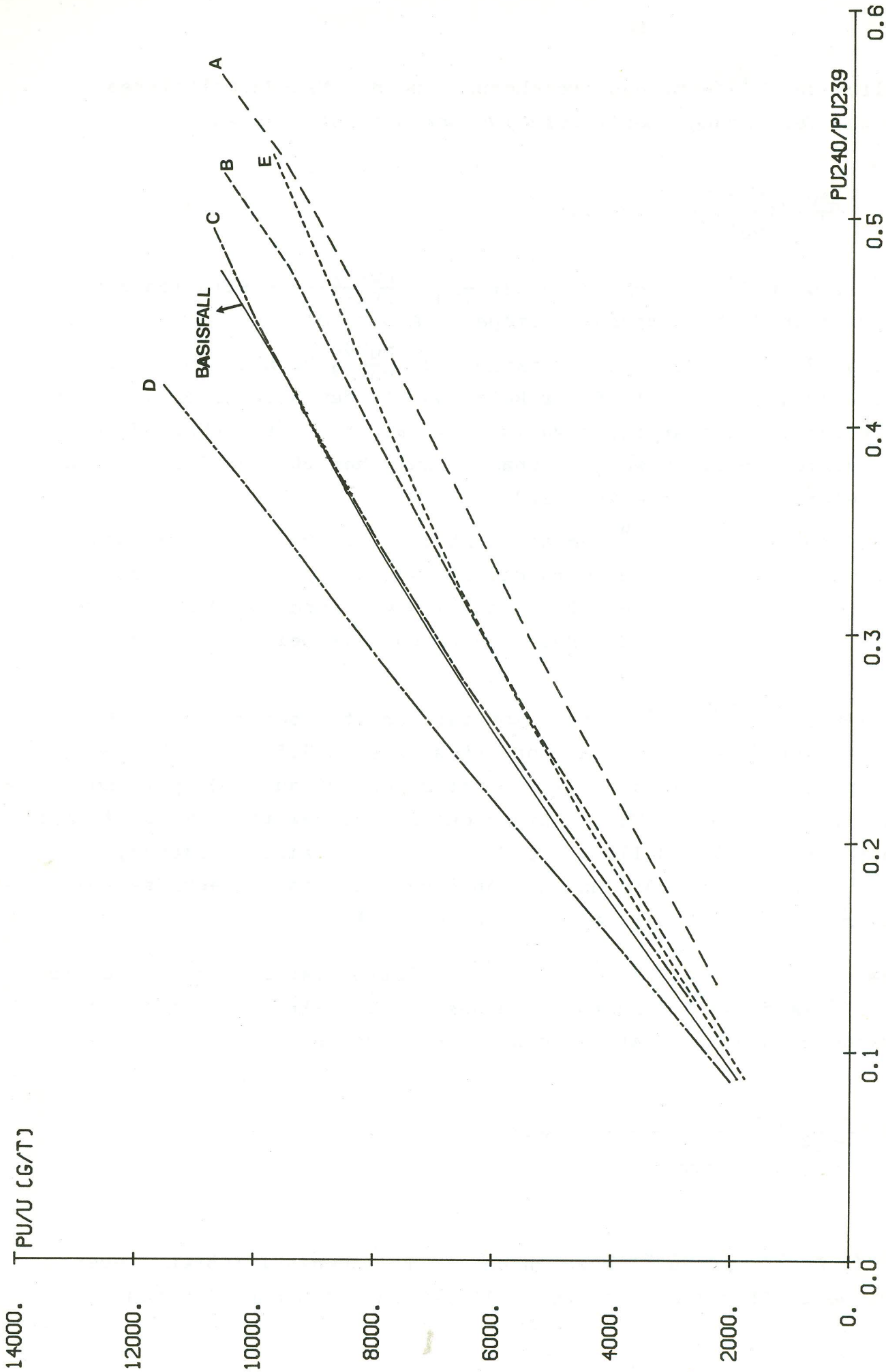
Die  $(\text{Pu}/\text{U})/(\text{Pu}^{240}/\text{Pu}^{239})$ -Relation hängt stark von der Anfangsanreicherung (die Relation wird ca. 20% kleiner für Änderung der Anfangsanreicherung von 3.2 w/o auf 1.9 w/o) und vom M/B-Verhältnis ab (Verkleinerung der Relation um ca. 17% bei Herabsetzung des M/B-Verhältnisses um 10%).

Die  $(\text{Pu}/\text{U})/(\text{Pu}^{240}/\text{Pu}^{239})$ -Relation ist sensitiv bezüglich des Bor-Gehalts (Erhöhung des Relationswertes um etwa 4.5% bei Erhöhung des mittleren Bor-Gehalts im Moderator von 600 auf 800 ppm) und der Dicke der Hülle (Vergrößerung des Relationswertes um ca. 4% mit einer 10% dickeren Hülle). Die Einflüsse der Leistungsdichte, der Leistungsgeschichte und der Abklingzeit sind vernachlässigbar (maximale Änderung der Relation von ca. 1%).

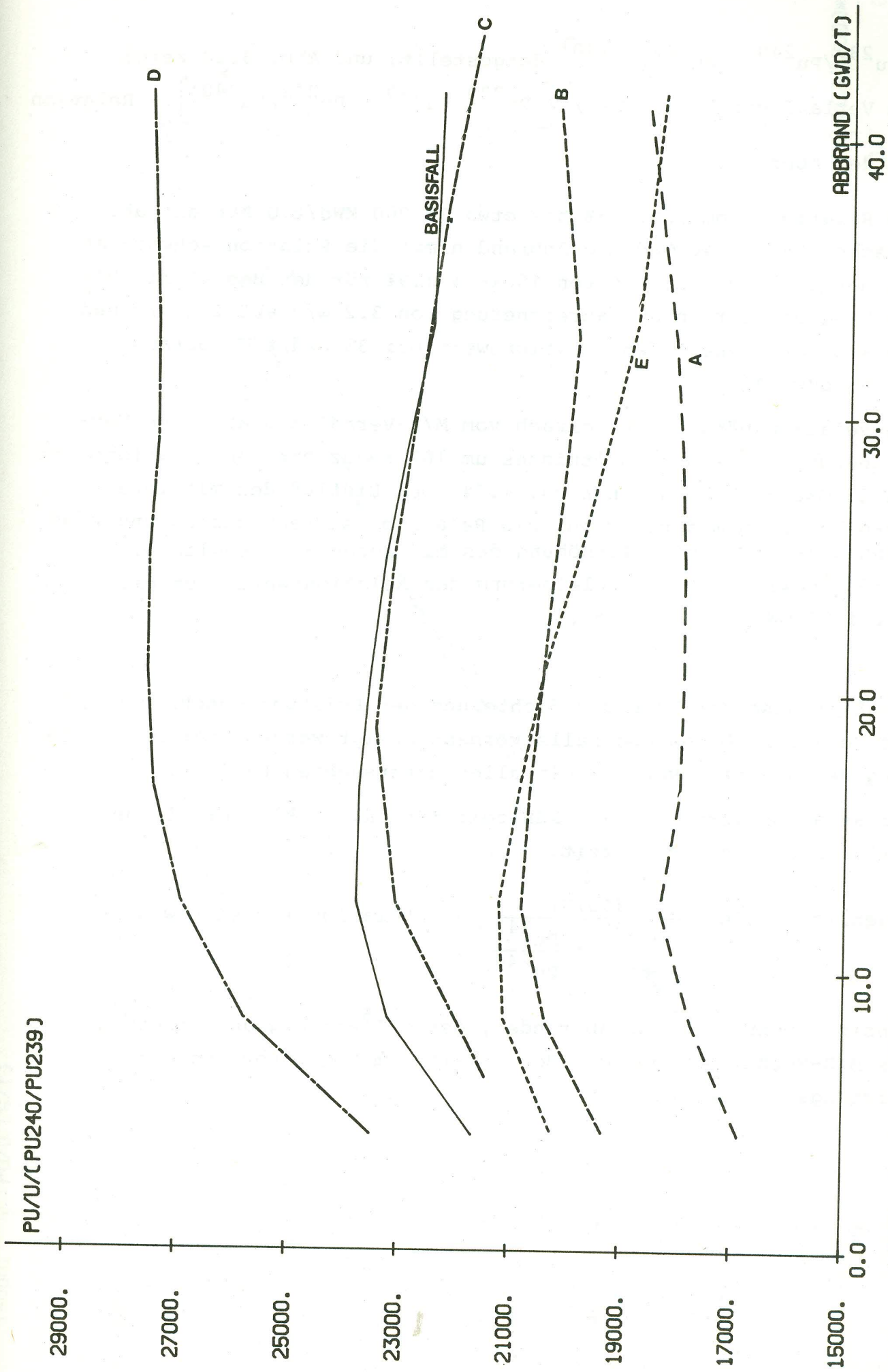
Ergebnis: Die  $(\text{Pu}/\text{U})/(\text{Pu}^{240}/\text{Pu}^{239})$ -Relation ist sensitiv bezüglich der  $U^{235}$ -Anfangsanreicherung und des M/B-Verhältnisses, die zur Verwendung dieser Relation bekannt sein müssen.

$$(5) \quad \frac{(\text{Pu}/\text{U})}{\left[ \frac{\text{Pu}^{239}}{\text{Pu}^{240}} \cdot \frac{\text{Pu}^{242}}{\text{Pu}^{240}} \right]} - \text{Relation}$$

$\text{Pu}^{239}$ ,  $\text{Pu}^{240}$  und  $\text{Pu}^{242}$  bezeichnen die Teilchenzahldichten dieser Isotope in Atome/cm<sup>3</sup>. In Abb. 3.19 ist Pu/U als Funktion von



**ABB. 3-17**  $PU/U/(PU_{240}/PU_{239})$  - RELATION - SENSITIVITÄT BZGL. BRENNELEMENTPARAMETER  
(FALLUNTERSCHIEDUNG S. ABB. 3-11)



SENSITIVITÄT DER  $PU/U/(PU240/PU239)$  -- RELATION  
(FALLUNTERSCHIEDUNG S. ABB. 3-11)

ABB. 3-18

$\left[ \frac{\text{Pu}^{239}}{\text{Pu}^{240}} \cdot \frac{\text{Pu}^{242}}{\text{Pu}^{240}} \right]$  dargestellt, und Abb. 3.20 zeigt den Verlauf der  $(\text{Pu}/\text{U}) / \left[ \frac{\text{Pu}^{239}}{\text{Pu}^{240}} \cdot \frac{\text{Pu}^{242}}{\text{Pu}^{240}} \right]$  - Relation mit dem Abbrand.

Die Relation nimmt ca. 15% bis etwa 15 000 MWd/t U Abbrand ab. Zwischen 15 und 40 GWd/t U-Abbrand nimmt die Relation schwach ab und hat einen Mittelwert von  $18046 \pm 1.9\%$  für den Basisfall. Die Herabsetzung der Anfangsanreicherung von 3.2 w/o auf 2.5 w/o und 1.9 w/o verkleinert den Relationswert bei 33 GWd/t U Abbrand um ca. 6% bzw. 12%.

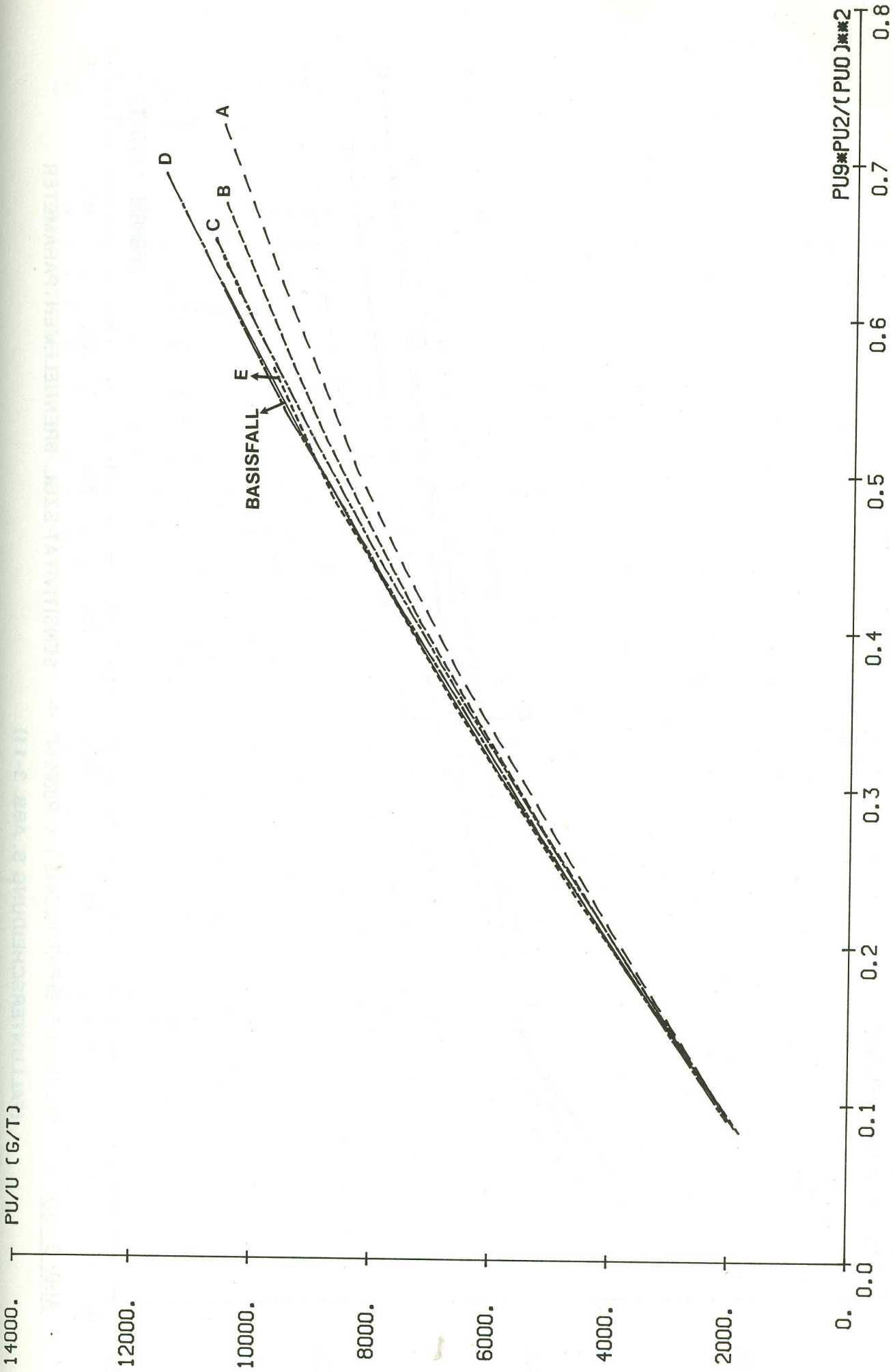
Die Relation hängt sehr schwach vom M/B-Verhältnis ab: Eine Verkleinerung des M/B-Verhältnisses um 10% reduziert den Relationswert bei 33 GWd/t U Abbrand nur ca. 1.7%. Der Einfluß des mittleren Bor-Gehalts im Moderator auf die Relation ist sehr gering und kann vernachlässigt werden (Erhöhung des mittleren Bor-Gehalts um ca. 30% bewirkt eine Verkleinerung des Relationswertes um ca. 1% bei 33 GWe/t U Abbrand).

Die Einflüsse der Leistungsdichte und der Leistungsgeschichte auf die Relation können ebenfalls vernachlässigt werden (maximale Änderung der Relation von 1.8% in allen untersuchten Fällen).

Der Relationswert nach 7 J Kühlzeit ist ca. 4% kleiner als der Wert bei der Entladungszeit.

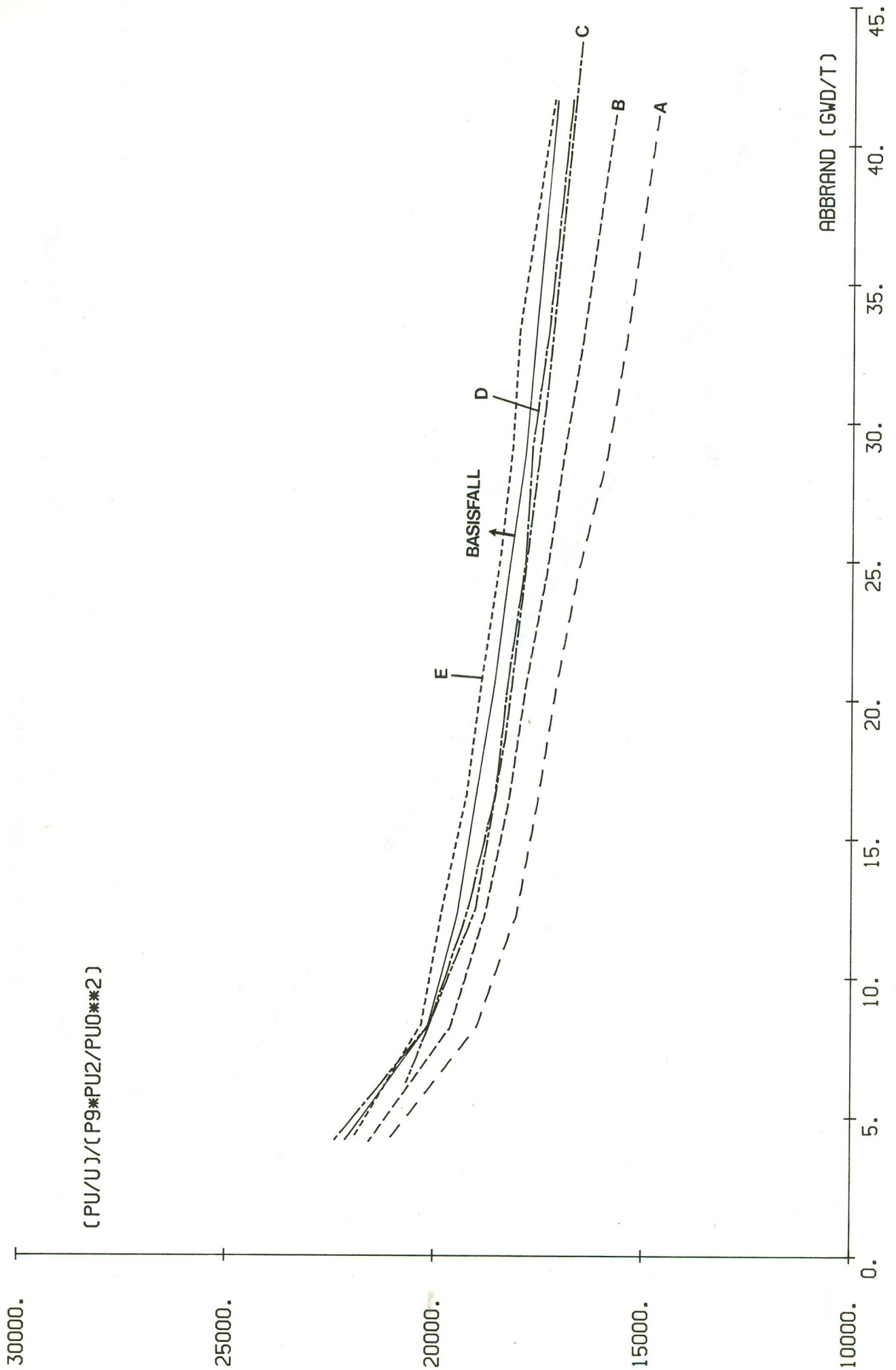
Ergebnis: Die  $\frac{(\text{Pu}/\text{U})}{\left[ \frac{\text{Pu}^{239}}{\text{Pu}^{240}} \cdot \frac{\text{Pu}^{242}}{\text{Pu}^{240}} \right]}$  - Relation ist sehr wenig

sensitiv bezüglich des Abbrandes, der  $\text{U}^{235}$ -Anfangsanreicherung, des M/B-Verhältnisses, des Bor-Gehalts im Moderator und der Leistungsgeschichte.



**ABB. 3-19**  $PU/U \times (PU9 * PU2) / (PU0)^2$  — SENSITIVITÄT BZGL. BRENNELEMENTPARAMETER

(FALLUNTERSCHIEDUNG S. ABB. 3-11)



**ABB. 3-20**  $(PU/U)/(P9*PU2/PU0^{**2})$  X ABBRAND --- SENSITIVITÄT BZGL. BRENNELEMENTPARAMETER  
(FALLUNTERSCHIEDUNG S. ABB. 3-11)

(6)  $\frac{(Pu/U)}{\left(\frac{Cs^{134}}{Cs^{137}}\right)}$  - Relation

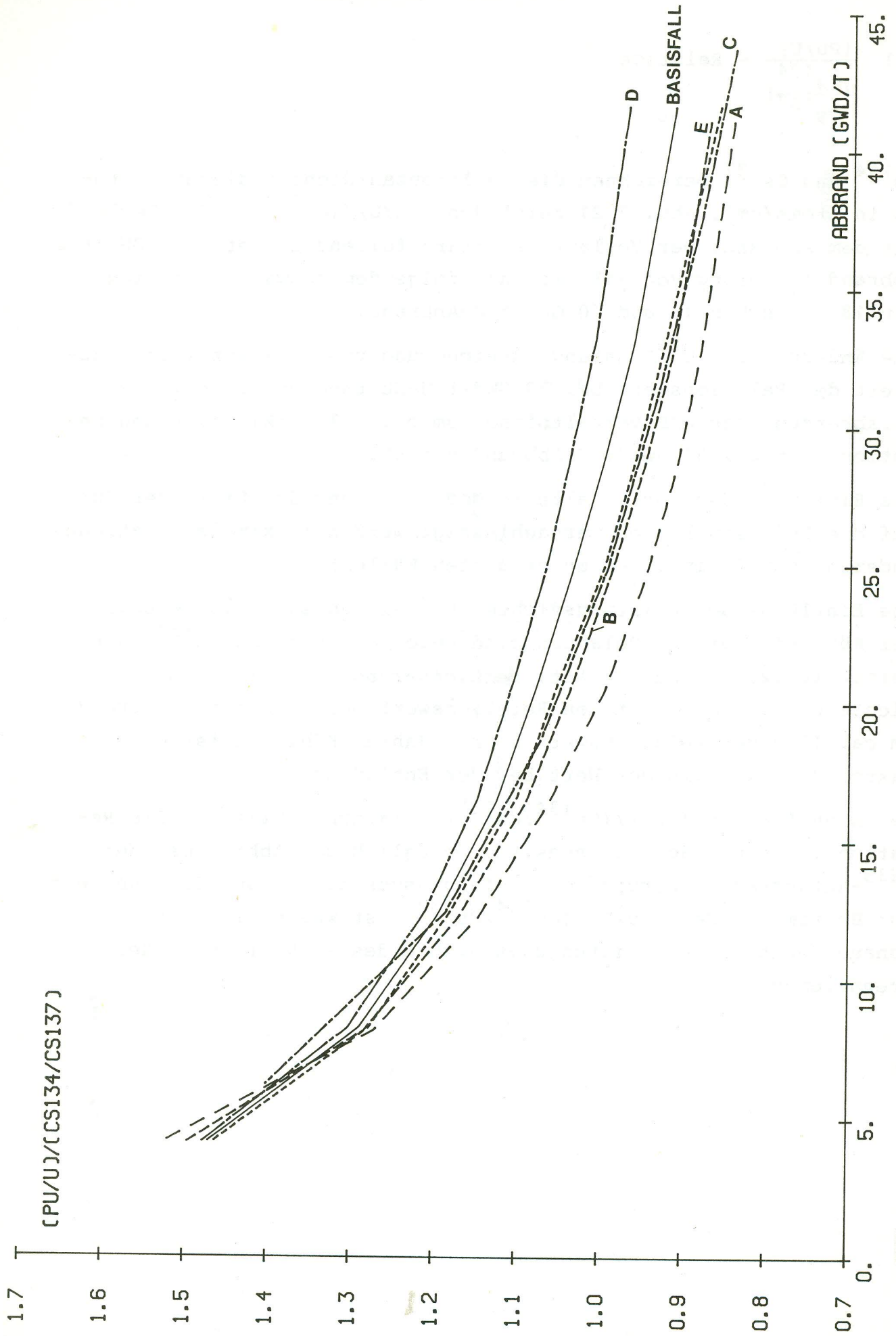
$Cs^{134}$  und  $Cs^{137}$  bezeichnen die Teilchenzahldichten dieser Isotope in Atome/cm<sup>3</sup>. Abb. 3.21 zeigt den  $(Pu/U)/(Cs^{134}/Cs^{137})$ -Verlauf mit dem Abbrand. Der Verlauf ist stark fallend bis etwa 15 GWd/t U Abbrand (Änderung von 24%) mit nachfolgendem schwachen Abstieg von 18% zwischen 15 und 40 GWd/t U-Abbrand.

Die Änderung der  $U^{235}$ -Anfangsanreicherung von 3.2% auf 1.9% reduziert den Relationswert bei 33 GWd/t U-Abbrand um ca. 8%. Die Herabsetzung des M/B-Verhältnisses um ca. 10% verkleinert den Relationswert bei 33 GWd/t U-Abbrand nur 4%.

Die Einflüsse des Bor-Gehalts im Moderator und der Dicke der Hülle auf die Relation können vernachlässigt werden (maximale Relationsänderung von 2% in allen untersuchten Fällen).

Die Einflüsse der Leistungsdichte und Leistungsgeschichte sowie der Kühlzeit auf die Relation sind wegen der kleinen  $Cs^{134}$ -Halbwertszeit (2.1 J) ausgeprägt: Verkleinerung der Leistungsdichte um 50% reduziert den Relationswert bei 33 GWd/t U Abbrand um ca. 17%; der Relationswert nach 7 Jahren Kühlzeit ist ein Faktor 9 größer als der Wert bei der Entladungszeit.

Man kann für die  $(Pu/U)/(Cs^{134}/Cs^{137})$ -Relation schließen: Die Relation ist hauptsächlich sensitiv bezüglich des Abbrandes, der  $U^{235}$ -Anfangsanreicherung, der Leistungsgeschichte und der Kühlzeit. Zur Bestimmung der  $(Pu/U)/(Cs^{134}/Cs^{137})$  ist wesentlich die genaue Kenntnis der Leistungsgeschichte des Reaktors bzw. der Brennelemente.



**ABB. 3-21**  $(PU/U)/(CS134/CS137) \times ABBRAND$  — SENSITIVITÄT BZGL. BRENNLEMENTPARAMETER  
(FALLUNTERSCHIEDUNG S. ABB. 3-11)

(7)  $\frac{(Pu/U)}{(Eu^{154}/Cs^{137})}$  - Relation

$Eu^{154}$  und  $Cs^{137}$  bezeichnen die Teilchenzahldichten dieser Isotope in Atome/cm<sup>3</sup>. Der Verlauf der  $(Pu/U)/(Eu^{154}/Cs^{137})$ -Relation mit dem Abbrand ist in Abb. 3.22 gezeigt.

Die Relation nimmt bis ca. 20 GWd/t U Abbrand stark ab (Änderung von ca. 40%). Zwischen 20 und 40 GWd/t U Abbrand wird der Verlauf flacher mit einer Reduzierung des Relationswertes um etwa 17%. Der Relationswert bei 33 GWd/t U-Abbrand wird ca. 12% kleiner bei Herabsetzung der  $U^{235}$ -Anfangsanreicherung von 3.2% auf 1.9% und ca. 6% größer bei Herabsetzung des M/B-Verhältnisses von 2.0 auf 1.8. Die Einflüsse des Bor-Gehalts im Moderator (Erhöhung des Relationswerts um ca. 1% bei Änderung des mittleren Bor-Gehalts im Moderator von 30%), der Dicke der Hülle (Relationswert 1% größer für 10% dickere Hülle), der Leistungsdichte und der Leistungsgeschichte (maximale Änderung von 0.8% in allen untersuchten Fällen) können vernachlässigt werden.

Der Relationswert nach 7 Jahren Kühlzeit ist ca. 11% größer als der Wert bei der Entladungszeit, vor allem wegen der  $Eu^{154}$ -Halbwertszeit von 16 J.

Ergebnis: Die  $(Pu/U)/(Eu^{154}/Cs^{137})$ -Relation erweist sich sensitiv bezüglich des Abbrands, der  $U^{235}$ -Anfangsanreicherung, des M/B-Verhältnisses und der Kühlzeit, die zur Verwendung dieser Relation bekannt sein müssen.

(8)  $D^{235}$ -Relation

$D^{235}$  bezeichnet die  $U^{235}$ -Abreicherung ( $D^{235} = \frac{U^{235}}{U_0} - \frac{U^{235}}{U}$ ) in %.

Der Verlauf von  $D^{235}$  mit dem Abbrand für Anfangsanreicherungen des Brennstoffs zwischen 1.9% und 4.0% ist in Abb. 3.23 gezeigt. Der  $D^{235}$ -Wert steigt um ca. 40% zwischen 20 und 30 GWd/t U-Abbrand.  $D^{235}$  hängt stark von der  $U^{235}$ -Anfangsanreicherung ab: Die Herabsetzung der  $U^{235}$ -Anfangsanreicherung von 3.2% auf 1.9% bewirkt die Abnahme des  $D^{235}$ -Wertes um ca. 30% bei ca. 30 GWd/t U-Abbrand.

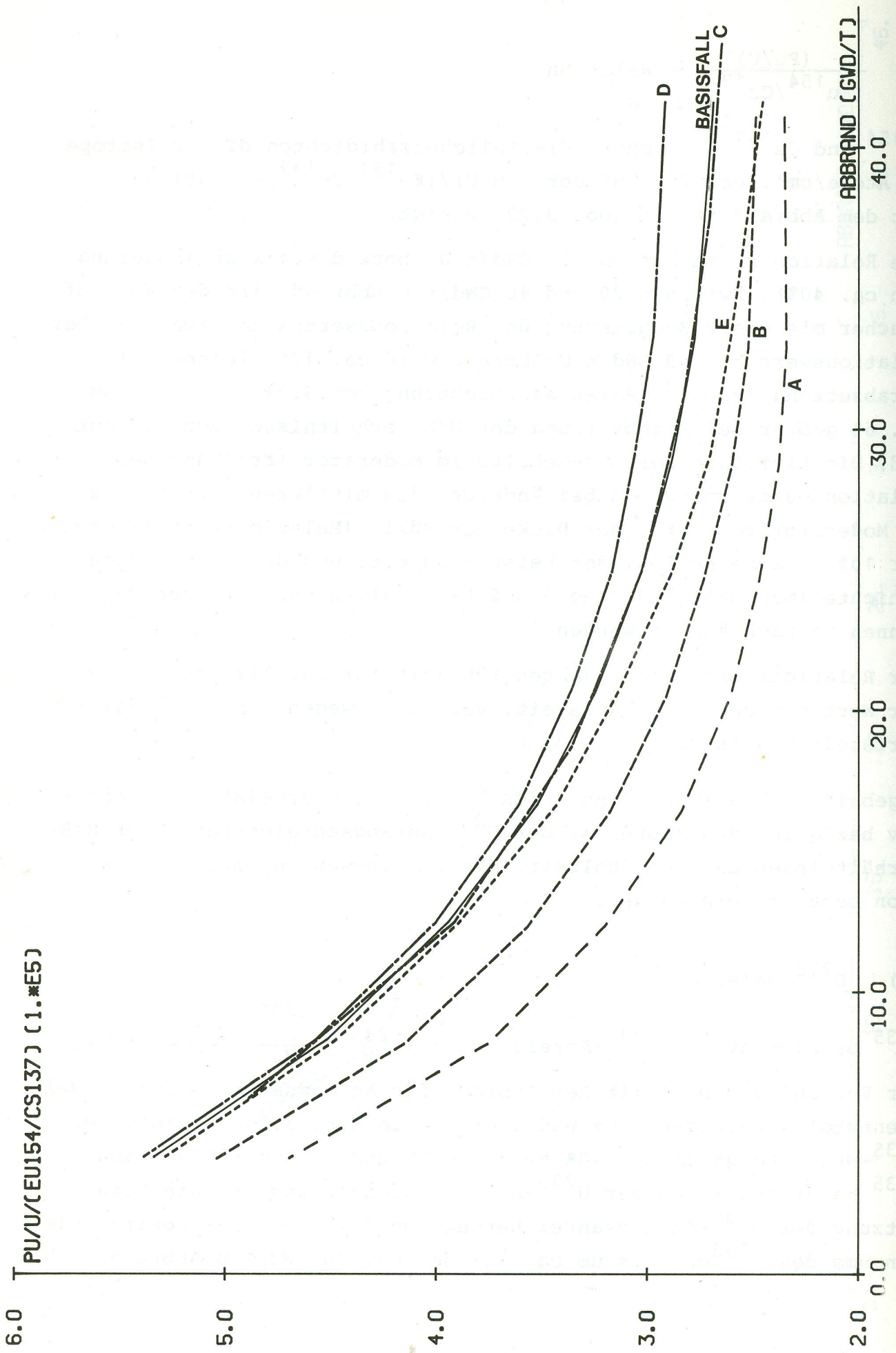


ABB. 3 - 22 SENSITIVITÄT DER  $\frac{PU}{U} / \left( \frac{EU154}{CS137} \right)$  - RELATION  
(FALLUNTERSCHIEDUNG S. ABB. 3-11)

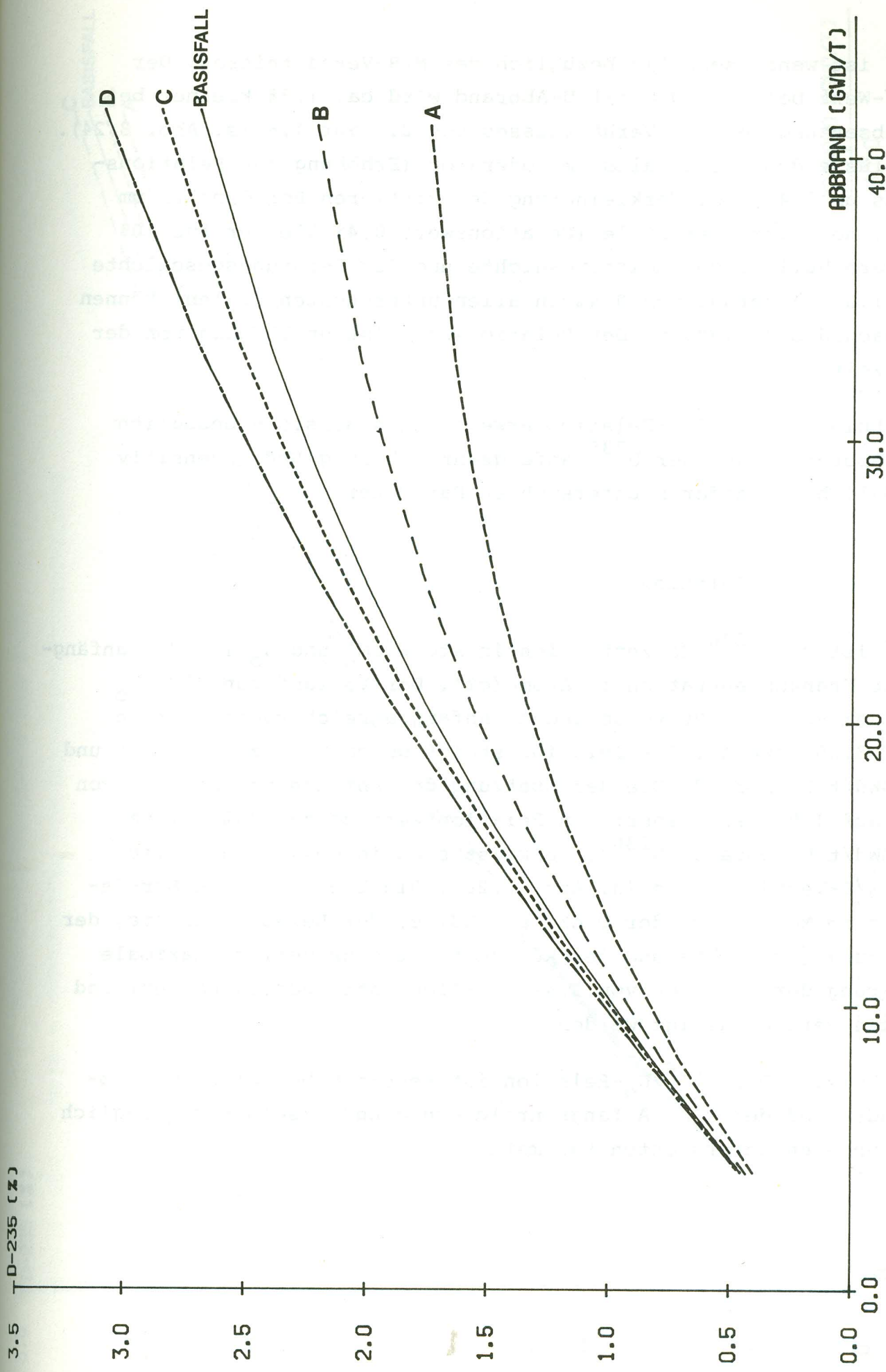


ABB. 3-23 : D<sup>235</sup> - ABHÄNGIGKEIT VON DER ANFANGSANREICHERUNG

(FALLUNTERSCHIEDUNG S. ABB. 3-33)

3.5 D-235 (Z)

ABBRAND (GVD/T)

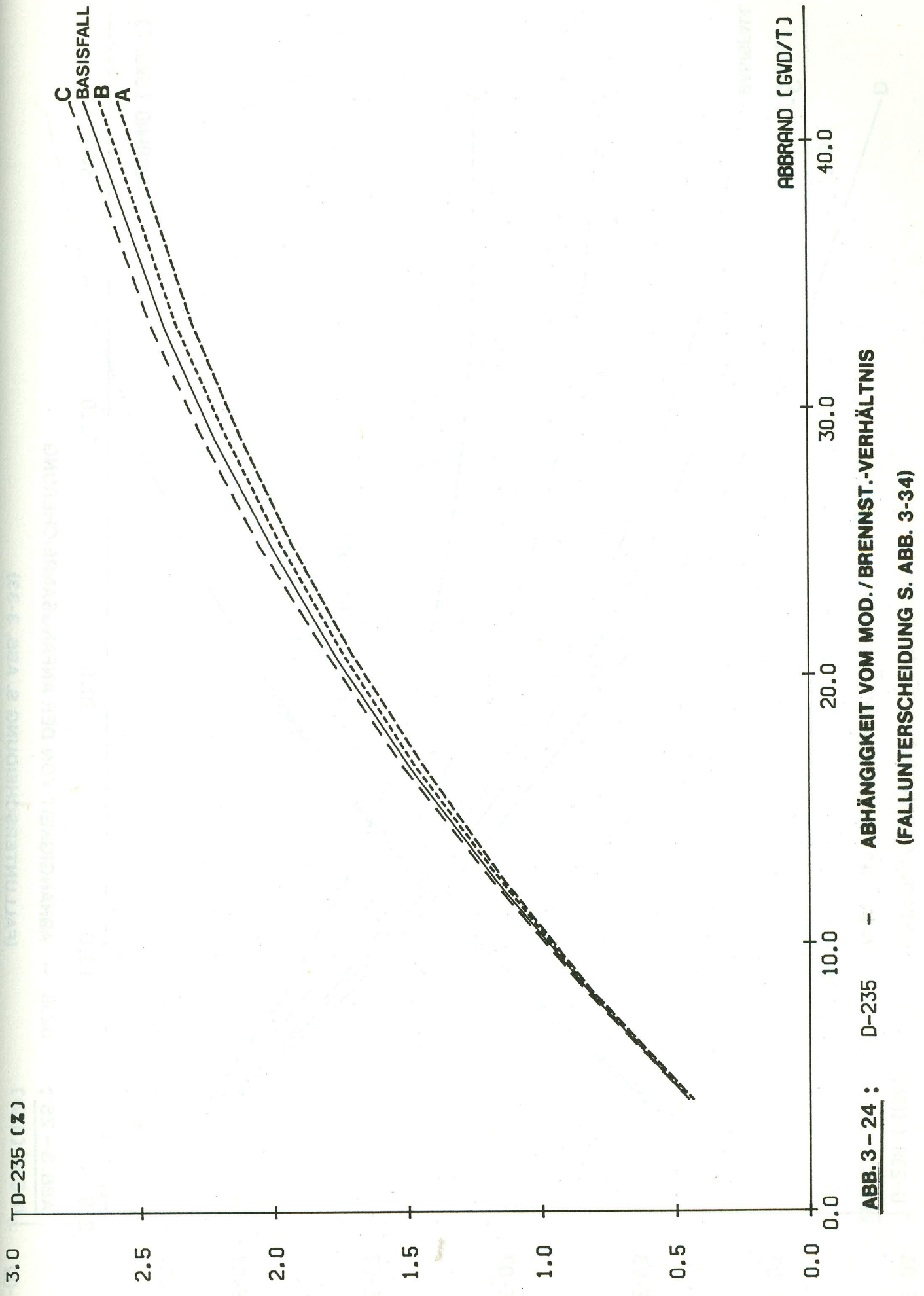
$D^{235}$  ist wenig sensitiv bezüglich des M/B-Verhältnisses: Der  $D^{235}$ -Wert bei ca. 30 GWd/t U-Abbrand wird ca. 1.3% kleiner bei Herabsetzung des M/B-Verhältnisses von 2.0 auf 1.8 (s. Abb. 3.24). Einflüsse des Bor-Gehalts im Moderator (Erhöhung des Relationswerts um 0.4%, bei Verkleinerung des mittleren Bor-Gehalts um 30%), der Dicke der Hülle (Relationswert 0.4% kleiner für 10% dickere Hülle), der Leistungsdichte und der Leistungsgeschichte (maximale Änderung von 0.4% in allen untersuchten Fällen) können vernachlässigt werden. Der Relationswert ist unabhängig von der Kühlzeit.

Ergebnis: Die  $D^{235}$ -Relation erweist sich sensitiv bezüglich des Abbrandes und der  $U^{235}$ -Anfangsanreicherung und insensitiv bezüglich der anderen untersuchten Parameter.

#### (9) $U^{236}/U_0$ -Relation

$U^{236}$  ist die  $U^{236}$ -Konzentration in Atome/cm<sup>3</sup> und  $U_0$  ist die anfängliche Urankonzentration in Atome/cm<sup>3</sup>. Der Verlauf von  $U^{236}/U_0$  mit dem Abbrand für verschiedene Anfangsanreicherungen ist in Abb. 3.25 gezeigt. Die Relation steigt um ca. 30% zwischen 20 und 30 GWd/t U-Abbrand. Die Herabsetzung der Anfangsanreicherung von 3.2 auf 1.9% verkleinert den Relationswert um ca. 40% bei ca. 30 GWd/t U-Abbrand.  $U^{236}/U_0$  erweist sich insensitiv bezüglich des M/B-Verhältnisses (s. Abb. 3.26). Die Einflüsse des Bor-Gehalts im Moderator, der Dicke der Hülle, der Leistungsdichte, der Leistungsgeschichte und der Kühlzeit ist sehr gering (maximale Änderung der Relation von 0.4% in allen untersuchten Fällen) und können vernachlässigt werden.

Ergebnis: Die  $U^{236}/U_0$ -Relation ist sensitiv bezüglich des Abbrandes und der  $U^{235}$ -Anfangsanreicherung und insensitiv bezüglich der anderen untersuchten Parameter.



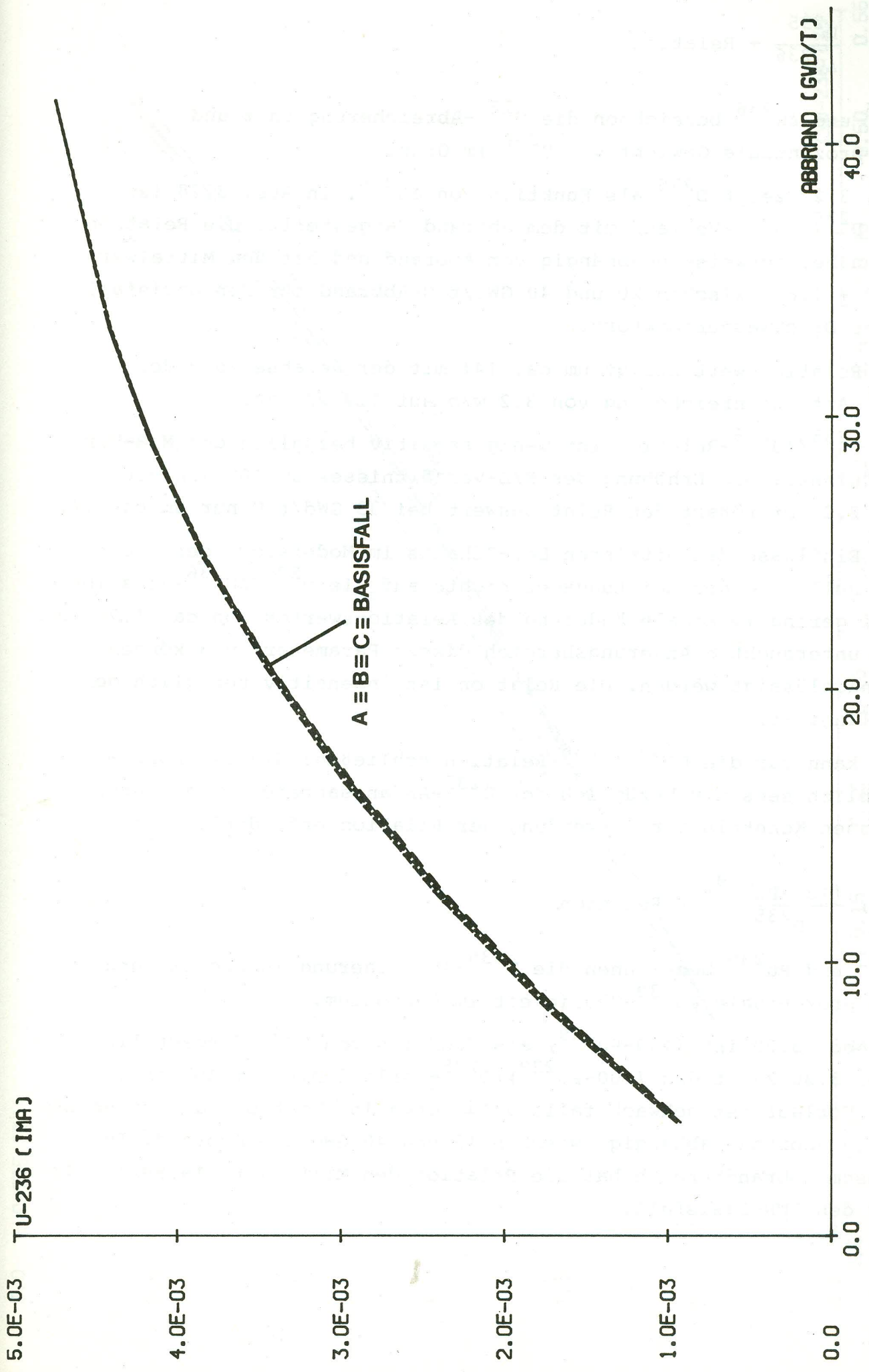
**ABB. 3-24 : D-235 - ABHÄNGIGKEIT VOM MOD./BRENNST.-VERHÄLTNIS**  
**(FALLUNTERSCHIEDUNG S. ABB. 3-34)**

D-235 (z)

ABBRAND (GVD/T)



ABB. 3-25 : U236 - ABHÄNGIGKEIT VON DER ANFANGSANREICHERUNG  
(FALLUNTERSCHIEDUNG S. ABB. 3-33)



**ABB. 3 - 26 : U-236 - ABHÄNGIGKEIT VOM MOD./BRENNST.-VERHÄLTNIS**

(FALLUNTERSCHIEDUNG S. ABB. 3-34)

$$(10) \frac{D^{235}}{\Delta U^{236}} - \text{Relation}$$

$D^{235}$  und  $\Delta U^{236}$  bezeichnen die  $U^{235}$ -Anreicherung in % und das prozentuale Gewicht von  $U^{236}$  im Uran.

Abb. 3.27 zeigt  $D^{235}$  als Funktion von  $\Delta U^{236}$ . In Abb. 3.28 ist der  $D^{235}/\Delta U^{236}$ -Verlauf mit dem Abbrand dargestellt. Die Relation ist näherungsweise unabhängig vom Abbrand und hat den Mittelwert  $4.83 \pm 1.8\%$  zwischen 20 und 40 GWd/t U-Abbrand für den Basisfall eines Druckwasserreaktors.

Der Relationswert steigt um ca. 14% mit der Herabsetzung der  $U^{235}$ -Anfangsanreicherung von 3.2 w/o auf 1.9 w/o an.

Die  $D^{235}/\Delta U^{236}$ -Relation ist wenig sensitiv bezüglich des M/B-Verhältnisses: Die Erhöhung des M/B-Verhältnisses um 10% von 2.0 auf 2.2 vergrößert den Relationswert bei 33 GWd/t U nur um ca. 1%.

Die Einflüsse des mittleren Bor-Gehalts im Moderator, der Dicke der Hülle und der Leistungsgeschichte auf die  $D^{235}/\Delta U^{236}$ -Relation sind gering (maximale Änderung des Relationswertes von ca. 1.7% in dem untersuchten Änderungsbereich dieser Parameter) und können vernachlässigt werden. Die Relation ist insensitiv bezüglich der Abklingzeit.

Man kann für die  $D^{235}/\Delta U^{236}$ -Relation schließen: Sie ist hauptsächlich sensitiv bezüglich der  $U^{235}$ -Anfangsanreicherung, deren genaues Kenntnis zur Verwendung der Relation erforderlich ist.

$$(11) \frac{(100 - \text{Pu}^{239})}{D^{235}} - \text{Relation}$$

$D^{235}$  und  $\text{Pu}^{239}$  bezeichnen die  $U^{235}$ -Anreicherung in Prozent und die prozentuale  $\text{Pu}^{239}$ -Häufigkeit im Plutonium.

In Abb. 3.29 ist  $(100 - \text{Pu}^{239})$  als Funktion von  $D^{235}$  dargestellt. Abb. 3.30 zeigt den  $(100 - \text{Pu}^{239})/D^{235}$ -Verlauf mit dem Abbrand. Der Verlauf ist schwach fallend bis etwa 15 GWd/t U und näherungsweise abbrandunabhängig zwischen 15 und 40 GWd/t U-Abbrand. In diesem Abbrandbereich hat die Relation den Mittelwert  $19.89 \pm 1.4\%$  für den DWR-Basisfall.

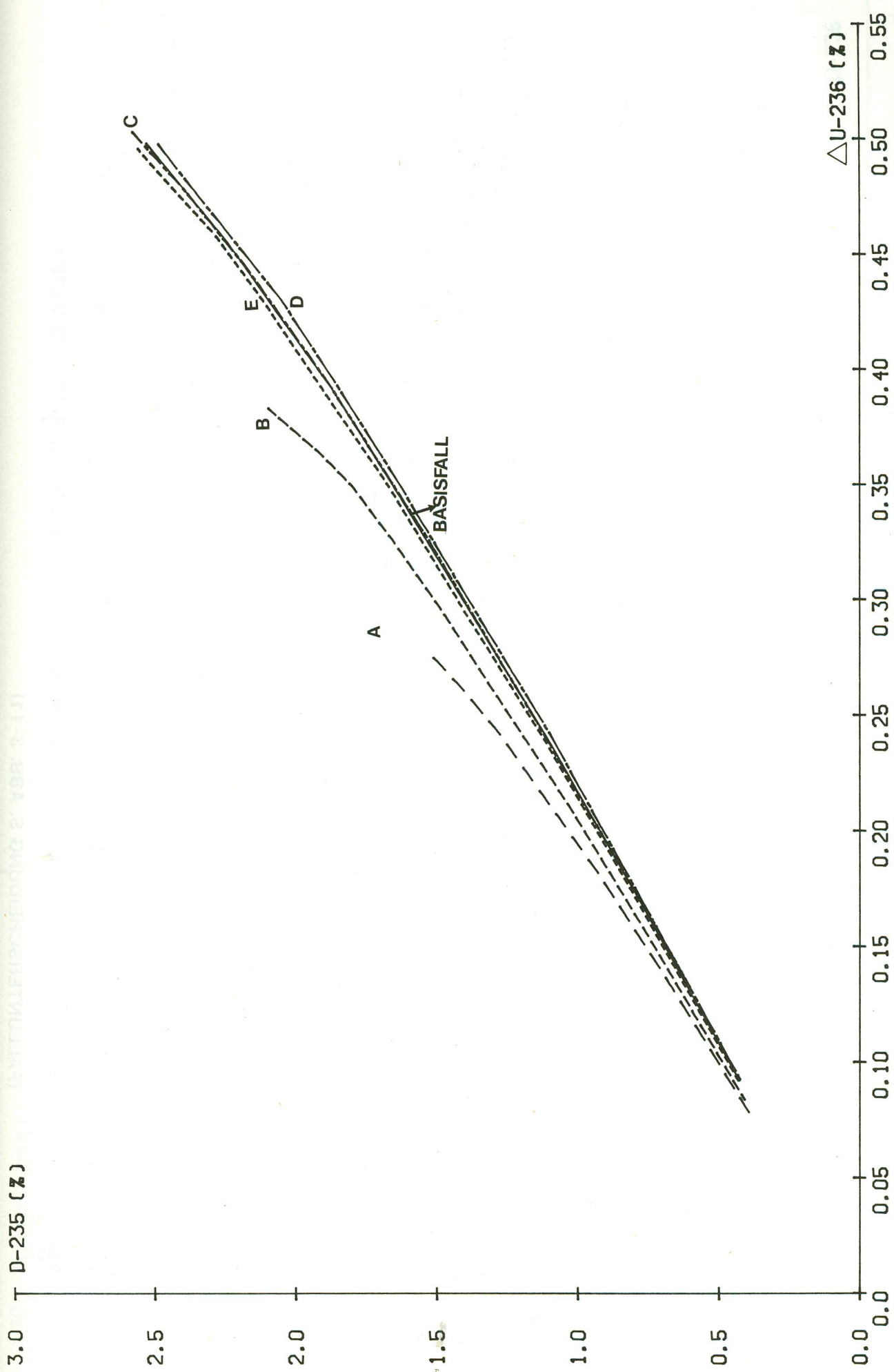


ABB. 3 - 27: D-235 ALS FUNKTION VON U-236 SENSITIVITÄT BZGL. Brennelementparameter (Fallunterscheidung S. Abb. 3-11)

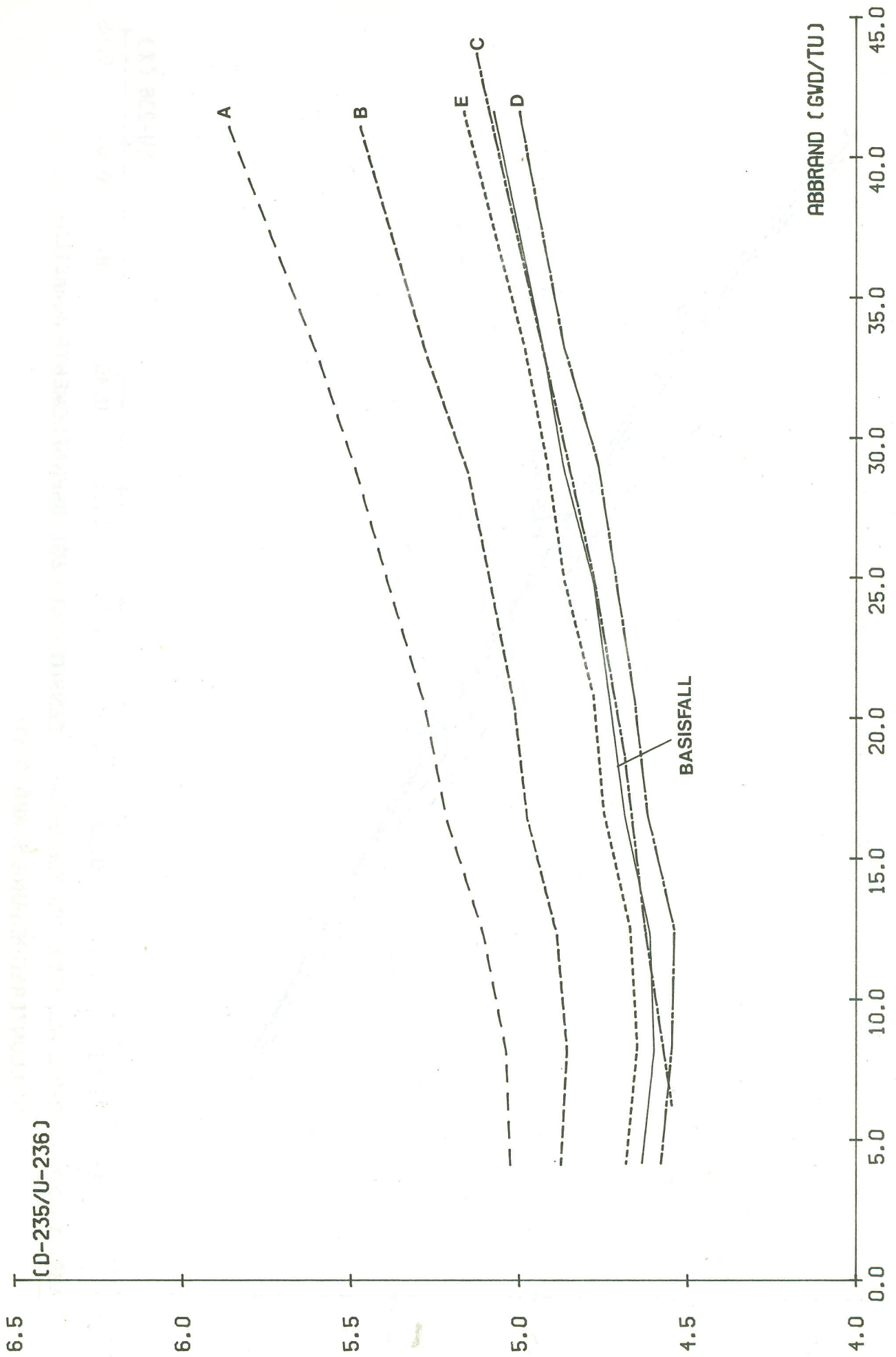


ABB. 3 - 28 : D-235/U-236 — RELATION — SENSITIVITÄT BZGL. BRENNELEMENTPARAMETER

(FALLUNTERSCHIEDUNG S. ABB. 3-11)

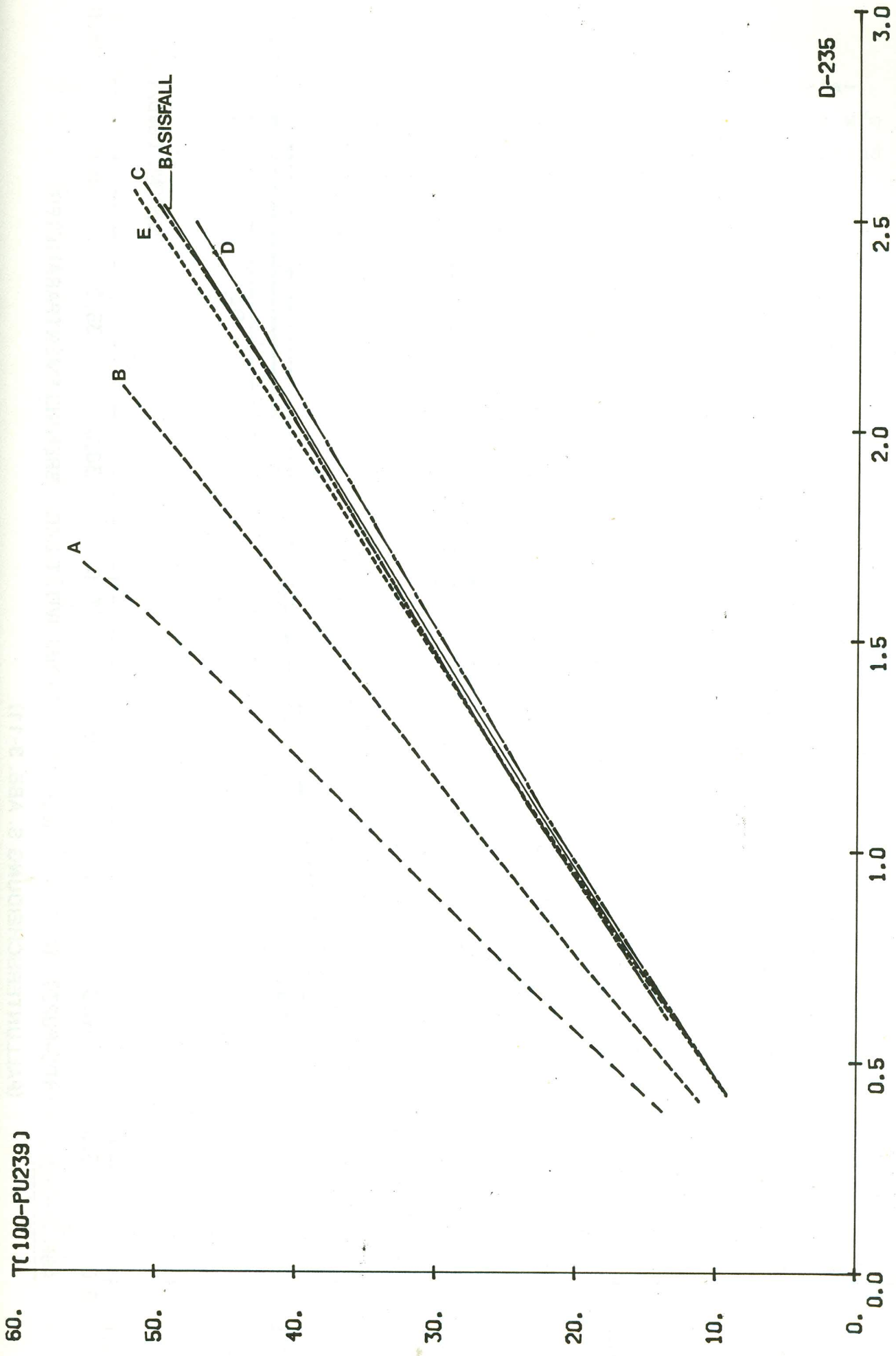
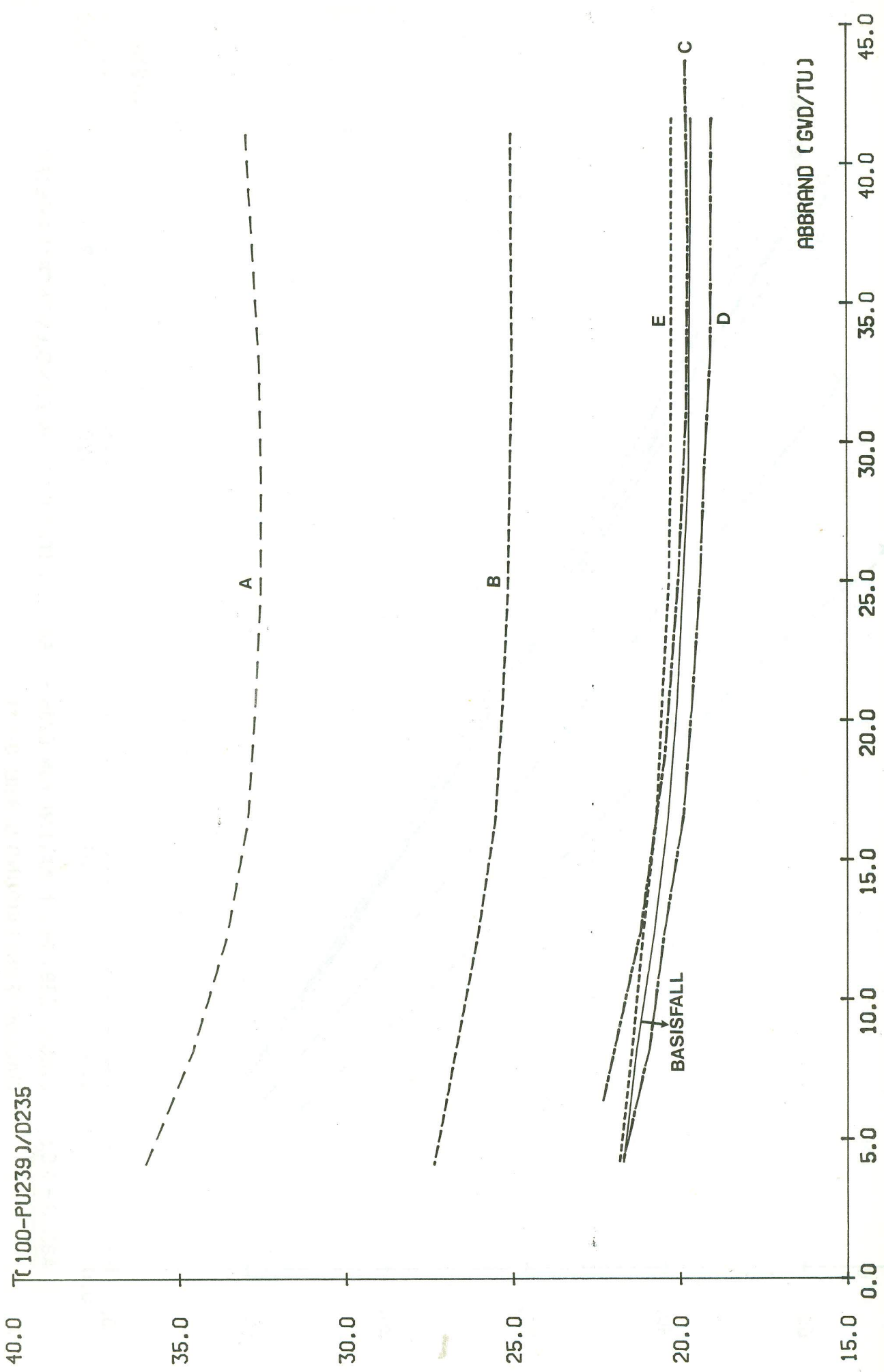


ABB. 3 - 29: (100-PU239) ALS FUNKTION VON D235 - SENSITIVITÄT BZGL. BRENNNELEMENTPARAMETER  
(FALLUNTERSCHIEDUNG S. ABB. 3-11)



ABBRAND (GVD/TU)

ABB. 3 - 30 : (100-PU239)/D235 — RELATION — SENSITIVITÄT BZGL. BRENNELEMENTPARAMETER (FALLUNTERSCHIEDUNG S. ABB. 3-11)

(100-PU239)/D235

Die  $U^{235}$ -Anfangsanreicherung hat großen Einfluß auf die Relation: die Herabsetzung der  $U^{235}$ -Anfangsanreicherung von 3.2 w/o auf 1.9 w/o vergrößert den Relationswert bei 33 GWd/t U-Abbrand um ca. 65%.

$(100 - Pu^{239}) / D^{235}$  ist wenig sensitiv bezüglich des M/B-Verhältnisses: Bei Verkleinerung des M/B-Verhältnisses um 10% von 2.0 auf 1.8 wird der Relationswert bei 33 GWd/t U ca. 3% kleiner.

Die mittlere Bor-Konzentration im Moderator, die Dicke der Hülle und die Leistungsgeschichte haben geringen Einfluß auf die Relation (maximale Änderung des Relationswertes von 0.9% in den betrachteten Änderungsbereichen dieser Parameter) und können zur Bestimmung von  $(100 - Pu^{239}) / D^{235}$  vernachlässigt werden.

Der Relationswert nach 7 Jahren Abklingzeit ist ca. 6% kleiner als der Wert bei der Entladungszeit.

Aus den Ergebnissen für die  $(100 - Pu^{239}) / D^{235}$ -Relation folgt: Die Relation ist hauptsächlich sensitiv bezüglich der  $U^{235}$ -Anfangsanreicherung. Zur Verwendung der  $(100 - Pu^{239}) / D^{235}$ -Relation ist die genaue Kenntnis der  $U^{235}$ -Anfangsanreicherung erforderlich.

(12)  $(Pu^{240} / Pu^{239}) / D^{235}$ -Relation

$Pu^{240}$  und  $Pu^{239}$  bezeichnen die Teilchenzahldichten dieser Isotope in Atome/cm<sup>3</sup>.  $D^{235}$  bezeichnet die  $U^{235}$ -Abreicherung in Prozent. In Abb. 3.31 ist  $(Pu^{240} / Pu^{239})$  als Funktion von  $D^{235}$  dargestellt. Abb. 3.32 zeigt den  $(Pu^{240} / Pu^{239}) / D^{235}$ -Verlauf mit dem Abbrand. Der Verlauf ist fallend bis etwa 20 GWd/t U Abbrand (Verkleinerung des Relationswertes um ca. 11%) mit nachfolgendem schwachen Anstieg bis über 40 GWd/t U Abbrand. Zwischen 20 und 40 GWd/t U Abbrand hat die Relation einen Mittelwert von  $0.1836 \pm 1.5\%$  für den DWR-Basisfall.

Die  $(Pu^{240} / Pu^{239}) / D^{235}$ -Relation hängt sehr stark von der  $U^{235}$ -Anfangsanreicherung ab: Die Herabsetzung der  $U^{235}$ -Anfangsanreicherung von 3.2 w/o auf 1.9 w/o bewirkt eine Vergrößerung des Relationswertes bei 33 GWd/t U um ca. 80%. Das M/B-Verhältnis be-

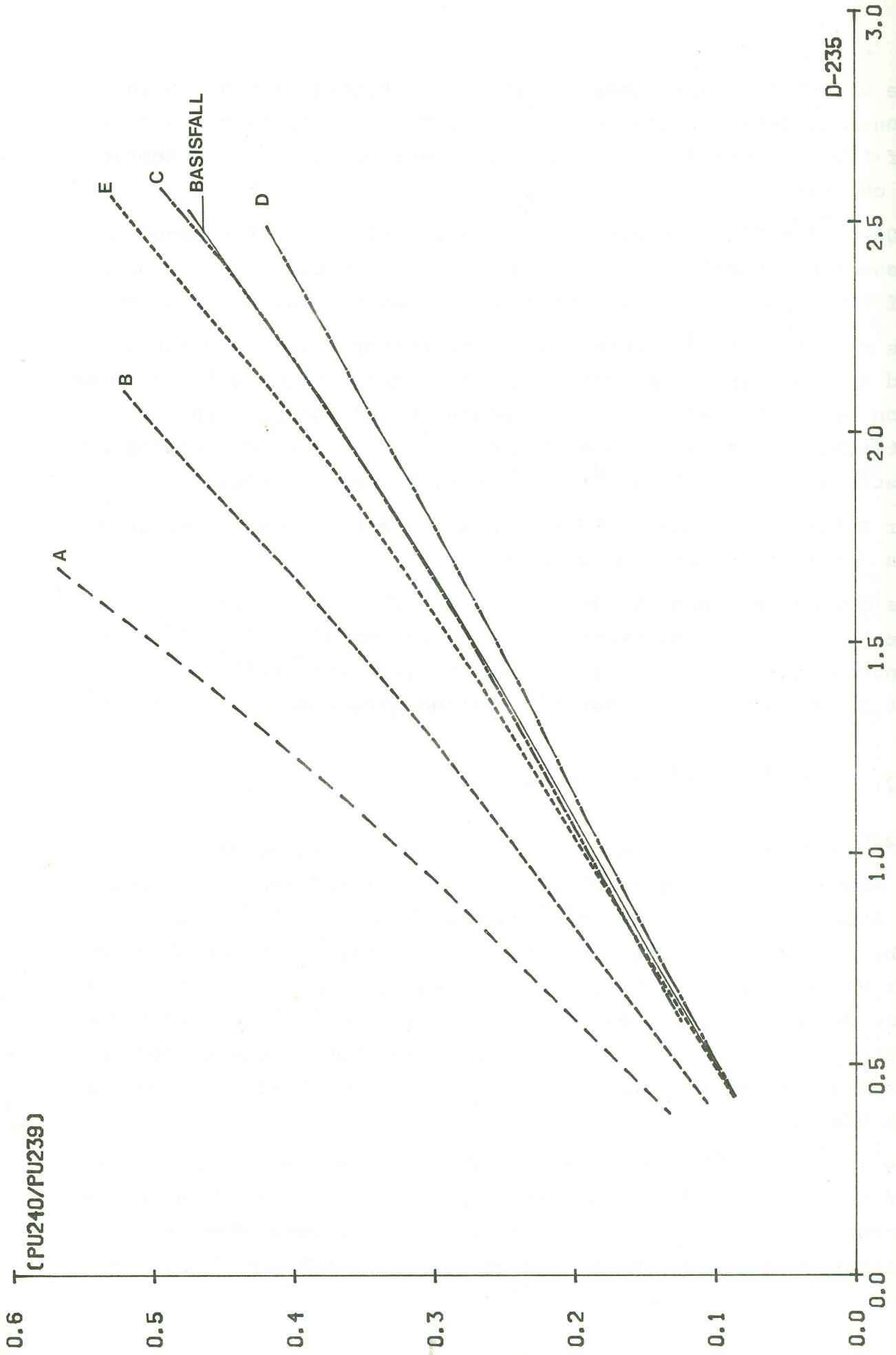


ABB. 3 - 31 : (PU240/PU239) ALS FUNKTION VON D23; SENSITIVITÄT BZGL. BRENNELEMENTPARAMETER (FALLUNTERSCHIEDUNG S. ABB. 3-11)

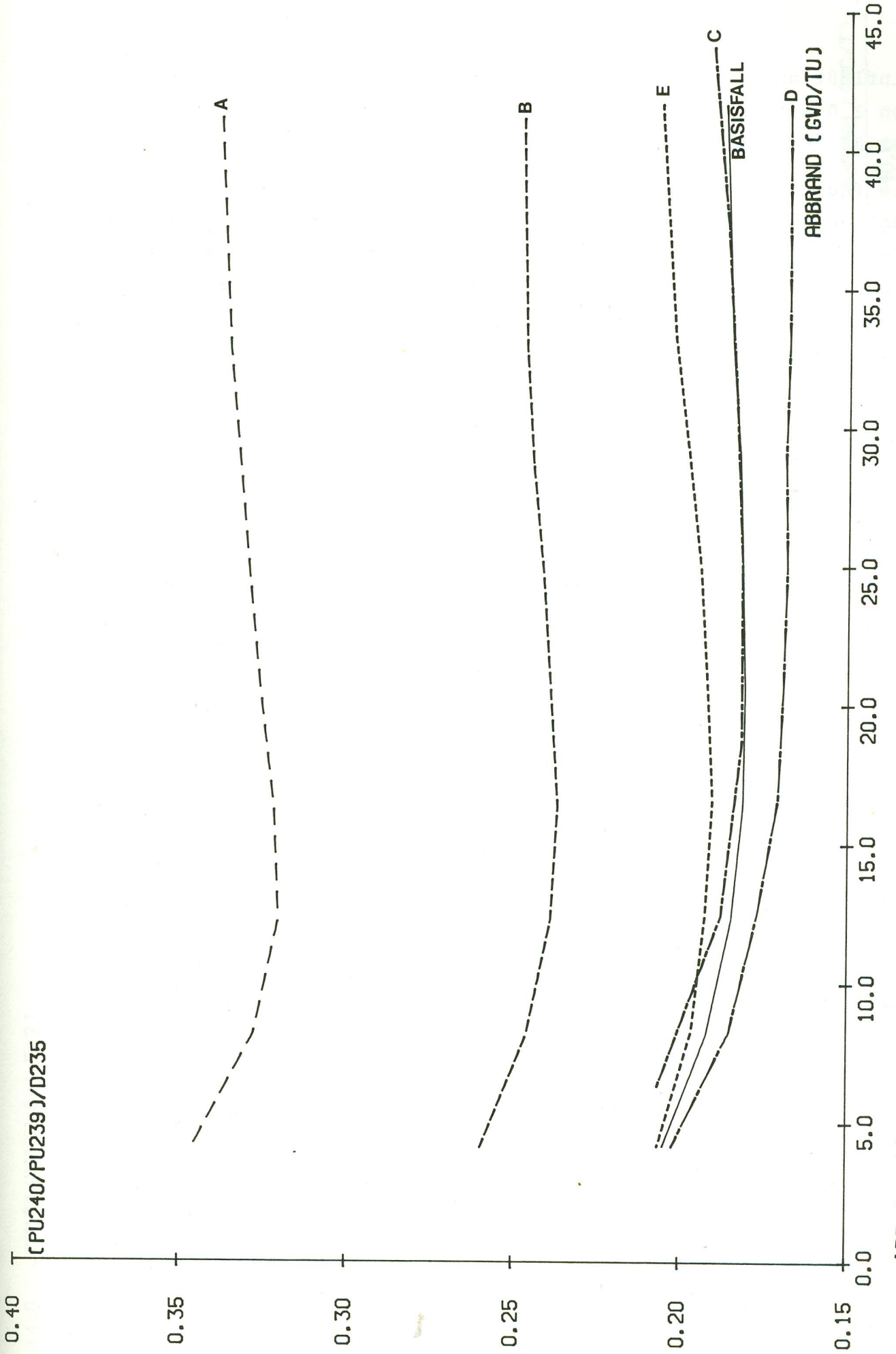


ABB. 3 - 32 : (PU240/PU239)/D235 - RELATION SENSITIVITÄT BZGL. BRENNELEMENTPARAMETER  
(FALLUNTERSCHIEDUNG S. ABB. 3-11)

einflußt auch die Relation: die Erhöhung des M/B-Verhältnisses von 2.0 auf 2.2 bewirkt eine Vergrößerung des Relationswertes bei 33 GWd/t U Abbrand um ca. 9%.

Die  $(\text{Pu}^{240}/\text{Pu}^{239})/D^{235}$ -Relation erweist sich wenig sensitiv bezüglich der mittleren Bor-Konzentration im Moderator (Verkleinerung des Relationswertes um 2% bei Erhöhung der mittleren Bor-Konzentration um 30%), der Dicke der Hülle (Relationswert ca. 2% kleiner für 10% dickere Hülle) und der Leistungsgeschichte (maximale Änderung des Relationswertes von 0.6% in den untersuchten Fällen).

Der Einfluß der Kühlzeit auf die Relation ist ebenfalls gering: nach 7 Jahren Kühlzeit ist der Relationswert ca. 2% kleiner als der Wert bei der Entladungszeit.

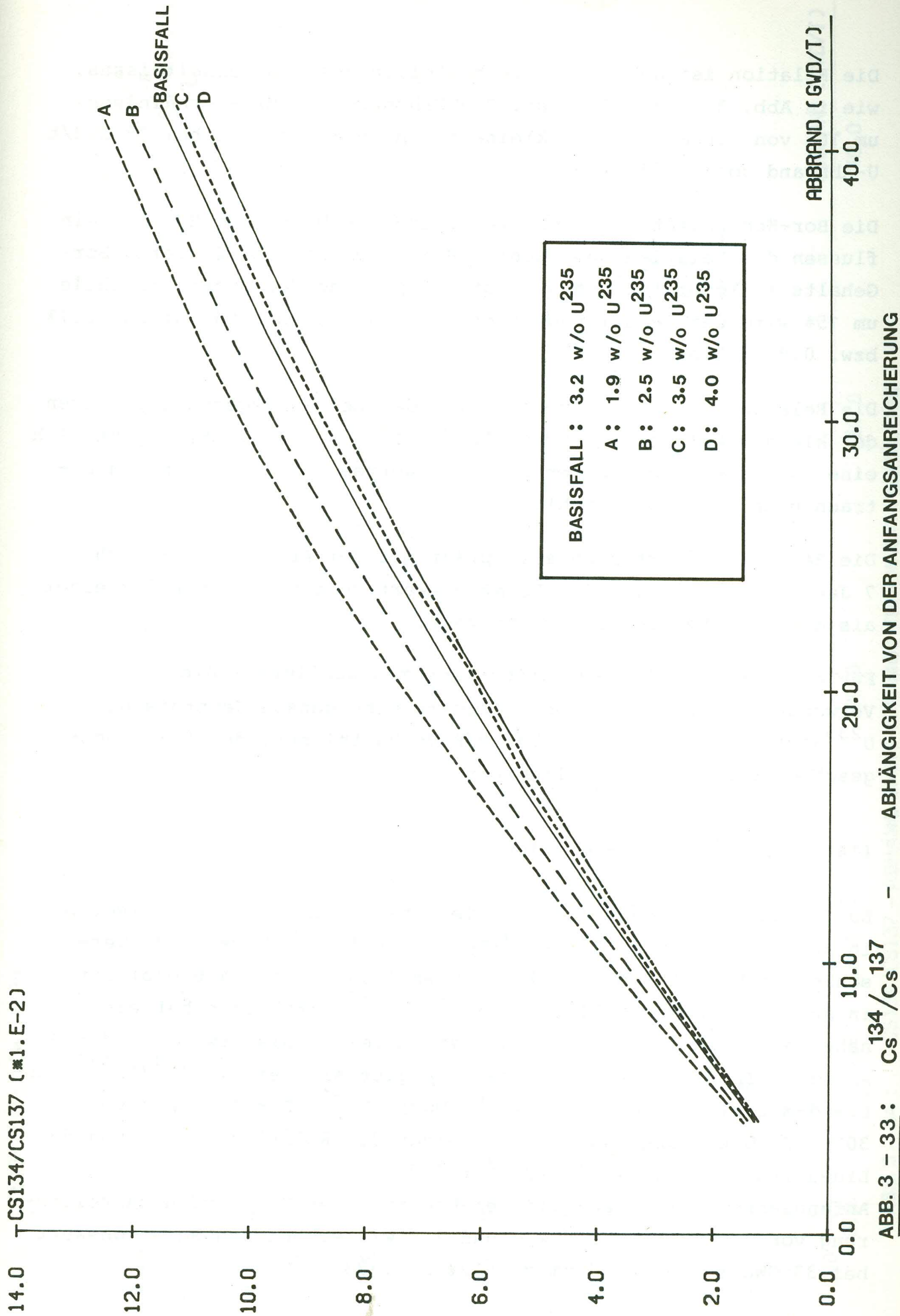
Ergebnis: Die Relation ist hauptsächlich sensitiv bezüglich der  $U^{235}$ -Anfangsanreicherung und des M/B-Verhältnisses. Die Verwendung der  $(\text{Pu}^{240}/\text{Pu}^{239})/D^{235}$ -Relation erfordert daher die genaue Kenntnis dieser Parameter.

### (13) $(\text{Cs}^{134}/\text{Cs}^{137})$ -Relation

$\text{Cs}^{134}$  und  $\text{Cs}^{137}$  bezeichnen die Teilchenzahldichten dieser Isotope in Atome/cm<sup>3</sup>. In Abb. 3.33 ist  $\text{Cs}^{134}/\text{Cs}^{137}$  als Funktion von Abbrand für verschiedene  $U^{235}$ -Anfangsanreicherungen dargestellt.

Das  $\text{Cs}^{134}/\text{Cs}^{137}$ -Verhältnis steigt mit dem Abbrand fast linear an. Zwischen 20 und 40 GWd/t U-Abbrand ergibt sich ein Mittelwert der Relation von  $3.0 \times 10^{-6}$  1/MWd/t U  $\pm$  4.8% für den Basisfall des Druckwasserreaktors.

Die  $(\text{Cs}^{134}/\text{Cs}^{137})$ -Relation ändert sich mit der  $U^{235}$ -Anfangsanreicherung: Die Herabsetzung der Anfangsanreicherung von 3.2 w/o auf 1.9 w/o  $U^{235}$  bewirkt eine Erhöhung des Relationswertes bei 33 GWd/t U-Abbrand um ca. 13%.



Die Relation ist auch sensitiv bezüglich des M/B-Verhältnisses, wie in Abb. 3.34 gezeigt ist: Die Erhöhung des M/B-Verhältnisses um 10% von 2.0 auf 2.2 verkleinert den Relationswert bei 33 GWd/t U-Abbrand um ca. 4%.

Die Bor-Konzentration im Moderator und die Dicke der Hülle beeinflussen die Relation sehr wenig: Bei Erhöhung des mittleren Bor-Gehalts im Moderator von 600 auf 800 ppm und der Dicke der Hülle um 15% wird der Relationswert bei 33 GWd/t U Abbrand nur ca. 0.7% bzw. 0.9% größer.

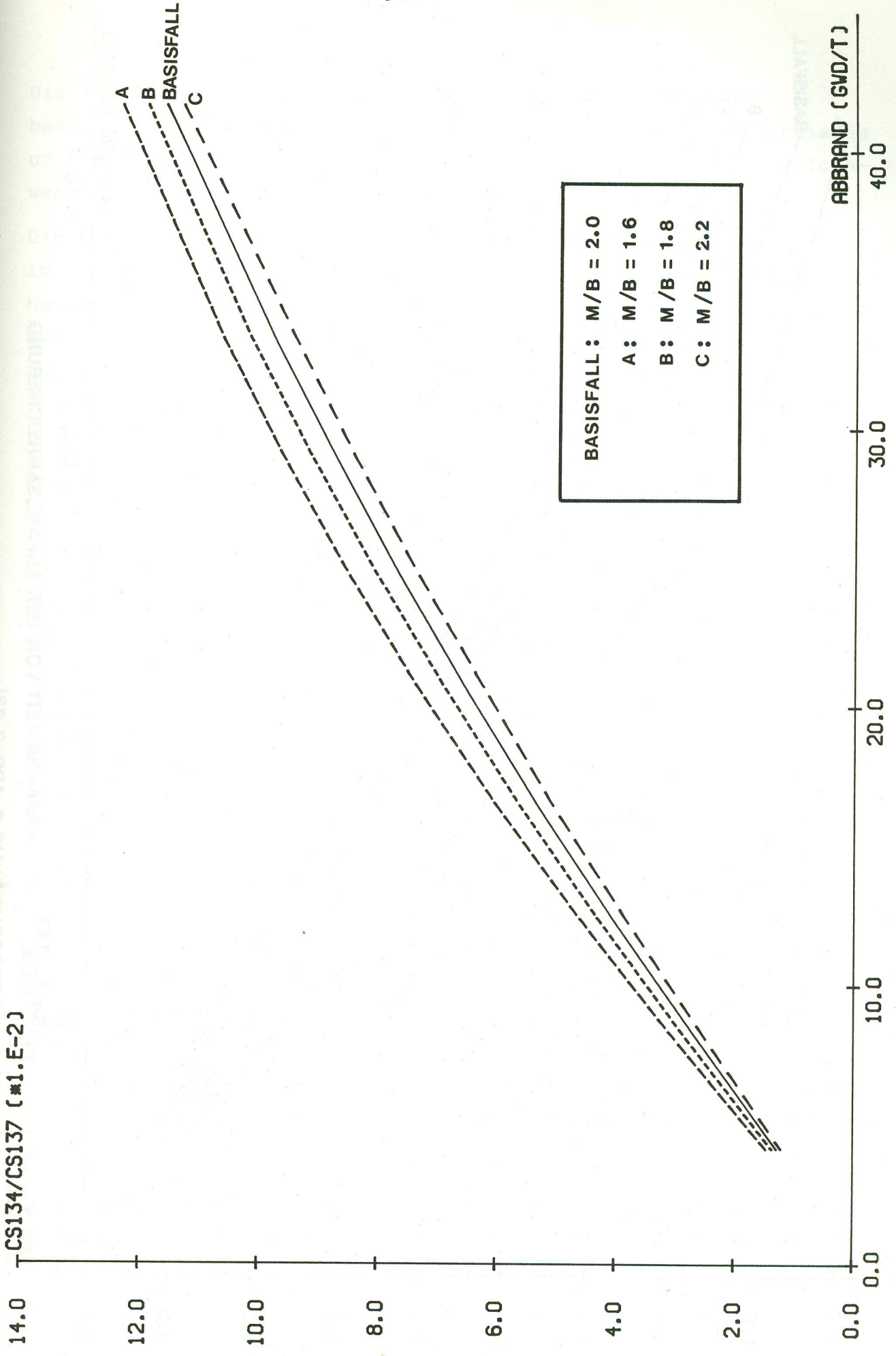
Die Relation ist sensitiv bezüglich der Leistungsgeschichte wegen der kleinen Halbwertszeit von  $\text{Cs}^{134}$  ( $T_{1/2} = 2.1 \text{ J}$ ): Es ergibt sich eine maximale Änderung des Relationswertes von ca. 4% in den betrachteten Leistungsgeschichten.

Die Relation ändert sich ausgeprägt mit der Abklingzeit: nach 7 Jahren Kühlzeit ist der Relationswert um einen Faktor 9 kleiner als der Wert bei der Entladungszeit.

Für die  $(\text{Cs}^{134}/\text{Cs}^{137})$ -Relation kann man schließen: Die Verwendung dieser Relation erfordert eine genaue Kenntnis der  $\text{U}^{235}$ -Anfangsanreicherung, des M/B-Verhältnisses, der Leistungsgeschichte sowie der Abklingzeit.

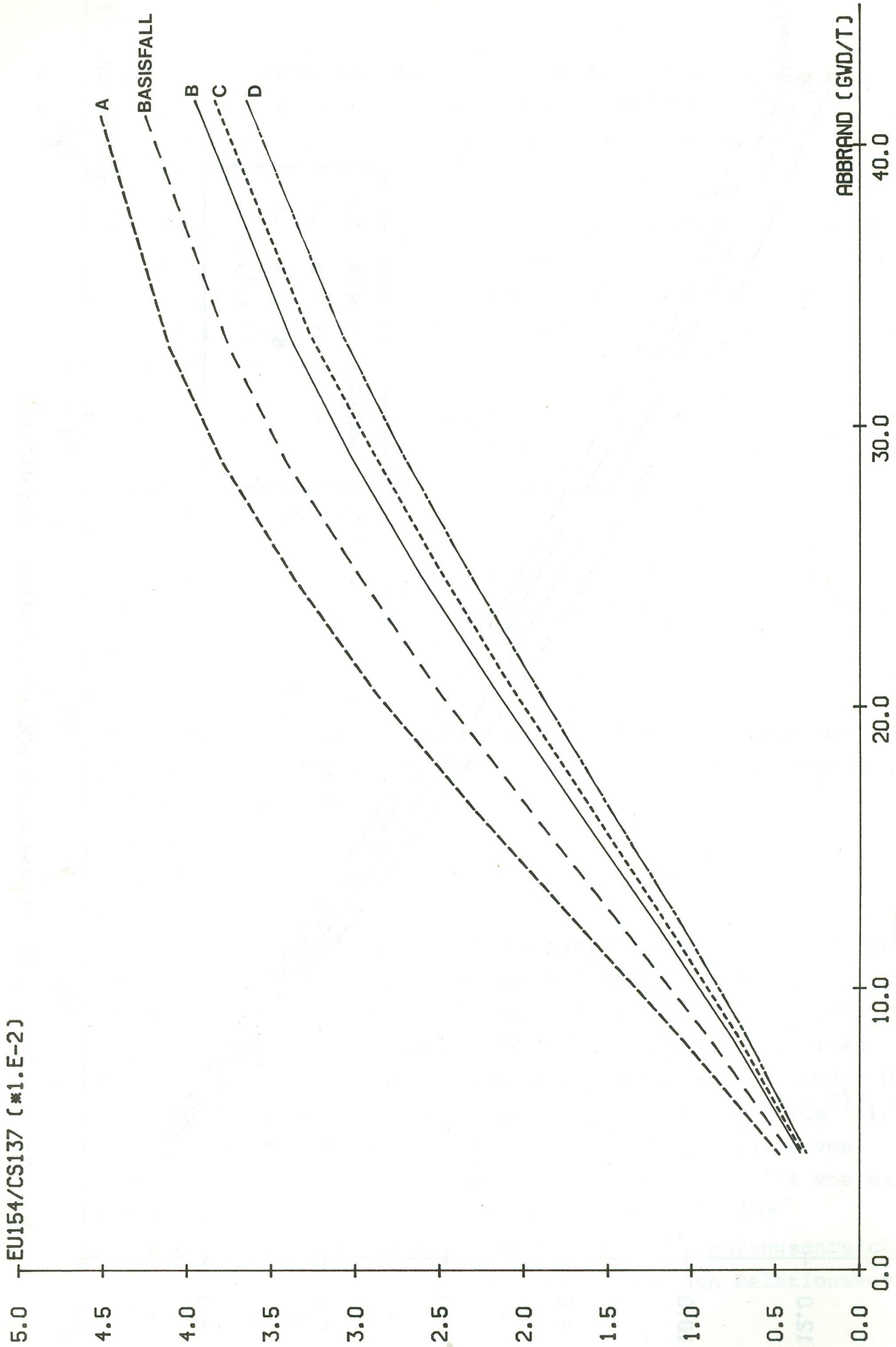
#### (14) $(\text{Eu}^{154}/\text{Cs}^{137})$ -Relation

$\text{Eu}^{154}$  und  $\text{Cs}^{137}$  bezeichnen die Teilchenzahldichte dieser Isotope in Atome/cm<sup>3</sup>. Der  $\text{Eu}^{154}/\text{Cs}^{137}$ -Verlauf mit dem Abbrand für verschiedene  $\text{U}^{235}$ -Anfangsanreicherungen (1.9 w/o bis 4.0 w/o) ist in Abb. 3.35 dargestellt. Das  $\text{Eu}^{154}/\text{Cs}^{137}$ -Verhältnis hat einen näherungsweise linearen Verlauf von unter 10 bis etwa 30 GWd/t U Abbrand. In diesem Abbrandbereich ergibt sich ein  $(\text{Eu}^{154}/\text{Cs}^{137})/\text{Abbrand-Mittelwert}$  von  $1.030 \times 10^{-6} (\text{MWD}) \text{t U}^{-1}$ . Für Abbrände von 30 GWd/t U bis über 40 GWd/t U weicht die Relation ca. 7% von der Linearität ab. Die  $(\text{Eu}^{154}/\text{Cs}^{137})$ -Relation hängt von der Anfangsanreicherung ab: Die Herabsetzung der  $\text{U}^{235}$ -Anfangsanreicherung von 3.2 w/o auf 2.5 w/o und 1.9 w/o erhöht den Relationswert bei 33 GWd/t U-Abbrand um ca. 12% bzw. 23%.



CS134/CS137 (#1.E-2)

ABB. 3 - 34 : CS134/CS137 - ABHÄNGIGKEIT VOM MOD./BRENNST.-VERHÄLTNIS



EU154/Cs137 (#1.E-2)

ABBAND (GWD/T)

ABB. 3 - 35 :  $\text{Eu}^{154} / \text{Cs}^{137}$  - ABHÄNGIGKEIT VON DER ANFANGSANREICHERUNG  
(FALLUNTERSCHIEDUNG S. ABB. 3-33)

Die  $(\text{Eu}^{154}/\text{Cs}^{137})$ -Relation erweist sich wenig sensitiv bezüglich des M/B-Verhältnis: Die Erhöhung des M/B-Verhältnisses um 10% von 2.0 auf 2.2 bewirkt eine Verkleinerung des Relationswertes bei 33 GWd/t U Abbrand um nur 1.3% (s. Abb. 3.36).

Die Relation erweist sich insensitiv bezüglich des Bor-Behalts im Moderator (Änderung des Relationswertes von nur 0.6% bei Erhöhung des mittleren Bor-Gehalts von 0 auf 600 ppm), der Dicke der Hülle (keine Änderung des Relationswertes im betrachteten Änderungsbereich dieses Parameters) und der Leistungsgeschichte (maximale Änderung des Relationswertes von 0.3% in den betrachteten Fällen).

Der Relationswert nach einer Abklingzeit von 7 Jahren ist ca. 13% kleiner als der Wert bei der Entladungszeit.

Aus den Ergebnissen für die  $(\text{Eu}^{154}/\text{Cs}^{137})$ -Relation kann man schließen: Die Relation ist vor allem sensitiv bezüglich der  $\text{U}^{235}$ -Anfangsanreicherung und der Abklingzeit, die zur Verwendung dieser Relation bekannt sein müssen.

#### (15) $(\text{Xe}^{132}/\text{Xe}^{131})$ -Relation

$\text{Xe}^{132}$  und  $\text{Xe}^{131}$  bezeichnen die Teilchenzahldichten dieser Isotope in Atome/cm<sup>3</sup>. Abb. 3.37 zeigt den Verlauf vom  $\text{Xe}^{132}/\text{Xe}^{131}$ -Verhältnis mit dem Abbrand für verschiedene  $\text{U}^{235}$ -Anfangsanreicherungen: Das  $\text{Xe}^{132}/\text{Xe}^{131}$ -Verhältnis hat einen parabolischen Verlauf mit Abbränden zwischen 10 bis ca. 30 GWd/t U-Abbrand mit nachfolgender linearen Steigung bis 40 GWd/t U Abbrand (+3% Abweichung von der Linearität zwischen 30 und 40 GWd/t U-Abbrand). Die  $(\text{Xe}^{132}/\text{Xe}^{131})$ -Relation hängt sehr schwach von der  $\text{U}^{235}$ -Anfangsanreicherung ab: die Herabsetzung der  $\text{U}^{235}$ -Anfangsanreicherung von 3.2 w/o auf 1.9 w/o erhöht den Relationswert nur um ca. 3%.

Die Relation ist ebenfalls sehr wenig sensitiv bezüglich des M/B-Verhältnisses: bei Erhöhung des M/B-Verhältnisses um 10% von 2.0 auf 2.2 (s. Abb. 3.38) wird der Relationswert bei 33 GWd/t U ca. 2.5% kleiner.

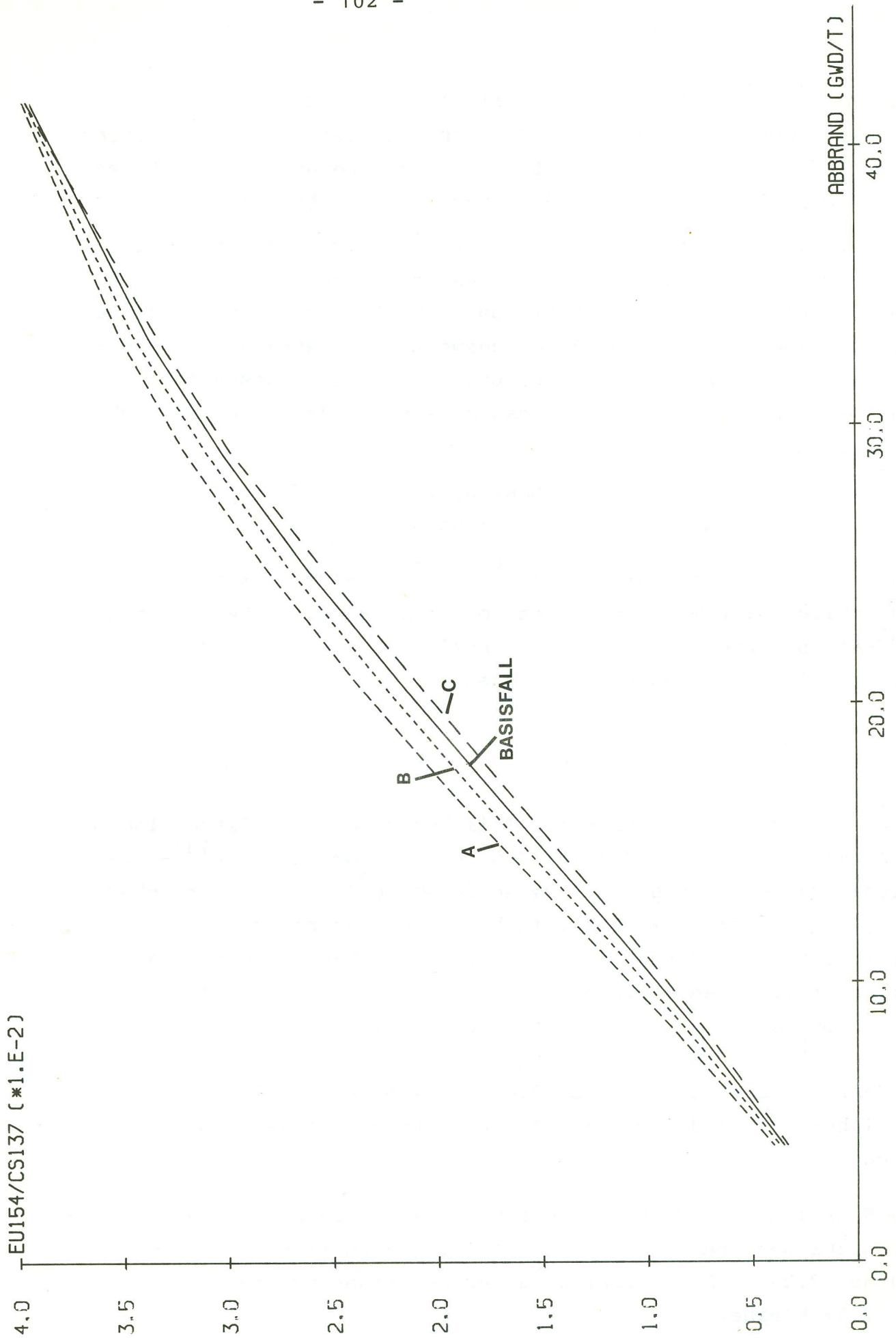
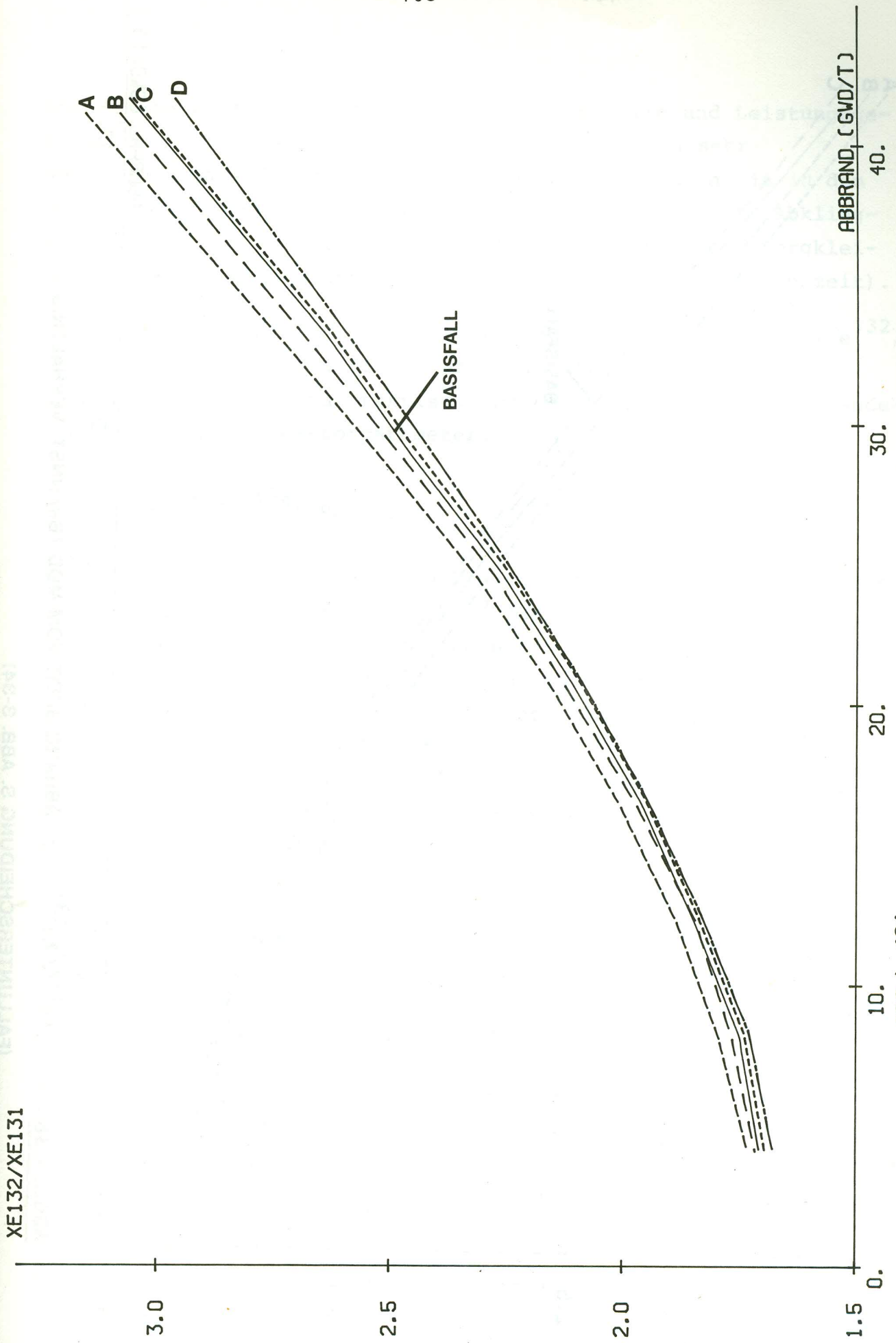


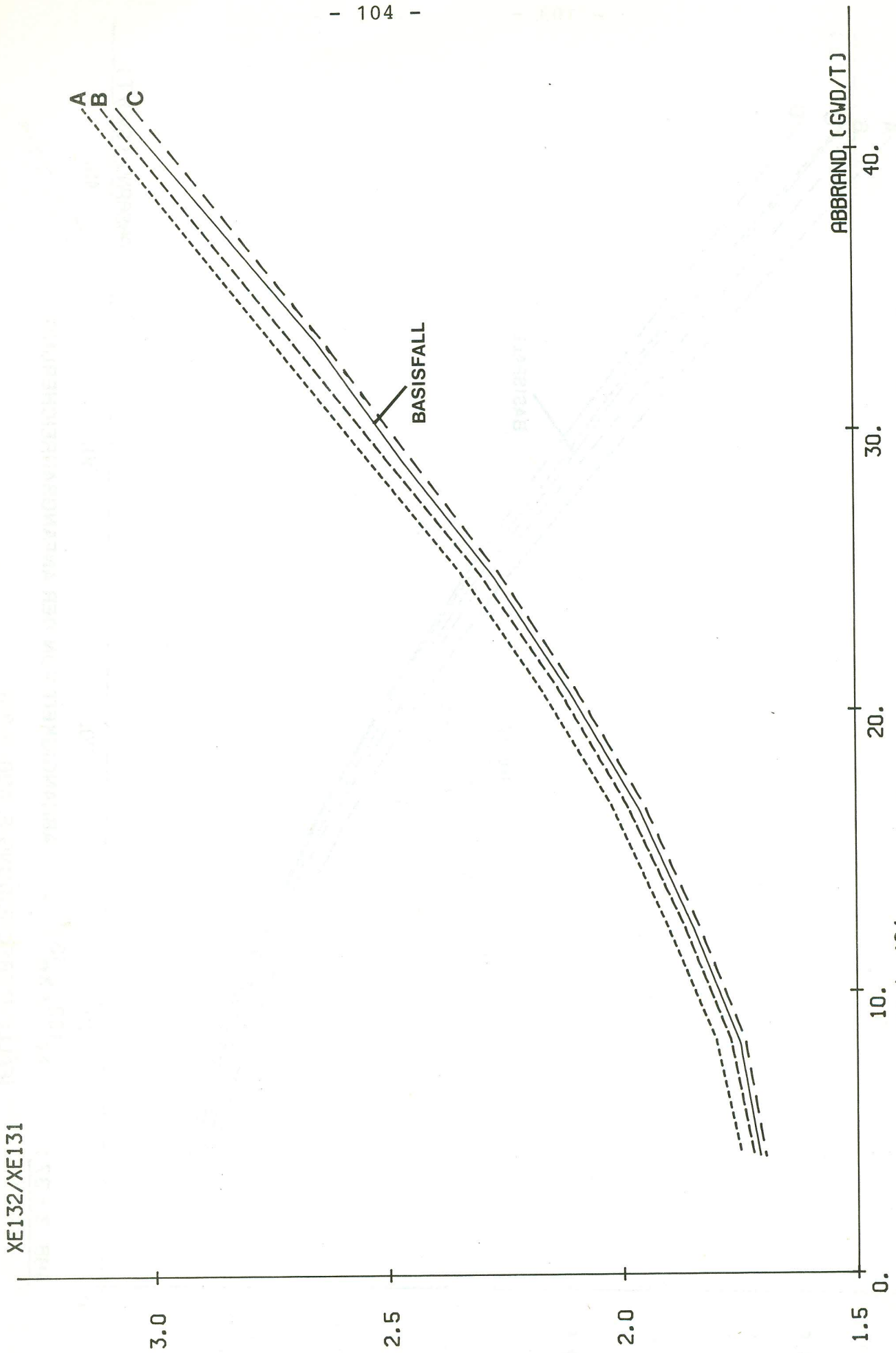
ABB. 3 - 36 : EUI54/CS137 ABHÄNGIGKEIT VOM MOD./BRENNST.-VERHÄLTNIS  
(FALLUNTERSCHIEDUNG S. ABB. 3-34)



Xe132/Xe131

ABBRAND (GWD/T)

ABB. 3 - 37:  $Xe^{132}/Xe^{131}$  - ABHÄNGIGKEIT VON DER ANFANGSANREICHERUNG  
(FALLUNTERSCHIEDUNG S. ABB. 3-33)



$Xe^{132}/Xe^{131}$

ABBRAND (GWD/T)

40.

30.

20.

10.

0.

BASISFALL

ABB. 3 - 38:  $Xe^{132}/Xe^{131}$  - | ABHÄNGIGKEIT VOM MOD./BRENNST.-VERHÄLTNIS

(FALLUNTERSCHIEDUNG S. ABB. 3-34)

Bor-Konzentration im Moderator, Dicke der Hülle und Leistungsgeschichte beeinflussen die  $(\text{Xe}^{132}/\text{Xe}^{131})$ -Relation sehr wenig (maximale Änderung des Relationswertes von ca. 1% in den betrachteten Änderungsbereichen dieser Parameter). Die Abklingzeit hat ebenfalls geringen Einfluß auf die Relation (Vergkleinerung des Relationswertes um ca. 2% nach 7 Jahren Abklingzeit).

Aus den Ergebnissen der Sensitivitätsuntersuchung für die  $(\text{Xe}^{132}/\text{Xe}^{131})$ -Relation folgt: Die Relation ist sensitiv bezüglich des Abbrandes und praktisch insensitiv bezüglich aller anderen untersuchten Reaktorparameter.

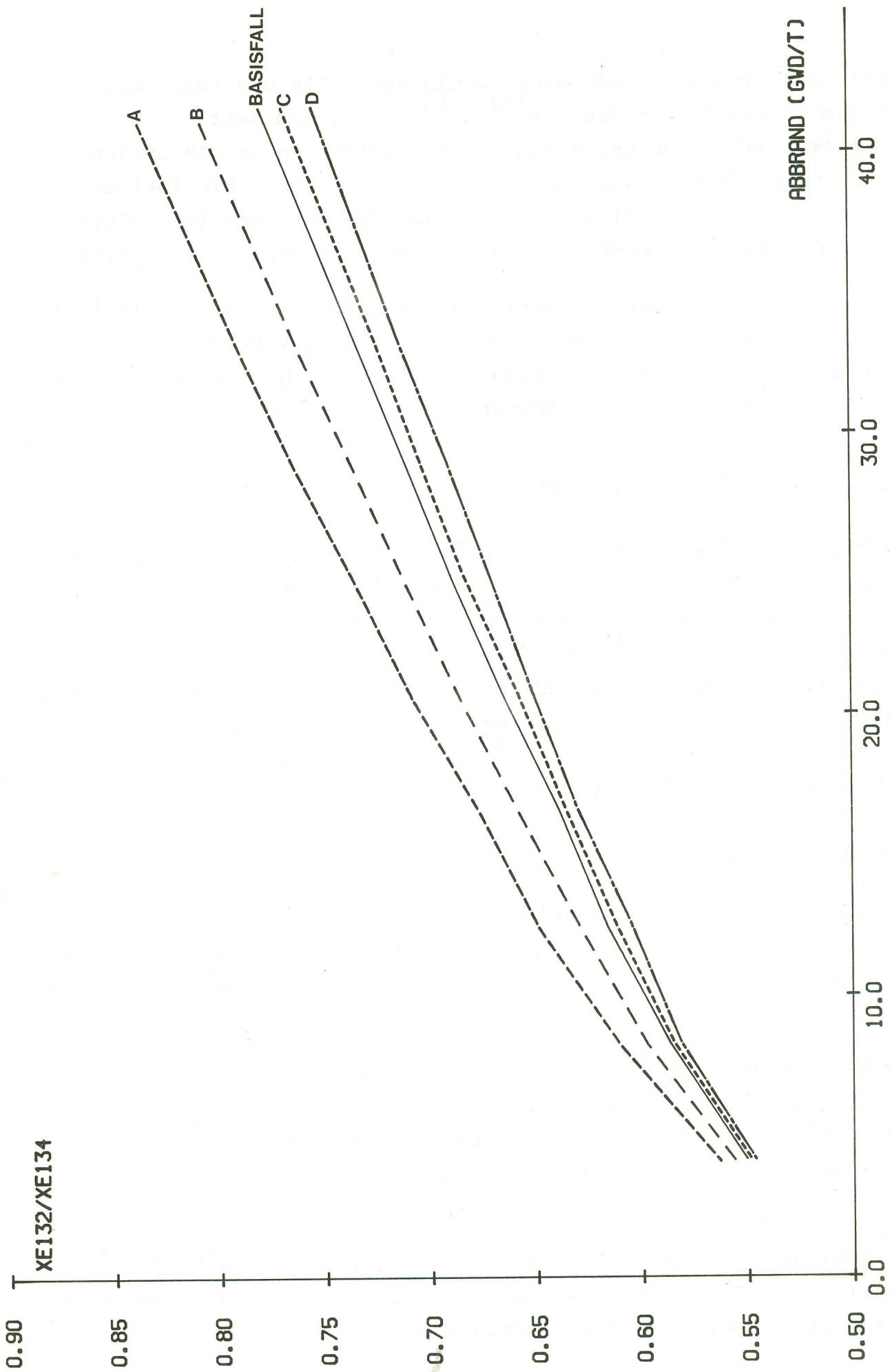
(16)  $(\text{Xe}^{132}/\text{Xe}^{134})$ -Relation

$\text{Xe}^{132}$  und  $\text{Xe}^{134}$  bezeichnen die Teilchenzahldichten dieser Isotope in Atome/cm<sup>3</sup>. Der Verlauf von  $\text{Xe}^{132}/\text{Xe}^{134}$  mit dem Abbrand für verschiedene  $\text{U}^{235}$ -Anfangsanreicherungen ist in Abb. 3.39 dargestellt. Das  $\text{Xe}^{132}/\text{Xe}^{134}$ -Verhältnis steigt um ca. 20% an von 5 bis etwa 20 GWd/t U-Abbrand, mit nachfolgendem schwächeren Anstieg von 10% bis ca. 40 GWd/t U-Abbrand. Die  $(\text{Xe}^{132}/\text{Xe}^{134})$ -Relation hängt von der  $\text{U}^{235}$ -Anfangsanreicherung ab: bei Herabsetzung der  $\text{U}^{235}$ -Anfangsanreicherung von 3.2 w/o auf 2.5 w/o und 1.9 w/o wird der Relationswert bei 33 GWd/t U-Abbrand ca. 5% bzw. 9% größer.

Die  $(\text{Xe}^{132}/\text{Xe}^{134})$ /Abbrand-Relation hängt wenig vom M/B-Verhältnis ab: bei Erhöhung des M/B-Verhältnisses um ca. 10% von 2.0 auf 2.2 ergibt sich eine Verkleinerung des Relationswertes bei 33 GWd/t U-Abbrand um ca. nur 1% (s. Abb. 3.40).

Bor-Konzentration im Moderator, Dicke der Hülle und Leistungsgeschichte spielen für diese Relation eine geringe Rolle: in den betrachteten Änderungsbereichen dieser Parameter ergibt sich eine maximale Änderung des Relationswertes bei 33 GWd/t U-Abbrand von nur 0.8%.

Die Kühlzeit hat ebenfalls keinen Einfluß auf die  $(\text{Xe}^{132}/\text{Xe}^{134})$ -Relation: nach 7 Jahren Kühlzeit ist der Relationswert nur 0.5% größer als der Wert zur Entladungszeit.



ABBRAND (GVD/T)

ABB. 3 - 39 : XE132/XE134 ABHÄNGIGKEIT VON DER ANFANGSANREICHERUNG

(FALLUNTERSCHIEDUNG S. ABB. 3-33)

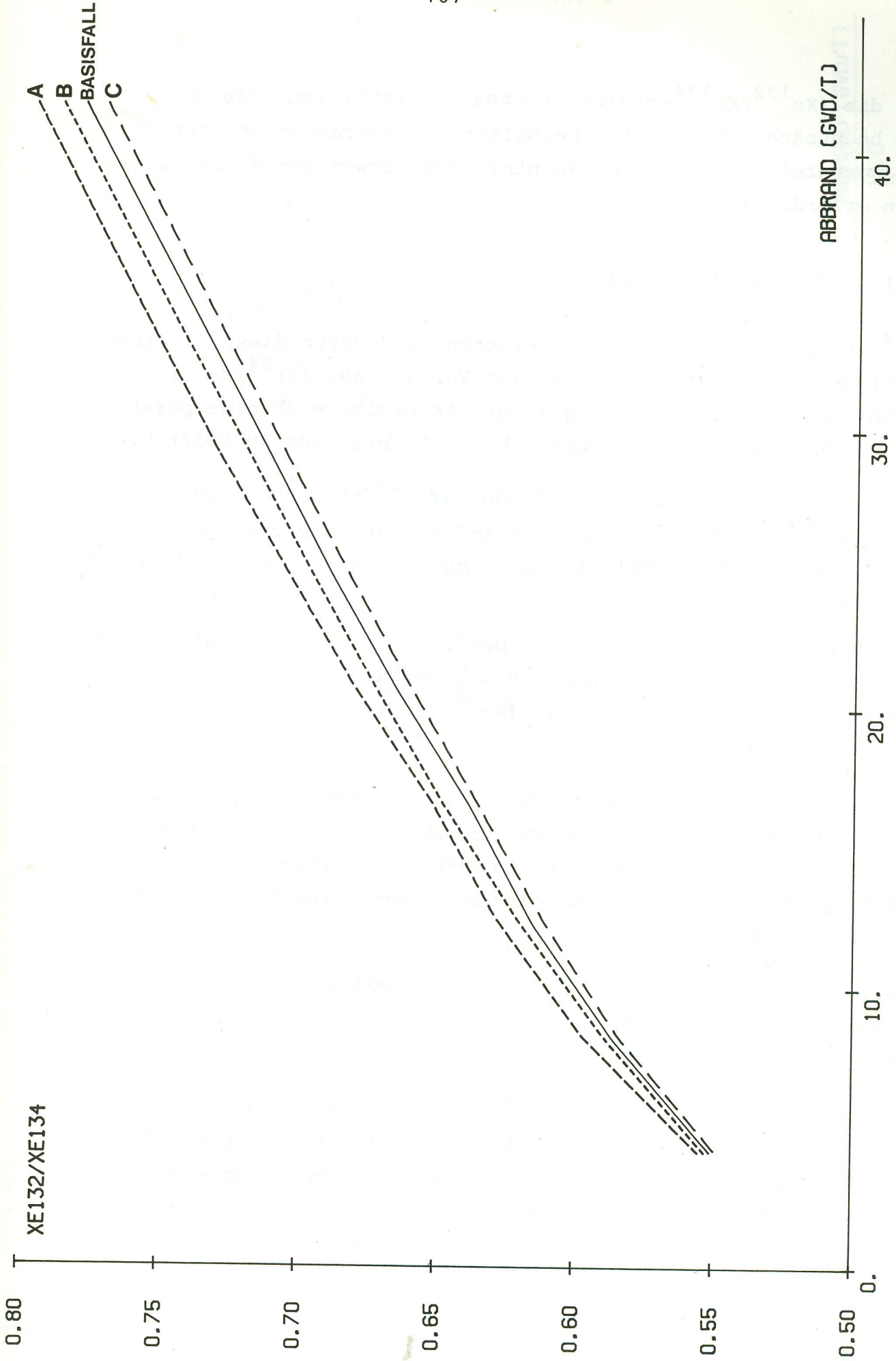


ABB. 3 - 40 : XE132/XE134 - ABHÄNGIGKEIT VOM MOD./BRENNST.-VERHÄLTNIS  
(FALLUNTERSCHIEDUNG S. ABB. 3-34)

XE132/XE134

ABBRAND (GVD/T)

Für die  $(\text{Xe}^{132}/\text{Xe}^{134})$ -Relation kann man schließen: Sie ist hauptsächlich sensitiv bezüglich des Abbrandes und der  $\text{U}^{235}$ -Anfangsanreicherung, deren Kenntnis zur Verwendung dieser Relation erforderlich ist.

(17)  $(\text{Kr}^{84}/\text{Kr}^{83})$ -Relation

$\text{Kr}^{84}$  und  $\text{Kr}^{83}$  bezeichnen die Teilchenzahldichten dieser Isotope in Atome/cm<sup>3</sup>. In Abb. 3.41 ist der Verlauf des  $(\text{Kr}^{84}/\text{Kr}^{83})$ -Verhältnisses mit dem Abbrand gezeigt. Es ergibt sich eine parabolische Funktion im Abbrandbereich von 10 bis über 40 Gwd/t U.

Die  $(\text{Kr}^{84}/\text{Kr}^{83})$ -Relation hängt von der  $\text{U}^{235}$ -Anfangsanreicherung ab: Bei Herabsetzung der Anfangsanreicherung von 3.2 w/o auf 1.9 w/o wird der Relationswert bei 33 Gwd/t U-Abbrand ca. 8% kleiner (s. Abb. 3.41).

Die Relation ist wenig sensitiv bezüglich des M/B-Verhältnisses (s. Abb. 3.42): die Erhöhung des M/B-Verhältnisses von 2.0 auf 2.2 bewirkt eine Verkleinerung des  $(\text{Kr}^{84}/\text{Kr}^{83})$ /Abbrand-Wertes um weniger als 2%.

Die Einflüsse der Bor-Konzentration im Moderator, der Dicke der Hülle und der Leistungsgeschichte sind sehr gering (maximale Änderung des Relationswertes bei 33 Gwd/t U-Abbrand von ca. 1.5% in den betrachteten Änderungsbereichen dieser Parameter) und können vernachlässigt werden.

Die  $(\text{Kr}^{84}/\text{Kr}^{83})$ -Relation ist insensitiv bezüglich der Abklingzeit: nach 7 Jahren Abklingzeit hat die Relation den gleichen Wert wie bei der Entladungszeit.

Aus den Ergebnissen für die  $(\text{Kr}^{84}/\text{Kr}^{83})$ -Relation folgt: Sie ist hauptsächlich sensitiv bezüglich des Abbrands und der  $\text{U}^{235}$ -Anfangsanreicherung. Die Verwendung der Relation erfordert daher die Kenntnis dieser Parameter.

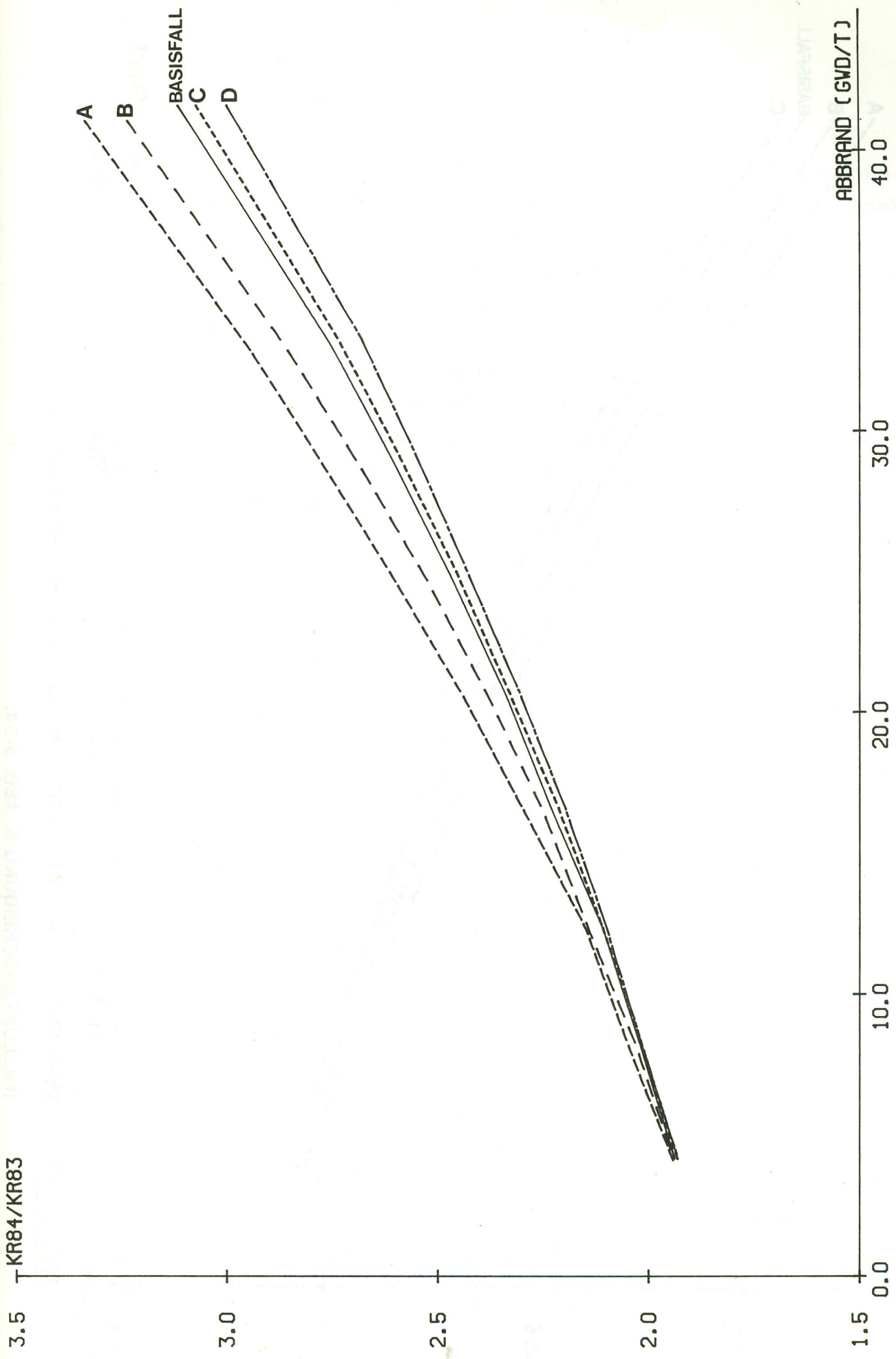


ABB. 3-41: Kr<sup>84</sup>/Kr<sup>83</sup> - ABHÄNGIGKEIT VON DER ANFANGSANREICHERUNG

(FALLUNTERSCHIEDUNG S. ABB. 3-33)

KR84/KR83

ABBRAND (GWD/T)

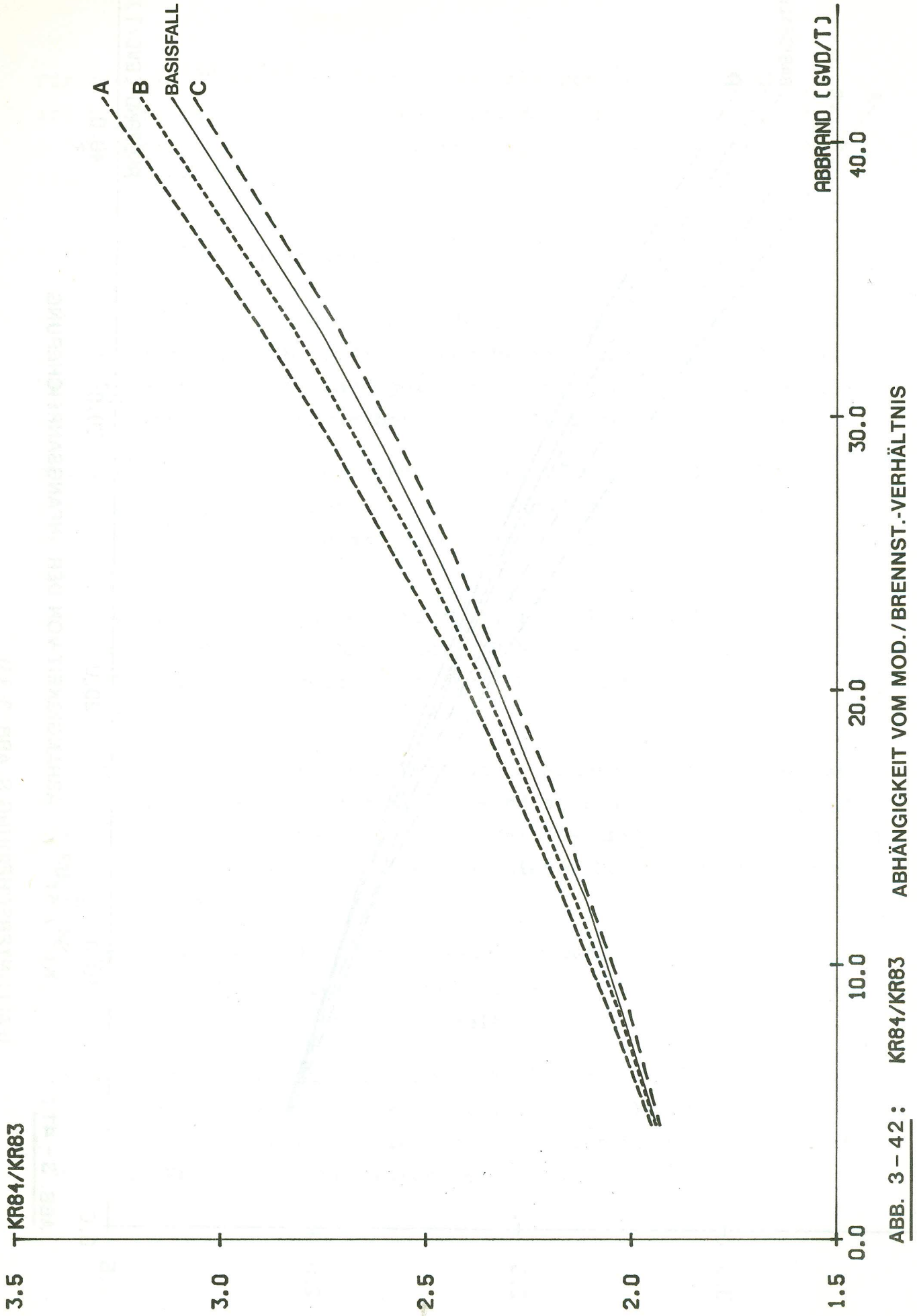


ABB. 3 - 42 : KR84/KR83 ABHÄNGIGKEIT VOM MOD./BRENNST.-VERHÄLTNIS  
(FALLUNTERSCHIEDUNG S. ABB. 3-34)

3.5 KR84/KR83

3.0

2.5

2.0

1.5

0.0

ABBRAND (GVD/T)

40.0

30.0

20.0

10.0

(18)  $(\text{Kr}^{84}/\text{Kr}^{86})$ -Relation

$\text{Kr}^{84}$  und  $\text{Kr}^{86}$  bezeichnen die Teilchenzahldichten dieser Isotope in Atome/cm<sup>3</sup>. In Abb. 3.43 ist das  $\text{Kr}^{84}/\text{Kr}^{86}$ -Verhältnis als Funktion des Abbrands für verschiedene  $\text{U}^{235}$ -Anfangsanreicherungen (1.9 w/o - 4.9 w/o  $\text{U}^{235}$ ) dargestellt: Der  $(\text{Kr}^{84}/\text{Kr}^{86})/\text{Abbrandwert}$  fällt um einen Faktor 1.5 ab zwischen 20 und 40 GWd/t U-Abbrand. Die  $(\text{Kr}^{84}/\text{Kr}^{86})$ -Relation hängt von der  $\text{U}^{235}$ -Anfangsanreicherung ab: Es ergibt sich eine Erhöhung des Relationswertes bei 33 GWd/t U-Abbrand um ca. 7% bei der Herabsetzung der  $\text{U}^{235}$ -Anfangsanreicherung von 3.2 w/o auf 1.9 w/o. Die Relation ist wenig sensitiv bezüglich des M/B-Verhältnisses (s. Abb. 3.44): Die Änderung des M/B-Verhältnisses um  $\pm 10\%$  verändert den  $(\text{Kr}^{84}/\text{Kr}^{86})/\text{Abbrandwert}$  bei 33 GWd/t U-Abbrand um nur 0.6%.

Die Relation ist auch wenig sensitiv bezüglich des Bor-Gehaltes im Moderator, der Dicke der Hülle und der Leistungsgeschichte: es ergibt sich eine maximale Änderung des Relationswertes bei 33 GWd/t U-Abbrand von nur 0.9% in den betrachteten Änderungsbereichen dieser Parameter.

Die Kühlzeit hat keinen Einfluß auf die Relation (Relationswert nach 7 Jahren Kühlzeit gleich dem Wert bei der Entladungszeit).

Für die  $(\text{Kr}^{84}/\text{Kr}^{86})$ -Relation kann man schließen: Sie ist sensitiv vor allem bezüglich des Abbrands und der  $\text{U}^{235}$ -Anfangsanreicherung. Die Verwendung dieser Relation erfordert deshalb die Kenntnis dieser Parameter.

(19)  $(\text{Nd}^{148}/\text{Nd}^{145})$ -Relation

$\text{Nd}^{148}$  und  $\text{Nd}^{145}$  bezeichnen die Teilchenzahldichten dieser Isotope in Atome/cm<sup>3</sup>. Abb. 3.45 zeigt den  $\text{Nd}^{148}/\text{Nd}^{145}$ -Verlauf mit dem Abbrand: die  $(\text{Nd}^{148}/\text{Nd}^{145})/\text{Abbrandwert}$  nehmen mit dem Abbrand ab (um einen Faktor 1.5 zwischen 20 und 40 GWd/t U-Abbrand).

Die  $(\text{Nd}^{148}/\text{Nd}^{145})$ -Relation ist sensitiv bezüglich der  $\text{U}^{235}$ -Anfangsanreicherung: die Herabsetzung der Anfangsanreicherung von 3.2 w/o auf 1.9 w/o  $\text{U}^{235}$  erhöht den Relationswert bei 33 GWd/t U um ca. 8%.

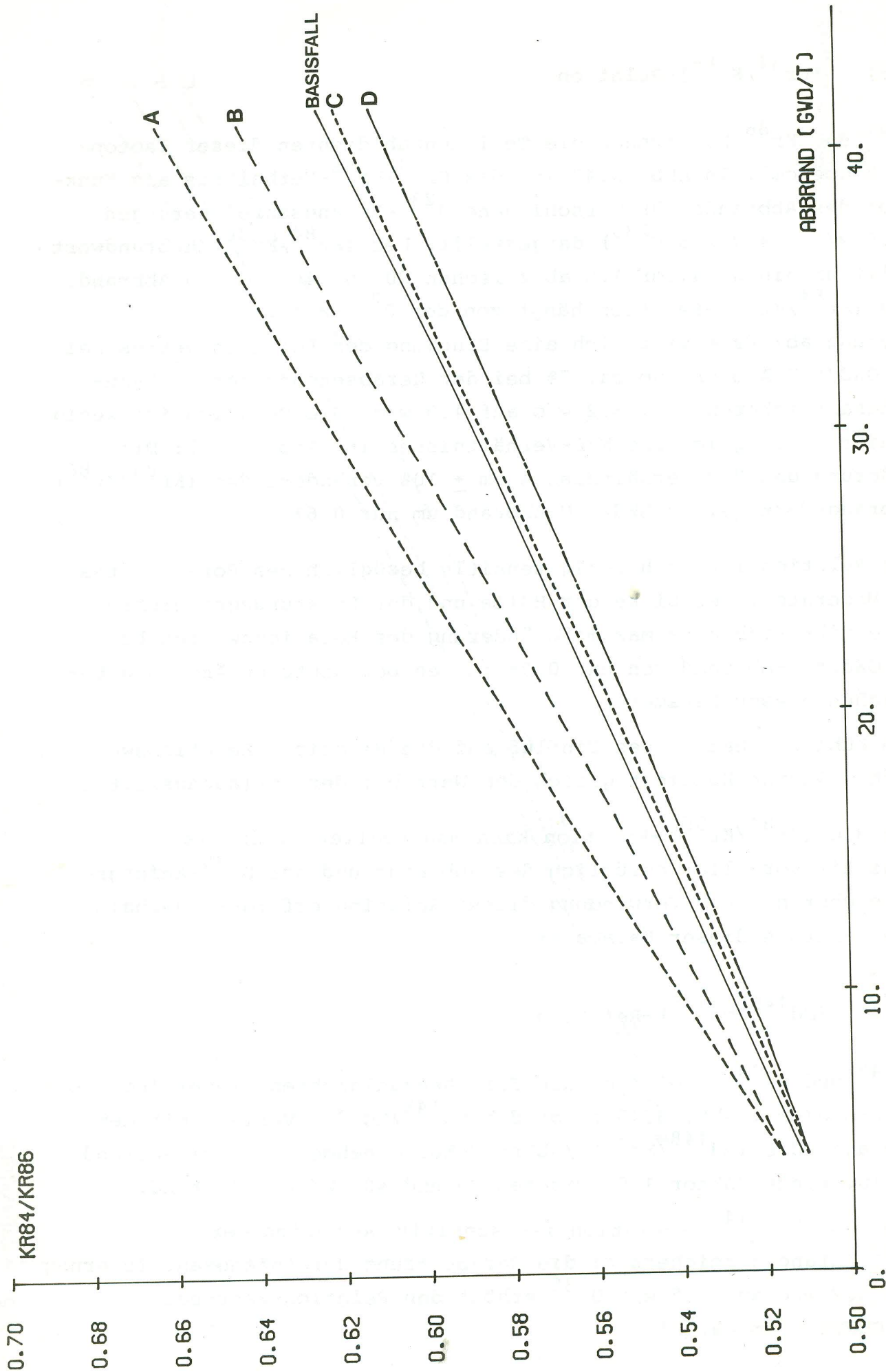
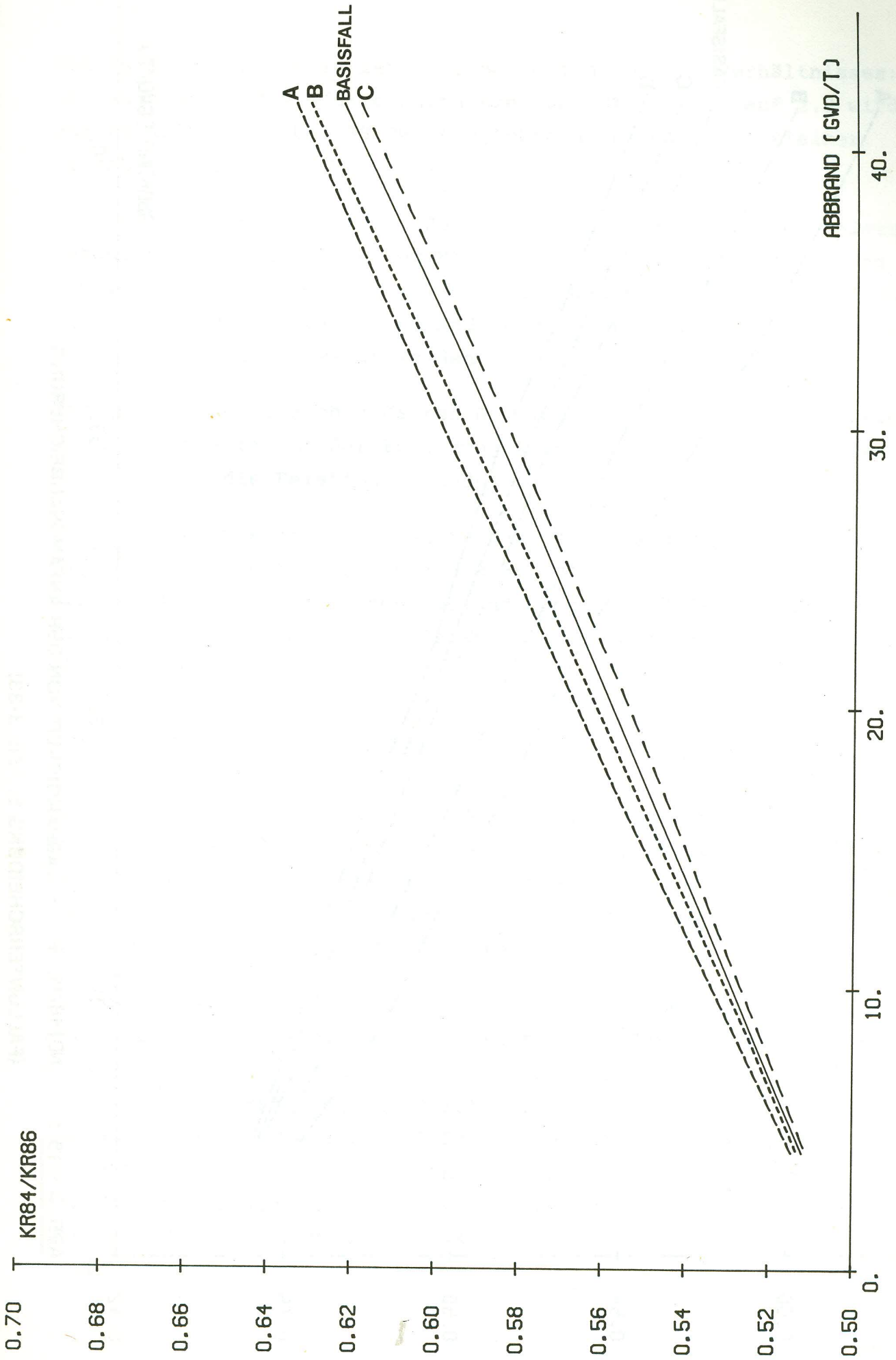


ABB. 3 - 43 : KR84/KR86 - ABHÄNGIGKEIT VON DER ANFANGSANREICHERUNG  
(FALLUNTERSCHIEDUNG S. ABB. 3-33)



**ABB. 3 - 44 :** KR84/KR86 - ABHÄNGIGKEIT VOM MOD./BRENNST.-VERHÄLTNIS  
(FALLUNTERSCHIEDUNG S. ABB. 3-34)

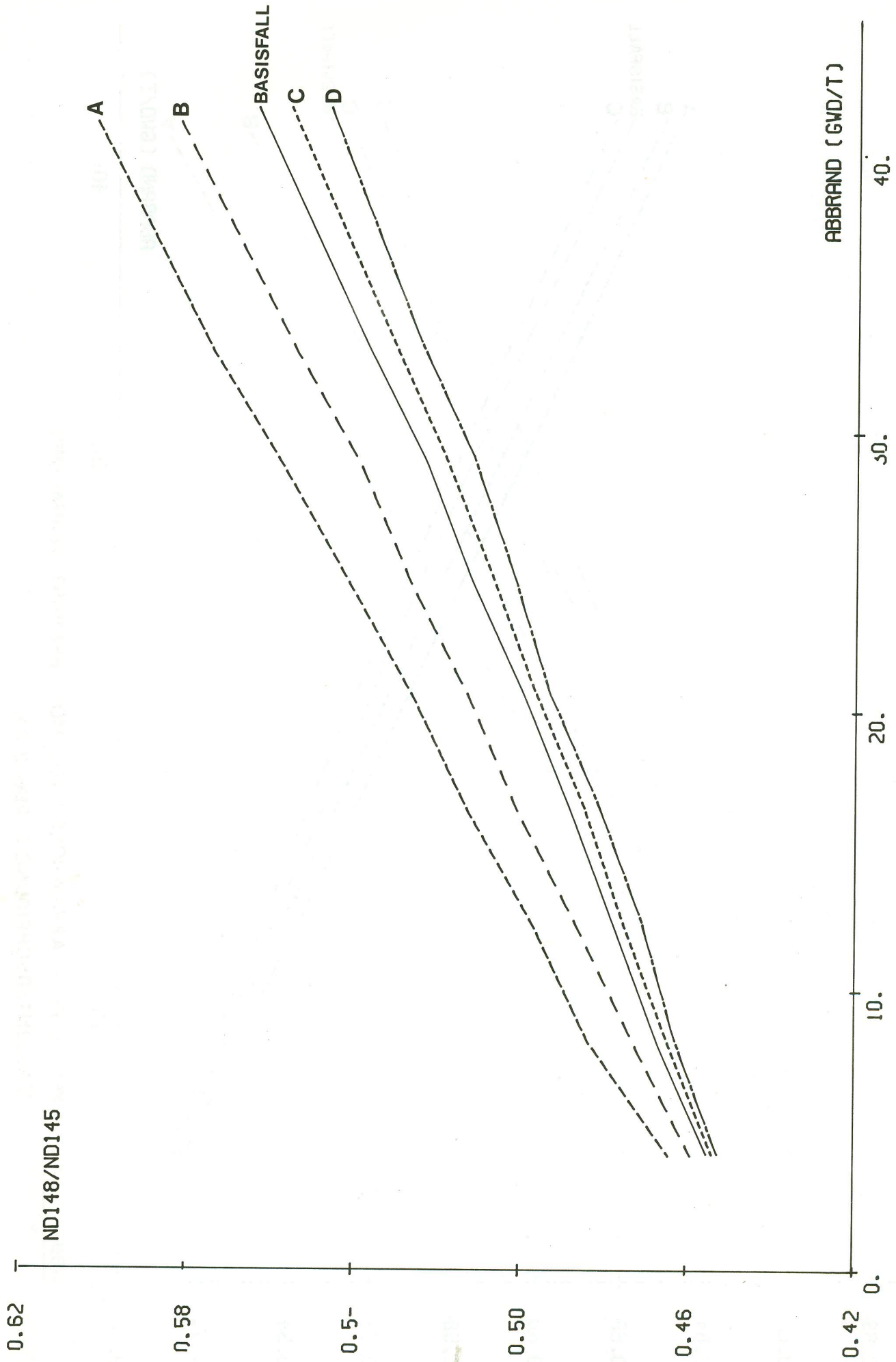


ABB. 3 - 45 : ND148/ND145 - ABHÄNGIGKEIT VON DER ANFANGSANREICHERUNG  
(FALLUNTERSCHIEDUNG S. ABB. 3-33)

Die Relation ist wenig sensitiv bezüglich des M/B-Verhältnisses: bei Änderungen des M/B-Verhältnisses um 10% von 2.0 auf 2.2 wird der Relationswert bei 33 GWd/t U-Abbrand nur ca. 0.8% kleiner (s. Abb. 3.46).

Die Einflüsse des mittleren Bor-Gehalts im Moderator, der Leistungsgeschichte und der Dicke der Hülle auf die Relation sind gering (maximale Änderung des Relationswertes bei 33 GWd/t U-Abbrand von nur 0.8% in den betrachteten Änderungsbereichen dieser Parameter) und können vernachlässigt werden.

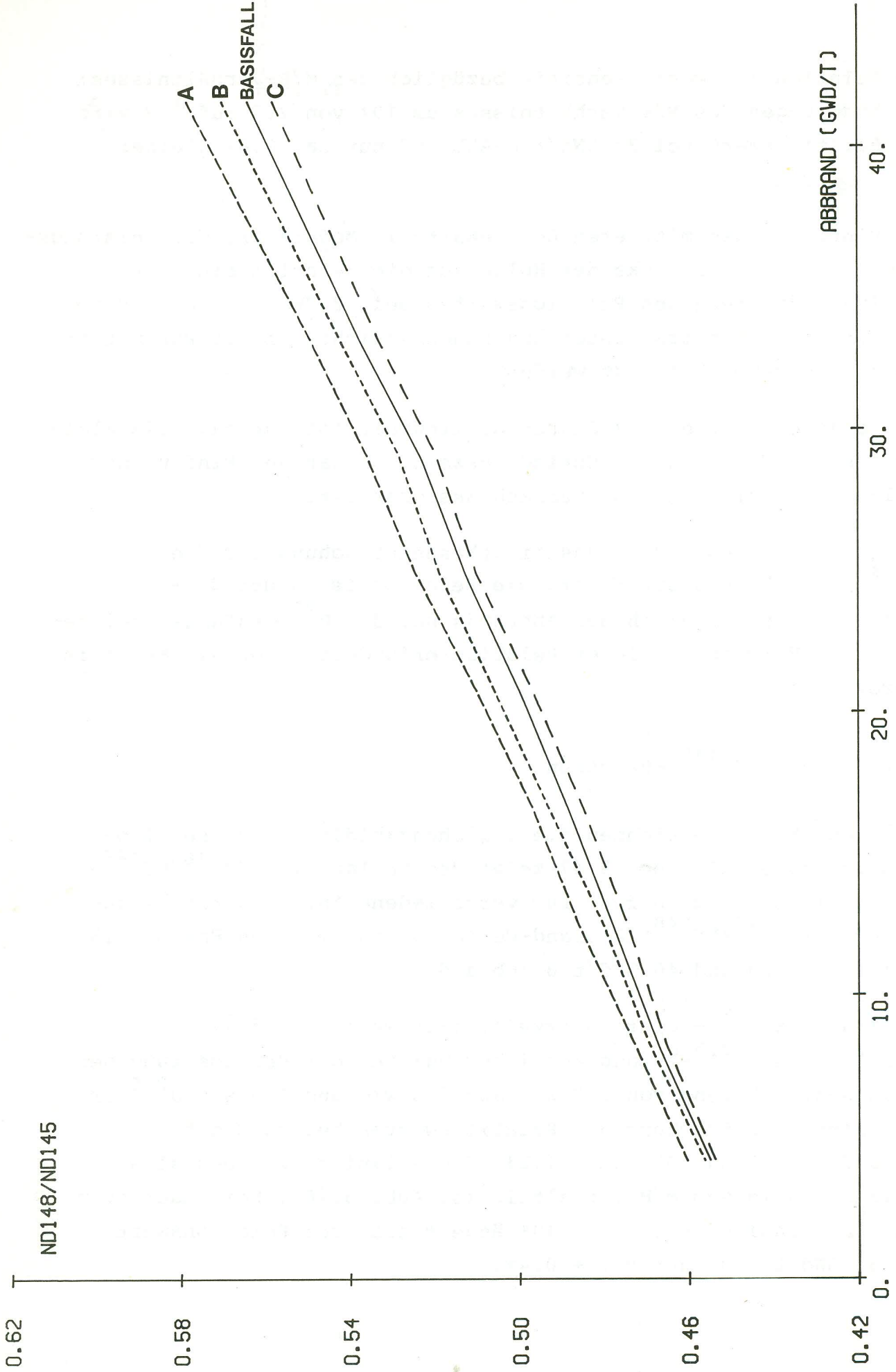
Der Relationswert nach 7 Jahren Abklingzeit ist nur ca. 0.4% kleiner als der Wert bei der Entladungszeit, so daß der Einfluß der Kühlzeit auf die Relation vernachlässigbar ist.

Aus den Ergebnissen der Sensitivitätsuntersuchung für die  $(\text{Nd}^{148}/\text{Nd}^{145})$ -Relation folgt: die Relation ist hauptsächlich sensitiv bezüglich des Abbrands und der  $\text{U}^{235}$ -Anfangsanreicherung. Die Verwendung dieser Relation erfordert daher die Kenntnis dieser Parameter.

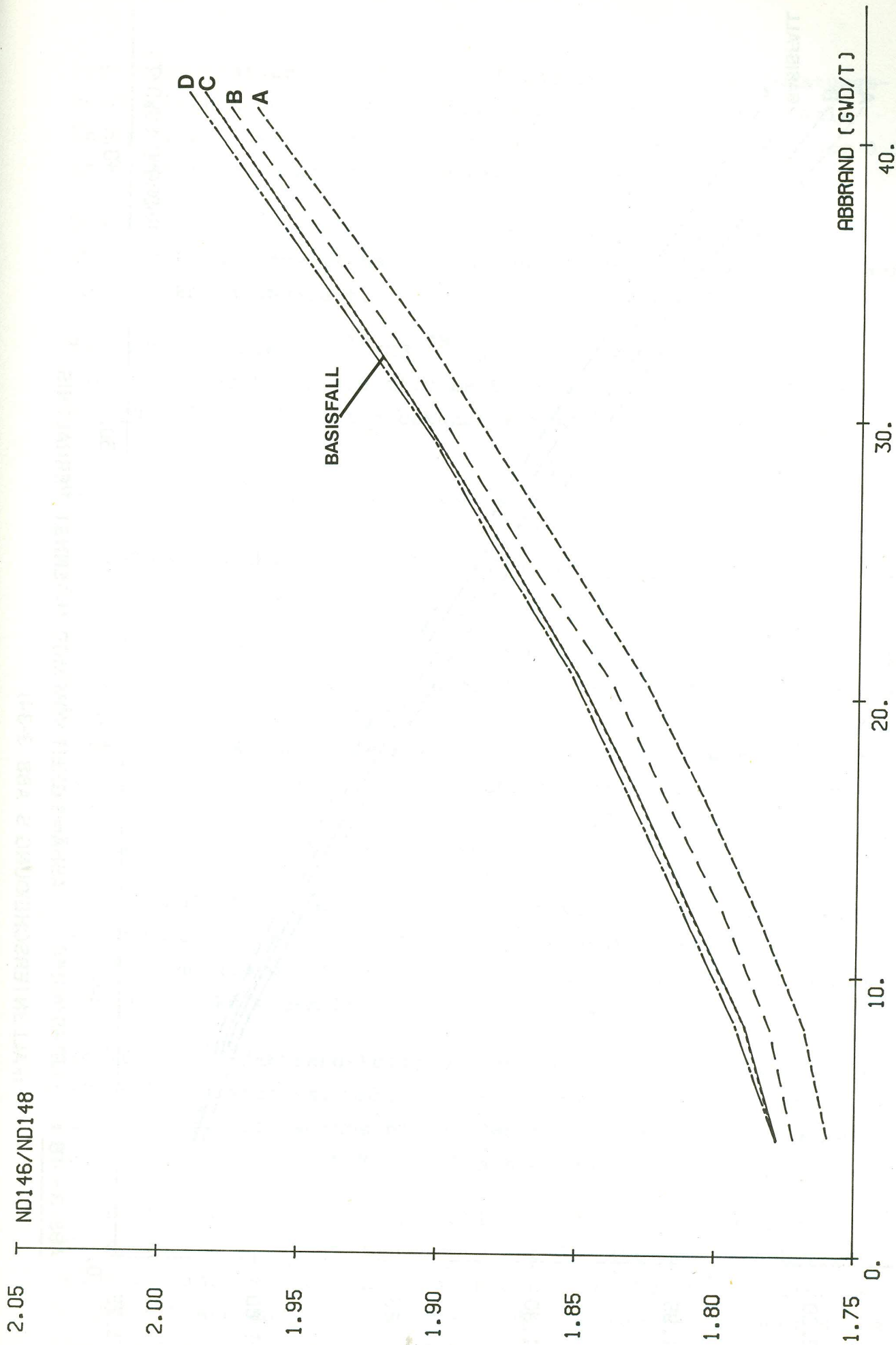
(20)  $(\text{Nd}^{146}/\text{Nd}^{148})$ -Relation

$\text{Nd}^{146}$  und  $\text{Nd}^{148}$  bezeichnen die Teilchenzahldichten dieser Isotope in Atome/cm<sup>3</sup>. Abb. 3.47 zeigt den Verlauf vom  $\text{Nd}^{146}/\text{Nd}^{148}$ -Verhältnis mit dem Abbrand für verschiedene Anfangsanreicherungen: Die  $(\text{Nd}^{146}/\text{Nd}^{148})$ /Abbrand-Werte fallen um einen Faktor 1.5 ab zwischen 20 und 40 GWd/t U-Abbrand.

Die  $(\text{Nd}^{146}/\text{Nd}^{148})$ -Relation erweist sich wenig sensitiv bezüglich der  $\text{U}^{235}$ -Anfangsanreicherung: Bei der Herabsetzung der Anfangsanreicherung von 3.2 w/o auf 2.5 w/o und 1.9 w/o  $\text{U}^{235}$  ergibt sich eine Erhöhung des Relationswertes bei 33 GWd/t U-Abbrand um nur ca. 0.9 bzw. 1.2%. Die Relation ist ebenfalls wenig abhängig vom M/B-Verhältnis (s. Abb. 3.48). Bei Änderungen des M/B-Verhältnisses von  $\pm 10\%$  ändert sich der Relationswert bei 33 GWd/t U um nur ca.  $\pm 0.4\%$ .



**ABB. 3 - 46 : ND148/ND145 ABHÄNGIGKEIT VOM MOD./BRENNST.-VERHÄLTNIS**  
**(FALLUNTERSCHIEDUNG S. ABB. 3-34)**



**ABB. 3-47:** ND146/ND148 - ABHAENGIKHEIT VON DER ANFANGSANREICHERUNG  
(FALLUNTERSCHIEDUNG S. ABB. 3-33)

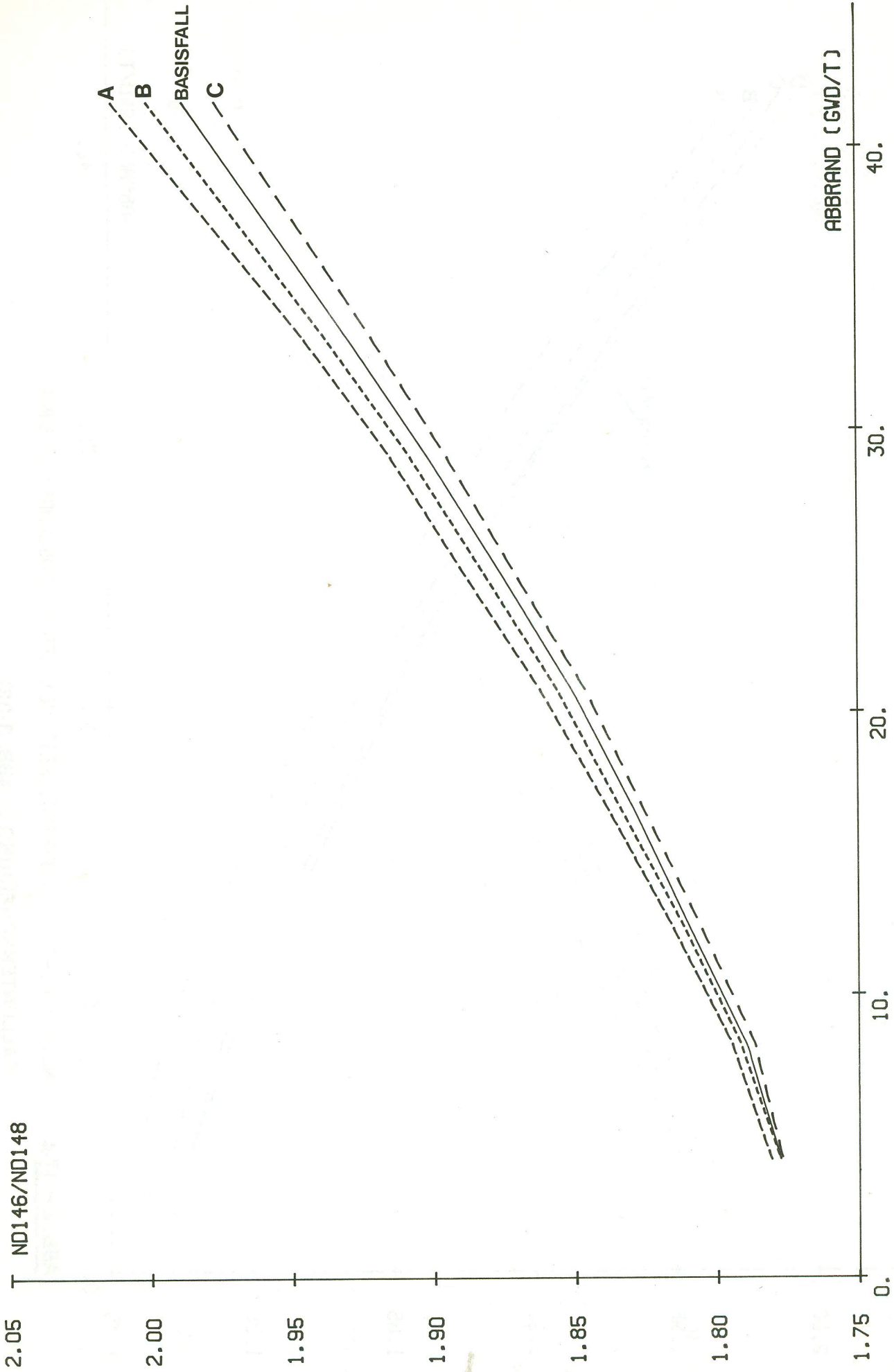


ABB. 3 - 48 : ND146/ND148 ABHÄNGIGKEIT VOM MOD./BRENNST.-VERHÄLTNIS  
(FALLUNTERSCHIEDUNG S. ABB. 3-34)

Bor-Konzentration im Moderator, Dicke der Hülle und Leistungsgeschichten haben keinen Einfluß auf die Relation (maximale Änderung des Relationswertes bei 33 GWd/t U-Abbrand von nur 0.3% in den betrachteten Änderungsbereichen dieser Parameter).

Die  $(\text{Nd}^{146}/\text{Nd}^{148})$ -Relation hängt nicht von der Kühlzeit ab: der Relationswert nach 7 Jahren Kühlzeit ist gleich dem Wert bei der Entladungszeit.

Man kann für die  $(\text{Nd}^{146}/\text{Nd}^{148})$ -Relation schließen: Sie ist in erster Linie sensitiv bezüglich des Abbrandes, der zur Bestimmung dieser Relation bekannt werden muß.

(21)  $(\text{Pu}-\text{Pu}^{239})$ /Abbrand-Relation

Pu bezeichnet die Plutoniummasse in g/t  $U_0$  und  $\text{Pu}^{239}$  bezeichnet die  $\text{Pu}^{239}$ -Masse in g/t  $U_0$ .

Abb. 3.49 zeigt  $(\text{Pu}-\text{Pu}^{239})$  als Funktion vom Abbrand für verschiedene  $U^{235}$ -Anfangsanreicherungen. Die  $(\text{Pu}-\text{Pu}^{239})$ /Abbrand-Werte nehmen von 5 bis etwa 20 GWd/t U-Abbrand um einen Faktor 2 zu. Zwischen 20 und 40 GWd/t U-Abbrand ist der Relationswert näherungsweise konstant: die  $(\text{Pu}-\text{Pu}^{239})$ /Abbrand-Relation hat in diesem Abbrandbereich einen Mittelwert  $0.1168 \pm 3.7\%$   $[\text{g/t}U_0 / \text{MWd/t}U_0]$  für den Basisfall des Druckwasserreaktors.

Die  $(\text{Pu}-\text{Pu}^{239})$ /Abbrand-Relation hängt von der  $U^{235}$ -Anfangsanreicherung ab: Die Herabsetzung der Anfangsanreicherung von 3.2 w/o auf 2.5 und 1.9 w/o  $U^{235}$  bewirkt eine Erhöhung des Relationswertes bei 33 GWd/t U-Abbrand um ca. 10% bzw. 19%.

Die  $(\text{Pu}-\text{Pu}^{239})$ /Abbrand-Relation ist wenig sensitiv bezüglich des M/B-Verhältnisses (s. Abb. 3.50): Es ergibt sich eine Vergrößerung des Relationswertes bei 33 GWd/t U-Abbrand um ca. 4% bei der Herabsetzung des M/B-Verhältnisses um 10%.

Die Einflüsse der Bor-Konzentration im Moderator, der Dicke der Hülle und der Leistungsgeschichte auf die  $(\text{Pu}-\text{Pu}^{239})$ /Abbrand-Relation sind gering (maximale Änderung des Relationswertes bei 33 GWd/t U-Abbrand von ca. 2.5% in den betrachteten Änderungsbereichen dieser Parameter) und können vernachlässigt werden.

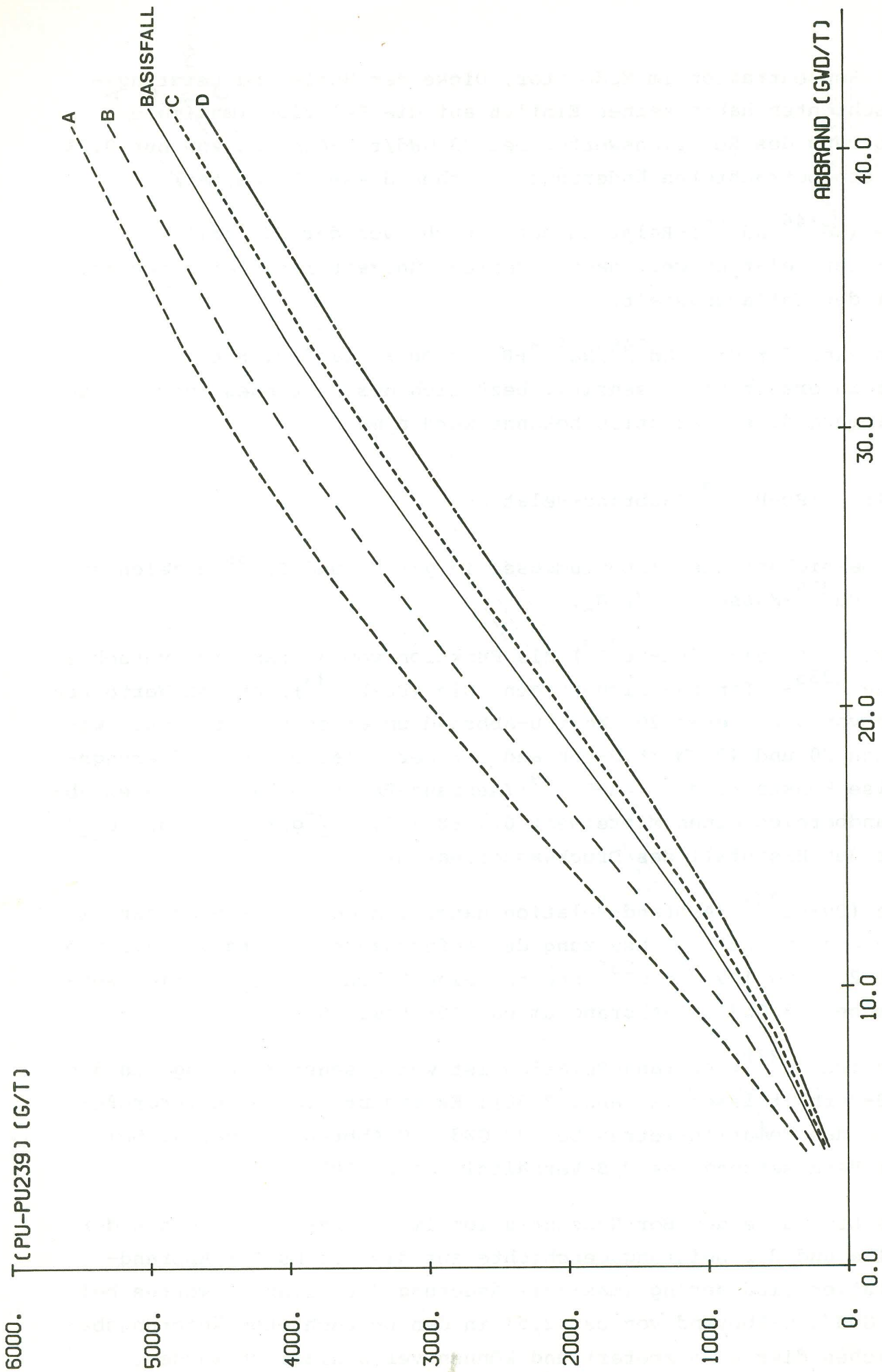


ABB. 3 - 49 : (PU-PU239) ABHÄNGIGKEIT VON DER ANFANGSANREICHERUNG  
(FALLUNTERSCHIEDUNG S. ABB. 3-33)

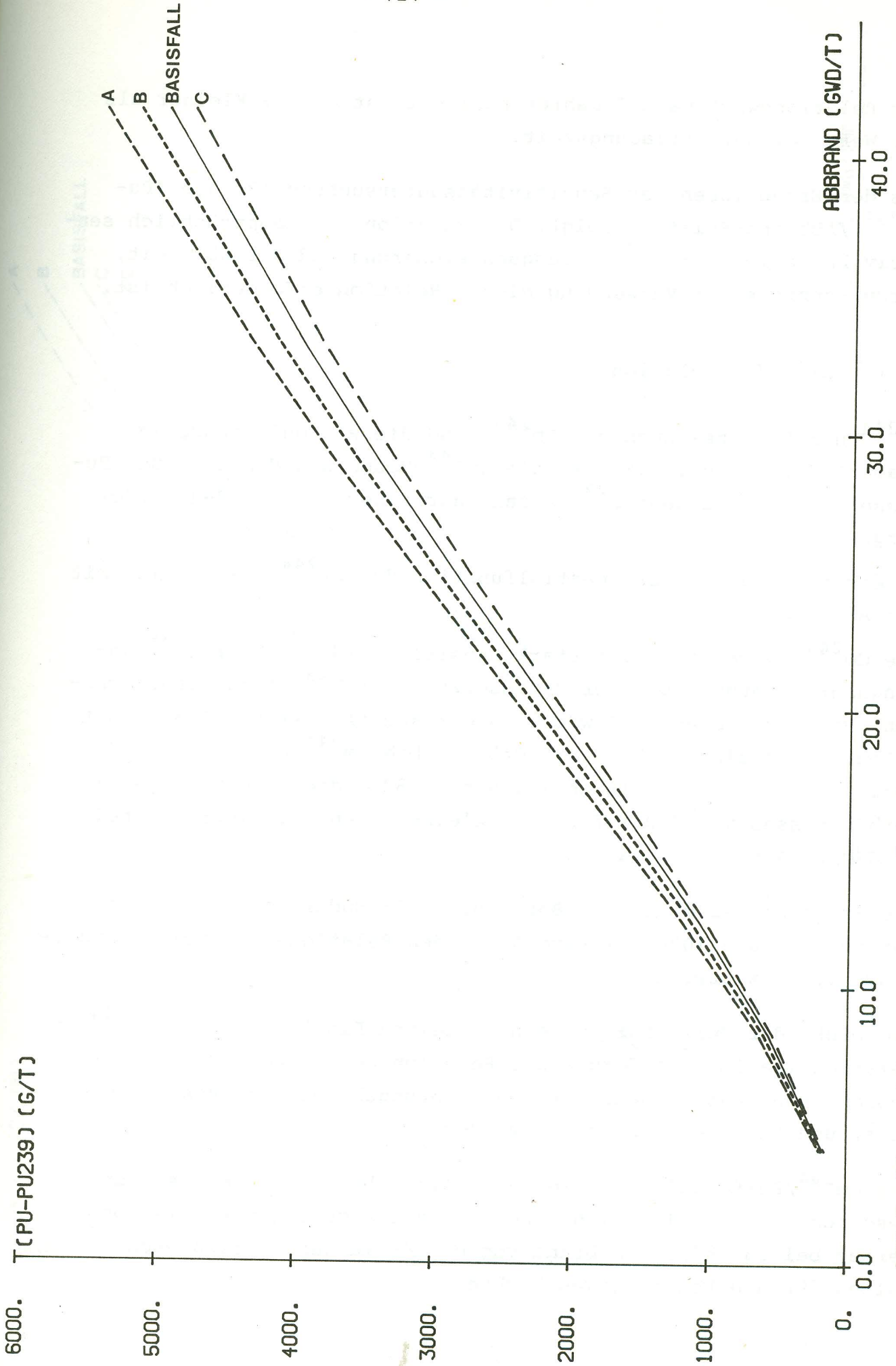


ABB. 3-50 : (PU - PU239) ABHÄNGIGKEIT VOM MOD./BRENNST.-VERHÄLTNIS  
(FALLUNTERSCHIEDUNG S. ABB. 3-34)

Der Relationswert nach 7 Jahren Kühlzeit ist ca. 9% kleiner als der Wert bei der Entladungszeit.

Aus den Ergebnissen der Sensitivitätsuntersuchung für die (Pu-Pu<sup>239</sup>)/Abbrand-Relation folgt: Die Relation ist hauptsächlich sensitiv bezüglich der U<sup>235</sup>-Anfangsanreicherung und der Kühlzeit, deren Kenntnis zur Verwendung dieser Relation erforderlich ist.

(22) Cm<sup>244</sup>/Pu-Relation

Cm<sup>244</sup> und Pu bezeichnen die Cm<sup>244</sup>- und die Plutoniummasse in gramm/t U<sub>0</sub>. In Abb. 3.51 ist die Cm<sup>244</sup>-Masse als Funktion der Pu-Masse für verschiedene U<sup>235</sup>-Anfangsanreicherungen (1.9-4.0 w/o) dargestellt.

Es ergibt sich eine Exponentialfunktion der Cm<sup>244</sup>/Pu-Relation mit dem Abbrand.

Die Cm<sup>244</sup>/Pu-Relation ist stark sensitiv bezüglich der U<sup>235</sup>-Anfangsanreicherung: Bei der Herabsetzung der U<sup>235</sup>-Anfangsanreicherung von 3.2 w/o auf 1.9 w/o wird der Relationswert bei 33 GWd/t U-Abbrand um einen Faktor 1.6 größer. Die Cm<sup>244</sup>/Pu-Relation hängt wenig vom M/B-Verhältnis ab (s. Abb. 3.52): die Erhöhung des M/B-Verhältnisses von 2.0 auf 2.2 verkleinert den Relationswert bei 33 GWd/tU-Abbrand um ca. 4%.

Die Erhöhung des mittleren Bor-Gehalts im Moderator von 600 ppm auf 800 ppm und 1000 ppm vergrößert den Relationswert bei 33 GWd/t-U um ca. 1.3% bzw. 3%.

Die Dicke der Hülle hat nur einen kleinen Einfluß auf die Cm<sup>244</sup>/Pu-Relation (maximale Änderung des Relationswertes bei 33 GWd/t U-Abbrand von 0.6% im betrachteten Änderungsbereich dieses Parameters) und kann vernachlässigt werden.

Die Cm<sup>244</sup>/Pu-Relation ist wenig sensitiv bezüglich der Leistungsgeschichte: es ergibt sich eine maximale Änderung des Relationswertes bei 33 GWd/t U-Abbrand von ca. 4% in den betrachteten Fällen für die Leistungsgeschichte.

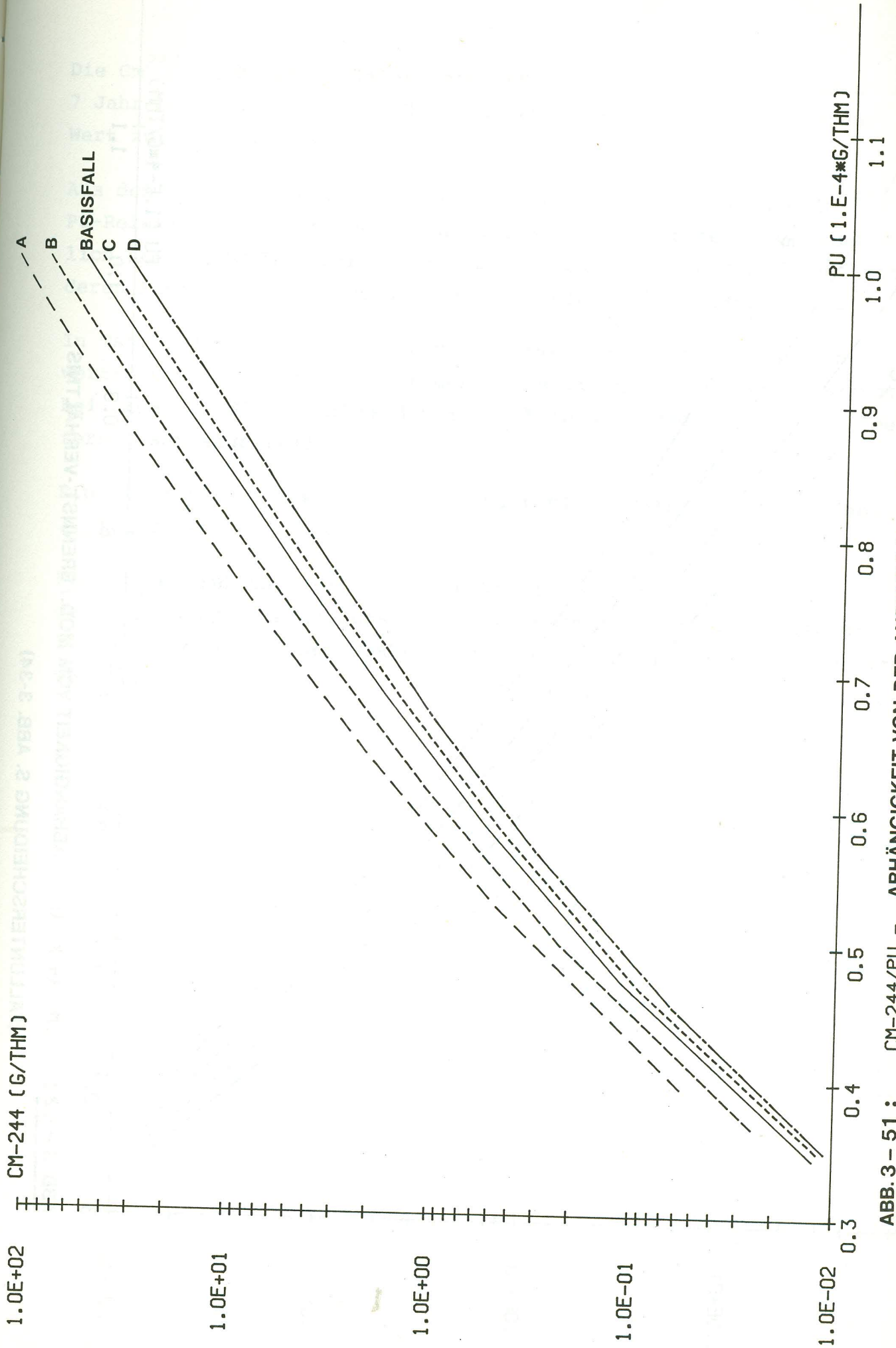


ABB. 3-51 : CM-244/PU - ABHÄNGIGKEIT VON DER ANFANGSANREICHERUNG (FALLUNTERSCHIEDUNG S. ABB. 3-33)

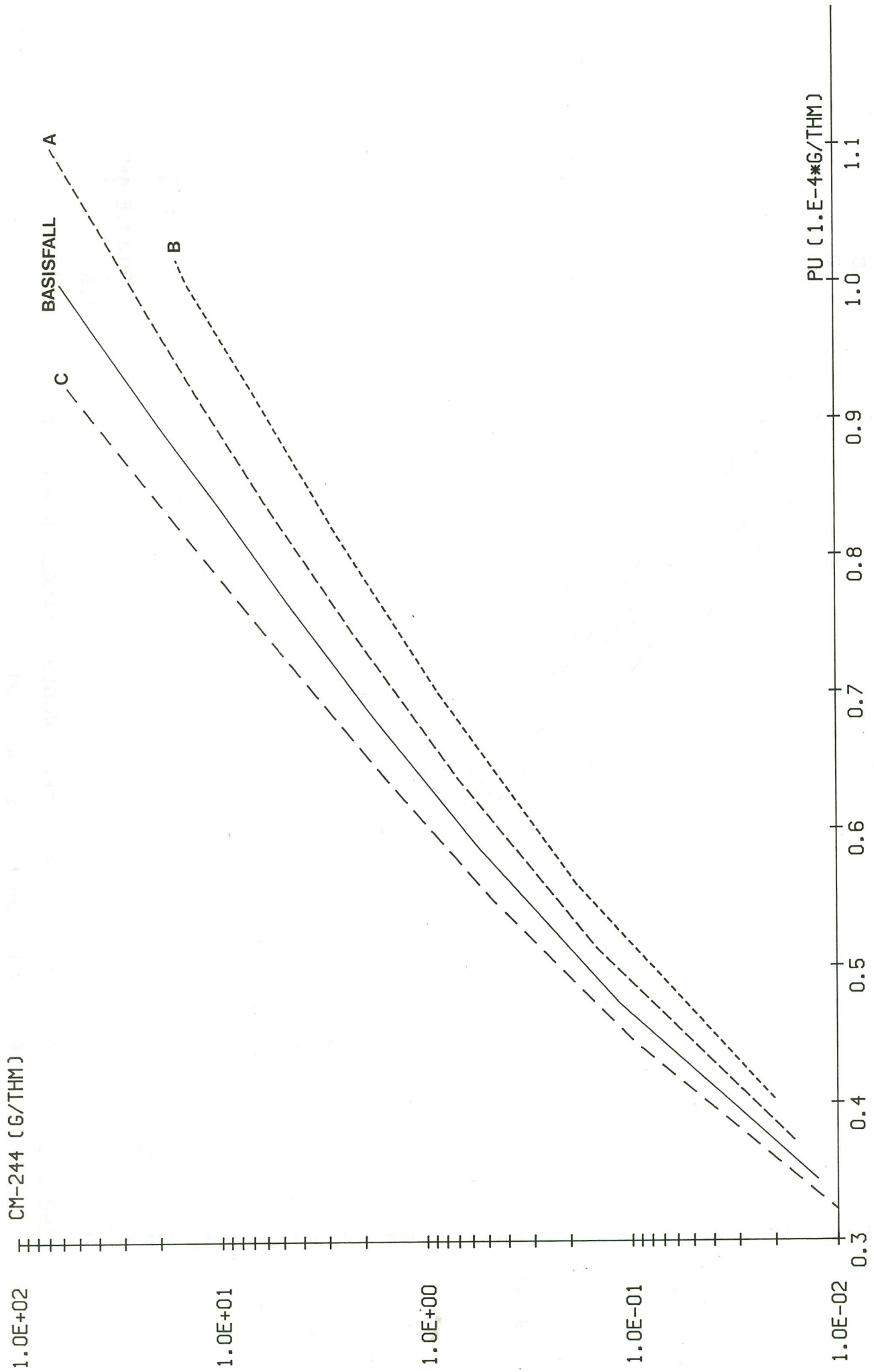


ABB. 3 - 52 : CM-244 X PU ABHÄNGIGKEIT VOM MOD./BRENNST.-VERHÄLTNIS

(FALLUNTERSCHIEDUNG S. ABB. 3-34)

Die  $\text{Cm}^{244}/\text{Pu}$ -Relation ändert sich stark mit der Kühlzeit: nach 7 Jahren Kühlzeit ist der Relationswert ca. 23% kleiner als der Wert zur Entladungszeit.

Aus den Ergebnissen der Sensitivitätsuntersuchung für die  $\text{Cm}^{244}/\text{Pu}$ -Relation kann man schließen: die Relation ist sensitiv bezüglich des Abbrandes, der  $\text{U}^{235}$ -Anfangsanreicherung und der Kühlzeit, deren Kenntnis zur Verwendung dieser Relation erforderlich ist.

In Tab. 3.10 sind die prozentualen Abweichungen des Relationswertes vom Relationswert für den Basisfall des Druckwasserreaktors bei etwa 30 GWd/t U-Abbrand bei der Änderung jeweils eines Parameters zusammengestellt.

Eine summarische Bewertung der Sensitivitätsanalyse wird in Tab. 3.11 dargestellt.

Die Fragen (B) und (C) des Fragenkomplex dieser Arbeit sind mit der hier betrachteten Sensitivitätsuntersuchung von Isotopenrelationen bezüglich der Reaktor- und Brennelement-Parameter beantwortet.

Isotopen- relation	U <sup>235</sup> -Anfangsanreicherung			M/B-Verhältnis			Bor-Konzentration			Dicke der Hülle (cm)	Leistungs- dichte w/g	Leistungsgeschichte							
	w/o	3.5	4.0	1.6	1.8	2.2	0	400	800			1000	60	1	2	3			
(Pu/U)/D <sup>235</sup>	1.9	2.5	3.5	4.0	1.6	1.8	2.2	0	400	800	1000	.0625	.07975	.08328	20	60	1	2	3
(Pu/U)/U <sup>236</sup>	46.0	17.8	-5.0	-10.6	25.2	10.6	-8.6	-5.9	-1.7	2.2	3.9	-1.8	2.3	3.7	0.3	-0.5	-1.0	-1.0	-1.3
(Pu/U) (100-Pu <sup>239</sup> )	41.6	25.9	-7.2	-15.7	21.1	9.2	-7.6	-4.3	-0.9	1.9	3.1	-1.2	2.1	3.4	0.3	-0.3	0.7	-0.6	-0.9
(Pu/U) (100-Pu <sup>239</sup> )	-11.7	-7.2	3.5	10.5	35.5	14.4	-11	-6.6	-1.9	2.9	4.8	-1.9	2.9	4.9	1.3	-1.1	-0.9	-0.9	-0.9
(Pu/U) (Pu <sup>240</sup> /Pu <sup>239</sup> )	-19.4	-11.6	5.8	17.1	48.7	16.5	-13	-10.1	-3.1	4.5	7.4	-2.9	4.1	7.1	1.6	-1.2	-0.5	-0.6	-0.7
(Pu/U)	-12.2	-6.3	2.1	5.3	-3.0	-1.7	2.3	2.7	1.4	-0.9	-0.8	0.9	0.1	-0.5	0.7	-1.7	-1.2	-1.8	-1.4
D <sup>235</sup>	-30.0	-14.7	4.9	11.4	-2.7	-1.3	1.4	1.4	0.4	-0.4	-0.8	0.4	-0.4	-0.6	0	0	0.3	0.4	0.4
U <sup>236</sup> /U <sub>o</sub>	-38.5	-20.0	7.6	18.2	0.2	0.01	0.2	-0.3	-0.4	-0.1	-0.2	0.2	-0.2	-0.4	-0.05	0.05	-1.0	0	0
D <sup>235</sup> /U <sup>236</sup>	13.5	6.9	-2.3	-5.7	-3.3	-1.3	1.1	1.7	0.8	-0.3	-0.8	0.6	-0.2	-0.3	-0.1	0.1	1.8	0.4	0.4
Pu/U Cs <sup>134</sup> /Cs <sup>137</sup>	-8.0	-4.4	2.3	4.7	9.8	4.2	-3.8	-2.3	-0.5	1.1	1.8	-0.7	1.2	2.1	17.4	-5.3	-0.1	2.2	3.0
Pu/U Eu <sup>134</sup> /Cs <sup>137</sup>	-11	-9.0	3.8	9.7	14.2	6.0	-5.7	-4.0	-1.3	1.1	2.5	-1.4	1.2	2.4	-0.1	0.2	-0.5	-0.8	-0.6

Tab. 3.10: Sensitivität der Isotopenrelationen bezüglich der untersuchten Reaktorparameter: prozentuale Abweichungen bei 30 GWd/t U-Abbrand vom DWR-Basisfall, deren Daten in Tab. 3.9 angegeben wurden.

Isotopen- relation	$^{235}\text{U}$ -Anfangsanreicherung w/o				M/B-Verhältnis				Bor-Konzentration ppm				Dicke der Hülle (cm)				Leistungs- dichte w/g				Leistungsgeschichte Fall Nr.		
	1.9	2.5	3.5	4.0	1.6	1.8	2.2	0	400	800	1000	.0625	.07975	.08328	20	60	1	2	3				
$\text{Pu}^{239}/\text{Pu}$	19.4	10.7	-4.0	-10.2	9.2	4.2	-3.6	-2.5	-0.8	0.7	1.5	-0.9	0.9	1.2	-1.1	0.2	-0.5	-0.3	-0.9				
$\text{Cm}^{244}/\text{Pu}$	165	64	-19	-41	7.1	3.5	-4.1	-5.2	-1.7	1.3	2.9	-0.6	0.3	0.4	-7.6	3.5	4.0	3.9	3.4				
$^{100}\text{-Pu}^9/\text{D}^5$	65.3	26.9	-8.2	-19.1	-7.6	-3.3	2.7	0.7	0.2	-0.7	-0.8	0.1	-0.6	-1.2	-0.9	0.6	-0.1	-0.1	-0.3				
$\text{PuO}/\text{Pu}^9/\text{D}^5$	81.2	33.3	-10.2	-23.7	-19.7	-9.2	9.2	4.7	1.4	-2.2	-3.3	1.2	-1.8	-3.2	-1.2	0.7	-0.6	-0.5	-0.6				
$\text{Cs}^{134}/\text{Cs}^{137}$	12.8	7.0	-2.3	-5.9	8.8	4.1	-3.6	-2.4	-0.9	0.7	1.3	-0.7	0.7	0.9	-14.5	5.2	-0.6	-2.7	-3.8				
$\text{Eu}^{154}/\text{Cs}^{137}$	22.6	12.0	-3.7	-9.3	3.9	2.0	-1.3	-0.6	0	0.6	0.7	0	0	0	0.5	-0.1	-0.2	0.2	-0.3				
$\text{Xe}^{132}/\text{Xe}^{131}$	3.1	2.0	-0.7	-2.0	2.9	1.3	-0.5	-1.3	-0.2	0.6	0.9	-0.2	0.6	0.9	-0.5	0.2	0.2	0.2	-0.5				
$\text{Xe}^{132}/\text{Xe}^{134}$	8.8	4.9	-1.3	-2.8	2.5	1.1	-0.9	-0.7	-0.2	0.2	0.4	-0.2	0.2	0.4	0.8	-0.5	0.2	0.2	0.3				
$\text{Kr}^{84}/\text{Kr}^{83}$	7.9	4.7	-1.0	-3.0	5.2	2.2	-1.7	-1.5	-0.8	0.4	0.7	-0.3	0.3	0.4	0	0	0.5	0.5	0.2				
$\text{Kr}^{84}/\text{Kr}^{86}$	7.2	4.3	-0.3	-1.8	2.3	0.6	-0.6	-0.7	-0.9	0	0.2	0.7	-0.2	-0.3	0	0	0.5	0.5	0.2				
$\text{Nd}^{148}/\text{Nd}^{145}$	8.1	4.4	-1.2	-2.5	2.2	0.9	-0.8	-0.8	-0.4	0	0.4	0	0	0	-0.1	0.2	0.3	-0.1	0.3				
$\text{Nd}^{146}/\text{Nd}^{148}$	1.2	0.9	-0.2	-0.4	0.8	0.4	-0.4	0	0	0	0	0	0	0	0.6	-0.8	0.0	0.0	-0.3				

Tab. 3.10: Sensitivität der Isotopenrelationen bezüglich der untersuchten Reaktorparameter: prozentuale Abweichungen bei 30 GWd/t U-Abbrand vom DWR-Basisfall, deren Daten in Tab. 3.9 angegeben wurden (Fortsetzung)

Relation	$U^{235}$ -Anfangs- anreicherung	M/B-Ver- hältnis	Bor-Gehalt im Modera- tor	Dicke der Hülle	Leistungs- dichte	Leistungs- geschichte	Kühlzeit 7 J	Abbrand
$(Pu/U) / D^{235}$	++	++	+	+	-	-	+	-
$\frac{(Pu/U)}{\Delta U^{236}}$	++	++	-	-	-	-	+	-
$\frac{(Pu/U)}{(100-Pu^{239})}$	++	++	+	+	-	-	+	-
$\frac{(Pu/U)}{(Pu^{240}/Pu^{239})}$	++	++	+	+	-	-	-	-
$(Pu/U)$	+	-	-	-	-	-	+	-
$\frac{(Pu^{239} / Pu^{242}) \cdot (Pu^{240} / Pu^{240})}{(Cs^{134} / Cs^{137})}$	+	+	-	-	++	+	++	+
$\frac{(Pu/U)}{(Eu^{154} / Cs^{137})}$	+	+	-	-	-	-	+	+
$D^{235}$	++	-	-	-	-	-	-	++
$U^{236} / U^0$	++	-	-	-	-	-	-	++

Tab. 3.11: Summarische Bewertung der Sensitivitätsanalyse der Isotopenrelationen

++ stark sensitiv      +wenig sensitiv      - insensitiv

Relation	$U^{235}$ -Anfangs- anreicherung	M/B-Ver- hältnis	Bor-Gehalt im Modera- tor	Dicke der Hülle	Leistungs- dichte	Leistungs- geschichte	Kühlzeit 7 J	Abbrand
$D^{235}/\Delta U^{236}$	++	+	-	-	-	-	-	-
(Pu-Pu <sup>239</sup> /Bu)	++	+	-	-	-	-	++	+
Cm <sup>244</sup> /Pu	++	+	+	-	+	-	++	++
$(100-Pu^{239})$ $D^{235}$	++	+	-	-	-	-	+	-
$(Pu^{240}/Pu^{239})$ $D^{235}$	++	++	-	-	-	-	+	-
$(Cs^{134}/Cs^{137})$	++	+	-	-	++	+	++	-
$(Eu^{154}/Cs^{137})$	++	-	-	-	-	-	++	+
$(Xe^{132}/Xe^{131})$	+	+	-	-	-	-	-	++
$(Xe^{132}/Xe^{134})$	+	-	-	-	-	-	-	+
$(Kr^{84}/Kr^{83})$	+	-	-	-	-	-	-	++

Tab. 3.11: Summarische Bewertung der Sensitivitätsanalyse der Isotopenrelationen (Fortsetzung)

++stark sensitiv      +wenig sensitiv      - insensitiv

Relation	$^{235}\text{U}$ -Anfangs- anreicherung	M/B-Ver- hältnis	Bor-Gehalt im Modera- tor	Dicke der Hülle	Leistungs- dichte	Leistungs- geschichte	Kühlzeit 7 J	Abbrand
$\left(\frac{^{84}\text{Kr}}{^{86}\text{Kr}}\right)$	+	-	-	-	-	-	-	++
$\left(\frac{^{148}\text{Nd}}{^{145}\text{Nd}}\right)$	+	-	-	-	-	-	-	++
$\left(\frac{^{146}\text{Nd}}{^{148}\text{Nd}}\right)$	-	-	-	-	-	-	-	++

Tab. 3.11: Summarische Bewertung der Sensitivitätsanalyse der Isotopenrelationen (Fortsetzung)

++stark sensitiv      +wenig sensitiv      - insensitiv

#### 4. Erstellung eines Konzepts zur Anwendung von Isotopenrelationen bei der Überwachung von Spaltstoffen

Wenn Isotopenrelationen zur Überwachung von Spaltstoffen zuverlässig einzusetzen sind, muß ein eindeutiges Konzept zur Überprüfung von Meßanalysedaten abgebrannter Brennstoffe, zur Identifikation von Brennstoffvertauschungen und zur Identifikation von Brennstoffabzweigungen erarbeitet werden. Dies ist der zweite Schwerpunkt der vorliegenden Arbeit.

Die experimentelle Absicherung des in diesem Kapitel erstellten Konzepts wird in Kapitel 5 vorgenommen. Die in den Beispielen dieses Kapitels angenommenen Werte der Isotopenrelationen basieren auf Rechnungen.

Die Grundlage des in der vorliegenden Untersuchung erarbeiteten Konzepts ist die selektive Sensitivität der Isotopenrelationen bezüglich der Reaktor- und Brennelementparameter. Ihre Kenntnis wurde in Kapitel 3 gewonnen.

Nach diesem Konzept soll der Inspektor einer Wiederaufarbeitungsanlage vorgehen. Das Konzept kann auch vom Betreiber der Wiederaufarbeitungsanlage bei normalem Betrieb angewendet werden. Der Inspektor soll: (a) die Angaben vom Reaktorbetreiber (spezifisch des Brennelements) nehmen: Brennelementgeometrie,  $U^{235}$ -Anfangsanreicherung, anfängliche Uranmasse und Bestahlungsgeschichte mit dem Datum der Brennelemententladung aus dem Reaktor; (b) die Meßanalysedaten des Wiederaufarbeiters (spezifisch des Brennelements oder der Auflösecharge) nehmen: Abbrand,  $(Pu/U)$ ,  $U^{235}/U$ ,  $U^{236}/U$ ,  $Pu^{239}/Pu$ ,  $Pu^{240}/Pu$ ,  $Pu^{241}/Pu$  und  $Pu^{242}/Pu$ ; (c) das  $Cs^{134}/Cs^{137}$ - und  $Xe^{132}/Xe^{131}$ -Verhältnis vor Ort messen (vgl. Abschnitt 2.2) und (d) die relative  $U^{235}$ -Konzentration unabhängig vom Wiederaufarbeiter messen.

Die Überprüfung des vom Wiederaufarbeiter gemessenen  $Pu/U$ -Verhältnisses wird der Schwerpunkt im zu untersuchenden Konzept sein, denn das  $Pu/U$ -Verhältnis liefert den größten Beitrag zur Unsicherheit der  $Pu$ -Bestimmung mit der  $Pu/U$ -Methode. Dazu wird der Inspektor Isotopenrelationen, die das  $Pu/U$ -Verhältnis enthalten, mit den Meßanalysedaten ermitteln. Um solche Relationen zu überprüfen,

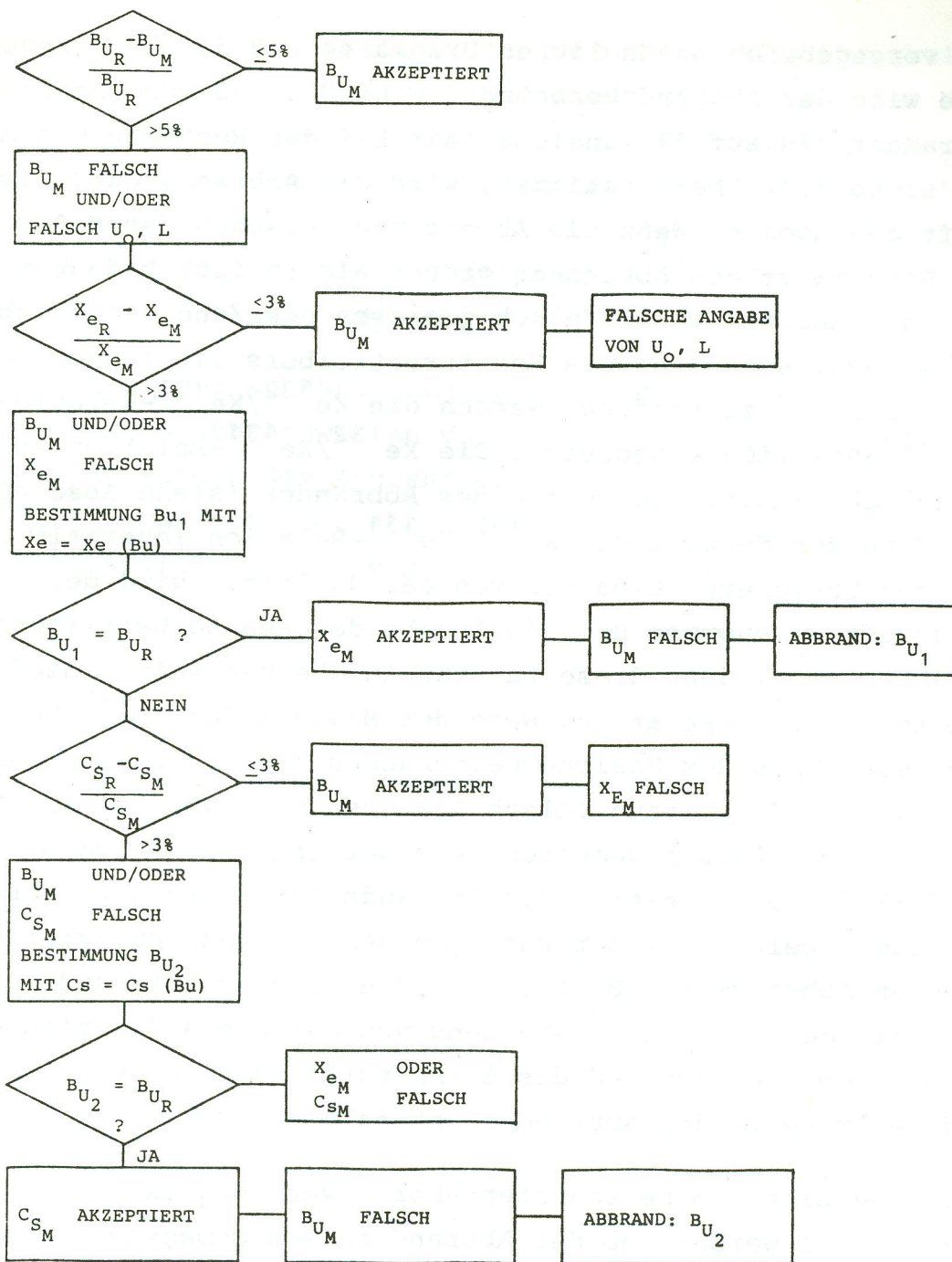
sind die folgenden Fragen zu klären:

- Wie identifiziert man einen zweifelhaften Relationswert? und
- Resultiert der zweifelhafte Relationswert aus Meßfehlern oder aus stattgefundenen Brennstoffvertauschungen oder aus Brennstoffabzweigungen?

Um einen zweifelhaften Relationswert zu identifizieren, soll der Inspektor die im Kapitel 3 am Experiment abgesicherten theoretischen Verfahren einsetzen: Unter Verwendung der Angaben des Reaktorbetreibers wird eine Relation berechnet. Wenn ein mit den Meßanalysedaten ermittelter Relationswert außerhalb des zugehörigen theoretischen Unsicherheitsbandes (siehe 3.4) liegt, wird er als zweifelhaft angenommen. Anderenfalls wird der Relationswert als glaubhaft angenommen. Wenn der Inspektor vor Ort keine Rechenmöglichkeit hat, soll er von der Überwachungszentrale die Rechenergebnisse möglichst vor der Inspektion bekommen. Wenn die Meßanalysedaten spezifisch von Auflösechargen sind, soll der Inspektor den Auflösungsplan nehmen. Er soll danach mit den Rechenergebnissen für die Brennelemente Mittelwerte der Isotopenrelationen über die Auflösecharge bilden.

Der erste Schritt zur Überprüfung des Pu/U-Verhältnisses mit Isotopenrelationen ist, die Angabe über den Abbrand des Brennstoffs zu überprüfen. Die Gründe zur Abbrandüberprüfung sind: (a) Es wird abgesichert, daß kein Brennelement dummy ist; (b) die Bestimmung des Terms  $U/U_0$ , das zur Anwendung der Pu/U-Methode bekannt sein muß (vgl. 1.1), erfordert die Kenntnis des Abbrandes; (c) die Berechnung von nicht-linearen Relationen (abbrandabhängig) erfordert die Kenntnis des Abbrandes.

Der Abbrand wird in der Regel durch eine massenspektroskopische Isotopenverdünnungsanalyse des Neodymiums mit einer Genauigkeit von ca. 2-5% bestimmt (vgl. Abschnitt 2.2.2). Abb. 4.1 zeigt ein schematisches Ablaufdiagramm der in der vorliegenden Arbeit benutzten Prozedur zur Überprüfung dieser Abbrandangabe.



NOMENKLATUR

- $B_{UM}$  = ABBRANDWERT AUS Nd-METHODE
- $B_{UR}$  = BERECHNETER ABBRANDWERT
- Xe:  $Xe^{132}/Xe^{131}$
- Cs:  $Cs^{134}/Cs^{137}$
- $U_0$ : ANFÄNGLICHE URANKONZENTRATION
- L: LEISTUNGSGESCHICHTE

Abb. 4.1: Ablaufdiagramm zur Abbrandprüfung

Mit der vorgegebenen anfänglichen Uranmasse und der Leistungsgeschichte wird der Abbrand berechnet. Wenn die Meß- und Rechenwerte des Abbrandes bis auf 5% (Unsicherheit bei der Rechnung vom Abbrand - siehe 3.4) übereinstimmen, wird die Abbrandangabe als glaubhaft angenommen. Wenn die Abweichung zwischen dem Meßwert und dem Rechenwert des Abbrandes größer als 5% ist, bedeutet dies: entweder der Abbrand wurde falsch gemessen oder/und die Angabe ( $U_0$ , Leistungsgeschichte) des Reaktorbetreibers ist falsch. Um eine Entscheidung zu treffen, werden die  $Xe^{132}/Xe^{131}$ -Relation und  $Cs^{134}/Cs^{137}$ -Relation eingesetzt. Die  $Xe^{132}/Xe^{131}$ -Relation ist hauptsächlich sensitiv bezüglich des Abbrandes (siehe Abschnitt 3.5.2). Wenn der Meßwert der  $Xe^{132}/Xe^{131}$ -Relation innerhalb des zugehörigen Unsicherheitsbandes von ca. 3% liegt, wird der Abbrand als glaubhaft angenommen und die Angabe des Reaktorbetreibers als falsch angenommen, denn diese falsche Angabe hat keinen Einfluß auf die  $Xe^{132}/Xe^{131}$ -Relation. Wenn der Meßwert der  $Xe^{132}/Xe^{131}$ -Relation außerhalb des Unsicherheitsbandes liegt, bedeutet dies: entweder wurde der Abbrand falsch gemessen oder/und das  $Xe^{132}/Xe^{131}$ -Verhältnis wurde falsch gemessen. Aus der graphischen Darstellung von  $Xe^{132}/Xe^{131}$  als Funktion des Abbrandes (Bu) wird der Abbrandwert  $Bu_1$  bestimmt, welcher dieser Funktion genügt. Wenn  $Bu_1$  gleich dem berechneten Abbrandwert ( $Bu_R$ ) ist, bedeutet dies aufgrund der Unabhängigkeit der  $Xe^{132}/Xe^{131}$ -Messung von der Abbrandbestimmung mit der Nd-Methode: der Abbrand des Brennstoffs hat den Wert  $Bu_R = Bu_1$  und der Meßwert des Abbrandes ist falsch.

Wenn  $Bu_1$  ungleich dem berechneten Abbrandwert  $Bu_R$  ist, kann keine Aussage gemacht werden, ob der Abbrand falsch gemessen wurde. In diesem Fall wird die  $Cs^{134}/Cs^{137}$ -Relation eingesetzt. Liegt der  $Cs^{134}/Cs^{137}$ -Meßwert innerhalb des zugehörigen theoretischen Unsicherheitsbandes von ca. 3% (vgl. Abschnitt 3.4), wird der Abbrandwert als glaubhaft angenommen. Liegt der  $Cs^{134}/Cs^{137}$ -Meßwert außerhalb des Unsicherheitsbandes, bedeutet dies: entweder wurde der Abbrand falsch gemessen oder/und das  $Cs^{134}/Cs^{137}$ -Verhältnis wurde falsch gemessen. Aus der graphischen Darstellung von  $Cs^{134}/Cs^{137}$  als Funktion des Abbrandes wird der Abbrandwert  $Bu_2$  bestimmt, welcher dieser Funktion genügt. Wenn  $Bu_2$  gleich dem berechneten

Abbrandwert ( $Bu_R$ ) ist, schließt man wegen der Unabhängigkeit der  $Cs^{134}/Cs^{137}$ -Messung von der Abbrandbestimmung mit der Nd-Methode: der Abbrand des Brennstoffs hat den Wert  $Bu_R = Bu_2$  und der Meßwert des Abbrandes ist falsch. Wenn  $Bu_2$  ungleich  $Bu_R$  ist, kann keine Aussage über die Richtigkeit des Abbrandwertes ohne eine Wiederholungsmessung der  $Xe^{132}/Xe^{131}$ -Relation oder der  $Cs^{134}/Cs^{137}$ -Relation gemacht werden.

Diese Prozedur sei an Hand eines Beispieles verdeutlicht: Von den gerechneten Abbrandwerten von 2 Brennelementen aus einem 1300 MWe-DWR wurden die Abbrandwerte willkürlich unterschiedlich stark verändert: Der Abbrandwert des Brennelements Nr. 2 wurde willkürlich um +10% verändert (siehe Tab. 4.1).

Brennelement-Nr.	Angenommene Werte des Abbrandes (GWd/tU) (Simulation von Meßwerten)	Berechnete Abbrandwerte (GWd/t U)	$\frac{E-C}{E} \times 100$
1	25.8	25.6	0.8
2	28.6	26.0	10.0

Tab. 4.1: Berechnete Abbrandwerte von 2 Brennelementen aus einem 1300 MWe-DWR. Simulation eines Fehlers bei der Abbrandmessung von Brennelement Nr. 2

Der angenommene Meßwert des Abbrandes des Brennelements Nr. 1 stimmt mit dem Rechenwert bis auf 5% überein und wird deshalb als glaubhaft angenommen.

Der Abbrandwert des Brennelements Nr. 2 wird als zweifelhaft identifiziert (Abweichung von 10% vom Rechenwert). Die  $Xe^{132}/Xe^{131}$ - und die  $Cs^{134}/Cs^{137}$ -Relation werden für das Brennelement Nr. 2 bestimmt - mit folgenden Ergebnissen:

Relation	Angenommener Meßwert	Rechenwert bei 28.6 GWd/t U-Abbrand
$Xe^{132}/Xe^{131}$	2.29	2.41
$Cs^{134}/Cs^{137}$	0.0829	0.0899

Der angenommene  $Xe^{132}/Xe^{131}$ -Meßwert ist ca. 5% kleiner als der Rechenwert bei 28.6 GWd/t U-Abbrand und entspricht dem  $Xe^{132}/Xe^{131}$ -Rechenwert bei 26.0 GWd/t U, d.h.  $Bu_1 = 26.0 \text{ GWd/t U} = Bu_R$ .

Der angenommene  $Cs^{134}/Cs^{137}$ -Meßwert ist ca. 8% kleiner als der Rechenwert bei 28.6 GWd/t U-Abbrand und entspricht dem  $Cs^{134}/Cs^{137}$ -Rechenwert bei 26.0 GWd/t U, d.h.  $Bu_2 = 26.0 \text{ GWd/t U} = Bu_R$ .

Daraus wird geschlossen: der Abbrand des Brennelements Nr. 2 wurde falsch (um 10% zu groß) gemessen.

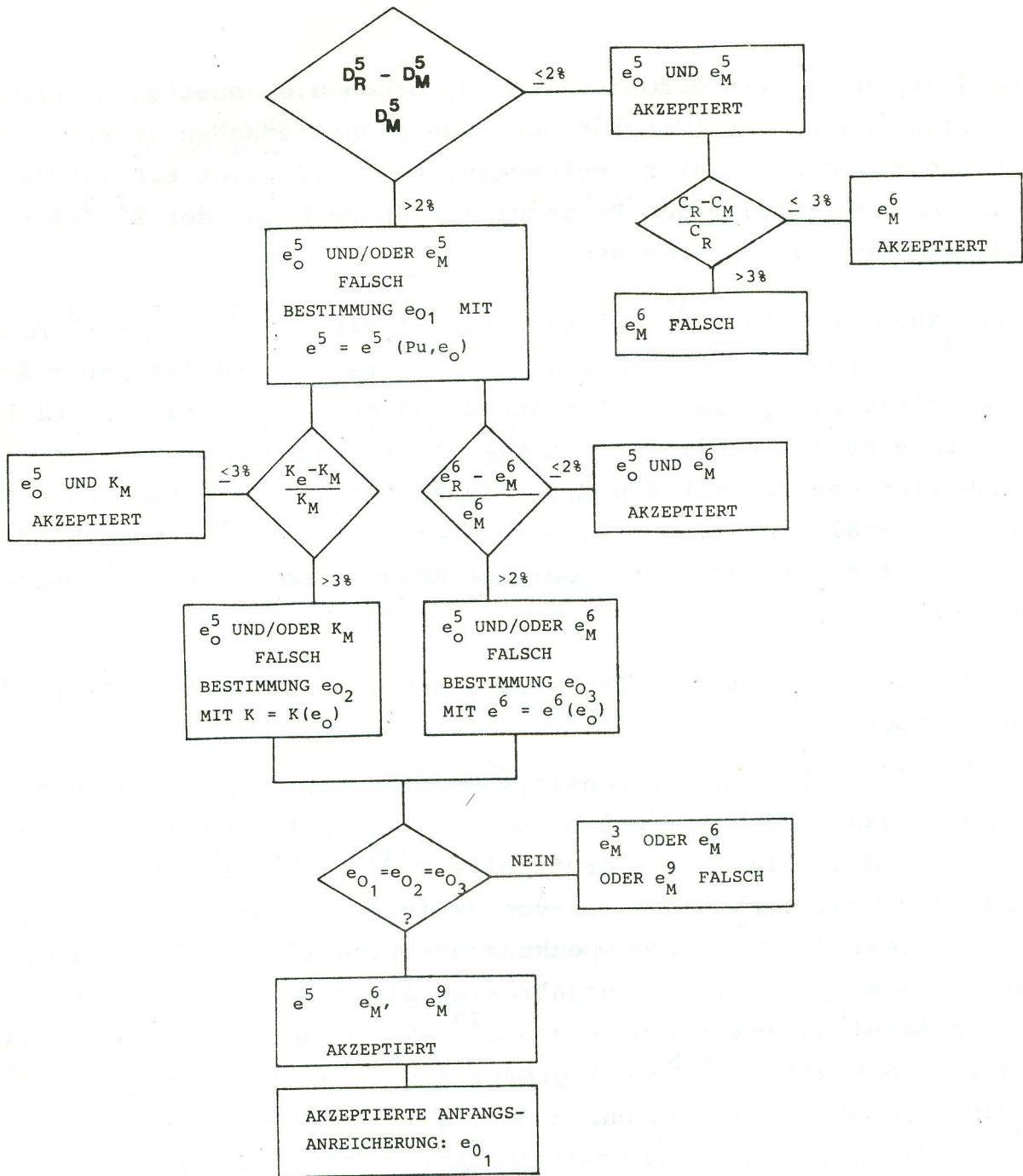
Nachdem die Abbrandangabe überprüft und akzeptiert wurde, muß die  $U^{235}$ -Anfangsanreicherung ( $\epsilon_0^5$ ) des Brennstoffs überprüft werden.

Diese Überprüfung ist erforderlich, um einen u.U. stattgefundenen Identifikationsfehler (Vertauschung von Brennelementen verschiedener Anfangsanreicherung) zu entdecken. Abb. 4.2 zeigt ein schematisches Ablaufdiagramm der Prozedur zur Überprüfung der  $U^{235}$ -Anfangsanreicherung des Brennstoffs.

Es wird zunächst die  $D^{235}$ -Relation eingesetzt ( $D^{235} = \epsilon_O^5 - \epsilon^5$  mit  $\epsilon_O^5 = U_O^{235}/U_O$  und  $\epsilon^5 = U^{235}/U$ ). Die  $U^{235}$ -Abreicherung ist hauptsächlich sensitiv bezüglich des Abbrandes und der  $U^{235}$ -Anfangsanreicherung (siehe Abschnitt 3.6). Wenn die Abweichungen zwischen den Rechenwerten und den mit den Meßanalysedaten ( $\epsilon^5$ ) ermittelten  $D^{235}$ -Werten innerhalb des zugehörigen theoretischen Unsicherheitsbandes von ca. 2% liegen, bedeutet dies: die Angaben von  $\epsilon_O^5$  und  $\epsilon^5$  werden akzeptiert.

Die  $U^{236}$ -Isotopenkonzentration wird anschließend mit der  $D^{235}/U^{236}$ -Relation überprüft.

Die  $D^{235}/U^{236}$ -Relation ist sensitiv bezüglich des Abbrandes und der  $U^{235}$ -Anfangsanreicherung, welche als richtig befunden wurden. Wenn der mit den Meßanalysedaten ermittelte  $D^{235}/U^{236}$ -Wert außerhalb des zugehörigen Unsicherheitsbandes von 3% (vgl. Abschnitt 3.5) liegt, bedeutet dies: die  $U^{236}$ -Isotopenkonzentration wurde falsch gemessen; andernfalls wird die  $U^{236}$ -Konzentration als richtig akzeptiert. Wenn die Abweichungen zwischen dem  $D^{235}$ -Rechenwert und dem mit den Meßdaten ermittelten  $D^{235}$ -Wert größer als 2% sind, bedeutet dies: entweder die  $U^{235}$ -Isotopenkonzentration ( $\epsilon^5$ ) wurde falsch gemessen und/oder die Anfangsanreicherung des Brennstoffs ist falsch. Um die Ursache der Abweichung aufzufinden, wird die folgende Prozedur benutzt: Die Relationen  $U^{236}/U$ ,  $(100 - Pu^{239})/D^{235}$  und  $U^{235}/U$ , welche selektive Sensitivität bezüglich der Anfangsanreicherung haben, werden zur Bestimmung der  $U^{235}$ -Anfangsanreicherung angewendet. Findet man mit diesen Relationen den gleichen Wert der  $U^{235}$ -Anfangsanreicherung  $\epsilon^*$ , so heißt das: die Meßwerte von  $U^{235}$ ,  $U^{236}$  und  $Pu^{239}$  werden als glaubhaft angenommen und die richtige Anfangsanreicherung des Brennstoffs ist  $\epsilon^*$ .



NOMENKLATUR

$$e_o^5 = \frac{U^{235}}{U_o}$$

$$e^5 = \frac{U^{235}}{U}$$

$$e^6 = \frac{U^{236}}{U}$$

$$e^9 = \frac{Pu^{239}}{Pu}$$

$$D^5 = e_o^5 - e^5$$

$$K = \frac{(100 - Pu^{239})}{D^5}$$

$$C = \frac{D^5}{e^6}$$

R: RECHENWERT

M: MESSWERT

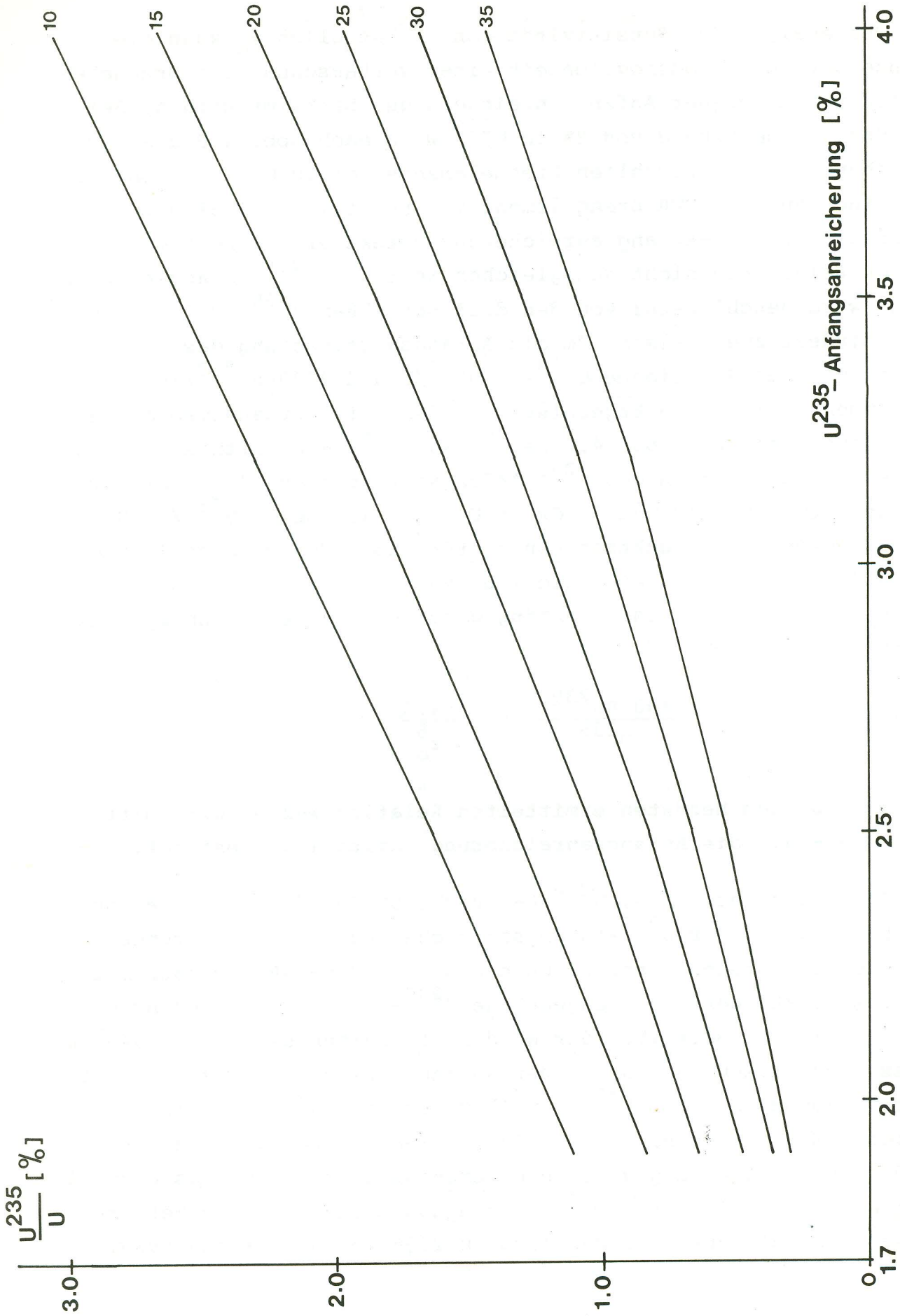
Abb. 4.2: Ablaufdiagramm zur Überprüfung der  $U^{235}$ -Anfangsanreicherung und der U-Isotopenzusammensetzung

Aus der Analyse der Sensitivität von  $\epsilon^5$  bezüglich  $\epsilon_0$  kann die Grenze der Detektionsmöglichkeit einer Vertauschung von Brennelementen verschiedener Anfangsanreicherungen bestimmt werden. Bei dem Unsicherheitsband von 2% in  $U^{235}$  wird nach Abb. 4.3 die Vertauschung eines bestrahlten Brennelements von 30 GWd/t U Abbrand mit einem anderen DWR-Brennelement von relativ ca. 1.5% unterschiedlicher  $U^{235}$ -Anfangsanreicherung detektiert. Findet man mit diesen Relationen nicht den gleichen Wert der  $U^{235}$ -Anfangsanreicherung, wird geschlossen: von den drei Meßgrößen  $U^{235}$ ,  $U^{236}$  und  $Pu^{239}$  sind mindest zwei falsch. Um die Anfangsanreicherung des Brennstoffs mit den Relationen  $U^{235}/U$ ,  $U^{236}/U$  und  $(100-Pu^{239})/D^{235}$  zu bestimmen, werden die Ergebnisse der Sensitivitätsanalyse dieser Relationen benutzt. Abb. 4.3 zeigt das  $U^{235}/U$ -Verhältnis (Gewichtsprozent) als Funktion der  $U^{235}$ -Anfangsanreicherung ( $\epsilon$  w/o) für Abbrände zwischen 10 und 35 GWd/t U. Abb. 4.4 zeigt  $U^{236}/U$  (Gewichtsprozent) als Funktion von  $\epsilon_0$  für Abbrände zwischen 10 und 35 GWd/t U. Abb. 4.5 zeigt die  $(100-Pu^{239})/D^{235}$ -Werte als Funktion von  $\epsilon_0$ . Die Funktion ist unabhängig vom Abbrand und kann approximiert werden durch:

$$(4.1) \quad \frac{(100-Pu^{239})}{D^{235}} = \frac{64.0}{\epsilon_0^5}$$

Mit den aus den Meßdaten ermittelten Relationswerten wird mittels Abb. 4.3 - 4.5 die Anfangsanreicherung unmittelbar bestimmt.

Die Anwendung der  $D^{235}$ -,  $U^{236}/U$ -, und  $(100-Pu^{239})/D^{235}$ -Relation zur Überprüfung der  $U^{235}$ -Anfangsanreicherung wird im folgenden am Beispiel von Brennelementen aus einem 1300 MWe-DWR demonstriert. Die vom Reaktorbetreiber angegebene  $U^{235}$ -Anfangsanreicherung beträgt 3.2%. Vom Betreiber der Wiederaufarbeitungsanlage wurden für jedes Brennelement gemessen: der Abbrand (wird als bereits verifiziert angenommen),  $U$ ,  $U^{235}/U$ ,  $U^{236}/U$ ,  $Pu$  und  $Pu^{239}/Pu$  (die angenommenen Meßwerte sind willkürlich veränderte Rechenwerte). Es wird eine Vertauschung von Brennelementen angenommen: das Brennelement Nr. 2 habe 2.5 statt 3.2% Anfangsanreicherung; die Meßwerte dieses Brennelements gehören also zu 2.5%-Anfangsanreicherung.



**ABB.43:**  $U^{235}/U$  als Funktion der Anfangsanreicherung für Abbrände zwischen 10 und 35 GWd/tU



**ABB.4-4:**  $U^{236}/U$  als Funktion der  $U^{235}$  - Anfangsanreicherung für Abbrände zwischen 10 und 35 GWd/tU

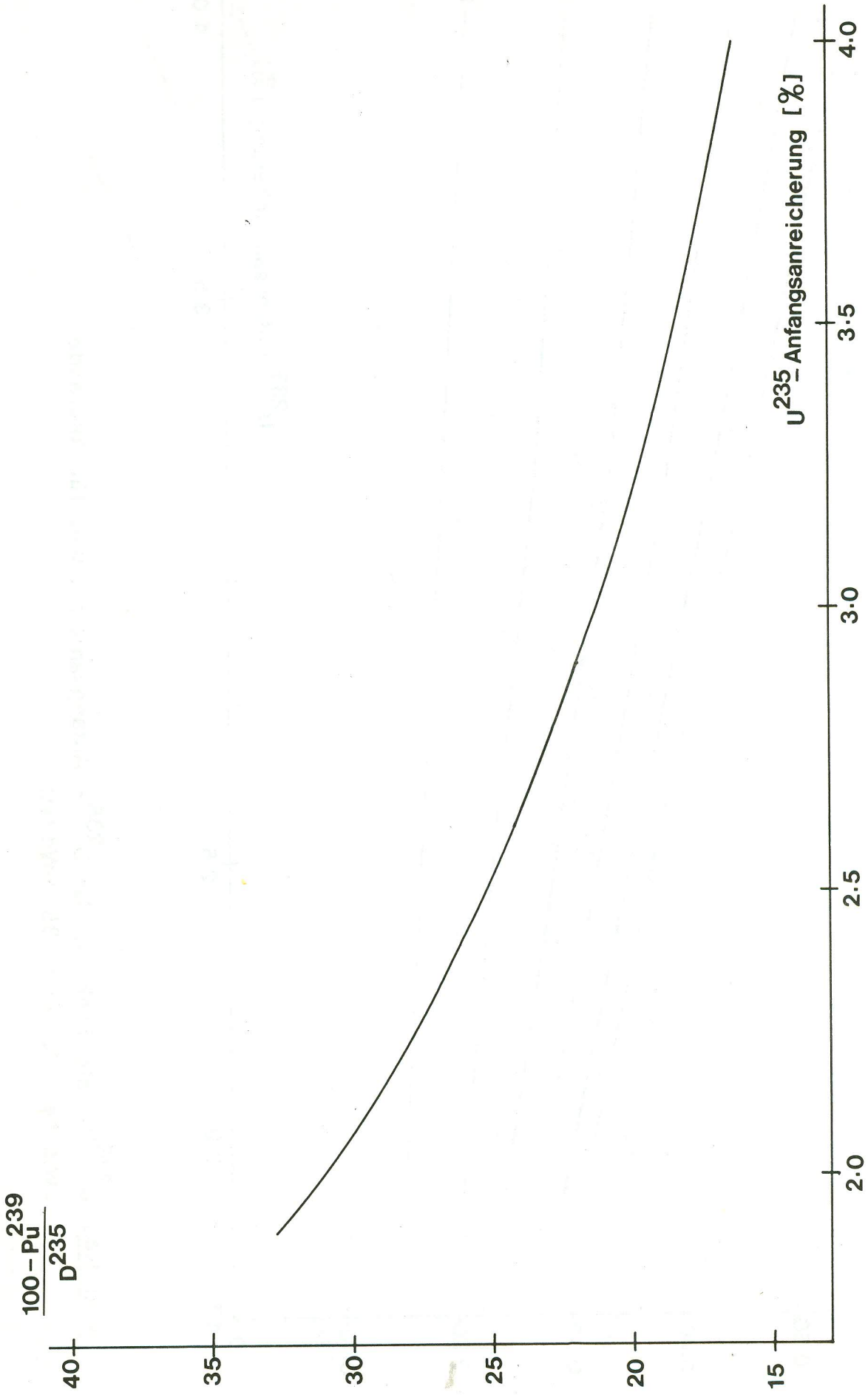


ABB.4-5:  $[\frac{100 - \text{Pu}^{239}}{\text{D}^{235}}] / \text{D}^{235}$  - Relation als Funktion der  $\text{U}^{235}$  Anfangsanreicherung für

Abbrände 20 - 40 GWd/tU

Tab. 4.2 zeigt die angenommenen Meßwerte und die Rechenwerte (bei den zugehörigen Abbränden) von  $\epsilon^5 = U^{235}/U$  und  $D^{235} = \epsilon_0^5 - \epsilon^5$  sowie die prozentualen Abweichungen zwischen Meß- und Rechenwerten.

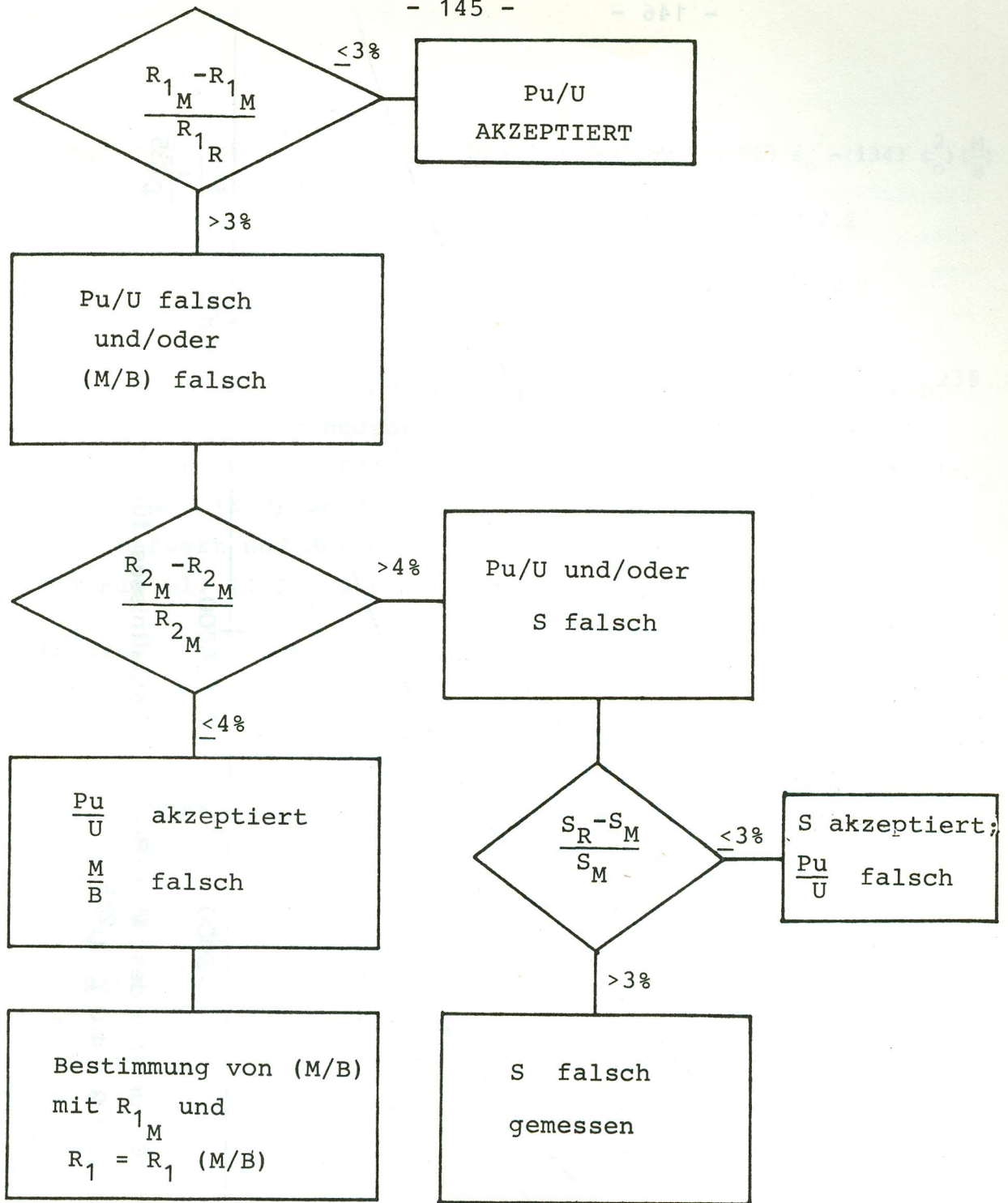
Brennelement Nr.	Abbrand (GWd/tU)	Angenommene $U^{235}/U$ -Meßwerte (%)	Berechnete $U^{235}/U$ Werte (%)	$\frac{C-E}{E} \times 100$ für $U^{235}/U$	Angenommene $D^{235}$ -Werte (%)	Berechnete $D^{235}$ -Werte (%)	$\frac{C-E}{E} \times 100$ für $D^{235}$
1	25.8	1.29	1.27	-1.6	1.91	1.93	1.0
2	25.0	0.82	1.32	61	2.38	1.88	-21.0

Tab. 4.2: Rechenwerte und angenommene Meßwerte von 2 Brennelementen aus einem 1300 MWe-DWR. Simulation einer Brennstoffvertauschung

Die angenommenen  $U^{235}/U$ - und  $D^{235}$ -Werte vom Brennelement Nr. 1 stimmen mit den Rechenergebnissen bis auf 2% überein und werden als glaubhaft akzeptiert. Der angenommene  $D^{235}$ -Wert von Brennelement Nr. 2 wird als zweifelhaft identifiziert (Abweichung von 21% vom Rechenwert). Man schließt: entweder ist die angegebene Anfangsanreicherung dieses Brennelements falsch oder/und die relative  $U^{235}$ -Konzentration (0.82) wurde falsch gemessen. Aus Abb. 4.3 entnimmt man: Bei 25 GWd/tU-Abbrand und  $U^{235}/U = 0.82$  beträgt die Anfangsanreicherung 2.5%.

Man betrachtet nun die angenommenen Werte von  $U^{236}/U$  und  $(100-Pu^{239})/D^{235}$  für das Brennelement Nr. 2:  $U^{236}/U = 0.330$  w/o und  $(100-Pu^{239})/D^{235} = 25.2$  (wenn man von einer Anfangsanreicherung  $\epsilon_0 = 2.5$  bei der  $D^{235}$ -Bestimmung ausgeht). Aus Abb. 4.4 entnimmt man: bei 25 GWd/tU-Abbrand und  $U^{236}/U = 0.330$  beträgt die Anfangsanreicherung 2.5%. Aus Abb. 4.5 entnimmt man: bei  $(100-Pu^{239})/D^{235} = 25.2$  beträgt die Anfangsanreicherung 2.5%. Aus diesen Ergebnissen und wegen der selektiven Sensitivität dieser Relationen bezüglich der  $U^{235}$ -Anfangsanreicherung, wird geschlossen: Die Messungen von  $U^{235}$ ,  $U^{236}$  und  $Pu^{239}$  sind richtig und die Anfangsanreicherung des Brennelements Nr. 2 beträgt 2.5%.

Nachdem die Abbrandangabe, die Angabe über die  $U^{235}$ -Anfangsanreicherung und über die U-Isotopenzusammensetzung überprüft und als glaubhaft angenommen wurden, werden auch das Pu/U-Verhältnis und die Angabe über den Reaktortyp überprüft. Abb. 4.6 zeigt ein schematisches Ablaufdiagramm zur Überprüfung des Pu/U-Verhältnisses. Es wird zunächst die  $(Pu/U)/D^{235}$ -Relation betrachtet. Sie ist sensitiv bezüglich der  $U^{235}$ -Anfangsanreicherung, welche bereits verifiziert wurde, und des Moderator/Brennstoff-Verhältnisses (M/B). Wenn die Abweichungen zwischen den  $(Pu/U)/D^{235}$ -Rechenwerten und den mit den Meßdaten ermittelten  $(Pu/U)/D^{235}$ -Werten innerhalb des zugehörigen theoretischen Unsicherheitsbandes von ca. 3% liegen, werden die Pu/U-Meßwerte als glaubhaft angenommen. Wenn ein  $(Pu/U)/D^{235}$ -Wert als zweifelhaft identifiziert ist, bedeutet dies: entweder ist Pu/U-Verhältnis falsch und/oder das M/B-Verhältnis wurde falsch angegeben. Zum Auffinden der Ursache des zweifelhaften  $(Pu/U)/D^{235}$ -wertes ist die  $(Pu/U)/S$ -Relation mit  $S = (Pu^{239}/Pu^{240} + Pu^{242}/Pu^{240})$  geeignet: Die  $(Pu/U)/S$ -Relation ist insensitiv bezüglich des M/B-Verhältnisses (vgl. 3.6). Die Unsicherheit bei der Rechnung von  $(Pu/U)/S$  beträgt ca. 4%. Wenn der  $(Pu/U)/S$ -Relationswert als zweifelhaft identifiziert wird und der Wert von S innerhalb des zugehörigen Unsicherheitsbandes von 3% liegt (vgl. 3.5), bedeutet dies: das Pu/U-Verhältnis ist falsch. In diesem Fall wird nur ein falsches M/B-Verhältnis als Grund für den abweichenden Wert von  $(Pu/U)/S$  ausgeschlossen, denn die  $(Pu/U)/S$ -Relation hängt nicht vom M/B-Verhältnis ab. Wenn der  $(Pu/U)/S$ -Wert innerhalb des zugehörigen Unsicherheitsbandes liegt, bedeutet dies: Pu/U ist richtig und das M/B-Verhältnis wurde falsch angegeben. Das richtige M/B-Verhältnis wird aus der Analyse der Sensitivität der  $(Pu/U)/D^{235}$ -Relation bezüglich des M/B-Verhältnisses folgenderweise ermittelt: Abb. 4.7 zeigt die  $(Pu/U)/D^{235}$ -Relation als Funktion des M/B-Verhältnisses für Anfangsanreicherungen von 1.9 bis 4.0%. Diese Funktion wird nach der "Methode der kleinsten Quadrate" bestimmt zu:



Nomenklatur

$$R_1 = \frac{(Pu/U)}{D^{235}} \quad S = \frac{Pu^{239}}{Pu^{240}} \cdot \frac{Pu^{242}}{Pu^{240}} \quad R_2 = \frac{(Pu/U)}{S}$$

M/B = Moderator/Brennstoff-Verhältnis

Abb. 4.6: Ablaufdiagramm zur Überprüfung des Pu/U-Verhältnisses und des M/B-Verhältnisses

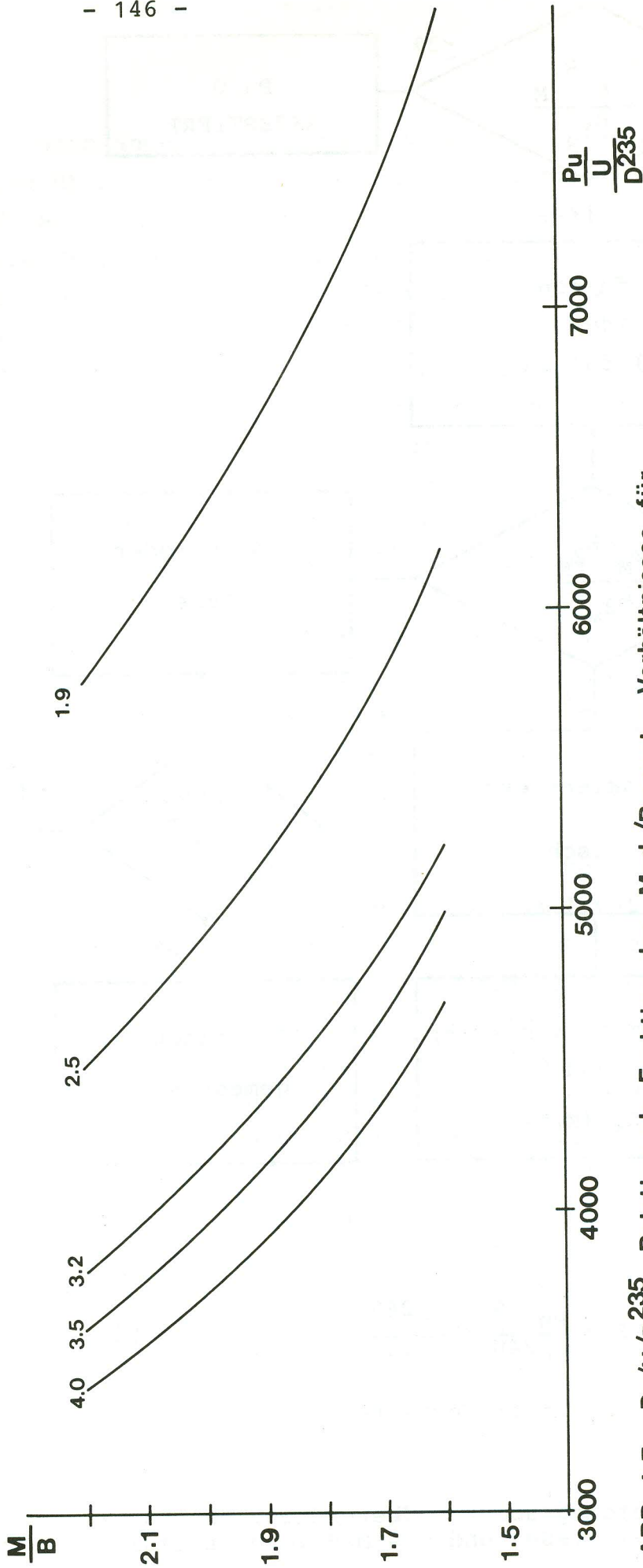


ABB. 4-7:  $\frac{Pu}{U} / D^{235}$  - Relation als Funktion des Mod./Brennst. - Verhältnisses für Anfangsanreicherungen 1.9 - 4.0 % - U<sup>235</sup>

$$(4.2) \quad \frac{(Pu/U)}{D^{235}} = (48862 - 17738 \epsilon_0 + 2236 \epsilon_0^2) + (-29259 + 10663 \epsilon_0 - 1343 \epsilon_0^2) \left(\frac{M}{B}\right) + (5653 - 2058 \epsilon_0 + 259 \epsilon_0^2) \left(\frac{M}{B}\right)^2 \quad \text{für} \quad \begin{matrix} 1.6 \leq \frac{M}{B} \leq 2.2 \\ 1.9 \leq \epsilon_0 \leq 4.0 \end{matrix}$$

Im betrachteten (M/B)-Änderungsbereich ist die Funktion (Pu/U)/D<sup>235</sup> monoton (Abb. 4.7). Dies bedeutet: Für eine bestimmte Anfangsanreicherung und für einen (Pu/U)/D<sup>235</sup>-Wert gibt es nur einen (M/B)-Wert, der der Gl. (4.2) genügt. Damit ist es möglich, mit dem (Pu/U)/D<sup>235</sup>-Meßwert und der U<sup>235</sup>-Anfangsanreicherung das (M/B)-Verhältnis mit Gl. (4.2) zu bestimmen.

Außerhalb des betrachteten M/B-Änderungsbereiches (1.6-2.2) gilt Gl. 4.2 nicht. Mit zunehmenden M/B-Werten werden die (Pu/U)/D<sup>235</sup>-Werte für eine bestimmte Anfangsanreicherung stets kleiner: Für  $\epsilon_0 = 3.2\%$  bewirkt die Zunahme des (M/B)-Verhältnisses von 2.0 auf 3.0 und 4.0 (übermoderiertes Brennelement) eine Abnahme des (Pu/U)/D<sup>235</sup>-Wertes um 29% bzw. 40%.

Mit der oben beschriebenen Prozedur hat man also die Möglichkeit:

- innerhalb von  $1.6 \leq M/B \leq 2.2$  den richtigen M/B-Wert des Brennelementes zu bestimmen
- außerhalb von  $1.6 \leq M/B \leq 2.2$  auszusagen, ob das Brennelement sich in einem übermoderierten (M/B > 2.2) oder untermoderierten (M/B < 1.6) Bereich befand.

Mit der beschriebenen Prozedur kann man nicht festlegen, ob das ermittelte M/B-Verhältnis durch eine Variation des Brennstababstandes oder des Pelletdurchmessers verursacht wird. Aus der Analyse der Sensitivität von (Pu/U)/D<sup>235</sup> bezüglich des M/B-Verhältnisses kann die Grenze der Detektionsmöglichkeit einer Vertauschung von Brennelementen verschiedener M/B-Verhältnisse bestimmt werden. Bei dem Unsicherheitsband von 3% in (Pu/U)/D<sup>235</sup> wird nach Abb. 4.7 die Vertauschung eines Brennelements von 3.0% U<sup>235</sup>-Anfangsanreicherung und 30 Gwd/t U mit einem anderen Brennelement von ca. 3% unterschiedlichem M/B-Verhältnis detektiert.

Die Überprüfung des Pu/U-Verhältnisses sei am Beispiel von 2 Brennelementen aus einem 1300-MWe-DWR ( $M/B = 2$ ) demonstriert. Es wird angenommen, daß die Abbrände, die  $U^{235}$ -Anfangsanreicherung und die U-Isotopenzusammensetzung bereits verifiziert wurden. Es wird angenommen, daß das Brennelement Nr. 1 ein größeres M/B-Verhältnis ( $M/B = 2.1$ ) als das angegebene hat. Tab. 4.4 zeigt die angenommenen Meßwerte (willkürlich veränderte Rechenwerte) und die berechneten Werte von  $(Pu/U)$  und  $(Pu/U)/D^{235}$  sowie die entsprechenden Abweichungen.

Brenn- element Nr.	Angenom- mene Pu/U- Werte (g/t)	Berechne- te Pu/U- Werte (g/t)	$\frac{C-E}{E} \times 100$ für Pu/U	Angenom- mene $(Pu/U)/D^{235}$ (g/t/%)	Berech- nete $(Pu/U)/D^{235}$ (g/t/%)	$\frac{C-E}{E} \times 100$ für $\frac{Pu/U}{D^{235}}$
1	7940	8550	7.7	3950	4212	6.6
2	8235	8150	-1.0	4180	4201	0.5

Tab. 4.4: Angenommene Meßwerte und berechnete Werte von Pu/U und  $(Pu/U)/D^{235}$  für das Beispiel der Überprüfung von Pu/U mit der  $(Pu/U)/D^{235}$ -Relation

Der angenommene Meßwert von  $(Pu/U)/D^{235}$  des Brennelements Nr. 2 ist konsistent mit der Rechnung und wird als glaubhaft angenommen. Der angenommene  $(Pu/U)/D^{235}$ -Meßwert des Brennelements Nr. 1 weicht um ca. 7% vom Rechenwert ab und wird als zweifelhaft identifiziert. Die möglichen Ursachen für die Abweichung sind: der angenommene  $(Pu/U)$ -Meßwert ist falsch und/oder das M/B-Verhältnis des Brennelementes Nr. 1 wurde falsch angegeben. Man betrachtet die angenommenen Meßwerte und die berechneten Werte von  $(Pu/U)/S$  mit  $S = (Pu^{239}/Pu^{240} \cdot Pu^{242}/Pu^{240})$  für das Brennelement Nr. 1:

	Angenommener Meßwert (E)	Rechenwert (C)	$\frac{C-E}{E} \times 100$
(Pu/U) / S	18422	17924	-2.7

Die Abweichung (2.7%) zwischen dem angenommenen Meßwert und dem Rechenwert von (Pu/U)/S liegt innerhalb der Unsicherheit von ca. 4% bei der Rechnung. Es wird damit das Pu/U-Verhältnis als glaubhaft angenommen und geschlossen: das M/B-Verhältnis des Brennelements Nr. 1 wurde falsch angegeben. Mit dem angenommenen (Pu/U)/D<sup>235</sup>-Meßwert (3950 g/t/%) und mit der Anfangsanreicherung (3.2% U<sup>235</sup>) findet man aus Abb. 4.7 oder über Gl. (4.2) das richtige M/B-Verhältnis (M/B = 2.1) des Brennelements Nr. 1.

Zusammenfassend läßt sich das erarbeitete Konzept zur Anwendung der Isotopenrelationen wie folgt darstellen:

A) Zielsetzung des Konzepts:

Verifikation durch den Inspektor von Meßdaten bestrahlter Kernbrennstoffe am Eingang der Wiederaufarbeitungsanlage und Überprüfung der Angabe über Anfangsanreicherung ( $\epsilon_0$ ) und Reaktortyp (M/B-Verhältnis) zur Identifikation von Brennstoffvertauschungen.

B) Voraussetzungen:

B1): Angaben vom Reaktorbetreiber:  $\epsilon_0$ , M/B, Bestrahlungsgeschichte (L),  $U_0$

B2): Angaben vom Betreiber der Wiederaufarbeitungsanlage: U, Pu oder Pu/U,  $U^5/U$ ,  $U^6/U$ ,  $Pu^j/Pu$   $j=9, \dots, 2$ ; Abbrand (Bu)

B3): Theoretische Standards der Relationen:  $D^{235}(\epsilon_0, Bu)$ ,  $U^{235}/U(\epsilon_0, Bu)$ ,  $U^{236}/U(\epsilon_0, Bu)$ ,  $100 - Pu^{239}/D^{235}(\epsilon_0)$ ,  $D^{235}/U^{236}(\epsilon_0)$ ,  $Pu/U/D^{235}(\epsilon_0, M/B)$ ,  $Pu^{239}/Pu^{240} \cdot Pu^{242}/Pu^{240}(Bu, \epsilon_0, M/B)$ ,  $Pu/U/\frac{Pu^{239}}{Pu^{240}} \cdot \frac{Pu^{242}}{Pu^{240}}(Bu)$ ,  $Xe^{132}/Xe^{131}(Bu)$ ,  $Cs^{134}/Cs^{137}(Bu, L)$

B4): Messungen vor Ort (Wiederaufarbeitungsanlage) der Relationen:  $Xe^{132}/Xe^{131}$  und  $Cs^{134}/Cs^{137}$

C) Prozedur: Siehe Abb. 4.1, 4.2 und 4.6

D) Grenzen des Konzepts:

D1): Wenn Abbrandbestimmung aus  $\text{Nd}$ ,  $\text{Cs}^{134}/\text{Cs}^{137}$ -Meßwert,  $\text{Xe}^{132}/\text{Xe}^{131}$ -Meßwert,  $U_0$  und Leistungsgeschichte gleichzeitig falsch sind, wird diese Situation zwar vom Konzept identifiziert; eine konkrete Aussage über die Größe des Fehlers kann aber nicht gemacht werden. Der Inspektor muß in diesem Fall das  $\text{Cs}^{134}/\text{Cs}^{137}$ - oder  $\text{Xe}^{132}/\text{Xe}^{131}$ -Verhältnis noch einmal messen.

D2): Eine Vertauschung von einem bestrahlten Brennelement mit einem anderen DWR-Brennelement von ca. 3% unterschiedlichem M/B-Verhältnis wird detektiert. Bei Vertauschungen von Brennelementen mit  $1.6 \leq M/B \leq 2.2$  wird der richtige M/B-Wert bestimmt. Bei Vertauschungen von Brennelementen mit  $M/B > 2.2$  oder  $M/B < 1.6$  wird nur ausgesagt, ob das Brennelement sich in einem übermoderierten oder untermoderierten Bereich befand.

D3): Eine Vertauschung von einem bestrahlten Brennelement mit einem anderen DWR-Brennelement von relativ ca. 1.5% unterschiedlicher  $U^{235}$ -Anfangsanreicherung wird detektiert.

Nachdem ein Konzept bei der Anwendung der Isotopenrelationen erarbeitet wurde, wird in Kapitel 5 auf die experimentelle Absicherung des Konzepts eingegangen.

## 5. Experimentelle Absicherung des Konzepts zur Anwendung von Isotopenrelationen

Gegenstand dieses Kapitels ist die experimentelle Absicherung des in Kapitel 4 erarbeiteten Konzepts zur Überprüfung der Meßanalysedaten abgebrannter Brennstoffe und zur Identifikation von Brennstoffvertauschungen. Die Absicherung des Konzepts erfolgt an Hand von Meßergebnissen aus chemischen Analysen aufgelöster Brennelemente aus verschiedenen Druckwasserreaktoren mit Hilfe weniger in der Literatur verfügbaren Beispiele von Meßfehlern bei den Analysen.

Das Konzept wird zunächst zur Überprüfung der Abbrandangabe angewendet. Man benutzt dazu die Meßanalysedaten des Batches Nr. 91 vom KWO-Reaktor. Dieses Batch wurde in dieser Untersuchung ausgewählt, weil seine Leistungsgeschichte und die Meßwerte des Abbrandes, des  $\text{Xe}^{132}/\text{Xe}^{131}$ - und  $\text{Cs}^{134}/\text{Cs}^{137}$ -Verhältnisses vorliegen. Das Batch 91 hat nach Angabe des Brennelementherstellers 3.13%  $\text{U}^{235}$ -Anfangsanreicherung. Der Meßwert des Abbrandes beträgt 27985 MWd/t U. Der Rechenwert des Abbrandes unter Verwendung der Leistungsgeschichte und der anfänglichen Uranmasse beträgt 28550 MWd/t U. Der Unterschied von ca. 2% zwischen dem Meßwert und dem Rechenwert des Abbrandes liegt innerhalb des zugehörigen Unsicherheitsbandes von 5%. Somit wird der Meßwert des Abbrandes akzeptiert.

Die Überprüfung der  $\text{Xe}^{132}/\text{Xe}^{131}$ - und der  $\text{Cs}^{134}/\text{Cs}^{137}$ -Relation liefert eine weitere Bestätigung des Abbrandwertes. Die Meßwerte dieser Relationen sind /46 /:  $\text{Xe}^{132}/\text{Xe}^{131} = 2.402$  und  $\text{Cs}^{134}/\text{Cs}^{137} = 1.146$ . Die Meßwerte der  $\text{Xe}^{132}/\text{Xe}^{131}$ - und der  $\text{Cs}^{134}/\text{Cs}^{137}$ -Relation weichen ca. 1% und 1.5% von den berechneten Werten ab (s. Abb. 5.1 und 5.2). Ein Meß- oder Buchführungsfehler (z.B. von 10%) bei der Abbrandbestimmung wäre mit Sicherheit nach Abb. 5.1 und Abb. 5.2 von der  $\text{Xe}^{132}/\text{Xe}^{131}$ - und der  $\text{Cs}^{134}/\text{Cs}^{137}$ -Relation entdeckt worden: In diesem Fall würden die Meßwerte dieser Relationen ca. 6% und 12% von den Rechenwerten nach Abb. 5.1 und 5.2 abweichen. Darüber hinaus hätte man den nominalen Abbrandwert mit den Relationen  $\text{Xe}^{132}/\text{Xe}^{131}$  und  $\text{Cs}^{134}/\text{Cs}^{137}$  mit einer Genauigkeit von ca. 2.5% bzw. 0.5% ermitteln können.

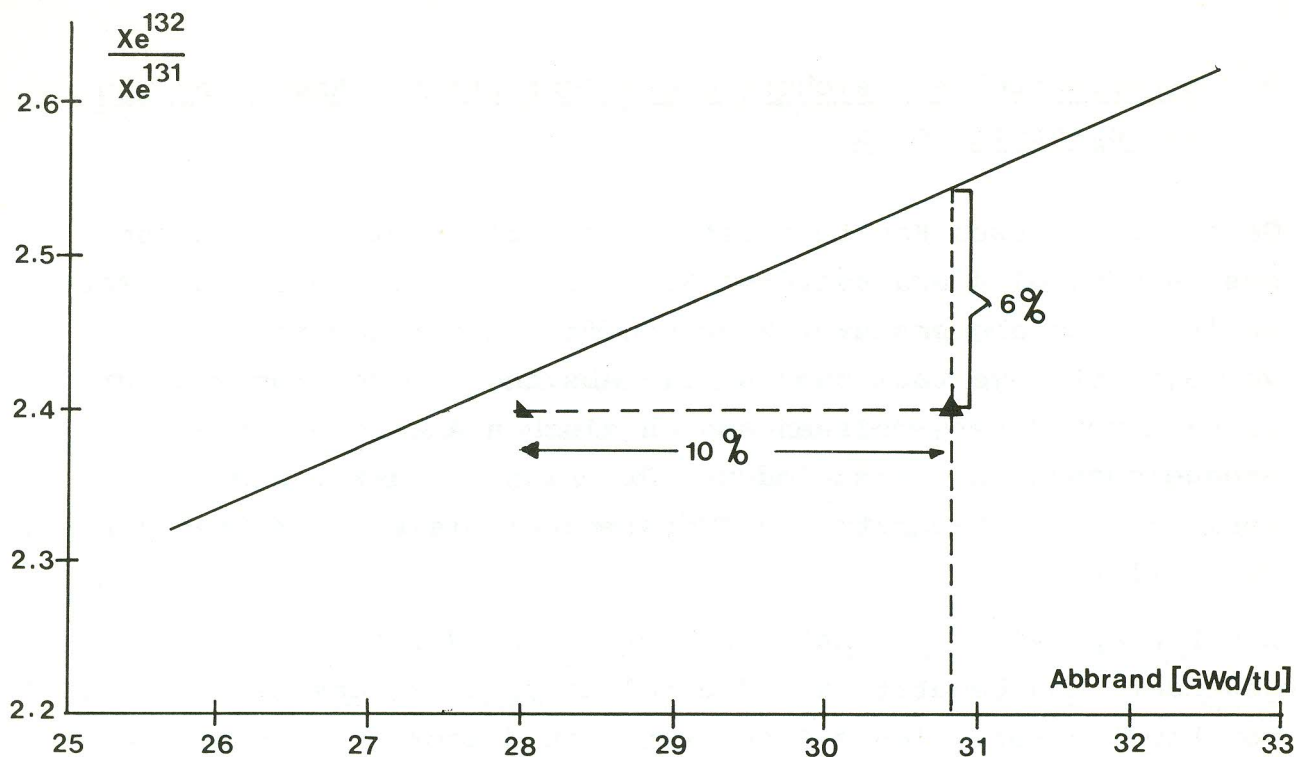


Abb. 5.1:  $Xe^{132}/Xe^{131}$  als Funktion vom Abbrand,  
▲ = Meßwert für KWO-Batch Nr. 91

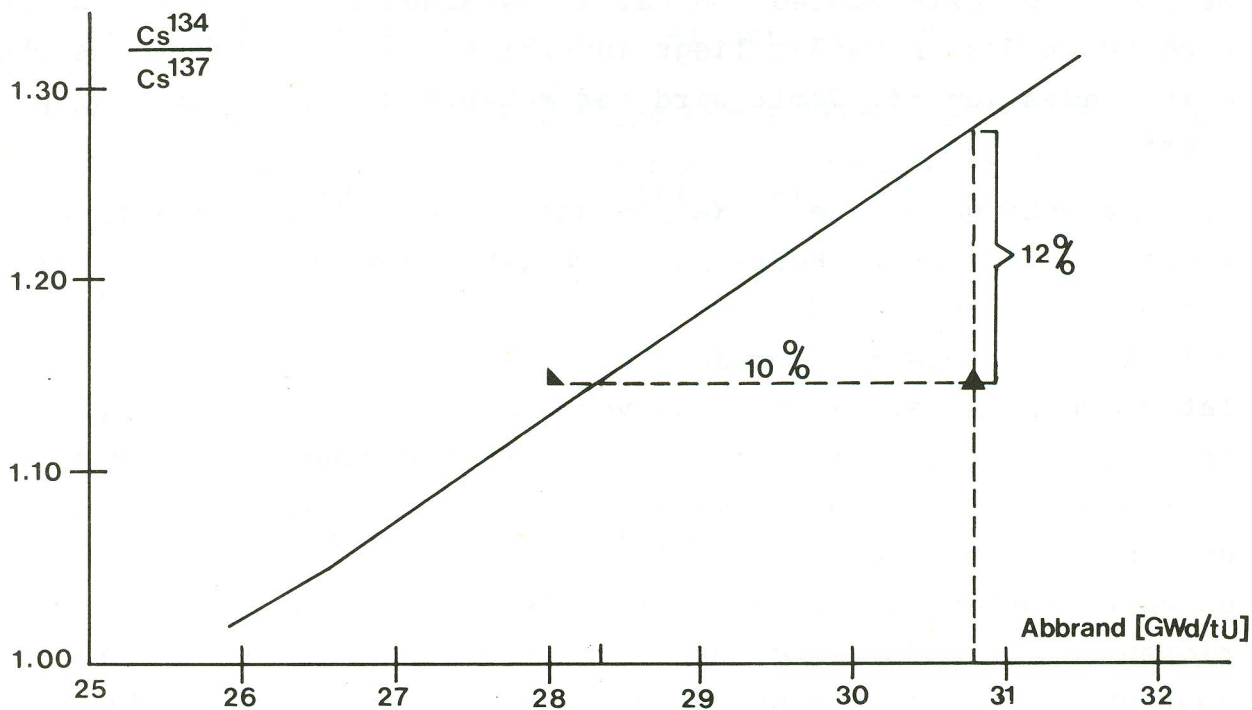


Abb. 5.2:  $Cs^{134}/Cs^{137}$  als Funktion vom Abbrand,  
▲ = Meßwert für KWO-Batch Nr. 91

Das Konzept wird im folgenden zur Überprüfung des Meßwertes der  $\text{Xe}^{132}/\text{Xe}^{131}$ -Relation für das Batch Nr. 86 aus dem KWO-Reaktor angewendet. Es wurde beobachtet, daß der  $\text{Xe}^{132}/\text{Xe}^{131}$ -Meßwert ca. 10% kleiner als die  $\text{Xe}^{132}/\text{Xe}^{131}$ -Meßwerte für die anderen Batches der gleichen Wiederaufarbeitungskampagne ist. Es besteht damit der Verdacht auf einen Meßfehler. Es wird zunächst der Abbrand des Batches Nr. 86 berechnet und mit dem Abbrandmeßwert verglichen. Tab. 5.1 zeigt den Meß- und den Rechenwert des Abbrandes des Batches Nr. 86.

Abbrand (Gwd/t U)			$\text{Xe}^{132}/\text{Xe}^{131}$		
Messung	Rechnung	$\frac{R-M}{M} \times 100$	Messwert	Rechenwert	$\frac{R-M}{M} \times 100$
29.35	28.79	-1.9	2.228	2.442	7

Tab. 5.1: Meß- und Rechenwerte des Abbrandes und des  $\text{Xe}^{132}/\text{Xe}^{131}$ -Verhältnisses für das Batch Nr. 86 aus dem KWO-Reaktor

Der Unterschied von 1.9% zwischen dem Meß- und dem Rechenwert des Abbrandes liegt innerhalb des zugehörigen Unsicherheitsbandes von 5%. Somit wird der Meßwert des Abbrandes des Batches Nr. 86 akzeptiert. Nachdem der Abbrand überprüft und akzeptiert wurde, wird der  $\text{Xe}^{132}/\text{Xe}^{131}$ -Meßwert mit dem Rechenwert in Tab. 5.1 verglichen. Der Unterschied von 7% zwischen dem Meß- und dem Rechenwert von  $\text{Xe}^{132}/\text{Xe}^{131}$  liegt außerhalb des zugehörigen Unsicherheitsbandes von 3%. Man schließt: das  $\text{Xe}^{132}/\text{Xe}^{131}$ -Verhältnis für das Batch 86 wurde falsch gemessen, da dieses Verhältnis nur vom Abbrand abhängt, welcher bereits verifiziert wurde. Es wurde festgestellt /67 /, daß die Inhomogenität der Meßprobe zu diesem Meßfehler geführt hat.

Das Konzept wird im folgenden zur Überprüfung der Messungen der U-Isotopenzusammensetzung von zwei Batches aus dem SENA-Reaktor angewendet. Die Batches Nr. 1000 und 1200 haben nach Angabe des Brennelementherstellers 3.358%  $\text{U}^{235}$ -Anfangsanreicherung. Die akzeptierten Abbrände des Batches Nr. 1000 und 1200 betragen 20612 und 19655 MWd/t U. Tab. 5.2 zeigt die Meß- und Rechenwerte der relativen  $\text{U}^{235}$ -Konzentration ( $\text{U}^{235}$ ) und der  $\text{U}^{235}$ -Abreicherung ( $D^{235}$ ) sowie die entsprechenden prozentualen Abweichungen.

Batch Nr.	$U^{235}$ [%]			$D^{235}$ [%]		
	Messung	Rechnung	$\frac{R-M}{M}$ %	Messung	Rechnung	$\frac{R-M}{M}$ (%)
1000	1.728	1.710	-1.0	1.630	1.648	1.1
1200	1.769	1.750	-1.1	1.589	1.608	1.2

Tab. 5.2: Meß- und Rechenwerte der relativen  $U^{235}$ -Konzentration und der  $U^{235}$ -Abreicherung von Batches aus dem SENA-Reaktor

Die Abweichungen zwischen den Meß- und Rechenwerten von  $U^{235}$  und  $D^{235}$  liegen innerhalb des zugehörigen Unsicherheitsbandes: Die Angaben von der  $U^{235}$ -Anfangsanreicherung und von der relativen  $U^{235}$ -Konzentration werden somit akzeptiert.

Die Messungen der relativen  $U^{236}$ -Konzentration ( $U^{236}$ ) werden anschließend mit der  $D^{235}/U^{236}$ -Relation überprüft. Tab. 5.3 zeigt die Meß- und Rechenwerte der relativen  $U^{236}$ -Konzentration und der  $D^{235}/U^{236}$ -Relation sowie die entsprechenden prozentualen Abweichungen.

Batch- Nr.	$U^{236}$ [%]			$\frac{D^{235}}{U^{236}}$ [%]		
	Messung	Rechnung	$\frac{R-M}{M}$ %	Messung	Rechnung	$\frac{R-M}{R}$ (%)
1000	0.395	0.327	-17.2	4.127	5.040	22
1200	0.372	0.320	-14.0	4.272	5.025	18

Tab. 5.3: Meß- und Rechenwerte der relativen  $U^{236}$ -Konzentration und der  $D^{235}/U^{236}$ -Relation von Batches aus dem SENA-Reaktor

Die Abweichungen zwischen dem mit den Meßdaten bestimmten  $D^{235}/U^{236}$ -Relationswert und dem Rechenwert liegen außerhalb des zugehörigen Unsicherheitsbandes. Man schließt damit: die relative  $U^{236}$ -Konzentration von den Batches Nr. 1000 und 1200 wurde falsch gemessen;

die von der Isotopenrelationstechnik vorausgesagten nominalen Werte der  $U^{236}$ -Konzentration sind  $0.327 \pm 3\%$  für das Batch Nr. 1000 und  $0.320 \pm 3\%$  für das Batch Nr. 1200.

Die Messungen der relativen  $U^{236}$ -Konzentration von Batches Nr. 1000 und 1200 wurden in einem zweiten Labor wiederholt / 43/ mit den folgenden Ergebnissen:  $U^{236}$  [Batch Nr. 1000] = 0.332 und  $U^{236}$  [Batch Nr. 1200] = 0.324. Mit diesen Werten ergeben sich die folgenden  $D^{235}/U^{236}$ -Werte:  $D^{235}/U^{236} = 4.910$  für Batch Nr. 1000 und  $D^{235}/U^{236} = 4.904$  für Batch Nr. 1200. Diese  $D^{235}/U^{236}$ -Werte stimmen bis auf 2.5% mit den  $D^{235}/U^{236}$ -Rechenwerten überein, so daß die U-Isotopenzusammensetzung jetzt als richtig angenommen werden kann. Die Wiederholungsmessung der relativen  $U^{236}$ -Konzentration des Batches Nr. 1000 und 1200 haben die Aussagen der Isotopenrelationstechnik bestätigt.

Das Konzept bei der Anwendung von Isotopenrelationen wird im folgenden zur Identifikation von zufälligen Brennstoffvertauschung eingesetzt.

27 Brennelemente von 3.13%  $U^{235}$ -Anfangsanreicherung und 3 Brennelemente von 3.897%  $U^{235}$ -Anfangsanreicherung mit ca. 20 GWD/t U-Abbrand wurden zur Wiederaufarbeitung in eine Wiederaufarbeitungsanlage transportiert / 43 /. Die 27 Brennelemente von 3.13%  $U^{235}$ -Anfangsanreicherung wurden aufgelöst und 9 Batches von je 3 Brennelementen wurden gebildet. Es wurde bei der Eingangsmeßanalyse beobachtet, daß die relative  $U^{235}$ -Konzentration des Batches Nr. 1100 der Wert ( $\epsilon^5 = 2.192\%$ ) ca. 40% größer als die von den anderen Batches ist. Es bestand deshalb der Verdacht auf eine Vertauschung der Brennelemente von 3.13%  $U^{235}$ -Anfangsanreicherung mit den Brennelementen von 3.897%  $U^{235}$ -Anfangsanreicherung. Um die Ursache für den abweichenden Wert der relativen  $U^{235}$ -Konzentration des Batches Nr. 600 zu finden, werden die theoretischen Werte der Relationen  $U^{235}/U$  und  $(100 - Pu^{239})/D^{235}$  eingesetzt. Der verifizierte Abbrand des Batches Nr. 1100 hat den Wert 21654 MWD/t U. Für die Anfangsanreicherung von 3.897%  $U^{235}$  ergibt sich aus dem Verlauf der  $U^{235}/U$ -Relation mit der  $U^{235}$ -Anfangsanreicherung nach Abb. 5.3 ein Wert von 2.160% für die relative  $U^{235}$ -Konzentration für das Batch Nr. 1100. Dieser Wert stimmt bis auf 1.5% mit dem Meßwert der relativen  $U^{235}$ -Konzentration des Batches Nr. 1100 überein.

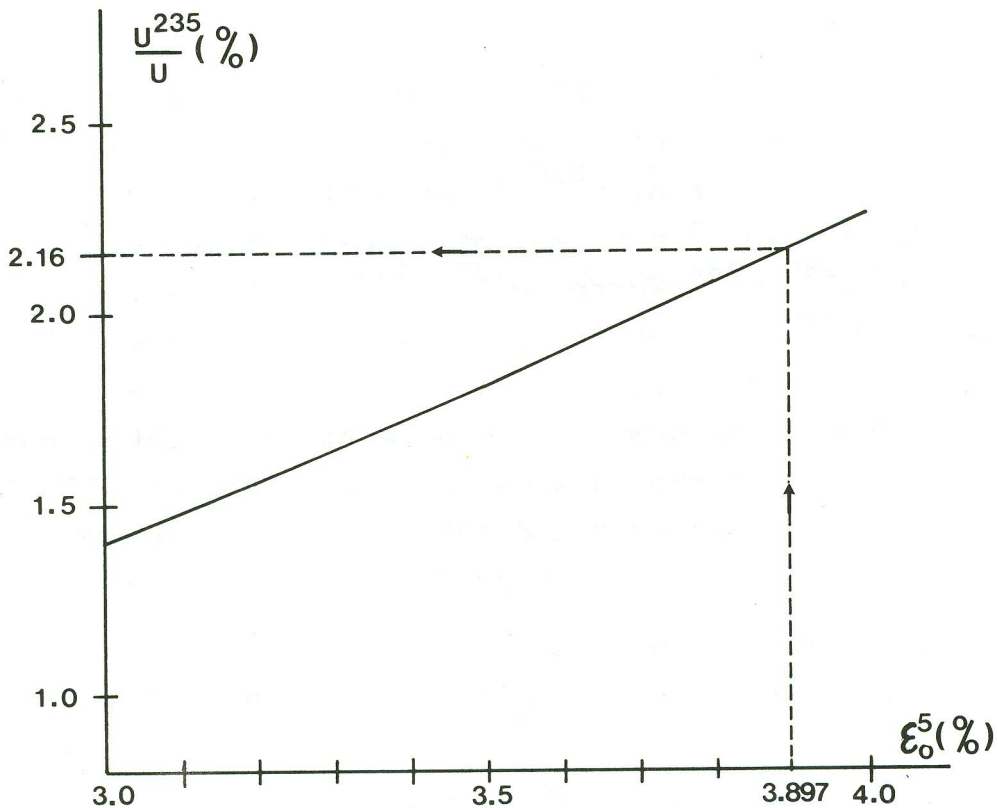


Abb. 5.3: Relative  $U^{235}$ -Konzentration als Funktion der  $U^{235}$ -Anfangsanreicherung ( $\epsilon_0^5$ ) bei 21654 MWd/t U-Abbrand

Für die Anfangsanreicherung von 3.897%  $U^{235}$  ergibt sich aus Gl. 4.1  $(100 - Pu^{239})/D^{235} = 64/\epsilon_0^5$  ein Wert von 71.99% für die relative  $Pu^{239}$ -Konzentration des Batches Nr. 1100. Dieser Wert stimmt bis auf 1.3% mit dem Meßwert der relativen  $Pu^{239}$ -Konzentration ( $Pu^{239} = 71.042\%$ ) überein. Bei Einsatz der Isotopenrelationstechnik wird geschlossen, daß die Meßwerte von  $U^{235}$  und  $Pu^{239}$  des Batches Nr. 1100 zu einer  $U^{235}$ -Anfangsanreicherung von 3.897% gehören, so daß eine Vertauschung von Brennelementen von 3.13%  $U^{235}$ -Anfangsanreicherung mit Brennelementen von 3.897% stattgefunden hat. Dies wurde am Ende der Wiederaufarbeitungskampagne bei der Auflösung der 3 Brennelemente mit 3.897%  $U^{235}$ -Anfangsanreicherung bestätigt.

Das Konzept bei der Anwendung von Isotopenrelationen wird im folgenden zur Identifikation einer Vertauschung von Brennelementen gleicher  $U^{235}$ -Anfangsanreicherung aus verschiedenen Reaktoren (verschiedene M/B-Verhältnisse) eingesetzt.

Im Lagerbecken einer Wiederaufarbeitungsanlage liegen Brennelemente aus dem TRINO-Reaktor und aus dem KWO-Reaktor gleicher Anfangsanreicherung (3.13%) und wenig unterschiedlicher Abbrände (ca. 20 Gwd/t U). Die Brennelemente aus dem KWO-Reaktor werden aufgelöst und es wird beobachtet, daß der  $(Pu/U)/D^{235}$ -Relationswert des Batches Nr. 100 ca. 20% größer als die von den anderen Batches ist. Die  $U^{235}$ -Konzentration und der Abbrand wurden überprüft und als richtig angenommen. Es besteht deshalb der Verdacht auf eine Vertauschung der KWO-Brennelemente mit TRINO-Brennelementen gleicher Anfangsanreicherung und wenig unterschiedlicher Abbrände, da die KWO-Brennelemente ( $M/B = 2$ ) und die TRINO-Brennelemente ( $M/B = 1.65$ ) verschiedene Moderator/Brennstoff-Verhältnisse haben. Um die Ursache für den abweichenden Wert von  $(Pu/U)/D^{235}$  zu finden, wird die  $(Pu/U)/(Pu^{239}/Pu^{240} \cdot Pu^{242}/Pu^{240})$ -Relation benutzt. Der mit den Meßwerten bestimmte  $(Pu/U)/(Pu^{239}/Pu^{240} \cdot Pu^{242}/Pu^{240})$ -Wert beträgt 17889 und stimmt bis auf 2% mit dem Rechenwert dieser Relation (17500) überein. Da diese Relation insensitive bezüglich des M/B-Verhältnisses ist, schließt man: der  $(Pu/U)/D^{235}$ -Meßwert ist richtig und das M/B-Verhältnis ist falsch. Aus dem Verlauf der  $(Pu/U)/D^{235}$ -Relation mit dem M/B-Verhältnis in Abb. 5.4 kann man entnehmen, daß es sich für  $M/B = 1.65$  ein  $Pu/U/D^{235}$ -Wert von 5130 ergibt. Dieser Wert stimmt bis auf 0.4% mit dem  $Pu/U/D^{235}$ -Meßwert überein. Es wird daraus geschlossen, daß eine Vertauschung der KWO-Brennelemente ( $M/B = 2$ ) mit TRINO-Brennelementen ( $M/B = 1.65$ ) stattgefunden hat. Das wurde bei der Auflösung der TRINO-Brennelemente bestätigt, da für einen Batch der TRINO-Kampagne der  $Pu/U/D^{235}$ -Wert, der zu dem M/B-Verhältnis gleich 2 gehört, beobachtet wurde.

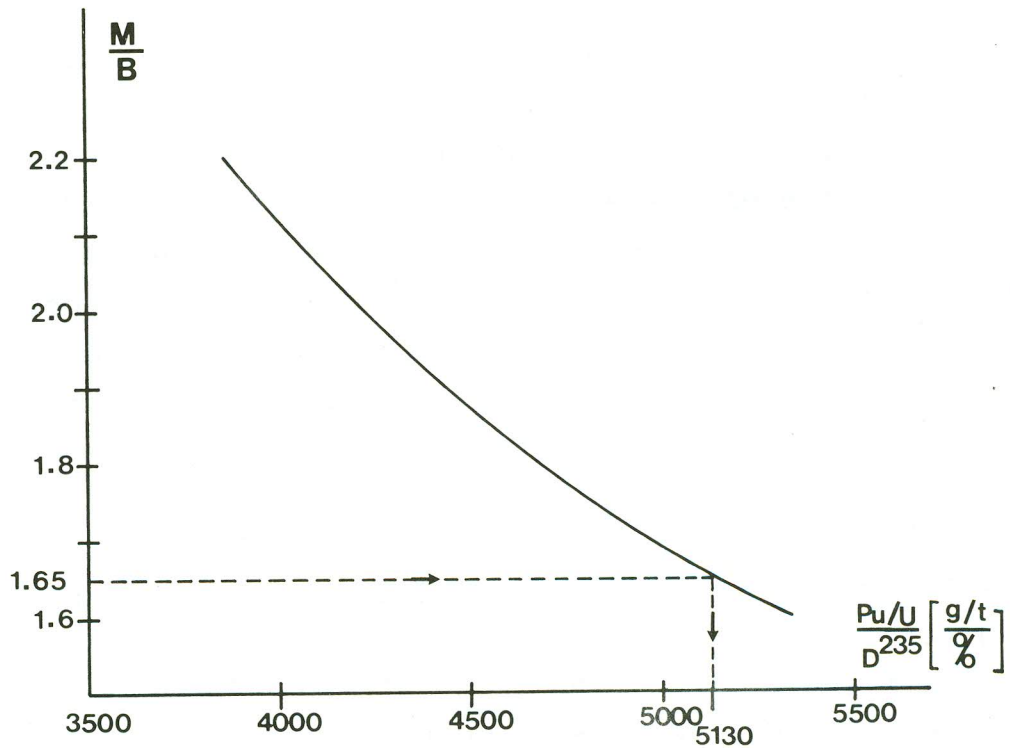


Abb. 5.4:  $(\text{Pu}/\text{U})/\text{D}^{235}$ -Relation als Funktion vom M/B-Verhältnis für 3.13%  $\text{U}^{235}$ -Anfangsanreicherung

Die Ergebnisse bei der Anwendung von Isotopenrelationen an Meßanalysedaten aus verschiedenen Druckwasserreaktoren demonstrieren die Fähigkeit des in Kapitel 4 erarbeiteten Konzepts zur Identifikation von Meßfehlern und von Brennstoffvertauschungen.

## 6. Anwendungsmöglichkeiten von Isotopenrelationen zur Überwachung von Spaltstoffen

Um die Einsatzmöglichkeit der Isotopenrelationen für die Spaltstoffflußkontrolle im nuklearen Brennstoffkreislauf festzusetzen, muß festgestellt werden, welche Brennstoffabzweigungen mit Isotopenrelationen nachgewiesen werden können.

Zur Lösung dieser Aufgabe werden einige wichtige Abzweigungsstrategien bei der Fertigung der Brennelemente, beim Transport der Brennelemente vom Reaktor zu einer Wiederaufarbeitungsanlage, bei einer Wiederaufarbeitungsanlage (Lagerbecken, Head-End, Ausgang) betrachtet. Es ist nicht Gegenstand dieses Kapitels, die Wahrscheinlichkeit für eine bestimmte Abzweigung zu beurteilen.

Man betrachtet zunächst die Abzweigungsstrategien von frischen (unbestrahlten) Brennstoffen unmittelbar nach der Fertigung. Es wird die Ersetzung einiger Brennstäbe durch Brennstäbe mit kleinerem Spaltstoffgehalt bei der Fabrikation der Brennelemente berücksichtigt (vgl. 2.1). Es gilt die kleinste Anzahl der ersetzten Brennstäbe, welche mit den Isotopenrelationen detektiert werden kann, festzustellen.

Die Ersetzung verursacht eine Änderung der  $U^{235}$ -Anfangsanreicherung und wird deshalb bei der Überprüfung der U-Isotopenzusammensetzung bzw. der  $U^{235}$ -Anfangsanreicherung identifiziert. Die Änderung der  $U^{235}$ -Konzentration bei 30 GWd/t U Abbrand mit der  $U^{235}$ -Anfangsanreicherung mit dem Unsicherheitsband von 2% bei der Berechnung der  $U^{235}$ -Konzentration werden in Abb. 6.1 dargestellt.

Das Unsicherheitsband von 2% um den  $U^{235}$ -Konzentrationswert bei 3.2%  $U^{235}$ -Anfangsanreicherung entspricht nach Abb. 6.1 dem Bereich 3.14 - 3.26% in der Anfangsanreicherung. Dies bedeutet: Wenn die Anfangsanreicherung des Brennelements außerhalb des Bereiches 3.14 - 3.26% liegt, wird die Ersetzung des Brennstoffs identifiziert. Die kleinste detektierbare Anzahl der ersetzten Brennstäbe wird wie folgt bestimmt:

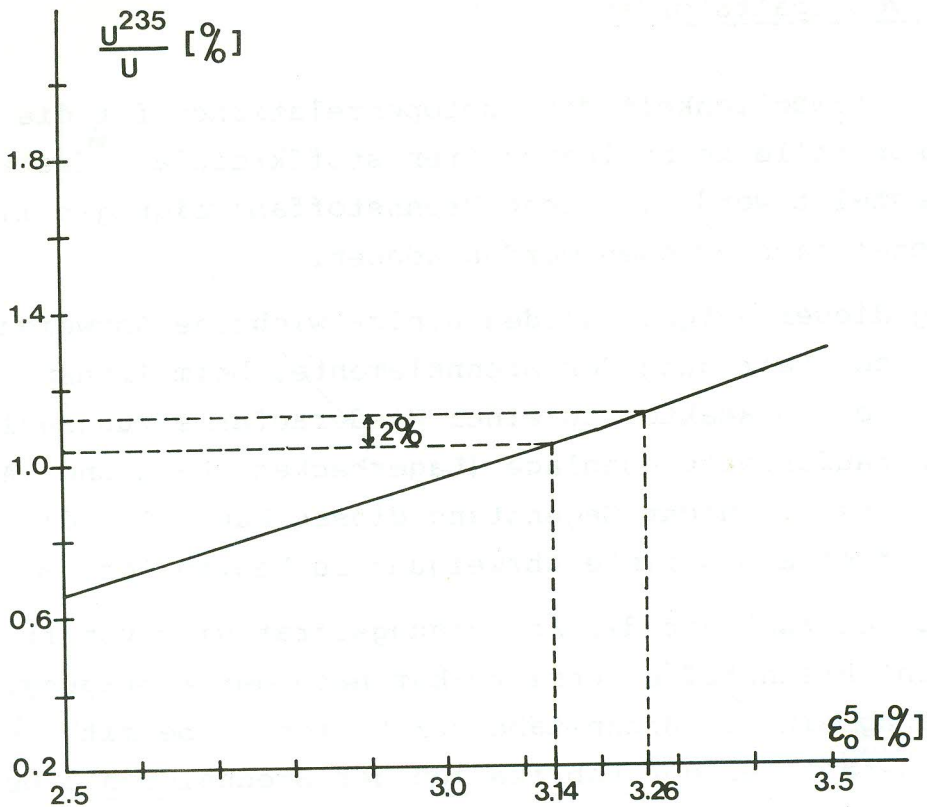


Abb. 6.1: Änderung der relativen  $U^{235}$ -Konzentration mit der  $U^{235}$ -Anfangsanreicherung ( $\epsilon_0^5$ ) für 30 GWd/t U-Abbrand

Es seien  $n$  die Anzahl der ersetzten Brennstäbe in einem Brennelement,  $\epsilon_{01}$  die  $U^{235}$ -Anfangsanreicherung in % der ersetzten (nominale) Brennstäbe,  $\epsilon_{02}$  die  $U^{235}$ -Anfangsanreicherung in % der eingesetzten Brennstäbe und  $N$  die gesamte Anzahl der Brennstäbe in dem Brennelement. Dabei wurde davon ausgegangen, daß alle Brennstäbe eines Brennelements die gleiche Anfangsanreicherung haben. Damit gilt für die Anfangsanreicherung des Brennelements nach der Ersetzung von  $n$  Brennstäben:

$$(6.1) \quad \epsilon_{0\text{Be}} = \frac{(N-n) \epsilon_{01} + n \epsilon_{02}}{N}$$

und daher

$$(6.2) \quad n = \frac{\epsilon_{O_{BE}} - \epsilon_{O_1}}{\epsilon_{O_2} - \epsilon_{O_1}} \cdot N \quad \epsilon_{O_1} \neq \epsilon_{O_2}$$

Die kleinste Anzahl der ersetzten Brennstäbe, welche mit den Isotopenrelationen detektiert wird, entspricht der kleinsten detektierbaren Anfangsanreicherungs-differenz. Diese Differenz hat nach Abb. 6.1 den Wert  $3.26\% - 3.20\% = 0.06\%$  für Brennstoffe von 3.2%-Anfangsanreicherung. Beim Einsetzen in Gl. 6.2 ergibt sich die kleinste Anzahl von Brennstäben, die bei der Ersetzung von Brennstäben in einem Brennelement von 3.2% Anfangsanreicherung eines 1300 MWe DWR's ( $N = 236$  Brennstäbe) mit Isotopenrelationen detektiert werden können. Als Ergebnis ergibt sich, daß folgende Ersetzungen mit Isotopenrelationen detektiert werden können:

- (a) 4 Brennstäbe durch Stäbe von nicht-nuklearem Material;
- (b) 6 Brennstäbe durch Stäbe von Natururan;
- (c) 20 Brennstäbe durch Stäbe von 2.5%  $U^{235}$ -Anfangsanreicherung, und
- (d) 70 Brennstäbe durch Stäbe von 3.0%  $U^{235}$ -Anfangsanreicherung.

Wenn die Meßgenauigkeit bei der Bestimmung der Isotopenrelationen besser wird, wird in diesem Fall die detektierbaren Anfangsanreicherungs-differenzen kleiner und damit wird auch die kleinste detektierbare Anzahl von ersetzten Brennstäben kleiner.

Es werden im folgenden Abzweigungsstrategien für abgebrannte Brennstoffe betrachtet. Es muß also der Teil des offenen nuklearen Brennstoffkreislaufes vom Ausgang des Reaktors bis zum Ausgang der Wiederaufarbeitungsanlage betrachtet werden.

Die Entfernung eines ganzen Brennelements und das Ersetzen durch ein Brennelement mit kleinerem oder keinem Spaltstoffgehalt könnte folgenderweise erfolgen:

- (a) Ein bestrahltes Brennelement wird durch einen undeckelten Transport von einem Lagerbecken entfernt und durch ein dummy-Brennelement, das von außen zum Lagerbecken gebracht wurde,

ersetzt. Das entfernte bestrahlte Brennelement wird zur Wiederaufarbeitung in eine geheime Anlage transportiert.

- (b) Ein mit bestrahlten Brennelementen beladener Transportbehälter wird während des Transports vom Reaktor bzw. Zwischenlager zur Wiederaufarbeitungsanlage durch einen Behälter mit entsprechend viel dummy-Brennelementen ersetzt. Die entfernten Brennelemente werden zur Wiederaufarbeitung in eine geheime Anlage transportiert.
- (c) Ein bestrahltes Brennelement wird im Lagerbecken einer Wiederaufarbeitungsanlage durch ein dummy-Brennelement, das undeklariert zur Anlage gebracht wurde, ersetzt. Das entfernte Brennelement wird später undeklariert wiederaufgearbeitet.

Es könnten auch Teile eines Brennelements entfernt werden. Zum Beispiel in einem Kernkraftwerk könnten wegen vermuteter Brennstabbeschädigungen Brennstäbe aus dem Brennelement herausgenommen werden und durch dummy-Brennstäbe ersetzt werden. Die entfernten Brennstäbe könnten später zur Wiederaufarbeitung in eine geheime Anlage geschickt werden.

In den hier durchgeführten Rechnungen zur Simulation der oben beschriebenen Szenarien betrachten wir das Ersetzen eines typischen Brennelements eines 1300 MWe-Druckwasserreaktors (3.2%  $U^{235}$ -Anfangsanreicherung; ca. 30 GWd/t U-Abbrand; 236 Brennstäbe) durch (1) ein Element von nicht nuklearem Material, z.B. Stahl; (2) ein unbestrahltes Brennelement von gleicher Anfangsanreicherung; (3) ein unbestrahltes Element von Natururan; (4) ein Brennelement von kleiner Anfangsanreicherung (1.9 w/o  $U^{235}$ ) und kleinerem Abbrand (ca. 16 GWd/t U) aus gleichem Druckwasserreaktor; (5) ein Brennelement von gleicher Anfangsanreicherung aus einem verschiedenen Druckwasserreaktor mit größerem Moderator/Brennstoff-Verhältnis.

Die Detektion der oben genannten Ersetzungen wird mit Hilfe der Isotopenrelationen vorgenommen.

- (1) Ersetzung eines Brennelements durch ein Element von nicht-nuklearem Material (z.B. Stahl): Die Ersetzung wird mit zerstörungsfreier  $\gamma$ -spektrometrischer Bestimmung des  $\text{Cs}^{134}/\text{Cs}^{137}$ -Verhältnisses im Lagerbecken detektiert, da in diesem Fall keine Cs-Aktivität vorliegt. Wenn Cs im richtigen Verhältnis  $\text{Cs}^{134}/\text{Cs}^{137}$  ins Element eingebracht wurde, wird die Ersetzung mit aktiver Neutronenmessung detektiert. Die Ersetzung wird bei der Auflösung der Brennelemente detektiert, da keine Spaltgase (z.B. Xe) vorhanden sind.

Die Ersetzung einiger Brennstäbe aus dem Inneren des Brennelements durch Stäbe von nicht-nuklearem Material wird von den Isotopenverhältnissen  $\text{Cs}^{134}/\text{Cs}^{137}$  und  $\text{Xe}^{132}/\text{Xe}^{131}$ , welche in diesem Fall unverändert bleiben, nicht detektiert. Solche Ersetzung verursacht keine Veränderung der Isotopenrelationen und werden deshalb mit der Isotopenrelationstechnik nicht detektiert. Die Ersetzung einiger Brennstäbe aus dem Inneren des Brennelements durch Stäbe von nicht-nuklearem Material verursacht jedoch eine Verkleinerung der Uran-Masse des Brennelements. Diese Ersetzung kann deshalb durch den Vergleich der verifizierten U-Masse mit der durch Rechnungen vorhergesagten U-Masse detektiert werden. Wie im Rahmen dieser Arbeit in Kapitel 3 gezeigt wurde, wird die U-Masse von den theoretischen Verfahren bei einer Ungenauigkeit von 5% im Abbrand mit einer Unsicherheit von ca. 0.5% vorhergesagt. Als Ergebnis ergibt sich, daß die Ersetzung von ca. 2 Brennstäben durch Stäbe von nicht-nuklearem Material detektiert wird.

- (2) Ersetzung eines Brennelements durch ein unbestrahltes Brennelement von gleicher  $\text{U}^{235}$ -Anfangsanreicherung: Das Ersetzen eines ganzen Brennelements wird bei der Bestimmung von  $\text{Cs}^{134}/\text{Cs}^{137}$  und  $\text{Xe}^{132}/\text{Xe}^{131}$  ähnlich wie im Fall (1) detektiert. Die Ersetzung einiger Brennstäbe verursacht eine Veränderung der U-Isotopenzusammensetzung und der U-Konzentration und wird damit bei der Überprüfung der U-Isotopenzusammensetzung detektiert.

Die Werte der  $U^{235}$ -Abreicherung und der relativen  $U^{236}$ -Konzentration nehmen proportional zum prozentualen Anteil der ersetzten Brennstäbe ab. Im Rahmen der Unsicherheiten von 2% bei der Rechnung von  $D^{235}$  und  $U^{236}$  wird das Ersetzen von mehr als ca. 5 Brennstäbe detektiert. Die  $(100 - Pu^{239})/D^{235}$ -Relation nimmt mit der Anzahl von ersetzten Brennstäben zu: Bei der Unsicherheit von 3% bei der Berechnung dieser Relation wird das Ersetzen von mehr als ca. 7 Brennstäbe detektiert. Das Pu/U-Verhältnis nimmt proportional zum prozentualen Anteil der ersetzten Brennstäbe ab. Das  $(Pu^{239}/Pu^{240} \cdot Pu^{242}/Pu^{240})$ -Verhältnis bleibt unverändert. Damit wird bei der Ersetzung: (a) die  $(Pu/U)/D^{235}$ -Relation unverändert bleiben und (b) die  $(Pu/U)/(Pu^{239}/Pu^{240} \cdot Pu^{242}/Pu^{240})$ -Relation abnehmen. Bei der Unsicherheit von 4% bei der Rechnung von  $(Pu/U)/(Pu^{239}/Pu^{240} \cdot Pu^{242}/Pu^{240})$  wird die Ersetzung von mehr als ca. 10 Brennstäben detektiert.

- (3) Ersetzung eines Brennelements durch ein unbestrahltes Element von Natururan: Die Ersetzung wird ebenfalls wie im Fall (1) bei der Bestimmung der Relationen  $Cs^{134}/Cs^{137}$  und  $Xe^{132}/Xe^{131}$  detektiert. Bei der Ersetzung einiger Brennstäbe bleiben die  $Xe^{132}/Xe^{131}$  und  $Cs^{134}/Cs^{137}$ -Relationen unverändert, so daß die Ersetzung von diesen Relationen nicht detektiert wird. Die Ersetzung einiger Brennstäbe durch unbestrahlte Brennstäbe von Natururan verursacht eine Veränderung der U-Isotopenzusammensetzung und wird deshalb bei der Überprüfung der U-Isotopenzusammensetzung detektiert. Die  $U^{236}$ -Konzentration nimmt mit der Anzahl der ersetzten Brennstäbe ab: Bei der Unsicherheit von 2% bei der  $U^{236}$ -Rechnung wird die Ersetzung mehrerer als 5 Brennstäbe detektiert. Die Relationen  $D^{235}$  und  $(100 - Pu^{239})/D^{235}$  bleiben in diesem Fall unverändert. Die Relationen  $(Pu/U)/D^{235}$  und  $(Pu/U)/(Pu^{239}/Pu^{240} \cdot Pu^{242}/Pu^{240})$  nehmen proportional zur Anzahl der ersetzten Brennstäbe ab. Bei der Unsicherheit von 3% und 4% bei der Rechnung von  $(Pu/U)/D^{235}$  bzw.  $(Pu/U)/(Pu^{239}/Pu^{240} \cdot Pu^{242}/Pu^{240})$  werden diese Relationen die Ersetzung von 7 bzw. 10 Brennstäben detektieren.

- (4) Ersetzung eines Brennelements durch ein Brennelement von 1.9 w/o U<sup>235</sup>-Anfangsanreicherung und mit ca. 16 GWd/t U-Abbrand: Die Ersetzung wird bei der Abbrandüberprüfung durch die  $\text{Xe}^{132}/\text{Xe}^{131}$ -Relation detektiert. Der Unterschied zwischen den  $\text{Xe}^{132}/\text{Xe}^{131}$ -Werten bei 33 GWd/t U und 16.4 GWd/t U beträgt ca. 30% und ist somit viel größer als die Unsicherheit von 2% bei der Rechnung von  $\text{Xe}^{132}/\text{Xe}^{131}$ . Die Ersetzung wird ebenfalls mit der  $\text{Cs}^{134}/\text{Cs}^{137}$ -Relation detektiert: Die  $\text{Cs}^{134}/\text{Cs}^{137}$  Relation hat für das Brennelement von 3.2% U<sup>235</sup>-Anfangsanreicherung einen Wert ca. 40% größer als der Wert für das Brennelement von 1.0% U<sup>235</sup>-Anfangsanreicherung; diese Differenz ist viel größer als die Unsicherheit von ca. 3% bei der Rechnung von  $\text{Cs}^{134}/\text{Cs}^{137}$ .

Die Ersetzung von 10% der Brennstäbe eines Brennelements durch Brennstäbe von 1.9% U<sup>235</sup>-Anfangsanreicherung und mit ca. 16 GWd/t U-Abbrand bewirkt die folgenden Veränderungen der Isotopenrelationen: Pu/U wird 3.2% kleiner, D<sup>235</sup> wird 0.4% größer,  $(100-\text{Pu}^{239})$  wird 1.2% kleiner, U<sup>236</sup> wird 5% kleiner,  $(100-\text{Pu}^{239})/\text{D}^{235}$  wird 1.6% größer,  $(\text{Pu}/\text{U})/\text{D}^{235}$  wird 3.6% kleiner. Der  $(\text{Pu}/\text{U})/(\text{Pu}^{239}/\text{Pu}^{240} \cdot \text{Pu}^{242}/\text{Pu}^{240})$ -Relationswert bleibt bei der Ersetzung unverändert und kann nicht zur Detektion der Ersetzung herangezogen werden.

Unter Berücksichtigung der Unsicherheit bei der Berechnung der Relationen werden jeweils die Ersetzungen der folgenden Anzahl von Brennstäben detektiert: Mit D<sup>235</sup> 118 Stäbe, mit U<sup>236</sup>/U 12 Stäbe, mit  $(100-\text{Pu}^{239})/\text{D}^{235}$  50 Stäbe und mit  $(\text{Pu}/\text{U})/\text{D}^{235}$  24 Stäbe.

- (5) Ersetzung des Brennelements durch ein Element von gleicher Anfangsanreicherung aus einem Druckwasserreaktor mit größerem M/B-Verhältnis: Die Ersetzung wird durch die Anwendung der  $(\text{Pu}/\text{U})/\text{D}^{235}$ -Relation, die sensitiv auf das Moderator/Brennstoff-Verhältnis ist, detektiert.

Es muß geklärt werden, welche Ersetzungen von Brennelementen verschiedener M/B-Verhältnisse aufgrund der Unsicherheit von ca. 3% bei der Bestimmung der  $(\text{Pu}/\text{U})/\text{D}^{235}$ -Relation nachgewiesen werden können. Man betrachtet den Verlauf der  $(\text{Pu}/\text{U})/\text{D}^{235}$ -

Relation mit dem M/B-Verhältnis für Brennstoffe von 3.2%  $U^{235}$ -Anfangsanreicherung in Abb. 6.2. Für ein Moderator/Brennstoff-Verhältnis 2.0 hat die  $(Pu/U)/D^{235}$ -Relation den Wert 4.160. Ein Unsicherheitsband von 3% in den  $(Pu/U)/D^{235}$ -Werten entspricht einem Änderungsbereich von 1.94 bis 2.07 des M/B-Verhältnisses. Dies bedeutet:

- Die Ersetzung eines Brennelements mit  $M/B = 2$  durch ein Brennelement mit  $1.94 \leq M/B \leq 2.07$  wird nicht identifiziert werden können.
- Die Ersetzung eines Brennelements mit  $M/B = 2$  durch ein Brennelement mit  $2.07 < M/B < 1.94$  wird identifiziert.

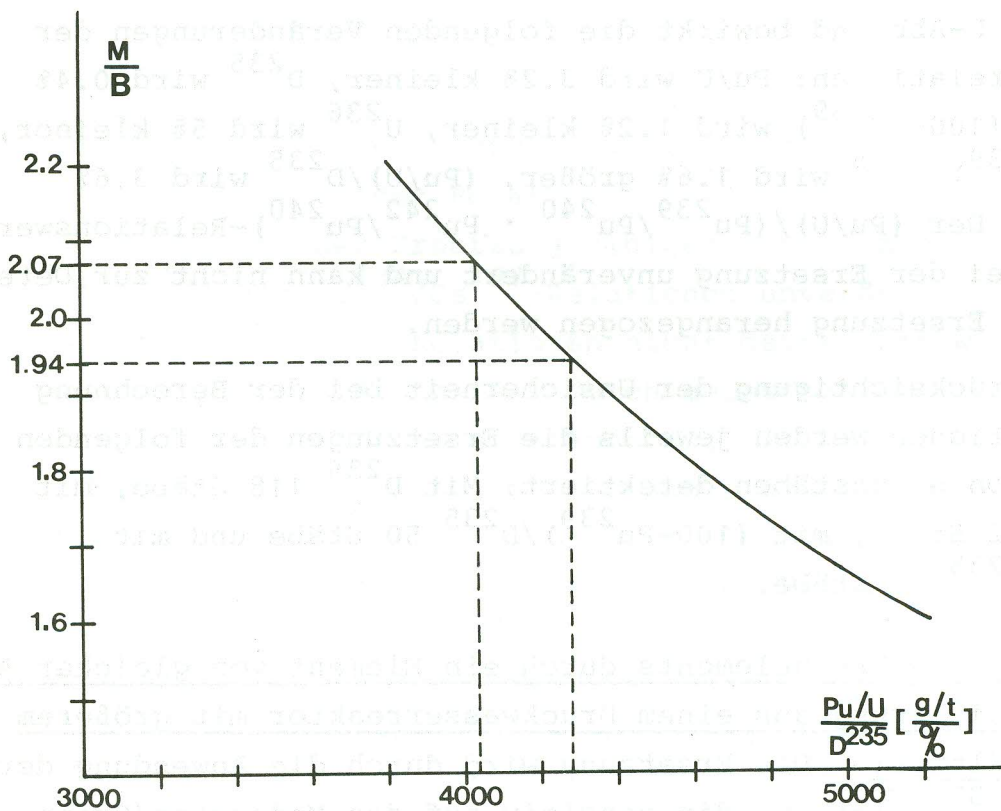


Abb. 6.2: Verlauf der  $(Pu/U)/D^{235}$ -Relation mit dem (M/B)-Verhältnis für 3.2%  $U^{235}$ -Anfangsanreicherung (1300 MWe-DWR)

Die Abzweigung abgebrannter Brennstoffe könnte in einer Wiederaufarbeitungsanlage z.B. auf folgende Weise stattfinden: Die Brennelemente werden aufgelöst. Die Brennstofflösung gelangt nicht in den Meßtank, sondern wird zum Prozeßbereich umgeleitet (by-Pass Accountability Tank). Die getrennte Pu-Menge (Pu-Nitrat) wird dann im Produktbereich entfernt. Diese Brennstoffabzweigung verursacht keine Änderung der Isotopenrelationen und wird deshalb allein mit Isotopenrelationen nicht detektiert. Solche Abzweigung verursacht jedoch eine Verkleinerung der Uranmasse im Meßtank und wird beim Vergleich der verifizierten U-Masse mit der von den theoretischen Verfahren vorhergesagten U-Masse detektiert, wenn die Verkleinerung der U-Masse bei der Abzweigung größer als 0.5% ist.

Wenn die Meßgenauigkeit bei der Bestimmung der Isotopenrelationen besser wird, bedeutet dies für die in der vorliegenden Untersuchung erzielten Ergebnisse, daß die mindeste Anzahl der mit Isotopenrelationen detektierbaren ersetzten Brennstäbe kleiner wird.

Es ist ein Ergebnis der vorliegenden Untersuchung, daß Brennelementvertauschung und Brennstoffersetzungen von der Fertigung bis zur Wiederaufarbeitung der Brennelemente mit Hilfe von Isotopenrelationen entdeckt werden können, wenn sich dabei die Isotopenrelationen um mehr als bestimmte Mindestwerte verändern. Diese Mindestwerte für die Isotopenrelationen werden in Kapitel 4 dieser Arbeit angegeben.

Eine Entwendung ohne Ersetzung von Stäben aus einem Brennelement verursacht keine Veränderung der Isotopenrelationen und kann deshalb durch die Isotopenrelationstechnik nicht detektiert werden. Entwendung ohne Ersetzung von Brennstäben aus einem Brennelement verursacht jedoch eine Verkleinerung der Uranmasse des Brennelementes. Solche Entwendungen können deshalb beim Vergleich der verifizierten U-Masse mit der von den theoretischen Verfahren

Die Abweitung abgedrehter Brennstoffe könnte in einer Wieder-  
vorhergesagten U-Masse detektiert werden, wenn dabei die U-Masse  
um mehr als einen bestimmten Mindestwert verkleinert wird. Dieser  
Mindestwert beträgt 0.5% für das im Rahmen dieser Arbeit vorge-  
stellte Rechenverfahren.

Mit den Ergebnissen dieses Kapitels wird die Frage F des Fragen-  
komplexes dieser Arbeit beantwortet.

## 7. Zusammenfassung und Schlußfolgerungen

In dieser Arbeit wird untersucht, inwieweit die Isotopenrelationstechnik ein Kontrollverfahren zur Spaltstoffbestimmung bildet und wie sie optimal zur Überprüfung der Spaltstoffbilanzierung ohne Brennstoffabzweigungen und im Fall von Brennstoffabzweigungen eingesetzt werden kann.

Für diesen Zweck wird zunächst ein theoretisches Verfahren zur zuverlässigen Berechnung der Isotopenrelationen in der vorliegenden Untersuchung erstellt und qualifiziert. Dies ist der erste Schwerpunkt dieser Arbeit. Bei Einsatz derartiger theoretischer Verfahren ist es möglich, fragwürdige Extrapolationen empirisch beobachteter Relationswerte zu vermeiden.

Eine gute Übereinstimmung zwischen einer großen Zahl von Rechen- und Meßergebnissen aus Analysen aufgelöster Brennstoffe aus Druckwasserreaktoren mit Abbränden zwischen ca. 20 und 30 GWd/t U, sowohl für die Isotopenkonzentrationen wie für Isotopenrelationen von U, Pu und wichtigen Spaltprodukten wurde erzielt: Die Unsicherheiten bei der Berechnung liegen innerhalb der experimentellen Unsicherheiten (siehe Abb. 3.7, 3.8).

Nachdem das theoretische Verfahren zur Berechnung der Isotopenrelationen qualifiziert ist, werden aus meßtechnischen Kriterien ausgewählten 22 Relationswerte (s.Tab.3.8) in Abhängigkeit von folgenden Reaktorparametern ermittelt: Abbrand,  $U^{235}$ -Anfangsanreicherung, Moderator/Brennstoff-Verhältnis, Dicke der Brennstabhülle, Bor-Konzentration im Moderator, Leistungsdichte, Leistungsgeschichte und Kühlzeit nach der Brennstoffentladung aus dem Reaktor. Die wichtigsten Ergebnisse dieser Sensitivitätsanalyse der Isotopenrelationen bezüglich der oben genannten Reaktor- und Brennelementparameter sind:

- (a) die untersuchten Relationen haben monotonen und somit eindeutigen Verlauf mit dem Abbrand bis über 40 GWd/t U.
- (b) die folgenden Relationen haben näherungsweise linearen Verlauf mit dem Abbrand bis über 40 GWd/t U:  $(Pu/U)/D^{235}$ ,  $(Pu/U)/U^{236}$ ,  $(Pu/U)/(100-Pu^{239})$ ,  $(Pu/U)/(Pu^{240}/Pu^{239})$ ,  $(Pu/U)/(Pu^{240}/Pu^{239})$ ,  $Kr^{84}/Kr^{86}$  und  $Nd^{146}/Nd^{148}$ . Es wurde

festgestellt: ein streng linearer Zusammenhang liegt nicht vor; die Annahme des linearen Verlaufs von Pu/U mit  $D^{235}$  ist im Rahmen der experimentellen Genauigkeiten gültig.

- (c) Einige Relationen haben selektive Sensitivität bezüglich der untersuchten Reaktor- und Brennelementparameter; d.h. es gibt Relationen, die stark von einem Parameter und schwach von allen weiteren Parametern abhängen. Derartige Relation kann als eine Sonde angesehen werden: sie reagiert nur bei Änderungen eines Parameters und eignet sich deshalb zur Überprüfung des Wertes dieses Parameters.

Nachdem die Sensitivität der Isotopenrelationen bezüglich der Reaktor- und Brennelement-Parameter gut bekannt ist, wird ein Konzept zur Anwendung der Isotopenrelationen bei der Bestimmung der Pu-Konzentration abgebrannter Brennstoffe erarbeitet. Dies ist der zweite Schwerpunkt dieser Arbeit. Dieses Konzept soll ermöglichen

- (a) Meßfehler bei der Analyse abgebrannter Brennstoffe
  - (b) irrtümliche Brennstoffvertauschungen
  - (c) absichtliche Brennstoffabzweigungen
- zu entdecken.

Die Grundlage des Konzepts ist die Anwendung von Relationen mit der oben genannten selektiven Sensitivität bezüglich der Reaktorparameter. Die benutzten Relationen sind die folgenden:  
 $(U_{O}^{235}/U_{O} - U^{235}/U)$ ,  $U^{236}/U$ ,  $(100 - Pu^{239})/D^{235}$ ,  $Xe^{132}/Xe^{131}$ ,  $Cs^{134}/Cs^{137}$ ,  $(Pu^{239}/Pu^{240} \cdot Pu^{242}/Pu^{240})$ ,  $(Pu/U)/D^{235}$  und  $(Pu/U)/(Pu^{239}/Pu^{240} \cdot Pu^{242}/Pu^{240})$ . Aus Richtung und Größe der Abweichung der mit den Meßdaten bestimmten Relationen von den theoretischen Relationswerten wird ein Schluß über Meßfehler bei der Analyse oder über Brennstoffvertauschung gezogen (s. Kapitel 4). Die Anwendung dieser Methode zur Identifikation von Meßfehlern und irrtümlichen Brennstoffvertauschungen wurde an theoretischen und experimentellen Beispielen erfolgreich überprüft.

Die Anwendung des Konzepts ermöglicht beispielsweise: (a) die Identifikation von Meßfehlern von 2% und mehr für  $U^{235}$ , 3% und mehr für  $U^{236}$ , 2-4% und mehr für die Pu-Isotopenkonzentrationen und 2% und mehr für das Pu/U-Verhältnis; (b) die Identifikation einer Vertauschung von einem bestrahlten Brennelement mit einem

anderen DWR-Brennelement von relativ ca. 1.5% und mehr unterschiedlicher  $U^{235}$ -Anfangsanreicherung; (c) die Identifikation einer Vertauschung von einem bestrahlten Brennelement mit einem anderen DWR-Brennelement von ca. 3% unterschiedlichem Moderator/Brennstoff-Verhältnis (M/B). Bei Vertauschungen von Brennelementen mit  $1.6 \leq M/B \leq 2.2$  wird der nominale M/B-Wert bestimmt. Bei Vertauschungen von Brennelementen mit  $1.6 > M/B > 2.2$  wird ausgesagt, ob das Brennelement sich in einem übermoderierten oder untermoderierten Bereich befand.

Im letzten Teil dieser Arbeit wird untersucht, ob das erstellte Konzept zur Entdeckung denkbarer Brennstoffabzweigungen angewendet werden kann. Dazu werden einige wichtige Abzweigungsstrategien betrachtet: Die Abzweigung frischer Brennstoffe könnte bei der Fertigung mittels der Ersetzung einiger Brennstäbe durch Stäbe mit kleinerem Brennstoffgehalt stattfinden (die abgezweigten Brennstäbe könnten zu einer U-Trennungsanlage transportiert werden, in der  $U^{235}$  abgetrennt wird). Diese Ersetzung verursacht eine Änderung der  $U^{235}$ -Anfangsanreicherung. Folgende Ersetzungen in einem frischen DWR-Brennelement von 3.2%  $U^{235}$ -Anfangsanreicherung können z.B. mit Isotopenrelationen aus der Richtung und Größe der Abweichung zwischen den mit den Meßdaten bestimmten Relationen und den theoretischen Relationswerten noch detektiert werden:

- (a) 4 Brennstäbe durch Stäbe von nicht-nuklearem Material;
- (b) 6 Brennstäbe durch Stäbe von Natururan;
- (c) 20 Brennstäbe durch Stäbe von 2.5%  $U^{235}$ -Anfangsanreicherung und
- (d) 70 Brennstäbe durch Stäbe von 3.0%  $U^{235}$ -Anfangsanreicherung.

Die Abzweigung abgebrannter Brennstoffe könnte durch Ersetzung von bestrahlten Brennstäben mit Stäben aus Natururan oder abgebrannten Stäben mit kleinerem Spaltstoffgehalt ersetzen. Diese Ersetzung bewirkt eine Änderung der Isotopenrelationen von U und Pu. Zum Beispiel können folgende Ersetzungen in einem DWR-Brennelement mit 236 Brennstäben mit Hilfe des vorgeschlagenen Konzepts noch detektiert werden:

- (a) 10 Stäbe durch unbestrahlte Stäbe von gleicher Anfangsanreicherung;
- (b) 7 Stäbe durch unbestrahlte Stäbe von Natururan;
- (c) 15 Stäbe durch bestrahlte Stäbe von 1.9%  $U^{235}$ -Anfangsanreicherung und mit ca. 16 GWd/t U-Abbrand.

Die praktische Anwendung des hier dargestellten Verfahrens besteht darin, für die in dieser Arbeit ausgewiesenen Relationen die den wiederaufzuarbeitenden Brennstoffen entsprechenden Standardwerte (empirisch oder theoretisch) zu erstellen. Dann lassen sich die Ergebnisse dieser Arbeit wie folgt zusammenfassen:

1. Die Isotopenrelationstechnik ist ein effektives und von den benutzten Methoden unabhängiges Verfahren zur Überprüfung der Meßanalysedaten abgebrannter Brennstoffe in einer Wiederaufarbeitungsanlage und zur Identifikation von Brennstoffver-tauschungen von der Fabrikation der Brennelemente bis zur Wiederaufarbeitungsanlage, wenn sich dabei die Isotopenrela-tionen um bestimmte Mindestwerte verändern. Diese Mindest-werte werden in dieser Arbeit angegeben.
2. Brennstoffabzweigungen, bei denen der abgezweigte Brennstoff durch Brennstoff kleineren Spaltstoffgehalts ersetzt wird und bei denen sich die Isotopenrelationen um bestimmte Mindest-werte verändern, sind mit Isotopenrelationen nachweisbar. Brennstoffabzweigungen, bei denen der abgezweigte Brennstoff nicht ersetzt wird, verursachen eine Verkleinerung der U-Masse und können deshalb im Rahmen der Rechenunsicherheit beim Ver-gleich der durch Rechnungen vorhergesagten U-Masse mit der verifizierten U-Masse detektiert werden.

Die allgemeinen Schlußfolgerungen dieser Arbeiten bleiben richtig, falls die Meß- und Rechengenauigkeit besser als die gegenwärtige wird. In diesem Fall wird wegen eines verkleinerten Unsicherheits-bandes der Isotopenrelationen die minimal detektierbare Brennstoff-abzweigung kleiner.

Die erzielten Ergebnisse bei der Lösung des Fragenkomplexes dieser Arbeit sind für den offenen nuklearen Brennstoffkreislauf von Druckwasserreaktoren gültig. Weitere Untersuchungen müssen für re-zyklierte Brennstoffe und für Brennstoffe aus Siedewasserreakto-ren und aus Schnellbrüterreaktoren erfolgen.

8. Literaturverzeichnis

- /1/ The Structure and Content of Agreements between the Agency and States Required in Connection with the Treaty on Non-Proliferation of Nuclear Weapons  
IAEA-INFCIRC/153, May 1971
- /2/ Rametsch, R. et al. "Safeguards 1975-1985"  
IAEA-SM-201/103, Safeguarding Nuclear Materials,  
Proceedings of a Symposium, Vienna, 20-24 October 1975
- /3/ W. Häfele and D. Nentwich, "Modern safeguards at reprocessing plants and reactors"  
IAEA-SM-133/103, Safeguards Techniques Vol. 1, Proceedings of a Symposium, Karlsruhe, 6-10 July 1970
- /4/ R. Avenhaus et al.  
Relations between Relevant Parameters for Inspection Procedures  
KfK-908, March 1970
- /5/ Cuyppers, M. and Finzi S., "Trends of R&D Activities in International Safeguards"  
Proceedings of 2nd Annual Symposium on Safeguards and Nuclear Material Management, Edinburg, Scotland, 26/28 March 1980
- /6/ V. Sukhoruchkin et al., "Development of the Safeguards Approach for Reprocessing Plants"  
IAEA-SM-231/97, Nuclear Safeguards Technology 1978 Vol. II  
Proceedings of a Symposium, Vienna, 2-6 October 1978
- /7/ Hough C.G. et al. "The Technical Objective of Safeguards"  
IAEA-Bulletin, Vol. 17, s. 13-17 (1975)
- /8/ Gupta D., "Isotopic Correlation for Accounting and Control of Nuclear Materials In a Fuel Cycle - A Review Paper"  
KfK 2400, September 1976
- /9/ Christensen, D.E. et al, "Minor Isotope Safeguard Techniques Applied to Fuel Reprocessing".  
Proceedings of Institute of Nuclear Materials Management  
Eleventh Annual Meeting, May 25-27, 1970
- /10/ Christensen, D.E. et al., "Application of Heavy Element Isotopic Correlation Safeguards Techniques to SENA, DOUGLASPOINT 1 and TRINO Reactor Fuels", BLG-486 (September 1973)
- /11/ Christensen, D.E., "Application of Isotopic Correlation Safeguard Techniques to Verify the Pu-Content of Humboldt Bay Spent Fuel", BNWL-SA-4274 (1972)
- /12/ Bresesti, A.M. et al., "Post-Irradiation Analysis of TRINO-Vercellese Reactor Fuel Elements", EUR-4909 e (1972)
- /13/ Christensen, D.E., et al., "The Safeguards Value of Chemical Plant Measurements Relating to Burnup - YANKEE Cores V and VI", BNWL-1473 (June 1970)

- /14/ Koch, L. et al., "Some Correlation between Isotopes of Xe, Kr, U, Pu and Burn-up Parameters for Various Thermal and Fast Reactors", IAEA-SM-133/25, Safeguards Techniques, Proceedings of a Symposium, Vol. I, Karlsruhe, 6-10 July 1970
- /15/ Brand, P. et al., "Feasibility Study of the Use of Radioactive Fission Product Correlations for the Determination of Burnup and Heavy Isotopes Composition of BWR Dodewaard Fuel", EUR-5141 e (1974)
- /16/ Beets, C. et al., "Gamma Measurements on SENA-Spent Fuel Assemblies and Dissolver Solution", BLG-486 (Sept. 1973)
- /17/ Brandalise, B., et al., "The Applications of Isotope Correlations in Verifying Automatic Analyses of Irradiated Fuels, in ESARDA Conf. Isotopic Correlations Techniques, May 1978, Stresa, ICT-7 (1978)
- /18/ Wellum, R., et al., "The Categorisation of Binary Isotope Correlations derived from the Databank of the European Institute for Transuranium-Elements, Karlsruhe" in ESARDA Conf. Isotopic Correlation Techniques, May 1978, Stresa, ICT-5 (1978)
- /19/ Christensen, D.E., und Schneider, R.A., "Summary of Experience with Heavy-Element Isotopic Correlations" Safeguarding Nuclear Materials, Proceeding of a Symposium, Vienna, 20-24 October 1975, IAEA-SM-201/10 Vol. II
- /20/ Moeken, H.H.Ph.; Bokelund, H., "Some Developments in Input Accountability at EUROCHEMIC", IAEA-SM-133/77 (July 1970)
- /21/ Timmermann, C.L., Selby, G.P., Napier, B.A., "Selected Isotopic Functions: A Description and Demonstration of their Uses", PNL-2761, October 1978
- /22/ Sanatani, S., Siwy, P., "Utilization of a Data Bank for Safeguards Application of Isotopic Correlations", in ESARDA, Conf. Isotopic Correlation Techniques, May 1978, Stresa, ICT-18
- /23/ Foggi, C., Frandoli, P., "Correlations between Heavy Isotopes and Radioactive Fission in Irradiated Fuels of Light Water Power Reactors", in ESARDA, Conf. Isotopic Correlation Techniques, ICT-21, Stresa, May 1978
- /24/ Foggi, C., Frenquellucci, F., "Isotopic Correlations based on Radioactive Fission Product Nuclides in Power Reactor Irradiated Fuels" in ESARDA, Conf. Isotopic Correlation Techniques, ICT-21, Stresa, May 1978
- /25/ Persiani, P.J., Kroc, T.K., "Preliminary Study Isotopic Safeguards Techniques (1st) LMFBR Fuel Cycles" ANL-80-70, June 1980
- /26/ Prezbindowski, D.L., "Theory of Present and Future Applications of Isotopic Ratios", BNWL-SA-4276 (1972)

- /27/ DeRegge, P., Boden, R., "Precise Isotopic Correlations in Plutonium Recycling of Light-Water Reactor Fuel," IAEA-SM-231/25, Wien, October 1978
- /28/ Darrouzet, M., Giacometti, A., "Etudes de Correlations Isotopiques Pour des Applications aux Fonctionnements des Reacteurs et des Usines de Retraitement" NEACRP/L-234, Paris (September 1979)
- /29/ Bouchard, J., et al., "Utilisation des Corrélations Isotopiques sur les Combustibles Irradiés. Application pratique au cas des mesures sur assemblages de réacteurs à eau", in ESARDA Conf. Isotopic Correlation Techniques, ICT-2, Stresa (Mai 1978)
- /30/ Bouchard J., et al., "La Prise en Compte de L'Histoire du Combustible dans le Controle a L'Entree des Usines de Retraitement", IAEA-SM-231/45, Wien, October 1978
- /31/ W. Bier, P. Bley, unveröffentlichter Bericht des KfK, 1977
- /32/ U. Miranda et al., "Contribution to Safeguards Studies in Fabrication Plants", IAEA-SM-133/14, July 1970
- /33/ A.R. Anderson et al., "Verification of Nuclear Material Accounts as a Management Function", IAEA-SM-201/60
- /34/ Adolf v. Baeckmann, Destructive Analysis of Nuclear Material for Safeguards Proceedings of a Symposium sponsored by the ESARDA, S. 365-384, Rome (March 1974)
- /35/ H.R. Mache, private Mitteilung, 1979
- /36/ A. Hermann, H. Graber, "Methoden zur Abbrandbestimmung von Kernbrennstoffen thermischer und schneller Reaktoren II", Kernenergie 21, S. 366-372 (Dezember 1978)
- /37/ C. Beets, T. Dragnev, "Identification of Irradiated Fuel Elements", EUR-4576 e, KfK 1100 (August 1971)
- /38/ H. Tsuruta et al., "Determination of Pu Accumulated in Irradiated Fuels by Non-Destructive Isotopic Correlation Technique", NEACRP-L 232, 1979
- /39/ S.T. Tsue et al., "Non Destructive Assay Methods for Irradiated Fuels", LA-6923 (Januar 1978)
- /40/ Advisory Group Meeting on the "Non Destructive Analysis of Irradiated Power Reactor Fuel", IAEA-AG-11 (April 1977)

- /41/ P. Rousset, "Les Correlations Isotopiques des Gaz de Fission Appliquées à la Filière Eau Ordinaire". ESARDA Conference Isotopic Correlation Techniques, ICT-16, Stresa, May 1978
- /42/ G. Schulze, H. Würz, L. Koch, R. Wellum, "Neutron Assay plus Isotopic Correlations: A Method for Determining Pu and Burn-up in Spent LWR-Fuel Assemblies" ESARDA 2nd Annual Symposium on Safeguards and Nuclear Material Management, Edinburgh (March 1980)
- /43/ C. Beets et al., "Application of the CEN/SCK Data Bank to the Reprocessed Fuel", ESARDA Conference Isotopic Correlation Techniques, ICT-30, Stresa, May 1978
- /44/ L. Koch, "Possible ways of Verifying the Input of a Reprocessing Facility", IAEA-SM-231/4, Wien
- /45/ L. Sachs, "Angewandte Statistik", Springer Verlag (1978)
- /46/ L. Koch, "The Isotopic Correlation Experiment", Proceedings of ESARDA 2nd Annual Symposium on Safeguards and Nuclear Material Management, Edinburgh (March 1980)
- /47/ L. Koch, Persönliche Mitteilung, Karlsruhe, Juli 1981
- /48/ E. Mainka, unveröffentlicher Bericht
- /49/ P. Barbero et al., "Post-Irradiation examination of the fuel discharged from the TRINO-Vercellese-Reactor after the 2nd Irradiation Cycle", EUR-5605 e (1977)
- /50/ L. Koch, "Isotopenkorrelationstechnik in der Spaltstoff-flußkontrolle", KfK 2408 (Dezember 1977)
- /51/ C.R. Weisbin, M.M. Thorpe, "Assay of Spent Power Reactor Fuel Elements: Analysis", Nuclear Safeguards Research and Development Program Status Report, LA-4605-MS, 1970
- /52/ H.W. Wiese, M. Marzo, "Korrelationen zwischen schweren Isotopen: Eine theoretische Untersuchung der (Pu/U)/D<sup>235</sup>-Korrelation in einem 1300 MWe-Druckwasserreaktor" in ESARDA Conf. Isotopic Correlation Techniques, ICT-10, Stresa, May 1978
- /53/ J.E. Suich, H.C. Honeck, "The HAMMER System", DP-1064 (1967)
- /54/ H.W. Wiese, U. Fischer, "KORIGEN - Ein Programm zur Bestimmung des nuklearen Inventars von Reaktorbrennstoffen im Brennstoffkreislauf", KfK-3014 (in Vorbereitung)
- /55/ B. Goel, F. Weller, "Evaluations for the German Nuclear Data Library KEDAK-3 Part 2: Fissile and Fertile Materials", KfK 2386/III (1977)

- /56/ I. Broeders, B. Krieg et al., "MIGROS-3: A Code for the Generation of Group Constants for Reactor Calculations from Neutron Nuclear Data in KEDAK Format" KfK 2388 (1977)
- /57/ H. Küsters, "Reaktorphysik und Aspekte der Reaktorsicherheit", Lehrbuch der Experimentalphysik Bd. IV, Aufbau der Materie, Teil 1 und 2, Bergmann-Schaefer (1980)
- /58/ P.E. McGrath, E.A. Fischer, "KAPER - A Computer Program for the Analysis of Experiments Performed in Heterogeneous Critical Facilities", Meeting on "Mathematical Models and Computational Techniques for Analysis of Nuclear Systems", Ann Arbor (April 1973)
- /59/ K.D. Kirby, R.A. Karam, "A General Method for Generating Effective Resonance Cross Sections for Heterogeneous Media", Nucl. Sci. Eng. 59, S. 215-230 (1976)
- /60/ A. Sauer, "Approximate Escape Probabilities", Nucl.Sci.Eng. 16, S. 329-335 (1963)
- /61/ J.R. Askew, F.J. Fayers, P.B. Kemshell, "A General Description of the Lattice Code WIMS", Journal Brit. Nucl. En. Soc. 5 (1966), 564-585
- /62/ H. Frewer, W. Keller, "Das 1200-MW-Kernkraftwerk BIBLIS", Atomwirtschaft 14, S. 455-464 (1969)
- /63/ P. Barbero et al., "Post-Irradiation Analysis of the Gundremmingen GWR Spent Fuel", EUR-6301 (1979)
- /64/ M.M. ElWakil, "Nuclear Energy Conversion", p. 160, IEP Publishers, Scranton (1971)
- /65/ G. Schlosser, P. Vyltendaele, "Demonstration zur Pu-Rückführung im KWO im Zeitraum 1972-1976", Reaktortagung 1978, Hannover (1978)
- /66/ D. Smidt, "Reaktortechnik", Band 2, G. Braun Verlag (1976)
- /67/ L. Koch, Persönliche Mitteilung, Karlsruhe (August 1981)
- /68/ M.J. Bell, "ORIGEN - The Oak Ridge Isotope Generation and Depletion Code", ORNL-4628 (Mai 1973)
- /69/ "Ergebnisbericht über Forschungs- und Entwicklungsarbeiten 1979" des Instituts für Neutronenphysik und Reaktortechnik, KfK 23920, S. 20 (Februar 1980)

## Danksagung

Dem Institut für Neutronenphysik und Reaktortechnik des Kernforschungszentrums Karlsruhe, in dem ich diese Arbeit anfertigen konnte und dem Deutschen Akademischen Austauschdienst, der mich mit einem Stipendium unterstützte, sage ich an dieser Stelle meinen Dank.

Herrn Prof. Dr. A. Bayer danke ich für sein förderndes Interesse an dieser Arbeit, Herrn Prof. Dr. D. Stegemann für die Übernahme des Korreferats.

Besonders herzlich danken möchte ich Herrn Dr. H. Küsters. Er regte diese Arbeit an und förderte sie durch stete konstruktive Kritik. Seine dauernde Bereitschaft zu Diskussionen trug wesentlich zum Fortgang und Abschluß der Arbeit bei.

Herrn Dr. H.W. Wiese danke ich für viele wertvolle Diskussionen und wichtige Hinweise.

Herrn F. Bley und Herrn K. Kufner danke ich für die Hilfe bei der sprachlichen Verbesserung des Manuskriptes.

## Lebenslauf

- 1951 Geboren am 7. August 1951 in Sao Paulo  
Brasilianischer Staatsbürger
- 1959-1962 Besuch der Grundschule in Sao Paulo
- 1963-1969 Besuch des Gymnasiums in Sao Paulo
- 1970-1973 Studium der Physik an der Universität Sao Paulo
- 1973-Heute Mitarbeiter des Instituto de Pesquisas Energeticas  
e Nucleares de Sao Paulo
- 1974-1975 Studium der Reaktortechnik an der Universität  
Sao Paulo
- Seit April 1977 Doktorand im Kernforschungszentrum Karlsruhe,  
Institut für Neutronenphysik und Reaktortechnik,  
mit Stipendium des Deutschen Akademischen Aus-  
tauschdienstes