

51

Int. Cl. 2:

G 01 N 23-221

19 BUNDESREPUBLIK DEUTSCHLAND

DEUTSCHES PATENTAMT



1
7
1

DT 19 54 825 B2

11

Auslegeschrift 19 54 825

21

Aktenzeichen: P 19 54 825.5-52

22

Anmeldetag: 31. 10. 69

43

Offenlegungstag: 6. 5. 71

44

Bekanntmachungstag: 11. 12. 75

30

Unionspriorität:

32 33 31

54

Bezeichnung: Verfahren und Vorrichtung zur zerstörungsfreien Analyse von Kernbrennstoffen

71

Anmelder: Gesellschaft für Kernforschung mbH, 7500 Karlsruhe

72

Erfinder: Michaelis, Walfried, Dr., 7500 Karlsruhe

56

Für die Beurteilung der Patentfähigkeit in Betracht gezogene Druckschriften:

DT-AS 12 75 794

GB 11 03 924

US 34 56 113

US 33 76 420

Nucl. Instr. Meth., 73, 1969, S. 13-33

Fig.1

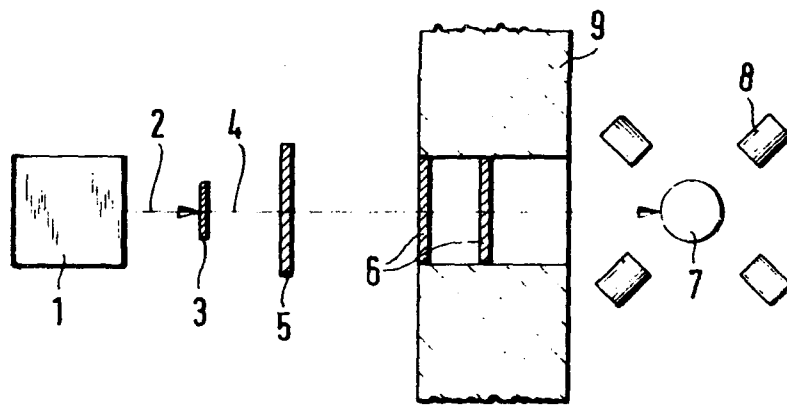
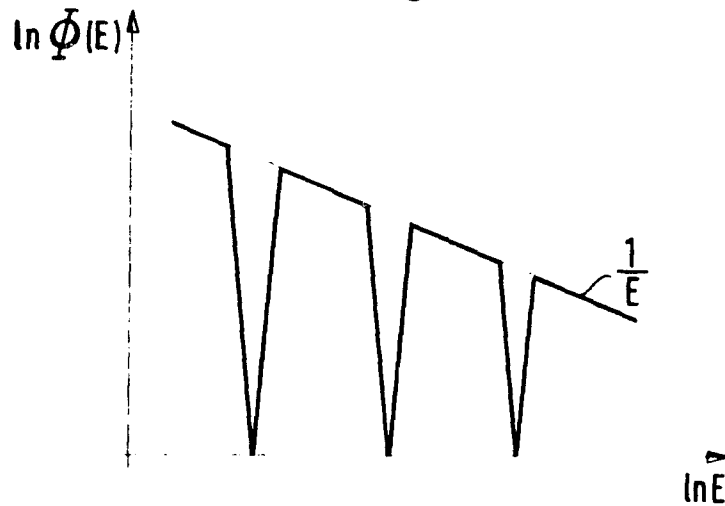


Fig.2



Patentansprüche:

1. Verfahren zur zerstörungsfreien Analyse von Kernbrennstoffen auf den Gehalt an spaltbaren Isotopen, bei dem ein Neutronenstrahl als Primärstrahlung auf den zu analysierenden Kernbrennstoff gelenkt wird, der diesen durchdringt und dabei in demselben durch Kernreaktionen eine Sekundärstrahlung erzeugt, die einen den Kernbrennstoff unmittelbar umgebenden Raum erreicht und dort gemessen wird, dadurch gekennzeichnet, daß der Neutronenstrahl (4) derart moderiert wird, daß ein Neutronenbremsspektrum entsteht, das in etwa einem 1/E-Verlauf folgt und daß aus diesem Spektrum Neutronen ausgefiltert werden, deren Energie mit den Resonanzenergien der Komponenten des zu analysierenden Kernbrennstoffes (7) übereinstimmen.

2. Vorrichtung zur zerstörungsfreien Analyse von Kernbrennstoffen auf den Gehalt an spaltbaren Isotopen, mit einem von einer Neutronenquelle ausgehenden Neutronenstrahl als Primärstrahlung, der auf den zu analysierenden Kernbrennstoff gerichtet ist, diesen durchdringt und in demselben durch Kernreaktionen eine Sekundärstrahlung erzeugt, die einen den Kernbrennstoff unmittelbar umgebenden Raum erreicht und dort mittels einer Meßeinrichtung meßbar ist, dadurch gekennzeichnet, daß zwischen Neutronenquelle und dem Kernbrennstoff (7) eine leichte Elemente enthaltende Moderator-scheibe (5) von einigen Zentimetern Dicke zum Erzeugen eines »1/E«-Neutronenbremsspektrums sowie auswechselbare Filterscheiben (6), aus im Kernbrennstoff (7) enthaltenen Isotopen bestehen, angeordnet sind.

3. Vorrichtung nach Anspruch 2, dadurch gekennzeichnet, daß das leichte Element der Moderator-scheibe (5) Wasserstoff ist, und daß die Filterscheiben (6) aus U 235, U 238 oder Pu 239 bestehen.

Die Erfindung betrifft ein Verfahren zur zerstörungsfreien Analyse von Kernbrennstoffen auf den Gehalt an spaltbaren Isotopen, bei dem ein Neutronenstrahl als Primärstrahlung auf den zu analysierenden Kernbrennstoff gelenkt wird, der diesen durchdringt und dabei in demselben durch Kernreaktionen eine Sekundärstrahlung erzeugt, die einen den Kernbrennstoff unmittelbar umgebenden Raum erreicht und dort gemessen wird und eine Vorrichtung zur Durchführung dieses Verfahrens.

Derartige Methoden sollen die technischen Voraussetzungen dafür schaffen, daß die Verwendung von Kernbrennstoffen für nichtfriedliche Zwecke ausgeschlossen werden kann, ohne daß Kontrolleure alle Teile einer nuklearen Anlage laufend inspizieren müssen.

Solche Verfahren, die sich auf eine instrumentierte Kontrolle des Spaltstoffflusses an ausgewählten strategischen Punkten im Brennstoffzyklus stützen, bieten eine ausreichende Gewähr dafür, daß Kernbrennstoffe nicht mißbräuchlich verwendet werden können.

Gleichzeitig sind sie geeignet, Vorbehalte gegen die Kontrolle abzubauen, da die Zahl eventuell erforderlicher Kontrolleure und die Dauer der Anwesenheit derselben wesentlich herabgesetzt werden kann, so daß

eine wirtschaftliche Benachteiligung der Betreiber von nuklearen Anlagen durch mißbräuchliche Verwendung von bei »manuellen« Kontrollen erlangter Kenntnisse weitgehend ausgeschlossen ist.

Die wichtigste Voraussetzung für die Anwendbarkeit eines Verfahrens zur zerstörungsfreien Analyse von Kernbrennstoffen im Rahmen eines nuklearen Kontrollsystems (Spaltstoffflußkontrolle) ist die absolute Sicherheit, jede mögliche Verfälschung des Meßergebnisses a priori auszuschließen.

Passive Methoden, die auf dem Nachweis der Strahlung beruhen, die verursacht ist durch den Kernzerfall infolge der natürlichen Radioaktivität im Kernbrennstoff enthaltener schwerer Elemente, können eine solche Verfälschungssicherheit wegen der geringen Reichweite dieser Strahlung und auftretender Selbstabschirmungseffekte nicht erreichen.

Aktive Methoden (beschrieben in der US-PS 34 56 113 und in Nuclear Instruments and Methods 73, 1969, S. 13 bis 33), bei denen von außen zugeführte Neutronen (Primärstrahlung) in dem Kernbrennstoff Kernreaktionen einleiten und die dabei entstehende Strahlung (Sekundärstrahlung) an der Oberfläche des Kernbrennstoffes gemessen wird, besitzen ebenfalls einen wesentlichen Nachteil, wenn das angewandte Nachweisverfahren eine obere Grenze für die Neutronenenergie erfordert oder aus Intensitäts- oder anderen Gründen auch niederenergetische Neutronen ausgenutzt werden sollen. Die Eindringtiefe der Primärstrahlung (Durchdringungsfähigkeit) ist infolge von Abschirmeffekten begrenzt, so daß von der Oberfläche entfernt liegende Volumenelemente nicht erreicht werden. Insbesondere haben die verschiedenen im Kernbrennstoff enthaltenen schweren Isotope unterschiedliche Absorptionsquerschnitte, die für vorbestimmte Energiebereiche der Primärstrahlung (Resonanzenergie) besonders ausgeprägt sind, so daß die Primärstrahlung nur eine dünne an der Oberfläche gelegene Schicht des Kernbrennstoffes mit hinreichender Intensität erreicht. Eine mögliche Anreicherung spaltbarer Isotope im Zentrum eines Kernbrennstoffstabes könnte also bei Anwesenheit von Resonanzneutronen an Hand der Sekundärstrahlung nicht nachgewiesen werden.

Es ist auch bekannt (GB-PS 11 03 924), einen Neutronenstrahl durch ein Cadmiumfilter zu schicken, bevor er auf einen Kernbrennstab trifft, und danach die Sekundärstrahlung aus dieser Probe mit Resonanzfiltern auszumessen.

Der Erfindung liegt jedoch die Aufgabe zugrunde, ein Verfahren zu schaffen, mit dem Kernbrennstoffe auf einfache Weise zerstörungsfrei analysiert werden können und eine absolute Sicherheit gegen Verfälschungen hinsichtlich der Zusammensetzung des Kernbrennstoffes und dessen Gehalt an spaltbaren Isotopen erreicht wird.

Diese Aufgabe wird erfindungsgemäß dadurch gelöst, daß der Neutronenstrahl derart moderiert wird, daß ein Neutronenbremsspektrum entsteht, das in etwa einem 1/E-Verlauf folgt und daß aus diesem Spektrum Neutronen ausgefiltert werden, deren Energie mit den Resonanzenergien der Komponenten des zu analysierenden Kernbrennstoffes übereinstimmen.

Eine Vorrichtung zur zerstörungsfreien Analyse von Kernbrennstoffen auf den Gehalt an spaltbaren Isotopen, mit einem von einer Neutronenquelle ausgehenden Neutronenstrahl als Primärstrahlung, der auf den zu analysierenden Kernbrennstoff gerichtet ist, diesen durchdringt und in demselben durch Kernreaktionen

eine Sekundärstrahlung erzeugt, die einen den Kernbrennstoff unmittelbar umgebenden Raum erreicht und dort mittels einer Meßeinrichtung meßbar ist, ist dadurch gekennzeichnet, daß zwischen der Neutronenquelle und dem Kernbrennstoff eine leichte Elementenenthaltende Moderatorscheibe von einigen Zentimetern Dicke zum Erzeugen eines »1«-Neutronenbremspektrums sowie auswechselbare Filterscheiben, die aus im Kernbrennstoff enthaltenen Isotopen bestehen, angeordnet sind.

Eine Weiterbildung der erfindungsgemäßen Vorrichtung ist dadurch gekennzeichnet, daß das leichte Element der Moderatorscheibe Wasserstoff ist, und daß die Filterscheiben aus U 235, U 238 oder Pu 239 bestehen.

Die in dem zu analysierenden Kernbrennstoff induzierte Sekundärstrahlung besteht beispielsweise aus hochenergetischer Gammastrahlung oder prompten oder verzögerten schnellen Neutronen. Die hochenergetische Gammastrahlung entsteht beispielsweise bei Absorptionsvorgängen durch Einfang von Neutronen, wobei nach Bildung eines Zwischenkernes dieser aus einem angeregten in seinen Grundzustand übergeht und dabei die ihm zugeführte Energie in Form von Gammaquanten abgibt [(n, γ)-Reaktion].

Eine andere Möglichkeit der Entstehung hochenergetischer Gammastrahlung ist der Zerfall von Spaltprodukten, die durch induzierte Kernspaltung im Kernbrennstoff erzeugt werden. Bei der Kernspaltung selbst entstehen auch schnelle Neutronen sowohl prompt als verzögert. Diese die Sekundärstrahlung im wesentlichen bildende Gamma- und Neutronenstrahlung ist so energiereich, daß sie auch von den von der Oberfläche des Kernbrennstoffes entfernten Volumenelementen ausgehend den die Brennstoffprobe umgebenden Raum (Meßraum) mit Sicherheit erreicht. Diese Durchdringungsfähigkeit ist auch für die Primärstrahlung dadurch sichergestellt, daß der Kernbrennstoff nur mit Neutronen beschossen wird, die keine Resonanzenergien besitzen. Somit ist der Wirkungsquerschnitt hinreichend klein und die Neutronen des Primärstrahles erreichen das Zentrum einer Kernbrennstoffprobe mit voller Intensität. Würde beispielsweise ein Brennelement inhomogener Zusammensetzung mit hochangereichertem Material im Zentrum desselben mit dem Verfahren nach der Erfindung untersucht, so würde auch dieses Material bei einem maximalen Meßfehler von der Größenordnung 1% vollständig nachgewiesen.

Wird dagegen als Primärstrahlung ein Neutronenstrahl verwendet, der nicht eine entsprechend dem erfindungsgemäßen Verfahren vorbestimmte Energieverteilung besitzt, so würde bei optimaler Anreicherung von Spaltstoffen im Zentrum eines zu analysierenden Kernbrennstoffstabes für einen schnellen Brutreaktor das Meßergebnis um bis zu 570% von der Wirklichkeit abweichen.

Die Vorteile des Verfahrens nach der Erfindung liegen insbesondere darin, daß durch das Filtern des Neutronenstrahles die Wirkungsquerschnitte für alle auf den Kernbrennstoff auftreffenden Neutronen hinreichend klein gehalten werden und damit Verfälschungen der Zusammensetzungen des zu analysierenden Kernbrennstoffes vollständig ausgeschlossen werden. Diese absolute Verfälschungssicherheit ist eine entscheidende Voraussetzung für eine bedeutende Reduzierung des personellen und finanziellen Aufwandes für eine wirksame Spaltstoffflußkontrolle, bei der die Kontrolle nuklearer Anlagen mit Mitteln der Meßtechnik auf ausge-

wählte strategische Punkte begrenzt wird.

Diese Tatsache trägt auch dazu bei, bestehende Vorbehalte gegen solche Kontrollen abzubauen, weil Möglichkeiten, bei der Kontrolle technische Erkenntnisse zu erlangen, die sich mißbräuchlich verwenden ließen und dadurch zu einer wirtschaftlichen Schädigung des Kontrollierten führen würden, nahezu völlig beseitigt werden.

Ein Ausführungsbeispiel der Erfindung ist in der Zeichnung dargestellt und wird im folgenden näher beschrieben. Es zeigt

Fig. 1 schematische Darstellung eines Ausführungsbeispiels einer Meßeinrichtung zum Durchführen des Verfahrens nach der Erfindung,

Fig. 2 Neutronenbremspektrum im Resonanzbereich,

Fig. 3 Absorptionswirkungsquerschnitt und maximale Betrugsrate für oxydisches Pu 239 und U 238.

Die in Fig. 1 dargestellte Meßeinrichtung besteht aus einem Linearbeschleuniger 1, der einen Elektronenstrahl 2 auf ein Target 3 beschleunigt, in dem durch Kernreaktionen Neutronen erzeugt werden. Der Neutronenstrahl 4 durchdringt eine Moderatorscheibe 5 zum Erzeugen eines »1/E«-Neutronenbremspektrums. Durch Filterscheiben 6 aus U 235, U 238, Pu 239 und/oder anderen in dem zu untersuchenden Kernbrennstoffstab 7 enthaltenden Stoffen werden aus dem Neutronenstrahl die Neutronen eliminiert, deren Energie im Resonanzenergiebereich dieser Stoffe liegt. Die vom Kernbrennstoffstab 7 ausgehende Sekundärstrahlung wird mit geeigneten Detektoren 8, z. B. Germanium-Detektoren oder Natrium-Jodid-Zählern, gemessen. Brennstoffstab 7 und Detektoren 8 sind vom Linearbeschleuniger 1 durch eine geeignete Abschirmung 9 getrennt, die eine Bohrung für den Durchtritt des Neutronenstrahles besitzt.

In Fig. 2 ist die Intensität des Neutronenflusses Φ als Funktion der Neutronenenergie E im Resonanzbereich dargestellt. Der etwa einem 1/E-Gesetz folgenden Verlauf von Φ stellt sich ein, wenn der Neutronenstrahl 4 aus der Moderatorscheibe 5 austritt. Durch die Filterscheiben 6 werden die Neutronen mit Resonanzenergie eliminiert.

In Fig. 3 ist im unteren Diagramm der Absorptionswirkungsquerschnitt für Pu 239 und U 238 als Funktion der Neutronenenergie dargestellt.

Das obere Diagramm der Fig. 3 zeigt die sogenannte Betrugsrate ebenfalls als Funktion der Neutronenenergie.

Die Betrugsrate ist dabei diejenige Menge spaltbaren Materials (hier Pu 239), die bei optimaler heterogener Struktur eines Kernbrennstoffstabes in diesem zusätzlich enthalten sein kann, ohne daß sich das Meßergebnis von demjenigen eines Kernbrennstoffstabes homogener Struktur (hier 15% oxydisches Pu 239 und 85% oxydisches U 238; Dichte 10,35 g/cm³) um mehr als 0,5% unterscheidet.

Da ferner der Wirkungsquerschnitt für U 238 eine deutliche Resonanzstruktur aufweist, lassen sich die Intensitäten z. B. der Gammalinien von U 239 aus der (n, γ)-Reaktion relativ zu denen anderer Isotope durch Wahl geeigneter Filterdicken derart verbessern, daß auch U 238 mit Sicherheit nachgewiesen werden kann.

Am Elektronenlinearbeschleuniger können mit geeigneter Filterung im Falle von Germanium-Detektoren bei der (n, γ)-Reaktion alle Neutronenenergien unterhalb etwa 5 KeV ausgenutzt werden. Bei Verwen-

5
19 54 825

5

dung von Natrium-Jodid-Zählern läßt sich ein Energiebereich bis zu mehreren 100 KeV ausnutzen.

Im Falle von verzögerter Sekundärstrahlung unterliegt die Primärneutronenenergie überhaupt keiner Beschränkung.

5

Hierzu 2 Blatt Zeichnungen

Fig. 3

