

Inspektion von Brenn- und Steuerelementen mittels Neutronenradiographie mit einer kleinen Antimon-Beryllium-Neutronenquelle.

L.Greim, W.Spalthoff

22. Treffen der EG-Arbeitsgruppe "Heisse Laboratorien und Fernbedienung" am 8. - 10. Juni 1983 in Petten.

GKSS-Forschungszentrum Geesthacht GmbH
Max Planck Strasse - Postfach 11 60 - 2054 Geesthacht
Telefon (04152)12-1 - Telex 01 187 12 gkssg

Inhaltsverzeichnis

1. Einleitung
2. Auslegung der Quelle
3. Zusammenbau der Quelle und Messungen
4. Neutronenradiographie in den Heißen Zellen.
5. Schlußbemerkung

1. Einleitung

Die Möglichkeit neutronenradiographische Prüfungen in Heißen Zellen vorzunehmen ist sehr nützlich, insbesondere zur zerstörungsfreien Nachuntersuchung von Kernreaktorkomponenten wie Steuerstäben und Brennstoffelementen. Im allgemeinen sind solche Objekte zu groß für übliche Neutronenradiographieanlagen, wie sie an vielen Forschungsreaktoren eingerichtet sind /1/. So ist bereits ein spezieller Reaktor für die Neutronenradiographie in einer Heißen Zellen Anlage beim Argonne National Laboratory /2/ installiert, eine ähnliche Anlage ist für das Hanford Engineering Development Laboratory /3/ geplant.

Auch Radionuklid-Neutronenquellen sind für diese Zwecke geeignet. Die kleineren Quellstärken erfordern längere Expositionszeiten und man erreicht unter Umständen nur eine geringere Schärfe der Durchstrahlungsbilder. Von Vorteil ist jedoch der geringe Platzbedarf und der wesentlich niedrigere finanzielle Aufwand.

Geeignete Neutronenquellen sind Präparate von ^{252}Cf , welches Neutronen durch spontane Spaltung emittiert mit einer Ausbeute von $2,3 \cdot 10^9$ n/s pro mg Cf; und ^{124}Sb -Be Quellen, bei denen die Neutronen durch nuklearen Photoeffekt erzeugt werden. Eine Quellstärke in der Größenordnung von 10^{10} n/s pro kCi ^{124}Sb kann erreicht werden /4/.

Zur Anwendung im Heißen Zellen Labor im GKSS Forschungszentrum wurde eine Antimon-Beryllium-Neutronenquelle entwickelt. Die Materialkosten sind geringer als die einer gleichwertigen ^{252}Cf -Quelle. Die kürzere Halbwertszeit von 60,3 Tagen des ^{124}Sb ist in diesem Fall kein Nachteil, da die Untersuchungsperioden im allgemeinen kurz sind. Im übrigen ist die Quelle wiederaufladbar durch erneute Aktivierung des Antimons im Forschungsreaktor FRG 2. Antimon-Beryllium-Quellen werden hauptsächlich als Anfahrquellen für Kernreaktoren verwendet /5/. Bei vorgegebener zylindrischer Form und Größe wird bei einem inneren Zylinder aus Antimon eine maximale Neutronenausbeute erreicht, der in einem Beryllium-Hohlzylinder gleichen Volumens steckt.

Für die Zwecke der Neutronenradiographie ist es wichtig einen hohen thermischen Neutronenfluß zu erzielen. Die Anordnung muß deshalb einen Neutronenmoderator enthalten und die günstigste geometrische Form der Quelle wurde erstmalig von Warman /6/ vorgeschlagen und ausgeführt. Cutforth /7, 8/ berichtet über Optimierung einer Quelle in bezug auf die Berylliummenge. Seine Anordnung wurde für die Anwendung der Neutronenradiographie in Heißen Zellen gebaut und war relativ groß (Zylinder 100 cm Ø 100 cm hoch). Quellen für die Verwendung unter Wasser wurden untersucht von Courtemanche und Kushnerink /9/ und von Farny /10/. Die genannten Veröffentlichungen stammen aus den Jahren 1965/68. Neutronenradiographie mit Antimon-Beryllium-Neutronenquellen ist in neuerer Zeit nicht bekannt geworden.

2. Auslegung der Quelle

Der Aufbau der bei GKSS gebauten Sb-Be-Neutronenquelle unterscheidet sich stark von bekannten Anordnungen. Es wurden folgende Randbedingungen gesetzt:

- Die Quelle sollte klein sein und mit dem Kraftmanipulator der Heißen Zelle transportiert werden können. So wurde eine zylindrische Form von 20 cm Durchmesser und 20 cm Höhe festgelegt.
- Die Aktivität des einzusetzenden ^{124}Sb sollte in der Größenordnung von 1 kCi sein und erzeugt werden durch Aktivierung in einer Reflektorposition des FRG 2 ($\Phi_{\text{th}} 5 \cdot 10^{13} \text{ n/s cm}^2$) während einer Betriebsperiode von 20 - 30 Tagen. Unter diesen Bedingungen ist eine Masse um 400 g Antimon erforderlich.
- Die Moderation der 25 keV Primär-Neutronen sollte in einem kleinen Volumen erfolgen, das eine Flußfalle bei der Austrittsblende bildet.

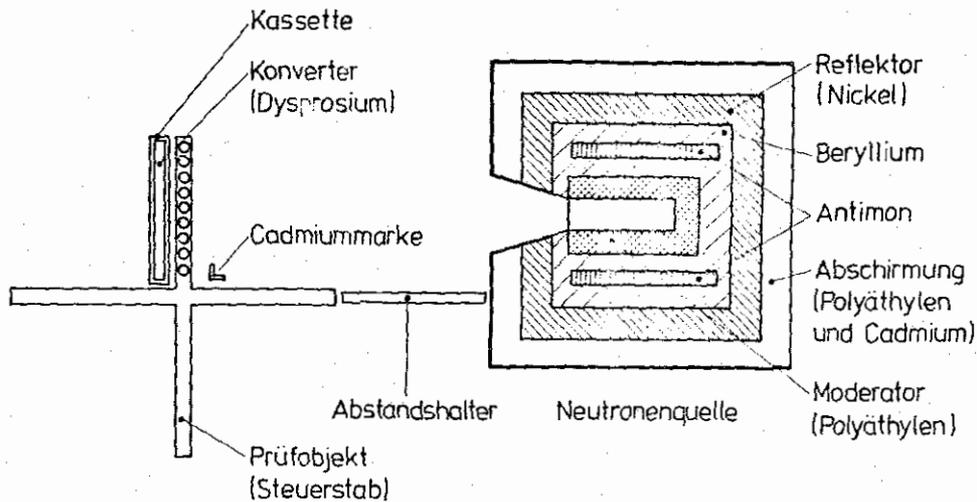


Bild 1 Sb-Be Neutronenquelle in einer Anordnung für die Radiographie eines Siedewasserreaktor-
Steuerelementes

Die Konstruktion, die sich nach diesen Voraussetzungen ergab, ist aus Bild 1 ersichtlich. Es stellt einen axialen Schnitt durch die zylindrische Quellenanordnung dar. Als Moderator befindet sich im Zentrum ein Zylinder aus Polyäthylen mit einer Bohrung, die sich an die Austrittsblende anschließt. Das Polyäthylen ist umgeben von einem Berylliumkörper.

In acht kreisförmig angeordneten Bohrungen im Beryllium wird Antimon in Form von Stäben untergebracht. Umgeben ist dieser Berylliumkörper von einer Schicht aus Nickel, welches als Neutronenreflektor dient. Eine Neutronenabschirmung, bestehend aus Polyäthylen und Cadmiumblech bildet die äußere Schicht. Der Austrittskollimator durch die Abschirmung ist ebenfalls mit Cadmium ausgekleidet. Die Dimensionierung der verschiedenen Materialdicken ergab sich aus Parameterstudien bei Berechnung der Neutronenverteilung mit der Monte Carlo Methode. Dabei wurde zur Vereinfachung die Geometrie eines unendlich langen Zylinders angenommen. Bild 2 zeigt ein Ergebnis der berechneten Flußverteilung bei Einteilung in 3 Energiegruppen. Die Radien der

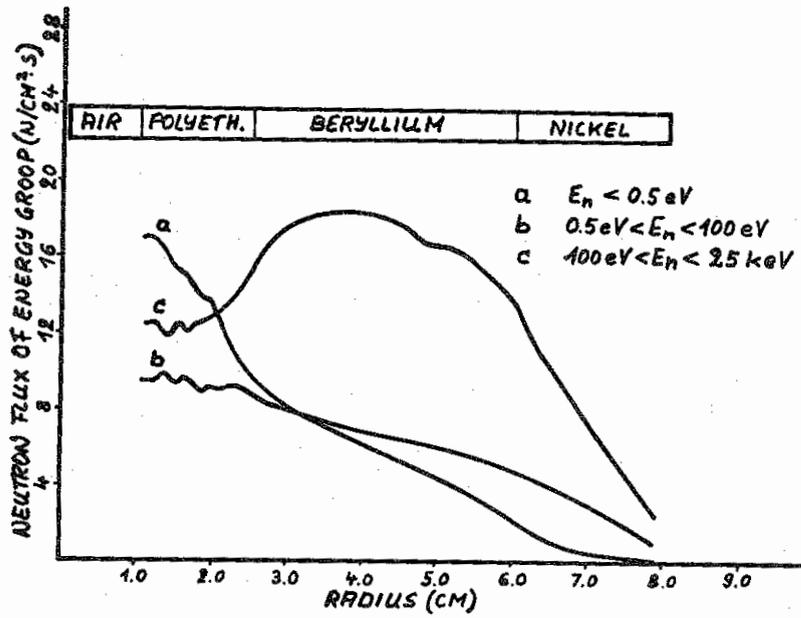


Bild 2 Neutronenflussverteilung in der Quelle in 3 Energiegruppen

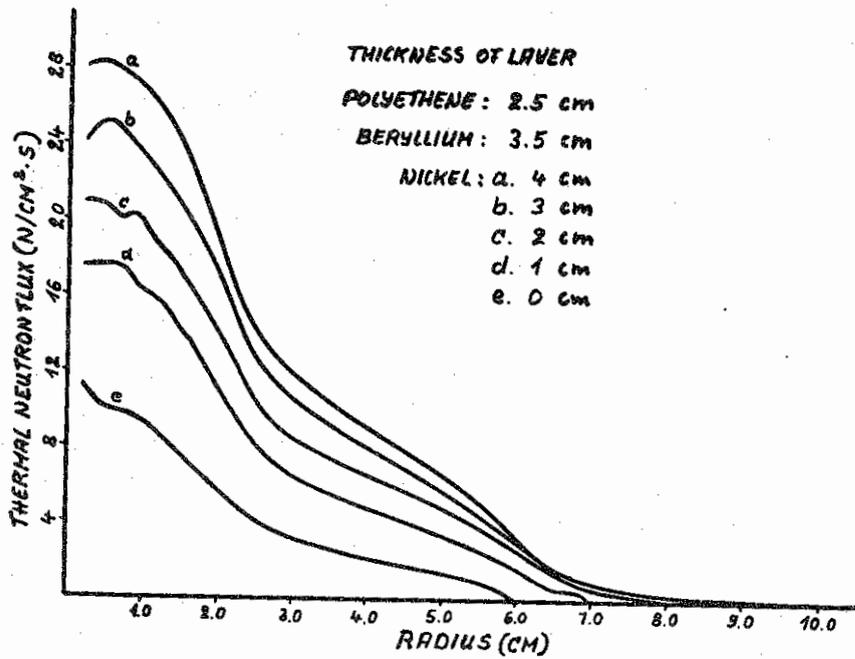


Bild 3 Verteilung des thermischen Neutronenflusses für verschiedene Dicken des Nickelreflektors

einzelnen Schichtgrenzen entsprechen hier denen der gebauten Quelle. Die Wirkung des zentralen Polyäthylenkörpers als Flußfalle ersieht man aus der Erhöhung des thermischen Neutronenflusses (Energiegruppe a) zur Achse des Zylinders. Die Effektivität eines Nickel-Reflektors wird in Bild 3 deutlich in der Zunahme des thermischen Neutronenflusses mit steigender Reflektordicke. In ähnlicher Weise wurden weitere Rechnungen bei Variation der Schichtdicken des Berylliums und des Polyäthylens vorgenommen. Es ergaben sich die Auslegungsgrößen:

- Zentrale Bohrung 2 cm Durchmesser
- Polyäthylenzylinder 5 cm Außendurchmesser
- Wandstärke Beryllium 3 cm
- Wandstärke Nickel 2 cm

Aus Gründen der notwendigen Vereinfachung des Berechnungsverfahrens wurde nicht berücksichtigt: eine Geometrie mit endlicher Zylinderlänge, die Wirkung der Antimonstäbe auf die Neutronenabsorption und der Einfluß gleichzeitiger Variation aller unabhängigen Auslegungsgrößen. Es kann jedoch angenommen werden, daß der gewählte Aufbau sehr nahe an dem Optimum der Neutronenflussesausbeute liegt.

3. Zusammenbau der Quelle und Messungen

Die Bauteile der Neutronenquelle werden in einem Aluminiumgehäuse untergebracht. Sie sind von einfacher Form, die Montage kann mit Manipulatoren in einer heißen Zelle vorgenommen werden. Insbesondere können bei Nichtgebrauch der Quelle die aktivierten Antimonstäbe entnommen werden, so daß die Neutronenerzeugung abgestellt ist.

Aus Sicherheitsgründen haben die Sb-Stäbe eine Umhüllung aus rostfreiem Stahl. Sie werden zur Aufaktivierung in einer Randposition des FRG2 eine Betriebsperiode lang bestrahlt. Die induzierte Aktivität wird aus der Bestrahlungsfluens berechnet, die mit Aktivierungsdetektoren (Fe - Folien) bestimmt wird. Typische Werte liegen bei 37 - 55 TBq (1,0 - 1,5 kCi) ¹²⁴Sb am Bestrahlungsende.

Der thermische Neutronenfluß in der Quelle wurde durch Aktivierung von Goldfolie ermittelt. Normiert auf eine Beladung mit 37 TBq ^{124}Sb beträgt er:

- an der Austrittsöffnung des Polyäthylenkörpers $\phi_a = 0.5 \cdot 10^8 \text{ n/cm}^2$
- am Boden der Bohrung $\phi_b = 1.1 \cdot 10^8 \text{ n/cm}^2$

Aus dem gemessenen Cd-Verhältnis von $R = 2,2$ der Goldfolienaktivierung geht hervor, daß das Neutronenspektrum wesentlich härter ist als das bei der Neutronenradiographieanlage am Strahlrohr des FRG1 ($R = 5,0$).

4. Neutronenradiographie in den Heißen Zellen.

Die Quelle wurde erstmalig eingesetzt für die Neutronenradiographie bei der Nachuntersuchung eines hochabgebrannten Steuerelements aus einem Siedewasserreaktor /11/. Der Experimentaufbau ist in Bild 1 gezeigt. Das Steuerelement hat einen kreuzförmigen Querschnitt. In jedem der 4 Blätter sind 15 Röhrcen aus Edelstahl zusammengefaßt. Diese Röhrcen (Außendurchmesser 4,7 mm) enthalten das Absorbermaterial Borcarbidpulver (B_4C), welches mit Vibrationsverdichtung eingefüllt wurde. Die gesamte Absorberlänge des Elements beträgt 330 cm. Die Neutronenradiographieanordnung hatte ein Kollimationsverhältnis von 10, dem entspricht ein mittleres Ortsauflösungsvermögen der Durchstrahlungsbilder von 0,5 mm. Bei diesen Untersuchungen wurde die Transfermethode benutzt (Aktivierungsschirm Dysprosium 0,1 mm dick, Autoradiographie auf Röntgenfilm Strukturix D7).

Die Radiographie wurde in Schritten von 15 cm vorgenommen. Um Bilder mit einer Schwärzung zwischen 1,0 und 1,5 zu erhalten, waren Bestrahlungszeiten für den Aktivierungsschirm von 6 Stunden notwendig. Bei diesen Zeiten liegt man in der Nähe der Sättigungsaktivität. Die Expositionszeit des Aktivierungsschirms auf dem Röntgenfilm lag in der gleichen Größenordnung. Auf diese Weise wurden bei 3 Blättern etwa 100 cm des oberen Abschnitts des Absorbers untersucht sowie der untere Abschnitt eines der Absorberblätter.

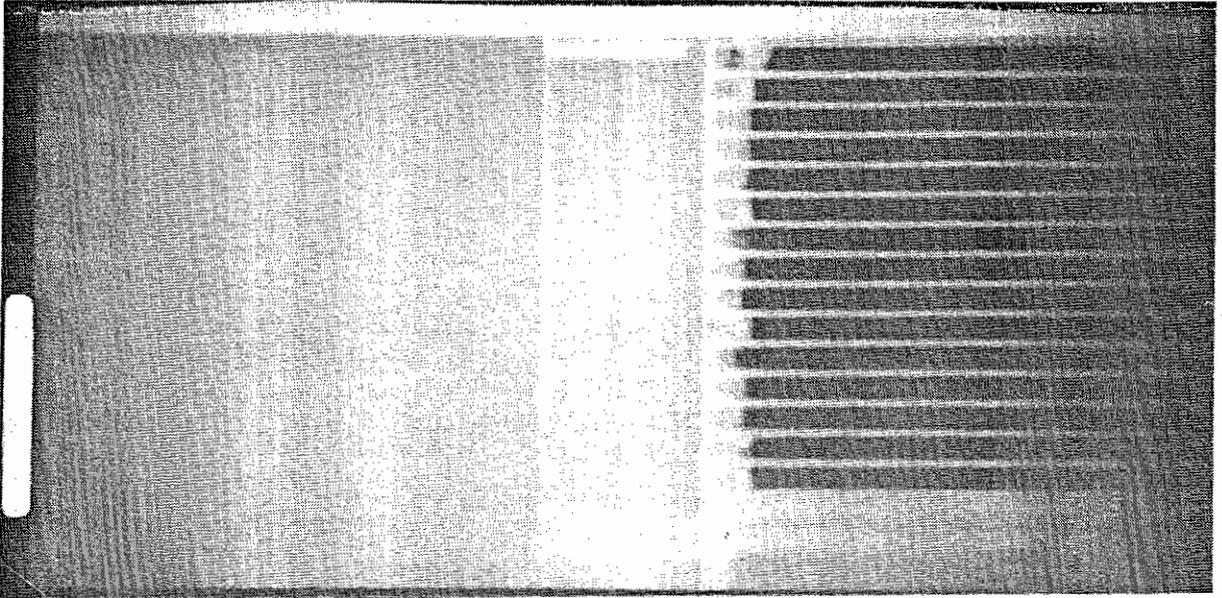


Bild 4 Neutronenradiographie, unterer Abschnitt eines Blattes des Siedewasserreaktor-Steuer-elementes

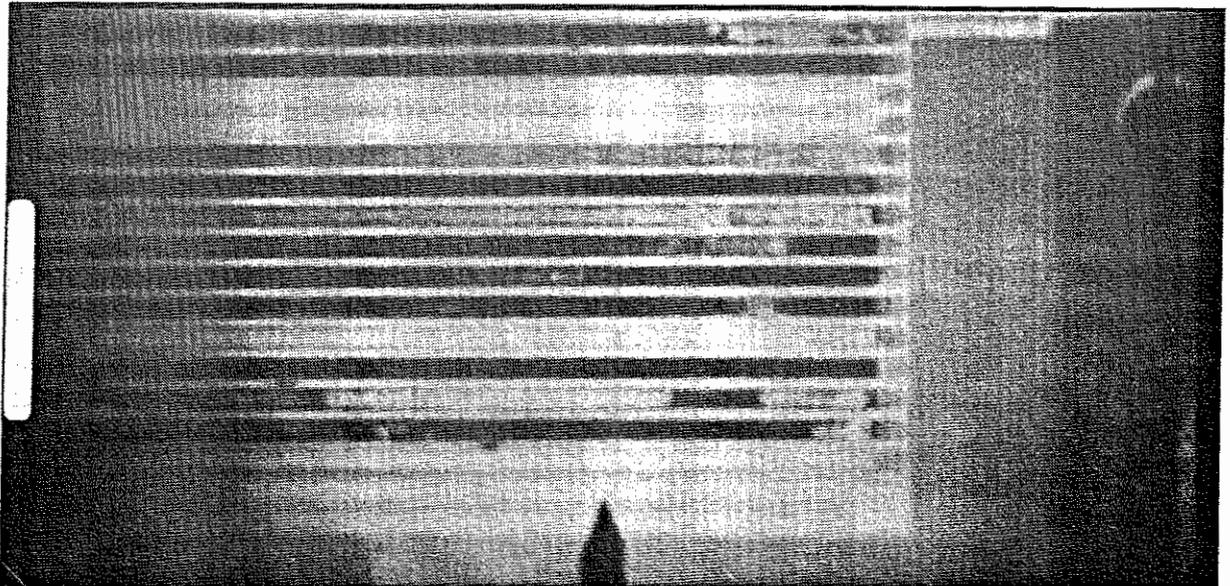


Bild 5 Neutronenradiographie, oberer Abschnitt eines Blattes des Siedewasserreaktor-Steuer-elementes

Die Durchstrahlungsbilder (Bild 4) aus dem unteren Teil des Steuerelement-Blattes (Borabbrand 5 %) zeigten den guten Zustand des Absorbermaterials. Im oberen Abschnitt des Steuerelements (Bild 5) wurden erhebliche Borkarbidlücken gefunden, im wesentlichen in einem Gebiet mit einem ^{10}B -Abbrand von mehr als 35 %. Anschließende Wirbelstromuntersuchungen und die Ergebnisse aus Hüllrohrquerschliffen bestätigten die Absorberverluste durch Spannungsrisse im Hüllrohrmaterial. Die maximale Standzeit dieser Steuerelemente wurde auf Grund solcher Befunde auf 35 % maximalen ^{10}B -Abbrand herabgesetzt.

Ähnliche Untersuchungen eines Steuerelements sind am Dodewaard Reaktor (Niederlande) mit Hilfe einer ^{252}Cf -Quelle, Quellstärke $0,5 \cdot 10^9$ n/s, vorgenommen worden /12/.

Neutronenradiographie nach dem Spurenätzverfahren wurde angewandt bei der Untersuchung eines Dummy-Brennstoff-Elementes des Schiffsreaktors NS OTTO HAHN. Das Dummy-Element wurde für Schwingungsprüfungen hergestellt. Es enthält Silber anstelle der UO_2 Pellets. Die Neutronenradiographieversuche wurden gemacht, um die Möglichkeiten zu prüfen, defekte Brennstoffstäbe bei In-Pool-Untersuchungen nachzuweisen. Zu diesem Zweck wurden einige der Stäbe gegen solche ausgewechselt, die Plexiglas enthielten, um eine Füllung des Leerraumes mit Wasser zu simulieren. Durch den Abstand von 40 cm zwischen Neutronenquelle und Objekt wurde ein Kollimationsverhältnis von 20 eingestellt. Die Plastikfilme (Kodak-Pathe CA80-15B) wurden hinter verschiedenen Reihen des Bündels im Bereich der Federn angebracht. Bild 6, aufgenommen hinter 2 Reihen von Brennstoffstäben zeigt, daß Federn und Hüllrohr gut dargestellt werden. In der dritten Reihe waren Plexiglasstäbe eingefügt. Bild 7 ist eine Aufnahme hinter dieser Reihe. Auswertbare Durchstrahlungsbilder konnten noch hinter 5 - 8 Reihen von Hüllrohren gewonnen werden. Die Aufnahmezeit der gezeigten Bilder betrug 18 Stunden, auswertbare Aufnahmen erhielt man noch bei einer Expositionszeit von 4 Stunden. Im Prinzip wird es also möglich sein, wassergefüllte defekte Brennstäbe durch Neutronenradiographie des Brennstoffelements herauszufinden.

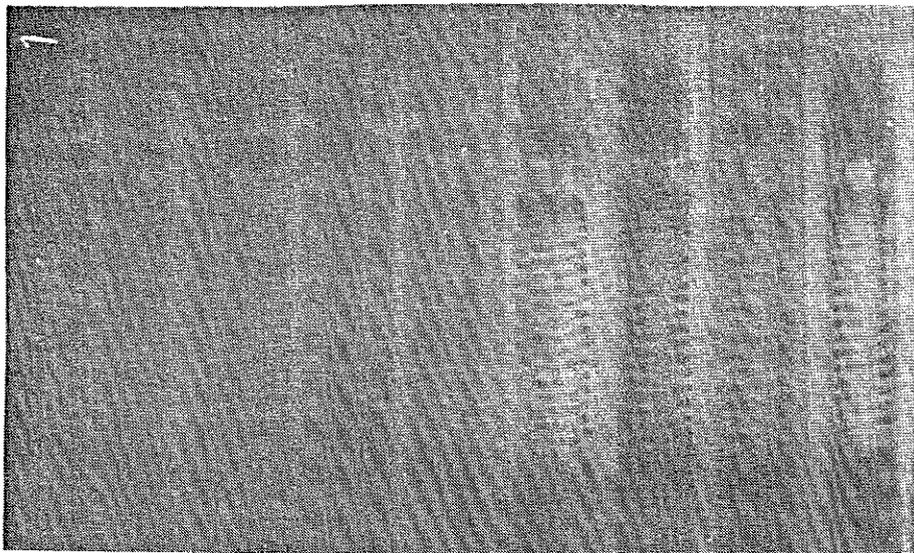


Bild 6 Neutronenradiographie hinter 2 Reihen von Brennstoff-Stäben

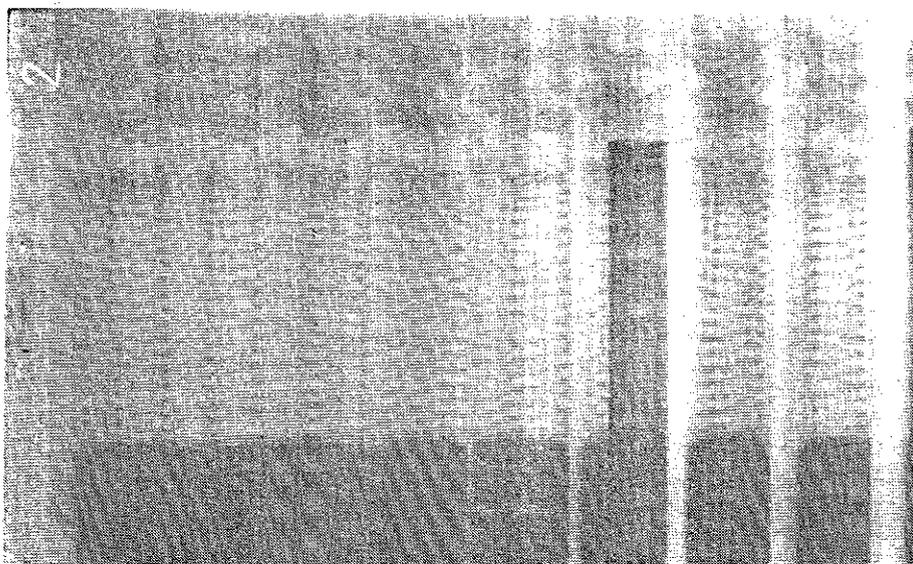


Bild 7 Neutronenradiographie hinter 3 Reihen von Brennstoff-Stäben. 3. Reihe enthält zwei Stäbe mit Plexiglas, um Wasserfüllung zu simulieren.

5. Schlußbemerkung

Die beschriebene Neutronenquelle erwies sich als nützliches und kostengünstiges Instrument für Neutronenradiographie in den heißen Zellen. Eine Steigerung der Schnelligkeit der Aufnahmen erscheint möglich durch Verwendung von Spurenätzfolien mit angereichertem ^{10}B . Die Quelle sollte auch geeignet sein, in einer Unterwasseranlage an einem Kraftwerksreaktor für wiederholende Prüfungen an Reaktorkomponenten eingesetzt zu werden.

6. Literatur

- /1/ P. von der Hardt and H. Röttger:
Neutron Radiography Handbook. D. Reidel Publ. Co. (1981)
- /2/ W.J. Richards and G.C. McClellan:
Hot Fuel Examination Facility Neutron Radiography Reactor Design, 1st
World Conf. on Neutron Radiography, San Diego, Cal., Dec. 7.-10.1981
- /3/ R.L. Tomlinson and J.B. Henshall:
Design for Neutron Radiography at the Fuels and Materials Examination
Facility. 1st World Conf. on Neutron Radiography, San Diego, Cal.,
Dec. 7.-10.1981
- /4/ E.J. Hennelly:
Intense Sb-Be Sources make 10^{10} Neutrons/sec. Nucl. 19 (1961) 124
- /5/ F. Bensch et. al.:
Sb-Be-Photoneutronenquellen als Startquellen in Forschungsreaktoren.
Atomkernenergie (AtKE) 15 (1970) 255
- /6/ E.A. Warman:
Neutron Radiography in Field Use. Mat. Eval. 23 (1965) 633
- /7/ D.C. Cutforth, V.G. Aquino:
Neutron Radiography in the EBR-II Fuel Cycle Facility Using an Iso-
topic Neutron Source. Transactions Am. Nucl. Soc. 10 (1967)
- /8/ D.C. Cutforth:
On Optimizing an Sb-Be Source for Neutron Radiography Application.
Mat. Eval. 26 (1968)
- /9/ R. Courtemanche, S.A. Kushnerink:
Thermal Fluxes of 10^8 n/sec cm^2 from $^{124}\text{Sb-Be}$. Canad. Nucl. Technol.
(1966)

- /10/ J.P. Barton:
Moderation of Neutrons from Point Source Application.
DR/SAR-G/67-45/JPB/MC (1967)
- /11/ J. Müllauer et.al.:
Einsatz der Heißen Zellen zur Nachuntersuchung eines hochabgebrannten
Siedewasserreaktor-Steurelements aus dem Kernkraftwerk Gundremmin-
gen. GKSS-Jahresbericht (1980)
- /12/ W.J. Osterkamp et.al.:
In Pool Neutron Radiography of a BWR Control Blade. 1st World Conf.
on Neutron Radiography, San Diego, Cal., Dec. 7.-10.1981