

Kernreaktoren

Steuerung und Betrieb des Reaktors

Der zeitliche Verlauf der Anzahl spaltfähiger Neutronen ist gegeben durch:

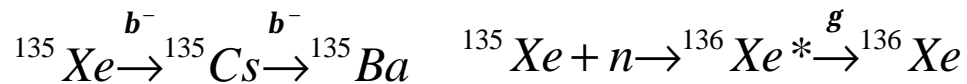
$$N(t) = N_0 e^{r \cdot k_{eff} \cdot t / T}$$

Um einen stationären Betrieb zu gewährleisten muss dafür gesorgt werden, dass die Reaktivität ρ null bleibt. Für die Regelung mit Hilfe der Steuerstäbe bleibt somit die Zeit einer **Reaktorperiode** T . Diese ist in der Praxis mit 0.1 – 80 Sekunden lang genug, um effektiv zu regeln.

Anfahren des Reaktors in Stufen mit $\rho > 0$

Xenonvergiftung nach Abschaltung des Reaktors

Spaltprodukt ^{135}Xe ist Absorber für Neutronen

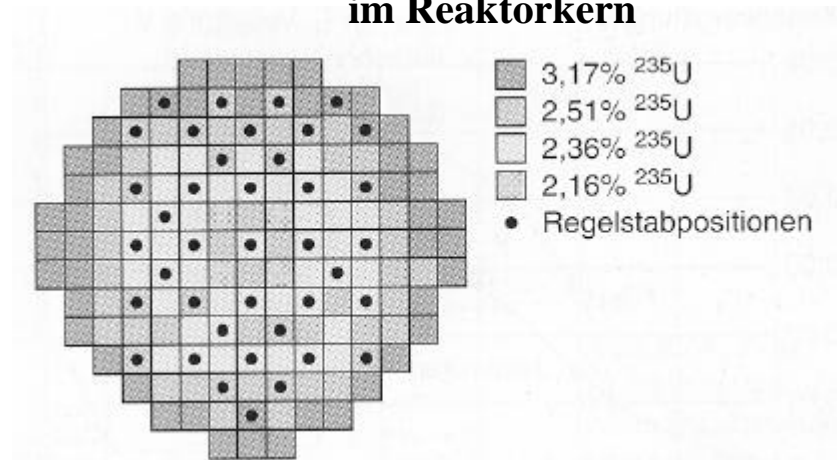


Beim stationären Betrieb stellt sich eine Gleichgewichtskonzentration von ^{135}Xe ein. Nach 48 h ist diese abgebaut => Reaktor wieder anfahren.

Abbrand der Brennelemente

- höchste Anreicherung im Außenbereich des Kerns (da hier mehr Verluste)
- Arbeitszyklus unter Vollast ca. 2 Jahre 1/3 der Elemente aus der Mitte (größter Abbrand; geringste Anreicherung) werden entfernt.
- Randelemente werden in die Mitte versetzt und am Rand kommen neue Brennelemente

Anordnung der Brennelemente im Reaktorkern



Forschungsreaktoren

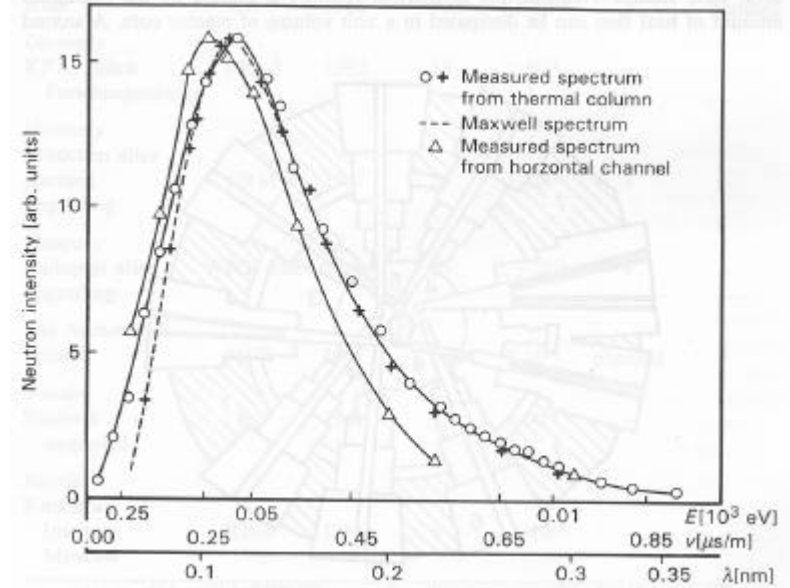
Liste einiger Forschungsreaktoren

EUROPE	Reactor type	Operated in (upgr. in)	Power (MW)	Thermal flux (n/cm ² s)	Cold source	Hot source
<i>France+FRG+UK</i>						
Institut Laue-Langevin, Grenoble	HFR	1971	57	1.2·10 ¹⁵	+	+
<i>France</i>						
Laboratoire Leon Brillouin, Saclay	ORPHEE	1983	14	3·10 ¹⁴	+	+
<i>Denmark</i>						
Risø	DR-3	1960	10	1.5·10 ¹⁴	+	planned
<i>Germany</i>						
KFA, Jülich Forschungsreaktor	FRJ-2	1962	23	2·10 ¹⁴	+	-
<i>Germany München after planned upgrading</i>						
FRM	1957	20	7·10 ¹⁴	+	-	

Kalte Quelle

Druckbehälter gefüllt mit flüssigem H₂ oder D₂ bei Temperaturen zwischen 20 – 30 K
 => Neutronen einer Energie von ca. 6Å

Geschwindigkeitsspektrum der Neutronen



Energieverteilung für Neutronen bei 293 K:
 $k_B T: 25 \text{ meV}; v_0 = 2200 \text{ m/s}$

Maxwell'sche Geschwindigkeitsverteilung:

$$N(E)d(E) = A \frac{E^{1/2}}{(k_B T)^{2/3}} e^{-E/k_B T} dE$$

$$\text{mit } \frac{1}{2} m_n v_0^2 = k_B T \longrightarrow v_0 = \sqrt{\frac{2k_B T}{m_n}}$$

Neutronenquellen

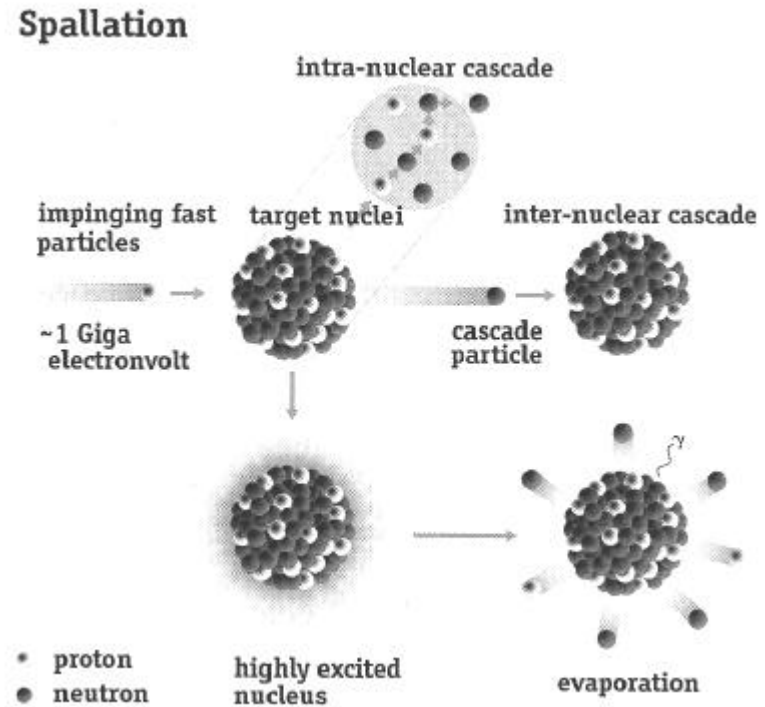
Prozesse der Neutronenerzeugung

„fission“

Spaltung => im Reaktor

„spallation“

Zersplitterung => mit hochenergetischen
Protonen aus einem Beschleuniger
=> Spallationsquelle

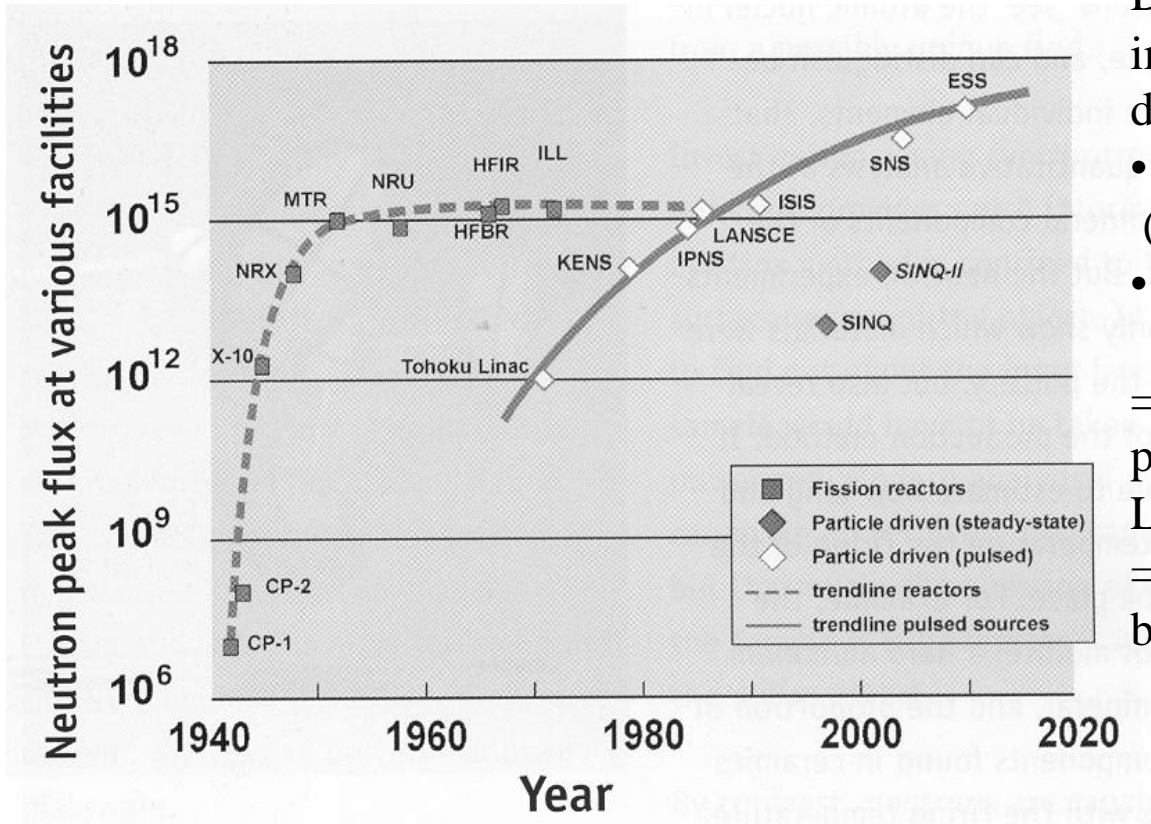


Neutronenerzeugung durch Spallation

Die Neutronen werden unter Protonenbeschuss abgedampft (bis zu 30 Neutronen pro Kern). Die beschossenen Materialien (Target) sind Schwermetalle die genügend Neutronen abgeben können. Die Kettenreaktion wird aus der kinetischen Energie der Protonen gespeist und bricht nach Verbrauch dieser Energie ab. => keine Neutronen nach Abschalten des Protonenstrahls !

Neutronenquellen

Entwicklung der Neutronenflüsse für Reaktoren und Spallationsquellen



Die Steigerung des Neutronenflusses im Reaktor erfolgt im wesentlichen durch:

- Erhöhung des Anreicherungsgrades (bis 95 % ²³⁵U)
- Verkleinerung des Reaktorkerns

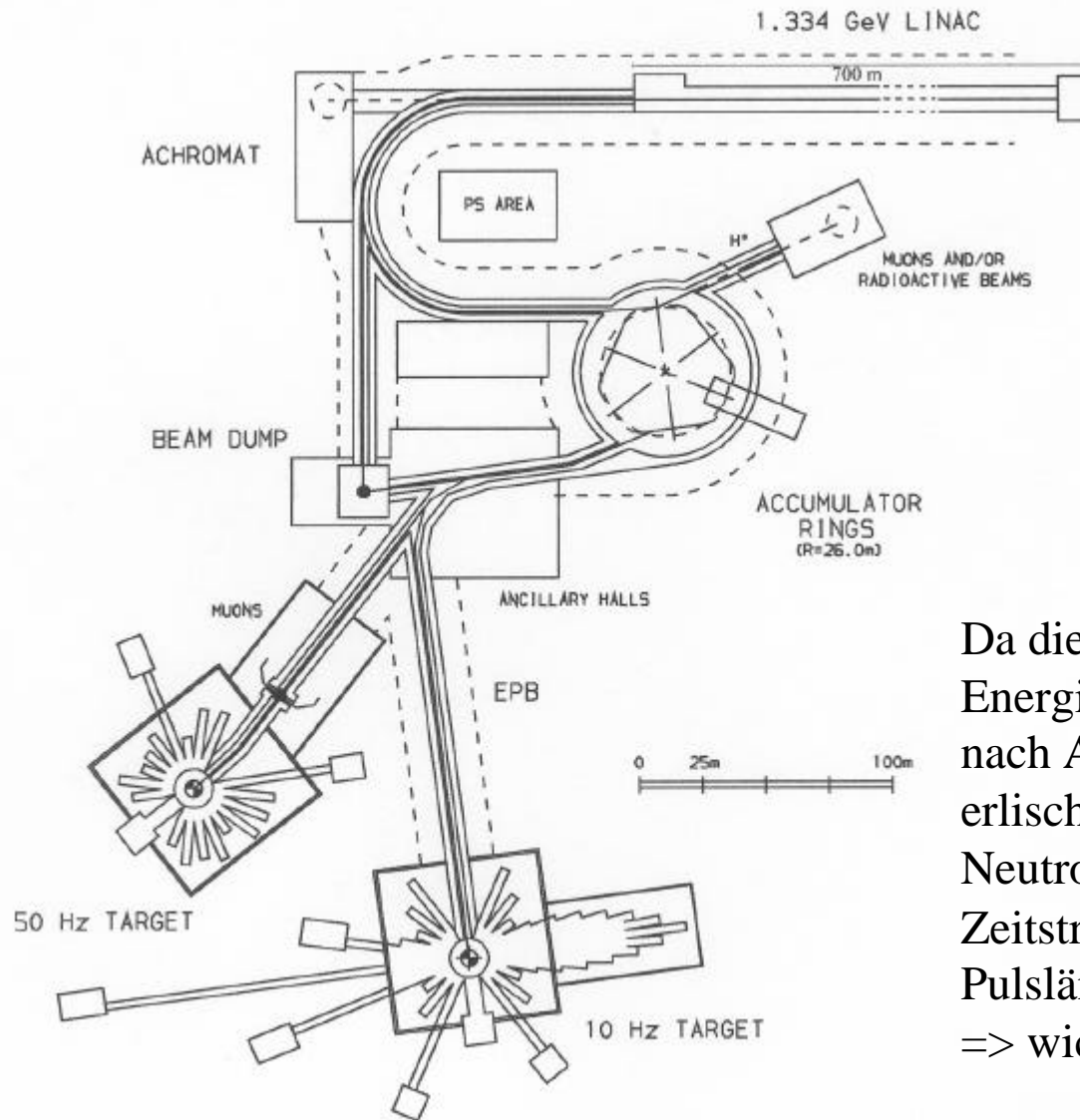
=> Erhöhung der Zahl der Spaltungen pro Volumeneinheit => große Leistungsdichten (1.1 MW/dm³)
=> Beschränkung des Neutronenflusses bei Forschungsreaktoren

→ Erhöhung des Neutronenflusses um den Faktor 10 –100 im Pulsbetrieb über Spallationsquellen !

→ geplante Spallationsquelle:
ESS: **E**uropean **S**pallation **S**ource

Spallationsquelle

Schema der ESS



Komponenten der Spallationsquelle

- Ionenquelle
- Linearbeschleuniger (LINAC)
- Speicher- und Kompressorring
- Target (Schwermetalle, z.B. Quecksilber)
- Moderatoren
- Strahlrohre => Meßplatz

Da die Spallationsreaktion nur unter Energiezufuhr aufrecht zu erhalten ist, also nach Abschalten der Protonenquelle sofort erlischt, lässt sich der Freisetzung der Neutronen prinzipiell jede gewünschte Zeitstruktur aufprägen (z.B. Pulse mit μs Pulslänge und 10 – 50 Hz Wiederholrate => wichtig für Neutronenspektroskopie !)

Spallationsquelle

Anforderung an die Spallationsquelle

- Protonen der Energie von etwa 1 GeV haben in Schwermetallen (Blei, Tantal, Wolfram, Quecksilber) eine Reichweite von etwa 50 cm (=> kompakte Neutronenquelle möglich).
- In Abhängigkeit von der Protonenenergie werden im Targetmaterial ca. 20 – 30 Neutronen frei, die eine ähnliche Energieverteilung wie im Reaktor haben (Energie-mittelwert ~ 2 MeV). Damit können die schon bewährten Moderatoren (z.B. Wasser, H₂, etc.) zum Abbremsen auf thermische Energien benutzt werden.

Um den 100-fachen Neutronenfluss eines Höchstflussreaktors zu erzeugen muss der Protonenstrahl die folgenden Eigenschaften haben:

Mit

Reaktorleistung/Energie pro Spaltung = Spaltung/Sekunde = verfügbare Neutronen/Sekunde

folgt für einen 57 MW-Reaktor: $2 \cdot 10^{18}$ n/s

Für die Spallationsquelle gilt: $(2 \cdot 10^{20} \text{ n/s}) / (20 \text{ n/p}) = 10^{19} \text{ p/s}$.

Mit 1 Ampere = $6.25 \cdot 10^{18} \text{ p/s}$ folgt: $(10^{19} \text{ p/s}) / (6.25 \cdot 10^{18} \text{ p/s/A}) = 1.6 \text{ A}$

Dieser Strom muss in einem Puls vorhanden sein. Ionenquellen können aber bestenfalls 100 – 200 mA erzeugen => Pulse in einem **Kompressorring akkumulieren und komprimieren.**

Komponenten der Spallationsquelle (ESS)

Linearbeschleuniger (Linac)

mittlere Strahlleistung: 5 MW

Protonenenergie: 1.334 GeV

Pulsstrom: 107 mA

Pulsrate: 50 Hz

Pulsdauer: 2 x 0.6 ms

2 parallel arbeitende Kompressorringe

Pulsrate in beiden Ringen: 50 Hz

Pulsdauer bei Extraktion: 2 x 0.4 μ s

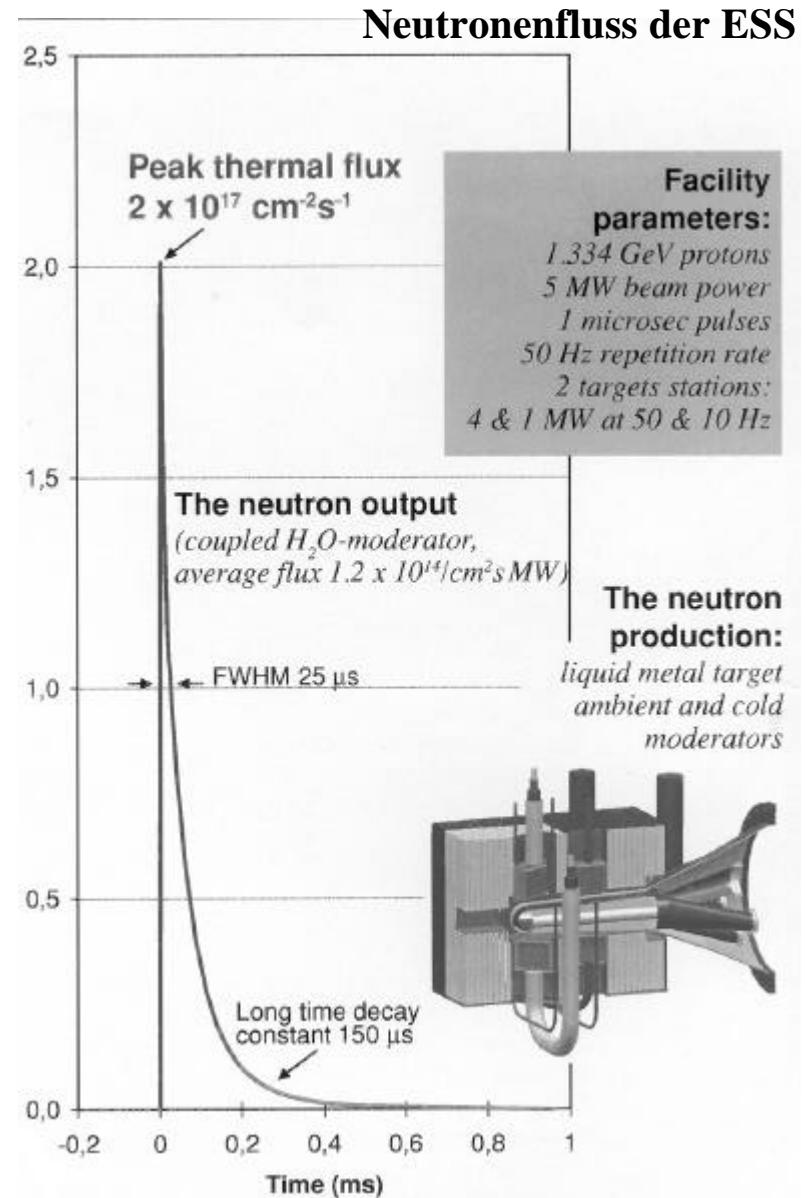
Zahl der Umlaufenden Protonen je Ring:

$2.34 \cdot 10^{14}$

Verzweigung nach den Kompressorringen:

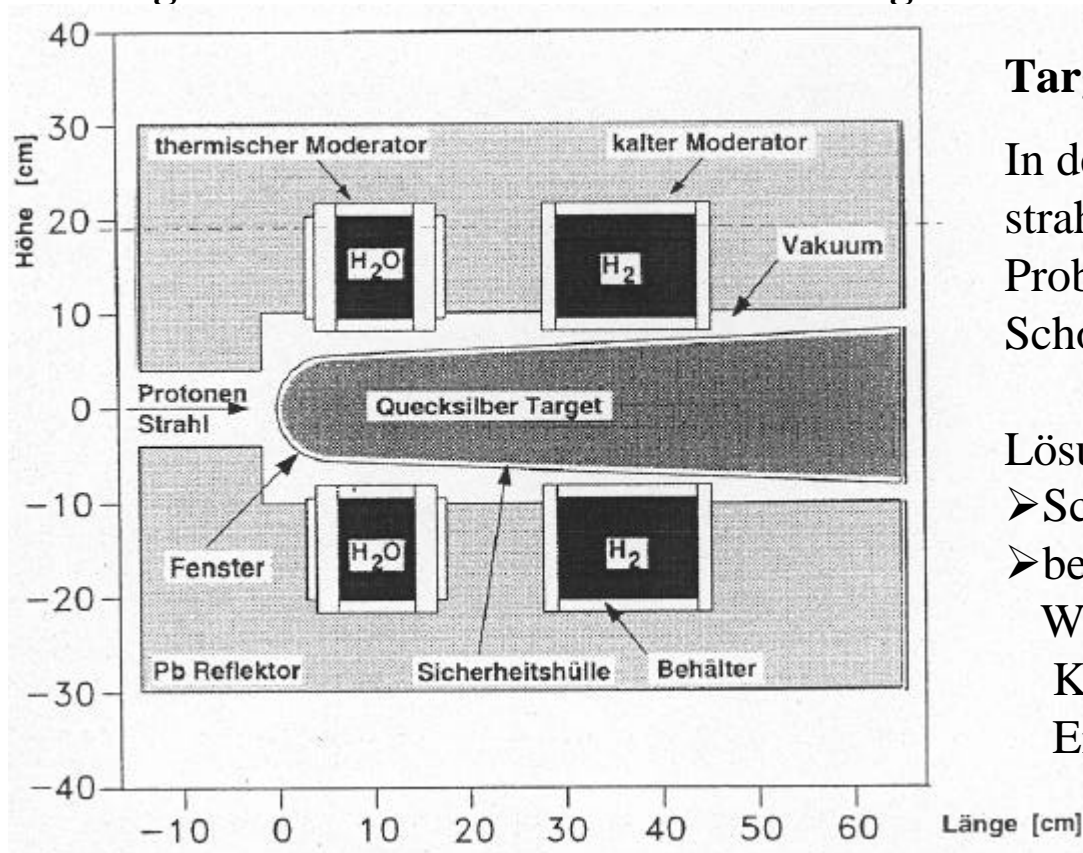
Station 1: Pulsrate: 50 Hz; Leistung: 4 MW

Station 2: Pulsrate: 10 Hz; Leistung: 1 MW



Spallationsquelle

Target-Moderator-Reflektor Anordnung der ESS



Target

In der geplanten ESS erzeugt der Protonenstrahl eine Leistungsdichte von 2.5 kW/cm^3 . Probleme: Wärmeabfuhr; mechanische Schockwellen

Lösung: flüssiges Quecksilber

- Schwermetall (viele Neutronen)
- bei Raumtemperatur flüssig (gute Wärmeabfuhr => kein sekundäres Kühlmittel, gute mechanische Eigenschaften)

Moderator

Bei Spallationsquellen können in einfacher Weise mehrere spezielle Moderatoren eingesetzt werden.

Reflektor

Material: z.B. Blei, Graphit, Beryllium
Intensitätsgewinn: ~ Faktor 2

Neutronendetektoren

Neutronendetektion

Da Neutronen neutrale Teilchen sind, können sie nicht direkt über einen Ionisationsprozess nachgewiesen werden. Es muss deshalb erst eine Umwandlung in ionisierende Strahlung erfolgen (Konversion => **Neutronenkonverter**).

Neutronendetektoren für Kristallographie

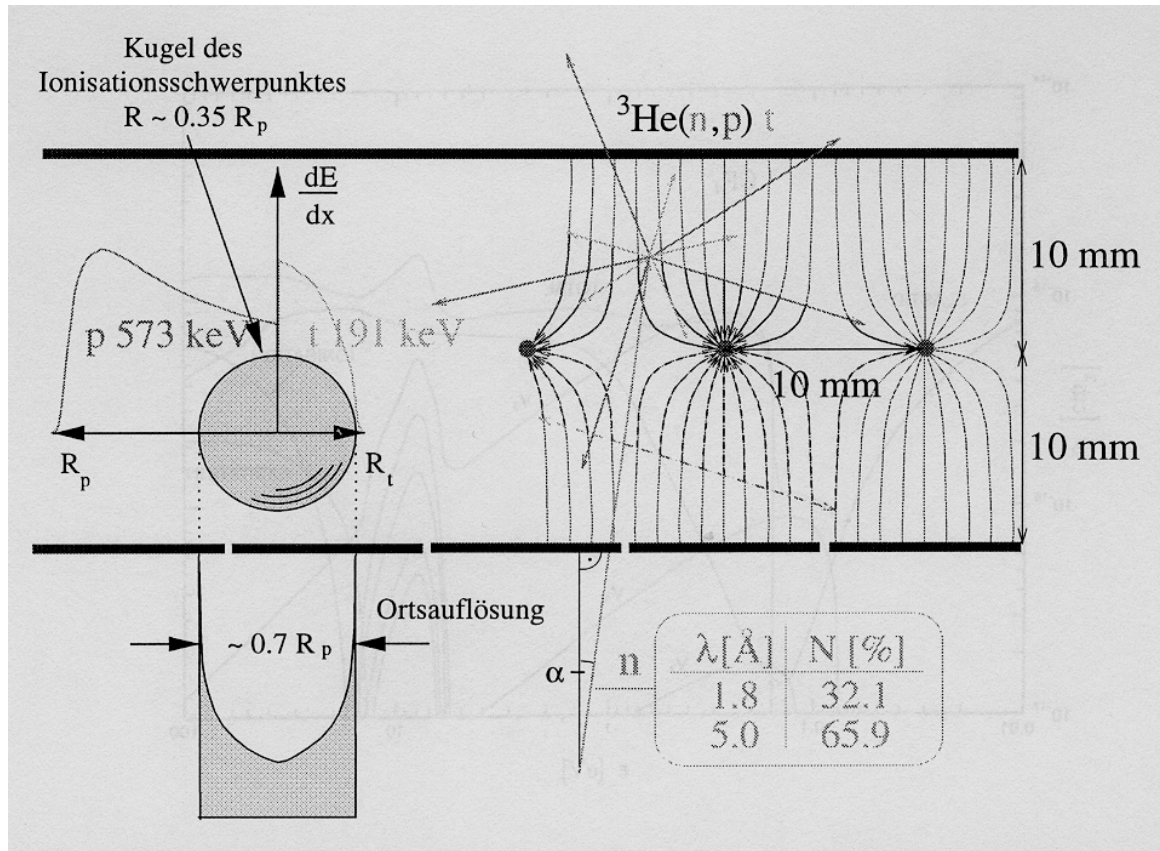
- Vieldrahtproportionalkammer (**M**ulti **W**ire **P**roportional **C**hamber; MWPC)
- Speicherfolien (Image Plates) } in Kombination mit Konverterfolien
- Halbleiterdetektoren (CCD) }

Neutronenkonverter

- geringer Fluss der Neutronen erfordert Verstärkungseffekte bei der Detektion
- gasförmige und feste Konverter: Einfangquerschnitte und Reichweite der Neutronen im
- Konvertermaterial bestimmen die Dicke der Konverterschichten und damit die Genauigkeit in der Ortsauflösung
- für Kristallographie ist keine Energieauflösung nötig (bzw. keine schnelle Signaldetektion wie bei der Flugzeitanalyse)

Neutronendetektoren

Schema einer Vieldrahtproportionalkammer



C. Schulz, Diss, Fu-Berlin

Prinzip der Vieldrahtkammer

Zählgas: ^3He , $^{10}\text{BF}_3$

Spaltprodukte erzeugen Elektronen-Ionenpaare

Elektronen werden durch ein elektrisches Feld auf Anodendrähten gesammelt und nachgewiesen

Quenchgas: CF_4

Abbremsung der Spaltprodukte ohne elektronische Anregung (Schwingungen, Rotation, Translation)

Verminderung der Reichweite der Spaltprodukte => bessere Ortsauflösung

Steigerung der Effizienz: Gas-mischung unter Druck: ~1-3 bar

Absorptionswahrscheinlichkeit:

30-60 %

Ortsauflösung: ca. 1–5 mm bei einer Gesamtfläche von bis zu $0.5 \times 0.5 \text{ m}^2$

Neutronendetektoren

Festkörperkonverter

Das Konvertermaterial kann in einem Festkörper gemischt werden. Detektion findet außerhalb des Konverters statt.

Konverter für thermische Neutronen (Werte für $l = 1.8 \text{ \AA}$)

Reaktion	Neutronen-Absorptionslänge λ_n Wirkungsquerschnitt	Reichweite R, Abschwächungslänge λ_{ce} Teilchenenergie [keV]	R/λ_n , λ_{ce}/λ_n
${}^3\text{He}(n,p)t$	$\lambda_n = 7.59 \text{ bar cm}$ 5 333 b	(vgl. $R_p = 0.43 \text{ bar cm}$ in CF_4) p : 573, t : 191	
${}^6\text{Li}(n,\alpha)t$	$\lambda_n = 230 \text{ \mu m}$ 940 b	$R_t = 130 \text{ \mu m}$ t : 2 727, α : 2 055	0.57
${}^{10}\text{B}(n,\alpha){}^7\text{Li}$	$\lambda_n = 19.9 \text{ \mu m}$ 3 836 b	$R_\alpha = 3.14 \text{ \mu m}$ α : 1 472, ${}^7\text{Li}$: 840 (93.6%)	0.16
${}^{157}\text{Gd}(n,\gamma){}^{158}\text{Gd}^*$ $E^* = 7\,937$	$\lambda_n = 1.30 \text{ \mu m}$ 255 000 b	$\lambda_{ce} = 11.9 \text{ \mu m} \pm 0.6 \text{ \mu m}$ ce : 29 – 181 (87.3% \pm 2.5%)	9.2
${}^{155}\text{Gd}(n,\gamma){}^{156}\text{Gd}^*$ $E^* = 8\,536$	$\lambda_n = 5.38 \text{ \mu m}$ 61 400 b	ce : 39 – 191 (84.5% \pm 5%)	
${}^{\text{nat}}\text{Gd}(n,\gamma)$	$\lambda_n = 6.72 \text{ \mu m}$ 49 122 b	$\lambda_{ce} = 12.3 \text{ \mu m} \pm 0.3 \text{ \mu m}$ ce : 29 – 191 (86.5% \pm 1%)	1.83

Eigenschaften des Festkörperkonverters

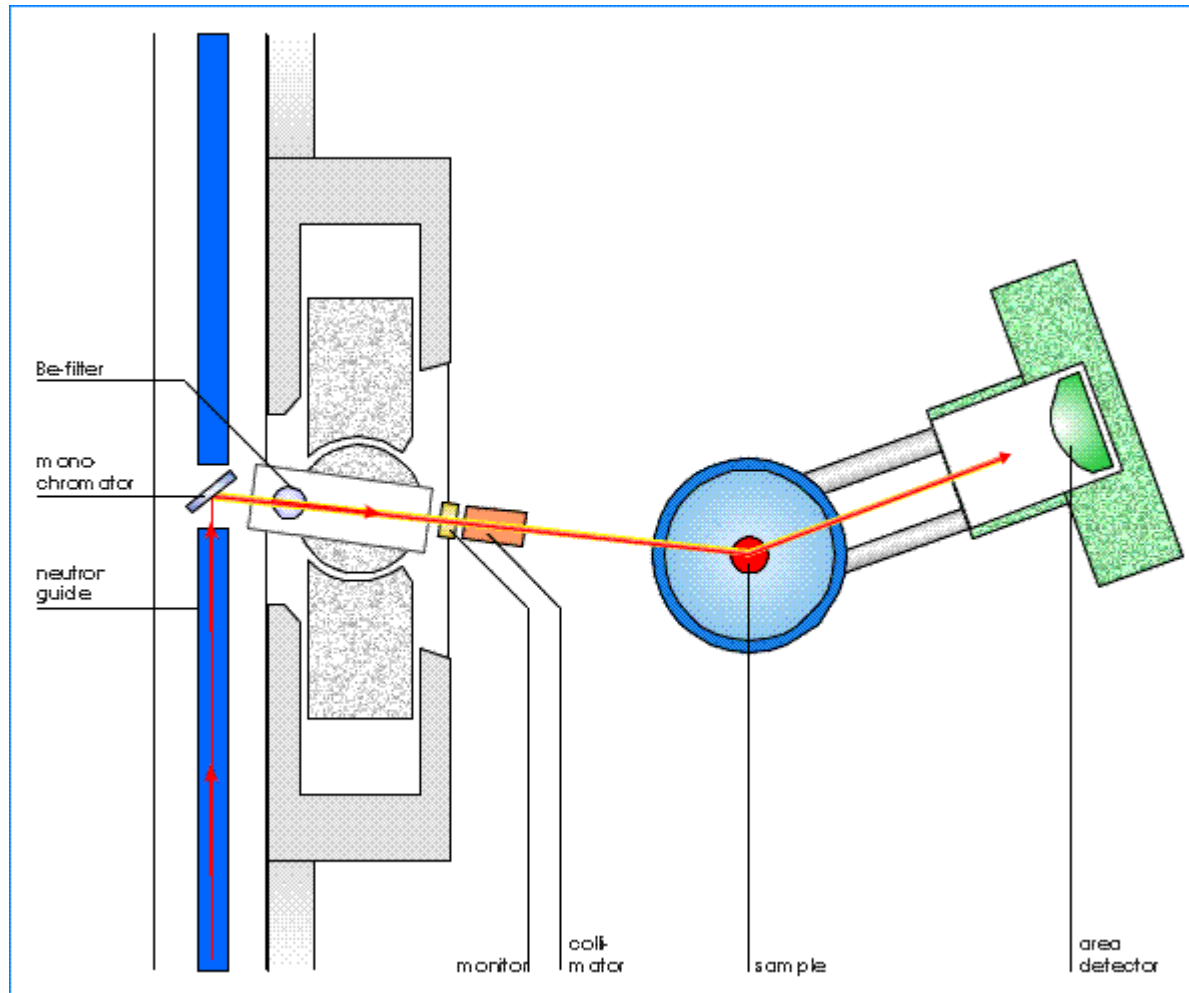
- hohe Dichte des absorbierenden Materials => dünne Schichten (μm) gute Ortsauflösung
- transparent für emittierte Strahlung (Licht, Elektronen, γ -Quanten)

Detektion

- Photomultiplier/Szintillationsdetektoren
- Halbleiterzähler

Neutronendiffraktometer

Membran-Diffraktometer: V1 BENSC Hahn-Meitner Institut, Berlin



Eigenschaften des V1

Type:

2-axes diffractometer

Monochromator:

pyrolytic graphite (002),
vertically focusing

Wavelength:

0.3-0.6 nm (cold neutrons),
monochromator angles

$2\theta_M = 60^\circ - 120^\circ$ (continuously)

Monochr.-to-sample distance:

0.8 m - 1.5 m (extendable)

Sample-to-detector distance:

0.8 m - 2.0 m

Detector:

^3He , 20 cm x 20 cm;

pixel size 1.5 mm x 1.5mm;

height and inclination adjustable

Ausgelegt zur Untersuchung
von periodischen Strukturen mit
Gitterkonstanten von 10 – 200 Å.

Vergleich von Röntgen – und Neutronenstrahlung in der Strukturaufklärung

Vergleich der Neutronen – mit der Röntgenstreulängen

Element	Neutronen $b' \text{ [} 10^{13} \text{ cm]}$	Röntgenstrahlung $b' \text{ [} 10^{13} \text{ cm]}$
^1H	-3.74	3.8
^2D	6.67	2.8
^{12}C	6.65	16.9
^{14}N	9.40	19.7
^{16}O	5.80	22.5
^{31}P	5.10	42.3
^{32}S	2.85	45
^{55}Mn	-3.60	70
^{56}Fe	9.51	73
^{194}Pt	9.5	220

Die Neutronenstreuung ist eine Spinabhängige Wechselwirkung. Der Kernspin ist über das Periodensystem unregelmäßig verteilt. Deshalb gibt es bei der Neutronenstreuung auch keine Korrelation mit der Ordnungszahl wie bei der Röntgenstreuung.

Neutronenstreuung kann im Streuprozess gut zwischen den **Isotopen H und D unterscheiden**, während Röntgenstreuung gut zwischen **schweren und leichten Elementen unterscheiden** kann.

Streuung mit Elektronen

Für die Streuung mit Elektronen kann die Eigenschaft der negativen Ladung des Elektrons genutzt werden, um mit Hilfe einer Beschleunigungsspannung gezielt eine gewünschte Wellenlänge der Elektronen auszuwählen (de-Broglie-Wellenlänge).

$$\lambda = h \sqrt{2m_0 E \left(1 + \frac{E}{2m_0 c^2} \right)}$$

Energie: $E = e \cdot V$

V: Spannungsdifferenz

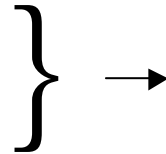
Im allgemeinen werden Beschleunigungsspannungen zwischen 50 und 100 kV benutzt, was zu Wellenlängen 0.04 – 0.06 Ångström führt. Verglichen mit Röntgenstrahlung und Neutronen **zeigen Elektronen bei weitem die stärkste Wechselwirkung** mit der Materie. Daher sind auch die atomaren Strukturfaktoren um Faktoren von 10^3 – 10^4 größer als bei der Röntgenbeugung. Die atomaren Strukturfaktoren sind bei Elektronen proportional zum Quadrat der Atome (=> Kontrastproblem bei Abbildung organischer Proben!). Wegen der intensiven Wechselwirkung von Elektronen in der Materie beträgt **die mittlere freie Weglänge nur ca. 0.24 mm** (z.B. bei 100 keV Elektronen in organischen Proben). Hochauflösende Strukturuntersuchungen sind nur mit Probendicken möglich, die nur ein zehntel dieses Wertes aufweisen.

Eigenschaften der Elektronenbeugung

Strahlenschäden:

Elektronen: $\sim 0.5 - 5 \text{ e} / \text{\AA}^2$

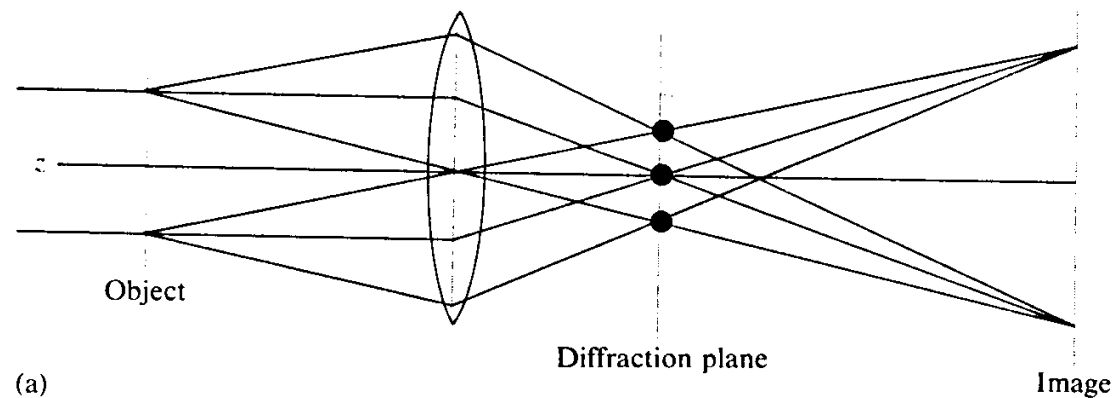
Röntgenstrahlung: $\sim 200 \text{ Photonen} / \text{\AA}^2$



Die Elektronenbeugung ist wegen der $10^3 - 10^4$ größeren atomaren Strukturfaktoren weniger schädigend für die Probe (bei gleicher Beugungsinformation)

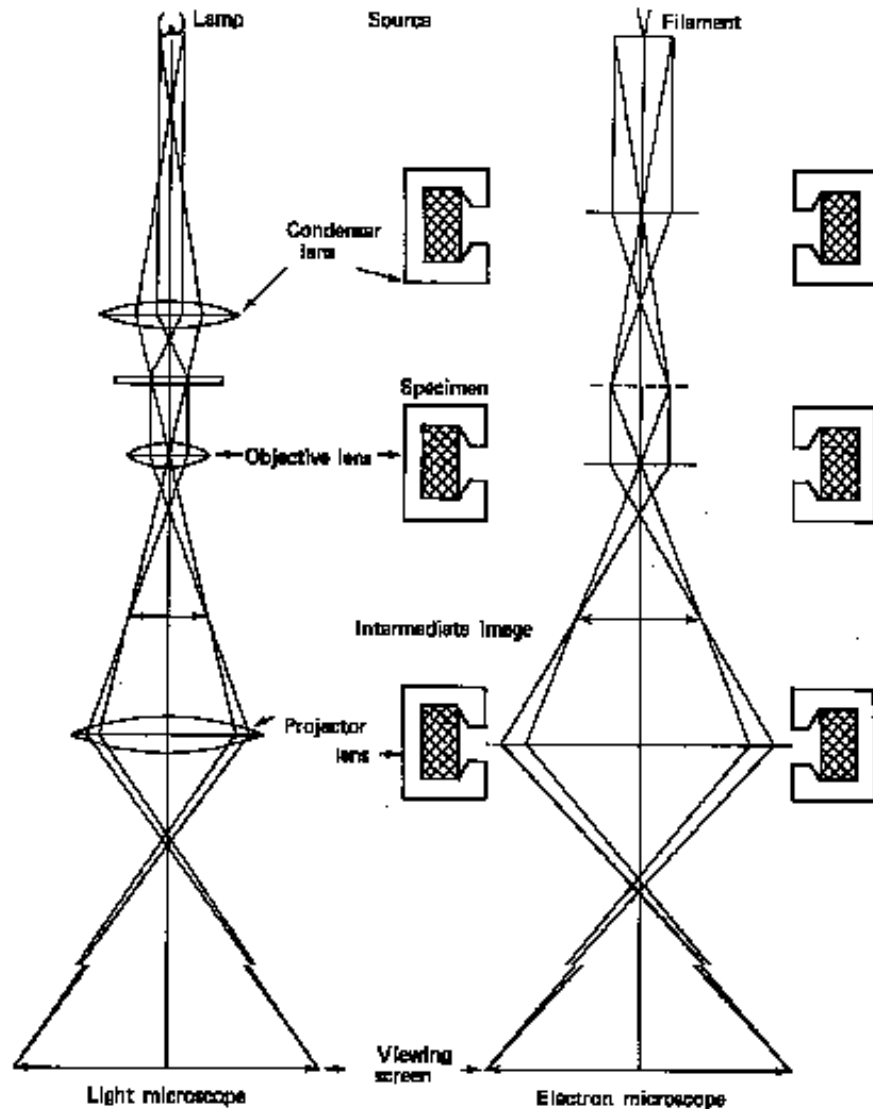
Beugung und Abbildung

Da Elektronen geladene Teilchen sind können für diese Strahlung mit **Hilfe von elektromagnetischen Feldern Linsen konstruiert werden**. Dies führt dazu, daß in einem Elektronenmikroskop sowohl ein **Abbildungsmodus** als auch ein **Beugungsmodus** benutzt werden kann.



Das Elektronenmikroskop

Vergleich: Licht – Elektronenmikroskop (LM /EM)



Im EM sind die Abbildungsfehler relativ groß (Problem: es gibt keine Streulinsen zur Korrektur!). Aus diesem Grund wird nur mit kleinen Streuwinkeln gearbeitet. Dies kann bei sehr kleinen Wellenlängen trotzdem zu guter Auflösung führen (2-3 Å).

- Eine einzelne EM-Aufnahme liefert eine Projektion der Probe
- Rekonstruktion eines 3D-Bildes entsteht durch eine Serie von „gekippten“ Proben
- Das Abbild der Probe entsteht durch Interferenz des Primärstrahls mit den gebeugten Strahlen (z.B. Hellfeldaufnahme)
- Die Abbildung ist durch Linsenfehler und für viele Probentypen durch schwachen Kontrast verfälscht bzw. schlecht.

Das Elektronenmikroskop

Strukturuntersuchungen mit periodischen Strukturen (Kristallgitter)

- Kontrast des Beugungsbildes ist besser als des Abbildes, da über viele Einheitszellen gemittelt wird.
- Die Phasen kann man durch Fouriertransformation des Abbildes erhalten.

=> **Objektrekonstruktion**

Eigenschaften der Elektronenbeugung:

- Aufgrund der intensiven Wechselwirkung wird ein beträchtlicher Teil der Primärintensität in den gebeugten Strahl übertragen (Probleme mit Absorption !)

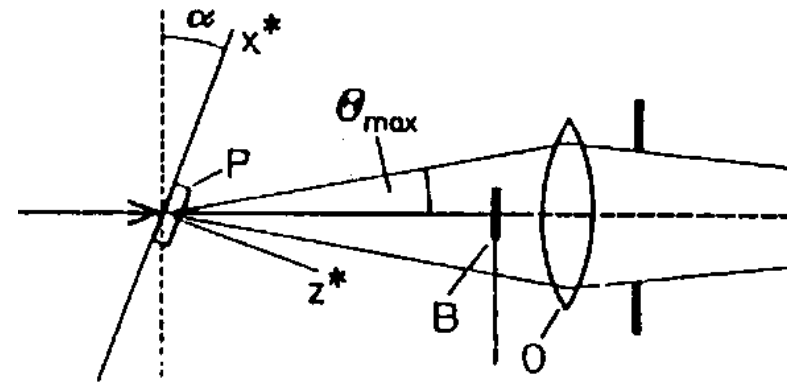
=> **dynamische Streutheorie** im Gegensatz zur

kinematischen Streutheorie, wie i.a. bei Röntgen und Neutronenbeugung)

- Wegen der kleinen Wellenlänge ist die Ewaldkugel nahezu planar

=> Abbildung eines Kreuzgitters (**Interferenz in der Ebene**, während Röntgen-, und Neutronenbeugung **Raumgitterinterferenzen** aufweisen.

Elektronenmikroskop als Diffraktometer



- Blende B blockt den Primärstrahl (**Dunkelfeldaufnahme**)
- Primärstrahl interferiert mit den gebeugten Strahlen (**Hellfeldaufnahme**)