

DECKBLATT

Projekt	PSP-Element	Obj. Kenn.	Aufgabe	UA	Lfd. Nr.	Rev.
EU 364	9K	---	EFA	BV	0001	00

Titel der Unterlage: Vermerk [REDACTED] / ET 2.4 vom 13.06.1990 "Wärme-Q-werte beim Zerfall von Fe 55 und Ni 59"	Seite: I.
	Stand: 13.06.1990
Ersteller: [REDACTED] ET 2.4	Textnummer:

Stempelfeld:

PSP-Element TP...9K/21262131	zu Plan-Kapitel: 3.3.4.1 und 3.6
[REDACTED]	[REDACTED]
[REDACTED]	[REDACTED]

Diese Unterlage unterliegt samt Inhalt dem Schutz des Urheberrechts sowie der Pflicht zur vertraulichen Behandlung auch bei Beförderung und Vernichtung und darf vom Empfänger nur auftragsbezogen genutzt, vervielfältigt und Dritten zugänglich gemacht werden. Eine andere Verwendung und Weitergabe bedarf der ausdrücklichen Zustimmung.

Wärme-Q-Werte beim Zerfall von Fe 55 und Ni 59

Der Zwischenbericht des TÜV Hannover zur Begutachtung des Endlagers Konrad enthält zur Zerfallsleistung von Abfallbinden folgende Aussage:

"In dem Arbeitsbericht /EU 80.2/ sind für die Nuklide Fe 55 und Ni 59 neue Energiefreisetzung pro Zerfall angegeben. Gegenüber den Angaben in dem Arbeitsbericht /EU 72.1/, die mit den Ergebnissen der eigenen Rechnungen nach ORIGEN-2 /2/ genau übereinstimmen, ist die Energiefreisetzung von Fe 55 um den Faktor 40 und die von Ni 59 um den Faktor 146 herabgesetzt. Die Angaben zu den gegenüber KORIGEN- und ORIGEN-2-Ergebnissen herabgesetzten Energiefreisetzung sind im Hinblick auf den daraus abgeleiteten Aktivitätsgrenzwert und die Grenzwärmeleistung zu verifizieren /H 1.5.2-1/."

Stellungnahme:

Der vorstehend geschilderte Sachverhalt wird bestätigt. Die Wärme-Q-Werte für den Zerfall von Fe 55 und Ni 59 wurden aufgrund einer Empfehlung des Instituts für Neutronenphysik und Reaktortechnik des Kernforschungszentrums Karlsruhe aus dem Jahre 1986 um die o. a. Faktoren erniedrigt, da die in den KORIGEN-/ORIGEN-Programmen enthaltenen Q-Werte die Wärmefreisetzung grob überschätzen. Die Begründung enthält die beiliegende Anlage.

Die im Arbeitsbericht /EU 80.2/ angegebenen Aktivitätsgrenzwerte und Grenzwärmeleistungen für die Nuklide Fe 55 und Ni 59 werden deshalb unverändert als richtig angesehen.

Kernforschungszentrum Karlsruhe

Gesellschaft mit beschränkter Haftung

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH Postfach 3640 D-7500 Karlsruhe 1

Physikalisch-Technische
Bundesanstalt
Postfach 33 45

3300 Braunschweig

Betr.: Wärme-Q-Werte beim Zerfall von ^{59}Ni und ^{55}Fe über
Elektroneneinfang; Ihre Schreiben vom 26.3. und 30.4.1986

Sehr geehrter Herr

vielen Dank für Ihren Hinweis auf Unstimmigkeiten bei den o. g. Daten in den KORIGEN-Dateien. Wir haben die aufgeworfene Fragestellung untersucht (siehe beigefügten Bericht) und empfehlen als Wärme-Q-Werte für KORIGEN-Rechnungen

$$Q_W(^{59}\text{Ni}) = 7.34 \text{ keV}$$

$$Q_W(^{55}\text{Fe}) = 5.84 \text{ keV}$$

Diese Werte basieren auf Angaben aus den Tables of Isotopes, Lederer 1978. Sie enthalten die Beiträge der Röntgenstrahlung aus den Hüllen der Tochteratome ^{59}Co und ^{55}Mn (mit den Einfangwahrscheinlichkeiten für die K-, L- und M-Schale gewichtete Summe der Elektronenbindungsenergien dieser Schalen) sowie den Beitrag der inneren Bremsstrahlung.

Die bisher benutzten KORIGEN/ORIGEN-Werte von $Q_W(^{59}\text{Ni}) = 1.07 \text{ MeV}$ and $Q_W(^{55}\text{Fe}) = 232 \text{ keV}$ sind, wie die Preußen-Elektra richtig feststellt, die totalen die Neutrinoenergien enthaltenden Q-Werte, durch welche die Wärmefreisetzung grob überschätzt wird.

Der von der Preußen-Elektra für ^{59}Ni abgeschätzte Wärme-Q-Wert von 9.22 keV stimmt größenordnungsmäßig mit dem von uns ermittelten Wert überein. Es wird dort jedoch im Sinne einer Abschätzung nach oben nur der K-Einfang berücksichtigt, und es wird irrtümlicherweise die K-Schalen-Bindungsenergie des Mutteratoms statt des Tochteratoms verwendet. Die Benutzung des totalen Q-Wertes anstelle der Maximalenergie der inneren Bremsstrahlung bei der Berechnung des Beitrags der Bremsstrahlung zum Wärme-Q-Wert trägt ebenfalls zur Konservativität des Preußen-Elektra-Wertes bei: Richtig für die Ermittlung des

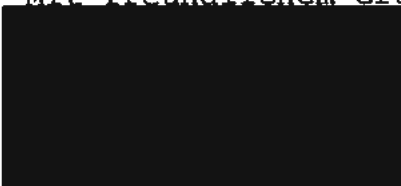
mittleren Wärme-Q-Wertes ist hier die von uns eingesetzte, über das Energiespektrum der Bremsstrahlungsphotonen gemittelte Bremsstrahlungsenergie.

Eine erste Inspektion weiterer EC- und β^+ -Radionuklide (^{59}Co , ^{51}Cr , ^{65}Zn , $^{93\text{m}}\text{Mo}$, ^{181}W) ergab keine auffälligen Unstimmigkeiten. Dies wird noch genauer überprüft werden.

Hinsichtlich der Zuverlässigkeit der restlichen Zerfallsdaten kann ich Ihnen folgendes mitteilen: Die Zerfallsdaten der in den KORIGEN-Dateien enthaltenen Nuklide haben wir von ORNL übernommen, sie sind von Croff in ORNL/TM-6055 dokumentiert. Eine von Küsters und mir vorgenommene Überprüfung der totalen Nachzerfallsleistung von bestrahltem Schnellreaktorbrennstoff, in die alle Wärme-Q-Werte, gewichtet mit der Häufigkeit der Radioisotope, eingehen, ergab durch Vergleich mit Experimenten eine von den Daten stammende Unsicherheit von höchstens 5 %. Die totale Nachzerfallsleistung von Reaktorbrennstoff kann also zuverlässig berechnet werden.

Die Zerfallsdaten einzelner Nuklide konnten und können von uns nur punktuell überprüft werden. Insbesondere kann ich in diesem Jahr nach der vorliegenden Planung keine Überprüfung der Daten aller β^- -Radionuklide, die Sie telefonisch für wünschenswert hielten, vornehmen. Ich würde jedoch versuchen, in dringenden Fällen für wenige Nuklide, wie dies für ^{59}Ni und ^{55}Fe geschehen ist, die erforderlichen Arbeiten in die laufenden Vorhaben einzuschieben. Für Ihren Hinweis auf in diesem Zusammenhang durchgeführte Arbeiten der Firma INTERATOM bin ich Ihnen dankbar.

Mit freundlichem Gruß



Q-Werte zur Ermittlung der Wärmefreisetzung
durch Zerfälle von ^{59}Ni und ^{55}Fe

[REDACTED] KFK-INR

April 1986

Die Erwärmung eines Materials durch darin enthaltene radioaktive Nuklide erfolgt durch in diesem Material stattfindenden Streu- und Einfangprozesse der emittierten Strahlung (α -, β - und γ -Strahlung). Bei Strahlung mit einer Reichweite, die klein gegen die geometrischen Abmessungen der betrachteten Anordnung sind, kann der Ort der Wärmefreisetzung mit dem Entstehungsort der Strahlung gleichgesetzt werden. Bei größeren Reichweiten sind der Strahlungstransport und die Oberflächenverluste zu berücksichtigen. Die beim β -Zerfall gebildeten Neutrinos z. B. verlassen wegen ihrer praktisch verschwindenden Wechselwirkung mit Materie jedes System durch die Oberfläche und tragen so nicht zur Erwärmung bei.

Die effektive pro radioaktivem Zerfall in Wärme umgesetzte Energie ist somit gleich der Energiedifferenz der betreffenden Mutter- und Tochteratome, dem sog. physikalischen Q-Wert, vermindert um die Leckageverluste:

$$(1) \quad Q_W = Q - Q_{\text{Leckage}}$$

Die Nuklide $^{59}_{28}\text{Ni}$ und $^{55}_{26}\text{Fe}$ zerfallen praktisch ausschließlich über Elektroneneinfang (EC). Tab. 1 enthält die wichtigsten Daten dieser Zerfälle nach Lederer /1/.

Tab. 1: Zerfallsdaten von ^{59}Ni und ^{55}Fe

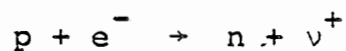
	$^{59}_{28}\text{Ni} \rightarrow ^{59}_{27}\text{Co}$	$^{55}_{26}\text{Fe} \rightarrow ^{55}_{25}\text{Mn}$
Halbwertszeit $\tau_{1/2}$	$7.5 \cdot 10^5$ a	2.69 a
Zerfallsmodus	> 99 % EC $1.5 \cdot 10^{-5}$ % β^+	100 % EC
$Q = Q_{\text{EC}}$	1.0735 MeV	231.5 keV
$E_{\gamma, \text{IB}}^{\text{max}}$	1.0668 MeV	218.3 keV
E_{K}	7.71 keV	6.54 keV
$E_{\text{L}}(\text{max})$	0.927 keV	0.769 keV
$E_{\text{M}}(\text{max})$	0.101 keV	0.0824 keV
$E_{\text{M}}(\text{min})$	0.0004 keV	0.001 keV

Q_{EC} = Energiedifferenz zwischen Mutter- und Tochteratom

$E_{\gamma, \text{IB}}^{\text{max}}$ = Maximalenergie der inneren Bremsstrahlung

E_{Y} = Y-Schalen-Bindungsenergie des Tochterkerns, Y = K, L, M

Beim Elektroneneinfang wird im Atomkern unter Umwandlung eines Protons p in ein Neutron n gemäß



ein Neutrino ν^+ gebildet. Des weiteren entstehen als innere Bremsstrahlung Photonen γ_{IB} mit einer Energieverteilung $N_{\text{IB}}(E_{\gamma})$ und einer Häufigkeit $R_{\text{IB}} [\gamma_{\text{IB}}/\text{EC}]$ - siehe unten. Schließlich werden aus der Elektronenhülle des Tochterkerns /2/ Röntgenstrahlen γ_{x} durch Nachrücken von Elektronen aus äußeren Schalen sowie Auger-Elektronen emittiert. Für die vorliegende Fragestellung kann man annehmen, daß die Beruhigung der Hülle allein durch Emission von Röntgenstrahlen erfolgt. Insgesamt kann man also in einem Material z. B. mit ^{59}Ni -Atomen die folgende Bilanz aufstellen:

Neutrale ^{59}Ni -Atome \rightarrow Neutrale ^{59}Co -Atome

- (2) + Neutrinos
- + innere Bremsstrahlung
- + Röntgenstrahlung aus der Hülle

Betrachtet man eine große Anzahl N_{EC} von Elektroneneinfängen mit N_{IB} Photonen aus innerer Bremsstrahlung, so gilt

$$(3) \quad N_{\text{EC}} \cdot Q_{\text{EC}} = N_{\text{EC}} \cdot E_{\nu} + N_{\text{IB}} \cdot E_{\gamma, \text{IB}} + N_{\text{EC}} \cdot E_{\gamma, \text{X}}$$

Dabei sind E_{ν} und $E_{\gamma, \text{X}}$ die mittlere Neutrinoenergie bzw. die mittlere Röntgenquantenergie und

$$(4) \quad E_{\gamma, \text{IB}} = \frac{\int_0^{E_{\gamma, \text{IB}}^{\text{max}}} dE_{\gamma} E_{\gamma} N_{\text{IB}}(E_{\gamma})}{\int_0^{E_{\gamma, \text{IB}}^{\text{max}}} dE_{\gamma} N_{\text{IB}}(E_{\gamma})}$$

die mittlere Energie der Bremsstrahlungsgammas. Aus (3) folgt

$$(5) \quad Q_{\text{EC}} = E_{\nu} + R_{\text{IB}} \cdot E_{\gamma, \text{IB}} + E_{\gamma, \text{X}}$$

Daraus ergibt sich wegen

$$(6) \quad Q_{\text{Leckage}} = E_{\nu}$$

bei Vernachlässigung der Gammaverluste durch Oberflächenleckage im Sinne einer konservativen Abschätzung für die mittlere in Wärme umsetzbare Energie pro Elektroneneinfang

$$(7) \quad Q_{\text{W}} = Q_{\text{EC}} - E_{\nu} = E_{\gamma, \text{X}} + R_{\text{IB}} \cdot E_{\gamma, \text{IB}}$$

Zur Bestimmung von $E_{\gamma, \text{IB}}$ und R_{IB} benutzen wir die Angaben von Siegbahn /3/, die auf Morrison und Schiff /4/ und auf Jauch /5/ zurückgehen. Danach ist für erlaubte Übergänge beim K-Einfang die Energieverteilung der Bremsstrahlung gegeben durch

$$(8) \quad N_{IB}(E_Y) dE_Y = C(E_Y) \cdot \frac{\alpha}{\pi m^2 c^4} \cdot E_Y \cdot \left[1 - \frac{E_Y}{E_{Y,IB}^{\max}} \right]^2 dE_Y$$

mit $mc^2 = 0.511 \text{ MeV} = \text{Ruhenergie des Elektrons}$, $\alpha = 1/137.04$ (Feinstrukturkonstante). $C(E_Y)$ ist eine schwach von E_Y abhängige Funktion, die im folgenden näherungsweise als konstant angesetzt wird.

Des weiteren findet man

$$(9) \quad R_{IB} = \frac{\alpha}{12\pi} \left[\frac{E_{Y,IB}^{\max}}{mc^2} \right]^2$$

Aus (8) und (4) ergibt sich

$$(10) \quad E_{Y,IB} = \frac{2}{5} \cdot E_{Y,IB}^{\max}$$

Für ^{59}Ni mit $E_{Y,IB}^{\max} = 1.0668 \text{ MeV}$ aus Tab. 1 erhält man daraus $E_{Y,IB} = 426.7 \text{ keV}$ und $R_{IB} = 8.44 \cdot 10^{-4}$ Photonen pro Elektroneneinfang, also für ^{59}Ni

$$(11) \quad Q_W = E_{Y,X} + 0.36 \text{ keV}$$

Zur Bestimmung der aus Atomhülle abgestrahlten Röntgenstrahlenergie $E_{Y,X}$ kann man folgende Überlegung anstellen: Durch Elektroneneinfang hat sich das neutrale ^{59}Ni -Atom in ein angeregtes ^{59}Co -Atom umgewandelt, in dem ein K- oder L-Elektron fehlt und das ein überschüssiges M-Elektron besitzt. Es interessiert hier nicht der komplizierte Übergang vom angeregten Atom zum Atom im Grundzustand, es interessiert nur die Energiedifferenz. Zu ihrer Bestimmung kann man annehmen, daß das überschüssige M-Elektron das Loch in der kernnahen Schale auffüllt und die Differenz der Bindungsenergien über Röntgenstrahlung freisetzt.

Damit ist für $^{59}\text{Ni} \rightarrow ^{59}\text{Co}$ bei K-Einfang $E_{Y,X} = E_K(^{59}\text{Co}) - E_M(^{59}\text{Co}) = 7.71 \text{ keV} - 0.0004 \text{ keV} \approx E_K(^{59}\text{Co})$, also

$$(12) Q_W^K(^{59}\text{Ni}) = 8.07 \text{ keV}$$

Für $^{55}\text{Fe} \rightarrow ^{55}\text{Mn}$ ist $E_K(^{55}\text{Mn}) = 6.54 \text{ keV}$, $R_{\text{IB}} = 3.53 \cdot 10^{-5}$ Photonen pro Elektroneinfang und $E_{\gamma, \text{IB}} = 87.32 \text{ keV}$. Hier erhält man also

$$\begin{aligned} (13) Q_W^K(^{55}\text{Fe}) &= E_K(^{55}\text{Mn}) + R_{\text{IB}} \cdot E_{\gamma, \text{IB}} \\ &= 6.54 \text{ keV} + 0.003 \text{ keV} \\ &= 6.54 \text{ keV} \end{aligned}$$

Die Beiträge der inneren Bremsstrahlung zum Wärme-Q-Wert sind bei den betrachteten Zerfällen relativ klein: 4 % bei ^{59}Ni und vernachlässigbar bei ^{55}Fe . Unsicherheiten bei ihrer Bestimmung, z. B. die Annahme $C(E_\gamma) = \text{const.}$ in Gl. (8), spielen somit im Hinblick auf Q_W keine Rolle.

Man kann deshalb auch bei L- und M-Einfang (K- und L-Einfang bei ^{59}Ni , K-, L- und M-Einfang bei ^{55}Fe) näherungsweise davon ausgehen, daß der Beitrag der inneren Bremsstrahlung unabhängig von der Einfangschale ist:

$$(14) Q_W^Y = E_Y + R_{\text{IB}} \cdot E_{\gamma, \text{IB}}, \quad Y = K, L, M$$

mit dem für K-Einfang berechneten Wert für $R_{\text{IB}} \cdot E_{\gamma, \text{IB}}$

Der über die hier zu betrachtenden Einfangschalen gemittelte Wärme-Q-Wert ist dann

$$\begin{aligned} (15) Q_W &= p_K E_K + p_L E_L + p_M E_M \\ &+ R_{\text{IB}} \cdot E_{\gamma, \text{IB}} \end{aligned}$$

wobei die p_Y , $Y = K, L, M$ die Anteile der Y-Einfänge an der Gesamtzahl der Einfänge sind und sich aus den bei Lederer angegebenen $\text{EC(L)}/\text{EC(K)}$ und $\text{EC(M)}/\text{EC(L)}$ berechnen lassen.

Tab. 2: Einfangverhältnisse für ^{59}Ni und ^{55}Fe

	^{59}Ni	^{55}Fe
EC(L)/EC(K)	0.121	0.117
EC(M)/EC(L)	0.	0.157
p_K	0.8921	0.8807
p_L	0.1079	0.1031
p_M	0.	0.0162

Damit ist

$$\begin{aligned} Q_W(^{59}\text{Ni}) &= 6.98 \text{ keV} + 0.36 \text{ keV} \\ &= 7.34 \text{ keV} \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} Q_W(^{55}\text{Fe}) &= 5.84 \text{ keV} + 0.003 \text{ keV} \\ &= 5.84 \text{ keV} \end{aligned}$$

Wir empfehlen diese Werte zum Einsatz im KORIGEN-Rechnungen zur Ermittlung der Wärmefreisetzung aus Zerfällen von ^{59}Ni und ^{55}Fe .

Referenzen

- /1/ C. M. Lederer, V. S. Shirley: Table of Isotopes, 7. Edition (1978)
- /2/ J. M. Blatt, V. F. Weißkopf: Theoretical Nuclear Physics, John Wiley and Sons, New York London, 6. Printing (1962), S. 687
- /3/ K. Siegbahn: Beta- und Gamma-Ray Spectroscopy, North-Holland Publishing Company, Amsterdam (1955)
- /4/ P. Morrison, L. I. Schiff, Phys. Rev. 58, 25 (1940)
- /5/ J. M. Jauch, ORNL-1102 (1951)