

Handbuch zur Kritikalität

Band 1

**Kritikalität und
nukleare Sicherheit**



Gesellschaft für Anlagen-
und Reaktorsicherheit
(GRS) gGmbH

Handbuch zur Kritikalität

Band 1 Kritikalität und nukleare Sicherheit

April 2015
überarbeitete Auflage

Anmerkung:

Das Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz, Bau und Reaktorsicherheit (BMUB) förderte die Arbeiten innerhalb mehrerer Vorhaben, zuletzt mit den Förderkennzeichen SR2222/INT9044, SR2536 (3606R02536), 3610R03350 und 3613R03350.

Die Arbeiten wurden von der Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH durchgeführt.

Der Bericht gibt die Auffassung und Meinung des Auftragnehmers wieder und muss nicht mit der Meinung des Auftraggebers übereinstimmen.

GRS - 379
ISBN 978-3-944161-60-0

Vorbemerkung

Die vorliegende Fassung wurde gegenüber der Ausgabe vom Dezember 1998 überarbeitet, ergänzt und modernisiert. Die Bearbeitung der zugrundeliegenden Ausgabe lag bei Walter Heinicke, Herwin Krug, Wolfgang Thomas, Wolf Weber, Bernhard Gmal und Franz-Eberhard Moser, die Überarbeitung nahmen Robert Kilger und Matthias Behler vor. Robert Kilger übernahm die inhaltlich-redaktionellen Anpassungen.

Das Handbuch besteht aus zwei Bänden. Band 1 erläutert die Grundlagen der Kritikalitätsproblematik und Terminologie. Band 2 beinhaltet die systematische Zusammenstellung der Kritikalitätskenngrößen. Band 2 ist in zwei Teilbände unterteilt: Teil 1 enthält die Daten für Stoffsysteme mit dem Spaltstoff ^{235}U , Teil 2 behandelt die Daten für Stoffsysteme mit den Spaltstoffen ^{233}U , Plutonium und höherer Aktinoiden.

Haftungsausschluss

Das BMUB, die GRS gGmbH und die in deren Namen handelnden Personen übernehmen

- keine Gewähr, dass die in diesem Dokument enthaltenen Informationen richtig und vollständig sind,
- keine Gewähr, dass die Verwendung der in diesem Dokument enthaltenen Informationen, der in diesem Dokument beschriebenen wissenschaftlich-technischen Methoden und Verfahren oder administrativen Anordnungen nicht gegen gewerbliche Schutzrechte verstößt,
- keine Haftung für Schäden, die infolge der Verwendung der in diesem Dokument beschriebenen Anforderungen, Methoden oder Verfahren entstehen können.

Deskriptoren

Kritikalität, Kritikalitätskenngrößen, kritische Parameter, nukleare Sicherheit, Spaltstoff

Vorwort

Das vorliegende Handbuch wurde vornehmlich mit dem Ziel erstellt, den in Industrie, Behörden oder Forschungseinrichtungen tätigen und mit Kritikalitätsfragen befassten Personen Informationen in die Hand zu geben, die schon bei der Planung und der Erstellung von Anlagen der Kerntechnik eine zutreffende und rasche Beurteilung von Kritikalitätsfragen erlauben. Es liegt jedoch nicht in der Absicht der Verfasser des Handbuchs, fertige Lösungen für komplexe Probleme der nuklearen Sicherheit anzubieten. Derartige Fragen werden stets einer eingehenden Analyse und Berechnung durch Kritikalitätsfachleute vorbehalten bleiben müssen.

Gegenüber der bisherigen Ausgabe vom Dezember 1998 wurde das vorliegende Handbuch weiter überarbeitet und ergänzt. Die bewährte Grundstruktur des Handbuchs bleibt unverändert. Das Handbuch folgt dabei in mancherlei Hinsicht ähnlichen Kritikalitäts-handbüchern oder Anleitungen, die in den USA, in Großbritannien, Frankreich, Japan und in der ehemaligen Sowjetunion erschienen sind.

Der sinnvolle Gebrauch der im Handbuch vorliegenden Informationen erfordert ein grundsätzliches Verständnis der Kritikalitätsproblematik und der Terminologie der nuklearen Sicherheit. In Band 1, „Kritikalität und nukleare Sicherheit“, werden daher zunächst die wichtigsten Begriffe und Grundlagen eingeführt und erläutert. Daran anschließend werden experimentelle Methoden und Rechenverfahren zur Berechnung von Kritikalitätsproblemen dargestellt. Die folgenden Kapitel von Band 1 behandeln u. a. die Wirkung von Neutronenreflektoren und -absorbern, die Neutronenwechselwirkung, Messverfahren zur Kritikalitätskontrolle, organisatorische Sicherheitsmaßnahmen und geben einen Überblick über kritikalitätsrelevante Betriebserfahrungen sowie über Kritikalitätsunfälle und ihre potentiell gefährdenden Auswirkungen.

Die Teile 1 und 2 von Band 2 schließlich enthalten Kritikalitätskenngrößen in Kurven- und Tabellenform. Die einzelnen Kurvenblätter sind jeweils mit einem eingangs aufgeschlüsselten Kennungssystem versehen, um ein rasches Auffinden der gerade interessierenden Information zu ermöglichen. Teil 1 enthält Kritikalitätskenngrößen für Stoffsysteme mit ^{235}U als Spaltstoff, während Teil 2 Stoffsysteme mit den Spaltstoffen ^{233}U und Plutonium sowie mit höheren Aktinoiden behandelt.

Preface

This handbook was prepared primarily with the aim to provide information to experts in industry, authorities or research facilities engaged in criticality-safety-related problems that will allow an adequate and rapid assessment of criticality safety issues already in the planning and preparation of nuclear facilities. However, it is not the intention of the authors of the handbook to offer ready solutions to complex problems of nuclear safety. Such questions have to remain subject to an in-depth analysis and assessment to be carried out by dedicated criticality safety experts.

Compared with the previous edition dated December 1998, this handbook has been further revised and supplemented. The proven basic structure of the handbook remains unchanged. The handbook follows in some ways similar criticality handbooks or instructions published in the USA, UK, France, Japan and the former Soviet Union.

The expedient use of the information given in this handbook requires a fundamental understanding of criticality and the terminology of nuclear safety. In Vol. 1, "Criticality and Nuclear Safety", therefore, first the most important terms and fundamentals are introduced and explained. Subsequently, experimental techniques and calculation methods for evaluating criticality problems are presented. The following chapters of Vol. 1 deal i. a. with the effect of neutron reflectors and absorbers, neutron interaction, measuring methods for criticality, and organisational safety measures and provide an overview of criticality-relevant operational experience and of criticality accidents and their potential hazardous impact.

Vol. 2 parts 1 and 2 finally compile criticality parameters in graphical and tabular form. The individual graph sheets are provided with an initially explained set of identifiers, to allow the quick finding of the information of current interest. Part 1 includes criticality parameters for systems with ^{235}U as fissile material, while part 2 deals with systems comprising ^{233}U , plutonium and higher actinides.

Inhaltsverzeichnis

1	Physikalische Grundlagen zur Kritikalität	1
1.1	Der Spaltprozess	1
1.1.1	Die Kernspaltung	1
1.1.2	Spaltbare Stoffe	1
1.1.3	Wirkungsquerschnitte	2
1.2	Der infinite Multiplikationsfaktor k_{∞}	3
1.2.1	Moderation	5
1.2.2	Anreicherung	8
1.2.3	Absorption	8
1.2.4	Heterogenitätseffekte	10
1.2.5	Die Vierfaktorenformel	12
1.3	Der effektive Multiplikationsfaktor k_{eff}	13
1.3.1	Neutronenverluste durch Leckage	13
1.3.2	Einflüsse auf die Leckage	17
1.4	Unterkritische Multiplikation einer externen Neutronenquelle	19
1.5	Die wichtigsten Kritikalitätsparameter	23
1.6	Literatur zu Kapitel 1	26
2	Nukleare Sicherheit	27
2.1	Sicherheitskonzepte	27
2.1.1	Geometrische Sicherheit	28
2.1.2	Sicherheit durch Massenbeschränkung	28
2.1.3	Sicherheit durch Konzentrationsbeschränkung	28

2.1.4	Sicherheit durch Beschränkung des Anreicherungsgrads	29
2.1.5	Sicherheit durch Vorliegen des Spaltmaterials in einer bestimmten chemischen Verbindung	29
2.1.6	Sicherheit durch Kontrolle des Moderationsgrads.....	29
2.1.7	Sicherheit durch Neutronenabsorber	29
2.1.8	Sicherheit durch Berücksichtigung des Abbrands.....	30
2.1.9	Übergänge von einem Sicherheitskonzept auf ein anderes	32
2.1.10	Allgemeine Sicherheitsprinzipien.....	32
2.1.11	Sicherheitsprinzip bei Störfällen	32
2.2	Sicherheitsfaktoren.....	34
2.2.1	Ableitung zulässiger Werte aus kritischen Werten	34
2.2.2	Zulässige Multiplikationsfaktoren k_{eff}	36
2.2.3	Besondere Einflüsse auf Sicherheitsfaktoren und zulässige Werte für den Multiplikationsfaktor k_{eff}	37
2.2.4	Hinweise für die Wahl von Sicherheitsfaktoren und zulässigen Werten für den Multiplikationsfaktor k_{eff}	37
2.3	Regeln und Richtlinien auf dem Gebiet der Kritikalitätssicherheit	39
2.3.1	Gesetzliche Grundlagen und Sicherheitsanforderungen	39
2.3.2	Normen, Regeln und Richtlinien.....	40
2.4	Literatur zu Kapitel 2.....	47
3	Kritikalitätsexperimente	49
3.1	Experimentelle Methoden	49
3.1.1	Kritische Experimente	49
3.1.2	Unterkritische Experimente	52
3.1.3	Weitere Methoden.....	53

3.2	Versuchsanlagen	54
3.3	Zusammenstellungen von experimentellen Kritikalitätsdaten	55
3.4	Literatur zu Kapitel 3.....	56
4	Rechenverfahren zur Kritikalitätssicherheit	59
4.1	Datenbasis und Spektralprogramme	59
4.2	Prinzipielle Methoden	64
4.2.1	Diffusionsverfahren	66
4.2.2	S_N -Verfahren	67
4.2.3	Monte Carlo-Methode	67
4.3	Rechenprogramme (Auswahl).....	68
4.4	Validierung von Rechenverfahren	72
4.5	Qualitätssicherung bei Kritikalitätsrechnungen	76
4.6	Literatur zu Kapitel 4.....	78
5	Spezielle Spaltstoffsysteme.....	81
5.1	Absorber	81
5.1.1	Neutronenabsorber und ihre Anwendung	81
5.1.2	Eigenschaften der Neutronenabsorber	83
5.1.3	Homogene Neutronenabsorber	86
5.1.4	Heterogene Neutronenabsorber	87
5.1.5	Umhüllung von Behältern mit Absorbermaterial	88
5.1.6	Einbau von Absorberplatten oder -stäben	89
5.1.7	Einsatz von borhaltigen Füllkörpern	90
5.1.8	Absorber-Moderator-Schichten zwischen Spaltstoffsystemen	91

5.2	Reflektoren	92
5.3	Besondere Fälle von Heterogenität	96
5.3.1	Spaltstoffgitter in spaltstoffhaltigen Lösungen	96
5.3.2	Inhomogene Lösungen mit Konzentrationsgradienten	97
5.4	Literatur zu Kapitel 5.....	100
6	Neutronenwechselwirkung und ihre Berechnung	103
6.1	Ausgewählte Experimente	105
6.2	Semi-empirische Verfahren	108
6.2.1	Methode der analogen Dichte	108
6.2.2	Die NB_N^2 -Methode	111
6.2.3	Methoden der äquivalenten Flächenbelegung	114
6.2.4	Hyperbelgleichungsmethode	117
6.3	Raumwinkel- und Albedo-Verfahren	117
6.3.1	Raumwinkelmethode nach Henry und Newlon	118
6.3.2	Albedomethode nach Clark	126
6.4	Das Monte Carlo-Verfahren	127
6.4.1	Das Prinzip des Verfahrens	129
6.4.2	Rechentechniken und Simulationsmethoden.....	133
6.4.3	Geometriedarstellung und Reflektoren	137
6.5	Rohrverschneidungen	139
6.6	Neutronenwechselwirkung bei Zwischenmoderation.....	146
6.7	Resultate von Vergleichsrechnungen zur Neutronenwechselwirkung	149
6.8	Literatur zu Kapitel 6.....	151

7	Messtechnische Kritikalitätskontrolle	155
7.1	Zerstörungsfreie Messtechniken.....	155
7.2	Inline-Messungen	158
7.3	Literatur zu Kapitel 7.....	159
8	Organisatorische Maßnahmen zur Kritikalitätskontrolle	161
8.1	Diskussion der relevanten Maßnahmen	161
8.2	Literatur zu Kapitel 8.....	163
9	Kritikalitätsrelevante Betriebserfahrungen mit Anlagen der nuklearen Ver- und Entsorgung.....	165
9.1	Betriebserfahrungen in der Datenbank VIBS.....	165
9.2	Kritikalitätsrelevante Vorkommnisse ohne Kritikalitätsexkursion	166
9.3	Kritikalitätsrelevante Vorkommnisse mit Kritikalitätsexkursion	169
9.4	Literatur zu Kapitel 9.....	171
10	Nukleare Unfälle und ihre Folgen	173
10.1	Bisherige Kritikalitätsunfälle	173
10.2	Abschätzung der Häufigkeit von Kritikalitätsunfällen	174
10.3	Auslösende Ereignisse für einen Kritikalitätsunfall.....	177
10.4	Typischer Verlauf einer Kritikalitätsexkursion.....	178
10.5	Experimentelle Untersuchungen	180
10.6	Abschätzung und Berechnung der Unfallgröße.....	183
10.6.1	Abschätzung der Spaltzahl im 1. Maximum	183
10.6.2	Abschätzung der Gesamtzahl an Spaltungen.....	184
10.6.3	Abschätzung von spezifischer Spaltrate und Maximaldruck.....	185

10.6.4	Extrem langsame Exkursionen	187
10.6.5	Rechenprogramme.....	187
10.7	Auswirkungen eines Kritikalitätsunfalls.....	188
10.7.1	Emission von Neutronen.....	189
10.7.2	Emission von Gammastrahlung.....	193
10.7.3	Freisetzung von radioaktiven Spaltprodukten	194
10.7.4	Rechenprogramme zur Berechnung der radiologischen Wirkung von Kritikalitätsexkursionen	196
10.8	Vorsorge- und Schutzmaßnahmen.....	197
10.9	Literatur zu Kapitel 10	198
11	Kritikalitätsalarmsysteme	203
11.1	Kritikalitätsalarmsysteme – Grundlagen	203
11.2	Literatur zu Kapitel 11	206
12	Wichtige Konferenzen und Fachtagungen zur Kritikalitätssicherheit.....	207
13	Physikalische und chemische Eigenschaften von Spaltstoffen und ihren Verbindungen.....	209
13.1	Zusammenstellung relevanter Daten	209
13.2	Literatur zu Kapitel 13	212
	Abbildungsverzeichnis	213
	Tabellenverzeichnis	215

1 **Physikalische Grundlagen zur Kritikalität**

1.1 **Der Spaltprozess**

1.1.1 **Die Kernspaltung**

Die Atomkerne mehrerer schwerer Elemente können beim Einfang von Neutronen in kleinere Kernbruchstücke zerfallen, wobei zwei bis drei Neutronen sowie etwa zehn Elektron-Antineutrinos emittiert werden, und beträchtliche Energie freigesetzt wird. Dieser Vorgang heißt Kernspaltung. Der Spaltprozess ist neben der Teilchenemission von der Aussendung prompter Gammastrahlung begleitet (vgl. auch Tab. 10.3 in Kap. 10.7).

Ein Teil der Masse des zerfallenden Kerns wird beim Spaltvorgang in Energie umgewandelt, die zum größten Teil als kinetische Energie der Kernbruchstücke erscheint. Der Zerfall des Kerns führt in den meisten Fällen zu zwei Kernbruchstücken unterschiedlicher Masse, die zumeist unter Emission von β - und γ -Quanten weiter zerfallen.

Während nahezu alle bei der Spaltung frei werdenden Neutronen spontan freigesetzt werden (prompte Neutronen), wird ein kleiner Teil der Neutronen erst nach dem eigentlichen Spaltvorgang von den Spaltprodukten emittiert. Der Anteil dieser verzögerten Neutronen (Verzögerungszeit ca. 0,1 s) beträgt ca. 0,70 % bei ^{235}U -Spaltung und ca. 0,23 % bei ^{239}Pu -Spaltung. Diese verzögerten Neutronen sind von ausschlaggebender Bedeutung für die Regelbarkeit von Kernreaktoren [1.4], [1.5].

Die bei der Kernspaltung frei werdenden Neutronen können von weiteren spaltbaren Kernen absorbiert werden und wiederum zu deren Spaltung führen. Eine Substanz, in der eine solche fortgesetzte Spaltung, eine sogenannte Kettenreaktion, ablaufen kann, nennt man ein multiplizierendes Medium. Erreicht ein System den Zustand einer sich selbst unterhaltenden Kettenreaktion, so bezeichnet man das System als **kritisch**, das System befindet sich im Zustand der **Kritikalität**.

1.1.2 **Spaltbare Stoffe**

Nur bestimmte Nuklide mit hoher Massenzahl können durch Kernspaltung eine nukleare Kettenreaktion unterhalten. Die Kernspaltungen können dabei von Neutronen unterschiedlicher Energie ausgelöst werden. Je nach Neutronenenergie unterscheidet man

schnelle, epithermische und thermische Neutronen. Die bei der Kernspaltung entstehenden, energiereichen schnellen Neutronen werden durch elastische und inelastische Streuungen an den Atomkernen eines streuenden Mediums auf epithermische und thermische Energien abgebremst. Nuklide, die durch langsame Neutronen gespalten werden können, bezeichnet man als thermisch spaltbar [1.1]. Die wichtigsten thermisch spaltbaren Nuklide sind ^{233}U , ^{235}U , ^{239}Pu und ^{241}Pu , von denen lediglich ^{235}U als natürliches Isotop vorkommt. Schnelle Neutronen können dagegen bei einer Reihe weiterer Nuklide zur Kernspaltung führen, so z. B. bei ^{232}Th , ^{237}Np , ^{238}U , ^{238}Pu , ^{240}Pu oder ^{241}Am . Reines ^{232}Th bzw. ^{238}U wird nicht kritisch.

Natürlich vorkommendes Uran, sog. Natururan $^{\text{nat}}\text{U}$, weist einen Isotopenanteil von etwa 0,72 Gew.-% ^{235}U auf. Dieser Anteil liegt so niedrig, dass mit Natururan nur in Verbindung mit sehr schwach absorbierenden und zugleich gut Neutronen abbremsenden Stoffen wie z. B. Deuterium Kritikalität erreicht werden kann.

1.1.3 Wirkungsquerschnitte

Treffen Neutronen auf Atomkerne, so können sie je nach Art des Zielkerns und der Energie der Neutronen eine Reihe von verschiedenen Kernreaktionen auslösen. Diese Reaktionen lassen sich in zwei Gruppen ordnen: In Streuprozesse, wobei das auftreffende Neutron einen elastischen oder inelastischen Stoß erleidet, und in Absorptionsprozesse, wobei das Neutron vom Zielkern eingefangen wird und verschiedene Folgereaktionen wie Strahlungsemission oder Kernspaltung auftreten.

Um die Eintrittswahrscheinlichkeit für alle diese Prozesse im Einzelnen quantifizieren zu können, führt man als Maß den Wirkungsquerschnitt ein. Dieser Wirkungsquerschnitt hat die Dimension einer fiktiven Fläche, deren Größe durch die experimentell beobachtete Häufigkeit des Auftretens einer Kernreaktion bestimmt ist. Als Maßeinheit für diese Fläche wird das „barn“ benutzt (engl. für „Scheune“). Das Barn ist keine SI-Einheit; es ist aber in den Staaten der EU und in der Schweiz eine gesetzliche Einheit für die Angabe von Wirkungsquerschnitten, somit also keine allgemeingültige Flächeneinheit. 1 barn entspricht 10^{-24} cm^2 .

Wirkungsquerschnitte werden stets im Hinblick auf eine bestimmte Kernreaktion angegeben. Man spricht dann von Einfang-, Spalt-, elastischen und inelastischen Streuquer-

schnitten, sowie weiteren wie z. B. $(n, 2n)$ - oder (n, α) -Wirkungsquerschnitten. Die Summe aller dieser Wirkungsquerschnitte wird als totaler Wirkungsquerschnitt bezeichnet.

Den auf das einzelne Atom bezogenen Wirkungsquerschnitt nennt man mikroskopischen Wirkungsquerschnitt σ . Multipliziert man den mikroskopischen Wirkungsquerschnitt mit der Atomzahldichte des jeweiligen Stoffs in einem Volumenelement von 1 cm^3 , so erhält man den makroskopischen Wirkungsquerschnitt Σ in der Einheit cm^{-1} .

Die Wirkungsquerschnitte sind für die einzelnen Atomkerne und Kernreaktionen stark von der Energie der auftreffenden Neutronen abhängig. Die Wirkungsquerschnitte werden für alle Atomkerne und Kernreaktionen für die einzelnen Energiebereiche aus Experimenten bestimmt. Inzwischen liegen umfangreiche Zusammenstellungen von gemessenen Wirkungsquerschnitten vor, welche die Grundlage für die Wirkungsquerschnittsdatenbibliotheken der zur Berechnung von Kritikalitätsproblemen eingesetzten Rechenprogramme bilden. Auf die Verwendung und Verarbeitung dieser Datenbasis wird in Kap. 4.1 näher eingegangen.

Tab. 1.1 listet thermische Absorptions- und Spaltquerschnitte wichtiger Aktinoiden auf. Die für die Isotope ab Ordnungszahl 95 angegebenen Werte dürften noch mit gewissen Unsicherheiten behaftet sein.

1.2 Der infinite Multiplikationsfaktor k_∞

In einem unendlich ausgedehnten, neutronenmultiplizierenden Medium verursachen n_1 Neutronen durch Kernspaltung n_2 neue Neutronen. Das Verhältnis $k_\infty = \frac{n_2}{n_1}$ der Gesamtzahl der entstandenen Neutronen zur Gesamtzahl der absorbierten Neutronen wird als infiniter Multiplikationsfaktor k_∞ bezeichnet.

Bei jeder durch ein thermisches Neutron ausgelösten Kernspaltung werden bei ^{235}U im Mittel etwa 2,45, bei ^{239}Pu etwa 2,89 Spaltneutronen freigesetzt. Diese mit $\bar{\nu}$ (oft auch englisch "nubar") bezeichneten, spaltmaterialspezifischen Werte kann der infinite Multiplikationsfaktor nicht überschreiten.

Ist der infinite Multiplikationsfaktor eines Systems gerade $k_\infty = 1,0$, dann entstehen ebenso viele Neutronen wie durch Absorption verlorengehen, so dass sich die Kettenreaktion

Tab. 1.1 Thermische Absorptions- und Spaltquerschnitte wichtiger Aktinoide
($E_{th} = 0,0253 \text{ eV}$)

Ordnungszahl Z	Isotop	Mikroskopische Wirkungsquerschnitte (barn)		Mittlere Spaltneutronenzahl $\bar{\nu}$	Literatur	
		σ_a Absorption	σ_f Spaltung			
90	²³² Th	7,4			[5.1]	
92	²³³ U	573,1 ± 2,1	524,5 ± 1,9	2,497 ± 0,008	[5.2]	
	²³⁴ U	95,7 ± 7,0			[5.2]	
	²³⁵ U	678,2 ± 2,2	577,1 ± 0,9		2,43 ± 0,01	[5.2]
	²³⁶ U	6,0 ± 1,0			[5.2]	
	²³⁸ U	2,72 ± 0,02			[5.1]	
	Natururan	7,66	4,27		[5.5]	
93	²³⁷ Np	170			[5.6]	
94	²³⁸ Pu	500 ± 100			[5.2]	
	²³⁹ Pu	1014,5 ± 4,2	740,6 ± 3,5	2,898 ± 0,011	[5.4]	
	²⁴⁰ Pu	290			[5.1]	
	²⁴¹ Pu	1370 ± 20	950 ± 30		3,00 ± 0,04	[5.2]
	²⁴² Pu	20			[5.1]	
	²⁴¹ Am	585	3,0			[5.2]
²⁴² Am	8000 ± 800	6400 ± 500	3,18		[5.3]	
95	²⁴³ Am	180 ± 20			[5.2]	
	²⁴³ Cm	950	700	3,28	[5.3]	
	²⁴⁴ Cm	14,5	1,21	3,20	[5.3]	
	²⁴⁵ Cm	2869,0	2438,5	3,30	[5.3]	
	²⁴⁶ Cm	8,7			[5.3]	
	²⁴⁷ Cm	589,4	525,7		[5.3]	
98	²⁴⁹ Cf	2000	1735	3,70	[5.3]	
	²⁵¹ Cf	6445	4606	4,48	[5.3]	

gerade selbst erhält. Dieser Zustand des Systems wird als **kritisch** bezeichnet.

Wird ein System allein durch prompte Neutronen kritisch (vgl. Kap. 1.1.1), so bezeichnet man es als **prompt kritisch**; sind zum Erreichen des kritischen Zustandes prompte wie verzögerte Neutronen nötig, heißt das System **verzögert kritisch**.

Bei $k_{\infty} > 1,0$ wird durch die Kettenreaktion eine exponentiell anwachsende Neutronenmenge erzeugt. Ein derartiges System heißt **überkritisch**.

Ist $k_{\infty} < 1,0$, so kann sich keine Kettenreaktion entwickeln, das System befindet sich in einem **unterkritischen** Zustand.

Der infinite Multiplikationsfaktor k_{∞} hängt von der Art und Zusammensetzung des Spaltstoffs, der Art und Menge zugemischter Elemente und deren Absorptions- und Abbrems-eigenschaften für Neutronen ab. Weiter ist die räumliche Verteilung des Spaltmaterials von großer Bedeutung. Diese Einflüsse werden im Folgenden diskutiert.

1.2.1 Moderation

Befinden sich Atomkerne leichter Elemente in der Spaltzone, so verlieren die als schnelle Neutronen entstehenden Spaltneutronen (Durchschnittsenergie etwa 2 MeV) durch Zusammenstöße mit diesen Atomkernen allmählich ihre Energie. Die Neutronen werden in den epithermischen (100 keV bis 0,5 eV) und thermischen Bereich (die thermische Energie liegt bei $E_{th} = 0,0253$ eV) abgebremst. Diese überwiegend durch elastische Streuung verursachte Verminderung der kinetischen Energie der Neutronen heißt **Moderation**.

Bei Zusammenstößen mit schweren Kernen verlieren die Neutronen nur sehr wenig Energie. Hingegen kann ein Neutron beim Zusammenstoß mit einem Wasserstoffkern aufgrund der nahezu gleichen Masse durch eine einzige Kollision auf thermische Energie abgebremst werden. Daher spielen leichte Elemente, insbesondere Wasserstoff, eine entscheidende Rolle bei der Erreichung des thermischen Energiebereichs. Diese Neutronen abbremsend wirkenden Stoffe niedriger Ordnungszahl werden als Moderatoren bezeichnet.

Ein System, in dem der größte Teil der Neutronen auf thermische Energie abgebremst worden ist, nennt man ein thermisches System. In einem derartigen Medium wird ein kritischer Zustand überwiegend durch thermische Spaltungen aufrecht erhalten. Zur Kennzeichnung der in einem System herrschenden Moderation wird das Atomverhältnis der moderierenden zu den spaltbaren Nukliden verwendet, das sog. Moderator-Spaltstoff-Verhältnis. Dieses Verhältnis, z. B. $H/^{235}U$, $C/^{235}U$, oder $H/^{239}Pu$, aber auch $H/U_{ges.}$, wird auch Moderationsverhältnis oder Moderationsgrad genannt und ist für das Reaktivitätsverhalten eines Systems von entscheidender Bedeutung. Der Zusammenhang zwischen Spaltstoffkonzentration und Moderationsgrad wird für die einzelnen Systeme meist in Kurvenform, zum Teil auch durch mathematische Funktionen wiedergegeben.

Ist der Moderationsgrad eines Mediums sehr klein oder praktisch null, so spricht man von einem unmoderierten System. Viele unmoderierte Spaltstoffsysteme sind zugleich schnell spaltende Systeme. Ein kritischer Zustand wird hier fast ausschließlich durch schnelle Neutronen hervorgerufen. Schnelle Systeme sind z. B. metallisches ^{235}U oder ^{239}Pu , und die durch schnelle Neutronen spaltbaren Isotope ^{238}Pu , ^{240}Pu und ^{241}Am in metallischer Form. Unmoderiertes Uran unterhalb von 5 % Anreicherung bleibt unterkritisch.

Bringt man in ein schnelles, hochangereichertes System kleine Mengen eines Moderators, etwa Wasserstoff, so vermindert sich die mittlere Energie der Neutronen und damit der infinite Multiplikationsfaktor k_{∞} zunächst, da sowohl die durchschnittliche Zahl der pro Spaltung freiwerdenden Neutronen mit sinkender Energie kleiner wird als auch die Wahrscheinlichkeit, eine Schnellspaltung auszulösen, abnimmt. Wird das Moderationsverhältnis weiter erhöht, so kann k_{∞} durch die Zunahme der thermischen Spaltungen wieder ansteigen, das ursprünglich schnelle System geht in ein thermisches über. In dem dazwischenliegenden epithermischen Bereich kann sich ein Reaktivitätsminimum ausbilden, wie beispielhaft in Abb. 1.1 dargestellt ist.

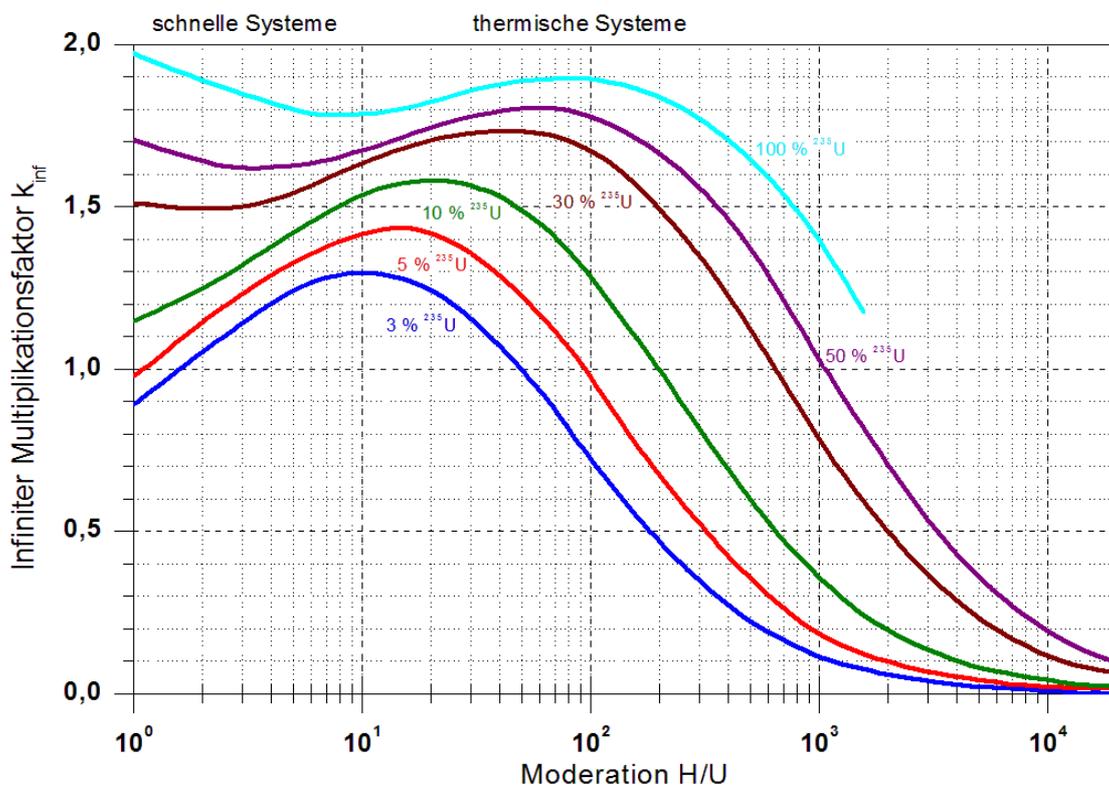


Abb. 1.1 Infinites Multiplikationsfaktor k_{∞} als Funktion der Moderation H/U und des Uran-Anreicherungsgrades in % ^{235}U

Bei sinkenden Anreicherungsgraden an ^{235}U bewirkt der dann höhere Anteil an ^{238}U infolge inelastischer Streuung der schnellen Neutronen und wegen der besonders hohen Absorptionsquerschnitte von ^{238}U im epithermischen Bereich (Resonanzabsorption, siehe unten) einen starken Reaktivitätsverlust, so dass Uran-Systeme ohne Moderator unterhalb von etwa 5 % ^{235}U -Anreicherungsgrad nicht mehr kritisch werden können. Die Zugabe von Moderator erhöht bei Anreicherungsgraden $\leq 5\%$ die Reaktivität des Systems, bis das thermische Reaktivitätsmaximum erreicht wird, vgl. Abb. 1.1. Bei weiterer Zugabe von Moderatorsubstanz nimmt der Multiplikationsfaktor wieder ab.

Um die Abhängigkeit vom Anreicherungsgrad zu vermeiden, wird häufig anstelle des Moderationsgrades $H/^{235}\text{U}$, $C/^{235}\text{U}$ das Atomverhältnis Moderator zu Gesamturan bzw. Gesamtplutonium angegeben (H/U , C/U). Dies ist möglich, da der Zusammenhang zwischen Uran- bzw. Plutoniumkonzentration und H/U - bzw. H/Pu -Atomverhältnis nur unwesentlich vom Anreicherungsgrad oder dem Plutonium-Isotopenverhältnis abhängt. In den Teilen 2 und 3 des vorliegenden Handbuchs sind diese Zusammenhänge daher jeweils unabhängig vom Anreicherungsgrad bzw. Pu-Isotopenverhältnis für die einzelnen Spaltstoffsysteme angegeben; Ausnahmen sind gesondert gekennzeichnet.

Bei heterogenen Spaltstoff-Moderator-Anordnungen (Stabgitter, Plattenelemente, Kugelbrennelemente) werden die Moderationsverhältnisse durch das Verhältnis des Moderatorvolumens zum Volumen des Spaltmaterials beschrieben. Dieses Moderator-Spaltmaterial-Volumenverhältnis, z. B. $V(\text{H}_2\text{O}) / V(\text{U})$ oder $V(\text{H}_2\text{O}) / V(\text{UO}_2)$, enthält nicht den Volumenanteil der Hüllrohre der Brennstäbe.

Da jedes Moderatormaterial Neutronen in geringem Maße auch absorbiert, müssen drei Phänomene bei der Beurteilung eines Stoffes als Moderator betrachtet werden: Erstens, das Medium muss eine starke Streuwirkung auf Neutronen ausüben, sein Streuquerschnitt Σ_s muss groß sein. Zweitens sollten die Neutronen bei jedem Streuvorgang möglichst stark abgebremst werden, das Medium muss daher viele Atomkerne niedrigen Atomgewichts enthalten. Drittens muss der Absorptionsquerschnitt Σ_A klein gegenüber dem Streuquerschnitt Σ_s sein, damit wenig Neutronen durch Absorption verloren gehen. Stoffe mit diesen Eigenschaften bezeichnet man als gute Moderatoren. Die wichtigsten Moderatoren sind (Leicht-)Wasser H_2O , Schwerwasser (Deuteriumdioxid) D_2O , Beryllium, Berylliumoxid und Graphit. Eine wichtige Rolle spielen auch wasserstoffhaltige Kunststoffe wie Polyäthylen, Paraffin und Plexiglas.

1.2.2 Anreicherung

Natururan enthält etwa 0,72 % thermisch spaltbares ^{235}U und kann nur mit Graphit oder schwerem Wasser D_2O als Abbremsmaterial (Moderator, vgl. Kap. 1.2.1) den kritischen Zustand erreichen. Um auch mit anderen Abbremssubstanzen, die eine gewisse Eigenabsorption gegenüber Neutronen aufweisen – wie z. B. Leichtwasser H_2O – kritische Systeme zu erzeugen, muss der Massenanteil ^{235}U im Gesamturan durch technische Maßnahmen künstlich erhöht werden. Diesen Vorgang nennt man **Anreicherung**.

Der Massenanteil an thermisch spaltbarem ^{235}U im Gesamturan wird umgangssprachlich (und abweichend von DIN 25401 [1.1] Teil 6) als Anreicherungsgrad bezeichnet. Natururan hat damit einen (äquivalenten) Anreicherungsgrad von 0,72 %. Liegt der ^{235}U -Anteil unterhalb von diesem Wert, spricht man von abgereichertem Uran. Da die Molekulargewichte der Uranisotope sich nur geringfügig voneinander unterscheiden, ist der definierte Anreicherungsgrad auch nahezu mit dem Isotopenverhältnis, also dem Verhältnis der Anzahl der ^{235}U -Atome zur Gesamtzahl der Uranatome, identisch.

Bei Plutonium, das meist mehrere Isotope enthält, wird in der Regel nicht vom Anreicherungsgrad, sondern von den Massenanteilen der einzelnen Pu-Isotope gesprochen, ausgedrückt in Massenprozenten. In gleicher Weise charakterisiert man die einzelnen Spaltstoffanteile in Uran-Plutonium-Mischungen.

Eine Zunahme des Anreicherungsgrads bewirkt unter gleichbleibenden Moderationsbedingungen eine Erhöhung des infiniten Multiplikationsfaktors, da die nicht zur Spaltung führenden Neutroneneinfänge in den thermisch nicht spaltbaren Isotopen wie ^{238}U oder ^{240}Pu relativ vermindert werden. Die bei der Verminderung des ^{238}U -Anteils zurückgehenden Spaltungen durch schnelle Neutronen können den Neutronengewinn durch Wegfall der Absorption an ^{238}U bei weitem nicht ausgleichen.

1.2.3 Absorption

Neben den Streuprozessen treten Absorptionsprozesse auf, die Neutronenverluste zur Folge haben. Ist der absorbierende Kern spaltbar, so kann die Absorption eines Neutrons zu einer Spaltung führen und zum Erhalt einer Kettenreaktion beitragen. Die Wahrscheinlichkeit, dass ein Absorptionsprozess zur Kernspaltung führt, wird durch den Spaltquer-

schnitt charakterisiert. Er ist für die einzelnen Spaltstoffe sehr unterschiedlich und stark von der Energie des auftreffenden Neutrons abhängig. Für die thermisch spaltbaren Nuklide gilt, dass der Spaltquerschnitt σ_f mit sinkenden Neutronenenergien stark anwächst. Abb. 1.2 zeigt dies am Beispiel von ^{235}U .

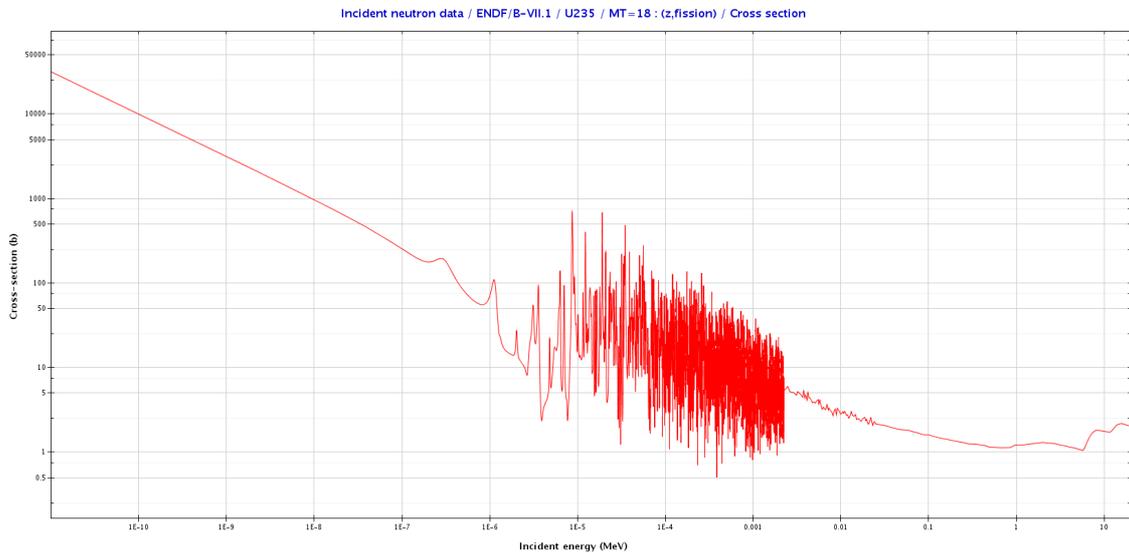


Abb. 1.2 Spaltquerschnitt σ_f für ^{235}U als Funktion der Energie nach [1.2]

Auch bei spaltbaren Isotopen führt nicht jede Absorption zur Kernspaltung, da ein Teil der absorbierten Neutronen eingefangen wird und damit für die Kernspaltung verloren geht. Die Wahrscheinlichkeit für diesen Vorgang wird durch den Einfangquerschnitt beschrieben. Der Verlauf des Einfangquerschnitts mit der Energie der Neutronen ist für die einzelnen Nuklide unterschiedlich und oft sehr kompliziert.

Bei einer Reihe wichtiger Nuklide treten im epithermischen Energiebereich bei bestimmten Energien scharfe Maxima des Einfangquerschnitts auf. Diese sog. Resonanzabsorption hat gravierende Rückwirkungen auf das Kritikalitätsverhalten, da die Wahrscheinlichkeit für das Überwinden des Resonanzbereichs bei der Abbremsung der Neutronen durch die Art, Menge und räumliche Verteilung von Spaltstoff, Resonanzabsorber und Modulatorsubstanz bestimmt wird. Die wichtigsten Resonanzabsorber sind ^{238}U , ^{232}Th und ^{240}Pu . Sie alle weisen eine komplizierte Resonanzstruktur auf.

Einige nicht spaltbare Elemente haben Absorptionsquerschnitte σ_a , die im thermischen Energiebereich weit über den Streuquerschnitten liegen. Bringt man derartige Stoffe in ein multiplizierendes Medium, so tritt eine mehr oder weniger starke Reaktivitätsvermin-

derung ein. Die Kettenreaktion kann sogar vollständig zum Erliegen kommen. Diese Stoffe nennt man **Absorber**, bei großen Absorptionsquerschnitten auch Neutronengifte. Da der Absorptionsquerschnitt σ_a mit sinkender Energie bzw. Geschwindigkeit v der Neutronen zunimmt (sog. $1/v$ -Abhängigkeit), sind diese Neutronenabsorber im epithermischen und thermischen Energiebereich besonders wirksam.

Als milde Neutronengifte für thermische Neutronen wirken Stickstoff, Chlor und die Schwermetalle Eisen, Nickel, Mangan und Kobalt. Auch Wasserstoff ^1H kann in D_2O -moderierten Systemen als milder Absorber angesehen werden. Starke Neutronengifte sind Bor (meist in Form von Borstahl, Borglas oder Borkarbid), Cadmium, Samarium, Hafnium und Gadolinium. Diese Elemente spielen bei Sicherheitseinrichtungen, die eine Kritikalität verhindern sollen, eine große Rolle, z. B. bei der Sicherheit chemischer Prozessanlagen.

Hohe Absorptionsquerschnitte haben weiter die Edelgase Krypton und Xenon. Ihr Entstehen verursacht während des Betriebs eines thermischen Reaktors beachtliche Neutronenverluste, die man bis zur Auswechslung des Spaltmaterials durch Regelung einer Überschussreaktivität kompensieren muss.

1.2.4 Heterogenitätseffekte

Während seiner Lebensdauer in einem streuenden infiniten Medium erleidet ein Neutron solange Kollisionen, bis es absorbiert wird. Die durchschnittliche räumliche Distanz zwischen zwei Stößen nennt man die **mittlere freie Weglänge**. Diese Größe ist ebenfalls energieabhängig. Für thermische Neutronen beträgt sie z. B. in Wasser ca. 2,9 mm.

Als homogen bezeichnet man ein Medium, in dem sich die Atomzahldichten der vorhandenen Spalt- und Moderatoratome über Strecken, die groß gegenüber der mittleren freien Weglänge der Neutronen sind, nicht ändern. Als heterogen oder auch inhomogen gelten Medien, deren Atomzahldichten sich über derartige Strecken merklich ändern. Dabei sind die in dem in Tab. 1.2 dargestellten Schema aufgeführten Fälle zu unterscheiden.

In der Kerntechnik spielen heterogene, regelmäßig angeordnete Spaltstoff-Moderator-Anordnungen eine große Rolle (Kernreaktor). Inhomogene Systeme (z. B. Absetzen von Niederschlägen, Schichten unterschiedlicher Konzentration aufgrund verschiedener Löslichkeit) sind besonders bei der chemischen Verarbeitung von Spaltstoffen zu beachten.

Ein wichtiger Fall eines zweifach heterogenen Systems ist die Auflösung von Brennelementen bei der Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoff.

Tab. 1.2 Beispiele zur Darstellung des Heterogenitätsbegriffs

Bezeichnung	Beispiel
1 homogen	U-Lösung konstanter Konzentration
2 heterogen, inhomogen	U-Lösung mit einem Konzentrationsgefälle
3 heterogen	U-Metallstäbe oder -platten in Wasser UO ₂ -Stabgitter in Wasser
4 heterogen	U-Metallstäbe in homogener U-Lösung
5 zweifach heterogen	U-Metallstäbe in U-Lösung mit Konzentrationsgefälle (Auflösung der Stäbe)

Ab einer Spaltstoffkorngröße von ca. 100 μm beeinflussen Heterogenitätseffekte die Reaktivität eines moderierten Systems spürbar. In den Teilen 2 und 3 des vorliegenden Handbuchs werden als heterogen stets Systeme von der Art des Beispiels 3 in Tab. 1.2 bezeichnet. Andere Fälle von Heterogenität müssen durch spezielle Kritikalitätsrechnungen analysiert werden. Bei unmoderierten Systemen spielen Heterogenitätseffekte keine wesentliche Rolle und können meist außer Betracht gelassen bleiben.

Entscheidend für die Bedeutung heterogener Uransysteme ist das Resonanzverhalten des ²³⁸U. Während eine homogene Uran-Moderatormischung oberhalb etwa 7 % ²³⁵U Anreicherung reaktiver ist als die entsprechende heterogene Moderatormischung bei dem gleichen Spaltstoffeinsatz und Moderationsgrad, sind heterogene Systeme unter 7 % Anreicherungsgrad erheblich reaktiver. So beträgt der kleinste, kritische Anreicherungsgrad für homogene Uran-Lösungen 1,034 %, während heterogene Natururansysteme (0,72 %) und sogar schwach abgereichertes Uran (< 0,72 %) mit speziellen Moderatoren kritisch werden können. Dies liegt an den großen Wirkungsquerschnitten für elastische und inelastische Streuungen und an den kleinen Spaltquerschnitten von ²³⁸U im thermischen und epithermischen Bereich.

Im Falle einer homogenen Mischung werden die Neutronen nahezu kontinuierlich bis in den Resonanzbereich des ²³⁸U abgebremst, wo sie mit hoher Wahrscheinlichkeit absorbiert werden, bevor sie den Bereich des hohen thermischen Spaltquerschnitts von

^{235}U erreichen können. Bei einer heterogenen Spaltstoff-Moderatoranordnung werden die in den Moderator gelangenden Neutronen häufiger durch wenige Kollisionen unter Umgehung des Resonanzabsorptionsbereichs auf thermische Energie abgebremst und zu neuer Spaltung des ^{235}U zurückgestreut. Besonders wichtig sind daher die niedrig angereicherten, regelmäßig angeordneten Spaltstoff-Moderator-Systeme, wie z. B. UO_2 -Stabgitter in Wasser (Brennelemente).

Ein weiterer, wichtiger Fall von Heterogenität ist bei Vorhandensein von Neutronengiften zu beachten. Da die Vergiftungswirkung eines Absorbers stark von seiner Oberfläche abhängt, ist die räumliche Verteilung des Neutronengiftes ein entscheidender Faktor. Heterogene Vergiftung (z. B. Borkarbidstäbe, Borstahlplatten, Borglasfüllungen) wirkt daher stets schwächer neutronenabsorbierend als die gleiche Absorbermenge in homogener Verteilung.

1.2.5 Die Vierfaktorenformel

Die Einflüsse auf den infiniten Multiplikationsfaktor k_∞ lassen sich durch die sogenannte Vierfaktorenformel darstellen:

- Von den durch Kernspaltung entstehenden Neutronen geht ein Teil während des Abbremsvorgangs durch Resonanzabsorption verloren. Die Wahrscheinlichkeit, dass ein Neutron diese Resonanzabsorption umgehen kann, wird als Resonanzentkommwahrscheinlichkeit p bezeichnet.
- Von den auf thermische Energie abgebremsten Neutronen wird nur ein Teil im Spaltstoff absorbiert, der Rest geht durch Absorption in anderen Kernen verloren. Die Wahrscheinlichkeit, dass ein thermisches Neutron im Spaltstoff absorbiert wird, heißt thermische Nutzung f .
- Nicht jedes im Spaltstoff absorbierte Neutron führt zu einer Kernspaltung. Während pro Kernspaltung im Mittel $\bar{\nu}$ neue Neutronen emittiert werden, sind es pro absorbiertem Neutron weniger. Die durchschnittlich freiwerdende Anzahl von Spaltneutronen pro absorbiertes Neutron wird als effektive Neutronenausbeute η bezeichnet.
- Auch für schnelle Neutronen besteht eine gewisse Wahrscheinlichkeit, Kernspaltungen auszulösen. Der Schnellspaltfaktor ε trägt diesem Effekt pauschal Rechnung, wobei stets gilt: $\varepsilon > 1,0$.

Der infinite Multiplikationsfaktor k_∞ lässt sich dann schreiben als:

$$k_\infty = \varepsilon \cdot p \cdot \eta \cdot f \quad (1.1)$$

wobei die einzelnen Faktoren gesondert berechnet werden können. Es sei hier jedoch anzumerken, dass die Berechnung der Multiplikationsfaktoren in der Praxis nicht nach Gl. (1.1), sondern über Neutronenbilanzierungen mittels Diffusions- bzw. Transporttheorie vorgenommen wird.

1.3 Der effektive Multiplikationsfaktor k_{eff}

Die bisherigen Überlegungen bezogen sich auf infinite Systeme. In der Praxis hat man es jedoch stets mit endlichen Systemen zu tun. Bei der Bilanzierung der Neutronen muss daher berücksichtigt werden, dass eine gewisse Anzahl Neutronen das System verlässt und nicht mehr zur Erhaltung der Kettenreaktion beiträgt. Durch dieses Ausströmen der Neutronen (auch Leckage genannt) wird der Multiplikationsfaktor des endlichen Systems effektiv kleiner sein als k_∞ . Bezeichnet man die Wahrscheinlichkeit, dass ein Neutron das System nicht verlässt, mit U (Verbleibwahrscheinlichkeit), so wird der effektive Multiplikationsfaktor k_{eff} zu

$$k_{\text{eff}} = k_\infty \cdot U = \varepsilon \cdot p \cdot \eta \cdot f \cdot U = \varepsilon \cdot p \cdot \eta \cdot f \cdot U_{th} \cdot U_S \quad (1.2)$$

Die Verbleibwahrscheinlichkeit U stellt das Produkt von U_{th} und U_S dar, den Verbleibwahrscheinlichkeiten für thermische und schnelle Neutronen. In der Literatur ist diese Darstellung auch als Sechsfaktorenformel bekannt.

Als kritisch wird ein endliches System dann bezeichnet, wenn $k_{\text{eff}} = 1,0$ ist. $k_{\text{eff}} < 1,0$ bedeutet, dass ein System unterkritisch ist, und $k_{\text{eff}} > 1,0$, dass ein System überkritisch ist. Vergleicht man zwei multiplizierende Systeme hinsichtlich ihrer effektiven Multiplikationsfaktoren miteinander, so bezeichnet man das System mit dem höheren k_{eff} -Wert als das reaktivere System.

1.3.1 Neutronenverluste durch Leckage

Die Wahrscheinlichkeit, dass Neutronen ein endliches System verlassen können, hängt stark von der geometrischen Form, den Dimensionen, den Reflexionseigenschaften der

Behälterwände, aber ebenso von der Entfernung zwischen dem Entstehungsort des Neutrons und der Systembegrenzung ab, sowie der Wahrscheinlichkeit, dass das Neutron innerhalb seiner Lebensdauer diese Entfernung überwindet.

Diese Einflüsse lassen sich nach ihren Ursachen in zwei Gruppen unterteilen. Die erste Gruppe hat rein geometrische Gründe, wie sie durch Gestalt und Größe des multiplizierenden Systems, z. B. der Spaltzone eines Reaktors, gegeben sind. Die zweite Gruppe hängt von den neutronenphysikalischen Eigenschaften des multiplizierenden Systems ab. Nur Neutronen, die nahe der Oberfläche entstehen, werden eine Chance haben die Grenze des Systems zu erreichen. Die Wahrscheinlichkeit, diese Entfernung zu überwinden hängt wiederum von der Geschwindigkeit, also von der Energie der Neutronen ab. Neutronen, die eine größere Entfernung als ihre durchschnittliche Wanderlänge zurücklegen müssen um das System zu verlassen, werden mit höherer Wahrscheinlichkeit dem System erhalten bleiben.

Dieser von Medium und Neutronenenergie abhängende Einfluss auf die Neutronenleckagerate $(1-U)$ wird durch die sog. Wanderfläche M^2 ausgedrückt, die ein Maß für den Abstand zwischen dem Entstehungsort eines Neutrons und seiner Absorption als thermisches Neutron darstellt. M^2 wird in cm^2 angegeben. Sie beträgt z. B. in Lösungen mit Moderationsverhältnis $H/U > 20$ etwa 30 cm^2 .

Der Einfluss der Geometrie eines Spaltstoffsystems auf die Leckage lässt sich pauschal durch die geometrische Flusswölbung B_g^2 (cm^{-2} , m^{-2}) beschreiben, die aus der Diffusionsgleichung als Eigenwert hergeleitet wird. Diese auch „Buckling“ genannte Größe ist für die verschiedenen geometrischen Formen und aktuellen Abmessungen berechenbar. In Tab. 1.3 sind die entsprechenden Formeln für einfache Geometrien dargestellt. Auch für komplizierte geometrische Körper kann die Flusswölbung angegeben werden, was häufig in Form von Kurven geschieht.

Mit Hilfe von B_g^2 können für ein multiplizierendes System einer bestimmten geometrischen Gestalt die Dimensionen eines Systems anderer geometrischer Gestalt mit gleicher Reaktivität berechnet werden, da verschiedene geometrische Systeme mit gleichem B_g^2 die gleiche Neutronenleckagerate aufweisen (Bucklingkonversion). Hierfür ist außerdem die Kenntnis einer von der Neutronenenergie, der Behältergeometrie und dem Reflektormaterial des Behälters abhängigen sogenannten linearen Extrapolationslänge λ

Tab. 1.3 Geometrische Flusswölbung B_g^2 für wichtige Geometrien (alle Maße in cm, B_g^2 in cm^{-2})

Geometrie	Geometrische Flusswölbung B_g^2	
Infinite Schicht	$\frac{\pi^2}{(a+2\lambda)^2}$	a Schichtdicke
Quader	$\frac{\pi^2}{(a+2\lambda)^2} + \frac{\pi^2}{(b+2\lambda)^2} + \frac{\pi^2}{(c+2\lambda)^2}$	a, b, c Seiten des Quaders
Infiniter Zylinder	$\left(\frac{2,4045}{r+\lambda}\right)^2$	r Radius
Endlicher Zylinder	$\left(\frac{2,4045}{r+\lambda}\right)^2 + \frac{\pi^2}{(h+2\lambda)^2}$	r Radius, h Höhe
Infiniter Halbzylinder	$\left(\frac{3,832}{r+\lambda}\right)^2$	r Halbzylinderradius
Kugel	$\frac{\pi^2}{(r+\lambda)^2}$	r Kugelradius
Halbkugel	$\left(\frac{4,49}{r+\lambda}\right)^2$	r Halbkugelradius

erforderlich. Diese lässt sich als eine fiktive Vergrößerung der Spaltzone veranschaulichen und gibt die Entfernung von der Grenze der Spaltzone bis zu dem Punkt an, bei der der Neutronenfluss verschwindet. λ wird aus einer Extrapolation des Neutronenflusses bestimmt. Als Anhaltswerte können $\lambda \approx 2,5$ cm für unreflektierte Systeme und $\lambda \approx 6,5$ cm für Systeme mit einem dicken Wasserreflektor gelten.

Das Produkt $M^2 B_g^2$ aus Wanderfläche und Flusswölbung gibt das Verhältnis von ausströmenden Neutronen (Leckage) zu den in der Spaltzone absorbierten Neutronen an. Der Bruchteil der durch Leckage verlorenen Neutronen ist für nicht zu kleine Spaltstoffsysteme (d. h. Dimensionen des Systems größer als einige Extrapolationslängen):

$$1 - U = \frac{\text{Leckage}}{\text{Absorption+Leckage}} = \frac{M^2 B_g^2}{1 + M^2 B_g^2} \quad (1.3)$$

Der Anteil der im System verbleibenden Neutronen ist dann:

$$U = \frac{\text{Absorption}}{\text{Absorption+Leckage}} = \frac{1}{1 + M^2 B_g^2} \quad (1.4)$$

Der effektive Multiplikationsfaktor k_{eff} kann auch folgendermaßen geschrieben werden:

$$k_{\text{eff}} = k_{\infty} \cdot U = \frac{k_{\infty}}{1 + M^2 B_g^2} \quad (1.5)$$

Im Falle eines gerade kritischen Systems ($k_{\text{eff}} = 1,0$) wird Gl. (1.5) zu:

$$B_g^2 = \frac{k_{\infty} - 1}{M^2} = \frac{\varepsilon p \eta f - 1}{M^2} \quad (1.6)$$

Der Ausdruck $(\varepsilon p \eta f - 1)/M^2$ enthält nur Materialgrößen und wird auch als materielle Flusswölbung B_m^2 bezeichnet. Bei einem kritischen System ist demnach:

$$B_g^2 = B_m^2 \quad (1.7)$$

Der effektive Multiplikationsfaktor k_{eff} kann dann auch ausgedrückt werden als:

$$k_{\text{eff}} = \frac{1 + M^2 B_m^2}{1 + M^2 B_g^2} \quad (1.8)$$

Auf diese Weise kann bei bekannten geometrischen Verhältnissen B_g^2 und bekannten Materialeigenschaften B_m^2 eines multiplizierenden Systems der effektive Multiplikationsfaktor des Systems berechnet werden, wobei die materielle Flusswölbung experimentell oder durch auf Experimente gegründete Berechnungen bestimmt werden kann. Ist B_m^2 positiv, so kann das Medium einen kritischen Zustand erreichen, bei negativem B_m^2 ist stets $k_{\infty} < 1,0$. $B_m^2 = 0$ bedeutet $k_{\infty} = 1,0$. Die geometrische Flusswölbung B_g^2 dagegen ist stets positiv.

Die Beziehungen (1.3) bis (1.8) stellen Näherungen dar und sind vor allem für rasche Abschätzungen geeignet.

Sind neutronenphysikalische Daten jeweils für schnelle und thermische Neutronen bekannt, kann der effektive Multiplikationsfaktor nach der Beziehung (1.9) genauer berechnet werden:

$$k_{\text{eff}} = \frac{k_{\infty} \cdot e^{-B_g^2 \tau}}{1 + L^2 \cdot B_g^2} \quad (1.9)$$

Dabei bezeichnet τ das sog. Fermialter der thermischen Neutronen. Das Fermialter thermischer Neutronen ist gleich einem Sechstel des mittleren Wegquadrats, das die Neutronen vom Entstehungsort zurückgelegt haben, bis sie thermische Energie erreicht haben. Das Diffusionslängenquadrat L^2 entspricht einem Sechstel des mittleren Wegquadrats zwischen Erscheinen eines thermalisierten Neutrons bis zu seinem Verschwinden durch Absorption. Der Zusammenhang zwischen L^2 , dem Diffusionskoeffizienten D_{th} für thermische Neutronen, und dem makroskopischen thermischen Absorptionsquerschnitt $\Sigma_{A,th}$ lautet:

$$L^2 = \frac{D_{th}}{\Sigma_{A,th}} \quad (1.10)$$

Für Systeme mit großen Dimensionen und somit kleinem B_g^2 gilt näherungsweise:

$$M^2 \approx \tau + L^2 \quad (1.11)$$

Die Verwendung der Beziehungen nach Gl. (1.5), (1.8) und (1.9) ist nur dann zulässig, wenn das System moderiert ist und die Dimensionen des Systems groß gegenüber der mittleren freien Weglänge der Neutronen sind. Bei Graphit-moderierten Systemen sind wegen der großen Werte für τ und L^2 k_{eff} -Abschätzungen nach Beziehung (1.9) vorzunehmen.

Gelegentlich benutzt man auch anstelle von k_{eff} die Reaktivität R :

$$R = \frac{k_{\text{eff}} - 1}{k_{\text{eff}}} = 1 - \frac{1}{k_{\text{eff}}} \quad (1.12)$$

Im Zustand der stationären Kritikalität ist also $R = 0$.

Eingehende und systematische Darstellungen der theoretischen Grundlagen der Reaktortechnik finden sich z. B. in [1.2]–[1.10].

1.3.2 Einflüsse auf die Leckage

Geometrische Einflüsse

Die Wahrscheinlichkeit des Ausströmens von Neutronen aus einem Behälter hängt von dem Verhältnis von Oberfläche zu Volumen ab. Je größer dieses Verhältnis wird, desto stärkere Leckageverluste treten auf. Daraus folgt, dass ein Spaltstoffsystem in Kugelform unter gleichen Bedingungen i. A. am reaktivsten ist. Ein Zylinder, dessen Durchmesser und Höhe nahezu gleich sind ($D = 1,08H$), ist reaktiver als alle Zylinder gleichen Volumens. Ein Würfel ist reaktiver als alle volumengleichen Quader. Zur Verminderung der Reaktivität eines Systems wird man also lange, dünne Zylinder und flache Platten geringer Schichtdicke wählen. Diese geometrischen Körper weisen eine besonders große geometrische Flusswölbung auf.

Dichte des Spaltmaterials

Je dichter ein bestimmtes Medium ist, desto geringer wird die freie Weglänge der Neutronen und damit die Wahrscheinlichkeit, die Systemgrenze zu erreichen. Für ein System konstanten Volumens und vorgegebener Zusammensetzung vermindert sich k_{eff} , wenn sich die Dichte des Systems vermindert. Die Verminderung der Dichte eines ganzen Systems um einen Faktor d führt zu einer Vergrößerung der kritischen Abmessungen des Systems (Kugelradius, Zylinderdurchmesser, Schichtdicke) um den Faktor d , des kritischen Volumens um den Faktor d^3 , und der kritischen Masse um d^2 [1.11].

Bei einer Dichteänderung muss in dieser Betrachtung natürlich das Moderationsverhältnis sowie das Dichteverhältnis von Spaltzone und Reflektor gewahrt bleiben. Wird nur die Dichte der Spaltzone verändert, so wächst die kritische Masse im Verhältnis der ursprünglichen Dichte ρ_0 zur verminderten Dichte mit einem etwa bei 1,5 liegenden, von dem System und seinem Moderationsgrad abhängigen Exponenten, dem sogenannten Dichteexponenten m der Spaltzone:

$$M(\rho) = M(\rho_0) \cdot \left(\frac{\rho_0}{\rho}\right)^m \quad (1.13)$$

Durch Bestimmung der kritischen Masse bei zwei Dichten ρ kann der Dichteexponent m ermittelt werden. Verändert sich auch die Dichte des Reflektors, so gilt:

$$M(\rho) = M(\rho_0) \cdot \left(\frac{\rho_0}{\rho}\right)_S^m \cdot \left(\frac{\rho_0}{\rho}\right)_R^n \quad (1.14)$$

wobei $m + n = 2$ ist [1.12]. Die Indices bedeuten S: Spaltzone, R: Reflektor.

Die aufgrund ihrer physikalischen Eigenschaften maximal erreichbare Dichte einer chemischen Verbindung bezeichnet man als ihre theoretische Dichte.

Temperatur

Die Temperatur eines multiplizierenden Mediums beeinflusst auf verschiedene Weise den Multiplikationsfaktor k_{eff} . Einmal wird bei steigender Temperatur die Dichte des Systems vermindert, also die Leckagerate erhöht. Zum anderen werden die Diffusions- und Absorptionseigenschaften des Mediums verändert. Drittens erhöht sich durch Verbreiterung der Resonanzabsorptionslinien (Dopplereffekt) die Resonanzabsorption. Bei ther-

mischen Systemen hat daher eine Temperaturerhöhung i. A. einen Reaktivitätsrückgang zur Folge.

Reflektoren

Wird eine Spaltzone mit einem Medium umgeben, das einen merklichen Anteil an Neutronen zurückstreuen kann, so wirkt dieses Medium als Reflektor. Durch einen Reflektor kann die kritische Masse einer Spaltzone erheblich verringert werden. Einzelheiten zur Reaktivitätswirkung von Reflektoren sind in Kap. 5.2 vertieft dargestellt.

Neutronenwechselwirkung

Auch die in Kap. 6 behandelte Neutronenwechselwirkung stellt in gewissem Sinne eine Verringerung der Leckage aus einem multiplizierenden System dar, wenn man die Gesamtanordnung aller Spaltstoffpositionen betrachtet. Besonders deutlich wird dieser Effekt auch an einem isolierten Spaltstoffsystem, wenn es konkave Flächen (z. B. Ringzylinder, U-förmig gebogene Scheibenbehälter, u.a.) aufweist. Die dann auftretende sogenannte Selbstwechselwirkung an diesen konkaven Flächen muss bei der Kritikalitätsanalyse berücksichtigt werden.

1.4 Unterkritische Multiplikation einer externen Neutronenquelle

In der Praxis hat die unterkritische Multiplikation von Neutronen aus einer externen Quelle durch ein multiplizierendes Medium eine wichtige Bedeutung. So wird z. B. beim Anfahren eines modernen Leichtwasserreaktors eine zusätzliche Neutronenquelle eingebracht, um den unterkritischen Neutronenpegel zu erhöhen und so die Regelbarkeit des Reaktors zu verbessern [1.22]. Die Grundlagen der unterkritischen Neutronenmultiplikation spielen auch bei kritischen wie unterkritischen Experimenten zur messtechnischen Bestimmung von kritischen Parametern eine entscheidende Rolle [1.20, 1.21], siehe auch Kap. 3. Aus diesen Gründen soll an dieser Stelle näher auf die zu Grunde liegenden Effekte eingegangen werden.

Im Generationenmodell der Neutronenmultiplikation gilt für die Anzahl n an pro Generation erzeugten Neutronen im Gleichgewicht die Beziehung $n_i = k_{\text{eff}} \cdot n_{i-1}$, über die der

Neutronenmultiplikationsfaktor definiert ist, vgl. Kap. 1.2. Werden durch eine konstante Primärquelle der Stärke Q , gegeben in Neutronenzahl pro Sekunde, Neutronen in das unterkritische multiplizierende Medium eingespeist, so errechnet sich die Anzahl erzeugter Neutronen n , nun ebenfalls in Neutronen pro Sekunde, zu

$$n = Q \cdot (1 + k_{\text{eff}} + k_{\text{eff}}^2 + k_{\text{eff}}^3 + \dots) = \frac{Q}{1 - k_{\text{eff}}} \quad (\text{für } k_{\text{eff}} < 1) \quad (1.15)$$

Streng genommen bezeichnet n die Anzahl an pro Sekunde erzeugten schnellen Spaltneutronen plus Quellneutronen, die von dem System ggf. noch thermalisiert werden, d. h. das Neutronenspektrum kann durchaus noch Veränderungen unterworfen sein.

Die unterkritische Multiplikation M lässt sich daraus als das Verhältnis von totalem Neutronenfluss (Quelle und hervorgerufene Spaltungsneutronen) zum Neutronenfluss der Quelle allein definieren zu:

$$M = \frac{n}{Q} = \frac{Q \cdot (1 + k_{\text{eff}} + k_{\text{eff}}^2 + k_{\text{eff}}^3 + \dots)}{Q} = \frac{1}{1 - k_{\text{eff}}} \quad (\text{für } k_{\text{eff}} < 1) \quad (1.16)$$

Oft verwendet wird auch reziproke Multiplikation $1/M$:

$$1/M = 1 - k_{\text{eff}} \quad (\text{für } k_{\text{eff}} < 1) \quad (1.17)$$

Aus Gl. (1.15) folgt also, dass bei einer Erhöhung der Quellstärke Q eine proportionale Erhöhung der Neutronenantwort n erfolgt. Die externe Quelle nimmt jedoch keinen Einfluss auf die intrinsischen Eigenschaften des multiplizierenden Mediums. Mit anderen Worten: Der Wert von k_{eff} eines multiplizierenden Mediums wird durch die externe Quelle nicht verändert, und damit auch nicht dessen Reaktivität R [1.22]. Wohl aber ändert sich der Gleichgewichtspegel der Neutronenzahl, weshalb die unterkritische Neutronenmultiplikation z. B. bei der Quelltermbestimmung für Dosisleistungsberechnungen unbedingt zu berücksichtigen ist.

M kann experimentell durch zweimalige Messung des Neutronenflusses, einmal des Neutronenflusses der Quelle allein, und einmal des Neutronenflusses der Quelle mit dem multiplizierenden Medium, bestimmt werden; das Verhältnis der beiden Messwerte liefert M . Es ist jedoch nicht ohne weiteres möglich, diese Methode allgemein einzusetzen: Insbesondere in thermischen Systemen sind die beobachtete Neutronenzahl n und damit

letztlich auch die Multiplikation M sehr empfindlich von dem Spektrum und der Position der Neutronenquelle, von der Position und Empfindlichkeit der Detektoren, sowie von der Geometrie der Spaltstoffanordnung [2.5] abhängig. Für die gemessene Neutronenzählrate $n'(\vec{r})$ am Detektorort \vec{r} gilt folglich eine Beziehung der Form:

$$n'(\vec{r}) = \varepsilon(\phi(\vec{r}), \vec{r}) \cdot n \quad (1.18)$$

Dabei bezeichnet $\phi(\vec{r})$ das Neutronenspektrum am Detektorort \vec{r} , und die Detektorantwortfunktion $\varepsilon(\phi(\vec{r}), \vec{r})$ [1.21] repräsentiert die genannten Abhängigkeiten implizit und explizit. In einem numerischen Rechenmodell, in dem diese Abhängigkeiten bekannt sind, kann $\varepsilon \equiv 1$ gesetzt werden, da hier alle Neutronen rechnerisch erfassbar sind. Gl. (1.15) und Gl. (1.18) können zusammen geschrieben werden als:

$$n' = \frac{\varepsilon \cdot Q}{1 - k_{\text{eff}}} = \varepsilon \cdot \left(Q + Q \cdot \frac{k_{\text{eff}}}{1 - k_{\text{eff}}} \right) \quad (\text{für } k_{\text{eff}} < 1) \quad (1.19)$$

Ist die Quelle nicht homogen im multiplizierenden Medium verteilt, und besitzt sie ein spezifisches Spektrum (was in der Praxis immer der Fall ist), so wird darüber hinaus auch die Quellstärke Q zu einer Funktion $Q = Q(\phi(\vec{r}), \vec{r})$.

In Gl. (1.19) erkennt man am rechten Term, dass die Neutronenzählrate des Detektors bei stark unterkritischen Systemen, d. h. $k_{\text{eff}} \ll 1$, wesentlich von der Quellstärke Q dominiert wird, und der Multiplikationsterm nicht ausreichend verstärkt wird. Dies bedeutet u.a., dass es umso schwieriger ist, k_{eff} mit der Methode der Quellenverstärkung zu bestimmen, je kleiner dessen Wert ist (siehe auch Kap. 3). Zudem folgt aus Gl. (1.18), dass in einem realen System, anders als in Gl. (1.15) angedeutet, nicht zwingend gilt, dass $1/M$ und k_{eff} zueinander direkt proportional sind. Mit Gl. (1.18) wird die effektive reziproke Multiplikation $1/M'$ orts- und flussabhängig beschrieben durch

$$1/M' = \frac{Q}{n'} = \frac{1 - k_{\text{eff}}}{\varepsilon(\phi(\vec{r}), \vec{r})} \quad (\text{für } k_{\text{eff}} < 1) \quad (1.20)$$

In der amerikanischen Literatur wird aus $1/M'$ gelegentlich auch ein „subkritischer effektiver Multiplikationsfaktor“ k bzw. k_S abgeleitet, wie z. B. in [1.20] beschrieben, der nicht mit k_{eff} verwechselt werden darf, da er eine unterschiedliche physikalische Bedeutung besitzt.

Mathematisch ist k_{eff} auch der Eigenwert derjenigen Lösung der Neutronentransportgleichung, welche die Fundamentalmode beschreibt; nur diese Mode kann zu einer selbsterhaltenden Kettenreaktion führen, wenn k_{eff} den Wert 1 erreicht oder übersteigt. Alle höheren Moden werden durch einen Dämpfungsterm nach und nach ausgelöscht. Durch die externe Quelle werden aber auch die höheren Moden ständig neu bevölkert, welche dadurch einen Beitrag zur unterkritischen Multiplikation liefern, nicht aber zum effektiven Multiplikationsfaktor k_{eff} des multiplizierenden Mediums. Die Reaktivität $R = \frac{k_{\text{eff}} - 1}{k_{\text{eff}}}$ eines Systems (siehe Gl. (1.12)) ist aber einzig durch k_{eff} bestimmt, wird also auch in diesem Bild durch die externe Quelle nicht beeinflusst. Auch ist dies eine alternative Formulierung der Tatsache, dass $1/M$ und k_{eff} in einem extern angetriebenen unterkritischen System zueinander nicht direkt proportional sein müssen.

Bei Annäherung an den kritischen Zustand $k_{\text{eff}} = 1,0$ gehen M wie M' nach unendlichen Werten. Es ist daher messtechnisch sinnvoll, die Abhängigkeit des Kritikalitätsparameters vom inversen Wert $1/M'$ zu verfolgen. Der kritische Wert des Parameters ergibt sich durch Extrapolation von $1/M'$ auf den Wert Null (Erreichen des kritischen Zustands, unendliche Multiplikation: selbsterhaltende Kettenreaktion). Der Wert des kritischen Parameters wird so durch allmähliche Annäherung an den kritischen Zustand aus unterkritischen Messdaten gewonnen.

Wie nahe sich das Experiment dem kritischen Zustand für eine genaue Bestimmung des kritischen Parameterwerts nähern muss, bestimmt der genaue (zumeist nichtlineare) Zusammenhang zwischen $1/M'$ und k_{eff} . Er hängt unter anderem von der räumlichen und spektralen Verteilung des Neutronenflusses in der unterkritischen Anordnung ab, insbesondere also $Q(\phi(\vec{r}), \vec{r})$, $\varepsilon(\phi(\vec{r}), \vec{r})$. Für unterschiedliche Messorte ergeben sich damit unterschiedliche Kurvenverläufe. Abb. 1.3 zeigt beispielhaft die Verläufe für drei verschiedene Detektorpositionen ein und desselben Detektors.

Von großer Bedeutung ist der Kurvenverlauf auch für die Wahl der Schrittgröße der Veränderung des Kritikalitätsparameters zur Annäherung an den kritischen Zustand. Abb. 1.3

ist zu entnehmen, dass ein konvexer Verlauf gemäß Kurve (C), auf überkritische Werte extrapoliert, gefährlich für die Wahl des nächsten Schrittes sein kann. Die Extrapolation muss hier daher besonders sorgfältig erfolgen. Ein konkaver Verlauf nach (B) dagegen ist ungefährlich. Ideal ist ein linearer Verlauf nach Kurve (A). Im kritischen Zustand laufen die Kurven immer beim kritischen Parameterwert zusammen.

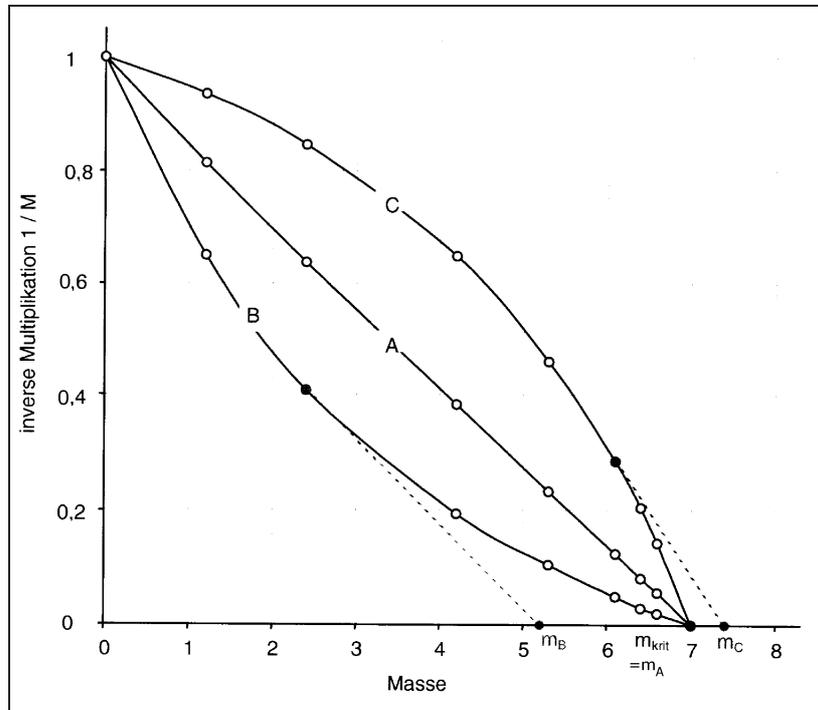


Abb. 1.3 Bestimmung der kritischen Masse aus der experimentell ermittelten inversen Multiplikation $1/M$ für drei Detektorpositionen

1.5 Die wichtigsten Kritikalitätsparameter

In Kap. 1.3 wurde der effektive Multiplikationsfaktor k_{eff} als wichtigstes Maß für die Reaktivität eines Spaltstoffsystems eingeführt. Für die Anwendung ist es jedoch häufig praktischer, weitere Kritikalitätsparameter zu benutzen. Die wichtigsten sind

- die kritische Masse (Kugelmasse),
- das kritische Volumen (Kugelvolumen),
- der kritische Zylinderdurchmesser eines infinit langen Zylinders,
- die kritische Schichtdicke einer infinit ausgedehnten Schicht,
- die kritische Konzentration an Spaltstoff, sowie

- der kritische Anreicherungsgrad.

Kritischer Kugelradius, kritischer Zylinderdurchmesser und kritische Schichtdicke werden als kritische Dimensionen bezeichnet. Die Teile 2 und 3 des vorliegenden Handbuches enthalten diese Kritikalitätsparameter in Abhängigkeit von Spaltmaterial, chemischer Verbindung, Spaltstoffkonzentration bzw. Moderationsgrad und Reflektor. Durch Multiplikation mit Sicherheitsfaktoren (siehe Kap. 2.2) können daraus zulässige Werte abgeleitet werden.

Minimalwerte der Kritikalitätsparameter

Die Kritikalitätsparameter einer Spaltstoffanordnung zeigen eine Abhängigkeit von Spaltstoffkonzentrationen und Moderationsgrad dergestalt, dass bei bestimmten Moderationsgraden ein Minimum auftritt. Dies ist beispielhaft in Abb. 1.1 dargestellt.

Der zu einem Minimum des jeweiligen Kritikalitätsparameters gehörende Moderationsgrad wird als optimaler Moderationsgrad bezeichnet. Da die einzelnen Kritikalitätsparameter bei unterschiedlichen Moderationsgraden ihren Minimalwert erreichen, ist die Angabe des Kritikalitätsparameters zusätzlich zum optimalen Moderationsgrad nötig.

Bei dem Maximalwert, den k_{∞} erreicht, sollte nicht von optimaler Moderation gesprochen werden, da k_{∞} seinen Maximalwert häufig für völlig unmoderierte Metalle annimmt.

Enthält ein System mehr Moderatorsubstanz als zum Erreichen des optimalen Moderationsgrades nötig ist, so bezeichnet man es als übermoderiert, anderenfalls als untermoderiert. Abb. 1.4 gibt einen typischen Verlauf der kritischen Masse mit dem Moderationsgrad wieder.

Die Minimalwerte der Kritikalitätsparameter spielen als kleinste kritische Parameter eine wichtige Rolle bei der Auslegung von Anlagen oder Komponenten, da bei kleineren Massen, Volumina, Dimensionen, Konzentrationen oder Anreicherungsgraden unter den gleichen Reflektorbedingungen kein kritischer Zustand eintreten kann.

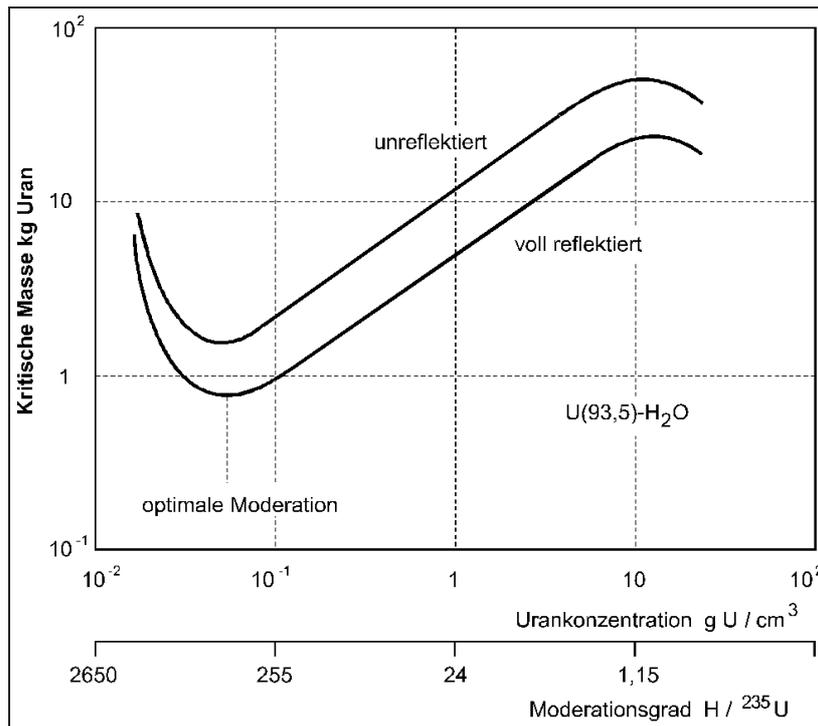


Abb. 1.4 Abhängigkeit der kritischen Masse vom Moderationsgrad bzw. von der Urankonzentration für eine Anreicherung von 93,5 %

1.6 Literatur zu Kapitel 1

- [1.1] DIN 25401, Teile 1 – 9, Begriffe, April 2002.
- [1.2] ENDF/B-VII.1 Nuclear Data Library. Aus: JANIS 4.0 – A Java-based Nuclear Data Display Program, NEA Data Bank, July 2014.
- [1.3] S. Glasstone, M. Edlund: The Elements of Nuclear Reactor Theory. D. Van Nostand Co., New York, 1952.
- [1.4] G. I. Bell, S. Glasstone: Nuclear Reactor Theory, D. Van Nostrand Co., New York, 1970.
- [1.5] R. Schulten, W. Güth: Reaktorphysik I, II. BI-Hochschultaschenbücher, Bibliografisches Institut Mannheim, 1960/62.
- [1.6] D. Schmidt: Reaktorphysik, Bd. 1, Grundlagen, G. Braun Karlsruhe, 1976.
- [1.7] D. Emendörfer, K. H. Höcker: Theorie der Kernreaktoren. BI-Wissenschaftsverlag, 1982.
- [1.8] A. Ziegler: Lehrbuch der Reaktortechnik, Bd. 1, Reaktortheorie. Springer-Verlag Berlin, 1983.
- [1.9] J. R. Lamarsh: Introduction to Nuclear Reactor Theory. Addison-Wesley, Reading, Mass., 1975.
- [1.10] P. F. Zweifel: Reactor Physics, McGraw-Hill, New York, 1973.
- [1.11] D. C. Hunt: A Review of Critical Safety Models Used in Evaluating Arrays of Fissile Materials; Nucl. Technology, 30, p. 138, 1976.
- [1.12] W. Weber: Untersuchungen zur Kritikalität von Spaltstoffmischungen und der Sicherheit einer Summenformel, Hochschulschrift (Dissertation), RWTH Aachen, 2001.

2 Nukleare Sicherheit

Bisher war stets von kritischen Spaltstoffsystemen die Rede. Kritikalität ist jedoch nur in den dafür ausgelegten Kernreaktoren oder Experimentiereinrichtungen erwünscht. In allen übrigen Anlagen der nuklearen Ver- und Entsorgung muss dagegen Kritikalität wegen der hohen Energiefreisetzung und den damit verbundenen Gefahren auf jeden Fall vermieden werden. Das betrifft also die Herstellung, die Be- und Verarbeitung, die Lagerung, den Transport, die Wiederaufarbeitung und die Entsorgung von Kernbrennstoff, sowie den Umgang mit spaltbarem Material in Forschungslaboren und Werkstätten.

In der deutschen Strahlenschutzverordnung (StrlSchV) [2.1] heisst es dazu ist in Abschnitt 8 (Sonstige Anforderungen) § 65 „Lagerung und Sicherung radioaktiver Stoffe“ Abs. (2): *„Kernbrennstoffe müssen so gelagert werden, dass während der Lagerung kein kritischer Zustand entstehen kann.“* In § 33 „Pflichten des Strahlenschutzverantwortlichen und des Strahlenschutzbeauftragten“ Abs. (1) ist die entsprechende Verantwortlichkeit definiert: *„Der Strahlenschutzverantwortliche hat [...] dafür zu sorgen, dass [...] 3. die erforderlichen Maßnahmen gegen ein unbeabsichtigtes Kritischwerden von Kernbrennstoffen getroffen werden.“*

Nähere Hinweise, mit welchen Maßnahmen und Konzepten diese Anforderung in der Praxis umgesetzt werden soll, sind in der Strahlenschutzverordnung nicht spezifiziert. Es existieren aber zahlreiche Regeln und Normen zur technischen und administrativen Umsetzung, siehe hierzu auch Kap. 2.3.

2.1 Sicherheitskonzepte

Bei der Anwendung und Durchführung entsprechender Sicherheitskonzepte werden bestimmte Kritikalitätsparameter unter Berücksichtigung eines Sicherheitsfaktors (Einzelheiten dazu siehe Kap. 2.2) als Grenzwerte zur Gewährleistung der nuklearen Sicherheit herangezogen. Die Einhaltung dieser Grenzwerte lässt sich entweder aus der Art des Spaltstoffs selbst (inhärente Sicherheit durch Bauweise und Konstruktion der Behälter; konstruktive Sicherheit) oder durch Kontrolle der entscheidenden Parameter (administrative Sicherheit) bzw. durch eine Kombination von Sicherheitskonzepten erreichen. Im Folgenden werden die wichtigsten Sicherheitskonzepte charakterisiert.

2.1.1 Geometrische Sicherheit

Sind die Dimensionen aller Spaltstoff enthaltenden Apparate so klein, dass sie höchstens die maximal zulässigen, sicheren Dimensionen erreichen, so nennt man die Einheiten geometrisch sicher. Die begrenzenden Werte sind das sichere Volumen, der sichere Zylinderdurchmesser eines infinit langen Zylinders und die sichere Schichtdicke einer infinit ausgedehnten Schicht. Die Sicherheitsfaktoren werden problemabhängig gewählt. Darauf wird in Kap.2.2 eingegangen. Liegen die Dimensionen eines Behälters zwar unter den kritischen Werten, ohne jedoch den üblichen Sicherheitsfaktor zu erfüllen, so bezeichnet man den Behälter als unterkritisch oder bedingt sicher.

Dem Konzept der geometrischen Sicherheit sollte wegen seiner Klarheit und geringen Störanfälligkeit soweit wie möglich Rechnung getragen werden.

2.1.2 Sicherheit durch Massenbeschränkung

Kann die Masse des Spaltstoffs so begrenzt werden, dass sie unter Berücksichtigung des entsprechenden Sicherheitsfaktors höchstens die maximal zulässige Masse (sichere Masse, Kap. 2.2.1) erreicht, so spricht man von Sicherheit durch Massenbeschränkung. Dabei wird in der Regel eine versehentliche Doppelbeschickung mit Spaltstoff berücksichtigt, so dass die sichere Masse nur weniger als die Hälfte der kritischen Masse betragen darf (Prinzip der Massenverdopplung).

2.1.3 Sicherheit durch Konzentrationsbeschränkung

Auch durch Beschränkung der Spaltstoffkonzentration kann die nukleare Sicherheit gewährleistet werden. Allerdings sollte dieses Sicherheitskonzept wegen seiner Anfälligkeit bei Störfällen (Ausfällung, Konzentrationsgefälle, Auskristallisation) nur in Verbindung mit anderen Sicherheitskonzepten verwendet werden. Ein besonderes Augenmerk muss außerdem auf die Dichterelation gerichtet werden, die angibt, welche Lösungsdichte sich bei einer bestimmten Spaltstoffeinwaage ergibt.

2.1.4 Sicherheit durch Beschränkung des Anreicherungsgrads

In vielen Fällen ist eine wirksame Kritikalitätskontrolle durch Festlegung eines bestimmten, maximalen Anreicherungsgrads möglich. Auf der Beschränkung des Anreicherungsgrads beruhen oft andere Sicherheitskonzepte, z. B. die geometrische Sicherheit.

2.1.5 Sicherheit durch Vorliegen des Spaltmaterials in einer bestimmten chemischen Verbindung

Die Reaktivität von Spaltstoffen in chemischen Verbindungen hängt von der theoretischen Dichte und der Zusammensetzung der Verbindungen ab. Häufig sind in diese Verbindungen milde Neutronenabsorber (z. B. Chlor, Stickstoff, u.a.) eingebaut. Die Sicherstellung einer bestimmten chemischen Verbindung kann daher zur Gewährleistung der nuklearen Sicherheit dienen. Es ist jedoch die Störanfälligkeit dieses Sicherheitskonzepts bei chemischen Fehloperationen in Prozessanlagen zu beachten.

2.1.6 Sicherheit durch Kontrolle des Moderationsgrads

Bei Über- oder Untermoderation kann häufig kein kritischer Zustand erreicht werden (z. B. unmoderiertes U-Metall bzw. trockenes UO_2 -Pulver unter 5 % Anreicherungsgrad). Durch Bestimmung und Festlegung des maximal auftretenden Moderationsgrads und seiner Überwachung lässt sich eine wirksame Kritikalitätskontrolle gewährleisten. Bei der Ermittlung des maximalen Moderationsgrads müssen alle vorhandenen moderierenden Faktoren, z. B. die Luftfeuchtigkeit und die Moderation durch den Aufenthalt von Personen, berücksichtigt werden. Außerdem ist eine sorgfältige Störfallanalyse notwendig. Dieses Sicherheitskonzept kann z. B. bei der Lagerung von trockenen Spaltstoffen angewandt werden. Eine einzelne Lagereinheit sollte jedoch auch für ungünstigste Moderationsbedingungen unterkritisch sein.

2.1.7 Sicherheit durch Neutronenabsorber

Ein weiteres Konzept zur Kritikalitätskontrolle ist die Anwendung von Neutronenabsorbern als heterogene oder homogene Vergiftung (siehe auch Kap. 1.2.4 und 5.1.3). Während heterogene, fest eingebaute Absorber (Cadmiumbleche, Borkarbidstäbe) relativ unempfindlich gegenüber Störungen sind, gilt dies für feste Absorber in loser Schüttung nur

in eingeschränktem Maße [2.2]. Homogene Vergiftung erfordert wegen der schwierigen Gewährleistung der richtigen Dosierung und einer gleichmäßigen Verteilung des Neutronenabsorbers im multiplizierenden Medium erheblichen Überwachungsaufwand. Sowohl homogene wie heterogene Vergiftung sollten möglichst in Verbindung mit einem weiteren Sicherheitskonzept angewandt werden. Insbesondere ist zu berücksichtigen, dass nur thermische Systeme mit Neutronenabsorbern unterkritisch gehalten werden können. Eine regelmäßige Überwachung der Präsenz und der Wirksamkeit der Neutronenabsorber ist unbedingt erforderlich.

2.1.8 Sicherheit durch Berücksichtigung des Abbrands

Der Abbrand ist ein Maß für den durch Kernspaltung im Reaktor verbrauchten Anteil an Spaltstoff eines Brennelements. Seine Größe wird gewöhnlich durch die Anzahl Megawatt-Tage (MWd) erzeugter Wärmeenergie pro Tonne Schwermetall (tSM) ausgedrückt. Alternativ wird zur Definition des Abbrands auch die Anzahl von Spaltungen pro cm^3 Brennstoff oder der prozentuale Anteil der verbrauchten Spaltkerne % FIMA, (*“fissions per initial metal atom”*) verwendet. Gelegentlich ist auch die Einheit % FIFA, (*“fissions per initial fissile atom”*) in Gebrauch, wobei hier nur auf die thermisch spaltbaren Nuklide, also z. B. auf ^{235}U , aber im Gegensatz zu % FIMA nicht auf ^{238}U Bezug genommen wird. Bei modernen thermischen Leistungsreaktoren werden derzeit mittlere Abbrände von über 50 000 MWd/tSM bzw. 50 GWd/tSM ($\approx 5 - 6\%$ FIMA) erreicht.

Wenn frischer Leichtwasserreaktor-Brennstoff in den Kern eingesetzt wird, liegt der Spaltstoffgehalt je nach Brennelementtyp zwischen 3 und 5 % ^{235}U . Der Rest ist im Wesentlichen thermisch nicht spaltbares ^{238}U . Im Laufe des Reaktorbetriebs nimmt infolge der Spaltung der ^{235}U -Anteil ab, während durch Neutroneneinfang die Aktinoiden ^{239}Pu , ^{240}Pu , ^{241}Pu , ^{241}Am usw. aufgebaut werden. Gleichzeitig findet eine Anhäufung von Spaltprodukten statt. Selbst wenn von der neutronenabsorbierenden Wirkung dieser Spaltprodukte abgesehen wird, ergibt sich abbrandbedingt ein wesentlicher Reaktivitätsverlust, da der Spaltstoffanteil abgebrannter Brennelemente in der Praxis nur noch ca. 1 % ^{235}U und ca. 0,6 % ^{239}Pu beträgt.

Früher wurden noch keine Abbrandspezifikationen als Kritikalitätskontrollparameter berücksichtigt. Dies besagt, dass bei der kritikalitätssicheren Auslegung von Komponenten, z. B. für den Transport oder die Lagerung von abgebrannten Brennelementen, von

der Reaktivität von frischem, d. h. unbestrahltem Brennstoff, ausgegangen wurde (sog. *“fresh fuel assumption”*). Diese Annahme ist sehr konservativ; sie deckt dafür z. B. den Fall einer Verwechslung von bestrahlten mit frischen Brennelementen ab.

Seit einigen Jahren gibt es in verschiedenen Ländern, z. B. in Deutschland, den USA oder Frankreich, Bestrebungen, zumindest einen Teil des abbrandbedingten Reaktivitätsverlusts, und zwar v. a. jenen der von den Aktinoiden herrührt, in die Kritikalitätsanalysen einzubeziehen (auch bekannt als *“burn-up credit”*). Dies hat verschiedene Gründe: Einerseits bewirkt der Trend zu höheren Abbränden im Reaktor, dass frische Brennelemente mit höherem Spaltstoffgehalt hergestellt werden. Wird nun in den Kritikalitätsanalysen weiterhin der frische Brennstoff zugrunde gelegt, so kann dies in der Praxis zu Einschränkungen führen, da der geforderte Sicherheitsnachweis nun für einen höheren „theoretischen“ Spaltstoffgehalt zu erbringen ist. Sonst müssten unter Umständen Brennelementkörbe für Nasslagerbecken oder Transportbehälter neu ausgelegt oder die Anzahl der Brennelemente pro Behälter reduziert werden. Andererseits ermöglichen Fortschritte in der rechnerischen und messtechnischen Erfassung von Abbrandzuständen, dass bestimmte abbrandspezifische Randbedingungen in den Analysen zur Kritikalitätssicherheit als reaktivitätsmindernd berücksichtigt werden können, ohne dadurch den bisherigen Sicherheitsabstand zu kompromittieren.

Letztlich erfordert die Einbeziehung eines (anreicherungsabhängigen) Mindestabbrand-Grenzwerts die Anwendung qualifizierter Rechenverfahren bei Inventarbestimmung und Kritikalitätsrechnung sowie einer zuverlässigen messtechnischen Abbrandkontrolle unter Einhaltung des Sicherheitsprinzips bei Störfällen [2.4], [2.5].

In Deutschland ist die Berücksichtigung des Abbrands von bestrahltem Leichtwasserreaktor-Kernbrennstoff bei der Nasslagerung in Brennelement-Lagerbecken in der kern-technischen Regel KTA 3602 bzw. der Industrienorm DIN 25471 beschrieben. Für die Abbrandberücksichtigung bei Transport und Lagerung von bestrahltem Brennelementen in trockenen Behältern ist die Norm DIN 25712 zuständig. Die Berücksichtigung des Abbrands bei der Endlagerung von ausgedienten Kernbrennstoffen schließlich ist in der Norm DIN 25472 geregelt. In letzterer Norm spielen aufgrund der langen zu betrachtenden Zeiträume bis über 1 Mio. Jahre auch probabilistische Überlegungen eine wichtige Rolle. Maßnahmen zur Qualifizierung und Validierung von Rechenverfahren zur Inventarbestimmung und zur Kritikalität sind in der Norm DIN 25478 beschrieben.

2.1.9 Übergänge von einem Sicherheitskonzept auf ein anderes

Wenn ein durchgehendes Sicherheitskonzept für eine Anlage nicht möglich ist, muss auf die Verknüpfungspunkte der unterschiedlichen Sicherheitskonzepte besonderes Augenmerk gerichtet werden. Das betrifft vor allem die Schnittstellen, an denen das Konzept sicherer Geometrie verlassen wird, also bei Übergängen zu Apparaten und Behältern in nicht sicherer Geometrie. Meist sind an diesen Grenzstellen Analysen des Spaltstoffgehalts oder Bestimmungen des Moderationsgrads erforderlich (siehe auch Kap. 2.1.11 zur Beachtung des Sicherheitsprinzips bei Störfällen).

2.1.10 Allgemeine Sicherheitsprinzipien

Wenn irgend möglich, sollte stets von den Minimalwerten der Kritikalitätsparameter ausgegangen werden. Außerdem sollte bei der Auslegung so weit wie möglich das Konzept der geometrischen Sicherheit eingesetzt werden, wobei für die Einzelbehälter volle Wasserreflexion oder, falls nötig, reaktivere Reflektoren angenommen werden sollten.

Bei der Anwendung des Konzepts der Massenbeschränkung ist i. A. die Einrichtung von Sicherheitsbereichen nötig. Transportwege für Spaltstoff sind bei der Einrichtung von Sicherheitsbereichen zu berücksichtigen.

Bei Vorliegen von mehr als einer (festen und/oder mobilen) Spaltstoffposition ist die Neutronenwechselwirkung zu berücksichtigen. Die Kriterien für ihre Beurteilung und die wichtigsten Berechnungsmethoden werden in Kap. 6 beschrieben.

2.1.11 Sicherheitsprinzip bei Störfällen

Um die Kritikalitätssicherheit auch bei Störfällen zu gewährleisten, beinhalten die Sicherheitskonzepte in der Regel das Sicherheitsprinzip bei Störfällen nach DIN 25403 [2.6] (*“Double Contingency Principle”* [2.7], zu deutsch etwa: Prinzip des zweifachen Eventualfalls, Doppelereignisprinzip). Danach ist sicherzustellen, dass mindestens zwei voneinander unabhängige, gleichzeitig wirkende, im bestimmungsgemäßen Betrieb nicht zu erwartende Ereignisabläufe eintreten müssen, bevor Kritikalität erreicht werden kann [2.6]. Die entsprechende Formulierung des amerikanischen Standards [2.7], die in [2.8] definiert worden ist, schreibt vor: *“Process designs should, in general, incorporate sufficient*

factors of safety to require at least two unlikely, independent, and concurrent changes in process conditions before a criticality accident is possible.“ Damit ist im Wesentlichen dasselbe ausgesagt wie in der deutschen Norm [2.6]. Diese Formulierung entspricht dabei weitgehend derjenigen des internationalen Standards [2.5] und ist so in das amerikanische Handbuch zur Kritikalitätssicherheit [6.28] übernommen worden.

Bei richtiger Anwendung des Sicherheitsprinzips ist gewährleistet, dass das Auftreten eines einzelnen Fehlers oder der Ausfall einer einzelnen Kontrolleinrichtung nicht zur Möglichkeit eines Kritikalitätsunfalls führt. Das *“Double Contingency Principle”* entspricht damit dem Einzelfehlerkriterium in der Reaktorsicherheit.

Zur Erfüllung des Sicherheitsprinzips kommt es auf die Anzahl der Ereignisabläufe, nicht jedoch auf die der angewendeten Kritikalitätskonzepte oder -parameter an. So ist es z. B. denkbar, dass durch ein Ereignis allein mehrere Sicherheitskonzepte ausfallen können (*“common mode failure”*); somit wären diese Konzepte nicht unabhängig voneinander, die Erfüllung des Sicherheitsprinzips ist durch sie nicht gewährleistet. Umgekehrt kann ein einzelnes Sicherheitskonzept durch entsprechende redundante, unabhängige Maßnahmen gewährleistet, dass das Sicherheitsprinzip erfüllt wird.

Die Möglichkeit einer Kritikalität bedeutet in diesem Zusammenhang nicht zwangsläufig, dass die Kritikalität auch tatsächlich eintritt, sondern lediglich, dass eine entsprechende Gefahr besteht; es ist denkbar, dass andere – eventuell sogar zufällige – Abläufe das Eintreten des Kritikalitätsstörfalles verhindern. Im englischen Sprachgebrauch werden solche Ereignisse nicht eingetretener Kritikalitätsstörfälle, deren potentielle Möglichkeit vorübergehend bestand, als *“near misses”* bezeichnet.

Weiterhin wird gefordert [2.6]: „Bei einer Abweichung von diesem Prinzip sind die Eintrittswahrscheinlichkeit eines Kritikalitätsstörfalles und seine Auswirkungen zu berücksichtigen.“ Sollte also eine Abweichung vom Sicherheitsprinzip erforderlich sein, so muss zuverlässig gewährleistet sein, dass einzelne Störfallabläufe, die zu der Möglichkeit eines Kritikalitätsstörfalles führen können, durch geeignete Sicherheitsmaßnahmen verhindert werden.

2.2 Sicherheitsfaktoren

Nach [2.6] muss für jedes Problem ein Sicherheitsfaktor einbezogen werden, dessen Größe die Ungenauigkeit der Voraussetzungen, die Wahrscheinlichkeit ihrer Änderung und die möglichen Folgen eines Kritikalitätsstörfalls berücksichtigt.

2.2.1 Ableitung zulässiger Werte aus kritischen Werten

Die Wahl geeigneter Sicherheitsfaktoren hängt davon ab, wie genau die betreffenden Kritikalitätsparameter bestimmt und experimentell belegt werden können. Hinzu kommen Unsicherheiten z. B. aus der Herstellung von Behältern (Fertigungstoleranzen) und aus dem Betrieb von Apparaten (Schwankungen in den Materialdaten, wie Dichte, Konzentration usw.). Die Wahl geeigneter Sicherheitsfaktoren sollte daher stets von in Kritikalitätskontrolle erfahrenen Fachleuten vorgenommen werden. Ebenso wichtig ist die Vertrautheit mit den physikalisch-chemischen Randbedingungen der Prozessabläufe und Herstellungsverfahren.

Um zulässige Werte (sichere Parameter) zu gewinnen, werden die entsprechenden kritischen Daten mit geeigneten Sicherheitsfaktoren multipliziert. Im allgemeinen können homogene Systeme genauer berechnet werden als heterogene. Für homogene, gut durch Experimente abgesicherte Einzelsysteme werden die in Tab.2.5 aufgeführten Sicherheitsfaktoren empfohlen.

M_s berücksichtigt eine versehentliche Massenerhöhung bis hin zur Verdopplung (siehe Kap.2.1.2), während bei M_{sL} eine versehentliche Massenerhöhung durch die Konstruktion und Bauweise der Behälter ausgeschlossen sein muss. Bei großen Abmessungen werden die Sicherheitsfaktoren kleiner gewählt, weil sonst eine Reduktion der Dimensionen den Multiplikationsfaktor in zu geringem Maße senken würde. Behälter mit sicheren Lineardimensionen weisen bei voller Wasserreflexion meist k_{eff} -Werte von 0,90 – 0,97 auf. Die Reduzierung des Sicherheitsfaktors bei sehr kleinen Schichtdicken bzw. bei kleinen Kugelvolumina beruht auf der Anfälligkeit dieser kleinen Maße gegenüber Fertigungstoleranzen.

Im übrigen wird nochmals darauf hingewiesen, dass diese Sicherheitsfaktoren stets nach den vorliegenden Bedingungen gewählt werden müssen; die angegebenen Werte stel-

len daher lediglich Anhaltswerte dar. Wegen dieser Abhängigkeiten sind in den Tabellen der Teile 2 und 3 des vorliegenden Handbuchs gelegentlich abweichende Sicherheitsfaktoren bei der Ableitung sicherer Werte verwendet worden. Von den dort angegebenen systembezogenen sicheren Werten ist auszugehen.

Tab. 2.5 Empfohlene Sicherheitsfaktoren für homogene Einzelsysteme nach [2.6]

Sicherer Parameter (Index s)	Kritischer Parameter (Index k)	Sicherheitsfaktor	
Masse M_s	Masse M_k	0,45	
Masse M_{sL}	Masse M_{kL}	0,80	
Kugelvolumen V_s	Volumen	$V_k > 5$ Liter	0,80
		$V_k \leq 5$ Liter	0,75
Zylinderdurchmesser D_s	Zylinderdurchmesser	$D_k < 50$ cm	0,90
		$D_k \geq 50$ cm	0,85
Schichtdicke S_s	Schichtdicke	$S_k < 3$ cm	0,80
		$S_k \geq 3$ cm	0,85
Konzentration c_s	Konzentration c_k	0,50	
Anreicherungsgrad e_s	Anreicherungsgrad e_k	0,90	

Für heterogene, gut durch Experimente abgesicherte Einzelsysteme werden die Sicherheitsfaktoren der Tab. 2.6 empfohlen. M_s berücksichtigt wie in Tab. 2.5 die versehentliche Massenverdopplung, während bei M_{sL} eine versehentliche Massenerhöhung durch die Konstruktion und Bauweise der Behälter ausgeschlossen sein muss.

Tab. 2.6 Empfohlene Sicherheitsfaktoren für heterogene Einzelsysteme nach [2.6]

Sicherer Parameter (Index s)	Kritischer Parameter (Index k)	Sicherheitsfaktor
Masse M_s	Masse M_k	0,45
Masse M_{sL}	Masse M_{kL}	0,70
Kugelvolumen V_s	Volumen V_k	0,75
Zylinderdurchmesser D_s	Zylinderdurchmesser D_k	0,85
Schichtdicke S_s	Schichtdicke S_k	0,80
	bei regulären Spaltstoffgittern	0,85

Für Behälter oder Apparate, die durch homogene oder heterogene Vergiftung gesichert sind, werden die entsprechenden Sicherheitskriterien in Kap.5 behandelt. Die Anwendung von heterogener Vergiftung in Stab- oder Plattenform erfordert nahezu immer eine Kritikalitätsrechnung mit validierten Rechenprogrammen.

2.2.2 Zulässige Multiplikationsfaktoren k_{eff}

Ist der k_{eff} -Wert eines Systems durch Berechnung oder Experiment ermittelt worden, so muss die Beurteilung, ob dieser Wert als Beweis der Sicherheit des Systems gilt, eine kritische Würdigung der Bestimmungsmethode einschließen (Fehleranalyse). Dabei kommt der Validierung der Berechnungsmethode und der verwendeten Datenbasis an geeigneten Experimenten besondere Bedeutung zu (siehe auch [2.7]).

Für Spaltstoffsysteme bedeutet in der Regel ein berechneter Wert von $k_{\text{eff}} < 0,95$ den Nachweis der Kritikalitätssicherheit. Ungenauigkeiten der Berechnung sowie Fertigungstoleranzen von Behältern und Apparaten sind zur sicheren Seite hin zu berücksichtigen. Auch die chemischen, physikalischen und verfahrenstechnischen Randbedingungen sind unter Beachtung der betrieblichen Gegebenheiten zur sicheren Seite hin zu wählen. In einzelnen, durch eine Vielzahl von Berechnungen oder durch sorgfältige Experimente gestützten Fällen kann über $k_{\text{eff}} = 0,95$ hinausgegangen werden. Liegen keine Experimente vor, so sollte der berechnete Multiplikationsfaktor k_{eff} einen Wert von 0,90 nicht überschreiten [2.9].

Bei der Berechnung von Multiplikationsfaktoren mit Monte Carlo-Technik gilt ein Wert für k_{eff} als zulässig, wenn $k_{\text{eff}} + 2\sigma \leq 0,95$ bleibt (σ Standardabweichung, siehe Kap. 6.4). Dabei wird vorausgesetzt, dass eine genügende Anzahl von Neutronenschicksalen verfolgt wird und dass der Einfluss der Startverteilung der Neutronen auf das Ergebnis durch passende Wahl dieser Startverteilung und durch Weglassen einer ausreichenden Anzahl der anfänglichen Neutronengenerationen unbedeutend ist.

Homogene oder durch Borglasfüllkörper bewirkte Vergiftung sollte stets so ausgelegt werden, dass der infinite Multiplikationsfaktor $k_{\infty} \leq 0,95$ bleibt. Bei Anwendung einfacher Berechnungsverfahren der Neutronenwechselwirkung, wie z. B. der Methode der analogen Dichte (siehe Kap.6.2.1) und der Raumwinkelmethode (siehe Kap.6.3), sollte ein k_{eff} -Wert von 0,90 nicht überschritten werden.

2.2.3 Besondere Einflüsse auf Sicherheitsfaktoren und zulässige Werte für den Multiplikationsfaktor k_{eff}

Befinden sich Prozessanlagen hinter massiven Abschirmungen (mindestens 60 cm Normalbeton), die einen wirksamen Schutz gegen Neutronen- und Gammastrahlung bieten, wie sie ein Kritikalitätsunfall auslösen könnte, so können geringere Sicherheitsabschläge toleriert werden. Voraussetzung ist jedoch, dass sich in den Räumen, in denen sich die Anlagen befinden, im Normalfall kein Personal aufhält und die abschätzbaren Kritikalitätsfolgen auf keinen Fall zu gefährlichen Strahlenexpositionen führen.

Für besondere Maßnahmen, etwa für Hilfsmaßnahmen bei Störfällen, können die Sicherheitsfaktoren hinsichtlich der Kritikalität knapper angesetzt werden als im Normalfall, wenn die Arbeiten unter erhöhter Überwachung ablaufen.

2.2.4 Hinweise für die Wahl von Sicherheitsfaktoren und zulässigen Werten für den Multiplikationsfaktor k_{eff}

Bei der Bestimmung von kritischen und bei der Ableitung von sicheren Werten ist stets im Auge zu behalten, dass sich die Voraussetzungen und Prozessbedingungen ändern können. Diese Einflüsse sind in einer Analyse der Störungs- und Störfallmöglichkeiten zu ermitteln. Die folgenden Punkte geben typische Beispiele für mögliche Veränderungen der Randbedingungen und Parameter hinsichtlich der Kritikalitätssicherheit:

- Vergrößerung der im Verfahren verwendeten Spaltstoffmasse
 - durch Falschwägung oder Doppelbeschickung
 - durch Irrtum bei der Beschilderung oder Handhabung
- Zunahme der Dichte des Spaltmaterials:
Beispiele: Eindampfen, Kalzinations- oder Sintervorgänge
- Änderungen des Moderationsgrades
 - Ungenauigkeit bei der Bestimmung
Beispiele: Analysenfehler, Ungenauigkeit der Instrumente
 - Erhöhung der Moderation durch Flutung, Besprühung
Beispiele: Wasser, Öl, Schnee, Erhöhung der Luftfeuchtigkeit, Sprinkleranlage, Kondenswasser, Bruch von Dampf- oder Wasserleitungen, Moderation durch Per-

- sonal, Hinzufügen von Holz, Kunststoffen, Verpackungsmaterial, oder auch hygroskopisches Material
- Verdunstung oder Entfernung von Moderator
Beispiele: Austrocknen oder Zusammensacken feuchter Pulver
 - Absetzen von Spaltstoff aus Lösungen
Beispiele: Auskristallisation, verschiedene Löslichkeit
 - Verdünnung von konzentrierten Lösungen durch zufließendes Wasser
 - Änderung von geometrischer Gestalt und Dimension
 - Ungenauigkeit durch Fertigungstoleranzen
 - Korrosionsschäden, Abtragung von Wandmaterial
Beispiel: Korrosion von Heiz- oder Kühlmänteln
 - Ausbeulung von Behältern
Beispiele: Druckaufbau, Pressluft
 - Verlust der sicheren Geometrie durch Bersten oder Auslaufen der Behälter
Beispiele: Schüttkegel ausgelaufener Spaltstoffpulver, Schichthöhen ausgelaufener Lösungsmengen in Auffangwannen, Heberwirkung in Behälter nicht sicherer Geometrie
 - Einsatz von Rührern
 - Änderungen in der Effektivität eines Neutronenabsorbers
 - Verlust eines Festabsorbers durch Korrosion
Beispiel: Korrosion von Bor Glaswandungen
 - Verlust von Moderator, dadurch bedingte Spektrumsverhärtung
 - Entmischung bei homogener Verteilung von Spaltstoff und Absorber durch Absetzen einer der beiden Komponenten
 - Umverteilung eines festen Absorbers
Beispiele: Absetzen von Borraschigringen durch Bruch, Lückenbildung in Bor-karbidpulver-Vergiftungszonen
 - Falsche oder ungleichmäßige Dosierung und Mischung von Absorbern in Lösungen oder Strukturmaterial
Beispiel: Ungleichmäßige Verteilung von Bor in boriertem Beton
 - Änderung der Effektivität von Reflektoren

- Zunahme der Reflexion durch Hinzufügen von Material
Beispiele: Wasserflutung, Reflexionseffekte durch Personal
- Änderung der Reflektorzusammensetzung, Verlust von Absorber
Beispiel: Austrocknung von Beton
- Änderung des Neutronenaustauschs mit anderen Spaltstoffsystemen und Reflektoren
 - Hinzufügen weiterer Einheiten oder Reflektoren
Beispiel: Einrichtung von Spaltstofflagern in Räumen, die an eine Prozessanlage oder an schon bestehende Lagerareale angrenzen
 - Veränderung der Anordnung der Einheiten
Beispiel: Zusammenschieben von Spaltstoffbehältern durch Gabelstapler
 - Verlust von Abschirmungen und Verminderung ihrer Wirksamkeit durch Absorber- oder Moderatorverlust
Beispiel: Austrocknen von Betonabschirmungen
 - Zusammenstürzen von Halterungen und Vorrichtungen, dadurch Verkleinerung der zulässigen Abstände
 - Bewegung transportabler Einheiten
Beispiel: Transport von Behältern mit Deckenkran, Ausklinken der Kranlast

Weitere Punkte, die Beachtung verdienen, sind u. a. Feuerbekämpfung, Radiolyse und die Freisetzung giftiger oder ätzender chemischer Gase.

2.3 Regeln und Richtlinien auf dem Gebiet der Kritikalitätssicherheit

2.3.1 Gesetzliche Grundlagen und Sicherheitsanforderungen

2.3.1.1 Atomgesetz

Nach dem Atomgesetz (AtG) [2.10] bedürfen die Beförderung (§ 4 AtG) und die Aufbewahrung (§ 6 AtG) von Kernbrennstoffen, die Errichtung und der Betrieb von ortsfesten Anlagen zur Erzeugung, Bearbeitung oder Verarbeitung von Kernbrennstoffen und die Aufarbeitung bestrahlter Kernbrennstoffe (§ 7 AtG), sowie die Bearbeitung, Verarbeitung und sonstige Verwendung von Kernbrennstoffen außerhalb genehmigungspflichtiger Anlagen (§ 9 AtG) der Genehmigung.

Die nach dem Stand von Wissenschaft und Technik erforderliche Vorsorge gegen Schäden enthält dabei auch Vorsorgemaßnahmen zur Einhaltung der Kritikalitätssicherheit.

2.3.1.2 Strahlenschutzverordnung

Die Strahlenschutzverordnung (StrlSchV), Fassung vom 20. Juli 2001 [2.1], verpflichtet in § 6 (Vermeidung unnötiger Strahlenexposition und Dosisreduzierung),

- jede unnötige Strahlenexposition oder Kontamination von Personen, von Sachgütern oder der Umwelt zu vermeiden, und
- jede Strahlenexposition oder Kontamination von Personen, Sachgütern oder der Umwelt unter Beachtung des Standes von Wissenschaft und Technik und unter Berücksichtigung aller Umstände des Einzelfalls auch unterhalb der in dieser Verordnung festgesetzten Grenzwerte so gering wie möglich zu halten (Minimierungsgebot).

Dies bezieht sich indirekt auch auf die bei einer Kritikalitätsexkursion erzeugte Strahlung. Insbesondere besagt § 65 (Lagerung und Sicherung radioaktiver Stoffe) Abs. 2 StrlSchV: „Kernbrennstoffe müssen so gelagert werden, dass während der Lagerung kein kritischer Zustand entstehen kann.“ Es obliegt nach § 33 StrlSchV dem Strahlenschutzverantwortlichen des jeweiligen Betriebs, die Gewährleistung dessen zu besorgen.

2.3.1.3 Sicherheitsanforderungen für Kernbrennstoffversorgungsanlagen

Die vom Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz, Bau und Reaktorsicherheit (BMUB) im „Handbuch für Reaktorsicherheit und Strahlenschutz“ veröffentlichten Sicherheitsanforderungen für Kernbrennstoffversorgungsanlagen [2.11] enthalten jeweils für die einzelnen Anlagentypen Anforderungen zur Kritikalitätssicherheit.

2.3.2 Normen, Regeln und Richtlinien

2.3.2.1 Relevante DIN-Normen

- DIN 25401 Teile 1 – 8: Begriffe der Kerntechnik (Mär. 2015), mit Beiblatt 1: Stichwortverzeichnis Deutsch – Englisch – Französisch (Feb. 1987).

- DIN 25403 Teil 1: Kritikalitätssicherheit bei der Verarbeitung und Handhabung von Kernbrennstoffen, Grundsätze (Dez. 2013), mit Beiblatt 1 – Erläuterungen (Okt. 1997).
- DIN 25403 Teil 2: Kritikalitätsdaten für Uran-235-Metall-Leichtwasser-Mischungen (Okt. 1995).
- DIN 25403 Teil 3: Kritikalitätsdaten für Plutonium-Metall-Leichtwasser-Mischungen (Sep. 2000).
- DIN 25403 Teil 4: Kritikalitätsdaten für Uran-Dioxid-Leichtwasser-Mischungen (Okt. 1995).
- DIN 25403 Teil 5: Kritikalitätsdaten für Plutonium-Dioxid-Leichtwasser-Mischungen (Sep. 2000).
- DIN 25403 Teil 6: Kritikalitätsdaten für Plutonium-Nitrat-Leichtwasser-Mischungen (Sep. 2000).
- DIN 25403 Teil 7: Kritikalitätsdaten für niedrig angereicherte Urandioxid-Stabgitter in Wasser (Dez. 1997; 2014 zurückgezogen).
- DIN 25403 Teil 8: Kritikalitätsdaten für Uranylinitrat-(100 % Uran-235)-Leichtwasser-Mischungen (Okt. 1995).
- DIN 25421: Verwendung von Borosilicatglas-Raschigringen als Neutronenabsorber in Spaltstofflösungen (Dez. 1997; 2008 zurückgezogen).
- DIN 25471: Kritikalitätssicherheit unter Anrechnung des Brennelementabbrands bei der Lagerung und Handhabung von Brennelementen in Brennelementlagerbecken von Kernkraftwerken mit Leichtwasserreaktoren (Mai 2009).
- DIN 25472: Kritikalitätssicherheit bei der Endlagerung ausgedienter Kernbrennstoffe (Aug. 2012).
- DIN 25474: Maßnahmen administrativer Art zur Einhaltung der Kritikalitätssicherheit in kerntechnischen Anlagen, ausgenommen Reaktoren (Juni 2014).
- DIN 25478: Einsatz von Berechnungssystemen beim Nachweis der Kritikalitätssicherheit (Juni 2014).

- DIN 25478 Beiblatt 1: Einsatz von Berechnungssystemen beim Nachweis der Kritikalitätssicherheit – Beiblatt 1: Erläuterungen (Apr. 2011.)
- DIN 25712: Kritikalitätssicherheit unter Anrechnung des Brennelementabbrands bei Transport und Lagerung bestrahlter Leichtwasserreaktor-Brennelemente in Behältern (Apr. 2015).

2.3.2.2 Relevante Regeln des Kerntechnischen Ausschusses (KTA)

- Regel KTA 3101.2:1987-12 Auslegung der Reaktorkerne von Druck- und Siedewasserreaktoren – Teil 2: Neutronenphysikalische Anforderungen an Auslegung und Betrieb des Reaktorkerns und der angrenzenden Systeme (Dez. 1987).
- Regel KTA 3602 Lagerung und Handhabung von Brennelementen und zugehörigen Einrichtungen in Kernkraftwerken mit Leichtwasserreaktoren (Nov. 2003, zuletzt bestätigt am 19.11.2013.).

Die Regel KTA 3101.2:1987-12 wurde mittlerweile durch eine aktuellere Fassung abgelöst, gegenwärtiger Stand ist Nov. 2012. Aus inhaltlichen Gründen wird an dieser Stelle jedoch, ebenso wie in DIN 25478:2014-06, speziell auf die Fassung vom Dezember 1987 verwiesen. Sie enthält Hinweise zur Validierung von Berechnungssystemen zur nuklearen Sicherheit und ist in diesem Zusammenhang auch für Kritikalitätsrechnungen v. a. zu bestrahlten Kernbrennstoffen von Interesse.

Die KTA-Regeln sind in deutscher und zumeist auch in englischer Sprache verfügbar. Ihre jeweils aktuellen Fassungen können im Internet unter <http://www.kta-gs.de> im Regelprogramm aufgerufen werden. Es finden sich auch Historie und Erläuterungen zu Regeländerungen, jedoch nicht die ursprüngliche Fassung einer geänderten Regel.

2.3.2.3 Relevante Normen der internationalen Standard-Organisation (ISO) und der International Electrotechnical Commission (IEC)

- ISO 1709 “Nuclear Energy – Fissile Materials – Principles of Criticality Safety in Storing, Handling and Processing, Second Edition” – 2001-06-14; Nov. 1995; reviewed and then reconfirmed in 2011.

- ISO 7753 “Nuclear Energy – Performance and Testing Requirements for Criticality Detection and Alarm Systems,” First edition – 2001-06-14; Aug. 1987; reviewed and then reconfirmed in 2011.
- DIN ISO 7753 Anforderungen an die Auslegung und Prüfungen eines Kritikalitäts-Detektierungs- und Alarmsystems (Deutsche Übersetzung von ISO 7753), Dez. 1991.
- ISO 14943 “Nuclear Fuel Technology – Administrative criteria related to nuclear criticality safety,” First edition – 2013-11-25; Okt. 2004, reviewed and then reconfirmed in 2013.
- ISO 27467 “Nuclear Criticality Safety – Analysis of a Postulated Criticality Accident,” First Edition – 2014-07-07; Feb. 2009, reviewed and then reconfirmed in 2014.
- International Electrotechnical Commission (IEC) IEC 60860: “Warning Equipment for criticality accidents,” Second edition – 2014-06-19, June 2014, stability date 2017.

2.3.2.4 Relevante amerikanische Richtlinien (U.S. NRC Regulatory Guides)

Wesentliche frühere kritikalitätsrelevante Regeln und Richtlinien wurden 1998 im *Regulatory Guide* No. 3.71 zusammengefasst:

- Regulatory Guide No. 3.71 “Nuclear Criticality Safety Standards for Fuels and Material Facilities,” 01.1998, Rev. 1 05.2005, Rev. 2 10.2010 (published January 03, 2011).

RG No. 3.71 bestätigt die Normen der ANSI/ANS-8 Reihe (vgl. Kap. 2.3.2.5), z. T. mit Ausnahmen und Nachbesserungsbedarf. Die nun in No. 3.71 gebündelten, ursprünglichen kritikalitätsrelevanten Einzel-Richtlinien sowie weitere wurden inzwischen zurückgezogen (zumeist 1998, z. T. später):

- No. 3.1 “Use of Borosilicate-Glass Raschig Rings as a Neutron Absorber in Solutions of Fissile Materials,” Rev. 2, Sept. 1987.
- No. 3.4 “Nuclear Criticality Safety in Operations with Fissionable Materials at Fuels and Materials Facilities,” Rev. 2, Mar. 1986.
- No. 3.33 “Assumptions Used for Evaluating the Potential Radiological Consequences of Accidental Nuclear Criticality in a Fuel Reprocessing Plant,” Apr. 1977.

- No. 3.34 “Assumptions Used for Evaluating the Potential Radiological Consequences of Accidental Nuclear Criticality in a Uranium Fuel Fabrication Plant,” Aug. 1981.
- No. 3.35 “Assumptions Used for Evaluating the Potential Radiological Consequences of Accidental Nuclear Criticality in a Plutonium Processing and Fuel Fabrication Plant,” Sept. 1981.
- No. 3.41 “Nuclear Criticality in Operations with Fissionable Materials at Fuels and Materials Facilities,” Apr. 1986.
- No. 3.43 “Nuclear Criticality Safety in the Storage of Fissile Materials,” Apr. 1979.
- No. 3.45 “Nuclear Criticality Safety for Steel-Pipe Intersections Containing Aqueous Solutions of Fissile Materials,” Rev. 1, Apr. 1989.
- No. 3.47 “Nuclear Criticality Control and Safety of Homogeneous Plutonium-Uranium Fuel Mixtures Outside Reactors,” Jul. 1981.
- No. 3.57 “Administrative Practices for Nuclear Criticality Safety at Fuels and Materials Facilities,” Oct. 1986.
- No. 3.58 “Criticality Safety for Handling, Storing, and Transporting LWR Fuel at Fuels and Materials Facilities,” Oct. 1986.
- No. 3.68 “Nuclear Criticality Safety Training,” Apr. 1994.
- No. 8.5 “Criticality and Other Interior Evaluation Signals,” Rev. 1, Mar. 1981; withdrawn 22.03.2011.
- No. 8.12 “Criticality Accident Alarm Systems,” Rev. 2, Oct. 1988.

2.3.2.5 Relevante amerikanische Normen (ANSI/ANS-Standards)

- ANSI/ANS-8.1-2014, “Nuclear Criticality Safety in Operations with Fissionable Materials Outside Reactors,” American Nuclear Society, La Grange Park, IL, U.S.A. (Adresse gilt für alle ANSI/ANS Normen).
- ANSI/ANS-8.3-1997 (R2003, 2012), “Criticality Accident Alarm System.”
- ANSI/ANS-8.5-1986 (R2007, 2012), “Use of Borosilicate-Glass Raschig Rings as a Neutron Absorber in Solutions of Fissile Material.”

- ANSI/ANS-8.6-1983 (R1988, 1995, 2010), “Safety in Conducting Subcritical Neutron-Multiplication Measurements in Situ.”
- ANSI/ANS-8.7-1998 (R2007), “Nuclear Criticality Safety in the Storage of Fissile Materials.”
- ANSI/ANS-8.9-1987 (R1995, withdrawn 2005), “Nuclear Criticality Safety Criteria for Steel-Pipe Intersections Containing Aqueous Solutions of Fissile Material.”
- ANSI/ANS-8.10-1983 (R1988, 2005), “Criteria for Nuclear Criticality Safety Controls in Operations with Shielding and Confinement.”
- ANSI/ANS-8.12-1987 (R1993, 2002, 2011), “Nuclear Criticality Control and Safety of Plutonium-Uranium Fuel Mixtures Outside Reactors.”
- ANSI/ANS-8.15-1981 (R1987, 1995, 2005), “Nuclear Criticality Control of Special Actinide Elements.”
- ANSI/ANS-8.17-2004 (R2009), “Criticality Safety Criteria for the Handling, Storage, and Transportation of LWR Fuel Outside Reactors.”
- ANSI/ANS-8.19-2005, “Administrative Practices for Nuclear Criticality Safety.”
- ANSI/ANS-8.20-1991 (R1999, 2005), “Nuclear Criticality Safety Training.”

2.3.2.6 Relevante IAEA Sicherheitsstandards

- IAEA Safety Requirements No. NS-R-5 – Safety of Nuclear Fuel Cycle Facilities, Vienna, 2008, Rev. 1 08.05.2014.
- IAEA Safety Standards Series SSG-5 – Safety of Conversion Facilities and Uranium Enrichment Facilities: Specific Safety Guide, Vienna, 03.06.2010.
- IAEA Safety Standards Series SSG-6 – Safety of Uranium Fuel Fabrication Facilities: Specific Safety Guide, Vienna, 03.06.2010.
- IAEA Safety Standards Series SSG-7 – Safety of Uranium and Plutonium Mixed Oxide Fuel Fabrication Facilities: Specific Safety Guide, Vienna, 03.06.2010.
- IAEA Safety Standards Series SSG-15 – Storage of Spent Nuclear Fuel: Specific Safety Guide, Vienna, 27.03.2012.

- IAEA Safety Standards Series SSG-27 – Criticality Safety in the Handling of fissile Material (2014).
- IAEA Draft Safety Guide DS360: Safety of Reprocessing Facilities (January 2015).
- IAEA Draft Safety Guide DS381: Safety of Fuel Cycle Research and Development Facilities (January 2015).
- IAEA Specific Safety Requirements SSR-6 – Regulations for the Safe Transport of Radioactive Material (2012 Edition), Vienna.

2.4 Literatur zu Kapitel 2

- [2.1] Verordnung über den Schutz vor Schäden durch ionisierende Strahlen (Strahlenschutzverordnung – StrlSchV) vom 20. Juli 2001 (BGBl. I 2001, Nr. 38, S. 1714), zuletzt geändert durch Art. 5 Abs. 7 G vom 24. Februar 2012 (BGBl. I S. 212, 249).
- [2.2] DIN 25421: Verwendung von Borsilikatglas-Raschigringen als Neutronenabsorber in Spaltstofflösungen (seit 2008 obsolet).
- [2.3] K. Gewehr, B. Gmal: Internationale Standardprobleme zur sicherheitstechnischen Auslegung von Transportbehältern, 19. GRS-Fachgespräch, Berlin, 26.10.1995.
- [2.4] U.S. DoE: Topical Report on Actinide-Only Burnup Credit for PWR Spent Nuclear Fuel Packages, DOE/RW-0472 Rev. 0, May 1995.
- [2.5] ISO: Nuclear energy – Fissile materials – Principles of criticality safety in storing, handling and processing; ISO 1709:1995(E), 2nd edition 1995-11-01.
- [2.6] DIN: Kritikalitätssicherheit bei der Herstellung und Handhabung von Kernbrennstoffen, Grundsätze. DIN 25403, Teil 1, Juni 2007; Kritikalitätsdaten, Teile 2 bis 8, Oktober 1995 bis September 2000.
- [2.7] ANSI/ANS: Nuclear Criticality Safety in Operations with Fissionable Materials outside Reactors. ANS-8.1-1983 (R1988 and 1998).
- [2.8] ANSI: Nuclear Criticality Safety in Operations with Fissionable Materials outside Reactors. ANSI N16.1-1975 (in [2.7] übernommen).
- [2.9] W. Thomas: Kriterien bei der Beurteilung der Kritikalitätssicherheit. atw 4/78, p. 182–184, 1978.
- [2.10] Gesetz über die friedliche Verwendung der Kernenergie und den Schutz gegen ihre Gefahren (Atomgesetz – AtG) vom 23. Dezember 1959, Neufassung vom 15. Juli 1985, (BGBl. I, S.1565), zuletzt geändert durch Art. 2 G vom 1. April 2015 (BGBl. I S. 434, 563 f.); Inkrafttreten der letzten Änderung: 1. Januar 2016 (Art. 3 G vom 1. April 2015).
- [2.11] Handbuch Reaktorsicherheit und Strahlenschutz, 3.11: Sicherheitsanforderungen für Kernbrennstoffversorgungsanlagen von April 1997 und Juni 2004; BMUB RS III 3; Stand Juni 2005.

3 Kritikalitätsexperimente

Die experimentelle Bestimmung von Kritikalitätsparametern stellt die Basis für die Rechenmethoden und Datenbibliotheken dar, die zur rechnerischen Analyse der Kritikalitätssicherheit verwendet werden. Außerdem können Kritikalitätsexperimente selbst gezielt zum Nachweis der Kritikalitätssicherheit eingesetzt werden.

Wegen der Vielfalt der Anlagen der nuklearen Ver- und Entsorgung und der dort eingesetzten Spaltstoffe, chemischen Verbindungen und apparativen Komponenten ist eine direkte Übertragbarkeit von experimentell bestimmten Kritikalitätsparametern auf die aktuelle Problemstellung meist nicht gegeben. Die Bedeutung der experimentellen Ergebnisse liegt daher vor allem in der Möglichkeit, an diesen Daten die eingesetzten Rechenmethoden und ihre Genauigkeit überprüfen zu können. Damit diese Aufgabe voll erfüllt werden kann, ist es notwendig, die experimentellen Randbedingungen und die Messwerte mit ihren Unsicherheitsgrenzen eindeutig und vollständig zu dokumentieren. Schon bei der Planung und Durchführung der Experimente sollten die experimentellen Bedingungen so gewählt werden, dass eine Modellierung der Experimente durch die zur Verifikation eingesetzten Rechenprogramme ohne wesentliche Näherungen durchgeführt werden kann.

3.1 Experimentelle Methoden

3.1.1 Kritische Experimente

Bei den kritischen Experimenten [3.1], [3.2] werden Spaltstoffanordnungen so aufgebaut, dass Kritikalität tatsächlich erreicht werden kann. Die Annäherung an den kritischen Zustand des Spaltstoffsystems erfolgt allmählich und so nahe wie möglich, sodass Kritikalität gerade noch unterschritten oder eben erreicht wird. Überkritische Bedingungen werden dabei vermieden, da sie eine Emission von energiereicher Gamma- und Neutronenstrahlung, von Wärme und ggf. von radioaktiven Spaltprodukten nach sich ziehen würden. Dadurch würden die Messergebnisse beeinträchtigt, und der Aufwand für die Abschirmung und die Kontrolle der Versuchsanordnung und für die nachfolgende Handhabung der Spaltstoffe würde sich deutlich erhöhen.

Das kritische Experiment ist sehr aufwändig. Das vorsichtige Annähern an den kritischen Zustand erfordert viele Schritte. Die kritischen Experimente werden in der Regel in speziell ausgerüsteten Anlagen mit Abschirmung und Fernbedienung durchgeführt. Da das exakte Erreichen des gerade kritischen Zustandes eines Spaltstoffsystems ein empfindliches Balancieren zwischen Neutronenerzeugung und Neutronenverlust während der Experimente voraussetzt, sind eine aufwändige Instrumentierung zur Messung der Neutronenmultiplikation sowie umfangreiche Kontroll- und Abschirmsysteme erforderlich.

Eine vielfach verwendete Vorrichtung zur Durchführung kritischer Experimente mit festen Spaltstoffen ist die sogenannte *“split-table”* Anordnung, wie sie in Abb. 3.1 beispielhaft dargestellt ist. Hier ist schematisch der Aufbau der MARACAS Experimente abgebildet, welche zwischen 1983 und 1987 in Valduc, Frankreich, durchgeführt worden sind [3.16]. Bei derartigen Vorrichtungen wird die zu messende Spaltstoffanordnung zunächst in zwei voneinander getrennten, unterkritischen Teilkonfigurationen aufgebaut, die sodann horizontal zu einer kritischen Anordnung zusammengeführt werden. Ähnliche Anordnungen mit vertikaler Annäherung entsprechen dem gleichen Prinzip.

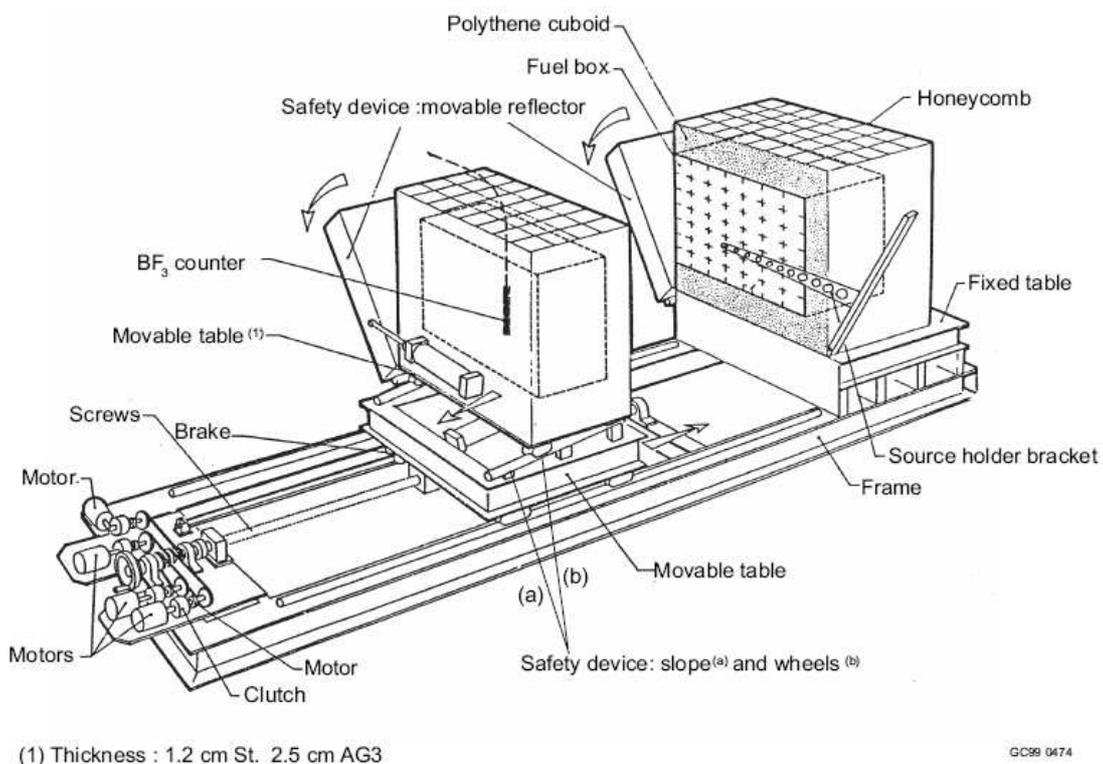


Abb. 3.1 Schematische Darstellung des Versuchsaufbaus der MARACAS Experimente [3.16] als Beispiel einer *“split-table”* Anordnung

Kritische Daten für Lösungen werden zumeist durch das langsame Auffüllen von Behältern ermittelt. Dabei kommen unterschiedliche Behältergeometrien zum Einsatz, wie z. B. kugelförmige oder zylinderförmige Tanks. Abb. 3.2 zeigt schematisch den Aufbau der Experimentiereinrichtung STACY (*“STAtic experiment CRitical facility”*) am Tokai Forschungszentrum in Japan, an der seit 1995 zahlreiche Untersuchungen durchgeführt werden [3.17].

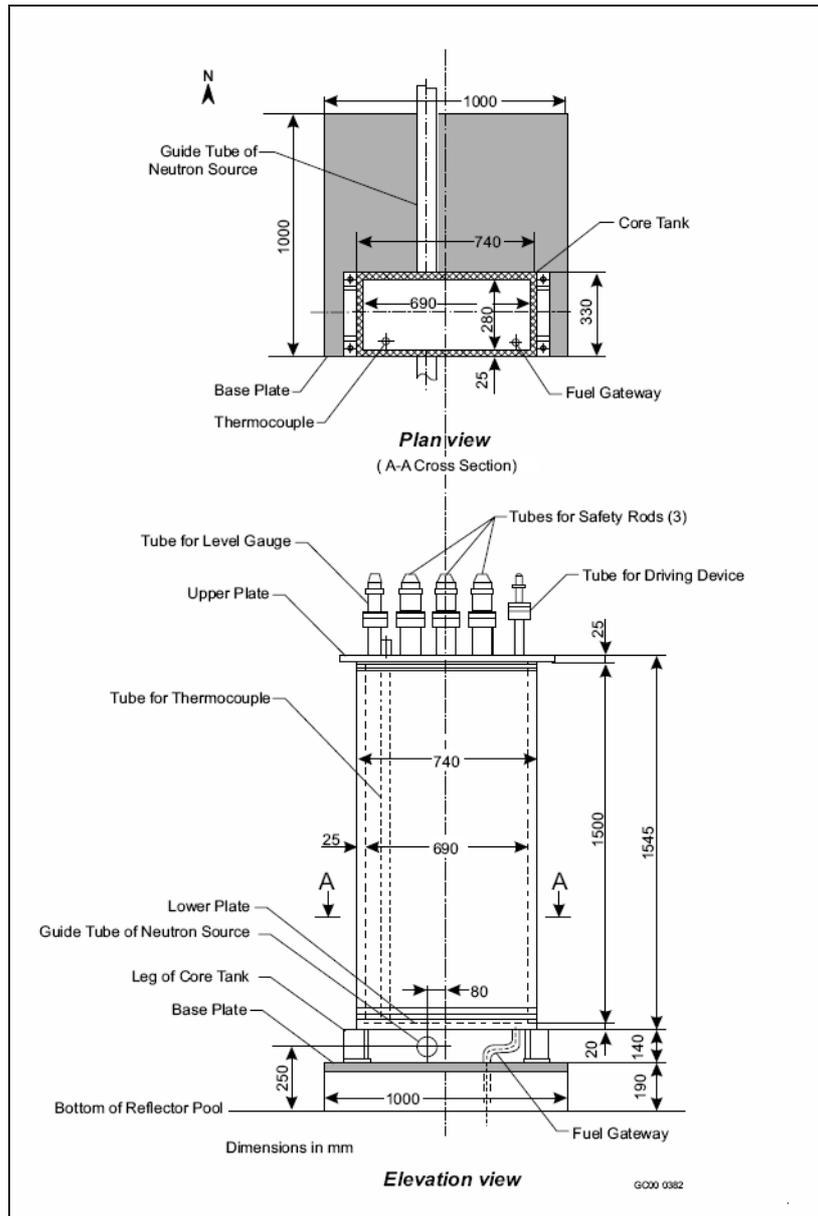


Abb. 3.2 Schematische Darstellung des Versuchsaufbaus der STACY Experimente [3.17] als Beispiel für Experimente mit Lösungen

Das Standardverfahren für kritische Experimente besteht darin, die sogenannte inverse oder reziproke Multiplikation ($1/M$) zu messen. Die Methode stützt sich auf eine vorgegebene Neutronenquelle in einer Spaltstoffanordnung, die sogenannte Primärquelle. Mit dieser Quelle kann ein stationärer Gleichgewichtszustand erreicht werden, bei dem die Zahl der von der Quelle erzeugten Neutronen zusammen mit den durch Spaltungen erzeugten Neutronen dem Neutronenverlust durch Absorption und Leckage gleich ist (zu den theoretischen Grundlagen siehe auch Kap. 1.4, unterkritische Multiplikation einer externen Neutronenquelle).

M kann experimentell durch zweimalige Messung des Neutronenflusses, einmal des Neutronenflusses der Quelle allein, und einmal des Neutronenflusses der Quelle mit dem multiplizierenden Medium, bestimmt werden. Das Verhältnis der beiden Messwerte liefert M .

Bei Annäherung an den kritischen Zustand geht M nach infiniten Werten. Es ist daher sinnvoll, die Abhängigkeit des Kritikalitätsparameters vom inversen Wert $1/M$ zu verfolgen. Der kritische Wert des Parameters ergibt sich durch Extrapolation von $1/M$ auf den Wert Null; er wird so durch allmähliche Annäherung an den kritischen Zustand aus unterkritischen Messdaten gewonnen. Wie nahe sich das Experiment dem kritischen Zustand für eine genaue Bestimmung des kritischen Parameterwertes nähern muss, bestimmt der Kurvenverlauf. Er hängt unter anderem von der räumlichen und spektralen Verteilung des Neutronenflusses in der unterkritischen Anordnung ab. Für unterschiedliche Messorte ergeben sich damit unterschiedliche Kurvenverläufe. Abb. 1.3 auf Seite 23 zeigt beispielhaft die Verläufe für drei verschiedene Detektorpositionen. Es ist nicht ohne weiteres möglich, diese Methode allgemein einzusetzen: Insbesondere in thermischen Systemen ist die beobachtete Multiplikation M sehr empfindlich von dem Spektrum und der Position der Neutronenquelle, von der Position und Empfindlichkeit der Detektoren sowie von der Geometrie der Spaltstoffanordnung [2.4] abhängig. Von großer Bedeutung ist somit der Kurvenverlauf für die Wahl der Schrittgröße der Veränderung des Kritikalitätsparameters zur Annäherung an den kritischen Zustand.

3.1.2 Unterkritische Experimente

Die zweite wichtige Kategorie der Kritikalitätsexperimente umfasst die sogenannten unterkritischen Experimente. Bei diesen Experimenten bleibt k_{eff} zu jeder Zeit weit unter-

halb von eins, $k_{\text{eff}} \ll 1$. Anforderungen an die Durchführung unterkritischer Experimente sind in ANS-8.6-1983 (R2010) festgelegt [3.4]. Hauptvorteil derartiger unterkritischer Experimente ist, dass aufwändige Abschirmungen und Fernhantierung entfallen können, da eine mögliche unerwartete Kritikalität durch die Auslegung praktisch ausgeschlossen ist. Weiter ist weniger Spaltmaterial für die Durchführung des Experiments erforderlich. Nachteilig bei unterkritischen Experimenten ist die häufig geringere Genauigkeit der gewonnenen Information.

Ein unterkritisches Experiment benötigt eine Neutronenquelle, die in die auszumessende Spaltstoffanordnung eingebracht wird. Für die stationäre Neutronenmultiplikation und ihre Ermittlung gilt Gl. (1.15). Neben der statischen Methode zur Reaktivitätsbestimmung in unterkritischen Systemen werden verschiedene Methoden zur zeitabhängigen Messung des Neutronenflusses eingesetzt. Die wichtigsten so bestimmbaren Parameter sind die Reaktivität $R = \Delta k/k$, die Lebensdauer der prompten Spaltneutronen I und der effektive Anteil der verzögerten Neutronen β_{eff} . Im Wesentlichen beruhen diese Messverfahren auf plötzlichen Änderungen der eingesetzten Neutronenquelle und der Beobachtung der auftretenden Änderungen des Neutronenpegels (Methode der gepulsten Neutronenquelle).

Für die Überprüfung von Rechenverfahren ist das unterkritische Experiment nicht geeignet, da kein effektiver Multiplikationsfaktor k_{eff} angegeben werden kann. Diese Tatsache rührt von der unterschiedlichen physikalischen Bedeutung von unterkritischer Neutronenmultiplikation M bzw. $1/M$ und effektivem Multiplikationsfaktor k_{eff} her.

Weitere Informationen sind in Kap. 1.4 dargestellt.

3.1.3 Weitere Methoden

Zu den genannten experimentellen Methoden werden statistische Methoden, die auf der Analyse des Neutronenrauschens oder der Schwankungen der Neutronenpopulation beruhen, eingesetzt. Dazu gehören die Rossi- α -Methode, die Feynman- α -Methode, und andere. Diese zeitabhängigen Messmethoden werden in [3.5] beschrieben. Einzelheiten über Detektoren finden sich in [3.6].

3.2 Versuchsanlagen

Die sehr unterschiedlichen physikalischen und chemischen Formen, in denen Spaltstoff hantiert und verarbeitet wird, bedeuten, dass für eine Vielzahl von Randbedingungen experimentelle Werte benötigt werden. Hinzu kommt, dass Experimente zur Neutronenwechselwirkung, der Wirkung von Neutronenabsorbern und Reflektoren erforderlich sind. Kritische und unterkritische Experimente sind daher in großer Zahl in eigens dafür ausgerüsteten Laboratorien durchgeführt worden. Sämtliche Anlagen befinden sich im Ausland. Viele davon, v. a. US-amerikanische, sind mittlerweile vollständig zurückgebaut. Nachstehend sind einige dieser Einrichtungen mit ihren Arbeitsschwerpunkten aufgeführt, ohne Wertung oder Anspruch auf Vollständigkeit.

- Los Alamos Critical Assemblies Laboratory (LASL, heute LANL), USA.
Seit 1943 Experimente mit allen Arten von Spaltstoff
- Oak Ridge National Laboratory (ORNL), Tennessee, USA.
²³⁵U- und ²³⁸U-Systeme. 1975 eingestellt.
- Battelle Pacific Northwest Laboratory (PNL), Richland, Washington, USA.
Plutoniumsysteme aller Art
- Rocky Flats Critical Mass Facility, Colorado, USA.
Pu-Metall- und Pu-Oxid-Systeme, hoch angereichertes Uranmetall und hochangereicherte Uranlösungen, niedrig angereichertes UO₂
- Babcock and Wilcox Company, Lynchburg, Virginia, USA.
UO₂-Stabgitter niedriger Anreicherung
- British Nuclear Fuels Laboratory (BNFL), Springfield, UK.
UO₂-Stabgitter niedriger Anreicherung
- Commissariat à l'Énergie Atomique, Valduc, Frankreich.
Ab 1963, vorher Versuche in Saclay. Trockene und schwach moderierte UO₂-Pulver, UO₂-Stäbe niedriger Anreicherung
- Japanese Atomic Energy Research Institute (JAERI), Tokai-mura, Japan.
STACY (Static Experiment Critical Facility): U- und Pu-Nitrat-Lösungen niedriger Anreicherung und ihre Mischungen (seit Februar 1995)
TRACY (Transient Experiment Critical Facility): niedrig angereicherte Uranylinitratlösungen (ab Ende 1995)

- REBUS/VENUS Critical Facility, SCK•CEN, Belgien.
z. B. REBUS-PWR Programm, UO₂ und MOX Brennstäbe
- Sandia National Laboratories (SNL), Albuquerque NM, USA:
Wassermoderierte kritische Experimente mit Brennstäben
Sandia Pulsed Reactor Facility – Critical Experiments (SPRF/CX), u. a. Seven Percent Critical Experiment (7uPCX)
- National Criticality Experiments Research Center (NCERC), Nevada National Security Site, USA: Comet, Planet, Flat-Top, und Godiva-IV Experimentieranlagen für quasi-stationäre, transiente und prompt-überkritische Experimente

3.3 Zusammenstellungen von experimentellen Kritikalitätsdaten

Experimentell ermittelte Kritikalitätsdaten sind aus Veröffentlichungen, Handbüchern und Datensammlungen verfügbar. Eine auf elektronische Datenverarbeitung gestützte Bibliographie, die mehr als 1000 kommentierte Experimente der Jahre 1943 bis 1978 umfasst, ist am Lawrence Livermore National Laboratory (LLNL, USA) erstellt worden [3.7]. Diese Sammlung bildet auch den Grundstock für ein speziell errichtetes Kritikalitätsinformationssystem [3.8]. Dieses System enthält auch alle auf Kritikalitätsexperimente bezogenen Fachbeiträge, die von 1958 bis 1982 in den Transactions der American Nuclear Society (ANS) erschienen sind [3.9]. In der Bundesrepublik Deutschland wurde eine kommentierte Datenbank erstellt, die die Kritikalitätsexperimente der Jahre 1975 bis 1985 enthält, soweit diese Daten veröffentlicht wurden [3.10]. Weitere Datensammlungen sind in [3.11]–[3.15] enthalten.

Die umfangreichste Sammlung kritischer Experimente zu Validierungszwecken enthält das *“International Handbook of Evaluated Criticality Safety Benchmark Experiments”* [3.15], welches jährlich aktualisiert vom OECD/NEA Nuclear Science Committee auf einer Daten-DVD sowie seit kurzem auch passwortgeschützt im Internet zur Verfügung gestellt wird.

3.4 Literatur zu Kapitel 3

- [3.1] R. A. Knief: Nuclear Criticality Safety, Theory and Practice, American Nuclear Society 1985.
- [3.2] S. Glasstone, A. Sesonske: Nuclear Reactor Engineering, D. Van Nostand Company, 1967.
- [3.3] E. D. Clayton: Neutron Source Multiplication Method. Workshop on Subcritical Reactivity Measurements, August 26-29, 1985, Albuquerque, New Mexico.
- [3.4] ANS-8.6-1983 (R1988, 1995, 2001), Safety in Conducting Subcritical Neutron Multiplication Measurements in Situ.
- [3.5] Proceedings of the Workshop on Subcritical Reactivity Measurements. August 26-29, 1985, Albuquerque, New Mexico.
- [3.6] J. T. Mihalcz: Benchmarking Criticality Safety Calculations with Subcritical Experiments. Trans Am. Nucl. Soc., 46, p. 451, 1984.
- [3.7] B. L. Koponen, T. P. Wilcox, V. E. Hampel: Nuclear Criticality Experiments from 1943 to 1978. Vol. 1 Main Listing. Vol. 2 Lookup Tables. Vol. 3 Subject Index. UCRL-52769. Lawrence Livermore National Laboratory, 1979.
- [3.8] B. L. Koponen: Status, Plans and Capabilities of the Nuclear Criticality Information System. Trans Am. Nucl. Soc., 46, p. 455, 1984.
- [3.9] B. L. Koponen, V. E. Hampel: Nuclear Criticality Experiments, Calculations and Analyses. 1958–1982: Vol. 1, 2. UCRL-53369, Lawrence Livermore National Laboratory, 1982.
- [3.10] W. Heinicke, A. Tischer, W. J. Weber: Kritikalitätsexperimente der Jahre 1975–1985. GRS-A-644 (1981), GRS-A-863 (1983) und BMI-1983-026, GRS-A-1245 (1986).
- [3.11] H. C. Paxton et al.: Critical Dimensions of Systems Containing ^{235}U , ^{239}Pu , ^{233}U . 1986 Revision, LA-10860-MS, July 1987.
- [3.12] B. M. Durst, S. R. Bierman, E. D. Clayton: Handbook of Critical Experiments Benchmarks. PNL-2700, 1978.

- [3.13] J.T. Thomas (Editor): Nuclear Safety Guide, TID-7016/Revision 2, NUREG/CR-0095, ORNL/NUREG/CSD-6, 1978; Corrections May 1991.
- [3.14] CESAR: A Criticality Experiment Storage and Retrieval Program, Section M 12 of SCALE 3, A Modular Code System for Performing Standardized Computer Analysis for Licensing Evaluation, ORNL/NUREG/CSD-2 (1984).
- [3.15] D. Y. Chang et al.: International Handbook of Evaluated Criticality Safety Benchmark Experiments, NEA/NSC/DOC (95) 03, September 2013 Edition.
- [3.16] MARACAS Programme: Polythene-reflected critical configurations with low-enriched and low-moderated uranium dioxide powder, U(5)O₂; NEA/NSC/DOC/(95)03/IV Volume IV (als LEU-COMP-THERM-049 in [2.15] enthalten).
- [3.17] STACY: 28-cm-thick slabs of 10%-enriched uranyl nitrate solutions, water-reflected (als LEU-SOL-THERM-016 in [3.15] enthalten).

4 Rechenverfahren zur Kritikalitätssicherheit

Die Rechenverfahren zur Bestimmung der effektiven Multiplikationsfaktoren von Spaltstoffsyste-men und -anordnungen beruhen auf der Ermittlung von Neutronenbilanzen. Das Raum-Zeit-abhängige Verhalten der Neutronen wird durch die Boltzmannsche Trans-portgleichung beschrieben. Diese Gleichung stellt eine Bilanz der zeitlichen Veränderung des orts-, energie- und winkelabhängigen Neutronenflusses unter Berücksichtigung der Neutronenleckage, der Neutronenreaktions- und -streuraten und der Neutronenquellstärke dar. Für die Kritikalitätsrechnung bleibt die Zeitabhängigkeit außer Betracht: k_{eff} ist eine statische Größe.

Eine geschlossene analytische Lösung dieser stationären Neutronentransportgleichung ist nur für homogene Spaltstoffe in einfacher Geometrie möglich. Daraus wurden die in Kap. 1.3 angegebenen Abschätzungsbeziehungen hergeleitet. Eine ausführliche Darstel-lung der Neutronentransporttheorie findet sich z. B. in [4.1]–[4.3].

Zur praktischen Durchführung von Kritikalitätsrechnungen wird die Neutronentransport-gleichung unter Verwendung geeigneter Näherungen und Ansätze mit Hilfe von Rechen-programmen gelöst. Derartige Ansätze sind vor allem die Diffusionsnäherung, das soge-nannte S_N -Verfahren, und die Monte Carlo-Methode (siehe Kap. 4.2).

Zunächst wird auf die zur Kritikalitätsrechnung erforderlichen Wirkungsquerschnitts-Daten-basen eingegangen.

4.1 Datenbasis und Spektralprogramme

Die den Rechenprogrammen zugrundeliegenden mathematischen und numerischen Ver-fahren gehen zum Teil von ganz unterschiedlichen Ansätzen aus, insbesondere bei der Behandlung von Orts- und Winkelkoordinaten in der Transportgleichung. Gemeinsam je-doch ist allen wichtigeren Codes – bestimmte Monte Carlo-Codes ausgenommen – die Behandlung der Energieabhängigkeit nach der Gruppenmethode. Sie trennt analytisch die energieabhängigen Terme und die orts- bzw. winkelabhängigen Terme in der Trans-portgleichung durch Diskretisierung der Energievariablen. Dazu wird erstens der Energie-bereich in Intervalle ΔE_g eingeteilt, zweitens der Neutronenfluss $\phi(r, \Omega, E)$ in $\phi(E) \cdot \phi(r, \Omega)$ separiert und drittens die gesamte Gleichung über die Energie integriert. Damit geht die

Transportgleichung in einen Satz gekoppelter Energie-Gruppengleichungen für die rein orts- und winkelabhängigen Gruppenflüsse $\phi_g(r, \Omega)$ über:

$$\begin{aligned} \Omega \cdot \nabla \phi_g + \sigma_g^T \cdot \phi_g = & \sum_{g'} \int_{\Omega'} \sigma_{g'-g}^S (\Omega' - \Omega) \cdot \phi_{g'} d\Omega' \\ & + \frac{1}{4\pi} \chi_g \sum_{g'} \nu_{g'} \sigma_{g'}^F \int_{\Omega'} \phi_{g'} \cdot d\Omega' \end{aligned} \quad (4.1)$$

wobei ϕ_g die Orts- und Winkelabhängigkeit $\phi_g(r, \Omega)$ beinhaltet.

Die Energieabhängigkeit ist damit in die sogenannten Gruppenkonstanten σ_g^x, ν_g usw. separiert; der Index x steht hierbei für den Reaktions- bzw. Querschnittstyp, also totaler Wirkungsquerschnitt (T), differentieller Streuquerschnitt (S) und Spaltung (F, *fission*).

$$\sigma_g^x = \frac{\int_{\Delta E_g} \phi(E) \cdot \sigma^x(E) dE}{\int_{\Delta E_g} \phi(E) dE} \quad (4.2)$$

Die Gruppengleichungen können mit numerischen Methoden berechnet werden, wenn die Gruppenkonstanten bekannt sind. Die Bestimmung der Gruppenkonstanten wiederum setzt die Kenntnis des Flussdichtespektrums $\phi(E)$ voraus. Dafür kann allerdings eine grobe Schätzung ausreichend sein: Die Bestimmungsgleichung für σ_g^x besagt, dass der Verlauf von $\phi(E)$ jeweils nur innerhalb des Intervalls gut geschätzt werden muss. Das ist durch geeignete Wahl der Lage und insbesondere durch geringe Breite der Intervalle immer möglich. Derart schmale Intervalle bedeuten allerdings enorme Gruppennzahlen und damit einen hohen numerischen Aufwand bei der Lösung der Gruppengleichungen (4.1). Geringe Gruppennzahlen bzw. breite Intervalle dagegen erfordern die Kenntnis des detaillierten Spektralverlaufs von Anfang an. Gruppenkonstanten werden daher schrittweise, ausgehend von einem geschätzten Grobspektrum bei feinen Intervallen (sogenannten Feingruppen) und endend bei einem berechneten Detailspektrum mit breiten Intervallen (sogenannten Breitgruppen), durch wiederholtes Berechnen von Gl. (4.2) an das Eigenpektrum einer Spaltstoffanordnung angepasst. Meist reichen dafür die folgenden beiden Schritte aus.

Der erste Schritt, die Wichtung von Feingruppenkonstanten über ein Grobspektrum, wird dabei nicht für jede Kritikalitätsrechnung neu angestellt. Vielmehr ist ein einmal bestimmter Satz von Feingruppenkonstanten für die Berechnung neutronenphysikalisch ähnlicher,

geometrisch verschiedener Anordnungen geeignet: Da das Grobspektrum in guter Näherung durch das vorhandene Spalt- und Moderator material, nicht jedoch durch deren räumliche Verteilung bestimmt wird, können Feingruppenkonstanten zu einem bestimmten Grobspektrum für alle Anordnungen mit einem ähnlichen Neutronenenergiespektrum verwendet werden. Vorausberechnete Feingruppenkonstanten werden daher in umfangreichen Datenbibliotheken zusammengestellt und für relativ breite Anwendungsbereiche verwendet. Sie enthalten Wirkungsquerschnitte für praktisch alle Nuklide, die in dem Anwendungsbereich von Bedeutung sind. Abb. 4.1 zeigt das berechnete Spektrum eines typischen thermischen Systems, hier: Uranoxid-Stäbe mit 3,6 % Anreicherung in Wasser.

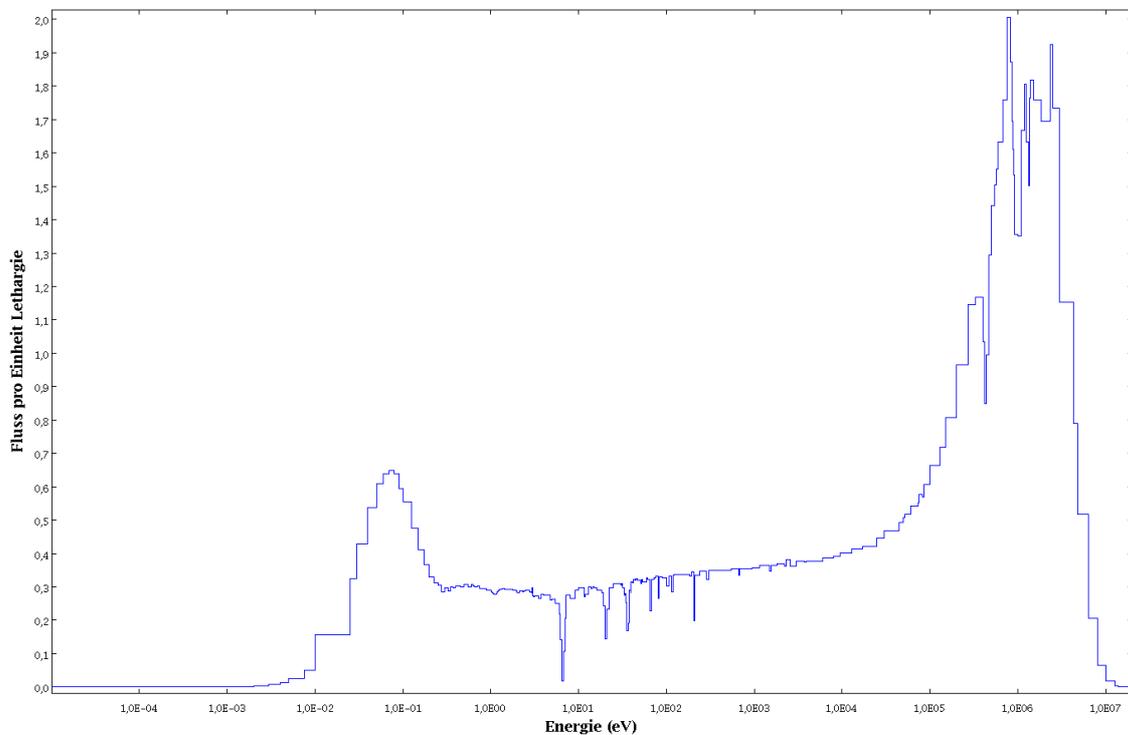


Abb. 4.1 Energiespektrum von UO_2 -DWR-Brennstäben in H_2O als Beispiel für ein thermisches System

In Abb. 4.2 wird eine Feingruppen-Näherung für das Grobspektrum zur Wichtung thermalisierter Spaltstoffsysteme dargestellt.

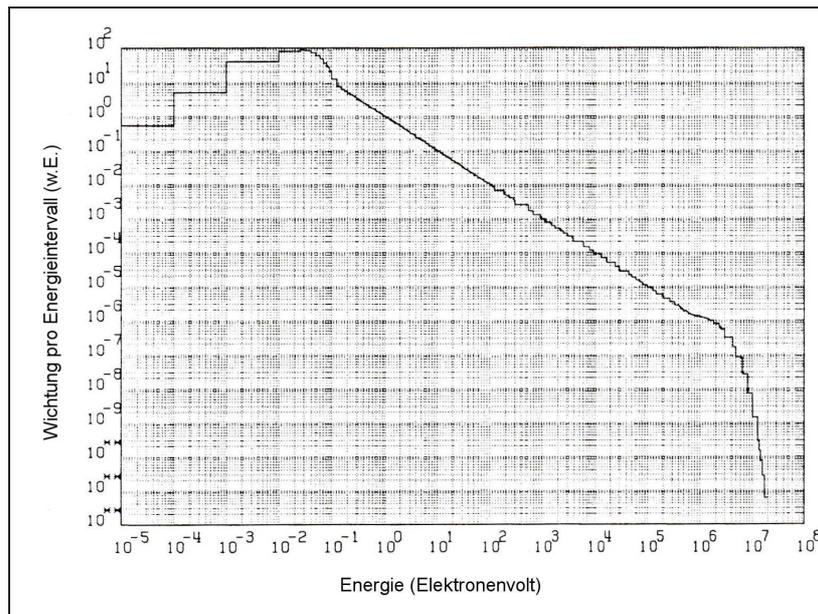


Abb. 4.2 Feingruppen-Näherung für ein Grobspektrum zur Wichtung thermalisierter Spaltstoffsysteme (Maxwell-Verteilung bei thermischen, $1/E$ -Funktion bei mittleren und Spaltspektrum $\phi(E)$ bei hohen Energien, nach [4.4])

Energieabhängige Wirkungsquerschnitte sind in großen Datenbibliotheken wie ENDF/B, JEF(F), JENDL, CENDL, UKNDL, BROND, KEDAK uvm. verfügbar. ENDF/B stellt die Daten nach Files geordnet folgendermaßen zur Verfügung:

- File 1: Nuklidinformation
- File 2: Resonanzparameter
- File 3: Wirkungsquerschnitte
- File 4: Winkelverteilung der elastischen Streuquerschnitte
- File 5: Energieverteilung bei nichtelastischen Prozessen
- File 6: Weitere Energie-Winkelverteilungen
- File 7: Thermische Streuung

Über die geschilderte Verarbeitung von Grobspektrum und Wirkungsquerschnitten hin zu Feingruppenkonstanten hinaus erfordern spezifische neutronenphysikalische Vorgänge in den einzelnen Energiebereichen spezielle Berücksichtigung. Bei thermischen Energien unter 1 eV wird die Neutronenstreuung von der thermischen Bewegung der Atome und von der chemischen Bindung beeinflusst. Die Gruppenkonstanten sind hier zum Teil

temperatur- und bindungsabhängig zu bestimmen. Weiter muss der mögliche Energiegewinn bei der Streuung durch Aufwärtsstreuterme in der Streumatrix $\sigma_{g'-g}^S$ berücksichtigt werden.

Im Resonanzenergiegebiet erfordern die komplizierte Struktur, die Größe und die Temperaturabhängigkeit der Wirkungsquerschnitte besondere Vorgehensweisen.

Die Anisotropie der Neutronenstreuung wird allgemein durch Entwicklung des Streuquerschnitts nach Legendre-Polynomen in P_l -Koeffizienten berücksichtigt.

Zur Erzeugung der Feingruppenkonstanten für den gesamten Energiebereich sind damit verschiedene Rechenprogramme notwendig. Zu den früher bekannten Codes zählen FLANGE für thermische und SUPERTOG für epithermische bzw. schnelle Energien. Zusätzlich sind eine Reihe von Hilfsprogrammen zur Konsistenzprüfung, Formatierung und insbesondere zur Kopplung der Daten erforderlich. Der Aufwand an Programmbedienung und Datentransfer ist hoch. Er wird durch Kopplung der erforderlichen Rechenprogramme zu sogenannten Codesystemen reduziert. Ein bekanntes System ist AMPX, das auf dem FLANGE-SUPERTOG-Verbund XLACS aufbaut. Die nuklearen Basisdaten bezieht AMPX aus ENDF/B. Historisch bekannte Feingruppenkonstanten-Bibliotheken sind z. B. die TEMPEST- und MUFT-Bibliothek, die 123-Gruppen-Bibliothek DLC-16, und die 218- und 227-Gruppen-Bibliotheken CSRL-IV und CSRL-V [4.4].

Der zweite Schritt in der Anpassung der Gruppenkonstanten, das Zusammenfassen mehrerer Feingruppen zu breiten Gruppen, ggf. unter gleichzeitiger Homogenisierung heterogener Strukturen, geschieht mit sogenannten Spektralcodes. Sie berechnen die Feingruppenflüsse für eine aktuelle Anordnung durch Lösen der Gleichungen (4.1) und mittels Breitgruppenkonstanten wiederum nach Gl. (4.2). Welches Verfahren zur Lösung der Gruppengleichungen gewählt wird, hängt u. a. von der Heterogenität der Anordnung, der Bedeutung der anisotropen Streuung für das System sowie von der geforderten Genauigkeit ab. Verwendet werden Erststoßverfahren, die P_l - und B_l -Näherung, thermische Wichtungsfunktionen wie Maxwell-Verteilung, Wigner-Wilkins-Light-Moderator-Gleichung und Wilkins-Heavy-Moderator-Gleichung.

Für diese Zwecke existieren eine große Anzahl von Programmen. Zu nennen sind z. B. WIMS, GAMTEC, APOLLO, BRT oder HAMMER. Durch die gestiegene Leistungsfähig-

keit der heutigen Rechenanlagen können mittlerweile auch ein- und zweidimensionale S_N -Verfahren wie XSDRN oder NEWT hierfür eingesetzt werden.

Neben der Methode, Breitgruppenkonstanten fallabhängig durch Spektralprogramme zu erzeugen, stehen auch quasi fallunabhängige vorgewichtete Vielgruppenkonstantenbibliotheken zur Verfügung. Was die Gruppenzahl angeht, stehen sie zwischen den Feingruppen- und den Breitgruppendaten und sind jeweils für die Berechnung gewisser Klassen von Spaltstoffsystemen geeignet. Dies wird durch Verifikation an experimentellen Daten nachgewiesen. Eine früher häufig verwendete derartige Bibliothek ist der 16-Gruppensatz nach Hansen-Roach, der ursprünglich als 6-Gruppensatz für schnelle Systeme entwickelt und danach im epithermischen und thermischen Bereich auf 16-Gruppen erweitert wurde. Dieser Datensatz ist für schnelle und epithermische Systeme geeignet. Eine weitere derartige Datei ist die SCALE 27-Gruppenbibliothek, die vor allem für thermische Systeme geeignet ist. Ihre Gruppeneinteilung wurde so abgestimmt, dass die Ergebnisse von Modellrechnungen für typische Systeme eine Abweichung im effektiven Multiplikationsfaktor von 0,3% nicht überschreiten [4.5], [4.5a]. Neuere Bibliotheken in diesem Paket sind die auf ENDF/B-V Daten basierende 238-Gruppen-Bibliothek, sowie deren konservative, weniger rechenintensive Kondensation auf eine 44-Gruppen-Bibliothek, welche insbesondere für Leichtwasser-moderierte Uranoxid-Systeme gut geeignet ist. Mittlerweile stehen auch ENDF/B-VI und ENDF/B-VII basierte Bibliotheken in 238 Energiegruppen im SCALE-Paket zur Verfügung [4.5b].

Gruppenkonstantendaten dieser Art werden oft als problemunabhängig bezeichnet. Das ist insofern nur bedingt richtig, als die Überlappung von Resonanznukliden damit nur pauschal berücksichtigt werden kann. Für die genaue Berechnung von Anordnungen, bei denen der Multiplikationsfaktor deutlich von der Überlappung der Resonanzen mehrerer starker Absorber abhängt, müssen besondere Rechenverfahren eingesetzt werden.

4.2 Prinzipielle Methoden

Die eigentliche Kritikalitätsrechnung besteht in der Ermittlung des Multiplikationsfaktors einer Spaltstoffanordnung. Dazu wird Gl. (4.1) unter Berücksichtigung der räumlichen Anordnungen der verschiedenen Materialien gelöst, dargestellt durch deren jeweilige Gruppenkonstanten. In das Lösungsverfahren werden dabei soweit Vereinfachungen und Näherungsannahmen eingebracht, als sie durch geometrische und neutronenphysikalische

Gegebenheiten begründet sind. Die meisten Rechenverfahren außer der Monte Carlo-Methode lassen in einer Anordnung nur einen Typ von Geometrie (Schicht, Zylinder oder Kugel) zu. Bei Anwendung der Monte Carlo-Technik dagegen können in einer Rechnung Spaltstoffsysteme unterschiedlicher geometrischer Form berechnet werden.

Regelmäßige Anordnungen gleichartiger Spaltstoffeinheiten lassen sich häufig unter Ausnutzung von Symmetrieebenen z. B. mit Hilfe reflektierender Randbedingungen darstellen, was zu einer merklichen Reduzierung der Kompliziertheit der Geometrie eines Problems führen kann. Abb. 4.3 gibt einen Überblick über den Datenfluss bei Kritikalitätsrechnungen einschließlich der in Kap. 4.1 beschriebenen Gruppenkonstantenerzeugung.

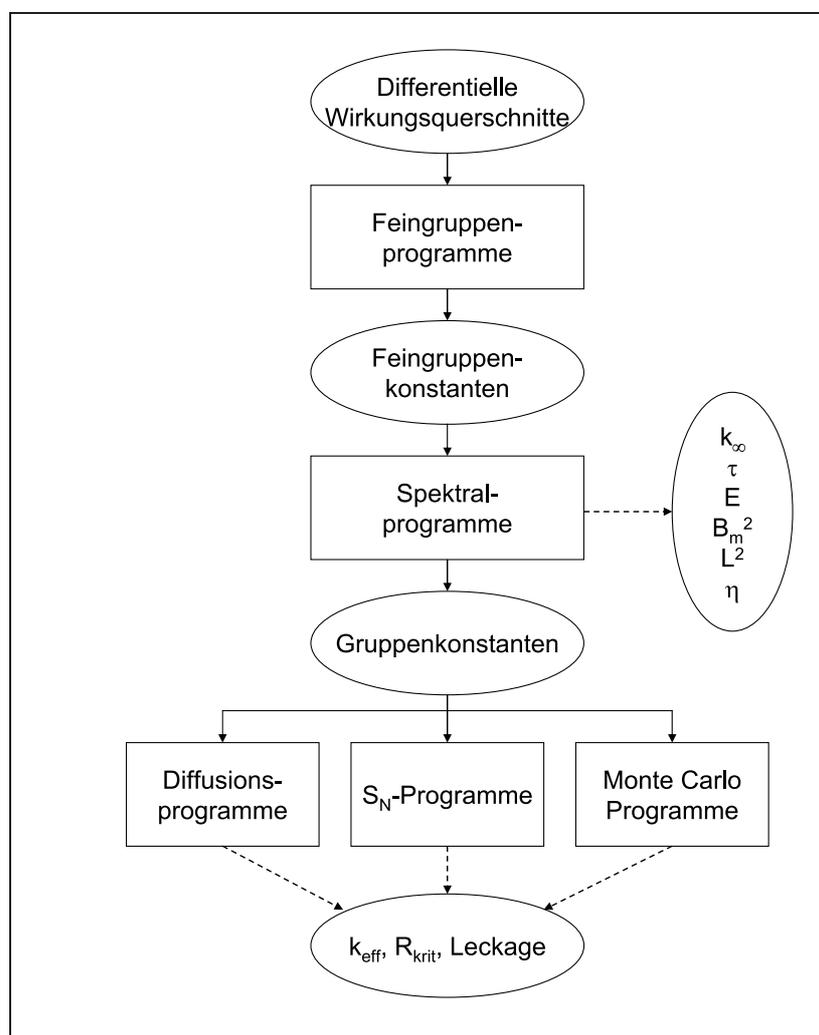


Abb. 4.3 Datenfluss bei Kritikalitätsrechnungen mit Rechenprogrammen

4.2.1 Diffusionsverfahren

Durch eine Reihe von Vereinfachungen, die die Eliminierung der Winkelvariablen bezwecken, ergibt sich aus den exakten Gruppengleichungen (4.1) die sogenannte Diffusionsnäherung der Transportgleichung:

$$D_g \cdot \Delta \phi_g(r) - \Sigma_{A,g} \cdot \phi_g(r) + Q_g(r) = 0 \quad (4.3)$$

$$\text{mit } D_g = \frac{1}{3} \cdot (\Sigma_{Tr,g})^{-1} \quad \text{und} \quad \Sigma_{Tr,g} = \Sigma_{T,g} - \Sigma_{N,g} \cdot \bar{\mu}_g$$

D_g wird als Diffusionskonstante bezeichnet. Σ_A ist die makroskopische Absorptionsgruppenkonstante. Σ_{Tr} bezieht sich auf den Transportquerschnitt, Σ_T auf den totalen Wirkungsquerschnitt und Σ_N auf die elastische Streuung. $\bar{\mu}_g$ ist der mittlere Kosinus des Streuwinkels im Laborsystem. $Q_g(r)$ ist die zusammengefasste Streu- und Spaltquelle. Die Vereinfachung der Transportgleichung zur Diffusionsnäherung hat zur Voraussetzung, dass die Absorption im Vergleich zur Streuung klein ist und die Spaltstoffanordnung selbst groß ist (keine starken Flussgradienten).

Numerisch gelöst wird das gekoppelte Gleichungssystem (4.3) meist, indem man die Ortsvariable durch eine diskrete Folge von Punkten und die Differentiale durch Differenzen ersetzt.

Die genannten Näherungen vereinfachen die Berechnung der Energiegruppengleichungen vom Typ (4.1) so weitgehend, dass Diffusionsverfahren selbst bei dreidimensionaler Geometrie schnell und zuverlässig anwendbar sind. Darstellbar sind die üblichen Geometrietypen Schicht, Kugel und Zylinder. Nicht darstellbar ist dagegen eine Mischung dieser Geometrietypen in einem Spaltstoffsystem.

Werden Diffusionsprogramme für Spaltstoffsysteme eingesetzt, die nicht voll den Randbedingungen für die Diffusionsnäherung der Neutronentransportgleichung genügen, müssen die Ergebnisse am Experiment oder durch Vergleichsrechnung mit anderen Rechenverfahren überprüft werden. Dies gilt z. B. für Systeme mit stärkeren homogenen Neutronenabsorbern, bei heterogenen Neutronenabsorbern, bei geringen Abmessungen des Spaltstoffsystems mit hoher Neutronenleckage oder bei Hohlräumen im Spaltstoffsystem.

4.2.2 S_N -Verfahren

Die Methode der diskreten Ordinaten – gewöhnlich S_N -Verfahren genannt – behandelt die Winkelabhängigkeit numerisch. Zusätzlich zur Ortsvariablen wird auch der Streuwinkel $\mu = \cos \theta$ durch diskrete Werte μ_i dargestellt. Der Satz der Gruppengleichungen (4.1) führt auf ein System gekoppelter Gleichungen, dessen Größe von der Gruppenzahl und der Anzahl der Stützstellen für Orts- und Winkelkoordinaten bestimmt ist. Ein System dieser Größe kann iterativ gelöst werden [4.5], [4.6]. Die Genauigkeit der Winkelbehandlung kann prinzipiell durch Erhöhung der Stützstellenzahl für μ gesteigert werden. Für die Kritikalitätsrechnung ist allerdings meist S_8 -Näherung ausreichend. Die Anisotropie der Streuquerschnitte wird durch P_l -Koeffizienten berücksichtigt, wobei hier P_3 -Approximation bereits hohe Ansprüche erfüllt.

Eindimensionale S_N -Verfahren, wie sie in den Programmen DTF-IV, ANISN oder XSDRN realisiert worden sind, haben sehr kurze Rechenzeiten. Aufwändiger dagegen sind Berechnungen mit Codes für zweidimensionale Geometrie, z. B. der DOT-Serie. Häufig unwirtschaftliche Rechenzeiten ergeben sich mit dreidimensionalen S_N -Codes. In [4.7] sind die Anwendungsbereiche und Kennzeichen der S_N - und der Monte Carlo-Verfahren verglichen worden.

Wie bei der Diffusionsnäherung sind verschiedene Geometrietypen nicht mischbar.

4.2.3 Monte Carlo-Methode

Während die Neutronentransportgleichung bzw. ihre Näherungen das mittlere Verhalten von Neutronen in ihrer Gesamtheit beschreiben, imitiert das Monte Carlo-Verfahren dagegen in gewisser Weise den tatsächlich ablaufenden Vorgang und beobachtet dabei jedes Neutron einzeln. Die Auswertung der Beobachtung ermöglicht Aussagen über das Spaltstoffsystem in Form statistischer Mittelwerte.

Die Genauigkeit der Statistik der Mittelwerte steigt mit der Wurzel der verfolgten Neutronenschicksale, so dass der Rechenaufwand hoch sein kann. Andererseits lassen sich dreidimensionale Anordnungen von nahezu beliebig kompliziertem Aufbau darstellen und berechnen. Insbesondere sei hier die Berechnung der Neutronenwechselwirkung von Spaltstoffanordnungen mit Zwischenmoderation erwähnt.

Bekannte Codes für die Kritikalitätsrechnung sind z. B. KENO, MORSE oder MORET. Diese Programme arbeiten mit Gruppenkonstanten. Die Codes MCNP oder MONK dagegen verwenden ungewichtete Wirkungsquerschnitte. Derartige sogenannte Punktcodes erlangen neuerdings höhere Bedeutung, insbesondere vor dem Hintergrund der stetig verbesserten Verfügbarkeit von immer höherer Rechnerleistung.

Auf die Grundlagen des Monte Carlo-Verfahrens und die für den praktischen Einsatz wesentlichen Rechentechniken und Modellierungen wird in Kap. 6.4 im Zusammenhang mit der Berechnung der Neutronenwechselwirkung ausführlicher eingegangen.

4.3 Rechenprogramme (Auswahl)

Im Folgenden ist eine Auswahl an Rechenprogrammen der verschiedenen Kategorien zusammengestellt, ohne Anspruch auf Vollständigkeit oder auf besondere Qualität der ausgewählten Rechenverfahren. Ein Großteil der Auswahl ist heutzutage vor allem noch aus historischen Gründen von Interesse, in der Praxis aber nicht mehr aktuell bzw. nicht mehr in Verwendung.

Datenbasen

- ENDF/B – R. Kinsey (ed.): Data Formats and Procedures for the Evaluated Nuclear Data File. BNL-NCS-50496 (ENDF-102), 2nd Edition (ENDF/B-V); Revised October 1979, Revised November 1983; ENDF/B-VI, last revision June 2005; ENDF/B-VII.0, issued 15. December 2006
- UKNDL – K. Parker: United Kingdom Nuclear Data Library. AWRE-0-70/63 (1963)
- KEDAK – J. J. Schmidt: Neutron Cross Sections for Fast Reactor Materials Part I: Evaluation, Part II: Tables, Part III: Graphs. KFK 120 (EANDC-E-35 U) (February 1966)
- barn – J. R. Stehn et al.: Neutron Cross Sections. BNL 325
- JENDL-3.2 – T. Nakagawa et al.: Japanese Evaluated Nuclear Data Library Version 3 Revision-2. JENDL-3.2, J. Nucl. Sci. Technol. 32 (1995); aktuell: JENDL-4.0 und JENDL-AC

- JEF-2.2 – C. Nordborg: Distribution of JEF-2.2, JEF/DOC 371 (February 1992); aktuell JEFF-3.1.1

Weiterführende Informationen zu Wirkungsquerschnittsbibliotheken sind z. B. zu finden in den Proceedings der Tagung “KTG/ENS – International *State of the Art Seminar on Nuclear Data, Cross Section Libraries and their Application in Nuclear Technology*, Bonn (October 1-2, 1985).”

Eine große Auswahl an aktuellen, internationalen Wirkungsquerschnittsbibliotheken kann im Internet in der Datenbank JANIS (“*Java-based Nuclear Data Information System*”) der OECD/NEA unter der Adresse <http://www.oecd-nea.org/janis/> sowohl tabellarisch als auch graphisch aufgerufen werden (siehe z. B. Abb. 1.2).

Feingruppenprogramme

- FLANGE – H. C. Honeck, D. R. Finch: FLANGE-II, A Code to Process Thermal Neutron Data from an ENDF/B Tape. DP-1278 (1971)
- SUPERTOG – R. Q. Wright et al.: SUPERTOG, A Program to Generate Fine Group Constants and Pn Scattering Matrices from ENDF/B. ORNL/TM-2679 (September 1969)
- XLACS – N. M. Greene et al.: XLACS: A Program to Produce Weighted Multigroup Neutron Cross Sections from ENDF/B. ORNL/TM-3646 (April 1972)
- AMPX – N. M. Greene et al.: AMPX: A Modular Code System for Generating Coupled Multigroup Neutron-Gamma Libraries from ENDF/B. ORNL/TM-3706, revised to level of AMPX-II (December 1978), AMPX-77 (October 1992), AMPX-2000 (September 2004)
- NJOY – R. E. MacFarlane, D. W. Muir: The NJOY Nuclear Data Processing System Version 91, LA-12740-M (1994)

Spektralprogramme

- WIMS – F. J. Fayers et al.: LWR-WIMS – A Modular Computer Code for the Evaluation of Light Water Reactor Lattices, AEEW-R-785, Pt 1, 1972; W. R. Joubert: An Update

of the Cell Code WIMSD4 (WIMSD 4.1), PEL 294, July 1990

- GAMTEC – L. L. Carter et al.: GAMTEC-II: A Code for Generating Consistent Multi-group Constants Utilized in Diffusion and Transport Theory Calculations. BNWL-35, March 1965
- APOLLO – Code multigroupe de résolution de l'équation du transport pour les neutrons thermiques et rapides. CEA-N 1610, Saclay (1973)
- BRT – C. L. Bennett, W. L. Purcell: BRT-I: Battelle Revised THERMOS. BNWL-1434, June 1970
- HAMMER – J. E. Suich, H. C. Honeck: The HAMMER System. DP-1064, January 1967
- XSDRN – N. M. Greene, C. W. Craven jr: XSDRN: A Discrete Ordinates Spectral Averaging Code. ORNL-TM-2500 (July 1969)
- CASMO – M. Edenius, B. H. Forssen: CASMO-3, User's Manual, Studsvik/NFA-89/3, Studsvik of America (1989); aktuelle Version CASMO-5
- HELIOS – R. Stamm'ler et al., Generalized Geometry Lattice Code, Studsvik Scand-power

Diffusionsprogramme

- FOG – H. P. Flatt. The FOG One-Dimensional Diffusion Equation Codes. USAEC Report NAA-SR-6104, Canoga Park, California (1961)
- CITATION – T. B. Fowler et al.: Nuclear Reactor Core Analysis Code CITATION-II. ORNL-TM-2496, Rev. 2, Oak Ridge National Laboratory, July 1971
- EXTERMINATOR – T. B. Fowler et al.: EXTERMINATOR-II, a FORTRAN-IV Code for Solving Multigroup Neutron Diffusion Equations in Two Dimensions. ORNL-4078, Oak Ridge National Laboratory, April 1967

S_N -Programme

- DTF-IV – K. D. Lathrop: DTF-IV, a FORTRAN-IV Program for Solving the Multigroup Transport Equation with Anisotropic Scattering. LA-3373, November 1965

- ANISN – W. W. Engle jr.: A User's Manual for ANISN, a One-Dimensional Discrete Ordinates Code with Anisotropic Scattering. K-1693, 1967
- DOT – W. A. Rhoades et al.: An Updated Version of the DOT 4 One- and Two-Dimensional Neutron/Photon Transport Code. ORNL-5851 (April 1982)
- DORT – W. A. Rhoades et al.: The DORT Two-Dimensional Discrete Ordinates Transport Code. Nuclear Science and Engineering, Vol. 99, pp 88f, May 1988
- TORT – W. A. Rhoades et al.: The TORT Three-Dimensional Discrete Ordinates Neutron/Photon Transport Code. ORNL-6268, November 1987

Monte Carlo-Programme

- KENO – L. M. Petrie, N. F. Landers: KENO-Va, An Improved Monte Carlo-Criticality Program with Supergrouping. ORNL/NUREG/CSD-2/V1/R2, March 1983, August 1990
- MORSE – M. B. Emmett: The MORSE Monte Carlo-Radiation Transport Code System. ORNL-4972 (1975)
- MORET – Un Programme Monte Carlo-pour le calcul rapide des coefficients de multiplication effectifs de milieux fissiles dans des géométries complexes. Rapport IPSN 93/3, 1993
- MONK – V. S. W. Sheriffs: Monk – A General Purpose Monte Carlo-Neutronics Program. SRD-R86, 1978
- MCNP – J. F. Briesmeister (ed.): MCNP – A General Monte Carlo-N-Particle Transport Code, Version 5 1.40, MCNP5 Release Notes LA-UR-05-8617 (Oct. 2006).
- TRIPOLI-IV – J. P. Both, A. Mazzolo, O. Petit, Y. Penelieu, B. Roesslinger, User Manual for version 4.3 of the TRIPOLI-4 Monte Carlo-method particle transport computer code, CEA-Report: CEA-R-6044, DTI, CEA/Saclay, France, 2003

Programm-Systeme

- *SCALE: A Comprehensive Modeling and Simulation Suite for Nuclear Safety Analysis and Design*, ORNL/TM-2005/39, Version 6.1, Oak Ridge National Laboratory, Oak

Ridge, Tennessee, June 2011. Available from Radiation Safety Information Computational Center at Oak Ridge National Laboratory as CCC-785.

- CRISTAL – J. M. Gomit, P. Cousinou, A. Duprey, C. Diop, J.P. Grouiller, L. Leyval, H. Toubon, E. Lejeune, The new CRISTAL Criticality-Safety Package, Proc. Int. Conf. on Nuclear Criticality Safety, ICNC99, Versailles, France, Sept. 20-24, 1999, I, 308 (1999).

4.4 Validierung von Rechenverfahren

Nach [4.8], [4.9] sind die Ergebnisse von Berechnungen zur Kritikalitätsanalyse anwendbar, wenn die Eignung des Rechenverfahrens durch Vergleich mit experimentellen Werten erwiesen ist. Anforderungen an die Validierung von Rechenprogrammen und ihren zugehörigen Datenbasen sind in [4.10], [4.11] enthalten.

Bei Validierungen von Rechenverfahren und der eingesetzten Wirkungsquerschnitte sind folgende Ungenauigkeiten zu unterscheiden:

- Ungenauigkeit der experimentellen Werte,
- Ungenauigkeit der mathematischen Rechenmethode und ihrer numerischen Umsetzung,
- Ungenauigkeit der verwendeten Wirkungsquerschnitte,
- Ungenauigkeit der Modellierung des Rechenproblems.

Hinzutreten können Fehler bei der Programm Benutzung, z. B. durch Wahl ungeeigneter Codeoptionen, ungünstiger Energiegruppenstruktur und ungenügender Resonanzbehandlung oder als Eingabefehler. Jede Validierung ist insofern auch eine Nachprüfung einer qualifizierten Programm Benutzung und kann wertvolle Hinweise für eine weitere Verbesserung der rechnerischen Kritikalitätsanalyse und Erhöhung ihrer Genauigkeit liefern. Um die Zuverlässigkeit von Kritikalitätsrechnungen zu erhöhen und Bedienungsfehler auszuschließen, können bei der Gestaltung von Rechenprogrammen und der Berechnung selbst vielerlei Maßnahmen hilfreich sein, z. B.:

- Verständliche und benutzerfreundliche Programmeingabe,
- Überprüfung der eingegebenen Daten anhand eines ausführlichen Ausdrucks, zum

- Teil durch programminterne Checks,
- Überprüfung der Konvergenz des Programms,
 - Berechnung mehrerer ähnlicher Probleme, um Trends zu erkennen (z. B. besonders wichtig, wenn ungünstigste Moderationsverhältnisse ermittelt werden sollen),
 - Unabhängige Gegenrechnung mit anderen Rechencodes, durch andere Benutzer,
 - Sensitivitätsanalyse bezüglich der verwendeten Wirkungsquerschnitte und Energiegruppeneinteilung,
 - Überprüfung von Reaktionsraten, Neutronenflüssen,
 - Vergleich mit veröffentlichten oder früher durchgeführten Validierungsrechnungen,
 - Überprüfung des Rechenmodells durch Vergleich mit den tatsächlichen chemisch-physikalischen Anlagegegebenheiten.

Typische Beispiele für Fehler, die dem Programmbenutzer bei der Kritikalitätsanalyse unterlaufen können, sind in [4.12], [4.13] dargestellt. All dies unterstreicht die Bedeutung einer unabhängigen Überprüfung von Rechenergebnissen durch eine zweite Berechnung.

Die Ungenauigkeiten der experimentell ermittelten Kritikalitätsparameter sind längst nicht bei allen durchgeführten Experimenten mit hinreichender Sorgfalt bestimmt worden [4.14]. Außerdem treten Unstimmigkeiten bei der Angabe der Spaltstoffzusammensetzung, der Struktur- und Reflektormaterialien und selbst bei den geometrischen Abmessungen relativ häufig auf. Selten sind Unsicherheitsbänder bei den gemessenen Füllhöhen angegeben. Auch mögliche Rückstreuungen von Neutronen durch Wände und eingesetzte Strukturmaterialien können im Einzelfall bedeutsam sein.

Die Ungenauigkeit der mathematischen Methode ist bei Diffusions- und Transportrechnung mit S_N -Programmen meist klein und trägt nur wenig zu der beobachteten Abweichung zwischen Rechenergebnissen und experimentellen Werten bei. Gewisse Beiträge können sich aus der Wahl der Stützpunkte (vor allem bei Diffusionsrechnungen), dem gewählten Konvergenzkriterium, der Boltzmann-Näherung und der verwendeten S_N -Ordnung ergeben. Bei der statistischen Monte Carlo-Methode ist vor allem eine ausreichend hohe Anzahl von verfolgten Neutronenschicksalen notwendig, um kleine Standardabweichungen der Ergebnisse zu erzielen. Ausdrücklich ist darauf hinzuweisen, dass diese

Standardabweichung lediglich die Unsicherheit der Statistik abdeckt, nicht jedoch die Unsicherheit zwischen Rechnung und Experiment.

Die Ungenauigkeit der Wirkungsquerschnitte lässt sich nicht isoliert im Hinblick auf das Gesamtergebnis, üblicherweise den Multiplikationsfaktor, bewerten. Trotzdem kann es lohnend sein, auch die Wirkungsquerschnitte besonders wichtiger Nuklide, z. B. von Neutronenabsorbern, bezüglich ihrer Konsistenz mit Messwerten und ihres Einflusses auf das Endergebnis näher zu überprüfen. Gleiches gilt für die Variation der Gruppenanzahl und -einteilung sowie für die verwendete Resonanzbehandlung.

Auch die Ungenauigkeit, die die Modellierung der experimentellen Anordnung bei der Berechnung hervorruft, kann nicht für sich alleine bestimmt werden. Allenfalls können unterschiedliche Modelle bei der Berechnung helfen, diese Einflüsse quantitativ zu erfassen.

Bei der Validierung von Rechenmethoden und den hierbei verwendeten Datenbasen wird die Abweichung zwischen berechneten und experimentell bestimmten Werten, in der Regel des Multiplikationsfaktors, ermittelt. Diese Abweichung enthält somit Ungenauigkeiten der experimentellen Daten, der Rechenmethode, der Wirkungsquerschnitte und der Modellierung der Rechnung; diese Einzelbeiträge überlappen sich dabei und können i. A. nicht einzeln quantifiziert werden. Um eine möglichst breite Basis für die Bestimmung der Abweichung zwischen Rechnung und Experiment zu erhalten, werden Serien gleichartiger oder ähnlicher Experimente berechnet. Diese Validierungsmatrix muss jeweils im Hinblick auf die Art der Probleme, für die die Rechenmethode validiert werden soll, festgelegt werden. Um Trends oder Abweichungen spezieller Einzelfälle erkennen zu können, ist eine möglichst breit angelegte Validierungsmatrix zu bevorzugen. Wenn wegen des hohen Aufwands nur eine Berechnung einzelner Experimente durchführbar erscheint, sollten diese Experimente so ausgewählt werden, dass sie die Einbeziehung bereits vorhandener Rechenergebnisse, z. B. aus Veröffentlichungen, erlauben.

Üblicherweise werden die Validierungsrechnungen als Nachrechnung meist kritischer Systeme (Multiplikationsfaktor $k = 1,0$) durchgeführt. In einzelnen Fällen wurden auch Vorausrechnungen und Vergleichsrechnungen für unterkritische Systeme ($k < 1$) ausgeführt [4.15]. Die Validierungsrechnungen sind mit der Darstellung der verwendeten Rechenmethoden, den Wirkungsquerschnittssätzen und dem Rechenmodell zu dokumen-

tieren. Sehr nützlich ist eine Dokumentation der verwendeten Programmeingabegrößen und der Programmausgabe.

Die Auswertung der ermittelten Abweichungen zwischen Rechnung und Experiment, insbesondere die Ableitung eines Unsicherheitsbandes für künftige Berechnungen, ist nicht einfach. Dabei sind die Breite der Validierungsmatrix und die Variation der erzielten Ergebnisse sorgfältig im Hinblick auf die Problemstellung zu berücksichtigen. Der Vergleich der experimentell und rechnerisch bestimmten Ergebnisse kann ergeben, dass

- alle Rechenwerte gleichmäßig, mit Trend oder mit unregelmäßigen Schwankungen über oder unter den experimentellen Werten liegen,
- die Rechenwerte unregelmäßig zum Teil über, zum Teil unter den Werten der Experimente liegen,
- einzelne Rechenwerte (oder experimentelle Werte) „danebenliegen“, also nicht dem Trend der übrigen Ergebnisse folgen.

Bei gleichmäßigem oder einheitlichem Trend ist die Ableitung von Unsicherheitsbändern relativ einfach. Ein möglicher Weg ist in [4.16] gewiesen. Ist ein Trend ohne weiteres nicht zu erkennen, wird man ohne tiefere Untersuchungen in der Regel von der größten beobachteten Abweichung ausgehen.

Weist die Validierung auf eine systematische Unterschätzung der Reaktivität hin, so ist diese dem berechneten Multiplikationsfaktor hinzuzurechnen. Bei einer Überschätzung der Reaktivität sollte in der Regel von $k_{\text{eff}} = 1$ ausgegangen werden. Liegen vereinzelt Werte nicht im Trend der übrigen Resultate, muss sorgfältig untersucht werden, welche Gründe hierzu geführt haben. Häufig liegt die Ursache für die ungewöhnliche Abweichung beim Experiment oder in fehlerhafter Anwendung des Rechenverfahrens.

Darüber hinaus inzwischen stehen moderne Sensitivitäts- und Unsicherheitsanalysecodes, wie z. B. XSUSA der GRS oder TSUNAMI aus dem SCALE-Paket [4.5b] bzgl. Wirkungsquerschnitten, sowie SUSAN, SUNCISTT [4.22] oder SUS3D, ergänzend zur Verfügung. Eine Methode zur Validierung für Rechenverfahren zur Bestimmung des Nuklidinventars bestrahlter Druckwasserreaktor-Brennelemente sowie zu Kritikalitätsrechenverfahren jeweils durch Nachrechnung und Auswertung geeigneter Experimente ist z. B. in dem Bericht GRS-336 [4.23] beschrieben.

4.5 Qualitätssicherung bei Kritikalitätsrechnungen

Der folgende Text dieses Abschnitts entstammt weitgehend dem Bericht: „Auswertung von kritikalitätsrelevanten besonderen Vorkommnissen in Brennelementfabriken“, W. Thomas, Schriftenreihe des BMU 1995–449 (1995).

Die Kritikalitätsauslegung von Anlagen basiert heute zum größten Teil auf den Ergebnissen von Berechnungen mit speziellen Rechenprogrammen, die umfangreiche Datenbibliotheken verwenden und umfangreiche Fachkenntnisse bei ihrem Einsatz verlangen. Rechenmethoden und Datenbibliotheken werden laufend durch eingehende Vergleiche der Rechenergebnisse mit den Ergebnissen von Kritikalitätsexperimenten abgesichert. Auf internationaler Ebene werden sogenannte Standardproblem-Rechnungen (Benchmarks) veranstaltet, die eine Qualifizierung der Programme und Datenbibliotheken, aber auch der jeweiligen Benutzer erlauben [4.15], [4.17]–[4.21].

Die Ergebnisse dieser Standardproblem-Rechnungen sind in den meisten Fällen sehr gut, auch wenn bei komplizierten Beispielen Abweichungen auftreten, die wertvolle Hinweise für eine weitere Ertüchtigung der Rechenprogramme und ihrer Datenbibliotheken ergeben. Die Ergebnisse zeigen aber auch, dass je nach Problemstellung Abweichungen auftreten, die häufig 1–2 % im berechneten Multiplikationsfaktor betragen und damit größer sind als bei der Kernausslegung von typischen Leichtwasserreaktoren. Genauigkeitserwartungen aus der Kernausslegung können somit nicht auf Prozessanlagen oder Transportbehälter übertragen werden.

Die Erfahrungen mit den Standardproblemen und die langjährige Praxis bei den Kritikalitätsrechnungen zeigen, dass auffällige Fehlberechnungen kaum vorkommen. In der Regel ist damit eine hohe Qualitätssicherung der Berechnungen verbunden. Auch Eingabefehler oder rechentechnische Unzulänglichkeiten, wie zu geringe Statistik oder Scheinkonvergenz bei Monte Carlo-Rechnungen, sind seltene Ausnahmen. Durch Code-implizite Fehlerprotokolle und unterstützende Instrumente zur Überprüfung der Eingabedaten kann hier die Fehlerrate sehr klein gehalten werden.

Wie die Erfahrung zeigt, besteht die größte Unzulänglichkeit bei der Durchführung von Kritikalitätsanalysen eher in der unangemessenen Modellierung der Situation und der mangelnden Berücksichtigung von möglichen physikalischen und chemischen Verände-

rungen dieser Situation. Es ist daher sehr wichtig, dass die Kritikalitätsanalyse im Zusammenwirken der Kritikalitäts- und Code-Experten mit den Verfahreningenieuren durchgeführt wird. Gute Anlagenkenntnisse sind unerlässlich.

Die Anwendung von Techniken zur systematischen Erkennung von Störungsmöglichkeiten, wie dem PAAG-Verfahren (**P**rognose, **A**uffinden der Ursache, **A**bschätzen der Auswirkungen, und **G**egenmaßnahmen; deutsche Umsetzung der in Großbritannien entwickelten HAZOP-Technik (*hazards and operability*), oder der Fehlerbaumanalyse liefert wertvolle Beiträge auch bei der Analyse der Kritikalitätssicherheit. In manchen Fällen ist auch die Hinzuziehung eines Chemikers oder eines Werkstoffkundlers von großem Nutzen, wenn es um die möglichen Veränderungen der chemischen Randbedingungen und die langfristige Beständigkeit von Materialien, insbesondere von Neutronenabsorbern, geht.

Zu möglichen Fehlerquellen oder einem falschen Einsatz von Rechenprogrammen gibt es einige Veröffentlichungen und Hinweise, die wertvolle Hilfe bei der Qualitätssicherung bieten können. Auch Behörden (z. B. die US NRC) oder internationale Gremien (NEA-Databank) geben aus aktuellem Anlass Hinweise oder Warnungen bei der Benutzung von Rechenprogrammen.

Immer bedeutsamer wird auch die Ausarbeitung und Durchführung eines geeigneten Ausbildungsprogramms für jüngere Kritikalitätsexperten, damit die gewonnenen Erfahrungen weitergegeben werden können.

4.6 Literatur zu Kapitel 4

- [4.1] G. I. Bell, S. Glasstone: Nuclear Reactor Theory, Van Nostrand Co., New York, 1970.
- [4.2] D. Emendörfer, K. H. Höcker: Theorie der Kernreaktionen. BI-Wissenschaftsverlag, 1982.
- [4.3] A. Ziegler: Lehrbuch der Reaktortechnik, Bd. 1 Reaktortheorie, Springer-Verlag Berlin, 1983.
- [4.4] W. E. Ford et al.: CSRL-V: Processed ENDF/B-V 227 Neutron Group and Pointwise Cross Section Libraries for Criticality Safety, Reactor and Shielding Studies. NUREG/CR-2306, ORNL/CSD/TM-160, June 1982.
- [4.5] R. M. Westfall et al.: Procedure for Determining Broad Group Energy Structure for Criticality Safety Calculations. Trans. Am. Nucl. Soc., 22, 291, 1975.
- [4.5a] B. G. Carlson: Numerical Formulation and Solution of Neutron Transport Problems. LA-2996 (1964).
- [4.5b] *Scale: A Comprehensive Modeling and Simulation Suite for Nuclear Safety Analysis and Design*, ORNL/TM-2005/39, Version 6.1, June 2011. Available from Radiation Safety Information Computational Center at Oak Ridge National Laboratory as CCC-785.
- [4.6] J. J. Duderstadt, W. R. Martin: Transport Theory. John Wiley & Sons, 1979.
- [4.7] E. M. Gelbard: Comparison of Discrete Ordinates and Monte Carlo: Capabilities and Weaknesses. Proc. Nuclear Criticality Safety. El Paso, 8–10.4.1980.
- [4.8] ISO 1709, Nuclear Energy – Fissile Materials – Principles of Criticality Safety in Storing, Handling and Processing, Second Edition – 1995-11-01, Nov. 1995.
- [4.9] DIN 25403, Teil 1, Kritikalitätssicherheit bei der Verarbeitung und Handhabung von Kernbrennstoffen, Grundsätze (Juni 2007).
- [4.10] ANS-8.1-1983 (R1988): Nuclear Criticality Safety in Operations with Fissionable Materials Outside Reactors. R1988.
- [4.11] DIN 25478: Einsatz von Berechnungssystemen beim Nachweis der Kritikalitätssicherheit (Juli 1994).

- [4.12] H. K. Clark: Snake Bites From Code Misuse and Overuse. Proc. Nuclear Criticality Safety. El Paso, 8.-10. April 1980.
- [4.13] Pitfalls and Quality Assurance Practices in Criticality Safety, Trans. Am. Nucl. Soc., 28, 281 – 292, 1978.
- [4.14] Validation Experiences in Criticality Safety, Trans. Am. Nucl. Soc, 49, p. 233 – 243, June 1985.
- [4.15] OECD/NEA: Standard Problem Exercise on Criticality Codes for Spent LWR Fuel Transport Containers. CSNI Report No. 71, May 1982.
- [4.16] ANS/ANSI-8.17-1984 (R1989): Criticality Safety Criteria for the Handling, Storage and Transportation of LWR Fuel Outside Reactors.
- [4.17] OECD/NEA: Standard Problem Exercise on Criticality Codes for Large Arrays of Packages of Fissile Materials.
- [4.18] OECD/NEA: Standard Problem Exercise on Criticality Codes for Dissolving Fissile Oxides in Acids, NEACRP-L-306, April 1990, NEACRP-L-320, Dec. 1990.
- [4.19] OECD/NEA: Burnup Credit Criticality Benchmark, Results of Phase 1 A, NEA/NSC/DOC(93)-22, January 1994.
- [4.20] OECD/NEA: Burnup Credit Criticality Benchmark, Results of Phase 1 B, NEA/NSC/DOC(96)-06, June 1996.
- [4.21] OECD/NEA: Burnup Credit Criticality Benchmark, Results of Phase II A, NEA/NSC/DOC(96)-01, February 1996.
- [4.22] M. Stuke, M. Behler, M. Bock, F. Rowold, “SUnCISTT – A Generic Code Interface for Uncertainty and Sensitivity Analysis,” in Proceedings of: PSAM 12 – Probabilistic Safety Assessment and Management, Honolulu, Hawaii, USA, June 22-27, 2014.
- [4.34] M. Behler, V. Hannstein, R. Kilger, F.-E. Moser, A. Pfeiffer, M. Stuke, „Quantifizierung der Rechengenauigkeit von Codesystemen zum Abbrandkredit durch Experimentnachrechnungen“, GRS-336, ISBN 978-3-944161-16-7, GRS, 2014.

5 Spezielle Spaltstoffsysteme

5.1 Absorber

5.1.1 Neutronenabsorber und ihre Anwendung

Die Kritikalitätssicherheit von Spaltstoffsystemen kann, wie in Kap. 2.1.7 erwähnt, durch den Einsatz von Neutronenabsorbern, d. h. von Stoffen mit hohem Absorptionsvermögen für Neutronen, erreicht werden. Dabei sind die Spaltstoffsysteme im bestimmungsgemäßen Betrieb meist auch ohne Neutronenabsorber kritikalitätssicher; der Einsatz von Neutronenabsorbern gewährleistet zusätzliche Sicherheit bei Störfallbedingungen, z. B. bei abnorm hoher Moderation oder bei Spaltstoffausfällungen.

Der Neutroneneinfang durch die Neutronenabsorber führt zur Emission von α -Teilchen, Protonen oder γ -Quanten. Man spricht dann von (n, α) , (n, p) oder (n, γ) -Reaktionen. Der ursprüngliche Absorberkern wird dabei entsprechend umgewandelt. So verläuft der Neutroneneinfang in Bor, einem der wichtigsten Neutronenabsorber, nach der Kernreaktion $^{10}\text{B}(n, \alpha)^7\text{Li}$. Die durch diesen Prozess verursachte Verringerung der Konzentration des Neutronenabsorbers ist abhängig von der Neutronenflussdichte. Darauf beruht z. B. der Einsatz der sogenannten abbrennbaren Neutronengifte in Kernreaktoren. Für die Kritikalitätssicherheit unterkritischer Systeme spielt dieser Effekt jedoch keine Rolle, da die Neutronenflussdichte i. A. sehr klein ist.

Das Absorptionsvermögen der verschiedenen Isotope hängt sehr stark von der Energie bzw. von der Geschwindigkeit der auftreffenden Neutronen ab. Im allgemeinen steigt die Wahrscheinlichkeit für einen Neutroneneinfang umgekehrt proportional zur Geschwindigkeit der Neutronen ($1/v$ -Verhalten). Ein derartiges Verhalten zeigen viele Elemente und Isotope (siehe Abb. 5.1, Bor), es gibt jedoch auch starke Abweichungen. Für Cadmium z. B. sinkt oberhalb von etwa 0,4 eV das Absorptionsvermögen für Neutronen rapide ab. Im epithermischen Bereich ist somit Cadmium praktisch unwirksam, während Bor noch eine beachtliche Absorptionswirkung aufweist.

Bei schnellen Systemen ist jedoch ein Einsatz der Neutronengifte nicht mehr sinnvoll. Zwei praktische Beispiele mögen die Energieabhängigkeit der Absorptionswirkungsquerschnitte σ_A bzw. Σ_A verdeutlichen:

- Bei der Vergiftung einer Lösung mit borhaltigen Raschigringen nimmt wegen des härter werdenden Neutronenspektrums die Absorptionswirkung der Ringe mit zunehmender Konzentration des Spaltstoffs ab. Bildet sich etwa ein Niederschlag sehr hoher Konzentration, so kann durch Vergiftung allein die Kritikalitätssicherheit nicht mehr eingehalten werden.
- Werden trockene Uranoxidpellets in mit Cadmium vergifteten Behältern gelagert oder transportiert, so ist diese Vergiftung im Normalfall nahezu unwirksam. Erst im Störfall einer Wasserflutung und -reflexion schützt die Cadmiumschicht vor einem unzulässigen Anstieg der thermischen Neutronenflussdichte durch weitgehende Ausschaltung der reflektierenden Wirkung des Wassers.

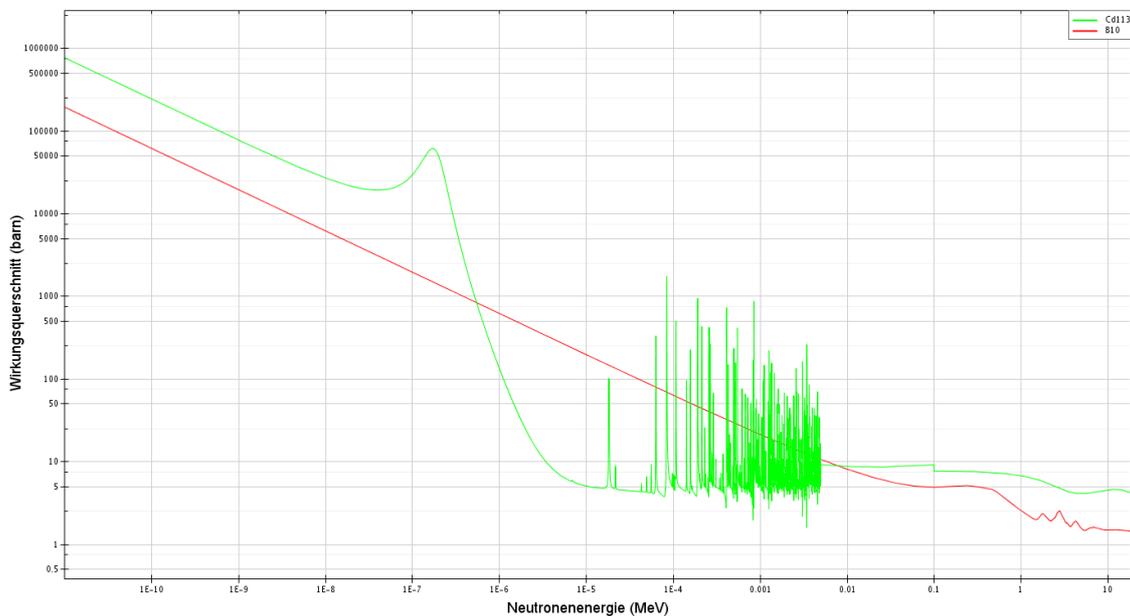


Abb. 5.1 Energieabhängigkeit der totalen Neutronenabsorptionsquerschnitte für die Isotope Cadmium ^{113}Cd und Bor ^{10}B

Häufig geht man bei der Beurteilung der Kritikalitätssicherheit von der reaktivsten Spaltstoff-Moderatormischung, der optimalen Moderation bezüglich der Masse oder der Geometrie aus. Vergiftet man ein optimal moderiertes System mit einem Neutronenabsorber, so kann eine beachtliche Verschiebung des Punktes optimaler Moderation eintreten. Bei der Berechnung homogen oder heterogen vergifteter Systeme ist daher stets gegenüber dem unvergifteten Fall zu prüfen, ob man tatsächlich die bei der vorhandenen Vergiftung reaktivste Spaltstoffkonzentration berücksichtigt.

Die Verwendung von Neutronengiften als alleinige Sicherheitsmaßnahme sollte vermieden werden, da experimentelle Ergebnisse meist nicht unmittelbar auf die aktuelle Situation übertragbar sind und die Berechnung von Systemen mit Neutronenabsorbern, vor allem bei Überlappung der Resonanzen im epithermischen Energiebereich, schwieriger und zum Teil mit größeren Unsicherheitsbreiten behaftet ist. Außerdem wäre in solchen Fällen ein sehr hoher Überwachungsaufwand bezüglich der Wirksamkeit des Neutronenabsorbers erforderlich.

Bei der üblichen Verwendung von Neutronenabsorbern als zusätzliche Sicherheit für Störfallbedingungen können die üblichen Sicherheitsfaktoren nach Kap.2.2.1, bzw. ein zulässiger k_{eff} -Wert von $\leq 0,95$ herangezogen werden. Bei komplexen Fällen (komplizierte Geometrie, Resonanzüberlappungen und schwer kontrollierbare Prozessbedingungen) sollte ein $k_{\text{eff}} \leq 0,90$ eingehalten werden, sofern keine angemessenen Möglichkeiten zur Verifizierung der Rechnung an Experimenten gegeben sind.

Bei homogener Vergiftung oder bei dem Einsatz von Borraschigring-Absorbern oder anderen Füllkörpern sollte k_{∞} den Wert von 0,95 nicht überschreiten.

5.1.2 Eigenschaften der Neutronenabsorber

Als wichtigste Charakterisierung des Absorptionsvermögens sind die mikroskopischen thermischen Absorptionsquerschnitte σ_a bei der Neutronenenergie $E_{\text{th}} = 0,0253 \text{ eV}$ angegeben. Bei der Beurteilung eines Absorbers muss außerdem die Atomzahldichte und damit die Dichte des Absorbermaterials berücksichtigt werden (makroskopische Wirkungsquerschnitte).

Dabei ist zu beachten, dass aus technischen Gründen häufig nur reduzierte Absorberschichten oder begrenzte Absorberkonzentrationen erreichbar sind. So beträgt die erreichbare Dichte von einvibriertem B_4C -Pulver nur etwa 65 % der theoretischen Dichte für B_4C , die Löslichkeit von Borsäure erreicht bei 20°C etwa 40 g/l.

Beachtenswert sind auch die schwachen Absorber, z. B. Stickstoff, Stahl oder Chlor, die trotz ihrer mäßig hohen Absorptionsquerschnitte durch die oft hohe Konzentration, Dichte oder Menge eine beachtliche Reaktivitätsverringerung bewirken können. Bei Abstützung von Sicherheitsüberlegungen auf diese Absorber ist jedoch wegen häufig wechselnder

Prozessbedingungen Vorsicht geboten (wechselnde Säurekonzentrationen HNO₃, geändertes Design bei Stahlwandungen, Korrosion, etc.). In Tab. 5.1 sind die wichtigsten starken und schwachen Neutronenabsorber zusammengestellt.

Tab. 5.1 Thermische Absorptionsquerschnitte σ_a wichtiger Neutronenabsorber bei $E_{th} = 0,0253 \text{ eV}$

Ordnungszahl	Element, Isotop	Mikroskopischer Wirkungsquerschnitt σ_a (barn) [5.2, 5.6]
5	B	759 ± 2
5	¹⁰ B	3837 ± 10
7	N	$1,85 \pm 0,05$
17	Cl	$33,2 \pm 0,5$
22	Ti	$6,1 \pm 0,2$
24	Cr	$2,9 \pm 0,2$
25	Mn	$13,3 \pm 0,1$
26	Fe	$2,55 \pm 0,05$
	Edelstahl	2,87
27	Co	$37,2 \pm 0,6$
28	Ni	$4,6 \pm 0,1$
48	Cd	2450 ± 30
49	In	194 ± 3
54	Xe	$24,5 \pm 1$
54	¹³⁵ Xe	$(3,0 \pm 0,4) \cdot 10^6$
60	Nd	48 ± 2
62	Sm	5820 ± 100
62	¹⁴⁹ Sm	41000 ± 2000
63	Eu	4400 ± 30
64	Gd	49000 ± 2000
64	¹⁵⁷ Gd	$\approx 2,55 \cdot 10^5$
66	Dy	930 ± 20
72	Hf	105 ± 5

In Tab. 5.2 sind schließlich häufig verwendete Absorbermaterialien mit ihren für die Kritikalitätssicherheit wichtigen Daten angegeben (in Tab. 1.1 auf S. 4 wurden bereits Querschnitte für Absorption und Spaltung wichtiger Aktinoide zusammengefasst).

Tab. 5.2 Eigenschaften wichtiger Absorbermaterialien

Material	Summenformel	Dichte g/cm ³	Zusammensetzung		
			Elem.	Gew.-%	Atom-%
Boral	B ₄ C-Al	2,53	B	27,5	45,60
			C	7,5	11,21
			Al	65,0	43,19
Borax	Na ₂ B ₄ O ₇ · 10 H ₂ O	1,7	Na	12,06	4,65
			B	11,34	9,30
			O	71,35	39,54
			H	5,25	46,51
Borsäure	H ₃ BO ₃	1,46	H	4,85	42,86
			B	17,49	17,28
			O	77,66	42,86
Borkarbid ¹	B ₄ C	2,54	B	78,28	80,0
			C	21,72	20,0
Bor (nat.)	B	2,3			
Bor-Edelstahl (1 Gew.-% Bor)		8,027	B	1,0	4,923
			Fe	67,0	63,846
			Cr	19,0	19,446
			Ni	13,0	11,785
Borstahl (1 Gew.-% Bor)		7,87	B	1,0	4,94
			Fe	98,3	94,40
			O	0,2	0,66
Borglas (12,86% B ₂ O ₃)		2,22	B	4,0	
		bis	Si	40,74	
		2,51	O	55,26	
Cadmium	Cd	8,64			
Gadolinium	Gd	7,948			
PVC		1,65	C	39,3	33,3
			H	4,3	50,0
			Cl	56,4	16,7
Hafnium	Hf	13,3			

Bei Boral und Borkarbid hängt die Wirksamkeit stark von der Korngröße ab. Bei letzterem ist zudem durch das übliche Einvibrierten nur eine Dichte von $\approx 1,7 \text{ g/cm}^3$ anstatt der in Tab. 5.2 angegebenen $2,54 \text{ g/cm}^3$ (theoretische Dichte) erreichbar.

5.1.3 Homogene Neutronenabsorber

Wird der Neutronenabsorber homogen mit dem Spaltmaterial vermischt, so spricht man von homogener Vergiftung (z. B. gelöste Borsäure in Spaltstofflösungen). Die Berechnung derartiger Systeme erfolgt in gleicher Weise wie die unvergifteter homogener Spaltstoffsysteme und ist somit ohne größere Probleme.

Beim Einsatz homogener Vergiftung muss in der Praxis stets eine gleichmäßige Konzentration des Absorbers und möglichst auch des Spaltstoffes gewährleistet werden. Da die für die Kritikalitätssicherheit benötigte Konzentration des Absorbermaterials stark von der Spaltstoffkonzentration abhängt, sollte diese sehr konservativ in Rechnung gestellt werden (Ausfällungen). Wegen der begrenzten Löslichkeit der Borsäure ist außerdem eine homogene Vergiftung von Lösungen mit mehr als 100 g ^{235}U oder ^{239}Pu pro Liter kaum möglich. Um eine erhöhte Absorberwirkung von Bor zu erzielen, ist es aber möglich, das stark absorbierende Isotop ^{10}B gegenüber dem weniger wirksamen Isotop ^{11}B künstlich anzureichern.

In den Teilen 2 und 3 des vorliegenden Handbuchs, Abbildungen 1.F.16 und 10.F.17, sind kritische und unterkritische k_{∞} -Werte für homogene Vergiftung angegeben. Die zu Kritikalitätssicherheit führende Borkonzentration sollte doppelt so hoch sein wie die für $k_{\infty} = 1,0$ nötige Konzentration.

Homogene Vergiftung ist insbesondere auch bei heterogenen Spaltstoffanordnungen eine wichtige Maßnahme zum Erreichen eines bestimmten Reaktivitätszustandes (Borierung des Wassermoderators in einem UO_2 -Stabgitter, z. B. im Abklingbecken eines Druckwasserreaktors). Als Mittel zur Erlangung der Kritikalitätssicherheit spielt eine homogene Borierung besonders bei sehr niedrigen Anreicherungsgraden (1 – 5 % ^{235}U) eine wichtige Rolle [5.7].

Für die Aufarbeitung von Kernbrennstoffen im technischen Maßstab sowie für Schnellbrüterelemente oder Sonderelemente hat homogene Vergiftung z. B. durch Gadolinium an Interesse gewonnen [5.8].

5.1.4 Heterogene Neutronenabsorber

Wird der Neutronenabsorber als Feststoff in oder an einem Spaltstoffsystem angebracht, so spricht man von heterogenen Neutronenabsorbern oder heterogener Vergiftung. Diese Absorber werden meist in Form von

- Umhüllungen oder Wandungen von Behältern,
- platten- oder stabförmigen Einbauten in Behältern,
- Siebböden in Kolonnen,
- Füll- und Verdrängungskörpern in Behältern,
- Absorber-Moderator-Schichten zwischen Behältern (Neutronenisolatoren)

ausgeführt. Als Absorbermaterial werden meist die in Tab. 5.2 aufgelisteten Stoffe eingesetzt.

Heterogene Absorber gestatten bei geeignetem Einsatz eine wesentliche Vergrößerung der Behälterdimensionen, wie Durchmesser, Schichtdicke oder Volumen. Allerdings sind dabei einige wichtige Punkte zu beachten:

- Experimentelle Daten für derartige Systeme, mit Ausnahme von Cadmiumumhüllungen an Behältern, sind nur zum Teil verfügbar, ein direkter Vergleich mit dem Experiment ist daher nicht immer möglich.
- Die Berechnung heterogen vergifteter Systeme ist aufwändig und schwierig. Sie erfordert den Einsatz leistungsfähiger Rechenprogramme und guter Datenbibliotheken. Eine Gegenrechnung mit einem zweiten Rechencode, möglichst unter Verwendung anderer Datenbibliotheken, ist wünschenswert.
- Heterogene Absorber erfordern eine regelmäßige Überwachung ihrer Wirksamkeit. Das kann bei Plutonium- oder ^{233}U -Systemen recht kompliziert sein. Mögliche Korrosion ist schon bei der Planung des Behälters einzurechnen (Wandabtragung).
- Heterogene Absorber müssen genügend mechanische Festigkeit aufweisen.
- Da der eigentliche Neutronenabsorber häufig eine Umhüllung oder Wandung aus Strukturmaterial (Stahl, Titan) benötigt, muss der Reflexionseffekt dieser Zwischenschichten berücksichtigt werden. Es ist daher von großer Wichtigkeit, wie stark und

aus welchem Material diese Strukturmaterialumhüllungen sind. Durch starkwandige Zwischenschichten wird die Wirksamkeit des Neutronenabsorbers erheblich reduziert.

- Da jedes Wandmaterial und jede Absorberschicht auch als Reflektor für schnelle und epithermische Neutronen wirkt, diese Reflexion jedoch umso stärker wird, je dicker die Schicht ist, gibt es häufig eine Wanddicke, die bei dahinterliegendem Wasserreflektor die größte Reaktivitätsminderung des Systems bewirkt. Für Stahl beträgt diese Schichtdicke etwa 5 mm, für Borglas ca. 1 cm. Eine weitere Erhöhung der Dicke der Absorberschicht führt daher zu keiner weiteren Senkung des Multiplikationsfaktors.
- Beim Einbau heterogener Absorber sollte die Oberfläche des Absorbers möglichst groß sein. Es ist daher i. A. wenig sinnvoll, dicke Absorberstäbe einzubauen.
- Werden mehrere Absorberelemente eingebaut, so addiert sich deren Wirksamkeit nicht einfach, sondern je nach Spaltstoffsystem und Abstand der Absorberelemente erhöht oder erniedrigt sich ihre Wirkung. Insbesondere muss mit einer Reduzierung der Wirkung gerechnet werden, wenn der Gitterabstand der Absorber in die Größenordnung der thermischen Diffusionslänge L kommt.

5.1.5 Umhüllung von Behältern mit Absorbermaterial

Durch Umhüllung eines spaltstoffhaltigen Behälters mit einem Neutronenabsorber kann die Reflexions- und Moderationswirkung eines dicken Wasserreflektors infolge des Einfangs der thermischen Neutronen so weit kompensiert werden, dass größere Abmessungen der Spaltstoffzone als ohne Neutronenabsorber zulässig werden. Durch Anbringen einer etwa 0,5 bis 1 mm starken Cadmiumschicht lässt sich bei hochangereichertem Uran oder Plutonium in wässriger Lösung eine etwa 20%ige Vergrößerung des sicheren Zylinderdurchmessers erreichen. Hierzu gibt es experimentelle Ergebnisse, die die durch Vielgruppen-Transportrechnung ermittelten Resultate gut bestätigen. In der Praxis entsprechen die kritischen Dimensionen von hoch angereicherten moderierten Spaltstofflösungen mit voller Wasserreflexion (30 cm H₂O) bei Einsatz einer Cadmiumumhüllung annähernd den kritischen Dimensionen bei Nominalreflexion (2,5 cm H₂O als Reflektor). Die Abbildungen 1.B.21 und 1.B.22 in Band 2 Teil 1 des „Handbuchs zur Kritikalität“ geben berechnete Dimensionen mit 0,5 mm starker Cadmiumvergiftung für optimal moderierte UO₂-H₂O-Systeme als Funktion der Anreicherung an ($k_{\text{eff}} = 1,0$ und 0,95).

Bei unreflektierten Systemen besitzt eine außen liegende Cadmiumschicht keine Absorberwirkung, Reflexion hingegen kann sogar reaktivitätserhöhend wirken. Ebenso ist durch eine Cadmiumschicht keine wesentliche Verringerung der Neutronenwechselwirkung zwischen benachbarten Spaltstoffpositionen zu erzielen, es sei denn, man sorgt mittels moderierender Zwischenschichten für eine Thermalisierung der schnellen Neutronen.

Außerdem ist es wichtig, dass das Neutronen absorbierende Umhüllungsmaterial gegen Korrosion geschützt wird. Gegebenenfalls müssen Korrosionszuschläge (z. B. bei Borlas, boriiertem Stahl) bei der Kritikalitätsanalyse berücksichtigt werden.

Bei Behältern mit großen Durchmessern (niedrige Anreicherung) ist der Dimensionsgewinn durch die nur am Umfang wirkende Cadmiumvergiftung natürlich gering. Somit ist diese Art von Vergiftung bei großen Dimensionen nicht sehr sinnvoll.

5.1.6 Einbau von Absorberplatten oder -stäben

Stärkere Wirksamkeit entwickelt der Neutronenabsorber, wenn er in Platten- oder Stabform direkt in das (thermische) Spaltstoffsystem eingebaut wird. Dazu ist aus Korrosionsgründen meistens eine Umhüllung der Platten oder Stäbe mit Edelstahl oder Titan nötig. Häufig wird Borkarbid (B_4C) in Form von Stäben, als einvibriertes Pulver, als Presslinge oder Formstücke, oder Platten aus Cadmium oder Borstahl verwendet. Für den Einsatz als Neutronenabsorber in den Prozesskomponenten von Wiederaufarbeitungsanlagen ist Hafnium wegen seiner hohen Korrosionsbeständigkeit geeignet [5.9].

Die Berechnung von Spaltstoffsystemen mit eingebauten heterogenen Neutronenabsorbern stellt erhebliche Anforderungen an die eingesetzte Berechnungsmethode und Datenbasis. Im Allgemeinen ist eine Transport- oder Monte Carlo-Berechnung unter Verwendung von Vielgruppenwirkungsquerschnitten erforderlich. Die Moderation des Spaltstoffsystems ist dahingehend zu analysieren, dass die im Zusammenhang mit den Absorber-einbauten reaktivste Moderation der Kritikalitätsanalyse zugrunde gelegt wird.

Die Wirksamkeit von eingebauten Platten oder Stäben kann infolge von Ablagerungen oder Korrosion erheblich reduziert werden. Es ist daher wesentlich, dass die eingebauten Neutronenabsorber einer Überprüfung ihrer Wirksamkeit durch direkte oder indirekte

Maßnahmen zugänglich sind. Bei hohen Spaltstoffkonzentrationen von über 100 g ^{235}U oder ^{239}Pu pro Liter wird der zur Einhaltung der Kritikalitätssicherheit benötigte Platten- oder Stababstand so gering, dass aus konstruktiven Gründen und wegen der Gefahr von Verstopfungen und Ablagerungen diese Art von Vergiftung in der Regel nicht mehr sinnvoll ist.

5.1.7 Einsatz von borhaltigen Füllkörpern

Der Einsatz von borhaltigen Glas- oder Stahlfüllkörpern, meist in der Form von sogenannten Raschigringen, hat als Maßnahme zur Einhaltung der Kritikalitätssicherheit, vor allem für schwach spaltstoffhaltige Flüssigkeiten, weite Verbreitung gefunden [5.10]–[5.12]. An die Füllkörper werden folgende Anforderungen gestellt:

- Das Glas muss gegenüber den chemisch-physikalischen Bedingungen von Lösung und Behälter beständig sein.
- Bei möglicher Bewegung der Ringe (bewegliche Gefäße, gepulste Säulen, Verdampfer, usw.) müssen die Ringe eine entsprechende mechanische Festigkeit aufweisen (Bruchgefahr).
- Der ^{10}B -Anteil soll mindestens 19,6 % im Gesamtbor betragen ($^{\text{nat}}\text{B}$: 19,9 %).
- Die Glasdichte soll mindestens 2,2 g/cm³ betragen.
- Die Ringe müssen überall eine glatte Oberfläche haben (Erschwerung von Belagbildungen).

Die üblichen Borraschigringe haben einen Borgehalt von ca. 4 % und Dimensionen von 1,0–3,8 cm Durchmesser bei gleicher Höhe. Sie enthalten dabei Glasvolumenanteile von 16–32 % des Gesamtvolumens. Die Wandstärke der Ringe beträgt einige Millimeter. Als Anhaltswerte bezüglich der damit kritikalitätssicher zu vergiftenden Spaltstoffkonzentrationen können die Werte in Tab. 5.3 verwendet werden.

Um die Wirksamkeit des Neutronengifts zu gewährleisten, erfordert der Einsatz von Borraschigringen Kontrollen in regelmäßigen Abständen. Folgende Punkte bedürfen der besonderen Aufmerksamkeit:

- Bruch oder Absetzen der Ringe, insbesondere bei Behältern, in denen eine Bewegung der Ringe stattfinden kann.

Tab. 5.3 Größte zulässige Spaltstoffkonzentration bei Vergiftung mit Glasbor-raschigringen (3,66–4,28 Gew.-% Bor_{nat.} im Glas, Glasdichte mindestens 2,22 g/cm³, Ringe mit maximal 3 cm Durchmesser, Länge ebenso) [5.13]

Spaltstoff	Maximalkonzentration an Spaltstoff in g/l bei einem Glasvolumenanteil von			
	20 %	24 %	28 %	32 %
²³³ UO ₂ (NO ₃)-Lösung	135	155	170	210
²³⁵ UO ₂ (NO ₃)-Lösung	220	270	330	400
²³⁹ Pu(NO ₃) ₄ -Lösung	90	115	140	180
Pu(NO ₃) ₄ -Lösung mit 5 % ²⁴⁰ Pu	110	140	170	220

- Bildung von Belag oder Niederschlägen auf den Ringen oder am Behälterboden. Schon geringe Beläge können die Wirksamkeit der Ringe stark mindern.
- Korrosion und Herauslösung des Bors (bei beständigem Glas in hohem Maße vermeidbar).

Diesen Kontrollen muss schon bei der Konzeption des Behälters Rechnung getragen werden. Deshalb ist der Einsatz von Raschigringen bei Plutonium und ²³³U nur bedingt zu empfehlen.

Bei der Berechnung derart vergifteter Spaltstoffsysteme müssen die Raschigringe als heterogene Systeme erfasst werden. Bei Glasringen ist die Genauigkeit der k_{∞} -Berechnungen meist innerhalb $\pm 5\%$ [5.14]. Bei Stahlringen ist die Übereinstimmung der Rechenergebnisse mit den verfügbaren Experimenten schlechter. Die bei Glasringen ermittelte Abweichung der Rechenwerte zum Experiment wurde in den Werten der Tab. 5.3 berücksichtigt, so dass die dort angegebenen zulässigen Maximalkonzentrationen einem Multiplikationsfaktor von $k_{\infty} = 0,85 \pm 0,05$ entsprechen.

5.1.8 Absorber-Moderator-Schichten zwischen Spaltstoffsystemen

Um den Neutronenaustausch zwischen Spaltstoff enthaltenden Behältern zu unterbinden, können ebenfalls Neutronengifte eingesetzt werden. Dabei ist aber eine Abbremsung der schnellen Neutronen auf thermische Energien nötig, um den Neutronenabsorber wirksam werden zu lassen. Dies kann entweder durch einen schichtweisen Aufbau

der moderierenden und absorbierenden Materialien (z. B. Polyäthylen-Borglas, Paraffin-Cadmium) oder durch homogene Vermischung des Absorbers mit einem Matrixmaterial erreicht werden (borierter Beton, Borgips). Dadurch wird eine kompakte Bauweise bei kleinen Behälterabständen ermöglicht. Häufig dienen diese Schichten gleichzeitig als Abschirmung gegen Neutronenstrahlung. Die benötigten Schichtdicken hängen jedoch stark vom Spaltstoff und dessen Spektrum sowie von der Geometrie der Behälter und Trennwände ab. Anhaltswerte für die Schichtdicken von Absorber-Moderator-Schichten, die praktisch eine Isolation des jeweiligen Spaltstoffsystems bewirken, sind nach [5.15],[5.16]:

- Paraffin-Cadmium 18 cm,
- Polyäthylen-Cadmium 12 cm,
- boriertes Polyäthylen 10 cm,
- borierter Beton 20 cm.

Es ist jedoch darauf hinzuweisen, dass diese Richtwerte bei ausgedehnten plattenförmigen Spaltzonen und bei untermoderierten Spaltstoffsystemen mit hoher Spaltstoffkonzentration keine vollständige Isolation sicherstellen [5.17]. Eine Analyse mittels exakter Berechnung ist daher bei derartigen Spaltstoffsystemen stets dann erforderlich, wenn diese Absorber-Moderator-Zwischenschichten für die Einhaltung der Kritikalitätssicherheit entscheidend sind. Außerdem gelten, wie bei anderen heterogenen Absorbieren, Anforderungen an die Prüfbarkeit der Wirksamkeit der Schichten und hinsichtlich des Schutzes vor Korrosion. Hinzu kommen Anforderungen des Brandschutzes, da die als Moderator häufig eingesetzten Kunststoffe brennbar sind. Außerdem bestehen Anforderungen an die Gewährleistung einer ausreichenden mechanischen Festigkeit der Zwischenschichten und ihrer Befestigung.

5.2 Reflektoren

Umgeben man eine Spaltzone mit einem Medium, das einen merklichen Anteil an Neutronen zurückstreuen kann, so wirkt dieses Medium auf die aus der Spaltzone kommenden Neutronen als Reflektor. Ein guter Reflektor sollte daher nur möglichst schwach Neutronen absorbieren.

Aus dem Zusammenspiel der Streu- und Absorptionseigenschaften eines Reflektors ergibt sich seine unterschiedliche Wirksamkeit auf Neutronen verschiedener Energie. Die Abb. 5.2 zeigt diesen Zusammenhang exemplarisch für ein generisches Spaltstoff-Reflektor-System im Zwei-Energiegruppenbild.

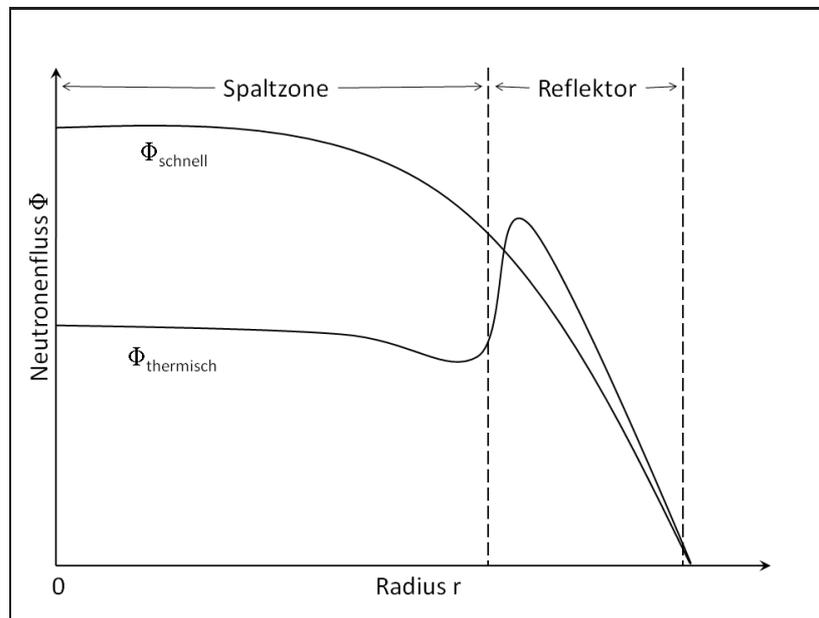


Abb. 5.2 Neutronenflussverlauf in einem Wasserreflektor

Man erkennt, dass der schnelle Neutronenfluss kontinuierlich nach außen hin abfällt, während der thermische Neutronenfluss im Reflektor ein Maximum aufweist. Die Ursache liegt in der zusätzlichen Entstehung thermischer Neutronen durch die Abbremsung schneller Neutronen im Reflektor, und der hier geringeren Absorption gegenüber der Spaltzone.

Insgesamt erhöht ein Reflektor den effektiven Multiplikationsfaktor oft beträchtlich, wodurch das kritische Volumen und damit die kritische Masse einer Spaltzone wesentlich herabgesetzt werden können. Man bezeichnet diese Reduktion der Behältermaße (Radius, halbe Schichtstärke) als Reflektorsparnis δ . Für thermische Spaltstoffsysteme beträgt die Reflektorsparnis etwa 3–4 cm bei einem 30 cm dicken Wasserreflektor.

Der Reflexionseffekt ist stark von der Schichtstärke des Reflektors abhängig. Erhöht man die Schichtstärke eines Reflektors allmählich, so bringt die wachsende Schichtstärke zunächst einen großen Reaktivitätsanstieg, ab einer gewissen Schichtstärke steigt k_{eff} jedoch kaum mehr. Danach bringt eine weitere Erhöhung der Schichtstärke keine merkliche

Zunahme des Multiplikationsfaktors (volle Reflexion). Für den gebräuchlichsten Reflektor, Wasser, nimmt ab 10 cm Schichtdicke der Multiplikationsfaktor nur sehr langsam zu, bei ca. 30 cm ist keine weitere Reaktivitätszunahme mehr feststellbar. Man spricht dann von „voller Wasserreflexion“. Im einzelnen wird definiert:

- Minimalreflexion: 3 mm Edelstahl oder Eisen, Kupfer, Nickel, Titan
- Nominalreflexion: 2,5 cm Wasser
- Volle Reflexion: 30 cm Wasser

Für Graphitreflektoren nimmt die Reaktivität bis etwa 50 cm stark, danach schwach zu. 100 cm Graphit gelten als „volle Graphitreflexion“. Bei Beton sind die Reflexionseigenschaften vom Wasser- und Schwermetallgehalt abhängig. Im allgemeinen gelten 30–40 cm Beton als volle Reflexion. Bei vielen Spaltstoffsystemen mit hoher Spaltstoffkonzentration kann jedoch bei Betonreflektoren und über die genannte Dicke hinaus eine weitere schwache Zunahme des Multiplikationsfaktors bis zu Betondicken von ca. 60 cm beobachtet werden. Für andere Reflektoren, insbesondere für jene, die aus mehreren Materialschichten bestehen, sind die angegebenen Verhältnisse jeweils im einzelnen durch Berechnungen zu ermitteln.

Ein Reflektor ist um so effektiver, je kleiner die Spaltzone und je größer dabei ihre Oberfläche ist, da durch den Reflektor die Neutronenleckage besonders stark reduziert wird.

Für die meisten Spaltstoffe sind Beryllium, Berylliumoxid, Schwerwasser und Graphit die stärksten, Wasser und Beton für die Praxis die wichtigsten Reflektoren.

Für schnellkritische Systeme wie z. B. metallisches Uran sind moderierende Materialien weniger effektiv, Reflektoren aus einem dichten Material hoher Massenzahl dagegen wirksamer (Schwermetalle wie Uran, Stahl, jedoch nicht Blei). So beträgt z. B. die kritische Kugelmasse für metallisches ^{240}Pu unreflektiert 32,9 kg und 18,7 kg mit einem Stahlreflektor, während ein starker Wasserreflektor lediglich eine Reduzierung auf 29,4 kg bringt und somit kaum ins Gewicht fällt [5.18].

Für metallische ^{235}U - und ^{239}Pu -Systeme sind Beryllium, Berylliumoxid und Natururan die effektivsten Reflektoren. So sinkt die kritische Masse für 93,5 % angereichertes Uranmetall von unreflektiert 51 kg auf 21,8 kg mit einem starken Wasserreflektor und auf 8,9 kg

mit einem Reflektor aus Berylliumoxid. Für reines ^{239}Pu -Metall sinkt die kritische Masse von 9,65 kg im unreflektierten Fall auf 5,425 kg im Falle eines starken Wasserreflektors.

Moderierende Reflektoren, z. B. Wasser, bewirken an un- oder untermoderierten Spaltstoffsystemen durch die Rückstreuung thermalisierter Neutronen vom Reflektor in die Spaltzone eine Verschiebung des Neutronenspektrums zu niedrigeren Energien. Dieser Effekt der Spektrumsverschiebung kann z. B. bei trockenen UO_2 -Pulvern mit Wasserreflektor zu beachtlichen Reaktivitätserhöhungen führen und muss auch bei der Rechenmethodik entsprechend berücksichtigt werden.

Graphit- und Schwerwasserreflektoren sind bei kleinen Schichtdicken Wasserreflektoren gleicher Dicke unterlegen, bei großer Schichtdicke jedoch wirksamer. Bei zusammengesetzten Reflektoren sind die Verhältnisse komplex, so dass eine genaue rechnerische Untersuchung erforderlich ist. Zwei wichtige Fälle seien jedoch erwähnt:

- Starke Blei-Wasserreflektoren sind wirksamer als reine Wasserreflektoren.
- Stahl-Wasserreflektoren sind bei mäßiger Stahldicke (etwa kleiner als 2 cm) weniger reaktiv, bei größeren Stahldicken reaktiver als reine Wasserreflektoren.

Daraus resultiert, dass eine Vernachlässigung der Stahlwandungen von Behältern in der Regel eine Näherung zur sicheren Seite darstellt, wenn man einen starken Wasserreflektor voraussetzt. Bei Berücksichtigung der Behälterwandungen ist bei der Analyse der Kritikalitätssicherheit von der Wanddicke und Materialzusammensetzung auszugehen, die unter Beachtung von Fertigungstoleranzen, Korrosionsabtrag und Schwankungen der Materialzusammensetzung und ihrer Prüfung im Rahmen der Qualitätssicherung zu dem höchsten Multiplikationsfaktor des Systems führen. Befinden sich zwischen Spaltzone und Reflektor Luftspalte, so sinkt die Wirksamkeit des Reflektors. Eine mögliche Reaktivitätserhöhung bei Auffüllung der Luftspalte, z. B. durch eindringendes Wasser, ist gegebenenfalls zu berücksichtigen.

In den Tabellen und Kurven der Teile 2 und 3 des vorliegenden Handbuchs werden Kritikalitätsdaten für voll wasserreflektierte Spaltstoffsysteme unter Vernachlässigung von Behälterwandstärken angegeben. Die Anwendung dieser Kritikalitätsdaten auf Reflektoren, die wirksamer sind als 30 cm H_2O (starke Be-, BeO-, Graphit-, D_2O -, Schwermetall-, Beton-, Paraffin- und Plexiglasreflektoren), ist daher nicht möglich.

In einzelnen Kurven sind Kritikalitätsparameter für speziell angegebene Reflektoren dargestellt. Auf Kritikalitätsparameter für Minimal- und Nominalreflexion wurde jedoch bewusst verzichtet, da diese Werte nur in speziellen Fällen, in denen auch störfallbedingt keine volle Wasserreflexion auftreten kann, anwendbar sind.

5.3 Besondere Fälle von Heterogenität

5.3.1 Spaltstoffgitter in spaltstoffhaltigen Lösungen

Bei der Wiederaufarbeitung bestrahlter Brennelemente sowie der Auflösung von Kernbrennstoffstücken, z. B. nicht spezifikationsgerechter Metallplatten oder Pellets, treten heterogene Spaltstoffsysteme in Form von Lösungen auf, die selbst Spaltstoff enthalten. Ein typischer Fall ist die Auflösung von LWR-Brennstababschnitten in heißer Salpetersäure in der Eingangsstufe der Wiederaufarbeitung nach dem PUREX-Verfahren. Während des Auflösenvorgangs reichert sich die Säure zunehmend mit Spaltstoff an. Als Rechenmodell für die Kritikalitätsanalyse sind somit gitterartige Anordnungen von Spaltstoffstäben in einer Spaltstofflösung zu betrachten, wobei der aus den Stababschnitten sich lösende Spaltstoff die Lösung stetig aufkonzentriert. Auch die Lösung selbst kann dabei wiederum eine inhomogene Konzentrationsverteilung aufweisen (Sedimentation, Ausflocken).

Bezüglich der Kritikalitätssicherheit ist die Beantwortung der Frage nach der reaktivsten Konfiguration von Kernbrennstoffgitter und Spaltstoffkonzentration in der Lösung nicht einfach. Die Kritikalitätsrechnungen von Spaltstoffgittern in spaltstoffhaltigen Lösungen sind dadurch gekennzeichnet, dass i. A. starke Resonanzabsorber wie ^{238}U und ^{240}Pu sowohl im Brennstabgitter als auch in der Lösung vorhanden sind und sich gegenseitig beeinflussen. Dies erfordert eine der Situation angepassten Berechnung der Wirkungsquerschnitte im Resonanzenergiebereich. Untersuchungen hierzu wurden in [5.19], [5.20] durchgeführt. Auf jeden Fall sollte bei der Anwendung von Rechenprogrammen für derartige Spaltstoffkonfigurationen ein eingehender Vergleich mit vorhandenen experimentellen und berechneten Daten erfolgen, um die geeignete Behandlung der Resonanzabsorption sicherzustellen.

Aus den bisherigen Ergebnissen [5.19] ist zu schließen, dass Auflöserbehälter für Anreicherungsgrade bis 5 % ^{235}U , die für optimal moderierte Uranstabgitter geometrisch si-

cher sind, auch während des Auflösenvorgangs sicher bleiben. Auch für einen typischen Auflösenvorgang von Schnellbrüterbrennstoff ist nach [5.21] das Spaltstoffstabgitter mit Wasser als Moderator reaktiver als mit Spaltstofflösung als Moderator. Dieses Ergebnis muss jedoch nicht generell gelten, so dass jeweils eine eingehende Analyse des vorliegenden Falls erforderlich ist.

Weitere experimentelle und theoretische Untersuchungen zur Auflösung von Kernbrennstoffen beziehen sich auf einzelne Stäbe [5.22] oder Metallstücke [5.23], [5.24]. Beim wiederholten Auflösen von Stäben ergibt sich eine Reaktivitätserhöhung, sofern das Lösungsbad beibehalten wird. Ebenso ergibt sich eine Reaktivitätserhöhung bei der Auflösung hoch angereicherter Metallstücke. In [5.23] wird gezeigt, dass unterkritische Uranmetallkugeln während des Lösungsvorgangs Kritikalität erreichen können. Bei realistischerer Konzentrationsverteilung in der Lösung (höhere Konzentration in der Nähe der sich auflösenden Kugel) ergibt sich ein höherer Multiplikationsfaktor als bei Annahme homogener Konzentration im Lösungsbad.

5.3.2 Inhomogene Lösungen mit Konzentrationsgradienten

Schon sehr früh wurde das Problem der Verteilung von Spaltstoff in einem homogenen Moderator material mit dem Ziel untersucht, mit einem Minimum an Spaltstoff ein kritisches System zu erhalten. Dabei erwiesen sich inhomogene Spaltstoffverteilungen als reaktiver gegenüber homogenen Verteilungen gleicher Gesamtmasse an Spaltstoff. Als wesentliches Kriterium zum Erreichen der zur kleinsten kritischen Masse führenden Konzentrationsverteilung in einem moderierten Spaltstoffsystem erwies sich ein möglichst konstanter Fluss thermischer Neutronen in der Spaltzone [5.25].

Für die daraus resultierende, zur kleinsten kritischen Masse führende Konzentrationsverteilung in der Spaltzone sowie für andere Verteilungen wurden von Goertzel et al. kleinste kritische Kugelmassen für Lösungen mit Konzentrationsgradienten bei voller Wasserreflexion berechnet [5.26]. Wie aus den in Tab. 5.4 zusammengestellten Ergebnissen ersichtlich ist, liegen die für inhomogene Verteilung ermittelten kleinsten kritischen Massen um etwa 5 % unter den Werten für homogene Verteilung.

Die Berechnungen für Tab. 5.4 wurden meist nur mit Zwei-Gruppen-Daten und Diffusionstheorie durchgeführt. Insofern ergeben sich kleine Abweichungen zu den in Band 2 Teil 1

und 2 des Handbuchs enthaltenen Kritikalitätsdaten. Da dieser Effekt relativ klein ist und eine inhomogene Verteilung mit höchster Konzentration in der Innenzone des Kugelvolumens im Normalfall oder bei Betriebsstörungen kaum eintritt, ist er meist unbedeutend.

Tab. 5.4 Kleinste kritische Massen bei homogener und inhomogener Verteilung des Spaltstoffs in Wasser (Goertzelverteilung)

Spaltstoffsystem	Berechnete kleinste kritische Masse, g Spaltstoff	
	homogen	inhomogen
²³⁵ U-H ₂ O [5.26]	815	768 [5.25]; 772 ¹
²³⁹ Pu-H ₂ O [5.26]	512	492
²³³ U-H ₂ O [5.26]	598	571
UO ₂ -H ₂ O, 5 % ²³⁵ U	1820	1747 ¹
		¹ Eigene Resultate

Ein für die Praxis wesentliches Phänomen ist ein Ausfällen von Spaltstoff oder eine Ausbildung von Konzentrationsprofilen in übermoderierten Spaltstoffsystemen, vor allem in Spaltstofflösungen niedriger Konzentration. Beispiele für diese Vorgänge sind Sedimentationen in Lagertanks, Konzentrationserhöhungen bei Zugabe von Chemikalien (Fällungen) und Konzentrationsschichtungen, z. B. beim Überlagern wässriger und organischer Schichten. Durch die Konzentration des vorher homogen verteilten Spaltstoffs auf eine oder mehrere Teilbereiche des Systems, z. B. Bodensatz in Behältern, können wesentlich höhere Konzentrationen und damit optimale Moderationsbedingungen erreicht werden. Die Reduzierung des Gesamtvolumens auf das Teilvolumen gleicht die mit der Moderationsoptimierung verbundene Reaktivitätserhöhung nicht aus. Es können sich daher in diesen Fällen erhebliche Reaktivitätserhöhungen ergeben.

Ein Beispiel aus der Störfallbetrachtung für eine Urananreicherungsanlage ist die Bildung und das Absetzen von Uranoxifluorid UO₂F₂ (heute meist als Uranylfluorid bezeichnet) beim Spülen von Behältern für Uranhexafluorid UF₆. Abb. 5.3 zeigt als Beispiel die Ergebnisse einer Kritikalitätsanalyse zur Ausfällung eines höher konzentrierten Bodensatzes in einem Tankbehälter. Ähnlich starke Erhöhungen des Multiplikationsfaktors ergeben sich bei Ausbildung mehrerer Schichten unterschiedlicher Konzentration.

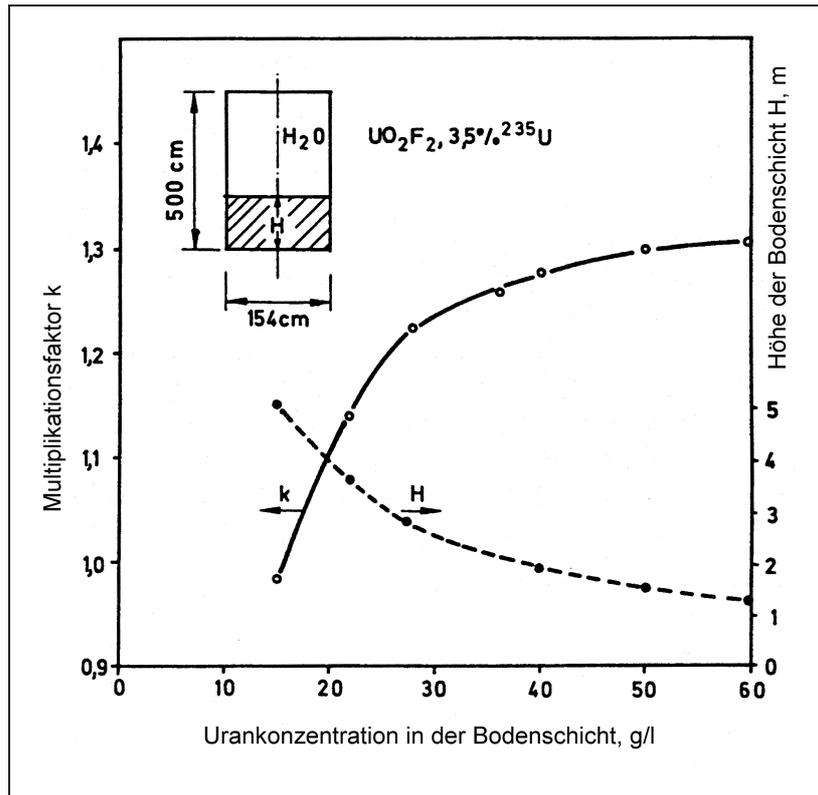


Abb. 5.3 Anstieg des Multiplikationsfaktors k_{eff} bei Ausfällung eines Bodensatzes höherer Spaltstoffkonzentration

5.4 Literatur zu Kapitel 5

- [5.1] B. R. Leonhard: Re-evaluated Thermal Cross Sections for Fissile and Fertile Nuclei, BNWL-1304, February 1970.
- [5.2] BNL-325, Sec. Edition 1966.
- [5.3] H. K. Clark: Critical Masses of Fissile Transplutonium Isotopes. Trans. Am. Nucl. Soc. ANS. 12,2, p. 886, November 1969.
- [5.4] R. Sher, J. Felberbaum: BNL-918, 1965.
- [5.5] D. Emendörfer, K. H. Höcker: Theorie der Kernreaktoren, Mannheim 1982.
- [5.6] Y-12 Plant Nuclear Safety Handbook, Y-1272, 1963.
- [5.7] N. Ketzlach: Soluble Poisons for Slightly Enriched Uranium Systems. HW-50156.
- [5.8] Trans. Am. Nucl. Soc. ANS. 30, p. 256–268, November 1978.
- [5.9] H. Schmieder et al.: Hafnium für die Kritikalitätssicherheit bei der Kernbrennstoffverarbeitung. KfK-2940, S. 144, März 1980.
- [5.10] J. P. Nichols, C. L. Schuske, D. W. Magnusson: Use of Borsilicate Glass Raschig Rings as a Neutron Absorber in Solutions of Fissile Material. Y-CDC-8, 1971.
- [5.11] F. Barbry, J. C. Bouly et al.: CEA-R-3931, 1969.
- [5.12] R. C. Lloyd, E. D. Clayton: Criticality of Plutonium Nitrate Solutions Containing Raschig Rings. Trans. Am. Nucl. Soc. 13,2, p. 664, 1970.
- [5.13] DIN 25421: Verwendung von Borosilicatglas-Raschigringen als Neutronenabsorber in Spaltstofflösungen (obsolet seit 2008).
- [5.14] W. Thomas, N. T. Rückert: Criticality Calculations of the Poison Effect of Boron Raschig Rings in Plutonium Nitrate Solutions, MRR 96, 1971.
- [5.15] J. D. White, C. R. Richey: Neutron Interaction between Multiplying Media Separated by Various Materials. BNWL-193, 1965.
- [5.16] P. R. Lécorsche: Recent Experimental Critical Safety Data Obtained in France. Trans. Am. Nucl. Soc. 11, p. 687, 1968.

- [5.17] W. Thomas: Neutronenreflexion und -wechselwirkung an untermoderierten Plutoniumplatten mit geschichtetem Reflektor. ATKE 16-8 (43-47), 1970.
- [5.18] R. M. Westfall: Critical Masses for the Even-Neutron-Numbered Transuranium Actinides. Nucl. Sci. Eng. 79, 237, 1981.
- [5.19] C. R. Richey: Criticality of Arrays Undergoing Dissolution. Nucl. Sci. Eng. 31, p. 40–48, 1968.
- [5.20] L. L. Carter: Monte Carlo-Calculated Material Bucklings of 3 wt % Enriched Uranium-Water Lattices with Uranium in the Water Moderator. BNWL-127, Pacific Northwest Laboratory, 1965.
- [5.21] R. C. Lloyd, E. D. Clayton: Criticality Safety Data, Applicable to Processing Liquid-Metal Fast Breeder Reactor Fuel. Nucl. Sci. Eng. 59, p. 21–26, 1976.
- [5.22] D. L. Dunaway: Critical Masses for Slightly Enriched Uranium Rods in Uranyl Nitrate. Trans. Am. Nucl. Soc. 14.1, p. 37–38, 1971.
- [5.23] D. C. Hunt, R. E. Rothe: Criticality Measurements on Uranium Metal-Solution Combinations. Trans. Am. Nucl. Soc. 13, p. 380–381, 1970.
- [5.24] D. C. Hunt, R. E. Rothe: A. Criticality Analysis of Enriched Uranium-Metal Spheres Undergoing Dissolution. Trans. ANS. 14.1, p. 38–39, 1971.
- [5.25] G. Goertzel: Minimum Critical Mass and Flat Flux. J. Nucl. Energy, Vol. 2, p. 193–201, 1956.
- [5.26] H. K. Clark: Effect of Distribution of Fissile Material on Critical Mass. Nucl. Sci. and Eng. 24, p. 133–141, 1966.

6 Neutronenwechselwirkung und ihre Berechnung

Für die folgenden Betrachtungen gelten die nachstehenden Begriffsdefinitionen:

- **Spaltstoffposition** oder einfach **Position**: Einzelne Spaltstoffmasse oder einzelner Spaltstoff enthaltender Behälter an einer bestimmten Stelle innerhalb einer Anordnung.
- **Spaltstoffanordnung** oder einfach **Anordnung**: System von zwei oder mehr benachbarten, gleich- oder verschiedenartigen Spaltstoffmassen oder -behältern.

Der Vorgang des Austauschs von Neutronen zwischen räumlich voneinander getrennten Spaltstoffpositionen wird in der Kerntechnik als Neutronenwechselwirkung bezeichnet. So kann es mit einer gewissen Wahrscheinlichkeit geschehen, dass die aus den einzelnen Spaltstoffpositionen strömenden Neutronen in andere Positionen gelangen, wo sie zusätzliche Kernspaltungen auslösen. Diese vorzugsweise durch schnelle Neutronen verursachte Wechselwirkung führt dazu, dass der Multiplikationsfaktor einer Anordnung höher liegt als der k_{eff} -Wert einer einzelnen, isoliert betrachteten Spaltstoffposition. Es kann sogar der Fall eintreten, dass für sich allein unterkritische Positionen in einer Anordnung überkritisch werden.

Inwieweit Kritikalität erreichbar ist, hängt von der Reaktivität der Positionen, ihrer Anzahl, den Abständen zwischen den Positionen sowie den Materialien, die sich möglicherweise zwischen den Positionen befinden, oder als äußere Reflektoren die Anordnung ganz oder teilweise umgeben, ab. Der k_{eff} -Wert einer Anordnung steigt bei Verringerung der Abstände und bei Erhöhung der Anzahl von Positionen.

Materialien zwischen den einzelnen Spaltstoffpositionen beeinflussen den Multiplikationsfaktor in unterschiedlicher Weise, da die Wirkung dieser Materialien stark von dem vorherrschenden Neutronenspektrum und dessen Veränderung abhängt. Neben der neutronenabsorbierenden Wirkung eines Zwischenmaterials ist besonders seine moderierende Wirkung wichtig. Überwiegt der Moderationseffekt, wie bei Wasser normaler Dichte etwa bis zu einer Schichtdicke von 2,5 cm, spricht man von Zwischenmoderation und Zwischenmoderator. Mit zunehmender Schichtstärke wirkt Wasser als Zwischenmaterial überwiegend als Absorber. Generell gilt, dass durch genügend große Schichtdicken der Zwischenmaterialien eine neutronenphysikalische Isolation von Spaltstoffpositionen erreicht und damit eine Neutronenwechselwirkung verhindert werden kann.

Besonders wirksam zur Reduzierung oder Unterbindung der Neutronenwechselwirkung erweisen sich Zwischenmaterialien, die neben ihrer moderierenden Wirkung durch den Zusatz spezieller Neutronenabsorber (z. B. Bor) ein hohes Einfangvermögen für Neutronen aufweisen. Stets muss dabei beachtet werden, dass die Neutronenwechselwirkung hauptsächlich von schnellen Neutronen getragen wird, jedoch der Absorptionseffekt erst bei thermischen Neutronen voll wirksam wird. Deswegen muss sichergestellt sein, dass die nötige Neutronenmoderation immer gewährleistet ist, wenn Zwischenmaterialien zur neutronenphysikalischen Entkopplung von Spaltstoffpositionen eingesetzt werden sollen.

Der k_{eff} -Wert einer Anordnung steigt auch bei Vorhandensein eines äußeren Reflektors. Seine Wirkung hängt stark von der Schichtdicke, seinem Reflexionsvermögen, seiner Größe und Lage ab. Da sich Spaltstoffe meist in geschlossenen Räumen befinden, ist immer eine gewisse Reflexion durch Boden, Wände und Decke zu berücksichtigen.

Sonderfälle der Neutronenwechselwirkung stellen die Selbstwechselwirkung und Rohrverschneidungen dar. Selbstwechselwirkung tritt bei Positionen mit konkav gekrümmten Oberflächen auf, z. B. bei Ringzylindern oder U-förmig gebogenen Scheibenbehältern. Hier werden zwischen räumlich getrennten Teilen ein und derselben Spaltstoffposition Neutronen ausgetauscht. Ähnliches gilt für Rohrverschneidungen, d. h. für Zusammenführungen von Rohrleitungen oder Einmündungen von Leitungen in Behälter, die in kern-technischen Prozessanlagen häufig anzutreffen sind.

Das Problem der Neutronenwechselwirkung zwischen unterkritischen Positionen in Spaltstoffanordnungen spielt bei der Handhabung von Spaltstoffen in Prozessanlagen, bei der Lagerung und beim Transport von Kernbrennstoffen eine große Rolle. Anfänglich waren experimentelle Daten die einzig verlässliche Grundlage für die Beurteilung von Neutronenwechselwirkungseffekten. Mittlerweile steht jedoch eine Reihe von Berechnungsmethoden zur Verfügung, die sich grob zum einen nach dem Rechenmodell, zum anderen nach dem Anwendungsbereich einteilen lassen. Neben den Berechnungsverfahren zur Neutronenwechselwirkung wurden spezielle Verfahren zur Behandlung von Rohrverschneidungen entwickelt. Die Monte Carlo-Methode hingegen deckt alle Anwendungsgebiete ab. Sie stellt ein Verfahren dar, das auch für komplizierte geometrische Verhältnisse und bei unterschiedlichen Spaltstoffpositionen auch unter Berücksichtigung von Zwischenmaterialien genaue Ergebnisse liefern kann. Deshalb ist die Monte Carlo-Methode stets bei Problemen mit hohen Genauigkeitsansprüchen heranzuziehen. Alle anderen

Verfahren sind dagegen nicht generell anwendbar, hängen also mehr oder weniger von der Art des jeweils vorliegenden Spaltstoffs ab und ergeben i. A. nur näherungsweise richtige Resultate. Diese Näherungsverfahren sind demnach vor allem für Überblicksrechnungen, für Optimierungsrechnungen und bei Anordnungen anwendbar, die nur kleine Multiplikationsfaktoren erwarten lassen.

Einen Überblick über Art und Einsatzmöglichkeiten der verschiedenen Berechnungsmethoden gestatten die Veröffentlichungen [6.1]–[6.3]. In den folgenden Abschnitten werden die Rechenmethoden in drei Hauptgruppen zusammengefasst dargestellt:

- Semi-empirische Methoden (meist Dichte-Methoden), Kap. 6.2,
- Raumwinkel- und Albedo-Verfahren, Kap. 6.3,
- Monte Carlo-Verfahren, Kap. 6.4.

6.1 Ausgewählte Experimente

Die ersten experimentellen Untersuchungen von Spaltstoffanordnungen wurden in den 40er Jahren angestellt. So wurden in Los Alamos Messungen an hochangereicherten Uranmetalleinheiten mit und ohne Betonreflektoren durchgeführt [6.4]. Am Oak Ridge National Laboratory erfolgten die ersten kritischen Experimente mit Spaltstofflösungen [6.5]. Seitdem sind zahlreiche Experimente zur Neutronenwechselwirkung, in der Mehrzahl mit hochangereichertem ^{235}U oder Plutonium, durchgeführt worden. Eine Anzahl typischer Experimente ist in Tab. 6.1 enthalten, die Daten sind nach Spaltstofftyp (Metall, Lösung) und Anreicherungsgrad (hoch, niedrig) getrennt aufgelistet. Zusammenstellungen experimenteller Daten zur Neutronenwechselwirkung finden sich speziell in [6.6]–[6.8] sowie auch in den Sammlungen experimenteller Daten (siehe Kap. 3.3). Somit existiert heute umfangreiches Datenmaterial für die verschiedenartigen Spaltstoffsysteme. Dadurch ist eine ausreichende Basis zur Nachprüfung von Rechenverfahren am Experiment vorhanden. Resultate derartiger Vergleichsrechnungen sind in Kap. 6.7 entsprechend den ausgesuchten Experimenten in den Tabellen 6.1 und 6.2 zusammengestellt.

In den beiden Tabellen bedeuten D = Durchmesser, H = Höhe, P = Mitte-Mitte-Abstand; alle in cm; M = Masse in kg; v = vertikal h = horizontal. Das Plutonium, welches in den Experimenten 7 und 9 verwendet wurde, enthielt neben ^{239}Pu auch 4,23 % ^{240}Pu .

Tab. 6.1 Ausgewählte Experimente zur Neutronenwechselwirkung: Spaltstofflösungen; Erklärungen siehe Text

Exp. Nr.	Behälter	Wandung mm	Anordnung	Behälterinhalt	Moderationsverhältnis	Literaturangabe
1	Zyl. D=15,24 H=126,0	1,6 Alu	3x3x1 P=23,2	U(92,6)NH-Lsg 384 g ²³⁵ U/l	H/ ²³⁵ U = 59	TID7028, Fig. 61
2	Zyl. D=15,24 H=126,0	1,6 Alu	4x4x1 P=28,2	Wie voriges Experiment	Wie voriges Experiment	TID7028, Fig. 61
3	Zyl. D=11,90 H=112,4	6,3 11,4 CH2	5x5x1 P=25,2	Wie voriges Experiment	Wie voriges Experiment	TID7028, Fig. 76
4	Zyl. D=24,13 H=142,2	1,6 Alu	3x3x1 P=30,3	U(4,9)O ₂ F ₂ -Lsg 890 gU/l	H/ ²³⁵ U = 524	ORNL-3714, 1964
5	Wie voriges Experiment	Wie voriges Experiment	5x5x1 P=38,9	Wie voriges Experiment	Wie voriges Experiment	Wie voriges Experiment
6	Zyl. D=24,13 H=61,00	Wie voriges Experiment	5x5x1 P=30,0	Wie voriges Experiment	Wie voriges Experiment	Wie voriges Experiment
7	Zyl. D=30,0 H=22,96	3,0 Edelstahl	2x2x1 P=30,0	PuNH-Lösung 152,5 gPu/l	H/Pu = 155	CEA-R-3946, Tab. 4
8	Zyl. D=30,0 H=36,25	Wie voriges Experiment	2x2x1 P=60,0	Wie voriges Experiment	Wie voriges Experiment	Wie voriges Experiment
9	Zyl. D=25,6 H=63,22	Wie voriges Experiment	2x2x1 P=45,6	PuNH-Lösung 115,1 gPu/l	H/Pu = 209,8	Wie voriges Experiment
10	Zyl. D=25,6 H=39,25	Wie voriges Experiment	2x3x1 P=35,6	Wie voriges Experiment	Wie voriges Experiment	Wie voriges Experiment

Tab. 6.2 Ausgewählte Experimente zur Neutronenwechselwirkung: Metalle; Erklärungen siehe Text

Exp. Nr.	Behälter	Anordnung	Behälterinhalt	Moderationsverhältnis	Literaturangabe
11	Zyl. M=6,0 D=6,53 H=9,26	2x2x1 Ph=7,59	Pu-Metall 94,02 %Pu _{fiss}	H/Pu = 0	Proc. of Livermore Array Symp. 1968
12	Wie voriges Experiment	2x2x2 Pv=11,98 Ph=9,76	Wie voriges Experiment	Wie voriges Experiment	Wie voriges Experiment
13	Wie voriges Experiment	3x3x3 Pv=13,68 Ph=14,51	Wie voriges Experiment	Wie voriges Experiment	Wie voriges Experiment
14	Wie voriges Experiment	4x4x1 (einreihig) Ph=10,91	Wie voriges Experiment	Wie voriges Experiment	Wie voriges Experiment
15	Wie voriges Experiment	4x4x4 Pv=13,12 Ph=20,91	Wie voriges Experiment	Wie voriges Experiment	Wie voriges Experiment
16	Wie voriges Experiment	4x4x4 Pv=17,12 Ph=17,28	Wie voriges Experiment	Wie voriges Experiment	Wie voriges Experiment
17	Wie voriges Experiment	4x4x4 Pv=22,12 Ph=15,23	Wie voriges Experiment	Wie voriges Experiment	Wie voriges Experiment
18	Wie voriges Experiment	4x4x4 Pv=32,12 Ph=13,09	Wie voriges Experiment	Wie voriges Experiment	Wie voriges Experiment
19	Wie voriges Experiment	4x4x4 Pv=47,12 Ph=11,93	Wie voriges Experiment	Wie voriges Experiment	Wie voriges Experiment
20	Zyl. D=4,56 H=8,64 M=10,49	3x3x3, Pv=11,55, Ph=11,08	U-Metall 93,2 wt % ²³⁵ U	H/U = 0	ORNL-TM-868, 1964

6.2 Semi-empirische Verfahren

Die in diesem Kapitel beschriebenen Verfahren sind dadurch gekennzeichnet, dass ihre Rechenmodelle zu einem wesentlichen Teil auf empirisch abgeleiteten Parametern beruhen bzw. experimentelle Befunde direkt auswerten. Die wichtigste Gruppe dieser halbempirischen Verfahren, die sogenannten Dichteverfahren, geht davon aus, dass Anordnungen von Spaltstoffpositionen so zu betrachten sind wie räumlich sehr ausgedehnte einzelne Spaltstoffpositionen verminderter Spaltstoffdichte. Der Spaltstoff aller Positionen wird quasi auf die Ausdehnung der gesamten Anordnungen homogen verteilt, also „verschmiert“. An diesem Vorgehen zeigt sich sogleich die wichtigste Einschränkung dieser Verfahren, die Beschränkung auf gleichen Spaltstoff in allen Positionen der Anordnung.

6.2.1 Methode der analogen Dichte

Die Methode der analogen Dichte hat ihren Ursprung in den Testuntersuchungen der 50er Jahre über die Lagerung von Spaltstoffen [6.9]. Sie beruht auf der Annahme, dass „ein kritisches System dann kritisch bleibt, wenn alle Dichten um einen Faktor X ihrer Anfangswerte vergrößert – und alle linearen Dimensionen um den Faktor $1/X$ ihrer Anfangswerte reduziert werden“. Basis der folgenden Betrachtungen ist eine unreflektierte kritische Kugel aus spaltbarem Material der reduzierten Dichte ρ . Für diese Kugel ist die kritische Masse m_k umgekehrt proportional dem Quadrat ihrer Spaltstoffdichte ρ (siehe Kap. 1.3.2):

$$m_k(\rho) = m_k(\rho_0) \cdot \left(\frac{\rho}{\rho_0}\right)^{-2} \quad (6.1)$$

Dabei gilt: $\rho < \rho_0$ (maximale Dichte des Spaltstoffs), $m_k(\rho_0)$ kritische Masse einer unreflektierten Kugel der Dichte ρ_0 .

Die Methode der analogen Dichte geht nun davon aus, dass eine Beziehung des Typs gemäß Gl. (6.1) generell auch für Anordnungen, die aus unterkritischen Spaltstoffpositionen aufgebaut sind, besteht. Dabei wird die Anordnung als ein homogenes Spaltstoffsystem verminderter Dichte ρ angesehen. Der Dichteexponent in Gl. (6.1) wird beim Übergang zu anderen geometrischen Formen zu der Größe s , die kleiner als 2 ist. Die allgemeine Beziehung lautet dann:

$$m_k(\rho) = A' \cdot m_k(\rho_0) \cdot \left(\frac{\rho}{\rho_e}\right)^{-s} \quad (6.2)$$

oder nach Division mit der Spaltstoffmasse einer Position:

$$N_k = A \cdot \left(\frac{\rho}{\rho_e} \right)^{-s} \quad (6.3)$$

Dabei bedeuten: ρ = mittlere Spaltstoffdichte über die Anordnung verschmiert, $\rho_e = m_e/V_e$ Spaltstoffdichte einer Position, m_e = Spaltstoffmasse einer Position, V_e = Volumen einer Position, N_k = kritische Anzahl an Positionen.

Die Konstanten A , A' und s sind aus experimentellen Daten bestimmbar. Sie hängen von der Art des Spaltstoffs, von Größe und Form der Position und den Reflexionsbedingungen der Position und der Anordnung ab. Für unreflektierte Anordnungen lassen sich die Konstanten A und s nach folgender Näherungsrelation bestimmen:

$$s = 2(1 - f) \quad (6.4)$$

wobei f als Verhältnis der vorliegenden Spaltstoffmasse einer Position zur kritischen Masse m_k einer Position gleicher Form, gleichen Materials und gleicher Randbedingungen definiert ist:

$$f = \frac{1}{A} = \frac{m_e}{m_k} \quad (6.5)$$

Anstelle des Dichteverhältnisses verwendet man bei identischen Positionen meist das Verhältnis der Volumina von Spaltstoffposition zu Gitterzelle. Damit folgt aus Gl. (6.3):

$$N_k = \frac{m_k}{m_e} \cdot \left(\frac{V_Z}{V_e} \right)^s \quad (6.6)$$

wobei V_Z das Volumen der Gitterzelle bedeutet. Aus den Gleichungen (6.4) bis (6.6) lässt sich somit die kritische Anzahl an Spaltstoffpositionen einer unreflektierten Anordnung bestimmen.

Um auch reflektierte Anordnungen behandeln zu können, wurden zwei Approximationen ausgearbeitet. Die erste Näherung nach [6.10] reduziert den Dichteexponent:

$$s = 1,4(1 - f) \quad (6.7)$$

Diese Näherung gilt für stark reflektierte Anordnungen.

Die zweite Anpassungsmöglichkeit besteht in der Anbringung eines Korrekturfaktors r in Gl. (6.6). Nach [6.11] ergibt sich:

$$N_k = \left(r^{\left(\frac{1}{s+1} \right)} \right)^{-1} \cdot \frac{m_k}{m_e} \cdot \left(\frac{V}{V_k} \right)^{\frac{s}{s+1}} \quad (6.8)$$

wobei V das Gesamtvolumen der Anordnung darstellt. Die Werte r sind materialabhängig und betragen nach [6.11]:

Tab. 6.3 Reflexionskorrekturfaktoren r für einen dicken Wasserreflektor nach [6.11] (bei dickem Betonreflektor Korrektur vergrößert auf $\sim r \times 2$)

Spaltstoff	Korrekturfaktor r
Plutoniummetall (α -Phase)	20
U(93%)-Metall	13
U(93%)-Oxid	8
U(93%)-Wasser, $H/^{235}\text{U} = 60$	5,4
U(93%) F_6	6
U(93%)-Wasser, $H/^{235}\text{U} = 400$	2,75
U(93%)- C_{80}	2,4
U(93%) O_2F_2 -Lösung, $H/^{235}\text{U} = 500$	2,0

Eine aus Experimenten und Monte Carlo-Rechnungen abgeleitete Modifikation, die den Schwächen der vorher geschilderten Methode (Überkonservativität bei vielen sehr kleinen Positionen, also kleinen Werten von f und nicht konservative Ergebnisse bei wenigen großen Spaltstoffpositionen) Rechnung trägt, hat Paxton [6.10] vorgeschlagen. Damit wird Gl. (6.3) zu:

$$N_k = \frac{0,012}{f} \cdot \left(\frac{\rho}{\rho_e} \right)^{-1,8} \quad \text{für } f \leq 0,40 \quad (6.9)$$

Eine Anwendung dieser Beziehung sollte nur für große Anordnungen, die aus etwa äquidistanten Positionen bestehen, erfolgen.

Anwendungsbereich der Methode der analogen Dichte

Die Methode der analogen Dichte liefert i. A. Ergebnisse, die zur sicheren Seite liegen. Bei wenigen, großen Spaltstoffpositionen ist sie ungeeignet, da die Resultate nicht kon-

servativ sind. Bezüglich der Art, Form und Menge des Spaltstoffs einer Position bestehen keine Beschränkungen. Die Methode ist am besten brauchbar für viele, identische Spaltstoffeinheiten etwa kugelförmiger oder äquilateraler Form. Sie ist unbrauchbar, wenn an verschiedenen Positionen wesentlich verschiedene Spaltstoffe vorliegen oder die einzelnen Positionen sich stark nach Größe und Form unterscheiden.

6.2.2 Die NB_N^2 -Methode

Die von J. T. Thomas [6.12], [6.50] stammende NB_N^2 -Methode kombiniert Elemente der Methode der analogen Dichte und der Diffusionstheorie und basiert auf der Beobachtung, dass das Produkt aus der Zahl an Spaltstoffpositionen N in einer kubischen Anordnung und der über die Anordnung erstreckten Flusswölbung B_N^2 konstant ist. In Analogie zur Buckling-Beziehung für ein homogenes isoliertes Spaltstoffsystem gilt für eine kubische Anordnung:

$$B_N^2 = \frac{3\pi^2}{4(na_n + \lambda)^2} \quad (6.10)$$

Hierbei bedeuten: n = Zahl der Zellen entlang jeder Kante des kubischen Gitters, a_n = halbe Dimension der kubischen Gitterzelle, λ = Extrapolationslänge.

Folglich hat die kubische Anordnung die Kantenlänge $n \cdot 2a_n$, und es gilt $N = n^3$. Nach Multiplikation mit N und Umformung ergibt sich:

$$NB_N^2 = \frac{3\pi^2 n}{4a_n^2} \cdot \left(\frac{na_n}{na_n + \lambda} \right)^2 = \frac{3\pi^2 n}{4a_n^2} \cdot \left(1 - \sqrt{\frac{4\lambda^2 NB_N^2}{3\pi^2 N}} \right)^2 \quad (6.11)$$

Der Ausdruck in der Klammer von Gl. (6.11) hängt nach [6.13] nur von N selbst ab, somit kann Gl. (6.11) auch geschrieben werden als:

$$NB_N^2 = \frac{3\pi^2 n}{4a_n^2} \cdot \left(1 - \frac{C}{\sqrt{N}} \right)^2 \quad \text{für } N \geq 64 \quad (6.12)$$

Diese allgemeine Konstante

$$C = \sqrt{\frac{4\lambda^2 NB_N^2}{3\pi^2}}$$

beträgt $0,55 \pm 0,18$ nach [6.13], aber $0,312 \pm 0,001$ nach [6.50].

Multipliziert man beide Seiten von Gl. (6.12) mit der Spaltstoffmasse m einer Position, so kann man die sogenannte begrenzende Flächendichte $\sigma(m)$ für kritische kubische Anordnungen einführen:

$$\sigma(m) = \frac{NB_N^2 \cdot m}{3\pi^2} = \frac{n \cdot m}{(2a_n)^2} \cdot \left(1 - \frac{C}{\sqrt{N}}\right)^2 = \sigma(a_n) \cdot \left(1 - \frac{C}{\sqrt{N}}\right)^2 \quad \text{für } N \geq 64 \quad (6.13)$$

wobei

$$\sigma(a_n) = \frac{n \cdot m}{(2a_n)^2}$$

der aktuellen Flächendichte einer Gitterzelle entspricht. Die Verknüpfung dieser begrenzenden Flächendichte $\sigma(m)$ mit den Materialeigenschaften, insbesondere der kritischen Masse m_k einer unreflektierten Spaltstoffposition lässt sich empirisch durch die folgende Beziehung darstellen:

$$\sigma(m) \approx c_2(m_k - m) \quad (6.14)$$

Die Konstante c_2 hängt vom Spaltstoff- und Reflektormaterial sowie von der geometrischen Anordnung ab; sie wird in $1/\text{cm}^2$ angegeben. Werte für c_2 und m_k sind in [6.13] und [6.51] für einige wichtige Spaltstoffe angegeben.

Die Anzahl N der Spaltstoffpositionen in der kubischen Anordnung ergibt sich durch Kombination von (6.13) und (6.14) zu

$$N \cdot \left(1 - \frac{C}{\sqrt{N}}\right)^6 = \left[c_2 \left(\frac{m_k}{m} - 1\right)\right]^3 \cdot V^2 \quad (6.15)$$

wobei $V = (2a_n)^3$ das Volumen der Gitterzelle ist. Durch Vernachlässigung des Faktors $\left(1 - \frac{C}{\sqrt{N}}\right)^6 < 1$ resultiert eine konservative Abschätzung für N [6.51].

Aus den Gleichungen (6.13) und (6.14) ist somit eine allgemeine Relation für zwei verschiedene Anordnungen mit gleichem Multiplikationsfaktor, also auch für kritische Anordnungen ableitbar:

$$\frac{c_2 \left(\frac{m_k}{m} - 1\right)}{c_2' \left(\frac{m_k'}{m'} - 1\right)} = \left[\frac{n' a_n' \sqrt{N} - C}{n a_n \sqrt{N'} - C} \right]^2 \quad (6.16)$$

wobei die gestrichenen und ungestrichenen Größen jeweils verschiedenen Anordnungen zugehören.

Aus dieser Grundbeziehung entwickelte J. T. Thomas eine Reihe von Bestimmungsgleichungen für die kritische Anzahl an Spaltstoffpositionen N_k , den kritischen Gitterabstand $2a_n$, die kritische Spaltstoffmasse m_k pro Position und für den Multiplikationsfaktor k_{eff} der Gesamtordnung. Nähere Angaben sind in den Darstellungen und Tabellen in [6.13] und [6.50] zu finden.

Für den Übergang zu nicht kubischen Anordnungen wird ein Formfaktor, der aus geometrischen Daten der aktuellen Anordnung und dem Bezug zu kubischen Anordnungen gewonnen wird, eingeführt. Mit diesem Formfaktor R wird die für eine kubische Anordnung ermittelte kritische Masse m_k einer Position korrigiert:

$$m'_k = m_k \cdot R^{0,672} \quad \text{für } R \leq 5,339 \quad (6.17)$$

Der angegebene Wert für R sowie der Exponent $0,672 \pm 0,013$ in (6.17) beziehen sich auf ein System mit 93,2 Gew.-% ^{235}U angereichertem Uran mit $m_k = 10,4$ kg in kubischer Anordnung mit $n = 8$, also 512 Zellen [6.52]. Dabei ist m'_k die kritische Masse in einer nichtkubischen Anordnung. Für den k_{eff} -Wert einer Anordnung gilt näherungsweise:

$$k_{\text{eff}} \approx \sqrt[3]{\frac{m}{m_k}} \quad (6.18)$$

wobei m die Kugelmasse in einer unterkritischen Anordnung und m_k die Kugelmasse in einer kritischen Anordnung bedeuten.

Anwendungsbereich der NB_N^2 -Methode

Die Methode ist gut anwendbar für kubische Anordnungen, die aus untereinander gleichen Spaltstoffzellen aufgebaut sind und aus vielen Positionen (≥ 64) bestehen. Am besten lassen sich große Anordnungen aus kompakten Metall- oder Oxidspaltstoffpositionen behandeln, für die stets konservative Ergebnisse erreicht werden. Die Ausdehnung der Methode auf nicht kubische Zellen (z. B. quaderförmige) ist möglich. Dicke Betonreflektoren können ebenfalls berücksichtigt werden. Für die Berechnung von Prozessanlagen mit unterschiedlichen Spaltstoffen, Moderationsgraden und Behälterformen ist die Methode nicht geeignet.

6.2.3 Methoden der äquivalenten Flächenbelegung

Die in diesem Abschnitt behandelten Verfahren charakterisieren Spaltstoffanordnungen durch die sogenannte Flächenbelegung. Sie ist definiert als die pro Flächeneinheit vorhandene Spaltstoffmenge, die man erhält, wenn man den gesamten vorhandenen Spaltstoff auf die größte Fläche, meist die Grundfläche, die die Anordnung bedeckt, gleichmäßig verteilt. Die Flächenbelegung erhält somit die Dimensionen g/cm^2 , kg/ft^2 oder ml/cm^2 bzw. l/ft^2 bei Lösungen.

Es lassen sich zwei Methoden in der Wahl der bestimmenden Parameter für eine Position und damit zwei unterschiedliche Rechenmethoden unterscheiden. Die erste stammt von Paxton und Gutman [6.14], [6.15] und benutzt als grundlegenden Parameter das Verhältnis von vorhandener Spaltstoffmasse (oder Volumen) zur kritischen Masse (bzw. zum kritischen Volumen) einer Spaltstoffposition gleicher Form und Zusammensetzung (kritischer Bruch). Die zweite Methode nach Schuske und Altschuler [6.16]–[6.18] basiert auf dem Quotienten aus Oberfläche S und Volumen V einer Spaltstoffposition, verwendet also Parameter der Form S/V (Dimension: cm^{-1}).

Anwendungsbereich der Methoden der äquivalenten Flächenbelegung

Die in Tab. 6.4 angegebenen Grenzwerte beruhen auf der Auswertung experimenteller Daten. Mit der Methode können Anordnungen beliebiger Größe und Form behandelt werden. Allerdings liegt darin auch eine der Schwächen der stark vereinfachenden Betrachtungsweise. In den Daten in Tab. 6.4 ist die Annahme starker Reflexion durch Wasser einbezogen [6.19]. Die Methode liefert bei Bezug auf die Werte in Tabelle 6.4 konservative Resultate. Die Werte des ursprünglichen Berichts von Paxton [6.20] sollten nicht verwendet werden. Bei vorhandenen starken Betonreflektoren sind die angegebenen Grenzwerte in Tabelle 6.4 etwa um 50 % zu reduzieren.

Ein weiterer Nachteil der Methode liegt darin, dass sie nicht genügend in allen Anwendungsbereichen als zuverlässig bestätigt ist. Ringzylinder oder Anordnungen sehr hoher Zylinder sollten nicht nach dieser Methode berechnet werden. Die S/V -Methode nach Altschuler und Schuske [6.16] ermöglicht es, sowohl kritische als auch sichere Flächenbelegungen als Funktion des Verhältnisses Oberfläche/Volumen einer Spaltstoffposition zu berechnen. Entsprechende Grenzwerte, die aus Experimenten und Monte Carlo-

Rechnungen abgeleitet wurden, sind in [6.16]–[6.18] enthalten. Die Anwendung der Methode vollzieht sich dabei nach folgenden Regeln [6.18]:

- Die Anwendung des Verfahrens ist auf Räumlichkeiten beschränkt, die dem sog. „Standard-Raum“ entsprechen. Dieser ist definiert über die inneren Abmessungen $66,8 \times 66,8 \times 9,84 \text{ ft}^3$ ($\approx 20,4 \times 20,4 \times 3,0 \text{ m}^3$). Boden, Decke und Wände bestehen aus 1 ft ($\approx 30,5 \text{ cm}$) dickem Beton. Größere Räume müssen durch mindestens 1 ft dicke Betonwände in sogenannte „Module“ aufgeteilt werden (für Metallpositionen genügen 8 Zoll Beton), deren nutzbare Fläche, sei es Wand oder Boden, nicht größer sein darf, als die des Standard-Raums ($66,8 \times 66,8 = 4462 \text{ ft}^2$). Die Raumdimension senkrecht zur nutzbaren Fläche muss mindestens 9,84 ft (3 m) betragen.

- Für Module mit kleineren nutzbaren Flächen f als 4462 ft^2 ($25 \text{ ft}^2 < f < 4462 \text{ ft}^2$) müssen die sicheren Flächenbelegungen für den Standard-Raum mit einem dimensionsfreien Faktor der Form

$$R = \frac{15,42}{\sqrt{L_1 L_2}} + 0,765$$

multipliziert werden, wobei L_1 und L_2 die Dimensionen der nutzbaren Fläche in ft bedeuten (Bedingung: $L_1, L_2 \geq 2,5 \text{ ft}$). Die dritte Dimension muss wie bei obigem Punkt mindestens 9,84 ft ($\approx 3 \text{ m}$) betragen.

- Die Module dürfen zu größeren Strukturen zusammengefasst werden, wenn die Betonwände mindestens 1 ft dick sind.
- Die Spaltstoffpositionen können in zwei- oder dreidimensionaler Anordnung über die nutzbare Fläche verteilt werden. Der Mitte-Mitte-Abstand der Positionen soll in jeder Richtung möglichst gleich sein, Abweichungen bis zu 15 % in allen Richtungen sind jedoch zulässig. Für Zylinder mit einem $H/D < 1,0$ Verhältnis (Höhe zu Durchmesser) gilt die Beschränkung, dass die ebene Fläche mindestens 1 ft von irgendeiner Betonfläche entfernt sein muss; hohe Zylinder hingegen können vom Boden bis zur Decke reichen.
- Auf dem Boden sind bis zu 3 Zoll ($\approx 7,6 \text{ cm}$) Wasser erlaubt, wenn alle Positionen mindestens 1 ft oberhalb des Bodens angeordnet sind.
- Lösungen oder Oxide sind in Behältern, die mindestens 1/8 Zoll ($\approx 3,2 \text{ mm}$) dicke Wände aufweisen. Das gleiche gilt für Metall in feinverteilter Form.

- Die Anordnung von Spaltstoffpositionen verschiedener Form, Massen und Zusammensetzung auf dem gleichen Modul ist zulässig, wenn für jeden Typ sichere Flächenbelegungen eingehalten werden.
- Alle Positionen sind gegen Doppelbelegung zu schützen.
- Weitere, spaltstoffspezifische Vorschriften sind in [6.16]–[6.18] enthalten.

Tab. 6.4 Maximal zulässige Werte für den kritischen Bruch und die Spaltstoffflächenbelegung nach Paxton, Gutman [6.20]

Spaltstoff	Maximale Größe einer Position, Ø Zylinder bzw. Masse	Kritischer Bruch für maximale Größe einer Position	Zulässige Flächenbelegung	
U(93)-Lsg	12,7 cm	0,34	1,6 ml/cm ²	16 l/cm ²
U(93)-Lsg, bei c(U) ≤ 50 g/l	16,5 cm	0,38	3,6 ml/cm ²	36 l/cm ²
U(5)-Lsg	20,3 cm	0,39	9,6 ml/cm ²	96 l/cm ²
Pu(NO ₃) ₄ -Lsg	12,0 cm	0,31	1,4 ml/cm ²	14 l/cm ²
²³³ U-Lsg	11,4 cm	0,35	1,3 ml/cm ²	13 l/cm ²
U(93)-Metall	15 kg U	0,29	11,0 g/cm ²	110 kg/m ²
U(93)-O ₂	27 kg U	0,30	12,5 g/cm ²	125 kg/m ²
U(93)F ₄	50 kg U	~ 0,30	11,5 g/cm ²	115 kg/m ²
U(93)F ₆ +0,1HF	50 kg U	~ 0,30	7,5 g/cm ²	75 kg/m ²
Pu-Metall (α)	3 kg Pu	0,30	5,5 g/cm ²	55 kg/m ²
²³³ U-Metall	4,5 kg U	0,29	5,5 g/cm ²	55 kg/m ²

Anwendungsbereich der *S/V*-Methode

Die *S/V*-Methode ist gut entwickelt und ausgiebig an Experimenten und Modellrechnungen geprüft. Als sichere Werte gelten Grenzwerte, die k_{eff} -Werten von 0,90 (Metalle, Oxide) bzw. 0,94 (Lösungen) entsprechen, wobei in k die vierfache Standardabweichung aus Monte Carlo-Rechnungen einbezogen ist. Stets ist Betonreflexion zugrunde gelegt. Generell gilt die Methode für *S/V*-Verhältnisse $\geq 0,3$. Sie liefert innerhalb ihrer Beschrän-

kungen gute Resultate und berücksichtigt bereits die wichtigsten Störfallmöglichkeiten, die den Multiplikationsfaktor der Anordnung beeinflussen können.

6.2.4 Hyperbelgleichungsmethode

Dieses auf Schuske und Morfitt zurückgehende und von Clark und Tuck [6.21], [6.22] weiterentwickelte Verfahren basiert auf der durch Experimente belegten Beobachtung, dass für einen einzelnen reflektierten oder unreflektierten kritischen Zylinder mit dem Durchmesser D und der Höhe H eine gleichseitige Hyperbelgleichung der Form gilt:

$$(D - D_0)(H - H_0) = C \quad \text{bzw.} \quad D = D_0 + \frac{C}{H - H_0} \quad (6.19)$$

wobei die Asymptoten D_0 der kritischer Durchmesser eines unendlich langen Zylinders und H_0 die kritische Höhe einer infiniten Schicht, und C eine problemabhängige Konstante bedeuten. Das Prinzip der Methode besteht nun darin, dieselbe Gl. (6.19) mit verschiedenen Konstanten zur empirischen Auswertung von Experimenten – bisher nur entwickelt für minimal reflektierte Anordnungen aus hoch angereicherten Uranylfluorid- oder Uranyl-nitratlösungen – zu verwenden.

Anwendung der Hyperbelgleichungsmethode

Die Methode ist für praktische Zwecke noch zu wenig entwickelt und erprobt. Der Fehler des Verfahrens beträgt für die betrachteten Spaltstoffe nach Angaben der Autoren $\pm 8\%$.

6.3 Raumwinkel- und Albedo-Verfahren

Im folgenden Kapitel werden Verfahren behandelt, die den Neutronenaustausch zwischen den Positionen einer Anordnung in Form von algebraischen Bilanzgleichungen für die einzelnen Positionen ausdrücken. Die Berechnung der Gleichgewichtsbedingungen ist jedoch i. A. sehr komplex, so dass man gezwungen ist, entweder Näherungsverfahren zu ihrer Lösung heranzuziehen oder vereinfachende Annahmen bei der Aufstellung der Bilanzgleichungen zu treffen.

In die Gruppe der approximativen Berechnungsmethoden fallen die sogenannten Raumwinkelmethoden, z. B. [6.23], welche obere Grenzen für den Multiplikationsfaktor einer

Anordnung in Abhängigkeit vom k_{eff} -Wert einer einzelnen unterkritischen Spaltstoffposition und dem auf sie bezogenen totalen Raumwinkel angeben. Die geometrische Größe Raumwinkel ist dabei als Maß für die Neutronenwechselwirkung anzusehen. Einzelheiten des Raumwinkelkonzepts werden am Beispiel der Methode von Henry, Newlon, und Mitarbeitern im folgenden Kap. 6.3.1 dargestellt.

Eine zweite Gruppe von Berechnungsmethoden ist dadurch charakterisiert, dass die unter vereinfachenden Annahmen aufgestellten Bilanzgleichungen als Eigenwertproblem gelöst werden, wobei wiederum geometrische Beziehungen eine wichtige Rolle spielen. Zu diesen Methoden zählen die Wechselwirkungsparametermethode [6.34] und das Albedo-Verfahren, dessen entwickeltste Variante von Clark [6.25] stammt. Diese Methoden werden in Kap. 6.3.2 behandelt.

6.3.1 Raumwinkelmethode nach Henry und Newlon

Die Raumwinkelmethode wurde in den 50er und 60er Jahren in Oak Ridge entwickelt. Sie existiert heute im Wesentlichen in zwei Varianten, daneben gibt es eine leicht abweichende französische Rechenmethode [6.27].

Die beiden Varianten sind folgendermaßen zu charakterisieren:

- Einfache Raumwinkelmethode [6.23]: Diese zuerst entwickelte Methode vergleicht tatsächliche Raumwinkelwerte mit festgesetzten Maximalwerten und gestattet von daher eine Aussage über Zulässig- oder Unzulässigkeit einer Anordnung.
- Erweiterte Raumwinkelmethode [6.26]: Die erweiterte Raumwinkelmethode gestattet die Berechnung von k_{eff} -Werten. Dabei kann die Neutronenflussverteilung über die Gesamtanordnung als Wichtungsmöglichkeit für die Raumwinkel eingesetzt werden.

Die französische Methode unterscheidet sich im Wesentlichen durch die Festsetzung anderer Grenzwerte von den amerikanischen. Daneben gibt es Unterschiede in der Definition der Raumwinkel (maximale Raumwinkel – mittlere oder gewichtete Raumwinkel).

Einfache Raumwinkelmethode:

Die Methode nach Henry beruht auf einigen einfachen Voraussetzungen:

- Alle Positionen in einer Anordnung müssen bei voller Wasserreflexion sicher sein.
- Der Kante-Kante-Abstand zwischen den Positionen darf nicht weniger als 30 cm betragen.
- Der Multiplikationsfaktor für eine einzelne unreflektierte Position darf 0,8 nicht überschreiten.

Bei Einhaltung dieser Prämissen ist die Spaltstoffanordnung auch bei Flutung oder Überschwemmung kritikalitätssicher.

Die Methode geht davon aus, dass der Multiplikationsfaktor einer unreflektierten Position bekannt ist. Er kann meist leicht mit Hilfe der Diffusionstheorie oder durch Ableitung aus kritischen Daten über Bucklingkonversion bestimmt werden. Als Maß der Wahrscheinlichkeit eines Neutronenaustausches zwischen den Spaltstoffpositionen wird die geometrische Größe des Raumwinkels zwischen den Positionen berechnet.

In dieser rein geometrischen Betrachtung bleiben natürlich Effekte, die aus Veränderungen der Energieverteilung der Neutronen, also des Spektrums, herrühren, völlig unberücksichtigt.

Jedem Multiplikationsfaktor einer Spaltstoffposition ist ein maximal zulässiger Raumwinkel zugeordnet (Abb. 6.1, Kurve A). Die Anordnung der Spaltstoffpositionen ist dann zulässig und sicher, wenn der vorhandene auf die reaktivste, meist zentrale Position der Anordnung bezogene Raumwinkel unter diesem maximal zulässigen Raumwinkel bleibt.

Die Grundbeziehung der Raumwinkelmethode kann nach Leclerc [6.27] wie folgt dargestellt werden:

$$k \leq \max_i \left(\frac{k_i}{1 - \nu_i} \right) < \max_i \left(\frac{k_i}{1 - \Omega_i} \right) \quad \text{für } i = 1 \text{ bis } n \quad (6.20)$$

Dabei bedeuten: k Multiplikationsfaktor der Anordnung, k_i Multiplikationsfaktor der Position i , n Gesamtzahl an Positionen, \max_i Maximalwert, ν_i Wahrscheinlichkeit für den Neutronenaustausch mit Position i .

Hierbei gilt:

$$\nu_i = \sum_{j=1}^n F_j \Omega_{ji} \quad (6.21)$$

mit F_j Austrittswahrscheinlichkeit für Neutronen aus der Position j , und Ω_{ji} Raumwinkel von Position j bezogen auf Position i .

$$\Omega_i = \sum_{j=1}^n \Omega_{ji} \quad \text{für alle } j \neq i \quad (6.22)$$

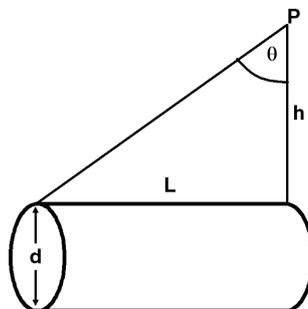
Die Neutronenemission aus den Positionen j wird als isotrop vorausgesetzt. Die Emissionswahrscheinlichkeiten F_j werden im einfachsten Fall gleich 1 gesetzt. Der Raumwinkel wird in Einheiten von Steradian angegeben, wobei die Oberfläche einer Einheitskugel gleich 4π Steradian entspricht. Häufig wird auch ein fraktioneller Raumwinkel $\Omega_f = \Omega/4\pi$ verwendet.

Folgende Beziehungen dienen zur Berechnung der vorhandenen Raumwinkel:

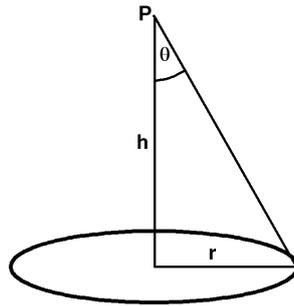
$$\text{Allgemeine Definition } \Omega = \frac{\text{Querschnittsfläche}}{\text{Quadrat des Abstands}} \quad (\text{Steradian})$$

Näherungsbeziehungen für einfache Geometrien sind [6.44]:

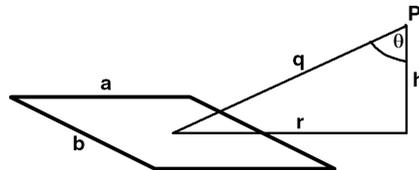
– Punkt zu Zylinder: $\Omega = \frac{d}{h} \sin \theta$



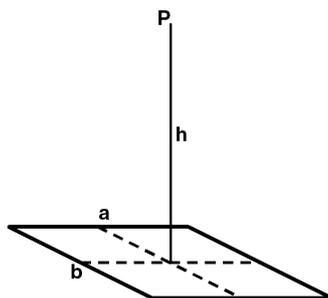
- Punkt zur Scheibe: $\Omega = 2\pi \cdot (1 - \cos \theta)$



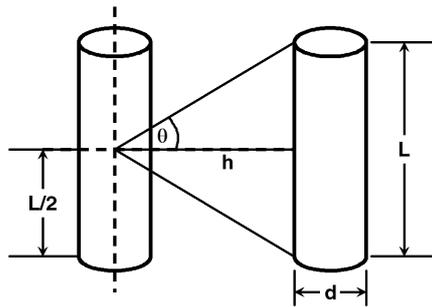
- Punkt zu Fläche: $\Omega = \frac{ab}{q^2} \cdot \cos \theta$



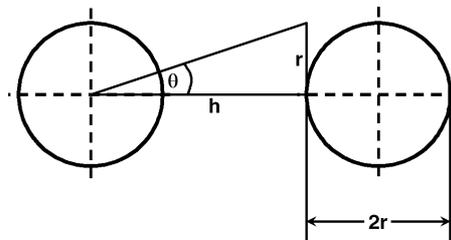
- Punkt senkrecht stehend über Flächenmitte: $\Omega = 4 \arcsin \left(\frac{(a/2)(b/2)}{\sqrt{(a/2)^2 + h^2} \cdot \sqrt{(b/2)^2 + h^2}} \right)$



- Punkt zu Zylindermitte, 2 parallele Zylinder: $\Omega = \frac{2d}{h} \sin \theta$



- Punkt zu Kugel, 2 Kugeln: $\Omega = 2\pi \cdot (1 - \cos \theta)$



Weitere Näherungsformeln sind in [6.28] enthalten.

Mathematisch exakte Beziehungen für Zylinder- und Kugelgeometrie werden in Rechenprogrammen für die Berechnung von Strahlungstransport und Abschirmung verwendet. Die zulässigen Raumwinkel sind in Abhängigkeit der Multiplikationsfaktoren für die einzelne Spaltstoffposition in Abb. 6.1 dargestellt. Die Kurven stellen Erfahrungswerte dar, die aus Experimenten abgeleitet wurden.

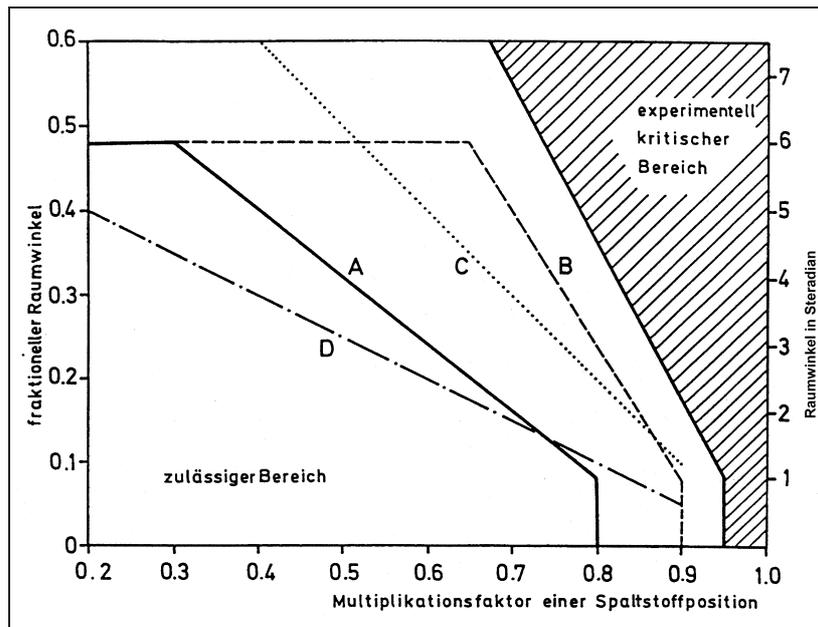


Abb. 6.1 Zulässige Raumwinkel als Funktion des Multiplikationsfaktors

Erläuterung der vier eingetragenen Kurven:

- Kurve A: Zulässig nach Henry für Normalfall (einschließlich teilreflektierter Positionen und Anordnungen)
- Kurve B: Zulässig nach Henry für Spezialfälle unreflektierter Anordnungen bei Vorliegen experimenteller Daten
- Kurve C: Zulässig nach Leclerc für unreflektierte Anordnungen
- Kurve D: Zulässig nach Leclerc für halbrelektierte Positionen und Anordnungen

In der Praxis läuft eine Raumwinkelberechnung in folgenden Schritten ab:

- Bestimmung der Lage und Abmessungen der Spaltstoffpositionen,
- Bestimmung der Multiplikationsfaktoren der Positionen,
- Berechnung der Raumwinkel von jeder zu jeder Position und Aufsummierung der einzelnen Raumwinkelbeiträge,
- Vergleich der berechneten Raumwinkel mit den zulässigen Werten.

Erweiterte Raumwinkelmethode

Die erweiterte Raumwinkelmethode gestattet die Berechnung von Multiplikationsfaktoren k der gesamten Anordnung. Dabei wird die bisher gleich 1 gesetzte Austrittswahrscheinlichkeit F_j aus Position j berücksichtigt und – falls möglich – eine Neutronenflusswichtung über die Gesamtanordnung ausgeführt. Das ist allerdings i. A. nur bei regulären Anordnungen aus untereinander gleichen Positionen möglich. Aus Gl. (6.20) folgt:

$$k = \frac{k_i}{1 - \sum_{j=1}^n F_j q_j \Omega_{ji}} = \frac{k_i}{1 - \sum_{j=1}^m (1 - U_j) q_j \Omega_{ji}} \quad (6.23)$$

Dabei bedeuten die neu hinzugekommenen Größen: q_j Wichtungsfaktor für die Neutronenflussverteilung über die Gesamtanordnung an der Position j , und U_j Verbleibwahrscheinlichkeit für Neutronen aus Position j .

Für reguläre Anordnungen der nachstehenden Gestalt können die Neutronenflussverteilung und somit die Flussgewichte $q_j = \phi/\phi_z$ bestimmt werden nach Tab. 6.5 [6.29]:

Tab. 6.5 Bestimmung der Flussgewichte bei Anwendung der erweiterten Raumwinkelmethode

Gestalt der Anordnung	Flussverteilung
Kugel	$\phi = \phi_z \cdot \frac{\sin(\pi r/R)}{(\pi r/R)}$
Schicht (Flussvert. senkrecht z. Oberfl.)	$\phi = \phi_z \cdot \cos\left(\frac{\pi z}{2H}\right)$
Schicht (Flussvert. parallel z. Oberfl.)	$\phi = \phi_z \cdot \cos\left(\frac{\pi x}{2W}\right) \cos\left(\frac{\pi y}{2L}\right)$
Quader oder Würfel (bei Würfel $W = L = H$)	$\phi = \phi_z \cdot \cos\left(\frac{\pi x}{2W}\right) \cos\left(\frac{\pi y}{2L}\right) \cos\left(\frac{\pi z}{2H}\right)$
Unendlich langer Zylinder	$\phi = \phi_z \cdot J_0\left(\frac{2,4048r}{R}\right)$
Endlich langer Zylinder	$\phi = \phi_z \cdot J_0\left(\frac{2,4048r}{R}\right) \cos\left(\frac{\pi z}{2H}\right)$

Hier bedeuten ϕ den Neutronenfluss an einer bestimmten Stelle der Anordnung und ϕ_z den Neutronenfluss im Zentrum der Anordnung. Die Größen x, y, z, r sind die Koordinaten der jeweils betrachteten Position bezüglich der Zentraleinheit, wo der Koordinatenursprung liegt (Kartesische, Kugel- oder Zylinderkoordinaten). Die Größen W, L, H und R messen ebenfalls vom Koordinatenursprung aus und stellen die jeweils größte Ausdehnung der Anordnung in den Achsenrichtungen dar, wobei eine zusätzliche Extrapolationslänge S , üblicherweise ein Gitterabstand der Anordnung, jeweils hinzugerechnet wird,

was in Abb. 6.2 an einem Beispiel verdeutlicht wird. Vorsicht ist bei der Berücksichtigung der Flussrichtung geboten, wenn es sich um kleine Anordnungen mit reflektierenden Wänden handelt. Hier sollte $q_j = 1$ gesetzt werden.

Die Anwendung der erweiterten Raumwinkelmethode in Handrechnungen wird mit zunehmender Anzahl an Positionen recht mühsam. Es ist daher vorteilhaft, derartige Rechnungen mit Rechenprogrammen durchzuführen [6.30], [6.31]. Die Berechnung der k_{eff} -Werte und der Austrittswahrscheinlichkeiten kann nach den in Kap. 1.3.1 angegebenen Beziehungen erfolgen.

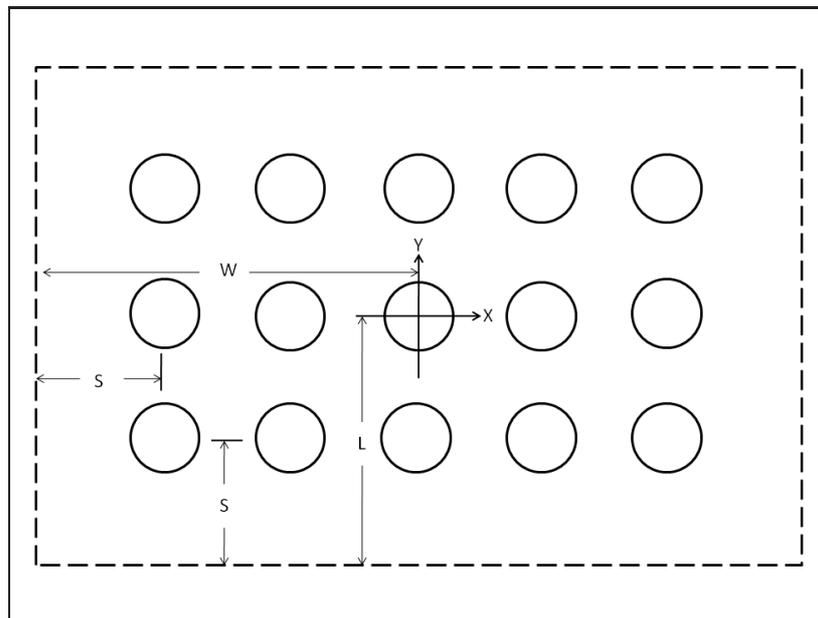


Abb. 6.2 Darstellung der Koordinaten und Längen für eine Flussrichtung über eine Anordnung

Anwendungsbereich der Raumwinkelmethode

Da es sich bei der Raumwinkelmethode um eine weitgehend geometrische Methode handelt, ist die Anwendung zunächst recht einfach und übersichtlich, wenn auch mühsam bei vielen Positionen. Sie setzt jedoch k_{eff} -Werte für die Positionen voraus, die manchmal nicht einfach zu ermitteln sind. Die Ergebnisse sind nahezu stets auf der sicheren Seite. Besonders günstig ist die Methode für Anordnungen aus Lösungsbehältern. Auch bei unterschiedlichen Behältergrößen liefert die Methode meist konservative Resultate, wie Vergleichsrechnungen mit Monte Carlo-Technik zeigen. Das bestätigen auch Arbeiten von Henry [6.32]. Die Methode, abgeleitet für hochangereicherte Lösungen, ist auch

für niedrige Anreicherungen auf der sicheren Seite [6.33]. Bei der Anwendung auf dreidimensionale Anordnungen, insbesondere auf metallische Spaltstoffpositionen, ist Vorsicht geboten. Hier wird empfohlen, Sicherheitsabschläge für den Multiplikationsfaktor k anzubringen. Weiter sollte der Raumwinkel nach den Gleichungen bestimmt werden, nicht aus Daten die als Kurvenscharen, z. B. in [6.34], vorliegen, da sich dabei nichtkonservative Ergebnisse bei kleinen Abständen ergeben können.

6.3.2 Albedomethode nach Clark

Das Berechnungsverfahren von Clark [6.25] lässt sich ähnlich wie die Raumwinkelmethode in zwei Phasen aufteilen:

- Die rein geometrische Berechnung der Wechselwirkungswahrscheinlichkeiten zwischen benachbarten Spaltstoffpositionen i und j .
- Die Berechnung der kritischen Größen für eine Spaltstoffposition aus der sogenannten Albedo β_i , dem Verhältnis des in eine Position i eintretenden Neutronenstroms j_i^- zu dem aus i austretenden Neutronenstrom j_i^+ :

$$\beta_i = \frac{j_i^-}{j_i^+} \quad (6.24)$$

Ausgangsbasis aller Betrachtungen sind die Neutronenbilanzgleichungen für eine Anordnung. Unter der Voraussetzung, dass keine äußeren Neutronenquellen vorhanden sind, besagt die Kritikalitätsbedingung, dass der in jede Position eintretende Neutronenstrom dem jeweils austretenden Neutronenstrom gleich sein muss. Für n Positionen gilt demnach bei monoenergetischen Neutronen:

$$\begin{aligned} j_1^- &= \rho_{11}j_1^+ + \rho_{12}j_2^+ \cdots + \rho_{1n}j_n^+ = j_1^+ \\ j_2^- &= \rho_{21}j_1^+ + \rho_{22}j_2^+ \cdots + \rho_{2n}j_n^+ = j_2^+ \\ &\quad \dots \\ j_n^- &= \rho_{n1}j_1^+ + \rho_{n2}j_2^+ \cdots + \rho_{nn}j_n^+ = j_n^+ \end{aligned} \quad (6.25)$$

Clark löst dieses Gleichungssystem unter Einführung von β nach Gl. (6.24) unter den folgenden Approximationen:

- Clark macht das Gleichungssystem zu einem Eigenwertproblem, indem er annimmt, dass die Albedo jeder Position gleich ist, d. h. $\beta_1 = \beta_2 = \dots = \beta_n \equiv \beta$.
- Die Wechselwirkungswahrscheinlichkeiten ρ_{ij} werden unter folgenden Annahmen berechnet:
 - Die von jeder Position ausströmenden Neutronen haben eine Kosinusverteilung (d. h. isotrope Streuung),
 - die Neutronenemission erfolgt gleichmäßig über die gesamte Oberfläche jeder Position (d. h. gleichmäßige Neutronendichteverteilung einer Position).

Werte für ρ_{ij} können für einfache Fälle analytisch [6.25], sonst mit numerischen Verfahren approximativ gewonnen werden. Mit den ermittelten Werten für ρ und β lassen sich unter Einschluss des Wechselwirkungseffekts ein Buckling und daraus bei bekanntem k_∞ des Spaltstoffs und der zugehörigen Wanderfläche M^2 auch k_{eff} -Werte für die Gesamtanordnung berechnen. Reflektoreffekte können durch entsprechende Modifizierung der Übergangswahrscheinlichkeiten ρ_{ij} berücksichtigt werden.

Es empfiehlt sich, das Berechnungsverfahren programmiert durchzuführen, z. B. mit dem Programm INTERACT [6.35].

Anwendungsbereich der Albedomethode

Die Albedomethode ist besonders für Anordnungen geeignet, die aus nicht zu vielen identischen Positionen einfacher geometrischer Gestalt bestehen. Die Ergebnisse sind meist auf der sicheren Seite. Für Anordnungen aus verschiedenen Spaltstoffpositionen wird die Bestimmung der Übergangswahrscheinlichkeit ρ_{ij} schwierig. Ebenso können sich Schwierigkeiten bei reflektierten Anordnungen dadurch ergeben, dass Spektrumsänderungen durch den Reflektor unberücksichtigt bleiben.

6.4 Das Monte Carlo-Verfahren

Das Monte Carlo-Verfahren entstand durch Anwendung einer speziellen Methode der Wahrscheinlichkeitstheorie, der Methode der Zufallsexperimente, auf das Neutronentransportproblem. Man führt dazu eine Art von Gedankenexperiment durch, bei dem die Bewegung einzelner Neutronen und ihre Wechselwirkung mit Atomkernen rechnerisch si-

muliert werden. Das Verfahren ist für die Berechnung noch so komplizierter Spaltstoffanordnungen geeignet. Seine Genauigkeit ist allein durch die Qualität der verwendeten Wirkungsquerschnitte, durch die numerische Genauigkeit und die verfügbare Rechenzeit begrenzt.

Von besonderem Wert ist die Methode für die Berechnung von Neutronenwechselwirkungsproblemen. Einschränkungen, wie sie für die Näherungsverfahren der Abschnitte 6.1 und 6.2 gelten, sind nicht zu beachten. Das trifft vor allem auf Anordnungen mit einem Zwischenmoderator zu. Allerdings ist dabei anzumerken, dass bei Verwendung von Gruppenkonstanten die gegenseitige Spektrumsbeeinflussung von Spaltstoffeinheiten und Zwischenmoderatomaterial nicht eingeht. Dieser Effekt wird bei den sog. Punkt-Monte Carlo-Codes umgangen, die mit ungewichteten energieabhängigen Wirkungsquerschnitten arbeiten. Der Effekt spielt in der Praxis allerdings selten eine Rolle.

Die breite Anwendbarkeit und Genauigkeit des Monte Carlo-Verfahrens ist in der Tatsache begründet, dass die rechnerische Simulation der Neutronenbewegung immer möglich ist, unabhängig davon, wie kompliziert der Aufbau eines Systems auch ist. Als Einschränkung ist jedoch zu beachten, dass die Abmessungen einer Anordnung wenigstens einige freie Neutronenweglängen betragen.

Neutronenphysikalische Größen ergeben sich beim Monte Carlo-Verfahren durch Auswerten der Schicksale der Neutronen: Während ihres Fluges registriert man charakteristische Daten wie Entstehungsort, Streuung, Absorption, Spaltung und Leckage. Durch Mittelung dieser Daten über eine große Anzahl von Neutronenschicksalen erhält man den Multiplikationsfaktor, Spaltraten, Leckagen, etc.

Die Vorteile des Monte Carlo-Verfahrens gegenüber anderen Methoden liegen in der flexiblen Geometriebehandlung und insbesondere in der Erfassung der Zwischenmoderation, sein Nachteil in den beachtlichen Rechenzeiten.

Weiter erweist es sich bei einigen Anwendungen als ungünstig, dass die ortsabhängigen Neutronenflüsse nicht in der beim Diffusions- und S_N -Verfahren möglichen detaillierten Art anzugeben sind.

6.4.1 Das Prinzip des Verfahrens

Die skizzierte Funktionsweise des Verfahrens umreißt eine Monte Carlo-Grundform, die alle beim Neutronentransport ablaufenden Prozesse direkt auf der Rechenmaschine simuliert. Sie wird als „Direktes Monte Carlo“ oder „Analoge Simulation“ bezeichnet. Die Rechnung läuft dabei etwa folgendermaßen ab: Man simuliert die Flugbahnen der Neutronen generationsweise, wobei jede Generation aus einer durch Programmeingabe festgelegten Zahl von Neutronen (etwa 1000–10 000 oder auch mehr, je nach System) besteht. In der ersten Generation wird die räumliche Verteilung der Bahnanfangspunkte der Neutronen durch Programmeingabe bestimmt. Die Energie der Neutronen wird entsprechend einer Spaltverteilung $\chi(E)$ gewählt. Die Winkelverteilung der Flugbahnen beim Start wird als isotrop angenommen. Wegen der geringen Neutronendichten treten keine Neutron-Neutron Stoßprozesse auf, so dass die Flugbahn bis zu einer Kollision mit einem Atomkern geradlinig verläuft. Die Länge d der Strecke, die ein Neutron bis zum Kollisionspunkt zurücklegt, beträgt:

$$d = \frac{1}{\sigma_T(E)} \cdot \ln Z_1 \quad (6.26)$$

$\sigma_T(E)$ ist der von der Energie E des Neutrons abhängige totale Wirkungsquerschnitt, der die Wahrscheinlichkeit einer Kollision zwischen Neutron und Kern angibt. Z_1 ist eine sogenannte Zufallszahl. Sie erfasst die probabilistische Natur des Kollisionsvorganges und wird vom Zufallszahlengenerator, einer wichtigen Teilroutine von Monte Carlo-Codes, erzeugt. Er liefert gleichmäßig über den Bereich zwischen 0,0 und 1,0 verteilte Zahlen von zufälliger Größe.

Mittels spezieller Geometrie-Routinen wird geprüft, ob das Neutron auf der Strecke d die Grenze zu einem anderen Material überschreitet oder die Spaltstoffanordnung überhaupt verlässt. Im ersten Fall wird d für dieses Material neu berechnet und die Bahnlänge dementsprechend geändert. Im zweiten Fall wird das Schicksal des Neutrons beendet und das nächste Neutron gestartet.

Hat das Neutron auf diese Weise einen Kollisionspunkt erreicht, wird mittels der Wirkungsquerschnitte für Absorption $\sigma_A(E)$ und Streuung $\sigma_S(E)$ durch eine weitere Zufallszahl Z_2 entschieden, welcher der beiden Prozesse vorliegt. Um eine Absorption handelt

es sich bei

$$0 \leq Z_2 \leq \frac{\sigma_A(E)}{\sigma_A(E) + \sigma_S(E)} \quad (6.27)$$

Erfüllt Z_2 die folgende Ungleichung

$$\frac{\sigma_A(E)}{\sigma_A(E) + \sigma_S(E)} < Z_2 \leq 1 \quad (6.28)$$

handelt es sich um einen Streuprozess. Bei Absorption wird weiter mittels der Wirkungsquerschnitte für Spaltung $\sigma_F(E)$ und Neutroneneinfang $\sigma_\gamma(E)$ geprüft, ob die Absorption zu einer Kernspaltung führt. Das ist der Fall bei

$$0 \leq Z_3 \leq \frac{\sigma_F(E)}{\sigma_F(E) + \sigma_\gamma(E)} \quad (6.29)$$

Für andere Werte von Z_3 , also im Bereich

$$\frac{\sigma_F(E)}{\sigma_F(E) + \sigma_\gamma(E)} < Z_3 \leq 1 \quad (6.30)$$

handelt es sich um einen Einfangprozess ohne nachfolgende Kernspaltung. Das Neutronenschicksal wird beendet und das nächste Neutron gestartet. Im Fall einer Kernspaltung wird als nächstes die Anzahl der freigesetzten Spaltneutronen bestimmt:

$$\nu = \text{int}(\bar{\nu}(E) + Z_4) \quad (6.31)$$

Die Funktion „int“ repräsentiert hier die Integer- oder Ganzzahligkeitsfunktion.

$\bar{\nu}(E)$ ist die mittlere Neutronenausbeute pro Spaltung. Die Koordinaten des Spaltortes werden zusammen mit $\bar{\nu}$ gespeichert. Sie bilden einen Startpunkt der folgenden Generation. Die Energie E_0 des Spaltneutrons folgt aus der Wahrscheinlichkeitsverteilung über die normierte Spaltverteilung $\chi(E)$:

$$Z_5 = \int_0^{E_0} \chi(E) dE \quad (6.32)$$

Nach Abb. 6.3 ergibt sich aus einer Zufallszahl Z_5 die Energie E_0 des Spaltneutrons.

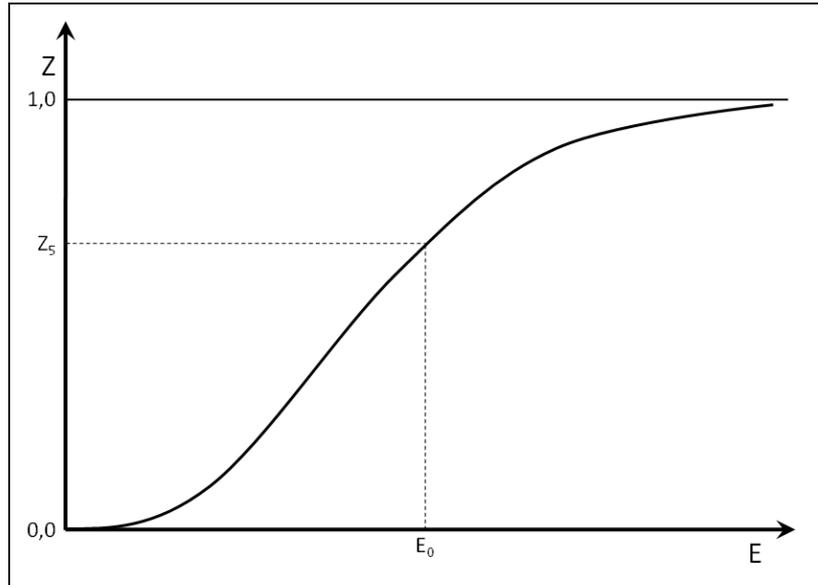


Abb. 6.3 Wahrscheinlichkeitsverteilung der Energie eines Spaltneutrons

Hat die Prüfung nach Gl. (6.27) einen Streuprozess ergeben, setzt das Neutron seinen Weg mit geänderter Energie und Flugrichtung fort. Die neue Flugrichtung im Laborsystem ergibt sich aus dem Richtungskosinus des Polarwinkels Ψ bzw. des Azimutwinkels Φ und der alten Flugrichtung. Der Richtungskosinus von Φ ist gleichverteilt, so dass gilt:

$$\cos \Phi = 2Z_6 - 1 \quad (6.33)$$

Der Richtungskosinus von Ψ dagegen hängt über μ_E von der Energie des Neutrons ab:

$$\cos \Psi = \frac{1 + A\mu_E}{\sqrt{1 + A^2 + 2A\mu_E}} \quad (6.34)$$

A ist die Masse des streuenden Kerns (Masse des Neutrons ist 1). μ_E ist der Richtungskosinus des Polarwinkels für elastische Streuung im Schwerpunktsystem bei der Energie E . Man erhält μ_E aus der Wahrscheinlichkeitsverteilung über den normierten differentiellen Streuquerschnitt $\sigma_S(E, \mu)$.

$$Z_7 = \int_{-1}^{\mu_E} \sigma_S(E, \mu) d\mu \quad (6.35)$$

Die Energie des Neutrons nach dem Stoß E' ergibt sich aus der Energie E vor dem Stoß mit

$$E' = \frac{E}{2} \cdot \left(\left[1 + \left(\frac{A-1}{A+1} \right)^2 \right] + \left[1 - \left(\frac{A-1}{A+1} \right)^2 \right] \cdot \mu_E \right) \quad (6.36)$$

Auf die beschriebene Art und Weise werden nun alle Neutronen der ersten Generation der Reihe nach gestartet und bis zu ihrem Ende durch Absorption oder Leckage verfolgt. Anschließend werden gesuchte Größen durch Mittelwertbildung für diese Generation bestimmt. Den Multiplikationsfaktor k_1 z. B. erhält man als Quotient aus der Anzahl der in der ersten Generation entstandenen Spaltneutronen zur Zahl der Startneutronen:

$$k_i = \frac{1}{M} \sum_l^C \nu_l \quad (6.37)$$

Der Index i ist die Generationsziffer, M ist die Zahl der Startneutronen, C ist die Anzahl der Spaltprozesse, ν_l ist die Zahl der Spaltneutronen des l -ten Spaltprozesses.

Die Startverteilung der Neutronen der zweiten Generation ist durch die gespeicherten Daten über Entstehungsort und Anzahl der Spaltneutronen aus der ersten Generation gegeben. Sie weicht von der Verteilung der ersten Generation insofern ab, als in Gebieten hoher Reaktivität vermehrt Startpunkte registriert sind. Damit ist sie der räumlichen Lage von Heiß- und Kaltstellen besser angepasst.

Die Berechnung der 2. Generation wird mit der Bestimmung von k_2 beendet, die neuen Spaltorte werden als Startverteilung der 3. Generation verwendet und so fort.

Zusätzlich zu den k_i wird nach jeder Generation der Mittelwert über alle k_i gebildet. Er variiert anfangs stark und zeigt damit den Einfluss der sich anpassenden Startverteilung. Nach wievielen Generationen dieser Anpassungsvorgang konvergiert hat, hängt wesentlich von der Wahl der Anfangsstartverteilung ab. Ist sie ungeeignet, können bei großen Spaltstoffanordnungen Heißstellen unerkant bleiben. Der Multiplikationsfaktor wird von einer derartigen Rechnung zu niedrig bestimmt [6.36].

Nach einer definierten Anzahl von N Generationen wird der sogenannte Bestwert für den Erwartungswert des Multiplikationsfaktors bestimmt (arithmetisches Mittel):

$$\bar{k} = \frac{1}{N} \sum_i^N k_i \quad (6.38)$$

Wegen der anfangs nur eingeschränkt geeigneten Startverteilung schließt man dabei die ersten Generationen aus. Unabhängig davon ist \bar{k} auch nach großen Generationszahlen noch mit einem statistischen Fehler behaftet. Einen Schätzwert dafür gibt die Standard-

abweichung σ des Mittelwerts \bar{k} an, mit η als Standardabweichung der Stichproben k_i :

$$\sigma = \frac{\eta}{\sqrt{N}} \quad (6.39)$$

$$\eta = \sqrt{\frac{1}{N-1} \cdot \left(\sum_i^N (k_i - \bar{k})^2 \right)}; \quad \sigma = \sqrt{\frac{1}{N(N-1)} \cdot \left(\sum_i^N (k_i - \bar{k})^2 \right)} \quad (6.40)$$

Das Quadrat der Standardabweichung wird auch als Varianz bezeichnet: $V = \eta^2$. Man sieht anhand der Definition von σ nach Gl. (6.39), dass zur Reduzierung des statistischen Fehlers um einen Faktor 2 bereits $4N$ Generationen berechnet werden müssen.

Als Ergebnis für den Multiplikationsfaktor k_{eff} liefert die Monte Carlo-Rechnung schließlich den Ausdruck

$$k = \bar{k} \pm \sigma \quad (6.41)$$

Nach der Gauß'schen Normalverteilung beträgt die Wahrscheinlichkeit, dass der Bestwert des Multiplikationsfaktors innerhalb des Bereiches $\bar{k} \pm \sigma$ liegt, dem sogenannten Vertrauensintervall, 68 %. Bei 95 % Vertrauensintervall ist der Bereich auf $\bar{k} \pm 1,96 \sigma$ zu erweitern. Die Gleichungen (6.37) und (6.40) gelten allgemein nur für normalverteilte k_i oder bei hinreichenden Generationszahlen ($N \geq 50$). Falls die k_i nicht normalverteilt sind und außerdem $N \leq 20$ ist, muss die Standardabweichung σ nach dem Student-Test bestimmt werden [6.37]. Derart kleine Generationszahlen sind für die Kritikalitätsrechnung allerdings wegen schwacher Konvergenz der Startverteilung unzureichend. Frühe Erfahrungswerte zeigten, dass 100 Generationen zu 300 Neutronen nicht unterschritten werden sollten um belastbare Resultate zu erzielen. Bei komplizierteren Anordnungen empfiehlt es sich, die Neutronenzahl pro Generation auf 10 000 bei 1000 Generationen zu erhöhen, je nach Komplexität bzw. verfügbarer Rechnerleistung auch deutlich mehr.

6.4.2 Rechentechniken und Simulationsmethoden

Die Arbeitsweise moderner Monte Carlo-Programme zur Berechnung der Neutronenwechselwirkung weicht meist von dem einfachen Prinzip der „Analogen Simulation“ ab. Es

handelt sich dabei vor allem um Maßnahmen zur Reduzierung des statistischen Fehlers. Daneben werden spezielle Techniken verwendet, um die Behandlung der anisotropen Streuung zu vereinfachen: Es bedeutet unnötigen Zeitaufwand, μ_E und E' bei jedem Streuprozess mittels Zufallszahl aus Gl. (6.35) zu berechnen. Schneller und für Kritikalitätsrechnungen ausreichend genau ist es z. B., einen festen Mittelwert $\mu_{E \rightarrow E'}$ zu verwenden. Er ergibt sich näherungsweise aus den P_0 - und P_1 -Koeffizienten einer Legendre-Entwicklung des Streuquerschnitts. Monte Carlo-Multigruppen-Codes und S_N -Programme können damit eine gemeinsame Gruppenkonstantenbibliothek benutzen – ein enormer Vorteil für die praktische Arbeit.

Alle Maßnahmen zur Reduzierung des statistischen Fehlers werden unter dem Begriff der „Varianzreduktion“ zusammengefasst. Aus der Vielzahl derartiger Methoden werden vor allem das Konzept der „statistischen Neutronengewichte“ zusammen mit „Russischem Roulette“ und „Splitting“ angewendet.

Das Konzept der statistischen Neutronengewichte ist aus der Erkenntnis entstanden, dass eine direkte Simulation abrupter Vorgänge, wie z. B. der Absorption, die Varianz unnötig hoch hält. Man zielt deshalb bei einer Kollision nicht etwa auf Absorption ab, um das Neutronenschicksal ggf. zu beenden. Vielmehr gibt man einem Neutron j beim Start ein statistisches Anfangsgewicht $w_{i,j} = 1,0$, das bei jeder Kollision reduziert wird. Ein Maß für diese Reduzierung ist das Verhältnis des Streuquerschnitts zum totalen Wirkungsquerschnitt. Nach der Kollision i hat das Neutron das Restgewicht

$$w_{i+1,j} = \frac{\sigma_s(E)}{\sigma_\tau(E)} \cdot w_{i,j} \quad (6.42)$$

Auf diese Weise verwandelt man den abrupten Vorgang der Absorption in einen gleichsam kontinuierlichen Prozess.

Die Bestimmung der Erwartungswerte gesuchter Größen erfolgt anhand des Neutronengewichtes. Zur Identifizierung von Spaltprozessen wird z. B. bei jeder Kollision in Gebieten, die spaltbare Kerne enthalten, ein Spaltgewicht $s_{i,j}$ berechnet:

$$s_{i,j} = \frac{\bar{\nu}(E)\sigma_F(E)}{\sigma_\tau(E)} \cdot w_{i,j} \quad (6.43)$$

Die Spaltgewichte $s_{i,j}$ aus den einzelnen Kollisionen werden aufsummiert zu einem Ge-

samtspaltgewicht s . Übersteigt s den Wert 1,0, so wird für den Kollisionort die Entstehung eines Neutrons registriert. Gleichzeitig wird s um 1,0 reduziert.

Der Multiplikationsfaktor k , der Absorptionsanteil A und der Leckageanteil L ergeben sich zu

$$k = \frac{1}{NPG} \sum_i^{NKOLL} \sum_j^{NPG} w_{i,j} \frac{\bar{\nu}(E) \sigma_F(E)}{\sigma_\tau(E)} \quad (6.44)$$

$$A = \frac{1}{NPG} \sum_i^{NKOLL} \sum_j^{NPG} w_{i,j} \frac{\sigma_A(E)}{\sigma_\tau(E)} \quad (6.45)$$

$$L = \frac{1}{NPG} \sum_l^{NLECK} w_l \quad (6.46)$$

$NKOLL$ ist die Anzahl der Kollisionen des Neutrons j , NPG die Anzahl der Neutronen pro Generation, $NLECK$ die Anzahl der Leckageneutronen, und w_l das statistische Gewicht eines Leckageneutrons.

Nach einer Reihe von Kollisionen wird das Gewicht eines Neutrons auf einen geringen Wert gefallen sein. Daher werden weitere Kollisionen nur noch geringe Beiträge zu s , d. h. zur Bestimmung von Spaltneutronen liefern. Trotzdem muss für jede Kollision der volle Aufwand an Rechenzeit erbracht werden. Um das zu verhindern, wird ein varianzreduzierendes Verfahren, Russisches Roulette genannt, angewandt: Beim Unterschreiten einer unteren Gewichtsgrenze w_U wird das Neutron entweder „getötet“, oder aber seine Bahn mit erhöhtem Gewicht w_m fortgeführt. Zur Vermeidung eines systematischen Fehlers wird die Erhöhung auf w_m umgekehrt proportional zur Überlebenschance p des Neutrons gewählt:

$$w_m = w \cdot \frac{1}{p} \quad (6.47)$$

Über „Leben und Tod“ wird wieder mittels einer Zufallszahl Z entschieden. Nur für

$$0 \leq Z \leq (w/w_m) \quad (6.48)$$

wird das Schicksal des Neutrons mit dem Gewicht w_m fortgesetzt. Andernfalls wird das Schicksal beendet und das nächste Neutron gestartet. Der Zahlenwert für w_U bzw. w_m

wird abhängig von der Art des Spaltstoffsystems und vor allem von Ort und Energie gewählt. In Gebieten, die von geringer Bedeutung für die Bestimmung einer gesuchten Größe sind, wird w_U groß gewählt. Dadurch werden dort weniger Neutronenschicksale verfolgt als in bedeutenden Gebieten: Es handelt sich beim Russischen Roulette also um eine Methode zur Verringerung der Neutronenzahlen in unbedeutenden Gebieten. Das ist vor allem in thermischen Systemen mit ihren verhältnismäßig geringen Leckagewahrscheinlichkeiten wichtig.

Eine Methode, die das Gegenteil bewirkt, nämlich eine Erhöhung der Neutronenzahlen in bedeutenden Gebieten, ist das „Splitting“: Übertrifft das Gewicht des Neutrons eine obere Grenze w_O , so wird es aufgespalten in zwei Neutronen mit jeweils halbem Gewicht. Eines der beiden wird weiterverfolgt; wenn sein Gewicht immer noch über w_O liegt, wird es erneut aufgespalten. Das andere Neutron wird gespeichert und erst dann weiterverfolgt, wenn das Schicksal des ersten beendet ist. Die Größen w_U , w_m und w_O werden in Abhängigkeit von Energie und Ort per Programmeingabe festgelegt. In wichtigen Gebieten müssen diese drei Größen niedrige Werte aufweisen. Damit tritt Russisches Roulette selten und Splitting häufig auf. Umgekehrtes gilt für unbedeutende Gebiete. Bewährt haben sich folgende Gewichtsgrenzen [6.38]:

$$w_m = 0,5; \quad w_U = w_m/3; \quad w_O = 3w_m \quad (6.49)$$

Bei nichtmultiplizierenden Medien mit großen Abmessungen wie z. B. Betonreflektoren empfiehlt es sich, in größerer Entfernung vom Spaltstoff geeignete höhere Werte zu verwenden. Eine Reduktion der Rechenzeiten um einen Faktor 3 ist auf diese Weise durchaus zu erreichen.

Bei der Festlegung von w_m hat man vor allem von Erfahrungswerten auszugehen. Dabei ist anzumerken, dass die Verwendung zu hoher Werte bei Reflektoren und Zwischenmoderatoren zu nichtkonservativen Ergebnissen führen kann. Für genaue Rechnungen bestimmt man daher gute Gewichtsgrenzen mittels der adjungierten Lösung eines ähnlichen, aber vereinfachten Problems, wie man sie durch eine S_N -Rechnung erhält. Die adjungierte Lösung des Neutronenflusses ist ein Maß für den Beitrag eines Neutrons und seiner Nachkommen zur Gesamtzahl der Kernspaltungen, d. h. zum Multiplikationsfaktor [6.39]. Die Werte für w_m sind daher umgekehrt proportional zum adjungierten Fluss zu setzen. Beispiele für derartige Werte sind in [6.40] zu finden.

6.4.3 Geometriedarstellung und Reflektoren

Grundsätzlich erlaubt das Monte Carlo-Verfahren eine im Rahmen der Maschinengenauigkeit exakte, dreidimensionale Darstellung von Spaltstoffanordnungen. Um diesen Vorteil auch in der Praxis ausnutzen zu können, müssen die Geometrie-Routinen eines Rechenprogramms einfach zu handhaben sein und geringe Ablaufzeiten aufweisen. Die meisten Monte Carlo-Programme verwenden daher einfache Geometrieoptionen, die mit ineinander geschachtelten Körpern arbeiten. Die Begrenzungsflächen dieser Körper sind in der Regel Kugeln, Zylinder und Quader. Ähnlich wie bei Matroschka-Puppen umschließen sich dabei aufeinander folgende Begrenzungsflächen ohne gegenseitige Durchdringung, vgl. dazu Abb. 6.4.

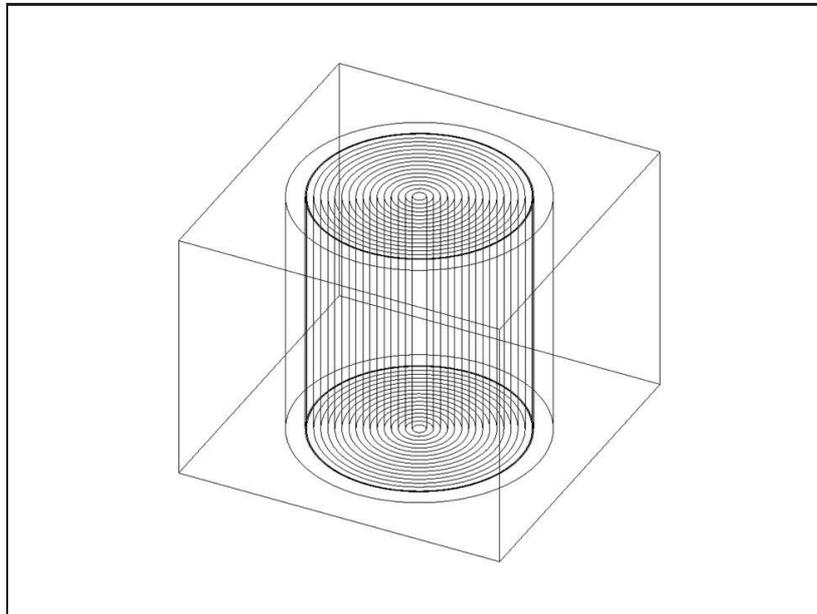


Abb. 6.4 Beispiel eines Boxaufbaus in der Geometriedarstellung eines Monte Carlo-Verfahrens

Als äußerste Begrenzungsfläche ist meist eine quaderförmige, sogenannte „Box“ vorgegeben. Durch Aneinandersetzen von Boxen kann man dreidimensionale Spaltstoffanordnungen darstellen. Der Inhalt der einzelnen Boxen kann, muss aber nicht gleich sein. Zwischenmoderatoren werden durch geeignet aufgebaute Boxen berücksichtigt, vgl. dazu Abb. 6.5. Ein äußerer Reflektor, der die Anordnung umschließt, kann geschichtet sein und wird ebenfalls durch Ineinanderschachteln dargestellt.

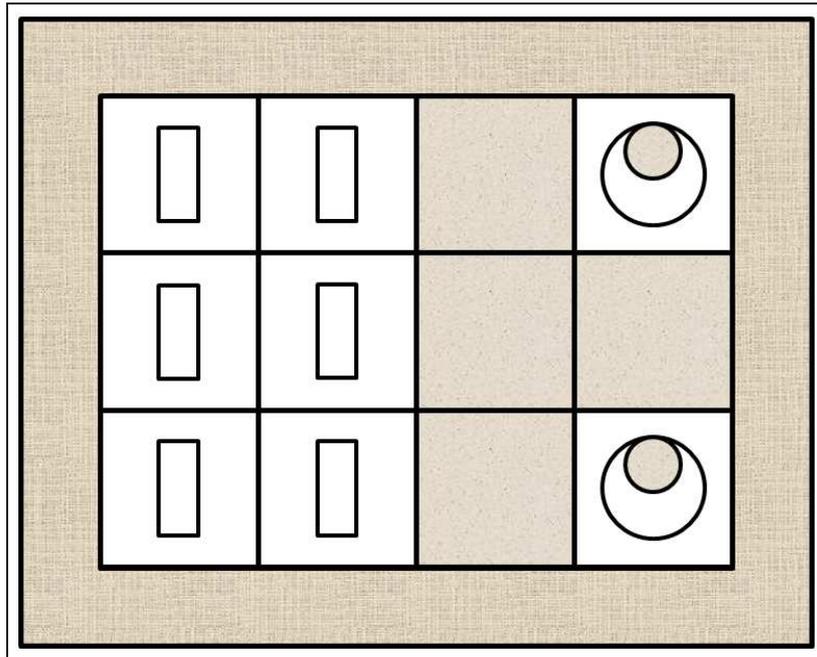


Abb. 6.5 Spaltstoffanordnung mit Zwischenmoderator und äußerem Reflektor

Diese einfache Form der Geometriedarstellung ist für komplizierte Anordnungen wie z. B. hexagonal dicht gepackte Gitter nicht geeignet. Für solche Fälle muss eine Spezial-Routine verwendet werden. Der Aufwand dafür ist allerdings meist so hoch, dass es sich lohnt, die sog. *general geometry routine* [6.41] zu verwenden. Sie gestattet praktisch beliebig geformte Körper darzustellen. Dabei wird die Oberfläche eines Körpers, wenn nötig auch stückweise, durch Polynome 2. Grades beschrieben.

$$F(x, y, z) = ax^2 + by^2 + cz^2 + dxy + exz + fyz + gx + hy + iz + j \equiv 0 \quad (6.50)$$

Die Zuordnung eines Materials M zu einem Körper mit der Oberfläche $F(x, y, z) \equiv 0$ geschieht folgendermaßen: $F(x, y, z)$ teilt den Raum R in zwei Teilräume R^+ und R^- (der Ortsvektor \vec{r} steht im Folgenden abkürzend für das Tripel (x, y, z)):

$$R^+ = \{\vec{r} \mid F(\vec{r}) > 0\} \quad (6.51)$$

$$R^- = \{\vec{r} \mid F(\vec{r}) \leq 0\} \quad (6.52)$$

An Orten \vec{r} , für die $F(\vec{r}) \leq 0$ ist, befinden sich die Neutronen innerhalb des Körpers und damit im Material M .

Nachteil dieser Routine sind die erhöhten Ablaufzeiten und die aufwändige Vorbereitung

der Eingabedaten. Die Zeit für die Berechnung einer Kugel verhält sich im Vergleich zur einfachen Geometriebehandlung etwa wie 3:1, die Anzahl der Eingabedaten erhöht sich auf das 10-fache. Einen guten Kompromiss hinsichtlich Flexibilität der Geometriedarstellung einerseits und Bedienungsaufwand sowie Rechenzeit andererseits bietet die sog. *combinatorial geometry* [6.42].

Teil der Geometriebeschreibung ist auch die Festlegung der Reflektor-Bedingungen am äußeren Rand der Anordnung. Zur Verfügung stehen üblicherweise die „Vakuumbedingung“ und „Spiegelreflexion“. Weiter lässt sich durch Einführung von Symmetrieebenen mittels der Spiegelreflexion der Aufwand für die Geometriebeschreibung oft erheblich reduzieren.

Ein einfaches Anwendungsbeispiel ist die Beschreibung eines infiniten Kugelgitters. Bei der Vakuumrandbedingung wird das Schicksal aller Neutronen beendet, die die Außenflächen der Anordnung passieren. Bei der Spiegelreflektorbedingung dagegen werden die Neutronen entsprechend „Einfallswinkel = Ausfallswinkel“ in die Anordnung zurückgestreut. Die Energie der Neutronen bleibt dabei unverändert, ihr Gewicht w_{ij} kann jedoch durch Eingabedaten geändert werden. Damit ist es möglich, die Eigenschaften eines realen Reflektors näherungsweise zu berücksichtigen.

Genauere Resultate erhält man allerdings mit Hilfe von Albedo-Koeffizienten. Sie beschreiben Energie und Richtung reflektierter Neutronen in Abhängigkeit von Einfallswinkel und -energie. Beim Code KENO sind sie durch eine 4-fach-Matrix vorgegeben, die aus S_N -Rechnungen für das Reflektormaterial abgeleitet wird. Verglichen mit der expliziten Darstellung eines quasi infiniten Wasserreflektors durch Wirkungsquerschnittsdaten lässt sich so die Rechenzeit bis um einen Faktor 20 reduzieren.

6.5 Rohrverschneidungen

Bei Rohrleitungssystemen, wie sie in Anlagen zur Behandlung von Spaltstofflösungen zu finden sind, ist die Neutronenwechselwirkung bei Rohrbündeln, Rohrverschneidungen und Einmündungen von Bedeutung. Für die notwendigen Berechnungen gibt es neben der Monte Carlo-Methode eine Reihe von Näherungsverfahren. Sie sind dadurch charakterisiert, dass sie nur eine Aussage darüber machen, ob eine Verschneidungsanordnung nuklear sicher ist oder nicht. Die Monte Carlo-Methode dagegen liefert genaue Ergeb-

nisse in Form eines Multiplikationsfaktors; wegen des Aufwands der Methode wird sie allerdings nur bei komplizierteren Anordnungen mit hoher Genauigkeitsanforderung verwendet.

Ein besonders einfaches Näherungsverfahren, das durch Vereinfachung des EC-Modells [6.43] entstand, ist in [6.44] beschrieben. Es ist anwendbar bei ^{233}U -, ^{235}U - und ^{239}Pu -Lösungen, solange der Moderationsgrad (hier ausgedrückt als Nuklidverhältnis Moderator zu Spaltstoff) $H/X \geq 20$ ist. Das Verfahren erfasst L-förmige, T-förmige, X-förmige oder Y-förmige Verschneidungen. Es lässt beliebig viele Verschneidungen der vorgenannten Form mit einem Hauptrohr zu, wenn der Abstand von benachbarten Verschneidungen wenigstens 18 Zoll (≈ 46 cm) beträgt, gemessen von Nebenrohrachse zu Nebenrohrachse.

Die Abschätzung der nuklearen Sicherheit erfolgt durch Vergleich eines sogenannten effektiven Zylinderdurchmessers, der der Verschneidung äquivalent ist, mit tabellierten Maximalwerten:

$$d_e = \sqrt{\frac{\sum_i^n d_i^2}{n}} \quad (6.53)$$

mit d_e effektiver Innendurchmesser, d_i Innendurchmesser des i -ten Rohres der Verschneidung, und $n = \{2$ für L-förmige Verschneidungen, 3 für T- und Y-förmige Verschneidungen, 4 für X-förmige Verschneidungen $\}$.

Tab. 6.6 Maximal zulässige Werte des effektiven Zylinderinnendurchmessers für Spaltstofflösungen mit $H/X \geq 20$ nach [6.44]

Reflektor	Geometrie	Max. eff. Innendurchmesser d_e (Zoll)		
		^{235}U	^{239}Pu	^{233}U
Volle Reflexion	L	4,6	4,0	3,4
	T	4,2	3,8	3,2
	X,Y	3,8	3,4	2,8
Nominal-reflexion ($\leq 1'' \text{ H}_2\text{O}$)	L	5,3	4,7	3,8
	T	5,1	4,6	3,7
	X,Y	4,9	4,4	3,5
Minimal-reflexion ($\leq 1/8'' \text{ Stahl}$)	L	6,0	5,4	4,2
	T	6,0	5,4	4,2
	X,Y	6,0	5,4	4,2

Eine Verschneidung ist dann sicher, wenn der nach Gl. (6.53) berechnete äquivalente Zylinderdurchmesser den entsprechenden Wert der Tab. 6.6 nicht übersteigt.

Ein im Vergleich zur vorstehend beschriebenen Methode flexibleres Verfahren ist das sogenannte GEC-Modell [6.45]. Zwar muss auch hier der Abstand zwischen benachbarten Verschneidungen mindestens 18 Zoll betragen; aber es sind pro Verschneidung bis zu vier parallele Nebenrohr-Ebenen zulässig, die wiederum bis zu vier Nebenrohre enthalten können. Die Nebenrohre können in ihrer Ebene in beliebigem Winkel zueinander stehen. Allerdings muss die Anordnung der Nebenrohre in den vier parallelen Ebenen innerhalb des 18 Zoll langen Abschnitts identisch sein, siehe dazu Abb. 6.6.

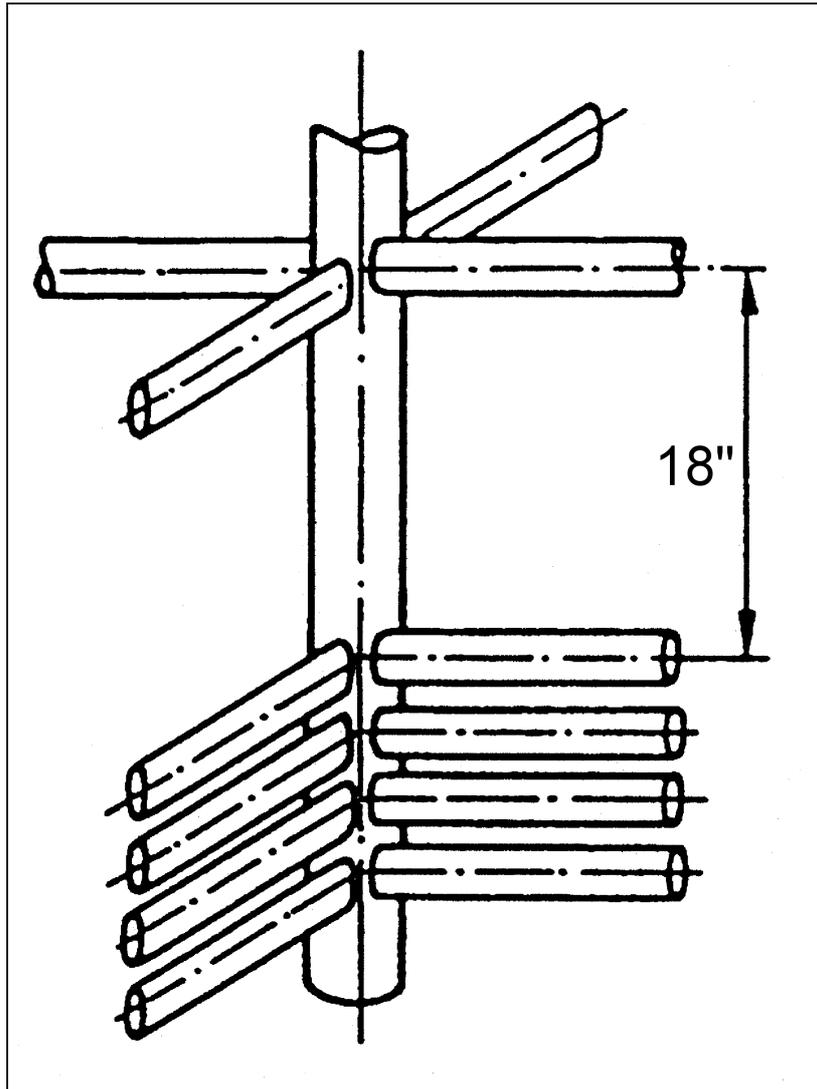


Abb. 6.6 Mit dem GEC-Modell darstellbare Rohrverschneidungen

Weiter wird der Winkel zwischen dem Hauptrohr und den Nebenrohren θ berücksichtigt. Die Abschätzung der nuklearen Sicherheit erfolgt durch Vergleich äquivalenter Zylinderdurchmesser d_a und -höhen h_a mit den entsprechenden kritischen Abmessungen d_k und h_k eines glatten, endlichen Zylinders [6.45]:

$$d_a = \left(1 + \frac{r \cdot N}{10n} \cdot \sqrt{a^2 + \sum_{i=1}^n \frac{b_i^2}{\sin \theta_i}} \right) \quad (6.54)$$

$$h_a = \left(\frac{10N}{n+2} \right) \cdot a \quad (6.55)$$

mit a Innendurchmesser des Hauptrohres, b_i Innendurchmesser des i -ten Nebenrohres, θ_i spitzer Winkel zwischen Hauptrohr und Nebenrohr i , N Anzahl der Ebenen im 18 Zoll-

Abschnitt, n Anzahl der Nebenrohre pro Ebene, und $r = \{0: \text{Alle Nebenrohre liegen in einem Abschnitt, oder } 1: \text{Die Nebenrohre liegen in verschiedenen Abschnitten}\}$.

Die Werte für d_k und h_k liegen in Form der kritischen Kurve $d_k = F(h_k)$ vor. Sie gilt für einen Zylinder, der bezüglich Spaltstofflösung und Reflexionsbedingungen der betrachteten Rohrverschneidung entspricht. Eine derartige Kurve aus [6.46] ist in Abb. 6.7 wiedergegeben:

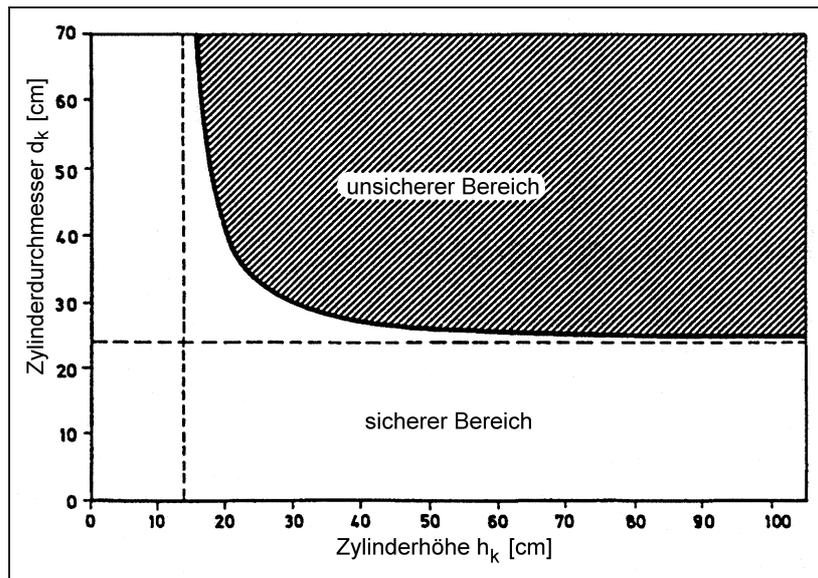


Abb. 6.7 Kritischer Durchmesser d_k und Höhe h_k für ^{239}Pu -Nitrat in Zylindergeometrie

Sie zeigt $d_k = F(h_k)$ für eine ^{239}Pu -Nitratlösung (250 g Pu/l) bei Minimalreflexion (3 mm Stahl).

Kritikalitätssicher ist eine Verschneidung dann, wenn der entsprechende Punkt (d_a, h_a) unterhalb der Kurve, im sogenannten sicheren Bereich, liegt. Der im Verfahren liegende Sicherheitsfaktor führt, wie sich gezeigt hat [6.46], zu Durchmessern, die um 14 bis 30 % unter dem kritischen Durchmesser liegen.

Die beiden vorstehend beschriebenen Verfahren sind nur dann anwendbar, wenn es sich um Verschneidungen zwischen mehreren Nebenrohren und einem einzigen Hauptrohr handelt. Beim sogenannten GAI-Modell [6.47] gilt diese Einschränkung insofern nicht, als hier bis zu drei parallele Hauptrohre zulässig sind. Bedingung ist, dass der Abstand der Hauptrohre untereinander mindestens 24 Zoll beträgt.

Jedes der Hauptrohre wird in 18 Zoll lange Abschnitte und jeder Abschnitt in vier Quadranten aufgeteilt (siehe Abb. 6.8). In jedem dieser Quadranten dürfen bei voller und bei nominaler Reflexion der Anordnung bis zu vier Nebenrohre einmünden; bei Minimalreflexion ist die Zahl der Nebenrohre unbeschränkt.

$$q_i = \frac{d_i^2 \pi}{4} \cdot \frac{1}{\sin \theta_i} \quad (6.56)$$

mit q_i Verschneidungsfläche zwischen Hauptrohr und i -tem Nebenrohr, d_i Innendurchmesser des i -ten Nebenrohres, und θ_i spitzer Winkel zwischen Hauptrohr und i -tem Nebenrohr.

Die Abschätzung der Kritikalitätssicherheit der Anordnung geschieht durch Vergleich der Gesamtverschneidungsfläche in einem Abschnitt und Quadranten mit tabellierten Maximalwerten (Tab. 6.7). Diese Gesamtverschneidungsfläche ergibt sich durch Aufsummieren der entsprechenden Verschneidungsflächen q_i (siehe Abb. 6.9).

Vergleich der Verfahren

Das sog. *Nuclear Safety Guide*-Verfahren [6.44] ist besonders einfach anzuwenden. Allerdings überlässt es dem Anwender die Entscheidung, ob evtl. vorhandene weitere Hauptrohre als neutronenphysikalisch isoliert angesehen werden können. Letzteres gilt auch für das GEC-Modell, das etwas weniger stark konservativ ist. Daneben hat es den Vorteil, dass die für eine Abschätzung benötigte kritische Kurve auch für spezielle Spaltmaterialien verhältnismäßig leicht bestimmt werden kann. Das GEC-Modell lässt im Vergleich zum GAI-Modell größere Rohrdurchmesser zu, wenn in einem Quadranten mehrere Nebenrohre einmünden. In allen anderen geometrischen Situationen aber liefert das GAI-Modell für Uranylinitrat größere Rohrdurchmesser als das GEC-Verfahren. Die Bestimmung von Maximalwerten für andere Spaltstoffe ist vergleichsweise schwierig. Es hat sich jedoch gezeigt, dass die in Tab. 6.7 angegebenen Werte bei speziellen unreflektierten Plutoniumlösungen ausreichend konservativ sind [6.48].

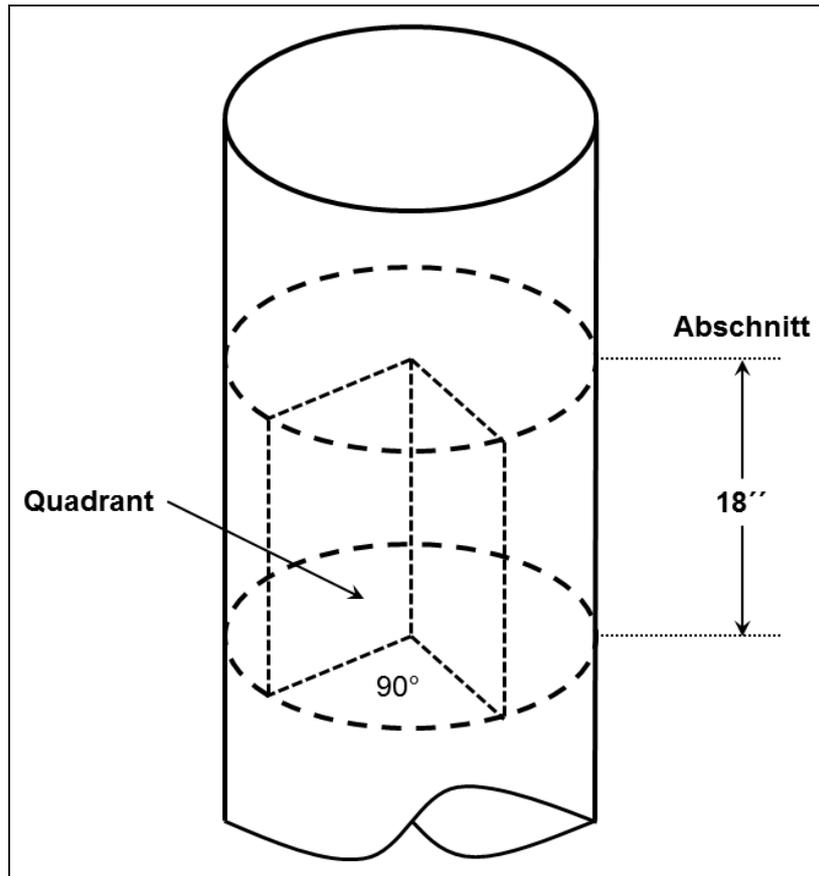


Abb. 6.8 Definition von Abschnitt und Quadrant

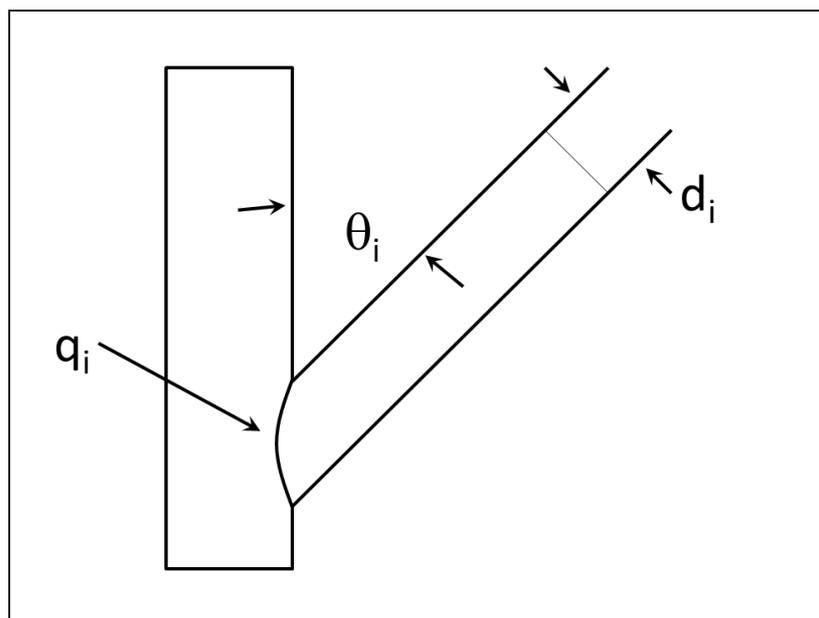


Abb. 6.9 Verschneidungsfläche zwischen Haupt- und Nebenrohr

Tab. 6.7 Maximale Gesamtverschneidungsflächen und Hauptrohrdurchmesser pro Quadrant und Abschnitt nach [6.46]

Reflektor	Anzahl der Quadranten in einem Abschnitt, die Nebenrohre enthalten	Maximal zulässige Werte für den Hauptrohrdurchmesser im Abschnitt, Zoll	Maximal zulässige Werte für die Gesamtverschneidungsfläche pro Quadrant und Abschnitt, Zoll ²
Volle Reflexion	1	4,60	16,60
	2	4,44	11,98
	3,4	4,12	9,60
Nominalreflexion (≤ 1 Zoll H ₂ O)	1	6,25	30,68
	2	6,00	20,83
	3,4	5,50	16,00
Minimalreflexion ($\leq 1/8$ Zoll Stahl)	1	7,25	41,28
	2	7,00	29,70
	3,4	6,50	23,75

6.6 Neutronenwechselwirkung bei Zwischenmoderation

Befinden sich zwischen Positionen einer Spaltstoffanordnung neutronenbremsende Materialien, so werden schnelle Neutronen auf dem Weg zwischen den einzelnen Spaltstoffpositionen moderiert. Man bezeichnet derartige Materialien als Zwischenmoderatoren und ihre Wirkung als Zwischenmoderation. Ist der Spaltstoff in den einzelnen Positionen selbst untermoderiert, so kann wegen der Verschiebung des Neutronenspektrums in Richtung thermischer Energie eine Erhöhung des Multiplikationsfaktors der Gesamtanordnung eintreten.

Für die Größe dieses Effekts ist nicht allein die Moderatorwirkung, d. h. Art und Menge des Zwischenmoderators ausschlaggebend. Durch eine zusätzliche Neutronenabsorption im Zwischenmoderator kann ein gegenläufiger Effekt bewirkt werden. Weiter kann durch einen Zwischenmoderator infolge Entkopplung der Spaltstoffpositionen ein negati-

ver und durch Zunahme der Neutronenreflexion ein positiver Reaktivitätseffekt auftreten. Letztlich kann nur eine genaue Untersuchung der vorliegenden Verhältnisse entscheiden, inwieweit ein Zwischenmoderator eine Reaktivitätsänderung einer Spaltstoffanordnung nach sich zieht.

In der Praxis spielen vor allem wasserstoffhaltige Zwischenmoderatoren, z. B. Verpackungsmaterial aus Holz oder Kunststoffen, eine Rolle. Weiter ist der Zwischenmoderationseffekt beim Eindringen von Wasser, Wasserdampf oder Schnee in Spaltstoffanordnungen, z. B. Brennstofflager oder Transportbehälter, zu beachten.

Ein Beispiel für den Verlauf des Multiplikationsfaktors in Abhängigkeit von der Zwischenmoderation eines Brennstofflagers ist in Abb. 6.10 wiedergegeben.

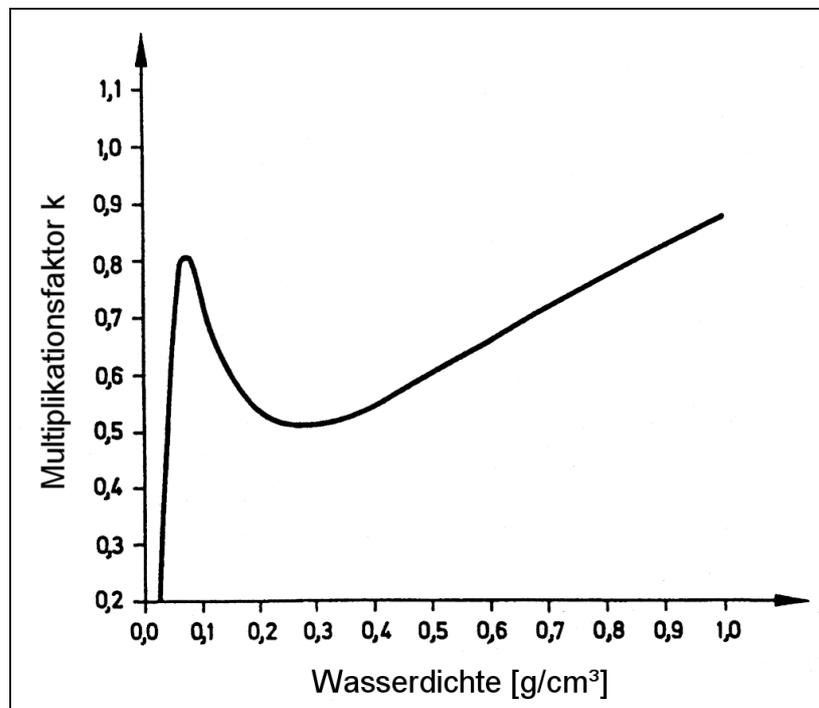


Abb. 6.10 Multiplikationsfaktor k_{eff} einer LWR-Brennelementanordnung als Funktion der Dichte ρ des Zwischenmoderators H_2O

Als Zwischenmoderator wird hier Wasser betrachtet, dessen Dichte gleichförmig in der Brennelementanordnung von $0,01 \text{ g}/\text{cm}^3$ bis zur vollen Wasserdichte verändert wird. Bei sehr niedrigen Wasserdichten ($\rho < 0,01 \text{ g}/\text{cm}^3$) ist im vorliegenden Fall der Zwischenmoderator praktisch noch unwirksam, die Anordnung ist stark unterkritisch. Bei Vergrößerung der Wasserdichte steigt der Multiplikationsfaktor steil an und erreicht bei ca.

0,07 g/cm³ ein Maximum von 0,8. Wird die Wasserdichte noch weiter erhöht, so erfolgt wegen der sich jetzt bemerkbar machenden Entkopplung der Brennelemente zunächst eine Reaktivitätsabnahme, sodann aufgrund der verbesserten Reflexion und Moderation eines einzelnen Brennelements eine leichte Reaktivitätszunahme. Schließlich wird der Multiplikationsfaktor der Anordnung durch das einzelne vollständig geflutete und reflektierte Brennelement bestimmt. Da die Höhe des auftretenden Maximums nicht allein von der Zwischenmoderation, sondern auch von der Neutronenabsorption abhängig ist, kann durch Einbringen von Neutronenabsorbieren, z. B. Bor, Cadmium oder Stahl, das Maximum stark reduziert werden.

Für die Berechnung der Neutronenwechselwirkung bei Zwischenmoderation sind wegen der Vielzahl der auftretenden Effekte Näherungsverfahren nicht geeignet. Insbesondere können sie nicht die Verschiebung des Neutronenspektrums berücksichtigen. Für die Berechnung der Neutronenwechselwirkung sind daher Vielgruppenmethoden heranzuziehen, wobei bei der Auswahl der Gruppenkonstantensätze das jeweils vorherrschende Neutronenspektrum zu beachten ist. Während für einfache geometrische Anordnungen Diffusions- oder Transportverfahren ausreichend sein können, ist für die Mehrzahl der in der Praxis auftretenden Fälle nur das Monte Carlo-Verfahren brauchbar.

6.7 Resultate von Vergleichsrechnungen zur Neutronenwechselwirkung

In Tab. 6.8 sind die Ergebnisse der Nachrechnung von ausgewählten kritischen Experimenten mit Spaltstofflösungen zur Neutronenwechselwirkung aufgeführt, während in der Tab. 6.9 entsprechende Ergebnisse für vergleichbare kritische Experimente mit metallischen Spaltstoffen auflistet sind.

Tab. 6.8 Resultate ausgewählter Experimente (Spaltstofflösungen, siehe Tab. 6.1)

Experiment Nr	Behälter- anzahl	Dichte- Methode ¹⁾ N_k	Raumwinkel- Methode ²⁾ k_{eff}	Monte Carlo- Methode ³⁾ $k_{\text{eff}} \pm \sigma$
1	9	3,5 ⁴⁾	1,12	0,995 ± 0,009
2	16	5,9 ⁴⁾	1,11	0,999 ± 0,011
3	25	26,4 ⁴⁾	1,023	0,970 ± 0,010 ⁵⁾
4	9	3,4 ⁴⁾	1,175	0,986 ± 0,009
5	25	7,2 ⁴⁾	1,185	0,953 ± 0,009 ⁵⁾
6	25	7,9 ⁴⁾	–	0,981 ± 0,005
7	4	2,3	1,045	1,005 ± 0,008
8	4	1,8	1,008	1,002 ± 0,007
9	4	2,8	1,008	0,991 ± 0,009
10	6	3,2	0,999	0,995 ± 0,008

- 1) Kritische Behälterzahl N_k berechnet nach der Methode der analogen Dichten (siehe Kap. 6.2.1).
- 2) k_{eff} mit Flusswichtung über die Gesamtanordnung, berechnet mit Raumwinkelprogramm SOLRF [6.30].
- 3) k_{eff} berechnet mit 16 Gruppen GAMTEC Wirkungsquerschnitten und dem Monte Carlo-Programm KENO [6.49]; σ ist die Standardabweichung. Hier wurden jeweils ca. 10 000 – 15 000 Neutronenschicksale verfolgt.
- 4) Berechnet mit Bucklingkonversion aus Kugelvolumen.
- 5) Unterkritische Anordnungen.

Tab. 6.9 Resultate ausgewählter kritischer Experimente (Metalle, siehe Tab. 6.2)

Experiment Nr	Behälter- anzahl	Dichte- Methode ¹⁾ N_k	Raumwinkel- Methode ²⁾ k_{eff}	Monte Carlo- Methode ³⁾ $k_{\text{eff}} \pm \sigma$
11	4	4,2	1,050	$0,996 \pm 0,007$
12	8	9,5	0,967	$0,991 \pm 0,007$
13	27	26,2	1,006	$0,992 \pm 0,007$
14	16	9,2	1,046	$0,984 \pm 0,008$
15	64	51,8	0,967	$0,993 \pm 0,007$
16	64	49,0	0,973	$0,989 \pm 0,008$
17	64	49,2	0,978	$0,991 \pm 0,007$
18	64	52,8	0,990	$0,980 \pm 0,007$
19	64	66,0	1,004	$0,989 \pm 0,006$
20	27	21,7	1,132	$1,008 \pm 0,005$ ⁴⁾

- 1) Kritische Behälterzahl N_k berechnet nach der Methode der analogen Dichten (siehe Kap. 6.2.1).
- 2) k_{eff} mit Flusswichtung über die Gesamtanordnung, berechnet mit Raumwinkelprogramm SOLRF [6.30].
- 3) k_{eff} berechnet mit 16 Gruppen GAMTEC Wirkungsquerschnitten und dem Monte Carlo-Programm KENO [6.49]; σ ist die Standardabweichung. Hier wurden jeweils 14100 Neutronenschicksale verfolgt.
- 4) k_{eff} berechnet mit 16 Gruppen HANSEN-ROACH Wirkungsquerschnitten und dem Monte Carlo-Programm KENO [6.49]; σ ist die Standardabweichung. Hier wurden 20 000 Neutronenschicksale verfolgt.

6.8 Literatur zu Kapitel 6

- [6.1] Proceedings of the Livermore Array Symposium TID-4500, UC-46, Livermore, Cal., 1968.
- [6.2] Criticality Array Data and Calculational Methods. Nucl. Technol. 30, p.99-214, 1976.
- [6.3] A. F. Thomas, F. Abbey: Calculational Methods for Interacting Arrays of Fissile Material. Pergamon Press, 1973.
- [6.4] E. C. Mallary et al.: Safety Tests for the Storage of Fissile Units. LA-1875, 1955.
- [6.5] D. Callihan et al.: Critical Mass Studies, Part IV. K-406, 1949.
- [6.6] H. C. Paxton et al.: Critical Dimensions of Systems Containing U 235, Pu 239 and U 233. TID 7028, 1964.
- [6.7] J. C. Bouly et al.: Interaction Neutronique dans l'Air de Récipients Cylindriques contenant soit des Solutions d'Uranium soit des Solutions de Plutonium. CEA-R-3946, 1970.
- [6.8] F. Abbey, Ed.: Handbook of Experimental Criticality Data UKAEA, 1968.
- [6.9] C. L. Schuske: Method for Calculating U 235 Metal Storage Arrays. RFP-108, 1958.
- [6.10] H. C. Paxton: Density-Analog Techniques. Proceedings of the Livermore Array Symposium, TID-4500, UC-46, 1968.
- [6.11] D. R. Smith: Criteria and Evaluation for the Storage of Fissile Material and Development Programme. IAEA Proceedings, Stockholm SM-70/50, 1965.
- [6.12] J. T. Thomas: The Effect of Unit Shape on the Criticality of Arrays. ORNL-CDC-4, 1967.
- [6.13] J. T. Thomas: Generic Array Criticality. In: Nuclear Criticality Safety, Edited by R. Douglas O'Dell, USAEC, TID-26286, 1974.
- [6.14] H. C. Paxton: Criticality Control in Operation with Fissile Material. LA-3366 (Rev.), 1972.

- [6.15] T. Gutman: A Surface-Density Evaluation of Critical Array Data. Nucl. Appl. 2, p. 121, 1968.
- [6.16] S. J. Altschuler, C. L. Schuske: Models for the Safe Storage of Fissile Metal. Nucl. Technol. 13, p. 131, 1972.
- [6.17] S. J. Altschuler, C. L. Schuske: A Model for the Safe Storage of Fissile Solutions. Nucl. Technol. 17, p. 110, 1973.
- [6.18] C. L. Schuske, D. Dickinson, S. J. Altschuler: Surface Density Method Employing Unit Shape Factor (S/V) for the Storage of Fissile Materials. Nucl. Technol. 23, p. 157, 1974.
- [6.19] D. C. Hunt: A Review of Criticality Safety Models Used in Evaluating Arrays of Fissile Materials. Nucl. Technol. 30, p. 146–147, August 1976.
- [6.20] H. C. Paxton: Criticality Control in Operations with Fissile Materials. LA-3366, 1968.
- [6.21] H. E. Clark, G. Tuck: An Empirical Formula Which Predicts the Critical Parameters of a Planar Array of Uranium-Filled Solution Cylinders. Nucl. App. 9, p. 814, 1970.
- [6.22] H. E. Clark, G. Tuck: An Empirical Formula That Predicts the Critical Parameters of a Uranium Solution Slab-Cylinder System. Nucl. Technol. 13, p. 257, 1972.
- [6.23] H. F. Henry et al.: Self-Consistent Criteria for Evaluation of Neutron Interaction. K-1317, December 1956.
- [6.24] A. F. Thomas, R. A. Scriven: Neutron Interaction in Fissile Assemblies. Progr. Nucl. Energy, Series IV, 3, 253, 1960.
- [6.25] H. K. Clark: A Simple Practical Method for Calculating Interaction. IAEA-Proceedings SM-70/30, Stockholm, 1965.
- [6.26] C. E. Newlon: The Elements of Neutron Interacting Arrays – Part I. K-1619, 1964.
- [6.27] J. Leclerc et al.: Méthode de l'Angle Solide Utilisée pour Evaluer l'Interaction entre des Unités Fissiles. IAEA-Proceedings SM-70/16, Stockholm, 1965.

- [6.28] N. L. Pruvost, H. C. Paxton (Ed.): Nuclear Criticality Safety Guide, LA-12808, 1996.
- [6.29] W. A. Blyckert, R. D. Carter, K. R. Ridgway: Criticality Handbook, Vol. III. ARH 600, 1971.
- [6.30] W. Thomas: SOLRF – Ein Programm zur approximativen Berechnung der Neutronenwechselwirkung nach der Raumwinkelmethode. atw, August/September 1971.
- [6.31] J. C. Mogniot: Aspects Théoriques et Experimentaux de l'Interaction Neutronique entre Milieux Multiplicateurs des Neutrons. CEA-R-2849, 1965.
- [6.32] H. F. Henry, Editor: Studies in Nuclear Safety. K-1380, 1958.
- [6.33] C. E. Newlon: The Solid Angle Method of Spacing. Proceedings of the Livermore Array Symposium. TID 4500, September 1968.
- [6.34] H. F. Henry, C. E. Newlon, J. R. Knight: Extensions of Neutron Interaction Criteria. K-1478, 1961.
- [6.35] H. K. Clark: Interaction of Fissile Units, A Computer Code – INTERACT. DP-1031, 1966.
- [6.36] D. Dickinson, G. E. Whitesides: The Monte Carlo-Method for Array Criticality Calculations, Nucl. Technology 30, Nr. 2, August 1976.
- [6.37] P. G. Hoel: Introduction to Mathematical Statistics, John Wiley and Sons Inc., New York (1965).
- [6.38] G. E. Whitesides, N. F. Cross: KENO, A Multigroup Monte Carlo-Criticality Prgramm, CTC-5, 1969.
- [6.39] H. Hurwitz, jr.: KAPL-98 (1948).
- [6.40] J. R. Knight, L. M. Petrie, 16 and 123 Group Weighting Functions for KENO, ORNL/TM-4660 (1974).
- [6.41] D. C. Irving et al.: 05R, A General Purpose Monte Carlo-Neutron Transport Code. ORNL-3622, Oak Ridge National Lab., 1965.
- [6.42] L. M. Petrie, N. F. Landers: KENO-V.a, An Improved Monte Carlo-Criticality Program with Supergrouping. NUREG/CR-0200, December 1984.

- [6.43] C. L. Schuske: An Empirical Method for Calculating Subcritical Pipe Intersections. TID-5451. Rocky Flats Division. The Dow Chemical Company, Golden, Colorado, 1956.
- [6.44] Nuclear Safety Guide, US AEC, TID-7016, Rev.1, 1961.
- [6.45] D. Dickinson: Calculations for Pipe Intersections Containing Fissile Solution. RFP-1499. Rocky Flats Division. The Dow Company, Golden, Colorado, 1970.
- [6.46] N. T. Rückert, W. Thomas: Kritikalitätssicherheit von Rohrverschneidungen bei Plutoniumnitratlösungen. LRA Garching, TU München. Atomkernenergie Bd.21, 1973, Lfg. 3, S. 197.
- [6.47] D. Dickinson, C. L. Schuske: An Empirical Model for Safe Pipe Intersections Containing Fissile Solution. Nucl. Techn., Vol. 10, p. 179, 1971.
- [6.48] J. C. Bouly et al.: Interaction Neutronique dans l'Air de Récipients Cylindriques Contenant soit des Solutions d'Uranium soit des Solutions de Plutonium. CEA-R-3946, 1970.
- [6.49] G. E. Whitesides, N. F. Cross: KENO – A Multigroup Monte Carlo Criticality Program. CTC-5, September 1969.
- [6.50] J. T. Thomas: The Criticality of Cubic Arrays of Fissile Material. Oak Ridge Y-12 Plant, Report Y-CDC-10, November 1971.
- [6.51] J. T. Thomas: A Criticality Indicator System for Storage of Fissile Materials; Oak Ridge National Laboratory Report UCCND-CSD-INF-48, July 1975.
- [6.52] J. T. Thomas: Surface Density and Density Analog Models for Criticality in Arrays of Fissile Materials; Nucl. Sci. Eng. 62, pp. 424-437, 1977.

7 Messtechnische Kritikalitätskontrolle

In den letzten Jahren hat die Bedeutung des Einsatzes von messtechnischen Maßnahmen zur Kritikalitätskontrolle erheblich zugenommen. Die Ermittlung und Überwachung von zwei Parametern steht dabei im Vordergrund:

- Die Bestimmung des Restspaltstoffgehalts in abgebrannten Brennelementen durch zerstörungsfreie Messung.
- Die Bestimmung und Kontrolle von Spaltstoff- und Neutronenabsorberkonzentrationen durch Inline-Messung.

Beide Ziele haben große Bedeutung für die Aufarbeitung bestrahlter Kernbrennstoffe im technischen Maßstab und zur Prozess- und Sicherheitsüberwachung von Anlagen, in denen spaltstoffhaltige hochaktive Flüssigkeiten unter Heiße-Zellen-Bedingungen verarbeitet werden.

7.1 Zerstörungsfreie Messtechniken

Die zerstörungsfreien Messtechniken zur Bestimmung des Restspaltstoffgehalts in abgebrannten Brennelementen beruhen auf der Induzierung von Kernspaltungen im auszumessenden Spaltstoff und der Ausmessung der so erzeugten prompten oder verzögerten Neutronen (aktive Messmethoden). Daneben sind Verfahren entwickelt worden, die aus der am Brennelement messbaren Neutronenemission unter bestimmten Bedingungen Rückschlüsse auf die Neutronenverstärkung im zu untersuchenden Brennelement und damit auf den Restspaltstoffgehalt ermöglichen (passive Messmethoden).

Die angewendeten Messverfahren und die dazu eingesetzten Apparaturen müssen folgenden Anforderungen gewachsen sein:

- Sie müssen in hohen Gammastrahlungsfeldern zuverlässig arbeiten.
- Sie müssen zum Einsatz in Wasserbecken geeignet sein.
- Es muss die Messung ganzer Brennelemente möglich sein.
- Die Messgeräte müssen Neutronenbestrahlung aus (α,n)-Reaktionen und Spontanspaltungen vertragen.

- Die Messung soll empfindlich den Spaltstoffgehalt registrieren, andererseits unempfindlich auf den Gehalt von ^{238}U und ^{232}Th , den Spaltproduktgehalt und die räumliche Verteilung des Spaltstoffs reagieren.

Messsysteme, die diesen Anforderungen entsprechen, sind in [7.1]–[7.7] untersucht und vorgeschlagen worden. Danach lassen sich folgende Gruppen von Prüfverfahren unterscheiden:

- Techniken, die mit Isotopenquellen wie ^{252}Cf (Spontanspaltungen) oder Sb-Be (γ, n)-Quellen arbeiten.
- Techniken, die Beschleuniger einsetzen.
- Techniken, die ohne zusätzliche Neutronenquelle arbeiten.

Bei den derzeit entwickelten und im Test befindlichen Verfahren kommen bevorzugt Isotopenquellen zum Einsatz. In [7.1] sind Probleme der technischen Realisierung und Messgenauigkeit beschrieben. Ein messtechnisches Problem stellt das Erfassen von Neutronenzählraten in Bereichen mit extrem hoher γ -Dosisleistung¹ dar ($\sim 10^4$ bis 10^5 R/h). Hier eignen sich besonders ^{235}U -Spaltkammern. Mit Gas gefüllte Zählrohre, die auf der Innenseite mit Bor beschichtet sind, lassen sich ebenfalls für den Einsatz unter solchen Bedingungen optimieren, wie aus Tab. 7.1 hervorgeht.

¹ Genauer ist hier der Begriff „Ionendosisleistung“ mit der SI-Einheit C/(kg h), wobei der Umrechnungsfaktor gilt: $1 \text{ C/kg} \approx 3879 \text{ Röntgen (R)}$.

Tab. 7.1 Vergleich verschiedener Detektortypen zum Neutronennachweis unter starker γ -Strahlung

Detektortyp	Durchmesser × Länge (mm × mm)	Fülldruck (atü)	Max. γ-Dosisleistung (R/h)
²³⁵ U-Spaltkammer	25 × 152	1	10 ⁵
³ He-Detektor	25 × 152	4	2
BF ₃ -Zählrohr	25 × 152	1	10
¹⁰ B-Zählrohr	25 × 152	< 1	10
¹⁰ B-Zählrohr	12 × 152	< 1	10 ⁴
¹⁰ B-Zählrohr	6 × 152	< 1	2·10 ⁴

Die angegebenen maximalen γ -Dosiswerte beziehen sich auf einen unabgeschirmten Detektor. Das Hinzufügen von 1-2 cm Blei erhöht die genannten Werte um einen Faktor ≈ 10 [7.3].

Ein passives Messverfahren zur Bestimmung des Restspaltstoffgehalts ist in [7.4] beschrieben. Durch eine zweifache Messung der Neutronenemission eines Brennelements, in reflektierter und unreflektierter Anordnung, kann aus den beiden unterschiedlichen Messsignalen die Neutronenmultiplikation im Brennelement und damit der Restgehalt an Spaltstoff ermittelt werden. Dieses Verfahren dürfte sich bei Brennelementen mit hohem Abbrand bzw. kurzer Abklingzeit als vorteilhaft erweisen, da aktive Messverfahren in diesen Fällen sehr hohe Quellstärken benötigen würden.

7.2 Inline-Messungen

Die Inline-Messung von Spaltstoffkonzentrationen in Lösungen [7.8], [7.9] und die Bestimmung von Absorberkonzentrationen bei der Brennstoffauflösung [7.10] erfolgt ebenfalls mit Hilfe von konstanten oder gepulsten Neutronenquellen. In Bereichen mit hoher Neutronenstrahlung aus (α,n)-Reaktionen und Spontanspaltung erweisen sich Messanordnungen mit gepulsten Strahlungsquellen als vorteilhaft, da hierbei das Signal- zu Untergrund-Verhältnis vergrößert werden kann.

Nach [7.9] können in einem Messintervall von 20 s in unreflektierten Behältern mit Lösungen ohne zusätzlichen Neutronenabsorber Plutoniumkonzentrationen ab 0,25 g/l erkannt werden. Über 0,5 g Pu/l beträgt die Messungenauigkeit $\leq 30\%$. Für mit Gadolinium vergiftete Lösungen (0,95 g Gd/l) können ähnliche Messgenauigkeiten für Pu-Konzentrationen ab 3 g/l erreicht werden.

Bei der Messung der durch eine externe Quelle in den zu messenden Spaltstofflösungen hervorgerufenen Neutronenmultiplikation muss der Einfluss der insbesondere von Curiumisotopen herrührenden Spontanspaltungen und von (α,n)-Reaktionen durch Wahl einer entsprechenden Quellstärke überspielt werden. Als Detektoren finden bei hoch aktiven Lösungen ^{235}U -Spaltkammern mit Cadmium-Blei-Abschirmung Verwendung.

Für eine Messung der Neutronenaktivität aus (α,n)-Reaktionen und Spontanspaltung werden zur Detektion von Spaltstoffablagerungen unter ungünstigen geometrischen Verhältnissen Aktivierungsfolien (z. B. Indium) mit Erfolg eingesetzt [7.11]. Zur Eichung solcher Messungen ist allerdings eine chemische Analyse und die Kenntnis der Isotopenzusammensetzung des Spaltstoffes erforderlich.

Für spezielle Anwendungen in der Prozesskontrolle von Wiederaufarbeitungsanlagen eignet sich auch der Einsatz von γ -Detektoren, wobei je nach Anwendungsbereich einzelne γ -Linien oder der gesamte γ -Fluss, letzterer im Hinblick auf relative Änderungen, gemessen werden [7.11], [7.12].

7.3 Literatur zu Kapitel 7

- [7.1] EPRI: Active Direct Measurement of Residual Fissile Content in Spent Fuel Assemblies. EPRI 278-1, July 1975.
- [7.2] J. R. Philips et al.: Application of Nondestructive Gamma-Ray and Neutron Techniques for the Safeguarding of Irradiated Fuel Materials. LASL Report LA-8212 (ISPO 77), May 1980.
- [7.3] J. R. Philips et al.: Neutron Measurement Techniques for the Nondestructive Analysis of Irradiated Fuel Assemblies. Report LA-9002-MS, 1981.
- [7.4] D. M. Lee, L. O. Lindquist: Self-Interrogation of Spent Fuel. Report LA-9494-MS, August 1982.
- [7.5] H. Würz: A Nondestructive Measurement System for Spent LWR Fuel Assemblies. IAEA-SM-260/30, November 1982.
- [7.6] G. Schulze, H. Würz: Neutron Monitors for Process and Safety Control in the High Activity Part of a Reprocessing Plant. Trans. ANS 31, p. 522–524 (1979).
- [7.7] G. Schulze, H. Würz: Zerstörungsfreie Neutronenmessung am bestrahlten LWR-Brennelement zur Bestimmung der Kritikalität des Auflösers. Jahrestagung Kerntechnik 1980.
- [7.8] L. Finsterwalder: Inline-Messung von Plutonium durch Neutronenzählung. Reaktortagung 1976.
- [7.9] G. Schulze, H. Würz: In-line Determination of Fissile Material in High-Activity Solutions. Nucl. Techn., Vol. 35, p. 663–670, October 1977.
- [7.10] S. R. Biermann: Reactivity Measurements Under Conditions Typical to Fuel Element Dissolution. Nucl. Techn., Vol. 31, December 1976.
- [7.11] J. M. Courouble et al.: Control Methods for Reprocessing Plants. Trans. ANS 31, p. 527–528 (1979).
- [7.12] I. C. Edeline: In-line Process Control for Reprocessing Plants: Present Status and Future Prospects. Trans. ANS, 20, p. 644–645 (1975).

8 Organisatorische Maßnahmen zur Kritikalitätskontrolle

8.1 Diskussion der relevanten Maßnahmen

Die zur Aufrechterhaltung der Kritikalitätssicherheit getroffenen technischen Vorkehrungen müssen durch organisatorische Maßnahmen ergänzt und überwacht werden.

Die organisatorischen Maßnahmen dienen einerseits zur Verwirklichung der für die Einhaltung der Kritikalitätssicherheit wichtigen Spezifikationen, andererseits der eigentlichen Überwachung, dass die Sicherheitsmaßnahmen eingehalten werden. Zu diesen organisatorischen Maßnahmen zählen [8.1]:

- Festlegung und Kontrolle der Parameter: Anreicherungsgrad, Spaltstoffzusammensetzung, Spaltstoffgehalt, Masse, Dichte, Konzentration, Moderationsgrad, chemische Zusammensetzung;
- Festlegung und Kontrolle von Sicherheitsbereichen, Transportvorgängen und Abständen bei Spaltstoffbewegungen;
- Festlegung und Kontrolle der zulässigen Moderatoren und Reflektoren;
- Kontrolle der Übergänge zwischen Bereichen mit unterschiedlichem Sicherheitskonzept oder zwischen Bereichen mit und ohne Kritikalitätskontrolle (z. B. Abwasseraufbereitung);
- Festlegung von Qualitätskontrollen, wiederkehrenden Prüfungen, Instandhaltungen;
- Vorgehensweise bei kritikalitätsrelevanten Betriebsstörungen (z. B. Beseitigung von Aufkonzentration);
- Maßnahmen zur Beseitigung von Leckagen und zur Brandbekämpfung.

Vor Inbetriebnahme oder Wiederinbetriebnahme nach Instandhaltung oder Änderung einer Anlage, die der Kritikalitätskontrolle unterliegt, müssen Art und Umfang der erforderlichen organisatorischen Maßnahmen in eindeutiger Weise festgelegt werden. Auch während der Instandhaltungs- oder Änderungsmaßnahmen können spezielle organisatorische Maßnahmen zur Einhaltung der Kritikalitätssicherheit notwendig werden (z. B. bei temporärer Auslagerung von Spaltstoff). Erfahrungsgemäß kommt gerade bei nicht routinemäßigen Arbeiten den organisatorischen Sicherheitsmaßnahmen erhebliche Be-

deutung zu. In jedem Fall sind Maßnahmen festzulegen, die bei Auftreten eines Kritikalitätsstörfalls zu ergreifen sind.

Die Verantwortung für die erforderlichen Maßnahmen gegen eine unbeabsichtigte Kritikalität von Kernbrennstoffen in einer kerntechnischen Anlage liegt nach § 33 und § 65 der Strahlenschutzverordnung (StrlSchV, [2.1]) in den Händen des Strahlenschutzverantwortlichen. Die Delegation von Zuständigkeiten für die Durchführung bestimmter Aufgaben auf dem Gebiet der Kritikalitätssicherheit ist eindeutig und im Rahmen der gegebenen Organisation schriftlich festzulegen. Dazu gehören auch die entsprechenden Zuständigkeiten im Rahmen des Bereitschaftsdiensts. Die Zuständigkeit für kritikalitätsrelevante Maßnahmen im Rahmen der Qualitätskontrolle und für die Ergebnisprotokolle von kritikalitätsrelevanten wiederkehrenden Prüfungen muss unabhängig vom Produktionsbetrieb geregelt sein.

Alle Personen, die mit Kernbrennstoffen umgehen oder die beim Umgang mit Kernbrennstoffen weisungsbefugt sind, sind vor Aufnahme der Tätigkeit über die zur Einhaltung der Kritikalitätssicherheit erforderlichen Maßnahmen zu belehren. Die Unterweisung muss mindestens umfassen:

- Grundsätze der Kritikalitätssicherheit;
- Betriebs- und arbeitsplatzspezifische Maßnahmen und Kontrollen zur Sicherstellung der Kritikalitätssicherheit;
- Ablauf und Auswirkung eines Kritikalitätsstörfalls;
- Schutzmaßnahmen bei einem Kritikalitätsstörfall.

Die Unterweisungen sind nach § 38 StrlSchV regelmäßig zu wiederholen. Alle Personen, einschließlich Fremdpersonal, die bei einem Kritikalitätsstörfall gefährdet sind, sind über das Verhalten bei einem Kritikalitätsstörfall zu unterweisen.

Die für die Einhaltung der Kritikalitätssicherheit wesentlichen Spezifikationen und organisatorischen Maßnahmen sind schriftlich in Betriebsanweisungen oder im Betriebshandbuch festzulegen.

In Bereichen, in denen nach Massenbegrenzungen gearbeitet wird, werden Sicherheitsbereiche (Bereiche, in denen eine sichere Spaltstoffmasse nicht überschritten werden

darf) mit Spaltstoffpositionen und Transportwege festgelegt. Innerbetriebliche Transporte werden dahingehend überwacht, dass jeweils nur eine zulässige Spaltstoffmasse auf einem bestimmten Transportweg bewegt wird. Außerdem sind Abstände zwischen Spaltstoffpositionen sowie ihre Anzahl zu überwachen. In Bereichen begrenzter Moderation müssen die Mengen an Moderatorstoffen (z. B. Verpackungsmaterial) kontrolliert werden. Auch ortsfeste Anlagen nach dem Konzept der sicheren Geometrie sind dahingehend zu überprüfen, ob Behälterdimensionen, Abstände, Reflektoren usw. mit den Spezifikationen übereinstimmen. Regelmäßige Kontrollen gelten der Gewährleistung der Wirksamkeit von Neutronenabsorbern.

Sofern Kennzeichnung von Spaltstoffpositionen vor Ort von sicherheitstechnischer Bedeutung ist, müssen der zulässige Grenzwert des Kritikalitätskontrollparameters und gegebenenfalls der Ist-Wert angegeben sein. Der Ist-Wert muss jederzeit abrufbar oder anderweitig erkennbar sein. Die Kennzeichnung, die am jeweiligen Arbeitsplatz deutlich lesbar sein muss, kann z. B. angeben:

- Grenzwert der zulässigen Masse,
- Anzahl der zulässigen Spaltstoffeinheiten,
- minimal zulässiger Abstand von Spaltstoffeinheiten.

Die Kennzeichnungspflicht gilt auch für bewegliche Spaltstoffeinheiten beim innerbetrieblichen Transport. Transportwege für Spaltstoffe sind, sofern aus Gründen der neutronischen Kopplung erforderlich, eindeutig und dauerhaft zu markieren.

Außerdem können Maßnahmen festzulegen sein, die bei und nach dem Auftreten eines Kritikalitätsstörfalles zu ergreifen sind (siehe Kap. 10.8).

8.2 Literatur zu Kapitel 8

- [8.1] DIN 25474: Maßnahmen administrativer Art zur Einhaltung der Kritikalitätssicherheit in kerntechnischen Anlagen, ausgenommen Reaktoren (Juni 2014).

9 Kritikalitätsrelevante Betriebserfahrungen mit Anlagen der nuklearen Ver- und Entsorgung

9.1 Betriebserfahrungen in der Datenbank VIBS

Bei der Verarbeitung und Lagerung von Kernbrennstoffen außerhalb von Kernreaktoren oder kritischen Anordnungen zu Experimentierzwecken stellt jedes Erreichen des Zustands der Kritikalität – besonders für das Betriebspersonal – eine erhebliche Gefahr dar. Es ist daher für die Handhabung von Spaltstoffen unabdingbar, dass dem Aspekt der Kritikalitätssicherheit nicht nur bei der Planung, sondern auch beim Betrieb von Anlagen der nuklearen Ver- und Entsorgung voll Rechnung getragen wird.

Seit über vier Jahrzehnten kann man auch in Deutschland auf Betriebserfahrungen mit unterschiedlichen Anlagen der nuklearen Ver- und Entsorgung zurückblicken. Wie in den anderen technischen Bereichen stellt auch hier der Rückfluss von Erfahrungen aus der Praxis eine unverzichtbare Quelle für Kenntnisgewinn und eine weitere Verbesserung der Sicherheit kerntechnischer Anlagen dar. So werden besondere Vorkommnisse in deutschen und ausländischen Anlagen systematisch gesammelt, nach einheitlicher Vorgehensweise beschrieben, in einer Lose-Blatt-Sammlung verfügbar gehalten (VIBS: Meldepflichtige Ereignisse in Anlagen des Kernbrennstoffkreislaufs [9.3]) und in Berichten dokumentiert.

Bis Anfang September 2014 sind insgesamt 350 kritikalitätsrelevante Vorkommnisse in Anlagen der nuklearen Ver- und Entsorgung sowie in Forschungseinrichtungen bekannt geworden. Bei 326 dieser Vorkommnisse, zu denen auch die fünf in deutschen Anlagen registrierten Ereignisse gehören, kam es zu Beeinträchtigungen der Sicherheitsvorkehrungen gegen Kritikalität oder es konnten aus ihnen Lehren im Hinblick auf die Vorsorge gegen Kritikalität abgeleitet werden.

Bei 24 weiteren Vorkommnissen fand eine Kritikalitätsexkursion statt (36 weitere Vorkommnisse mit Kritikalitätsexkursion sind in der Datenbank VIBS, die keinen Anspruch auf Vollständigkeit erhebt, nicht aufgeführt. Dies sind vor allem ältere Vorkommnisse sowie Vorkommnisse in militärisch genutzten Anlagen; in Kap. 10 werden auch diese deziert behandelt).

9.2 Kritikalitätsrelevante Vorkommnisse ohne Kritikalitätsexkursion

Im Wesentlichen lassen sich die aufgetretenen Fehlfunktionen (ohne tatsächlich stattgefundenene Kritikalitätsexkursion) in in- und ausländischen Kernbrennstoffversorgungsanlagen in folgende neun Kategorien einteilen [9.1]:

- (a) Fehler bei der Eingangskontrolle des Spaltmaterials (des Anreicherungsgrades, der Art des Spaltstoffs) (37 Fälle)
- (b) Fehler oder Unterlassungen bei der Massenkontrolle (76 Fälle)
- (c) Nichteinhalten der geometrischen Begrenzungen von Behältern, Komponenten, Probleme mit Neutronenabsorbern (33 Fälle)
- (d) Mängel oder Verletzung von Beschränkungen der Moderation (50 Fälle)
- (e) Auslaufen und Fehlleitungen von Spaltstofflösungen (18 Fälle)
- (f) Ansammlung von Spaltstoffen (30 Fälle)
- (g) Erhöhung der Neutronen-Wechselwirkung (Verletzung von Sicherheitsabständen oder zulässiger Behälteranzahl) (29 Fälle)
- (h) Mängel bei der Freigabe und Genehmigung von Tätigkeiten und bei der Beseitigung von Störungen (20 Fälle)
- (i) Beeinträchtigungen oder Ausfälle von für die Kritikalitätssicherheit relevanten Systemen (33 Fälle)

Entsprechend der Nomenklatur der VIBS gelten im Folgenden diese Abkürzungen für die verschiedenen betrachteten Anlagentypen:

- (BE) Brennelementfabrik
- (AN) Anreicherungsanlage
- (WA) Wiederaufarbeitungsanlage
- (FO) Forschungszentrum
- (PR) Produktionsanlage
- (SO) Sonstige

In Tab. 9.1 ist die Zuordnung zwischen der Kategorie der Vorkommnisse und dem Anlagentyp aufgelistet.

Tab. 9.1 Zuordnung der unterschiedlichen Vorkommniskategorien ohne eingetretene Kritikalitätsexkursion auf die verschiedenen Anlagentypen der nuklearen Ver- und Entsorgung

Kat.	BE	AN	WA	FO	PR	SO	Summe	%
a)	18	9	2	6	1	1	37	11,35
b)	47	8	8	11	1	1	76	23,31
c)	29	3	1	0	0	0	33	10,12
d)	34	15	1	0	0	0	50	15,34
e)	13	1	4	0	0	0	18	5,52
f)	25	5	0	0	0	0	30	9,20
g)	17	6	2	1	1	2	29	8,90
h)	11	8	1	0	0	0	20	6,13
i)	25	3	1	1	2	1	33	10,12
Summe	219	58	20	19	5	5	326	100,00
%	67,18	17,79	6,13	5,83	1,53	1,53	100,00	

Generell sind die Kontrollen von Massenbegrenzungen sowie die Einhaltung der kontrollierten Moderation von besonderer Bedeutung bei der Aufrechterhaltung der Kritikalitätssicherheit. Die messtechnische Feuchtigkeitskontrolle muss auf Fehlfunktionen überwacht werden. Auf Probenahmen basierende Feuchtemessungen sind nur so zuverlässig wie das Personal das sie ausführt. Überraschend ist außerdem, dass es immer wieder zu Wasserzutritten aufgrund mangelhafter Dachabdichtung kommt. Meist handelt es sich dabei um kleine Leckagen, aber bei den relativ selten vorkommenden Volumina im Kubikmeterbereich ist die Kritikalitätssicherheit durchaus bedroht. Eine regelmäßige und sorgfältig dokumentierte Kontrolle des Gebäudezustands gegen Eindringen von Wasser sollte in Bereichen mit kontrollierter Moderation durchgeführt werden.

Auch Ansammlungen von Spaltstoff an dafür nicht vorgesehenen Positionen wie z. B. in einem Staubsaugerbeutel sowie Fehler bei der Spaltstoffeingangskontrolle und bei der unsachgemäßen Lagerung von spaltstoffhaltigen Materialien stellen wichtige Beeinträchtigungen dar.

Als besonders anfällig für Verletzungen der Kritikalitätssicherheitsvorkehrungen haben sich zwei Prozessteile der Brennelementfabrikation erwiesen. Der erste Schwerpunkt betrifft die Abwassersysteme, in die störungsbedingt Uran eindringen und dort zu beträchtlichen, kritikalitätsrelevanten Ansammlungen von Uran führen kann. Der zweite Schwerpunkt liegt bei der Auflösung von Uranschlamm oder nicht spezifikationsgerechtem Rücklaufmaterial. Beide Vorgänge bzw. Prozessschritte beinhalten organisatorische Kontrollmaßnahmen, wie die Überwachung der Wirksamkeit von Messeinrichtungen und Kontrollen auf Spaltstoffansammlungen und Spaltstoffmassen, wobei häufig durch geometrisch nicht sichere Behälter eine zusätzliche Gefahrenquelle entstehen kann.

Bei den hier betrachteten 326 Vorkommnissen kam es zu keiner Kritikalitätsexkursion. Vielmehr waren in den allermeisten Fällen (316) weitere Sicherheitsvorkehrungen und Sicherheitsparameter wirksam, so dass die Kritikalitätssicherheit zwar beeinträchtigt war, aber dennoch erhalten blieb. Dies ist insgesamt eine Bestätigung des international verfolgten Sicherheitskonzepts auf der Basis des Störfallprinzips (*Double Contingency Principle*, in Deutschland festgelegt in DIN 25403, Teil 1; vgl. auch Kap. 2.1.11).

Zehn der untersuchten Ereignisse führten jedoch zu Situationen, in denen keiner der festgelegten Grenzwerte eingehalten wurde, bzw. keine der getroffenen Sicherheitsvorkehrungen in einer kontrollierten Weise aufrechterhalten blieb. In diesen Fällen war es nur den gegebenen Umständen zuzuschreiben, dass es nicht zu einem Kritikalitätsstörfall gekommen ist. Diese Umstände unterlagen dabei jedoch keiner Kontrolle.

Die Bewertung der betrachteten Vorkommnisse nach der internationalen INES Bewertungsskala, die von Stufe 0 für Ereignisse ohne sicherheitstechnische Bedeutung bis zu Stufe 7 für katastrophale Unfälle reicht [9.2], führte in den meisten Fällen zu den niedrigsten Stufen 0 und 1 (86 Ereignisse in Stufe 0, 230 Ereignisse in Stufe 1), wobei diese Einstufung im nachhinein und wegen der zum Teil unvollständigen Informationen oftmals nur als eine Einschätzung zu werten ist. Die restlichen zehn Ereignisse wurden in Stufe 2 der INES-Bewertungsskala eingeordnet. Tab. 9.2 zeigt die INES-Einstufung der 326 Ereignisse für die einzelnen Anlagentypen.

Tab. 9.2 INES-Bewertungen der Vorkommnisse in Anlagen der nuklearen Ver- und Entsorgung ohne eingetretene Kritikalitätsexkursion, aufgelistet nach Einstufung und Anlagentyp

INES	BE	AN	WA	FO	PR	SO	Summe	%
0	62	17	1	2	3	1	86	26,38
1	148	41	18	17	1	4	230	70,55
2	8	0	1	0	1	0	10	3,07
Summe	219	58	20	19	5	5	326	100,00
%	67,18	17,79	6,13	5,84	1,53	1,53	100,00	

9.3 Kritikalitätsrelevante Vorkommnisse mit Kritikalitätsexkursion

Die kritikalitätsrelevanten Vorkommnisse mit und ohne Kritikalitätsexkursion können sich erheblich in ihren Auswirkungen auf die Mitarbeiter und die Anlage unterscheiden. Während bei letzteren normalerweise keine oder nur geringfügige Auswirkungen auf Mitarbeiter und Anlage zu verzeichnen sind, liegt bei ersteren die Hauptgefahr im Auftreten starker Strahlenfelder durch direkt emittierte Neutronen- und Gammastrahlung, die zu hohen Strahlenexpositionen der Mitarbeiter führen können (vgl. auch Kap. 10). Deshalb werden die kritikalitätsrelevanten Vorkommnisse mit Kritikalitätsexkursion im Folgenden gesondert betrachtet.

Wie im vorhergehenden Abschnitt wurden auch die kritikalitätsrelevanten Vorkommnisse mit Kritikalitätsexkursion den dort definierten neun Kategorien zugeordnet. Dabei wurden nur fünf der Kategorien besetzt. Tab. 9.3 zeigt die Zuordnung zwischen der Kategorie der kritikalitätsrelevanten Vorkommnisse mit Kritikalitätsexkursion und dem Anlagentyp (unbesetzte Kategorien und Anlagentypen werden in der Tabelle nicht aufgeführt).

Trotz der im Vergleich zur Gesamtzahl der meldepflichtigen kritikalitätsrelevanten Vorkommnisse relativ geringen Anzahl an Vorkommnissen mit einer Kritikalitätsexkursion lassen sich Tab. 9.1 und Tab. 9.3 (kritikalitätsrelevante Vorkommnisse jeweils mit und ohne Kritikalitätsexkursion) hinsichtlich Anlage und auslösenden Umständen miteinander vergleichen.

Während bei den Vorkommnissen ohne Exkursion die Brennelementfabriken und Anreicherungsanlagen anteilmäßig dominieren (zusammen ca. 85%), so sind dies bei den

Tab. 9.3 Zuordnung der unterschiedlichen Vorkommniskategorien mit eingetretener Kritikalitätsexkursion auf die verschiedenen Anlagentypen der nuklearen Ver- und Entsorgung

Kat.	BE	AN	WA	FO	SO	Summe	%
a)	0	0	4	1	0	5	20,83
b)	1	0	3	0	1	5	20,83
c)	2	0	2	1	1	6	25,00
e)	0	1	3	2	0	6	25,00
f)	1	0	1	0	0	2	8,33
Summe	4	1	13	4	2	24	100,00
%	16,67	4,17	54,17	16,67	8,33	100,00	

Vorkommnissen mit Exkursion die Wiederaufarbeitungsanlagen, die Brennelementfabriken und die Forschungszentren (relativer Anteil zusammen ca. 88 %).

Die Mehrheit der Vorkommnisse ohne Exkursion (ca. 79 %) lassen sich in den Kategorien b (Massenkontrolle Spaltstoff), d (Moderationskontrolle), a (Eingangskontrolle Spaltstoff), c (Nichteinhaltung geometrischer Begrenzungen), i (Ausfälle von kritikalitätsrelevanten Systemen) und f (Ansammlung von Spaltstoffen) zuordnen. Die Kategorien g (Erhöhung der Neutronenwechselwirkung), h (Mängel bei der Freigabe von Tätigkeiten) und e (Fehlleitungen von Spaltstofflösungen) fallen im Vergleich dazu ab.

Bei den Vorkommnissen mit Exkursion hingegen dominieren die Kategorien c und e, gefolgt von a und b sowie mit großem Abstand von f. Die Die Moderationskontrolle d sowie die Kategorien g, h und i sind nicht vertreten.

Alle der 24 kritikalitätsrelevanten Vorkommnisse mit Exkursion, die in der Datenbank VIBS registriert sind, wurden mit den INES-Stufen 3 (17 Fälle) oder 4 (7 Fälle) bewertet.

9.4 Literatur zu Kapitel 9

- [9.1] W. Thomas: Auswertung von kritikalitätsrelevanten besonderen Vorkommnissen in Brennelementfabriken, Schriftenreihe BMU 1995–449, 1995. Auch: GRS-A-2201, November 1994.
- [9.2] K. Kotthoff: Internationale Bewertungsskala für bedeutsame Ereignisse in kerntechnischen Einrichtungen, Benutzerhandbuch GRS-111, Juni 1994.
- [9.3] Bundesamt für Strahlenschutz, Fachbereich Kerntechnische Sicherheit (KT 2.2, Störfallmeldestelle), Datenbank VIBS: Meldepflichtige Ereignisse in Anlagen des Kernbrennstoffkreislaufs; Benutzerhandbuch, Mai 1996.

10 Nukleare Unfälle und ihre Folgen

Eine Kritikalitätsexkursion bzw. ein Kritikalitätsunfall ist ein durch unerwartete, unbeabsichtigte, unkontrollierte oder unkontrollierbare Reaktivitätszufuhr verursachtes Erreichen des kritischen oder überkritischen Zustands in einem Spaltstoffsystem, so dass es infolge des dadurch bewirkten Leistungsanstiegs zu einer Freisetzung von Energie (kinetische Energie der primären Spaltfragmente) und zur Emission energiereicher Neutronen- und Gammastrahlung in die Umgebung des Spaltstoffsystems kommt. Aufgrund einer unerwarteten und unbeabsichtigten Reaktivitätszufuhr kann in einem Spaltstoffsystem bei Versagen aller Sicherheitsmaßnahmen der kritische Zustand erreicht werden.

10.1 Bisherige Kritikalitätsunfälle

Bis Ende Juli 2015 sind 60 Kritikalitätsunfälle in kerntechnischen Anlagen (ohne die Leistungsreaktoren TMI-2, Tschernobyl und Fukushima Daiichi) bekannt geworden und sind zumindest hinsichtlich ihrer wichtigsten Charakteristika dokumentiert. Eine bis 1989 reichende Zusammenstellung gibt die Quelle [10.1]; Kritikalitätsunfälle, die sich in russischen Industrieanlagen ereignet haben, sind in [10.2] beschrieben. [10.1] ist im Jahr 2000 in Zusammenarbeit zwischen den USA und Russland überarbeitet worden [10.6]. Seit dem 30.09.1999 (s. u.) ist kein Kritikalitätsunfall mehr bekannt geworden.

Teilt man die hier dokumentierten Unfälle grob nach der Art des Spaltstoffsystems auf, so ergibt sich folgende Übersicht:

- Unfälle mit Spaltstofflösungen: 26
- Unfälle mit metallischem Spaltstoff: 16
- Unfälle mit heterogenen Spaltstoff-Moderatorsystemen: 13
- Unfälle mit sonstigen Systemen: 5

Ein großer Teil der Unfälle ereignete sich in Prototyp- und Versuchsanlagen in den ersten Nachkriegsjahren. Außer einiger Unfälle in Kernreaktoren (Chalk River, Kanada; Vinča, Jugoslawien/Serbien; Saclay, Frankreich) trat nur ein kritischer Unfall bei der Handhabung und Verarbeitung von niedrig angereichertem Kernbrennstoff auf (Electrostaal RF, 1965, 6,5 % ²³⁵U). Die anderen Unfälle geschahen im Zusammenhang mit mittel- bzw. hochangereichertem Uran oder mit Plutonium, häufig im Umfeld der Kernwaffenproduktion.

Bei den Unfällen in Spaltstofflösungen beziehen sich 18 Exkursionen auf hoch angereichertes Uran, 8 auf Plutonium als Spaltstoff.

Die jüngsten in dieser Zusammenstellung berücksichtigten Kritikalitätsunfälle ereigneten sich 1997 in Russland (zwei) bzw. 1999 in Japan. In einer Brennelementfabrik in Novosibirsk (RF) kam es in der Fertigung von Forschungsreaktor-Brennelementen mit hochangereichertem Uran zu einer Kritikalität in einem Sammelbehälter für flüssige Reststoffe [10.6]. Der zweite Unfall in Russland ereignete sich in dem Russischen Föderalen Kernforschungszentrum Sarow (ehemals Arsamas-16) nahe Nischni Nowgorod bei der fehlerhaften Durchführung eines kritischen Experiments. Dabei erlitt ein Wissenschaftler eine letale Strahlungs-dosis und verstarb wenig später [10.6], [10.6a]. Am 30. September 1999 ereignete sich in der zivilen Uranverarbeitungsanlage der Firma JCO in Tokai-mura, Japan, durch grobes Fehlverhalten einer dreiköpfigen Bedienmannschaft ein schwerer Kritikalitätsunfall, bei dem zwei Menschen ums Leben kamen und die dritte Person eine signifikante Strahlungs-dosis erlitt [10.6].

10.2 Abschätzung der Häufigkeit von Kritikalitätsunfällen

Die bisher bekannt gewordenen Kritikalitätsunfälle reichen als Basis zur Abschätzung der Häufigkeit ihres Auftretens nicht aus. Wegen der besonderen Eigenart dieser Unfälle und ihrer Verbindung mit der Handhabung von Kernbrennstoff ist eine Übertragung von aus der konventionellen Technik gewonnenen Daten zur Unfallhäufigkeit kaum möglich.

Trotzdem lassen sich einige interessante Feststellungen treffen: Betrachtet man die Aufteilung der Unfälle auf den Zeitraum von 1945 bis 1999 (siehe Abb.10.1), so erkennt man, dass sich seit 1969 lediglich neun der insgesamt sechzig bekannten Unfälle (15 %) ereignet haben. Trotz der stark gewachsenen Durchsätze und Spaltstoffmengen in der Kernbrennstoffindustrie ist die Häufigkeit von Kritikalitätsunfällen seither also deutlich gesunken: Von im Mittel über zwei Unfällen pro Jahr bis 1969 auf danach (bis 2015) im Mittel etwa alle fünf Jahre ein Unfall, und insbesondere seit 16 Jahren kein einziger mehr.

Versucht man die Anzahl der Unfälle mit der aufgetretenen Gesamtzahl an Spaltungen, aufgeteilt nach Spaltstoffsystemen, zu korrelieren, so ergeben sich die in Abb. 10.2 dargestellten Bilder. Bei den Spaltstofflösungen sind die Ergebnisse der in Frankreich durchgeführten CRAC-Kritikalitätsexperimente als Vergleich eingetragen [10.6b].

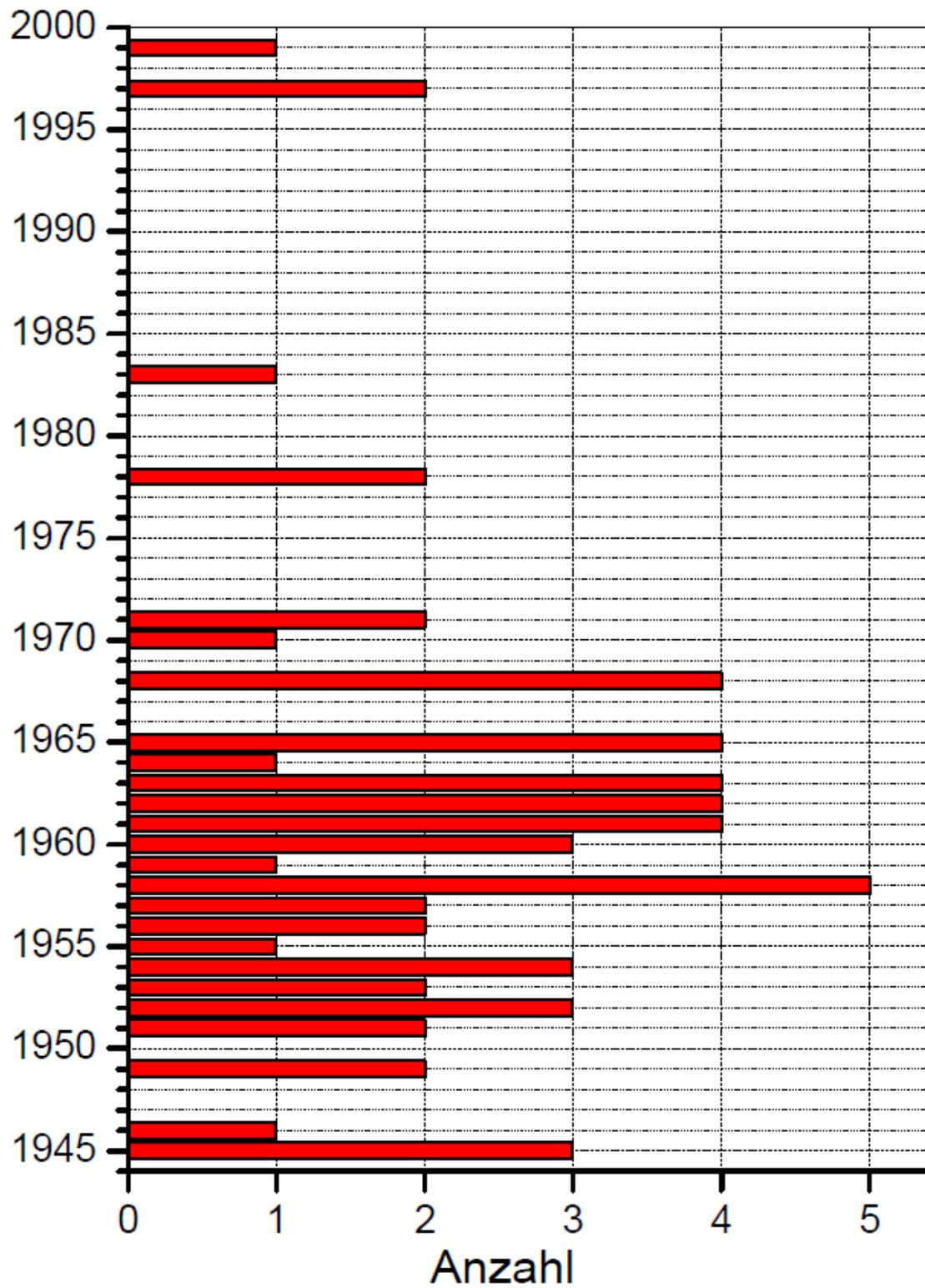


Abb. 10.1 Aufteilung der bekannt gewordenen Kritikalitätsunfälle im Zeitraum von 1945-1999 nach [10.6]

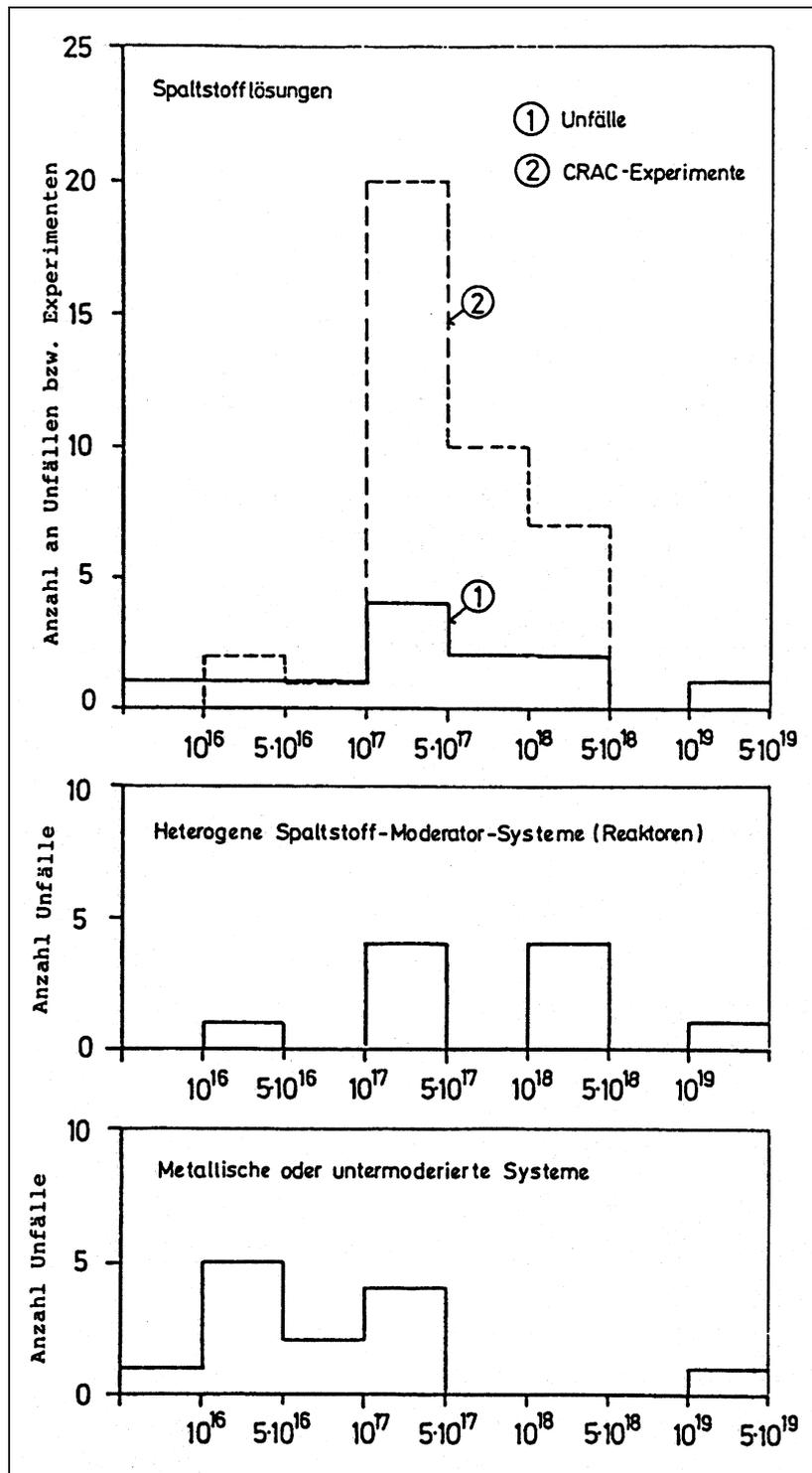


Abb. 10.2 Relation zwischen der Anzahl der Unfälle zu aufgetretener Gesamtzahl der Spaltungen

Bis auf einen Sonderfall, der $4 \cdot 10^{19}$ Spaltungen lieferte (Idaho Chemical Processing Plant, 16. Oktober 1959), betrug die Anzahl an Spaltungen bei den Unfällen und Experimenten mit Lösungen nie mehr als $5 \cdot 10^{18}$ [10.6]. Bei den metallischen oder stark untermoderier-

ten Spaltstoffsystemen lag die Anzahl an Spaltungen im Unfall bis auf einen Spezialfall in der Reactor Testing Area von Idaho Falls deutlich unter 10^{18} . Die Unfälle in Kernreaktoren ergaben sehr unterschiedliche Spaltzahlen.

Als Quintessenz wird man für Spaltstofflösungen und metallische Systeme wohl annehmen können, dass ein Unfall, der zu einer Gesamtzahl von mehr als $5 \cdot 10^{18}$ Spaltungen führt, um etwa eine Zehnerpotenz seltener als ein typischer Kritikalitätsunfall auftritt. In den älteren Abschätzungen der Häufigkeit für einen Kritikalitätsunfall, z. B. in [10.7], [10.8], werden bei Plutonium oder bei hoch angereichertem Uran Werte zwischen $5 \cdot 10^{-3}$ bis 10^{-2} pro Jahr und Nuklearanlage genannt. Neuere Störfallanalysen [10.9], [10.10] kommen zu kleineren Häufigkeiten (10^{-4} bis 10^{-6} für wesentliche Komponente oder Prozesszelle, damit ca. 10^{-3} pro Jahr und Nuklearanlage).

Ohne genauer auf die technischen Gegebenheiten bei der Handhabung und Verarbeitung des Spaltstoffmaterials einzugehen, kann die Häufigkeit von Kritikalitätsunfällen in modernen Prozessanlagen danach wie folgt eingeschätzt werden:

Tab. 10.1 Abschätzung der Häufigkeit von Kritikalitätsunfällen in modernen Prozessanlagen

Unfallgröße Zahl der Spaltungen	Spaltstoff	Häufigkeit pro Jahr
$< 5 \cdot 10^{18}$	Pu, Uran hoher Anreicherung	$< 5 \cdot 10^{-3}$
$> 5 \cdot 10^{18}$	Pu, Uran hoher Anreicherung	$< 5 \cdot 10^{-4}$
$< 5 \cdot 10^{18}$	Uran niedriger Anreicherung	$< 5 \cdot 10^{-4}$

Die Berücksichtigung technischer Gegebenheiten sowie der Art der chemischen Verbindung des Spaltmaterials können diese Schätzwerte wesentlich beeinflussen.

10.3 Auslösende Ereignisse für einen Kritikalitätsunfall

Die bisher aufgetretenen Kritikalitätsunfälle sind bezüglich ihrer Entstehung und ihres Ablaufs in der einschlägigen Literatur recht genau beschrieben [10.1]–[10.4], [10.10], [10.11]. Hauptursachen waren dabei:

- Entfernen von Kontroll- und Absorberstäben,
- zu starke Annäherung von Reflektoren,
- Überleitung von Spaltstofflösung von sicherer in unsichere Geometrie,
- Hinzufügen von Moderator (Wasser, Schwerwasser D₂O),
- Fehler bei der Berechnung und Durchführung von kritischen Experimenten,
- allmähliche Ansammlung von Spaltstoff in Leitungen und Zwischengefäßen.

Bei den in der Nuklearindustrie üblichen Verfahren sind speziell alle Verfahrensschritte, bei denen mit gut moderiertem Spaltstoff, z. B. in Form von Lösungen, umgegangen wird, schon aufgrund der kleinen kritischen Massen mit einem höheren Kritikalitätsrisiko verbunden, insbesondere wenn es sich um Nicht-Routineoperationen oder Arbeiten ohne sichere Geometrie sondern lediglich unter organisatorischen Sicherheitsmaßnahmen handelt. Einige dieser Arbeitsschritte und möglichen Ursachen sind:

- Auflösung von Kernbrennstoffen in der Eingangsstufe einer Wiederaufarbeitungsanlage;
- Auflösung und nasschemische Weiterverarbeitung von nicht der Spezifikation entsprechendem Rücklaufmaterial;
- Spülen von Spaltstoffbehältern, die Restmengen an Kernbrennstoff enthalten;
- Ansammlung von spaltstoffhaltigen Bodensätzen oder Ausfällungen in Abwassertanks oder Rohrleitungssystemen;
- Chemische Fehlreaktionen in Fällbehältern;
- Rücksteigen von Spaltstofflösungen in geometrisch unsichere Anlagenteile;
- Fehlleitungen von Reworklösungen oder Dekontaminationswässern;
- Übertritt von Spaltstofflösungen oder -suspensionen in Abwassersysteme.

10.4 Typischer Verlauf einer Kritikalitätsexkursion

Führt man einem knapp unterkritischen Spaltstoffsystem schlagartig oder allmählich weitere Reaktivität in Form von Spaltstoff, Moderator oder Reflektor zu, so wird beim Überschreiten des Multiplikationsfaktors $k_{\text{eff}} = 1,0$ eine nukleare Kettenreaktion eingeleitet und

über den verzögert kritischen Bereich meist der prompt kritische Bereich erreicht. Dabei kommt es zu einem steilen Anstieg der Spaltrate. Rückläufige Effekte wie Dichteveränderungen, Bläschenbildung und Erwärmung bremsen den Reaktivitätsanstieg, so dass sich ein Maximum der Spaltrate ausbildet. Weitere Reaktivitätszufuhr oder physikalisch-chemische Änderungen im Spaltstoffsystem können nachfolgende, meist niedrigere Maxima der Spaltrate hervorrufen. In Abb. 10.3 sind typische Zeitverläufe der Leistungsdichte in W/cm^3 bzw. der Energiedichte in J/cm^3 dargestellt [10.6], die zur Spaltrate (Spaltungen/Zeiteinheit) proportional sind (1 Megawatt entspricht $\approx 3,09 \cdot 10^{16}$ Spaltungen/s).

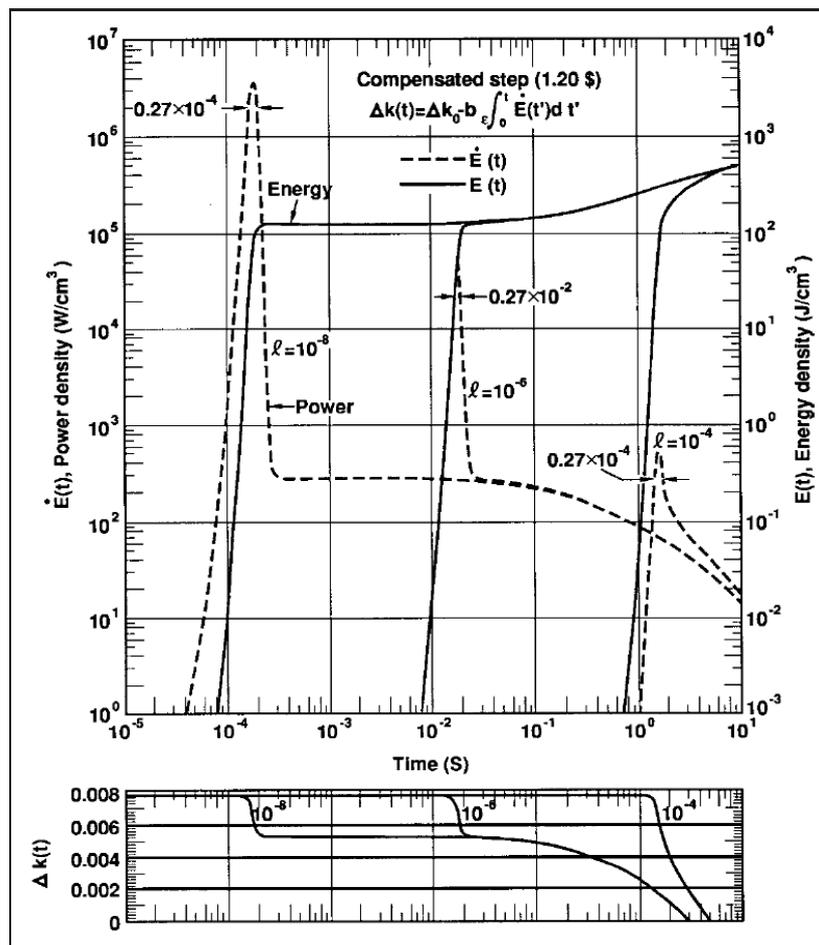


Abb. 10.3 Typische zeitliche Verläufe der Leistungs- und Energiedichte bei einer kritischen Exkursion nach [10.6]

Der zeitliche Verlauf der Spaltrate hängt stark von der Energie der spaltenden Neutronen und somit vom Grad der Moderation des Spaltstoffsystems ab. Nach der in Abb. 10.3 angegebenen Zeitskala und Lebensdauer der Neutronen unterscheidet man schnell-, epithermisch- und thermisch-kritische Spaltstoffsysteme bzw. Exkursionen. Der Bereich der ersten steilen Spitze im Spaltratenverlauf wird als 1. Maximum oder 1. Peak, die fol-

gende Abflachung oder der Zug der Sekundärmaxima als Plateau bezeichnet. Die Zeit, in der sich die Spaltrate zu Anfang des Peaks um den Faktor e erhöht, nennt man die Anfangsperiode $T(s)$ der Exkursion; man verwendet jedoch aus praktischen Gründen meist den Kehrwert $\omega = 1/T$ als inverse Periode s^{-1} . Die inverse Periode hängt für prompt kritische Exkursionen mit der Reaktivitätszufuhr ρ , dem Anteil der verzögerten Spaltneutronen β und der Neutronenlebensdauer l gemäß Gl. (10.1) zusammen. Je größer ω ist, umso rascher und höher ist der Spaltratenanstieg im Maximum der Exkursion.

$$\omega = \frac{\rho - \beta}{l} \quad (10.1)$$

10.5 Experimentelle Untersuchungen

Zum besseren Verständnis von Kritikalitätsexkursionen wurden bereits ab 1958 experimentelle Untersuchungen, die sogenannten KEWB-Experimente (Kinetic Experiment on Water Boilers) [10.13] und Experimente im SPERT-Reaktor [10.14] durchgeführt. Weitere Experimente wurden ab 1971 in Valduc, Frankreich, unter der Bezeichnung CRAC [10.6] und im SILENE-Reaktor [10.15] unternommen. Mit Ausnahme der SPERT-Experimente handelte es sich um Experimente mit hoch angereicherten Uranlösungen. Diese Experimente lieferten eine Fülle von Informationen zum Ablauf und der voraussichtlichen Unfallgröße bei Exkursionen in Lösungen. Ähnlich ausführliche und zugängliche Untersuchungen zu untermoderierten und metallischen Systemen fehlen, wenngleich Teilinformationen aus den schnellkritischen Anordnungen GODIVA und JEZEBEL [10.6] vorliegen.

Aus den Experimenten und Unfällen lässt sich ein annähernder Zusammenhang erschließen, nämlich eine Zunahme der Spaltzahl im ersten Maximum F_1 mit dem Spaltstofflösungsvolumen bei Lösungsexkursionen. Abb. 10.4 zeigt diesen Zusammenhang (vgl. auch Kap. 10.6).

Ähnlich lässt sich aus experimentellen Befunden eine in Abb. 10.5 dargestellte Zunahme der spezifischen Spaltrate f_1 im 1. Maximum (Spaltrate F_1 bezogen auf Einheit des Lösungsvolumens V) gewinnen, die bei Kenntnis von Neutronenlebensdauer, Reaktivitätszufuhr und Lösungsvolumen eine Abschätzung der Spaltzahl F_1 im 1. Maximum gestattet.

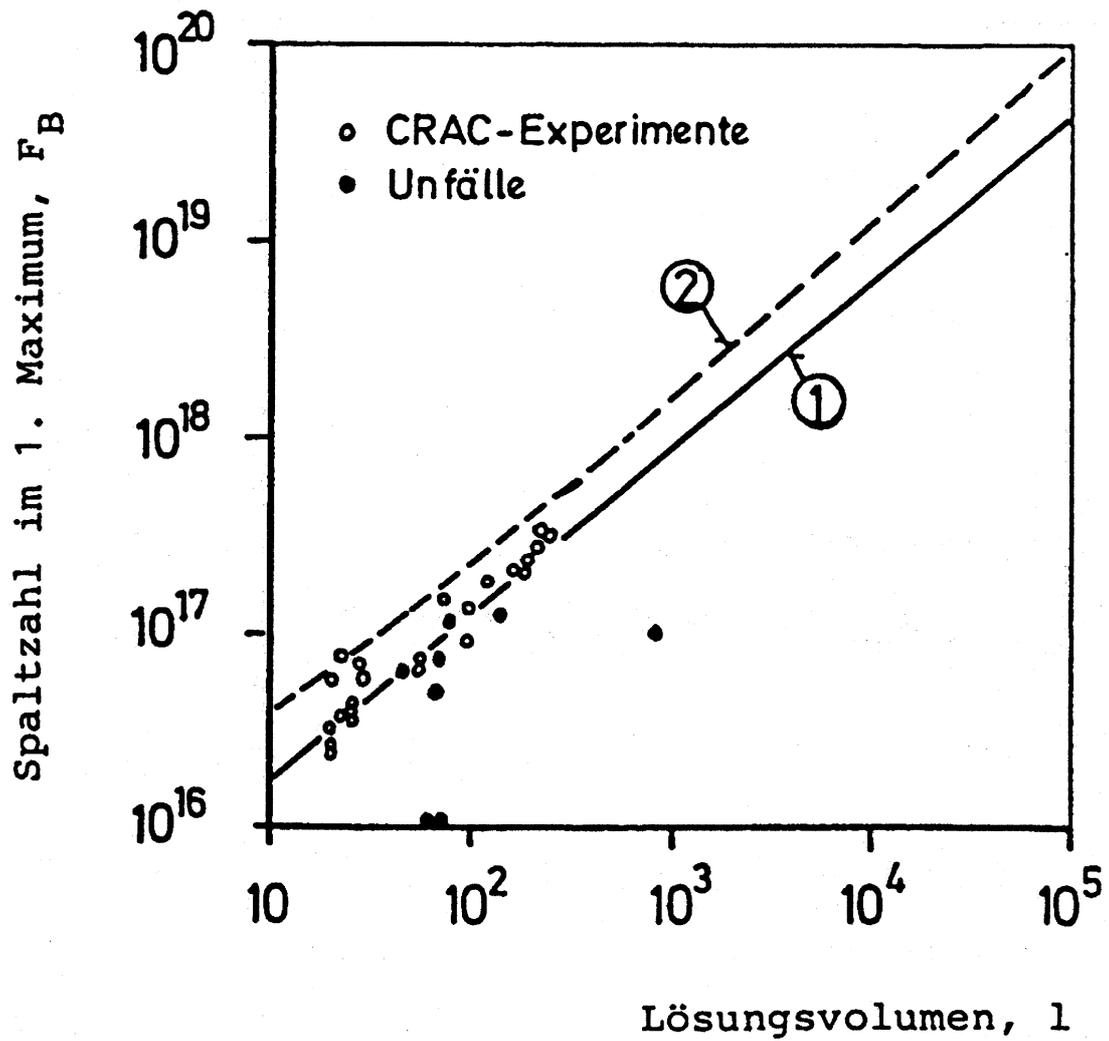


Abb. 10.4 Zunahme der Spaltzahl im 1. Maximum bei Lösungsexkursionen als Funktion des Lösungsvolumens zur Zeit des Maximums
 Kurve 1: Näherung nach Olsen, Hooper, Uotinen, Brown [10.16]
 Kurve 2: 95 % Zuverlässigkeit der Näherung

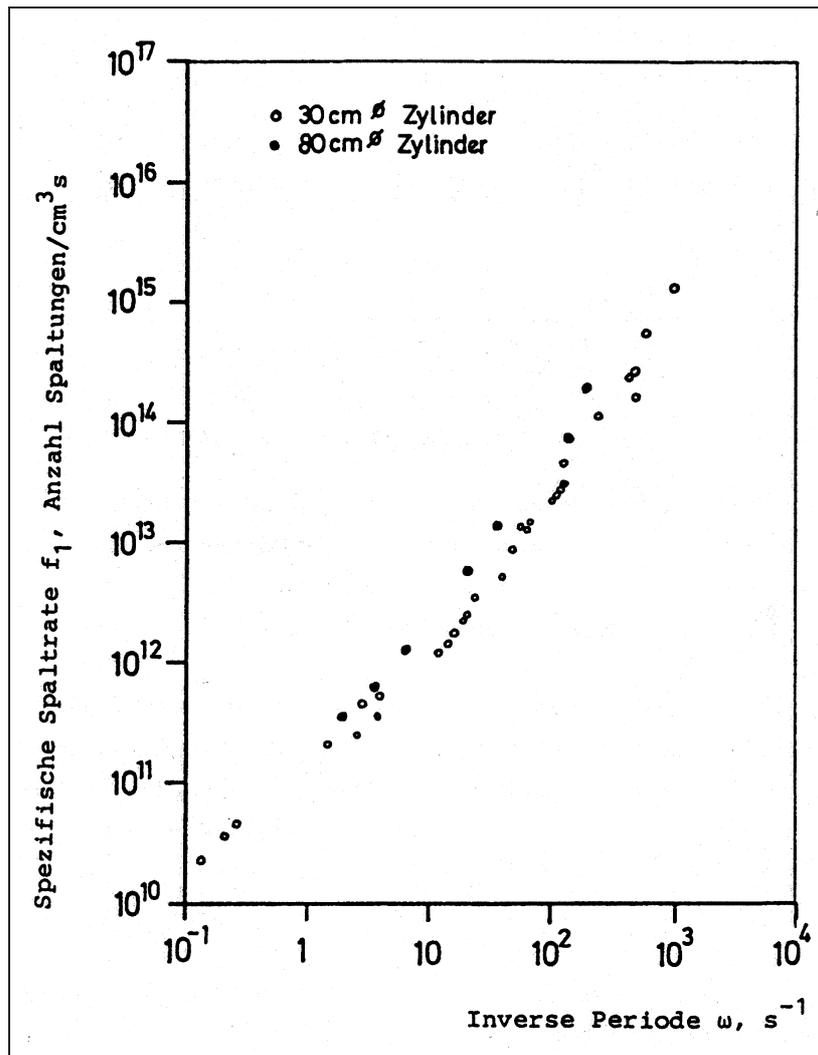


Abb. 10.5 Zusammenhang der spezifischen Spaltrate im 1. Maximum mit der inversen Anfangsperiode (CRAC-Experimente)

Eine erste Abschätzung für die zu erwartende Unfallgröße bei einer Kritikalitätsexkursion, im Wesentlichen die Gesamtzahl an Spaltungen F , die Spaltzahlen im 1. Maximum F_1 und im Plateau F_2 sowie die Spaltraten f ist bei Kenntnis der wichtigsten Systemparameter bereits aus einer Auswertung der vorliegenden experimentellen Befunde möglich. Auf dieser Basis wurden mehrere Näherungsverfahren zur Abschätzung der wichtigsten Größen veröffentlicht [10.16, 10.17]. Alle diese Modelle beziehen sich auf Spaltstofflösungen.

10.6 Abschätzung und Berechnung der Unfallgröße

10.6.1 Abschätzung der Spaltzahl im 1. Maximum

G. Tuck gibt zwei Näherungsgleichungen für homogene Uran- und Plutoniumlösungen an [10.17]:

Uranlösung:

$$F_1(5 \text{ s-Intervall}) = 2,4 \cdot 10^{15} \cdot V \quad (10.2)$$

Plutoniumlösung:

$$F_1(5 \text{ s-Intervall}) = 4,6 \cdot 10^{16} \cdot a^{0,25} \cdot \exp\left(0,0177D - \frac{(150 - H) \cdot 0,8a}{D}\right) \quad (10.3)$$

wobei: V = Lösungsvolumen in Liter, a = Füllrate in Liter Lösung pro s, D = Tankdurchmesser in cm, und H = Tankhöhe in cm bis 150 cm. Für größere Höhen ist stets 150 cm einzusetzen.

Die Genauigkeitsangaben in [10.17] für diese Beziehungen lauten: +70 %, -90 % und +100 %, -70 %.

Aus den CRAC-Experimenten leiten Olsen et al. [10.16] folgende Beziehung für Uranlösungen in Zylindergefäßen zwischen 30 und 80 cm Durchmesser her:

$$F_1 = 2,95 \cdot 10^{15} \cdot V_1^{0,82} \quad (10.4)$$

wobei V_1 das Lösungsvolumen in Litern zur Zeit des 1. Maximums bedeutet. Eine Abschätzung der oberen 95 %-Zuverlässigkeitsgrenze F_1^0 lautet:

$$\ln(F_1^0) = 15,47 + 0,82 \ln V_1^0 + 0,23 \cdot \sqrt{1,04 + \frac{(\ln V_1^0 - 1,73)^2}{4,07}} \quad (10.5)$$

In Abb. 10.4 sind diese beiden Relationen eingetragen.

Beide Beziehungen (10.4) und (10.5) nach Olsen et al. [10.16] gelten für hoch angereicherte Uranlösung. Schätzungen für Plutoniumlösung lassen erwarten, dass die Spaltzahl im 1. Maximum F_1 nur die Hälfte oder weniger des nach Gl. (10.4) berechneten

Wertes beträgt. Ein Reduktionsfaktor für niedrig angereichertes Uran wurde bisher nicht quantifiziert.

10.6.2 Abschätzung der Gesamtzahl an Spaltungen

Nach G. Tuck lässt sich die Gesamtzahl an Spaltungen F für Exkursionen in Uran- oder Plutoniumlösung ausdrücken durch:

$$F = V \cdot 10^{17} \text{ Spaltungen} \quad (10.6)$$

wobei V das Tankvolumen in Litern bedeutet. Die Genauigkeit für diese Relation liegt bei $\pm 20\%$ [10.16]. Olsen et al. [10.16] geben außerdem eine Beziehung für die Spaltzahl F_2 im Plateau als Funktion der Dauer des Plateaus t an:

$$F_2 = 3,2 \cdot 10^{18} \cdot |1 - t^{-0,15}| \quad (10.7)$$

Die entsprechende Beziehung der oberen 95 %-Zuverlässigkeitsgrenze für F_2 lautet:

$$F_2^0 = 4,6 \cdot 10^{19} \cdot |t^{0,02} - 1| \quad (10.8)$$

In Verbindung mit den Ausdrücken (10.4) und (10.5) kann die Gesamtzahl an Spaltungen errechnet werden:

$$F = F_1 + F_2 \quad (10.9)$$

Die Beziehungen für F_2 als Funktion der Plateauzeit t sind in Abb. 10.6 graphisch dargestellt.

Agaisse und Barbry [10.18] haben aus ihren CRAC-Experimenten die Beziehung

$$F \leq 1,04 \cdot 10^{13} \cdot V + 7,02 \cdot 10^{13} \cdot (V - V_C(\phi)) \quad (10.10)$$

abgeleitet. V ist dabei das kritische Volumen der Spaltstofflösung in Litern. $V_C(\phi)$ entspricht dem kleinsten kritischen Volumen der Spaltstofflösung für den Behälterdurchmesser ϕ .

Aus den Versuchen im SILENE-Reaktor hat Barbry für die maximale Anzahl an Spaltungen F_{max} eine zeitabhängige Korrelation mit dem kritischen Volumen V hergeleitet [10.15]. Danach gilt in kochenden Lösungen für den Quotienten $F_{max}/V \leq 2 \cdot 10^{16}$ Spaltungen/Liter.

Die auftretende Anzahl an Spaltungen in Lösungen kann auch durch Berechnung des Temperaturanstiegs bis zum Siedepunkt abgeschätzt werden. Da nach Erreichen des Siedens die Leistung, bedingt durch die Blasenbildung, drastisch abfällt, wird die Anzahl an Spaltungen im Wesentlichen durch den Energieeintrag bis zum Erreichen des Siedepunktes bestimmt.

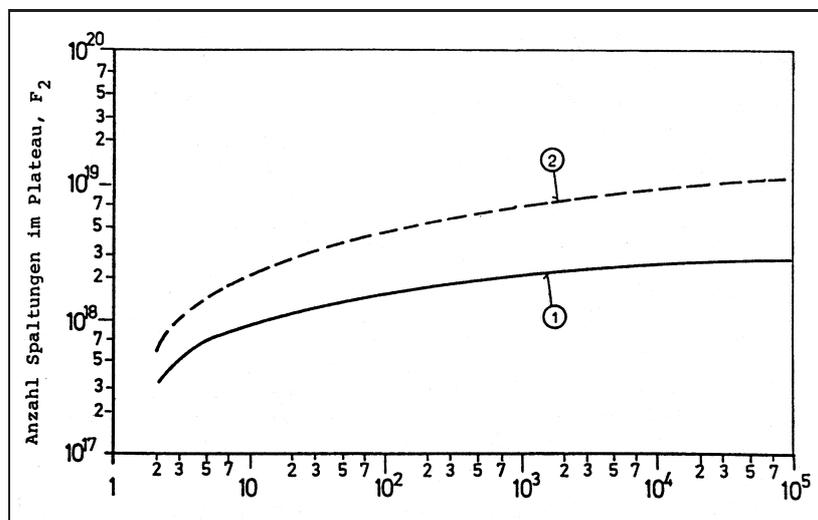


Abb. 10.6 Spaltzahl im Plateau als Funktion der Dauer des Plateaus nach Olsen et al. [10.16].

Kurve 1: Beziehung (10.7),

Kurve 2: 95 %-Zuverlässigkeitsgrenze, Beziehung (10.8)

10.6.3 Abschätzung von spezifischer Spaltrate und Maximaldruck

Für den auftretenden Druck und die mechanische Schädigung des Systems ist die spezifische Spaltrate f , ausgedrückt in Spaltungen pro Zeit- und Volumeneinheit, maßgebend. Für einen Kritikalitätsunfall mit hoher, rascher Reaktivitätszufuhr ist die spezifische Spaltrate f_1 im 1. Maximum entscheidend. Hierfür gibt G. Tuck [10.17] eine obere Abschätzung:

$$f_1 = \frac{7,7 \cdot 10^{23}}{H^3 \cdot D^2} \cdot k \cdot a \cdot \sqrt{\frac{L}{S}} \quad \frac{\text{Spaltungen}}{\text{Sekunde Liter}} \quad (10.11)$$

Dabei bedeuten: D Tankdurchmesser in cm, L längste Dimension (Höhe oder Durchmesser in cm), S kürzeste Dimension (Höhe oder Durchmesser in cm), a Füllrate in Liter/s, H kritische Höhe in cm (Tankdurchmesser 29-40 cm: 20 cm, Tankdurchmesser > 40 cm: 10 cm), k Parameter, der den Einfluss des bei Beginn der Exkursion vorhandenen Neutronenpegels berücksichtigt.

Werte für Uranlösungen als Funktion der Wahrscheinlichkeit, dass die berechnete spezifische Spaltrate nach Gl. 10.10 eine Genauigkeit von -70 %, +110 % hat, sind in Tab. 10.2 angegeben.

Tab. 10.2 Wahrscheinlichkeit der Genauigkeit der berechneten spezifischen Spaltrate für Exkursionen in Uranlösungen

Wahrscheinlichkeit %	k
66	1
75	2
80	5
90	15
95	100

Der aufgrund der abgeschätzten maximalen spezifischen Spaltrate im 1. Maximum auftretende Maximaldruck P_{max} errechnet sich nach [10.17] zu:

$$P_{max} = 6 \cdot 10^{-18} \cdot f_1 \frac{\text{kg}}{\text{cm}^2} \quad (10.12)$$

Die Genauigkeit dieser Beziehung ohne Berücksichtigung der Genauigkeitsgrenzen von Gl. (10.11) beträgt $\pm 40\%$ im Bereich von 0,7 bis 14 kg/cm². Die hier angegebene Einheit für Druck, "kilogram force per square centimeter", ist aus der US-amerikanischen Originalliteratur übernommen. Um SI-Einheiten zu erhalten gilt der Umrechnungsfaktor: 1 kg/cm² entspricht $\approx 98,0665$ kPa.

Im Allgemeinen verlaufen Kritikalitätsunfälle in Lösungen derart, dass keine oder nur eine geringe Schädigung der Behälter auftritt. Dabei haben Behälterform und Füllungsgrad des Behälters Einfluss auf die mechanische Belastung. Bei offenen Behältern kann Spaltstofflösung aus dem Behälter herausgeschleudert werden.

Wird während der Exkursion weiter Reaktivität zugeführt, kann die Lösung zum Kochen gebracht werden, wobei ein rascher Druckaufbau durch Dampf eintreten kann. Es hängt dann sehr stark von den Gegebenheiten des Systems ab, ob der Dampfdruck den Lösungsbehälter zerstören kann.

10.6.4 Extrem langsame Exkursionen

Während eine typische Kritikalitätsexkursion durch einen steilen Leistungsanstieg bis zum Erreichen einer ersten Leistungsspitze geprägt ist, der rasch weitere niedrigere Leistungsoszillationen folgen können, kann bei geringer, aber langanhaltender Reaktivitätszufuhr Kritikalität in einem schleichend verlaufenden, trägen Vorgang erreicht werden. Derartige extrem langsame Exkursionen wurden experimentell nachgewiesen [10.19a]. In der Versuchsanlage SHEBA [10.19b] wurden Kritikalitätsexkursionen in niedrig angereicherter Uranlösung hervorgerufen, die bei $4 \cdot 10^{16}$ Spaltungen nur geringfügige Temperaturerhöhungen ($\approx 4^\circ\text{C}$) bewirkten. Zwar sind bei diesen Spaltzahlen die Folgen der Exkursion gering; dennoch müssen auch diese Exkursionen durch Kritikalitätsalarmsysteme erfasst werden, um das Betriebspersonal vor unbemerkter unzulässiger Bestrahlung zu schützen (siehe Kap. 11).

10.6.5 Rechenprogramme

Zur Berechnung des zeitlichen Verlaufs der Leistung von Kritikalitätsexkursionen wurden Rechenmodelle entwickelt, die sich in unterschiedlichem Ausmaß auf experimentell bestimmte Parameter abstützen. Bei Kenntnis der Anfangsparameter, insbesondere der Anfangstemperatur und des anfänglichen Neutronenpegels, können mit diesen Rechenprogrammen die Leistung und der zeitliche Verlauf der Leistung im ersten Maximum zutreffend bestimmt werden. Derartige Rechenmodelle sind AIREK [10.20], ANCON [10.21] und PAD [10.22]. Vergleiche von Rechnung und Experiment sind in [10.23], [10.24] enthalten.

Für die Berechnung des Leistungsverlaufs in Lösungen, des häufigsten Unfalltyps, wurden weitere verbesserte Rechenmodelle entwickelt, mit deren Hilfe auch der Leistungsverlauf von Exkursionen nach dem ersten Maximum berechnet werden kann [10.25]–[10.27]. Die Übereinstimmung mit gemessenen Leistungsverläufen aus den CRAC-Ex-

perimenten ist bei hinreichender Kenntnis der Wärmeabfuhr aus dem System gut. Für heterogene Stabgitter-Moderator-Systeme wurde in Großbritannien ein speziell für Transportbehälter ausgerichtetes Rechenprogramm entwickelt [10.28].

10.7 Auswirkungen eines Kritikalitätsunfalls

Ein Kritikalitätsunfall äußert sich in radiologischen, thermischen und mechanischen Wirkungen. Pro Spaltung wird etwa ein Energiebetrag von etwa 200 MeV frei, was $2 \cdot 10^8$ eV bzw. $0,32 \cdot 10^{-10}$ Ws entspricht. Eine Kritikalitätsexkursion mit 10^{18} Spaltungen liefert somit eine Energie von 32 MWs, die ca. 9 kWh entspricht. Obwohl diese Energiemenge relativ klein ist, kann die Leistung im ersten Maximum wegen der kurzen Reaktionszeiten sehr hoch werden.

Für schnellkritische Systeme wird vor allem für Kritikalitätsexkursionen in metallischen Spaltstoffen die Energiefreisetzung und Leistung mit der des Sprengstoffs TNT verglichen (6,3 kg TNT setzen etwa die gleiche Energie wie 10^{18} Spaltungen frei). Wegen der gänzlich verschiedenen Reaktionszeit in Lösungen und den in der Kerntechnik üblichen sonstigen Spaltstoffsystemen ist jedoch ein Vergleich kritischer Unfälle mit Sprengstoffexplosionen konventioneller oder nuklearer Art abwegig.

Die pro Spaltung freigesetzte Energie von ≈ 200 MeV teilt sich in etwa wie in Tab. 10.3 beschrieben auf. Für die Wirkung auf die Umgebung eines kritisch gewordenen Systems stehen die radiologischen Wirksamkeiten der emittierten Neutronen- und Gammastrahlung im Vordergrund. Außerdem kann die durch Verdampfungsvorgänge oder durch Zerstörung des Systems ausgelöste Freisetzung radioaktiver Spaltprodukte und Spaltstoffe in die Umgebung von Bedeutung sein. Die mechanische Wirkung ist meist klein, da sich bei Kritikalitätsexkursionen typischerweise weniger als 1 % der Energie in mechanischer Wirkung äußert (Kap. 10.6.3).

Tab. 10.3 Verteilung der pro Spaltung freigesetzten Energie

Freisetzungsart	Emittierte Energie (MeV) ($\Sigma = 207 \text{ MeV}$)	Wirkung auf das Spaltstoffsystem
Spaltprodukte	168	Umwandlung in Wärme
Zerfall der Spaltprodukte, β -Strahlen	8	Umwandlung in Wärme
γ -Strahlen	7	Verlassen des Systems
Antineutrinos	12	Verlassen des Systems
Prompte γ -Strahlen	7	Verlassen des Systems
Neutronen	5	Verlassen des Systems, weitere Spaltungen

10.7.1 Emission von Neutronen

Die Anzahl $\bar{\nu}$ der pro Spaltung entstehenden Neutronen hängt von der Art des Spaltnuklids und der Energie des spaltenden Neutrons ab. Werte für $\bar{\nu}$ und thermische Spaltung sind in Tab. 1.1 enthalten. Für schnelle Neutronen liegen die Werte für $\bar{\nu}$ etwas höher, z. B. $\bar{\nu} = 2,47$ für ^{235}U und $\bar{\nu} = 2,91$ für ^{239}Pu . Die Energieverteilung der emittierten prompten Neutronen lässt sich gut durch die Beziehung nach [10.29]

$$\chi(E) = 0,453 e^{-1,036E} \cdot \sinh\sqrt{2,29E} \quad (10.13)$$

beschreiben, wobei E die Energie bedeutet und $\chi(E)$ nach $\int_0^\infty \chi(E)dE = 1$ normiert ist. Die Werte von χ in den einzelnen Energiebereichen sind für ^{235}U und ^{239}Pu recht ähnlich. Abb. 10.7 stellt $\chi(E)$ graphisch dar. Das Maximum für $\chi(E)$ liegt bei 0,73 MeV, die mittlere Energie für prompte Neutronen beträgt 1,98 MeV. Der Anteil der verzögert emittierten Neutronen ist mit etwa 0,65 % sehr gering, die Energie liegt im wesentlichen bei 450 keV. Die Energieverteilung der Spaltneutronen, wie sie in Abb. 10.7 dargestellt ist, stimmt allerdings nur für unmoderierte, z. B. metallische Systeme annähernd mit der Energieverteilung der aus dem System emittierten Neutronen überein. Für eine genauere Berechnung der Neutronenausbreitung ist daher eine vorhergehende Spektrumsberechnung der Leckageneutronen nötig. Bei Verwendung des Spaltspektrums wird die Neutronendosis für Lösungssysteme etwas überschätzt, um ca. 20–30 % nach [10.30]. Der Einfluss der Geometrie des Systems auf das Spektrum der Leckageneutronen ist gering.

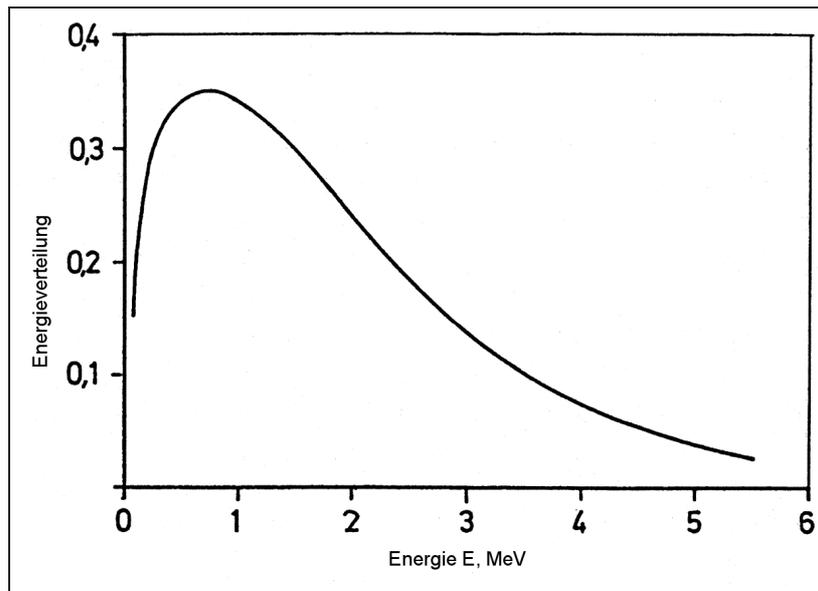


Abb. 10.7 Energieverteilung der prompten Neutronen

Der aus dem System austretende Neutronenstrom $J_N(E, r)$ kann berechnet werden nach:

$$J_N(E, r) = \frac{\nu \cdot \chi(E) \cdot F}{4\pi r^2} \cdot l(E) \cdot e^{-\Sigma_R(E)r} \quad (10.14)$$

Dabei bedeuten: r Abstand von der Quelle, $\bar{\nu}$ Anzahl der Neutronen bei der Spaltung ($\bar{\nu}$ nur schwach energieabhängig), $\chi(E)$ Normierungsfunktion für das Energiespektrum der Leckageneutronen (konservativ für Näherungen: Spaltspektrum), F Anzahl der Spaltungen, $l(E)$ Anteil der aus dem System austretenden Neutronen, $\Sigma_R(E)$ Ausscheidequerschnitt der im Strahlengang befindlichen Materie, unter Berücksichtigung der Neutronenstreuung zwischen den Energiegruppen, bzw. unter Einbeziehung eines Aufbaufaktors $B(E, r)$. In Gl. (10.14) wird von einem Punktquellenmodell ausgegangen. Sie gilt nur unter der Annahme, dass sich die Teilchen vom Quellpunkt ausgehend streng geradlinig bewegen und dass jede Wechselwirkung mit der umgebenden Materie zum Verlust des Teilchens führt [10.38].

Zur genaueren Berechnung des Neutronentransports sind Computerprogramme nach der S_N -, der Momenten- oder Monte Carlo-Methode erforderlich. Die Ausbreitungs- und Abschirmberechnungen unter Verwendung von Ausscheidequerschnitten sind lediglich Näherungen, zumal die Bedingungen, unter denen die meisten Ausscheidequerschnitte definiert sind, bei einem Kritikalitätsunfall nicht erfüllt sind. Diesbezüglich wird auch auf die einschlägige Literatur zur Neutronenabschirmung, z. B. [10.31], [10.32], verwiesen.

Aus Gl. (10.14) lässt sich die Neutronen-Strahlungsdosis D_N in Abhängigkeit von der Energie E und dem Abstand r von der Quelle bestimmen:

$$D_N(E, r) = J_N(E, r) \cdot g(E) \cdot R(E) \quad (10.15)$$

$g(E)$ bezeichnet die Energiefreisetzung im Gewebe, bezogen auf die Einheit des pro cm^2 auftreffenden Neutronenstroms in $\text{rd}/(\text{n cm}^2)$, $R(E)$ bedeutet den bezogen auf Gammastrahlung ($R = 1$) radiobiologischen Qualitätsfaktor (der streng genommen nicht für Unfälle definiert und außerdem dosisabhängig ist).

Anmerkung: Seit 01.01.1978, im medizinischen Bereich seit 01.01.1986, ist das Rad („rd“) außer in den USA keine zulässige Einheit der Energiedosis mehr. Die heute in Deutschland gültige Einheit ist das von den SI-Einheiten Joule und Kilogramm abgeleitete Gray („Gy“). Es gilt die Beziehung $1 \text{ rd} = 0,01 \text{ Gy} = 0,01 \text{ J/kg}$.

Für Kritikalitätsunfälle in Lösungen sind typische Werte für g und R in Eingruppendarstellung nach [10.32]: $g = 2,5 \cdot 10^{-9} \text{ rd}/(\text{n cm}^2)$ und $R = 8,3$. Ein Beispiel in 6-Energiegruppen-darstellung zeigt Tab. 10.4.

Tab. 10.4 Energiegruppeneinteilung, Spaltspektrumsanteile, Fluenz-Konversionsfaktoren und radiobiologischer Qualitätsfaktor

Gruppe Nr.	Energiegrenzen, MeV	Spalt- spektrums- anteil χ	Fluenz- Konversions- faktor g , $\text{rd}/(\text{n cm}^2)$	Radiobio- logischer Qualitäts- faktor
1	15 – 2,87	0,2276	$4,0 \cdot 10^{-9}$	7,0
2	2,87 – 1,35	0,3455	$3,0 \cdot 10^{-9}$	9,0
3	1,35 – 0,821	0,1805	$2,0 \cdot 10^{-9}$	10,5
4	0,821 – 0,388	0,1522	$1,7 \cdot 10^{-9}$	10,0
5	0,388 – 0,111	0,0786	$1,0 \cdot 10^{-9}$	8,0
6	0,111 – 0	0,0156	$0,3 \cdot 10^{-9}$	5,0

Begnügt man sich mit einer Eingruppenabschätzung, so kann man folgende Näherungen in Gl. (10.14) einsetzen: $\chi(E) = 1,0$; $l(E) \sim 0,35$; $\Sigma_R(\text{Luft}) = 5,7 \cdot 10^{-5} \text{ cm}^{-1}$. Für kleinere Abstände wird dabei der Aufbaufaktor in Luft zu $B = 1$ gesetzt.

Eine genauere Transportrechnung für die Neutronenstrahlung in Luft wird sowohl den Dosisaufbau durch Neutronenstreuung in Luft sowie die Wechselwirkung der Strahlung mit dem Erdboden berücksichtigen, wobei auch die durch Neutroneneinfang hervorgerufene Gamma-Sekundärstrahlung einbezogen werden muss [10.32].

Abb. 10.8 zeigt als Anhaltswert die nach einem einfachen Modell berechnete Neutronendosis D_N für einen typischen Kritikalitätsunfall (10^{18} Spaltungen). Wegen ihrer spontanen Freisetzung, ihres Durchdringungsvermögens und der hohen biologischen Wirksamkeit stellt die Neutronenstrahlung zusammen mit der prompten Gammastrahlung die dominante Gefährdung bei Kritikalitätsunfällen dar.

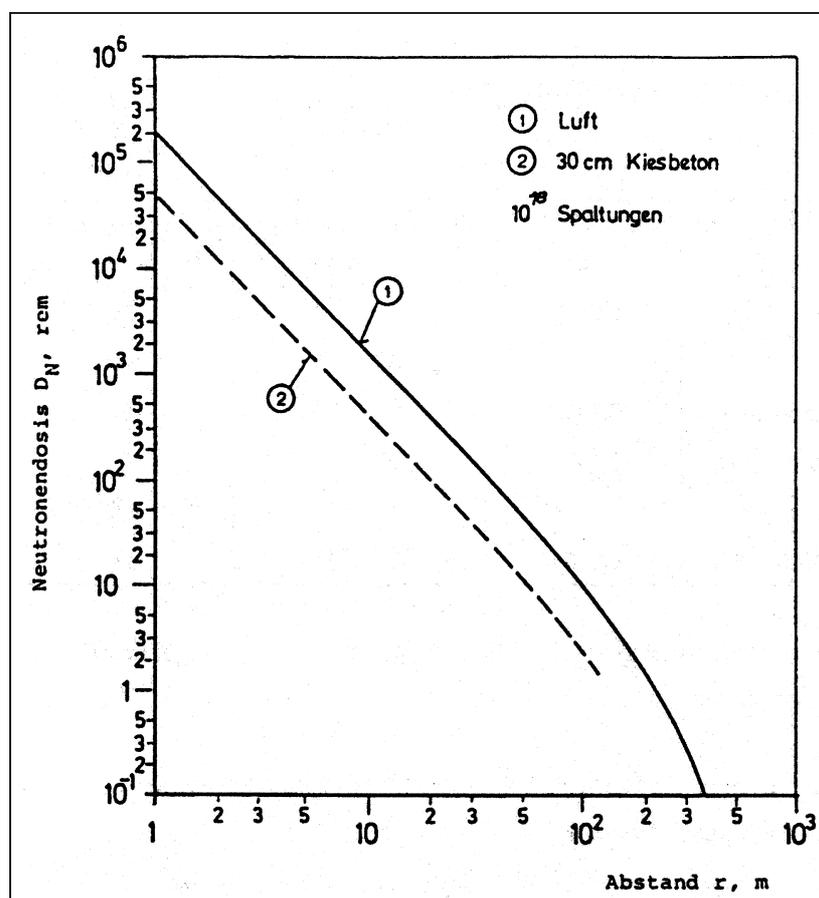


Abb. 10.8 Neutronendosis D_N als Funktion des Abstands r vom Unfallort bei 10^{18} Spaltungen

Bei den bisher aufgetretenen Kritikalitätsunfällen – die ehemalige Sowjetunion ausgenommen – erlitten sieben Personen tödliche Bestrahlungen. Drei Personen wurden bei der durch Kritikalität im SL-1-Reaktor [10.6], [10.39] ausgelösten Dampfexplosion getötet [10.6]. Vierzig Personen wurden mit nicht-letalen Dosen über 50 mSv bestrahlt. Alle

bei Kritikalitätsunfällen bestrahlten Personen hielten sich im Nahbereich des Ortes der Kritikalität auf. Vom Unfallort fällt die Dosis der Direktstrahlung (Neutronen- und Gammastrahlung) rasch mit dem Quadrat des Abstandes ab. Daraus wird deutlich, dass eine sofortige Entfernung vom Unfallort, zumindest bei länger andauernden Exkursionen, von großer Bedeutung ist.

10.7.2 Emission von Gammastrahlung

Gammastrahlung wird bei der Kernspaltung und somit bei Kritikalitätsunfällen als prompte Gammastrahlung, Spaltprodukt-Gammastrahlung sowie Einfang-Gammastrahlung (n, γ) ausgesandt. Als prompte Gammastrahlung werden pro Spaltung etwa 7,8 MeV freigesetzt. Diese Strahlung wird unmittelbar bei der Spaltung frei. Die Spaltprodukt-Gammastrahlung tritt verzögert auf, für den Gleichgewichtszustand ergibt sich eine Freisetzung von etwa 7,2 MeV pro Spaltung. Für die Energieverteilung der prompten und Spaltprodukt-Gammastrahlung wird auf [10.32] und [10.34] verwiesen. Eine für praktische Berechnungen geeignete Spektrumsdarstellung aus [10.34] ist in Tab. 10.5 wiedergegeben.

Durch den Neutroneneinfang und die Neutronenstreuung tritt sowohl im Spaltstoffsystem selbst als auch in den Materialien im Strahlengang der Neutronenausbreitung, also in Behälterwandungen und Abschirmungen, ebenso in Luft, eine Sekundär-Gammastrahlung auf. Die Energieverteilung dieser Sekundärstrahlung hängt stark von den vorhandenen Materialien ab. Für die wichtigsten Einfangnuklide, z. B. Wasserstoff, sind die zugehörigen Energien der Einfang-Gammastrahlung z. B. in [10.31] tabelliert. Diese Einfang-Gammastrahlung spielt besonders für langsame Neutronen unter 20 keV eine Rolle und kann in der Nähe dicker Abschirmungen wichtig werden.

Ähnlich wie bei der Neutronenstrahlung kann eine genaue Berechnung der Gammastrahlung nur mit Rechenprogrammen in Vielgruppendarstellung erfolgen. Zur korrekten Abschätzung der (n, γ)-Beiträge ist eine simultane Neutronen- und Gammaberechnung erforderlich. Geeignete Rechenprogramme sind vor allem S_N -Codes. Für die Berechnung der Gammastrahlung allein können nach [10.35], [10.36] auch einfache Abschätzungen nach der Ausscheidungsmethode mit Hilfe von Aufbau faktoren durchgeführt werden.

Tab. 10.5 Freisetzung prompter und Spaltprodukt-Gammastrahlung (Gleichgewichtsverteilung) pro Spaltung (^{235}U), Energie E und Photonen P

Energie E MeV	Prompte Gammastrahlung		Spaltprodukt-Gammastrahlung	
	$E/\text{Spaltung}$	$P/\text{Spaltung}$	$E/\text{Spaltung}$	$P/\text{Spaltung}$
1,0	3,45	3,45	4,52	4,52
2,0	2,36	1,18	1,70	0,85
3,0	1,175	0,3917	0,99	0,33
4,0	0,477	0,1193	0,0	0,0
5,0	0,203	0,0406	0,0	0,0
6,0	0,162	0,0270	0,0	0,0

Nach [10.37] können prompte Neutronen- und Gammastrahlung als Folge von Kritikalitätsunfällen mit einfachen Beziehungen berechnet werden:

Dosis der unabgeschirmten prompten Neutronenstrahlung D_N in Sv (1 Sv = 100 rem):

$$D_N = 7 \cdot 10^{-22} \cdot \frac{N}{d^2} \cdot e^{-5,2d} \quad (10.16)$$

Dosis der unabgeschirmten prompten Gammastrahlung D_γ in Sv:

$$D_\gamma = 2,1 \cdot 10^{-22} \cdot \frac{N}{d^2} \cdot e^{-3,4d} \quad (10.17)$$

mit N Anzahl der Spaltungen, und d Abstand von der Quelle in km.

Für abgeschirmte kritische Systeme sind in [10.37] angenäherte Schwächungsfaktoren für Beton verschiedener Dicke angegeben. Mit 120-Gruppen-Rechnungen wurden Neutronen- und Gammastrahlung für ein hoch und ein niedrig angereichertes kritisches System mit Uranlösung in [10.38] berechnet und daraus einfache Dosisabschätzungen für ähnliche Systeme abgeleitet. Dabei wird die Abschirmwirkung von Beton bis zu einer Dicke von 100 cm berücksichtigt.

10.7.3 Freisetzung von radioaktiven Spaltprodukten

Während der Kritikalitätsexkursion entstehen kurz- und langlebige radioaktive Nuklide, die durch die Exkursion selbst oder deren Folgeprozesse in die Umgebung freigesetzt

werden können. Die Freisetzung und Ausbreitung dieser radioaktiven Zerfallsprodukte führt in der Umgebung der Anlage zu einer Strahlenexposition, vor allem infolge Inhalation und Direktstrahlung aus der Abluffahne.

Die Freisetzung der Spaltprodukte kann dabei spontan, etwa durch Gas- und Dampfbildung und durch Behälterzerstörung, oder verzögert bei langdauernden Verdampfungsprozessen erfolgen. Folgenden Spaltproduktgruppen kommt hinsichtlich der Bewertung der auftretenden Strahlenexposition eine besondere Bedeutung zu:

- Halogene, insbesondere radioaktive Jod-Isotope als Dosisbelastung der Schilddrüse,
- Edelgase und Halogene als Haut- und Ganzkörperexposition, und
- Aerosole und Spaltstoffpartikel als Exposition von Lunge, Knochen oder Leber.

Bei den Dosisberechnungen müssen – im Gegensatz zu vielen Berechnungen der Abluffemission von Kernkraftwerken – viele relativ kurzlebige Halogen- und Edelgasisotope unter Berücksichtigung ihres Zerfalls während der Ausbreitung betrachtet werden. Wichtige Dosisbeiträge liefern vor allem die Isotope ^{133}I , ^{135}I , ^{87}Kr , ^{88}Kr , ^{89}Kr , ^{137}Xe und ^{138}Xe . Bezüglich der Spaltstoffe kann eine mögliche Plutoniumfreisetzung von Bedeutung sein.

Die während der Kritikalitätsexkursion entstehenden Spaltprodukte können aus den Spaltausbeuten mit Abbrandrechenprogrammen bestimmt werden. Dabei spielt bei den sehr kurzlebigen Halogenen und Edelgasen die zeitliche Verteilung der Spaltungen sowie die Laufzeit der freigesetzten Radionuklide im Abgas- oder Abluftsystem eine beachtliche Rolle.

Anhaltswerte für eine modellmäßige Zeitskala sind für die wichtigsten Halogene und Edelgase in [10.37] zu finden. Sind auch vor der Exkursion im System bereits Spaltprodukte vorhanden, so kann ihr Beitrag zur Freisetzung von radioaktiven Aerosolen bei längerlebigen Nukliden wesentlich sein.

Die Anteile an Radionukliden, die bei der Exkursion aus dem System in die Abgas- oder Abluftstrecken freigesetzt werden (primäre Freisetzungsbrechteile) hängen bei Lösungen entscheidend davon ab, ob der Siedezustand erreicht wird oder nicht. Wird Sieden erreicht, können folgende primäre Freisetzungsbrechteile als konservative Abschätzung verwendet werden [10.37]:

- Halogene 0,25,
- Edelgase 1,0,
- Ruthen 0,001.

Für die Aerosolfreisetzung von Spaltprodukten und Spaltstoffen wird in [10.37] von einem primären Freisetzungbruchteil von $5 \cdot 10^{-4}$, bezogen auf den Salzgehalt der verdampften Lösung, ausgegangen. Die Rückhaltung der primär freigesetzten Radionuklide in den Abgas- und Abluftsystemen oder Räumen muss den Gegebenheiten entsprechend analysiert werden.

Neben der Freisetzung der Radionuklide sind die Freisetzungshöhe über Gebäudeniveau und die meteorologischen Ausbreitungsbedingungen (Wetterlage, Windgeschwindigkeit) wichtig. Für die Bestimmung der Dosisbelastung spielen die Dosisfaktoren für die einzelnen Nuklide, in denen sich neben physikalischen Einflüssen biologische Daten (z. B. Lebensalter, Verteilung des Radionuklids innerhalb des Körpers, Verweilzeit im Organ, Löslichkeit) widerspiegeln, eine wichtige Rolle. Auf diese Fragen und die Berechnung der meteorologischen Ausbreitungsfaktoren soll hier nicht näher eingegangen werden.

In allen Fällen werden die Inhalationsdosen und Submersionsdosen zu berechnen sein. Die Ingestionsdosis durch radioaktives Jod kann wesentlich über der durch Inhalation verursachten Dosis liegen. Es ist jedoch zu erwarten, dass nach dem Eintreten eines größeren Kritikalitätsunfalls Nahrungsmittel aus der Unfallumgebung nicht unkontrolliert aufgenommen werden.

10.7.4 Rechenprogramme zur Berechnung der radiologischen Wirkung von Kritikalitätsexkursionen

Für den Transport von Neutronen- bzw. γ -Strahlung können die Rechenprogramme für Reaktorabschirmberechnungen herangezogen werden. Als Beispiele werden genannt: MERCURE, SABINE, ATTOW (Ausscheidungs-Diffusionstheorie), ANISN, DTF-4 (1-dim. S_N -Rechnung), DOT, TWOTRAN (2-dimensionale S_N -Rechnung), MORSE, MCNP (Monte Carlo-Programme), MAVRIC/MONACO. Die Ermittlung der radioaktiven Spaltprodukte kann z. B. mit ORIGEN erfolgen.

10.8 Vorsorge- und Schutzmaßnahmen

Schon beim Bau einer Anlage sollte die Auslegung so erfolgen, dass die Wirkungen eines unterstellten Kritikalitätsunfalls möglichst gering bleiben und Maßnahmen zur Beendigung eines kritischen Ereignisses ohne Gefährdung des Personals getroffen werden können. Dazu gehören folgende Überlegungen:

- Das Volumen aller Behälter sollte den praktischen Erfordernissen entsprechend nicht überdimensioniert werden.
- Übergänge zu Behältern ohne sichere Geometrie oder unter verändertem Kritikalitätssicherheitskonzept sind besonders abzusichern (Sicherheitsprinzip bei Störfällen).
- Absperrventile für den Zulauf, sowie fernbedienbare Spül- oder Entleerungsleitungen können ein gefahrloses Stoppen einer Kritikalitätsexkursion ermöglichen.
- In manchen Fällen können Vorkehrungen oder Einspeisemöglichkeiten dazu genutzt werden, Neutronenabsorber einzubringen.
- Entsprechende Warnsysteme, in besonders gefährdeten Zonen das Tragen von mobilen Strahlungswarngeräten, deutlich markierte, kurze Fluchtwege sowie ggf. rasche Flucht sind wichtige Sicherheitsmaßnahmen.
- Hilfs- und Rettungsmaßnahmen sind regelmäßig zu proben und im Hinblick auf Verbesserungsbedarf und -potential auszuwerten.

10.9 Literatur zu Kapitel 10

- [10.1] W. R. Stratton, D. R. Smith: A Review of Criticality Accidents, DOE/NCT-04, March 1989.
- [10.2] V. V. Frolov et al.: A Review of Criticality Accidents which occurred in the Russian Industry. Proc. of the Fifth Intern. Conf. on Nucl. Crit. Safety, Albuquerque, New Mexico, USA, Sept. 17-21, 1995.
- [10.3] T. G. Hughes: Criticality Incident at Windscale. Nucl. Engineering Internat., p. 95–97, February 1972.
- [10.4] ICPP Nuclear Safety Staff: ICPP Criticality Event of October 17, 1978, Nuclear Safety, Vol. 21, No. 5, p. 648–653, Sept./Oct. 1980.
- [10.5] J. Pahissa-Campa, D. Beninson: RA-2 Criticality Accident. Trans. ANS. Vol. 46, p. 460, June 1984.
- [10.6] T. P. McLaughlin, V. V. Frolov et al.: A Review of Criticality Accidents, LA-13638, May 2000.
- [10.6a] IAEA, The Criticality Accident in Sarov, Vienna, STI/PUB/1106, February 2001.
- [10.6b] P. Lécorché, R. L. Seale: A Review of the Experiments Performed to Determine the Radiological Consequences of a Criticality Accident. Y-CDC-12, November 1973.
- [10.7] ANSI N287: Criteria for the Design of Plants for the Manufacture of Mixed Oxide (U-Pu) Fuels, December 30, 1976.
- [10.8] J. M. Selby et al.: Considerations in the Assessment of the Consequences of Effluents from Mixed Oxide Fuels Fabrication Plants. BNWL-1697, 1. Rev. June 1975.
- [10.9] R. Fullerwood, R. Jackson: ORNL/TM-6986, March 1980.
- [10.10] Projekt Sicherheitsstudien Entsorgung, Abschlussbericht. Fachband 2, Januar 1985.
- [10.11] H. C. Paxton: Criticality Control in Operations with Fissile Material. LA-3366, 1972.

- [10.12] R. L. Seale: Nuclear Criticality Safety, Part 3: Consequences of Criticality Accidents. TID-26286, 1974.
- [10.13] M. S. Dunenfeld, P. K. Stitt: Summary Review of the Kinetics Experiments on Water Boilers. NAA-SR-7087, February 1963.
- [10.14] S. G. Forbes et al.: Analysis of Self-Shutdown Behaviour in the SPERT I-Reaktor. IDO-16528. December 1958.
- [10.15] F. Barbry: Les études d'accidents de criticité en solution réalisées dans le réactor SILENE: Phénoménologie, conséquences, exercices d'intervention. Valduc, Sept. 1983.
- [10.16] A. R. Olsen et al.: Empirical Model to Estimate Energy Release from Accidental Criticality. Trans. ANS, Vol. 19, p. 189–91, Oct. 1974.
- [10.17] G. Tuck: Simplified Methods of Estimating the Results of Accidental Solution Excursions. Nucl. Techn. Vol. 23, p. 177–188, August 1974.
- [10.18] R. Agaisse, F. Barbry et al.: Le programme CRAC. Études d'accidents de criticité en solution. Département de Sûreté Nucléaire. SEC, No. 172, Juillet-Août 1972.
- [10.19a] R. E. Malenfant, H. M. Forehand, jr.: Simulation of Process Plant Accidents. Trans. Am. Nucl. Soc., Vol. 43, p. 405, November 1982.
- [10.19b] R. E. Malenfant, H. M. Forehand, and J. J. Koelling: Sheba: A Solution Critical Assembly. Trans. Amer. Nucl. Sec. 35 p. 279, (1980).
- [10.20] L. R. Blue, M. Hoffmann: AIREK-III, Generalized Program for the Numerical Solution of Space Independent Reactor Kinetics Equation. ATMD-131, January 1963.
- [10.21] J. C. Vigil: Solution of the Reactor Kinetics Equations by Analytical Continuation. Nucl. Sci. and Eng., 29, p. 392, 1967.
- [10.22] D. M. Petersen et al.: PAD – A One-Dimensional, Coupled Neutronic-Thermodynamic-Hydrodynamic Computer Code. LA-6540-MS, December 1976.
- [10.23] H. M. Forehand, jr.: Analytical Studies of Criticality Accidents in Aqueous Solutions. Trans Am. Nucl. Soc., 19, p. 191 – 3, October 1974.

- [10.24] R. Warnemünde: Exkursionen in Spaltstofflösungen durch sprungförmige Reaktivitätszufuhr. MRR-162, August 1976.
- [10.25] J. Weber, W. Denk: FELIX – Ein Computerprogramm zur Simulation von Kritikalitätsexkursionen wäßriger Spaltstofflösungen. GRS-A-936, Januar 1984.
- [10.26] T. Schulenburg, I. Döhler: Quasistationäres Modell zu Kritikalitätsexkursionen in wäßrigen Spaltstofflösungen. Jahrestagung Kerntechnik 1985, S. 291.
- [10.27] D. J. Mather, P. M. Shaw: Calculations of Criticality Excursions in Fissile Liquid Systems. Safety and Reliability Directorate, UKAEA, 1983.
- [10.28] P. M. Shaw: SARTEMP2 – A Computer Program to Calculate Power and Temperatures in a Transport Flask During a Criticality Accident. SRD-R-266, April 1983.
- [10.29] J. L. Lamarsh: Introduction to Nuclear Engineering. Addison-Wesley Publishing Comp., 1975.
- [10.30] J. R. Knight: Calculation of the Neutron Leakage Spectra and Neutron Doses from Bare Critical Systems. Nucl. Sci. and Eng. 11, p.239–245, 1961.
- [10.31] Reactor Handbook, Vol. III Part B, Shielding, 1962.
- [10.32] N. M. Schaeffer: Reactor Shielding for Nuclear Engineers, USAEC, TID-25951, 1973.
- [10.33] F. R. Nakache, M. M. Shapiro: The Nuclear Aspects of the Accidental Criticality at Wood River Junctions, Rhode Island, TID 21995, November 1964.
- [10.34] ANL: Reactor Physics Constants. ANL-5800, July 1963.
- [10.35] K. H. Lindackers: Praktische Durchführung von Abschirmberechnungen. Thiemig Verlag München, Taschenbuchreihe Bd. 3, 1962.
- [10.36] E. Schrüfer: Strahlung und Strahlenmesstechnik in Kernkraftwerken. Elitera-Verlag Berlin, 1974.
- [10.37] USNRC-Regulatory Guide 3.34: Assumptions Used for Evaluating the Potential Radiological Consequences of Accidental Nuclear Criticality in a Uranium Fuel Fabrication Plant. Revision 1, July 1979, sowie USNRC-Regulatory Guides 3.33 und 3.35 gleichlautend.

- [10.38] U. Hesse: Berechnung der Strahlenexposition bei Kritikalitätsstörfällen mit 120-Gruppen-Transportrechnungen. BMI-1984-028. Auch: GRS-A-882 Kap. 4, September 1983.
- [10.39] A. N. Tardiff, Some Aspects of the WTR and SL-1 Accidents. In Proc. Symp. Reactor Safety and Hazards Evaluation Techniques. vol. 1, International Atomic Energy Agency, Vienna, pp. 43-88, (1962).

11 Kritikalitätsalarmsysteme

11.1 Kritikalitätsalarmsysteme – Grundlagen

Kritikalitätsexkursionen äußern sich vor allem durch die Emission durchdringender Neutronen- und Gammastrahlung aus dem kritischen Spaltstoffsystem. Die zur Erkennung einer Kritikalität eingesetzten Alarmsysteme sprechen auf mindestens eine dieser Strahlungsarten an. Im Falle des Ansprechens der Alarmanlage erfolgt ein Alarm, der das Personal zu sofortiger Flucht veranlasst. Da die Strahlungsintensität mit dem Quadrat der Entfernung zur Strahlenquelle abnimmt, ist die sofortige Flucht vom Unfallort die wesentliche Sofortmaßnahme zur Reduzierung der Bestrahlung. Zwar erfolgt vor allem bei schnellkritischen Spaltstoffsystemen der erste Leistungsanstieg für eine Flucht zu rasch, jedoch kann eine Bestrahlung durch Folgeexkursionen oder länger dauernde Leistungsplateaus vermieden werden.

Nach DIN 25403 ist die Notwendigkeit einer Strahlenüberwachungsanlage zur Entdeckung eines Kritikalitätsstörfalls zu prüfen [11.1]. Konkrete Auslegungskriterien für Kritikalitätsalarmsysteme sind in [11.2]–[11.4] enthalten.

Kritikalitätsdetektions- und -alarmsysteme sollen nach [11.4] dort vorgesehen werden, wo sie zu einer Reduktion des Gesamtrisikos beitragen. Dabei sind Gefährdungen durch Fehlalarme zu berücksichtigen. Die Notwendigkeit für die Installation einer Kritikalitätsdetektions- und -alarmanlage ist in den Bereichen zu prüfen, die mehr als 700 g ^{235}U , 520 g ^{233}U , 450 g thermisch spaltbares Plutonium oder 450 g einer Kombination dieser Nuklide enthalten. Diese Werte gelten für Wasser als Moderator; bei stärkeren Moderatoren oder Reflektoren als Wasser sind bereits bei kleineren Spaltstoffmassen entsprechende Betrachtungen anzustellen.

Für die Detektion kommen Detektoren in Frage, die auf Gammastrahlung oder auf Neutronen ansprechen. In Bereichen hoher Gamma-Ortsdosisleistung als Untergrundstrahlung sind auf Neutronen ansprechende Geräte vorteilhaft. Als Ansprechkriterium für die Detektoren gilt in Bereichen ohne starke Abschirmung, dass eine von einer Exkursion ausgelöste Neutronen- und Gammagesamtdosis in Luft von 0,2 Gy (20 rd) in einer Minute in 2 m Entfernung vom Exkursionsort durch den Detektor erkannt werden muss [11.4]. Als kürzeste Dauer einer Exkursion wird für die Auslegung der Detektoren 1 ms zugrundegelegt.

Da je nach Spaltstoffsystem und Exkursionstyp die Anteile der Neutronen- und Gamma-dosis an der Gesamtdosis erheblich schwanken können, ist bei der Auslegung von jeweils nur auf Neutronen- oder Gammastrahlung ansprechenden Detektoren das bei den vorhandenen Spaltstoffsystemen ungünstigste Verhältnis der beiden Strahlungsarten anzunehmen. Einige Anhaltswerte für typische Spaltstoffsysteme enthält die nachfolgende Tab. 11.1. Weitere Daten sind aus Anhang C aus [11.4] ersichtlich. Bei unmoderierten Metallsystemen kann die Neutronendosis über 90 % der Gesamtdosis betragen.

Durch Beachtung des genannten Ansprechkriteriums von 0,2 Gy in 2 m Entfernung in 1 min werden im Normalfall alle Kritikalitätsexkursionen mit mehr als 10^{15} Spaltungen pro Minute erkannt. Sehr langsame Exkursionen dieser Größenordnung werden unter Umständen von dem in [11.4] spezifizierten Ansprechkriterium nicht erfasst. Allerdings sind derartige Ereignisse sehr unwahrscheinlich und bisher lediglich in Experimenten (SHEBA-Experimente [10.19a], [10.19b]) erzeugt worden.

Die räumliche Anordnung der Detektoren sollte so gewählt werden, dass keine massiven baulichen Abschirmungen oder Apparate die Detektion der Strahlung behindern.

Weitere wesentliche Punkte zur Auslegung und Aufrechterhaltung eines funktionstüchtigen Detektions- und Alarmsystems sind:

- Erhaltung der Funktionstüchtigkeit auch bei Strahlenfeldern hoher Intensität,
- Redundanz von Detektoren und Messleitungen unter Berücksichtigung des Störfallprinzips,
- Berücksichtigung der Wirkung von Abschirmungen bei der Festlegung von Ort und Anzahl der Detektoren,
- Minimierung von Fehlalarmen, Eindeutigkeit des Alarmsignals,
- Festlegung von Fluchtwegen und Sammelräumen,
- Regelmäßige Überprüfung der Funktionstüchtigkeit des Alarmsystems,
- Einübung von Verhaltensweisen im Alarmfall.

Detailliertere Empfehlungen und Anforderungen zu diesen Punkten sind in [11.3] und [11.4] niedergelegt.

Für besondere Fälle kann eine simultane Detektion der Neutronen- und Gammastrahlung von Vorteil sein [11.5], [11.6]. Ein speziell dafür konzipiertes Detektions- und Alarmsystem wurde z. B. bereits 1983 am Lawrence Livermore National Laboratory (LLNL) in den USA entwickelt [11.7].

Tab. 11.1 Anteile von Neutronen- bzw. Gammastrahlung an der Gesamtdosis (Entfernung vom Exkursionsort 2 m, ohne Reflektor)

Spaltstoffsystem	Geometrie	Anteil an der Gesamtdosis (rad)	
		Neutronen	Gamma
UO ₂ -H ₂ O, 3,5 % ²³⁵ U, 2,2 g U/cm ³	Kugel, r = 25,5 cm	0,21	0,79
Pu-Nitratlösung, 250 g Pu/l	Kugel, r = 15,4 cm	0,31	0,69
PuO ₂ , 3 % H ₂ O, 5 g Oxid/cm ³	Kugel, r = 15,7 cm	0,52	0,48

11.2 Literatur zu Kapitel 11

- [11.1] DIN 25403, Teil 1: Kritikalitätssicherheit bei der Verarbeitung und Handhabung von Kernbrennstoffen, Grundsätze (Juni 2007).
- [11.2] H. J. Delafield, J. J. Clifton: Design Criteria and Principles for Criticality Detection and Alarm Systems. SRD R 309, October 1984.
- [11.3] ANSI/ANS-8.3-1986: Criticality Accident Alarm System.
- [11.4] ISO-7753: Nuclear Energy – Performance and Testing Requirements for Criticality Detection and Alarm Systems. First edition, August 1987. DIN ISO 7753: Anforderungen an die Auslegung und Prüfung eines Kritikalitäts-Detektions- und Alarmsystems, Dezember 1991 (Deutsche Übersetzung von ISO-7753).
- [11.5] F. Barbry, J. Bousquet, R. Prigent, C. Renard: L'accident de criticité dans les installations de transformation de matières fissiles. Caractéristiques, détection, intervention. IAEA-SM-215/34, p. 473, 1977.
- [11.6] F. Barbry, R. Prigent: Caractéristiques de l'ensemble de détection français des accidents de criticité. CEA-Seminar on Criticality Studies, Programs and Needs. Dijon, 19 – 23, September 1983.
- [11.7] A. A. O'Dell, O. C. Kolar (LLNL): A New Criticality Alarm System. CEA-Seminar on Criticality Studies, Programs and Needs. Dijon, 19 – 23, September 1983.

12 Wichtige Konferenzen und Fachtagungen zur Kritikalitätssicherheit

- OECD Symposium on Criticality Control in Chemical and Metallurgical Plant, May 2-5, 1961, Karlsruhe, Deutschland
- IAEA Symposium on Criticality Control of Fissile Materials, November 1-5, 1965, Stockholm, Schweden
- National Topical Meeting on Nuclear Criticality Safety, December 13-15, 1966, Las Vegas NV, USA
- ANS National Topical Meeting on Nuclear Criticality Safety, April 8-10, 1980, El Paso TX, USA
- Critical Experiments Conference, February 1981, Los Alamos NM, USA
- International Seminar on Criticality Study Programs and Needs, September 19-22, 1983, Dijon, Frankreich
- Workshop on Subcriticality Reactivity Measurements, August 26-29, 1985, Albuquerque NM, USA
- ANS Topical Meeting on Nuclear Criticality Safety in the Storage of Fissile Material, September 8-11, 1985, Jackson WY, USA
- ISCS '87: International Seminar on Nuclear Criticality Safety, October 19-23, 1987, Tokyo, Japan
- International Topical Meeting on Safety Margins in Criticality Safety, November 26-30, 1989, San Francisco CA, USA
- 4th International Conference on Nuclear Criticality Safety, September 9-13, 1991, Oxford, Großbritannien
- Topical Meeting on Physics and Methods in Criticality Safety, September 19-23, 1993, Nashville TN, USA
- 5th International Conference on Nuclear Criticality Safety, September 17-21, 1995, Albuquerque NM, USA
- 6th International Conference on Nuclear Criticality Safety, September 20-24, 1999, Versailles, Frankreich

- ANS NCSD Topical Meeting: Practical Implementation of Nuclear Criticality Safety, November 11-15, 2001, Reno NV, USA
- 7th International Conference on Nuclear Criticality Safety, October 20-24, 2003, Tokai-mura, Japan
- ANS NCSD Topical Meeting: Integrating Criticality Safety into the Resurgence of Nuclear Power, September 18-22, 2005, Knoxville TN, USA
- 8th International Conference on Nuclear Criticality Safety, May 28-June 1, 2007, St. Petersburg, Russische Föderation
- ANS NCSD Topical Meeting: Realism, Robustness and the Nuclear Renaissance, September 13-17, 2009, Richland WA, USA
- OECD-NEA WPNCS Workshop on Future Criticality Safety Research Needs, September 21-22, 2009, Pocatello ID, USA
- 9th International Conference on Nuclear Criticality Safety, September 19-22, 2011, Edinburgh, Großbritannien
- ANS NCSD Topical Meeting: Criticality Safety in the Modern Era: Raising the Bar, Sep. 30-Oct. 3, 2013, Wilmington NC, USA
- OECD-NEA WGFCS International Workshop on Operational and Regulatory Aspects of Criticality Safety (ORACS), May 19-21, 2015, Albuquerque NM, USA
- 10th International Conference on Nuclear Criticality Safety, September 14-18, 2015, Charlotte NC, USA

13 Physikalische und chemische Eigenschaften von Spaltstoffen und ihren Verbindungen

13.1 Zusammenstellung relevanter Daten

Physikalische und chemische Eigenschaften von Spaltstoffen sind in den folgenden Tabellen 13.1, 13.2 und 13.3 zusammengefasst. Die Daten stammen aus [13.4] oder den jeweils angegebenen Quellen.

Tab. 13.1 Physikalische Eigenschaften von Uran und ausgewählten chemischen Verbindungen bei Raumtemperatur

Verbindung	Gewichtsanteil Uran	Farbe des Kristalls	Theoret. Dichte (g/cm ³)
Metallisches Uran	1,0	metallisch	18,9
UC	0,952	grauschwarz glänzend	13,63 [13.1]
UCl ₄	0,627	dunkelgrün	4,87
UCl ₆	0,528	dunkelgrün-schwarz	3,59
UF ₄	0,758	grün	6,70
UF ₆	0,676	fahlgelb	5,06
UH ₃	0,988	dunkelbraun	10,92
UO ₂	0,882	braunschwarz	10,96
U ₃ O ₈	0,849	olivgrün-schwarz	8,39
UO ₃	0,833	gelbrot	8,34
UO ₄ ·2H ₂ O	0,704	fahlgelb	4,66 [13.3]
UO ₂ (NO ₃) ₂	0,604	–	–
UO ₂ (NO ₃) ₂ ·6H ₂ O	0,474	gelb	2,807
UO ₂ SO ₄	0,650	grün	–
UO ₂ SO ₄ ·3H ₂ O	0,567	gelbgrün	3,88 [13.3]
2UO ₂ SO ₄ ·7H ₂ O	0,555	gelb	–
UO ₂ F ₂	0,772	weiß	6,37
(NH ₄) ₂ U ₂ O ₇ (ADU)	0,763	–	3,96 [13.2]
(NH ₄) ₄ UO ₂ (CO ₃) ₃ (AUC)	0,456	gelb	2,77 [13.2]

Die Angaben zu Zusammensetzung und Dichte von ADU sind in der Literatur nicht einheitlich. Das japanische Kritikalitätshandbuch [13.8] legt für das dort so genannte ADU(II) die Summenformel 3UO₃·NH₃·5H₂O und die Dichte 4,83 g/cm³ zugrunde.

Tab. 13.2 Physikalische Eigenschaften von Plutonium und ausgewählten chemischen Verbindungen bei Raumtemperatur

Verbindung	Schmelzpunkt °C	Farbe des Kristalls	Theoret. Dichte g/cm ³
Metallisches Pu	640	metallisch glänzend	19,6; 19,81 ¹
PuC	1654	hellgrau	13,6
Pu ₂ C ₃	2050	hellgrau	12,7
PuC ₂	2250	–	–
PuCl ₃	760	blaugrün	5,70
PuF ₃	1425	violett	9,32
PuF ₄	1037	fahlbraun	7,00
PuF ₆	51	rotbraun	–
PuH ₂	oxidiert bei ~ 150	grau, metallisch	10,40
PuH ₃	oxidiert bei ~ 150	schwarz	9,61
Pu(OH) ₄	oxidiert bei 70	grün	–
Pu(C ₂ O ₄) ₂	zersetzt sich bei 160	gelbgrün	4,50 [13.7]
Pu(C ₂ O ₄) ₂ ·2H ₂ O	zersetzt sich bei 100	gelbgrün	3,05 [13.2]
Pu(C ₂ O ₄) ₂ ·6H ₂ O	zersetzt sich bei 60	gelbgrün	2,69 [13.2]
Pu(C ₂ O ₄) ₃	zersetzt sich bei 260	–	–
Pu(C ₂ O ₄) ₃ ·9H ₂ O	zersetzt sich bei 110	purpurrot	–
Pu-Peroxid	–	grün	3,71
PuO ₂	2390	gelbgrün bis -schwarz	11,46
Pu ₂ O ₃	2085	grau bis schwarz	11,47 [13.7]
PuN	2584	braun bis schwarz	14,25 [13.7]
Pu(NO ₃) ₄	–	–	6,20 [13.7]
Pu(NO ₃) ₄ ·5H ₂ O	–	grün bis schwarz	2,90
PuO ₂ (NO ₃) ₂ ·6H ₂ O	zersetzt sich bei ~ 220	rosabraun	–
PuP	zersetzt sich bei 2000	–	9,87
PuPO ₄	zersetzt sich bei 1500	blau	7,55
PuPO ₄ ·0,5H ₂ O	–	violett	6,27 [13.3]
PuSi	1576	–	10,15
PuSi ₂	zersetzt sich bei 700	silberglänzend	9,12 [13.3]
Pu ₃ Si ₅	1646	–	8,96
Pu ₅ Si ₃	1377	–	11,98 [13.3]
PuS	zersetzt sich bei 700	goldbraun	10,6 [13.3]
Pu(SO ₄) ₂	zersetzt sich bei 650	rosa	–
(NH ₄) ₄ PuO ₂ (CO ₃) ₃	(AUC) –	–	2,77 ²

¹ Nur unter speziellen Bedingungen erreichbar

² Wert von AUC übernommen

Tab. 13.3 Schütt- und Rütteldichten für Plutoniumdioxid (PuO₂) je nach Herstellungsweise nach [13.5]

Ausgangsmaterial	Zersetzungstemperatur °C	Schüttdichte PuO ₂ g/cm ³	Rütteldichte PuO ₂ g/cm ³
Pu-Nitrat	240	1,7	2,1
	400	1,9	2,4
	600	1,7	1,8
	800	2,9	3,6
	1000	–	–
Pu-Peroxid	240	3,5	4,1
	400	3,8	4,3
	600	3,9	4,4
	800	4,5	4,8
	1000	4,9	5,8
Pu(IV)-Oxalat	240	1,0	1,4
	400	1,1	1,5
	600	1,2	1,5
	800	1,4	1,7
	1000	1,7	2,3
Pu-Hydroxid	240	2,9	3,2
	400	3,7	4,2
	600	3,5	4,0
	800	3,2	3,7
	1000	3,8	4,2
Pu-Metall		4,8	5,3

Bei den angegebenen Werten handelt es sich oftmals um die Ergebnisse von einzelnen oder wenigen Messungen. Die Daten können daher nur als Anhaltswerte dienen.

13.2 Literatur zu Kapitel 13

- [13.1] N. Ketzlach: Applications of Nuclear Safety Criteria to Plant Operations. SM 70/33, 1965.
- [13.2] Mitteilung der Fa. NUKEM, Hanau.
- [13.3] Mitteilung der Fa. ALKEM, Hanau.
- [13.4] J. W. Wachter: Y-12 Plant Nuclear Safety Handbook, V-1272, 1963.
- [13.5] Atlantic Richfield Hanford Company: Criticality Handbook, Vol. I-III, ARH-600, 1968.
- [13.6] Plutonium Handbook, Volume I, Herausgeber O. J. Wick, 1967.
- [13.7] L. E. Hansen, E. D. Clayton: Criticality of Plutonium Compounds in the Undermoderated Range, $H/Pu \leq 20$. BNWL-SA-983, 1966.
- [13.8] JAERI-Review 95-9013: Nuclear Criticality Safety Handbook (English Translation). *Compiled by* Nuclear Materials Regulation Division / Nuclear Science Bureau / Science and Technology Agency. *Translated by* Yoshitaka Naito and Hiroshi Okuno, Department of Fuel Cycle Safety Research, Tokai Research Establishment, JAERI, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken (Japan). Received August 8, 1995.

Abbildungsverzeichnis

Abb. 1.1	Infiniter Multiplikationsfaktor k_{∞} als Funktion der Moderation H/U und des Uran-Anreicherungsgrades in % ^{235}U	6
Abb. 1.2	Spaltquerschnitt σ_f für ^{235}U als Funktion der Energie	9
Abb. 1.3	Bestimmung der kritischen Masse aus der experimentell ermittelten inversen Multiplikation $1/M$ für drei Detektorpositionen	23
Abb. 1.4	Abhängigkeit der kritischen Masse vom Moderationsgrad bzw. von der Urankonzentration für eine Anreicherung von 93,5 %	25
Abb. 3.1	Schematische Darstellung des Versuchsaufbaus der MARACAS Experimente als Beispiel einer "split-table" Anordnung	50
Abb. 3.2	Schematische Darstellung des Versuchsaufbaus der STACY Experimente als Beispiel für Experimente mit Lösungen	51
Abb. 4.1	Energiespektrum von UO_2 -DWR-Brennstäben in H_2O als Beispiel für ein thermisches System	61
Abb. 4.2	Feingruppen-Näherung für ein Grobspektrum zur Wichtung thermalisierter Spaltstoffsysteme	62
Abb. 4.3	Datenfluss bei Kritikalitätsrechnungen mit Rechenprogrammen	65
Abb. 5.1	Energieabhängigkeit der totalen Neutronenabsorptionsquerschnitte für die Isotope Cadmium ^{113}Cd und Bor ^{10}B	82
Abb. 5.2	Neutronenflussverlauf in einem Wasserreflektor	93
Abb. 5.3	Anstieg des Multiplikationsfaktors k_{eff} bei Ausfällung eines Bodensatzes höherer Spaltstoffkonzentration	99
Abb. 6.1	Zulässige Raumwinkel als Funktion des Multiplikationsfaktors	123
Abb. 6.2	Darstellung der Koordinaten und Längen für eine Flusswichtung über eine Anordnung	125
Abb. 6.3	Wahrscheinlichkeitsverteilung der Energie eines Spaltneutrons	131

Abb. 6.4	Beispiel eines Boxaufbaus in der Geometriedarstellung eines Monte Carlo-Verfahrens	137
Abb. 6.5	Spaltstoffanordnung mit Zwischenmoderator und äußerem Reflektor	138
Abb. 6.6	Mit dem GEC-Modell darstellbare Rohrverschneidungen.....	142
Abb. 6.7	Kritischer Durchmesser d_k und Höhe h_k für ^{239}Pu -Nitrat in Zylindergeometrie	143
Abb. 6.8	Definition von Abschnitt und Quadrant.....	145
Abb. 6.9	Verschneidungsfläche zwischen Haupt- und Nebenrohr	145
Abb. 6.10	Multiplikationsfaktor k_{eff} einer LWR-Brennelementanordnung als Funktion der Dichte ρ des Zwischenmoderators H_2O	147
Abb. 10.1	Aufteilung der bekannt gewordenen Kritikalitätsunfälle im Zeitraum von 1945-1999	175
Abb. 10.2	Relation zwischen der Anzahl der Unfälle zu aufgetretener Gesamtzahl der Spaltungen	176
Abb. 10.3	Typische zeitliche Verläufe der Leistungs- und Energiedichte bei einer kritischen Exkursion	179
Abb. 10.4	Zunahme der Spaltzahl im 1. Maximum bei Lösungsexkursionen als Funktion des Lösungsvolumens zur Zeit des Maximums	181
Abb. 10.5	Zusammenhang der spezifischen Spaltrate im 1. Maximum mit der inversen Anfangsperiode (CRAC-Experimente)	182
Abb. 10.6	Spaltzahl im Plateau als Funktion der Dauer des Plateaus.....	185
Abb. 10.7	Energieverteilung der prompten Neutronen	190
Abb. 10.8	Neutronendosis D_N als Funktion des Abstands r vom Unfallort bei 10^{18} Spaltungen	192

Tabellenverzeichnis

Tab. 1.1	Thermische Absorptions- und Spaltquerschnitte wichtiger Aktinoide	4
Tab. 1.2	Beispiele zur Darstellung des Heterogenitätsbegriffs	11
Tab. 1.3	Geometrische Flusswölbung B_g^2 für wichtige Geometrien	15
Tab. 2.5	Empfohlene Sicherheitsfaktoren für homogene Einzelsysteme	35
Tab. 2.6	Empfohlene Sicherheitsfaktoren für heterogene Einzelsysteme	35
Tab. 5.1	Thermische Absorptionsquerschnitte σ_a wichtiger Neutronenabsorber ...	84
Tab. 5.2	Eigenschaften wichtiger Absorbermaterialien	85
Tab. 5.3	Größte zulässige Spaltstoffkonzentration bei Vergiftung mit Glasborraschigringen	91
Tab. 5.4	Kleinste kritische Massen bei homogener und inhomogener Verteilung des Spaltstoffs in Wasser (Goertzelverteilung)	98
Tab. 6.1	Ausgewählte Experimente zur Neutronenwechselwirkung: Spaltstofflösungen	106
Tab. 6.2	Ausgewählte Experimente zur Neutronenwechselwirkung: Metalle	107
Tab. 6.3	Reflexionskorrekturfaktoren r für einen dicken Wasserreflektor	110
Tab. 6.4	Maximal zulässige Werte für den kritischen Bruch und die Spaltstoffflächenbelegung	116
Tab. 6.5	Bestimmung der Flussgewichte bei Anwendung der erweiterten Raumwinkelmethode	124
Tab. 6.6	Maximal zulässige Werte des effektiven Zylinderinnendurchmessers für Spaltstofflösungen mit $H/X \geq 20$	141
Tab. 6.7	Maximale Gesamtverschneidungsflächen und Hauptrohrdurchmesser pro Quadrant und Abschnitt	146
Tab. 6.8	Resultate ausgewählter Experimente (Spaltstofflösungen)	149
Tab. 6.9	Resultate ausgewählter kritischer Experimente (Metalle)	150

Tab. 7.1	Vergleich verschiedener Detektortypen zum Neutronennachweis unter starker γ -Strahlung	157
Tab. 9.1	Zuordnung der unterschiedlichen Vorkommniskategorien ohne eingetretene Kritikalitätsexkursion auf die verschiedenen Anlagentypen der nuklearen Ver- und Entsorgung	167
Tab. 9.2	INES-Bewertungen der Vorkommnisse in Anlagen der nuklearen Ver- und Entsorgung ohne eingetretene Kritikalitätsexkursion, aufgelistet nach Einstufung und Anlagentyp	169
Tab. 9.3	Zuordnung der unterschiedlichen Vorkommniskategorien mit eingetretener Kritikalitätsexkursion auf die verschiedenen Anlagentypen der nuklearen Ver- und Entsorgung	170
Tab. 10.1	Abschätzung der Häufigkeit von Kritikalitätsunfällen in modernen Prozessanlagen.....	177
Tab. 10.2	Wahrscheinlichkeit der Genauigkeit der berechneten spezifischen Spaltrate für Exkursionen in Uranlösungen	186
Tab. 10.3	Verteilung der pro Spaltung freigesetzten Energie.....	189
Tab. 10.4	Energiegruppeneinteilung, Spaltspektrumsanteile, Fluenz-Konversionsfaktoren und radiobiologischer Qualitätsfaktor	191
Tab. 10.5	Freisetzung prompter und Spaltprodukt-Gammastrahlung (Gleichgewichtsverteilung) pro Spaltung (^{235}U)	194
Tab. 11.1	Anteile von Neutronen- bzw. Gammastrahlung an der Gesamtdosis	205
Tab. 13.1	Physikalische Eigenschaften von Uran und ausgewählten chemischen Verbindungen bei Raumtemperatur	209
Tab. 13.2	Physikalische Eigenschaften von Plutonium und ausgewählten chemischen Verbindungen bei Raumtemperatur	210
Tab. 13.3	Schütt- und Rütteldichten für Plutoniumdioxid (PuO_2) je nach Herstellungsweise	211

**Gesellschaft für Anlagen-
und Reaktorsicherheit
(GRS) gGmbH**

Schwertnergasse 1
50667 Köln

Telefon +49 221 2068-0

Telefax +49 221 2068-888

Forschungszentrum

85748 Garching b. München

Telefon +49 89 32004-0

Telefax +49 89 32004-300

Kurfürstendamm 200

10719 Berlin

Telefon +49 30 88589-0

Telefax +49 30 88589-111

Theodor-Heuss-Straße 4

38122 Braunschweig

Telefon +49 531 8012-0

Telefax +49 531 8012-200

www.grs.de

ISBN 978-3-944161-60-0