

**Weiterentwicklung von
Methoden und
Datengrundlagen
zu Sicherheits- und
Störfallanalysen für
Anlagen der nuklearen
Ver- und Entsorgung
sowie Aktualisierung
und Überprüfung von
Rechenmethoden zu
nuklearen Sicherheits-
analysen**

Weiterentwicklung von Methoden und Datengrundlagen zu Sicherheits- und Störfallanalysen für Anlagen der nuklearen Ver- und Entsorgung sowie Aktualisierung und Überprüfung von Rechenmethoden zu nuklearen Sicherheits- analysen

Abschlussbericht

Robert Kilger
Elisabeth Peters
Fabian Sommer
Eberhard-Franz Moser
Sven Keßen
Maik Stuke

Juli 2016

Anmerkung:

Das diesem Bericht zugrundeliegende F&E-Vorhaben wurde im Auftrag des Bundesministeriums für Umwelt, Naturschutz, Bau und Reaktorsicherheit (BMUB) unter dem Kennzeichen 3613R03350 durchgeführt.

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

Die Verantwortung für den Inhalt dieser Veröffentlichung liegt beim Auftragnehmer.

Deskriptoren:

Sicherheitsanalysen, Störfallanalysen, Rechenmethoden, Kritikalität, Entsorgung, Versorgung

Kurzfassung

Der vorliegende Bericht beschreibt kurz die im Rahmen des Vorhabens 3613R03350 durchgeführten Arbeiten an dem GRS „Handbuch zu Störfallanalysen für Anlagen der nuklearen Ver- und Entsorgung“, sowie im Detail die fortgeführten Arbeiten zur Revision und Aktualisierung des GRS „Handbuch zur Kritikalität“, die sich hier auf Spaltstoffsyste-me mit Plutonium und ^{233}U fokussierten. Die die in früheren Vorhaben begonnene Literaturrecherche zu innovativen Brennstoffkonzepten wurde fortgeführt. Be-schrieben wird auch die Überprüfung und Qualifikation eingesetzter Rechenverfahren durch Recherche und eine aktive Benchmark-Teilnahme, sowie der Ergebnisse der Verfolgung des Standes von Wissenschaft und Technik auf dem Gebiet der Rechen-verfahren zur Kritikalitätssicherheitsanalyse. Spezielle vertiefte Auswertungen ausge-wählter kritikalitätsrelevanter Vorkommnisse in der Vergangenheit sind ebenfalls do-kumentiert.

Abstract

This report briefly describes the activities carried out under the project 3613R03350 on the GRS "Handbook on Accident Analysis for Nuclear Front and Back End Facilities", and in detail the continuing work on the revision and updating of the GRS "Handbook on Criticality", which here focused on fissile systems with plutonium and ^{233}U . The in previous projects started and ongoing literature study on innovative fuel concepts is continued. Also described are the review and qualification of computational methods by research and active benchmark participation, and the results of tracking the state of science and technology in the field of computational methods for criticality safety analysis. Special in-depth analyzes of selected criticality-relevant occurrences in the past are also documented.

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
2	Störfallanalysen	3
3	Nukleare Sicherheit	5
3.1	Handbuch zur Kritikalität, Ausgabe 2016	5
3.1.1	Revision und Aktualisierung kritischer Parameter	5
3.1.2	Bewertung bislang bestehender, älterer Handbuch-Daten	12
3.2	Kritische Experimente mit Plutoniumnitrat.....	14
3.2.1	Zielsetzung	14
3.2.2	Beschreibung der Experimente.....	15
3.2.3	Eingabeparameter für die Kritikalitätsrechnungen.....	16
3.2.4	Ergebnisse der Experimentnachrechnungen	18
3.2.5	Sensitivitätsanalysen	29
3.2.6	Benchmark-Korrelationen	39
3.3	Kritische Experimente mit ²³³ Uranynitrat	42
3.3.1	Auswahl der Experimente	42
3.3.2	Sensitivitätsanalysen	53
3.3.3	Benchmark-Korrelationen	55
3.4	Vergleichsrechnungen mit anderen Rechenverfahren	62
3.5	Vergleich zwischen älteren und neu berechneten Daten.....	64
3.5.1	Vergleichsmethodik	64
3.5.2	Untersuchte Spaltstoffsysteme	65
3.5.3	Schlussfolgerungen	81
3.6	Vergleich kritischer Parameter mit Werten nach DIN 25403	81
3.6.1	Vergleich der Kritikalitätsparameter	82
3.6.2	Übersicht der Vergleichsergebnisse.....	88

4	Innovative Kernbrennstoffkonzepte	91
4.1	Urananreicherung mit Lasertechnologie, SILEX-Verfahren	91
4.1.1	Historische Entwicklung	91
4.1.2	Laserisotopentrennverfahren AVLIS	94
4.1.3	Laserisotopentrennverfahren MLIS	97
4.1.4	Laserisotopentrennverfahren SILEX	102
4.2	Brennstoffkonzepte	108
4.2.1	Entwicklungen bezüglich Brennstoffkonzepte in Leichtwasserreaktoren	108
4.2.2	Thorium-Brennstoffe	110
4.2.3	Aktuelle Gesamteinschätzungen	116
4.2.4	Neuere Entwicklungen bezüglich Brennelemente	120
4.2.5	Geschlossener Brennstoffkreislauf im Zusammenhang mit dem natriumgekühlten Brutreaktor BN-800	121
4.2.6	Neuere Entwicklungen zu Partitionierung und Transmutation	123
5	Spezielle Auswertungen kritikalitätsrelevanter Vorkommnisse	125
5.1	The Horizontal Band Saw Incident at Babcock & Wilcox, NOG-L	125
5.2	Recent Events and a Comparison with Historical Accidents	130
5.2.1	Hintergrund und Motivation	130
5.2.2	Methodik	130
5.2.3	Datenbasis	131
5.2.4	Vergleichende Bewertung der betrachteten Ereignisse und Unfälle	134
5.2.5	Bewertung	152
6	Überprüfung und Bewertung von Rechenmethoden zu nuklearen Sicherheitsanalysen	159
6.1	OECD-NEA EGUNF Benchmark Phase 1 zur Validierung von Streuquerschnitten von Silizium	159
6.1.1	Beschreibung und Aufgabenstellung	159
6.1.2	Methodenbeschreibung	160
6.1.3	Ergebnisse	162
6.1.4	Zusammenfassung	176

6.2	Vorhabensrelevante Beiträge aus Fachkonferenzen.....	178
6.2.1	Neue Datenbank SFCOMPO (2014).....	178
6.2.2	Neue Methode der PSI zur Quantifikation von Herstellungs- und technologischen Unsicherheiten	179
6.2.3	Neue Fähigkeiten und Daten in der DICE 2013 Datenbank.....	179
6.2.4	Quantifizierung von Undersampling durch zu wenig Neutronen pro Generation bei Monte Carlo Simulationen.....	180
6.2.5	ICSBEP Kritikalitätsrechnungen mit der ENDF/B-VII.1 Querschnittsbibliothek	181
6.2.6	Reaktivierung der Kritikalitätssicherheitsforschung der japanischen Atomenergiebehörde	181
6.2.7	Bemerkungen zur Validierung von Kritikalitätssicherheits- und Reaktorphysik-Rechnungen.....	182
6.2.8	Untersuchungen von k_{eff} vs. Bruchteil der kritischen Masse	183
6.2.9	WPEC SG38: Design eines neuen Formats zur Speicherung nuklearer Daten.....	183
6.2.10	Methoden zur Kapazitätserweiterung von Brennelement-Lagerbecken und Trockenbehältern.....	184
6.2.11	Untersuchung der Folgen von Neukonfigurationen von Kernbrennstoff bei Trockenlagerung und Transportgebinden.....	185
6.2.12	Sensitivitätsstudien über die Integrität von abgebranntem Kernbrennstoff während normalen Transportbedingungen	185
6.2.13	Bestimmung experimenteller Korrelationen unter Benutzung der Sampler Sequenz von SCALE Version 6.2	186
6.2.14	Auswertung von Spitzen-Reaktivitäts-Analysen von Reaktorbrennstoffen aus Siedewasserreaktoren in Transport- und Lagerbehälter	186
6.2.15	Validierung von k_{eff} Rechnungen für Brennstoff aus Siedewasserreaktoren bei Spitzen-Reaktivität in Transport- und Lagerbehältern	187
	Quellenverzeichnis	189
	Abbildungsverzeichnis.....	203
	Tabellenverzeichnis.....	209

1 Einleitung

Für belastbare Störfallanalysen und Sicherheitsbewertungen kerntechnischer Anlagen ist die Verfügbarkeit aktueller Methoden, Verfahren und Datengrundlagen auf dem Stand von Wissenschaft und Technik unerlässlich. Für Anlagen der nuklearen Ver- und Entsorgung bedeutet dies insbesondere physikalisch-technische Prozessabläufe sowie die nukleare Sicherheit hinsichtlich der Einhaltung der Unterkritikalität.

In diesem Zusammenhang erstellt und pflegt die GRS seit geraumer Zeit das „Handbuch zur Kritikalität“, das im Rahmen dieses und früherer Vorhaben einer kompletten Revision unterzogen wurde. Weiterhin wird erstmalig das seit längerem im Entwurf vorliegende „Handbuch zu Störfallanalysen für Anlagen der nuklearen Ver- und Entsorgung“ erstmalig als überarbeitete Fassung in drei GRS-Berichten bereitgestellt.

Der in früheren Vorhaben begonnene Literaturbericht zu innovativen Kernbrennstoffkonzepten wird fortgeschrieben. Neben der Verfolgung der jüngeren Entwicklung auf dem Gebiet der Leichtwasserreaktor-Brennelemente wird ein Fokus in der vorliegenden Arbeit auf Urananreicherungstechniken nach dem Laserverfahren, und hier insbesondere auf das moderne SILEX-Verfahren gerichtet. Aktueller Anlass ist die Erteilung einer Baugenehmigung für eine großtechnische Anlage nach diesem Verfahren in den USA im Jahre 2012.

Ein weiterer Punkt der vorliegenden Arbeit beschäftigt sich mit der vertieften Analyse und Auswertung einiger ausgewählter kritikalitätsrelevanter Ereignisse. Ein wesentlicher Aspekt ist dabei die Frage nach den Umständen die dazu geführt hatten dass die Ereignisse nicht in Kritikalitätsunfälle mit Exkursion mündeten. Die Auswahl der Ereignisse orientierte sich dabei an der verfügbaren, öffentlich zugänglichen Literatur.

Die Implementierung, Validierung und Bewertung aktueller numerischer Rechenverfahren erfolgte zum einen durch die aktive Teilnahme an dem Rechenbenchmark „Problem Specification for Benchmark Study on the Reflector Effect of Silicon Dioxide (SiO₂) for the Criticality Safety of Direct Disposal of Used Nuclear Fuel“ der OECD-NEA, zum anderen durch Recherche und Zusammenfassung einer Reihe von jüngeren Fachtagungs- und Konferenzbeiträgen, die sich mit Code- und Datenneuerungen zum Thema Kritikalitätssicherheit beschäftigen.

2 Störfallanalysen

Zum Abschluss des Vorhabens 3610R03350 lag das „Handbuch zu Störfallanalysen für Anlagen der nuklearen Ver- und Entsorgung“ („Störfallhandbuch“) erstmalig vollständig im Entwurf vor. Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wurden die einzelnen Kapitel des Störfallhandbuchs einer fachlichen Qualitätssicherung durch unabhängige, d. h. an der ursprünglichen Erstellung der Kapitel nicht beteiligte Experten unterzogen. Dies führte, je nach Kapitel, zur Überarbeitung, Ergänzung oder Kürzung der Entwurfstexte.

In Ergänzung der ursprünglichen Planung wurde Kapitel 1 „Nukleare Ver- und Entsorgung“ in Hauptteil A um ein weiteres Unterkapitel ergänzt, das sich mit der routinemäßigen und längerfristigen Zwischenlagerung bestrahlter Kernbrennelemente beschäftigt. Dies basiert auf dem Umstand dass dieses Thema vor dem Hintergrund des Ausstiegs aus der Kernenergienutzung in Deutschland sowie der verspäteten Verfügbarkeit eines Endlagers für wärmeentwickelnde radioaktive Abfälle zunehmende Relevanz einnimmt. Der aktuelle Zeitraum der Aufbewahrungsgenehmigungen von vierzig Jahren ab dem Datum der ersten Einlagerung eines beladenen Behälters wird absehbar nicht ausreichen, und wird auf einen heute noch nicht klar absehbaren Zeitraum, vermutlich aber um mehrere Jahrzehnte verlängert werden müssen. Das bedeutet, dass diese Art kerntechnischer Einrichtungen lange nach der Stilllegung der Leistungsreaktoren und vor der Inbetriebnahme eines Endlagers – neben der Anreicherung und der Brennelementfertigung mit je einer Anlage – absehbar die wichtigsten Nuklearanlagen in Deutschland sein werden.

Aufgrund des Umfangs der einzelnen Überarbeitungsschritte wird hier auf diese nicht im Detail eingegangen sondern auf die finalen Dokumente verwiesen.

Nach einer abschließenden redaktionellen Überarbeitung werden die drei Bände A, B und C voraussichtlich im Laufe des Jahres 2016 bzw. 2017 als GRS-Berichte zur Verfügung gestellt werden.

3 Nukleare Sicherheit

3.1 Handbuch zur Kritikalität, Ausgabe 2016

3.1.1 Revision und Aktualisierung kritischer Parameter

Das GRS „Handbuch zur Kritikalität“ /GRS 13/ stellt eine national wie international anerkannte Sammlung von Daten und Parametern zur Kritikalität dar. Begonnen im Jahr 1970, erfordert das Voranschreiten der technischen Entwicklung die Aufnahme immer neuer kritischer Systeme, um das Spektrum der in der nuklearen Ver- und Entsorgung auftretenden Stoffströme mit spaltbaren Nukliden umfassend abzudecken. Gleichzeitig erfordern die stetige Weiterentwicklung von Rechenmethoden und nuklearen Daten sowie der anwachsende Bestand an evaluierten kritischen Benchmark-Experimenten eine regelmäßige Überprüfung und Verifizierung bereits bestehender Daten und Parameter.

Im Zuge der Durchsicht, Überprüfung und Aktualisierung des GRS „Handbuch zur Kritikalität“, zuletzt der Arbeitsversion 2013 /GRS 13/, wurden für die Revision 2016 in der vorliegenden Arbeit u. a. kritische Parameter für wässrige Systeme mit Plutonium, Uran-Plutonium-Mischungen, ^{233}U sowie ^{233}U - ^{232}Th -Mischungen mit Hilfe der in Kap. 3.1 des Berichts GRS-A-3701 /KIL 13/ beschriebenen Methodik neu berechnet.

Für Plutonium wurden zumeist die Isotopenvektoren Pu(100), Pu(95/5), Pu(85/10/5) sowie Pu(59/25/12/4) in die Betrachtungen einbezogen. Dabei bedeuten die Werte in Klammern den Anteil des jeweiligen Plutoniumisotops in Atomprozent, aufsteigend ab dem Isotop mit der Massenzahl 239. So symbolisiert beispielsweise Pu(59/25/12/4) eine Plutoniumzusammensetzung von 59 % ^{239}Pu , 25 % ^{240}Pu , 12 % ^{241}Pu und 4 % ^{242}Pu , was in etwa einer typischen Plutoniumzusammensetzung aus der Wiederaufarbeitung von bestrahltem Urandioxidbrennstoff aus Leichtwasserreaktoren entspricht (^{238}Pu wird vernachlässigt). Im Mischoxid wurde als Uran typischerweise Natururan, z. T. aber auch hoch angereichertes Uran (Brüterbrennstoff) angenommen. In Systemen mit Thorium als Brennstoffbestandteil wurde dieses Element stets als 100 % ^{232}Th modelliert.

Es wurden stets konzentrationsabhängig die kritischen Kugelmassen, Kugelvolumina, Zylinderdicken und Schichtdicken berechnet, wobei in allen Fällen ein 30 cm dicker Wasserreflektor modelliert wurde. Für einige Stoffgemische wurden zusätzlich die infiniten Multiplikationsfaktoren k_{inf} bestimmt. Die nachfolgende Auflistung stellt die betrachteten Systeme übersichtsartig vor:

- Plutoniumdioxid mit unterschiedlichen Plutoniumvektoren (s. o.),
- Plutoniumnitrat mit unterschiedlichen Plutoniumvektoren und H^+ -Molaritäten,
- Plutonylnitrat mit unterschiedlichen Plutoniumvektoren,
- Uran-Plutonium-Mischoxid mit unterschiedlichen Plutoniumanteilen (5 bis 45 % Pu) und Plutonium-Isotopenzusammensetzungen (100 % ^{239}Pu bis LWR-Pu),
- Urandioxid mit 100 % ^{233}U als Spaltstoff,
- Uranylinitrat mit 100 % ^{233}U als Spaltstoff,
- Uran(10%)-Thorium(90%)-Mischoxid mit 100 % ^{233}U oder ^{235}U als Spaltstoff.

Für die Nitrat-Systeme wurde die in SCALE implementierte Methode zur Dichtebestimmung nach Pitzer-Koeffizienten eingesetzt, näher beschrieben in Abschnitt M7.A des SCALE-Manuals /SCA 11/. Die Systeme mit wasserunlöslichen Oxiden wurden nach dem dafür angemessenen Verfahren der Restwasserauffüllung modelliert, vgl. auch /KIL 09/ und /KIL 13/.

Die in der vorliegenden Arbeit neu berechneten Kurven wurden in Teil 2 von Band 2 (ehemals als Band III bezeichnet) des „Handbuch zur Kritikalität“ Ausgabe 2016 implementiert. Aufgrund des Umfangs des Datenmaterials von ca. 60 neuen bzw. neu berechneten Datenblättern mit bis zu fünf Parameterkurven pro Blatt wird an dieser Stelle auf eine Wiedergabe dieser Daten verzichtet und auf den entsprechenden Band des „Handbuchs“ verwiesen.

Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wurden schließlich alle drei Bände des GRS „Handbuch zur Kritikalität“ inhaltlich und redaktionell überarbeitet und aktualisiert, und als GRS

- „Handbuch zur Kritikalität Band 1: Kritikalität und nukleare Sicherheit“ /GRS 15/,
- „Handbuch zur Kritikalität Band 2 Teil 1: ^{235}U “ (künftig GRS–380) und
- „Handbuch zur Kritikalität Band 2 Teil 2: Plutonium, ^{233}U und höhere Aktinoide“ (künftig GRS–381)

abgeschlossen, bzw. werden bis 2017 im Internetauftritt der GRS (www.grs.de) unter „Publikationen“ frei zur Verfügung gestellt werden.

Implementiert sind die seit der letzten offiziellen Version 1998 v. a. in den Vorhaben 3606R02535 /KIL 09/ und 3610R03350 /KIL 13/ aktualisierten Daten zu ²³⁵U-Systemen sowie die in diesem Vorhaben revidierten und neu berechneten Parameterkurven und –werte (s. o.). Je nach Stoffsystem sind aus den genannten Arbeiten qualitative oder quantitative Abschätzungen zur Konservativität der angegebenen Parameterwerte in den jeweiligen Textvorspann der Stoffsysteme ins Handbuch übernommen worden soweit sinnvoll und notwendig.

Der Textsatz erfolgte in LaTeX 2_ε /GOO 94/, /KOP 00/ zur Erzeugung von Dateien im PDF-Format. Zahlreiche Datenblätter die aus älteren Ausgaben des Handbuchs übernommen und nicht ersetzt wurden und die bislang nur analog auf Papier bzw. gescanntes PDF vorlagen, wurden mit Hilfe der freien Software „Engauge Digitizer“ /ENG 16/ weitgehend aus den alten Abbildungen digitalisiert, neu gezeichnet und ebenfalls in die Datensammlung implementiert.

Hinweis: Da die Digitalisierung der relevanten analogen Datenblätter zum Redaktionsschluss der vorliegenden Arbeit noch nicht vollständig abgeschlossen war, verschiebt sich die Veröffentlichung der beiden, dann vollständig überarbeiteten Datenteile in das Jahr 2017.

Exemplarisch sind in den folgenden Abbildungen neu berechnete kritische Parameter (Masse, Volumen) für wässrige Plutoniumnitrat- und ²³³Uranynitrat-Systeme, jeweils mit 30 cm Wasserreflektor, dargestellt.

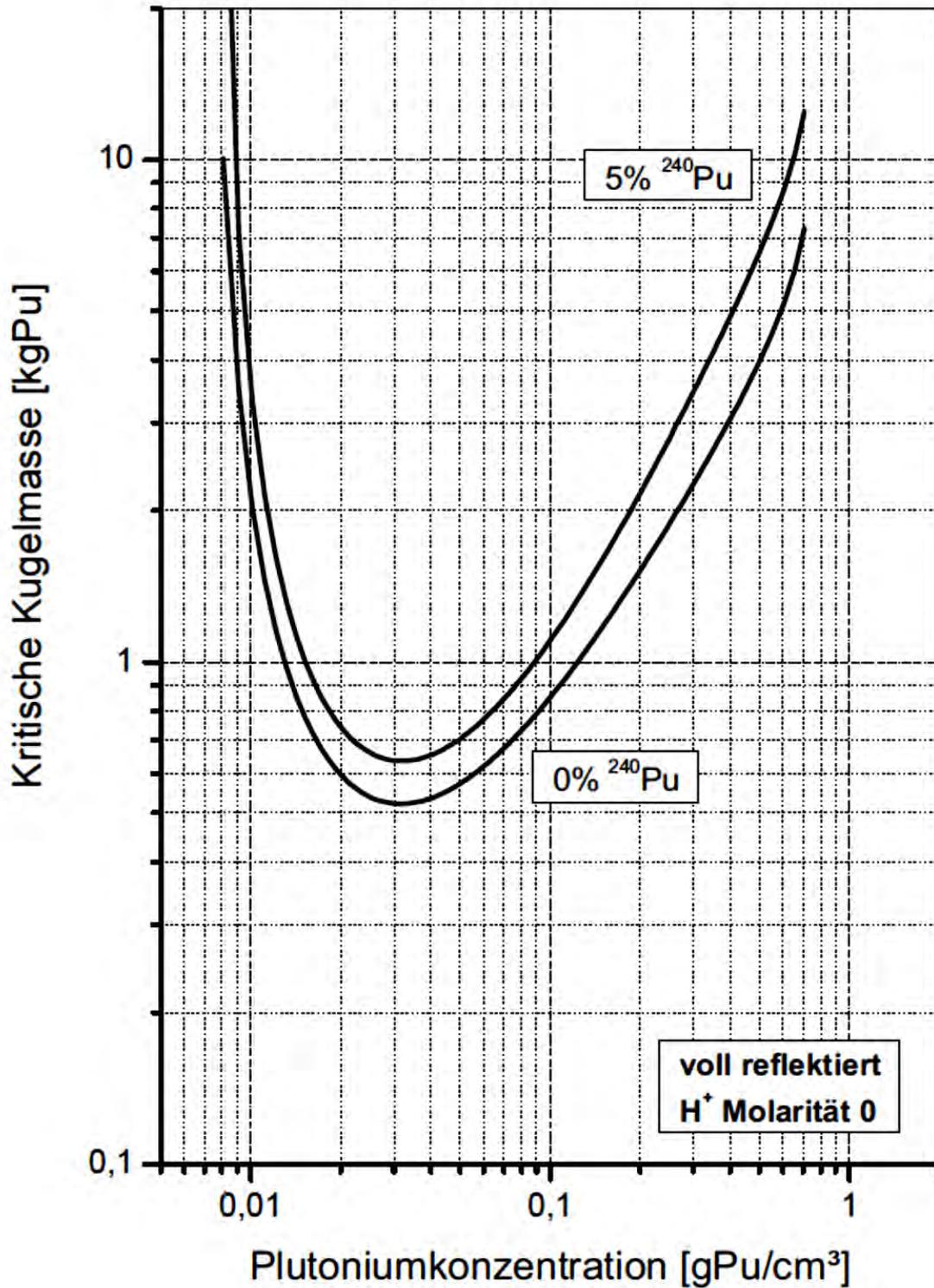


Abb. 3.1 Kritische Kugelmassen für homogene wässrige Plutoniumnitrat-Systeme

In Band 2 Teil 2 als Abbildung 10.F.1 implementiert

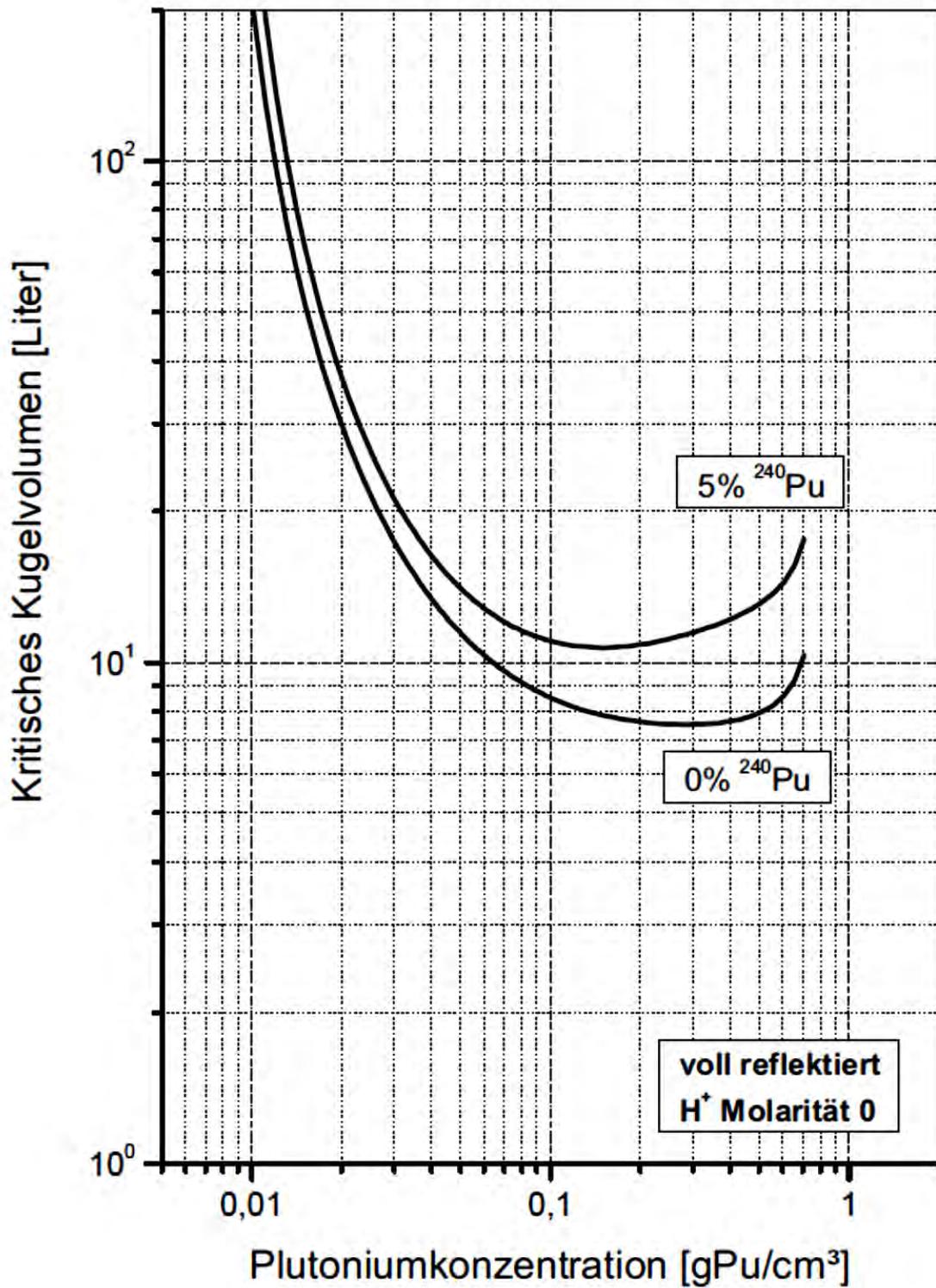


Abb. 3.2 Kritische Kugelvolumina für homogene wässrige Plutoniumnitrat-Systeme

In Band 2 Teil 2 als Abbildung 10.F.2 implementiert

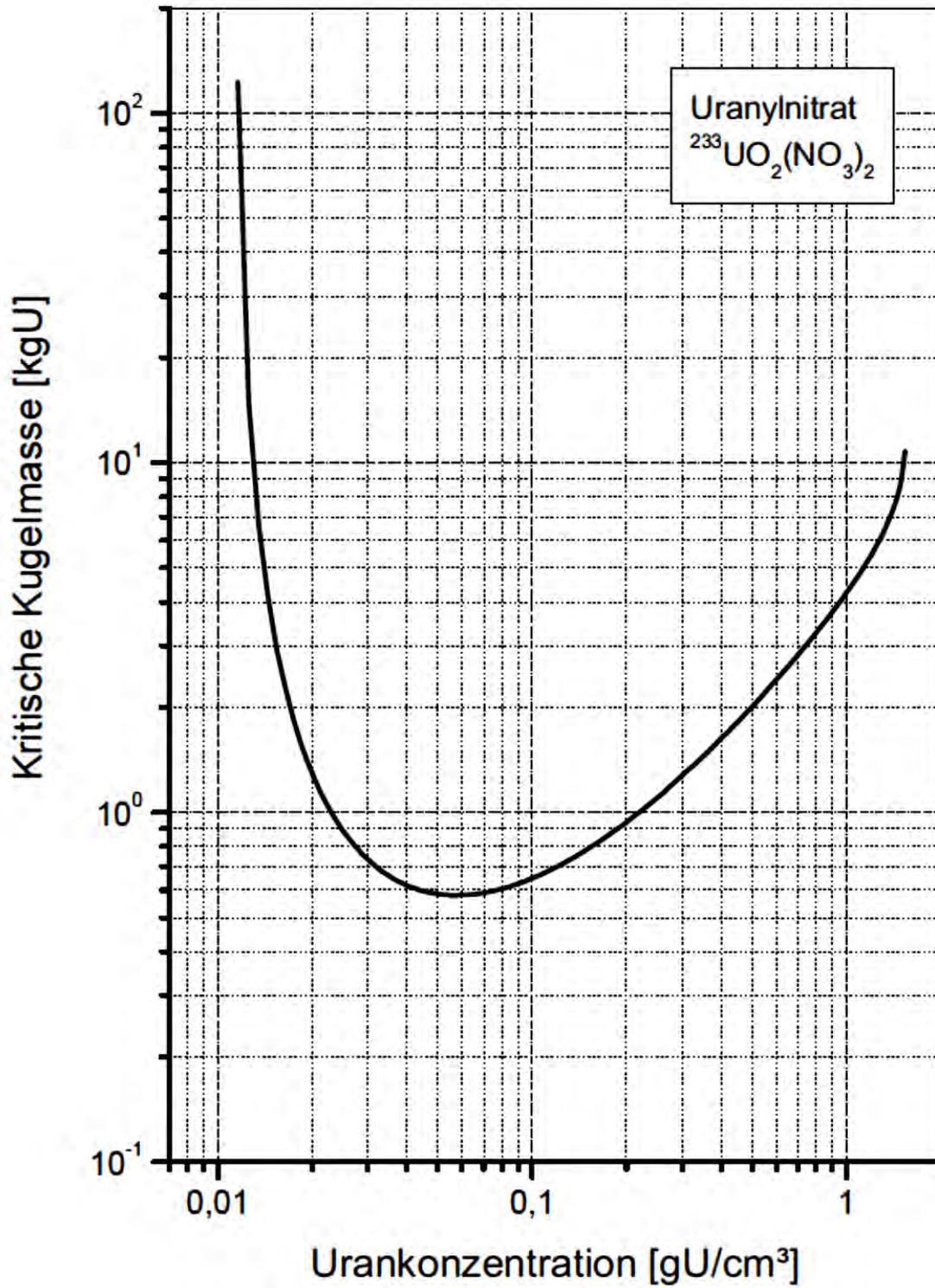


Abb. 3.3 Kritische Kugelmassen für homogene wässrige ²³³Uranyl nitrat-Systeme

In Band 2 Teil 2 als Abbildung 15.F.1 implementiert

09.01.2014

U233-NIT-HOM

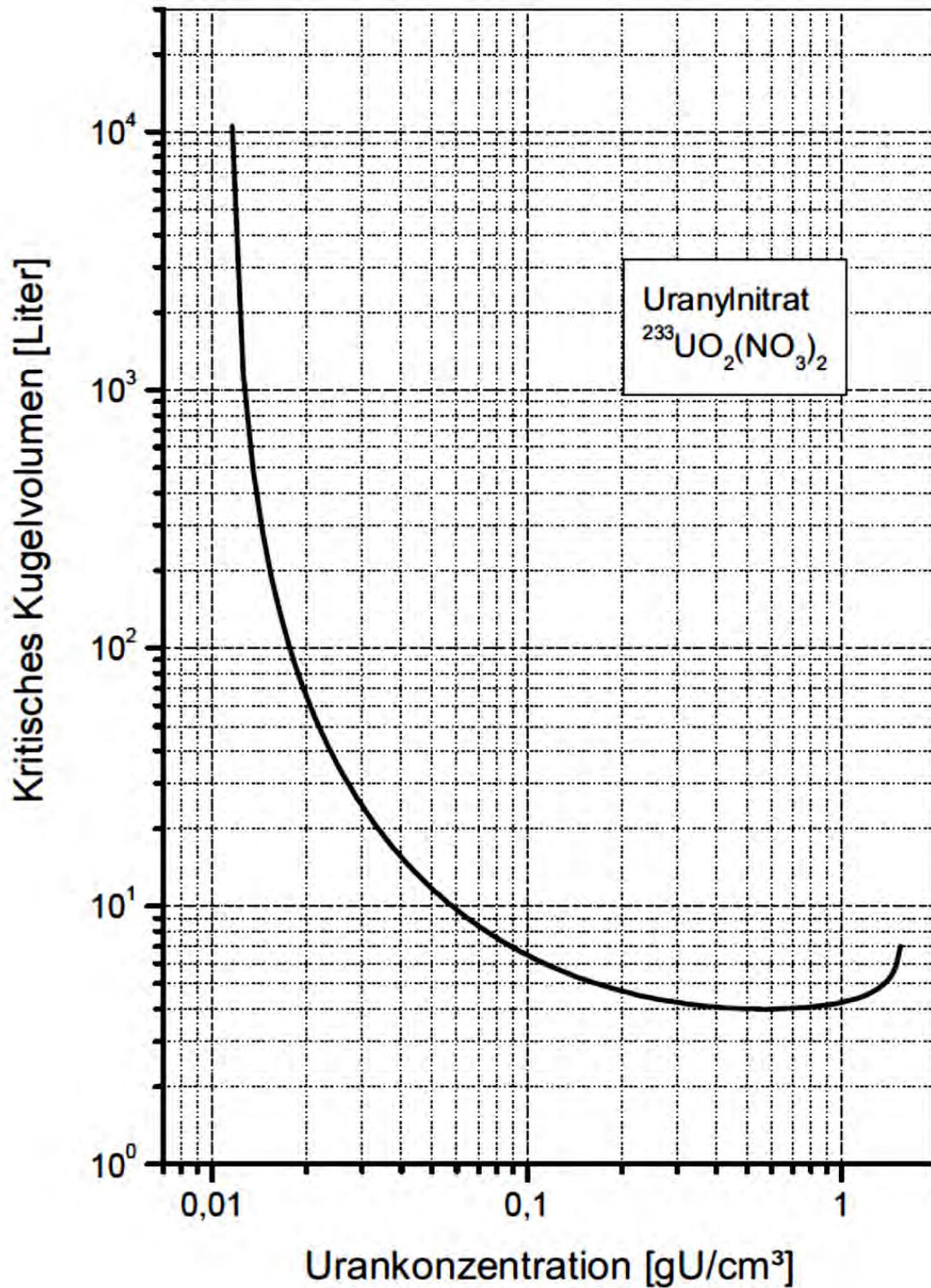


Abb. 3.4 Kritische Kugelvolumina für homogene wässrige ^{233}U uranyl Nitrat-Systeme

In Band 2 Teil 2 als Abbildung 15.F.2 implementiert

Für die meisten der betroffenen Kurvendaten existieren außer der oben genannten Systeme für Plutoniumnitrat- und ^{233}U ranynitratlösungen kaum oder gar keine geeigneten, öffentlich verfügbaren kritischen Benchmark-Experimente /NEA 13/, die zur Validierung der Rechnungen herangezogen werden könnten. Deshalb liegt der Fokus der Experimentnachrechnungen auf diesen Substanzen.

Auf diese Nachrechnungen und deren Auswertungen wird in den folgenden Kapiteln 3.2 (Plutoniumnitrat) und 3.3 (^{233}U ranynitrat) vertieft eingegangen. Neben den klassischen Analysemethoden wie der Bestimmung von Mittelwerten oder Trendanalysen werden in dieser Untersuchung verstärkt Methoden zur Unsicherheits- und Sensitivitätsanalyse sowie zur Berücksichtigung von Systemkorrelationen eingesetzt. Diese Untersuchungen dienen zum einen dem Eignungsnachweis der ausgewählten Benchmark-Konfigurationen zu Validierungszwecken für die betrachteten Systeme, und zum anderen zur vertieften Evaluation von Unsicherheiten in den Benchmark-Konfigurationen und den zugehörigen Anwendungsfällen. Dies bezieht sich auf Unsicherheiten sowohl in geometrischen und technischen Parametern (Experimente) als auch auf die nuklearen Wirkungsquerschnitte (Experimente und Parameterkurven).

3.1.2 Bewertung bislang bestehender, älterer Handbuch-Daten

Die Revision der kritischen Parameter führte nicht nur zum Ersatz älterer Daten durch neu berechnete Werte. In einigen Fällen wurden die älteren Daten beibehalten, einige vorbehaltlich späterer Revision vorläufig entfernt, und manche ersatzlos gestrichen. Dies wird in den folgenden Absätzen im Einzelnen diskutiert.

Für bestimmte Systeme wurden die Werte und Kurven trotz ihres Alters (1970er Jahre) unverändert beibehalten. Dies betrifft z. B. Systeme welche *per se* eine äußerst hohe Konservativität aufweisen und heute keine oder nur mehr minimale direkte praktische Relevanz in Deutschland besitzen. Darunter fallen etwa wässrige metallische Systeme mit 100% reinem ^{235}U oder ^{239}Pu . In anderen Fällen lieferten die Neuberechnungen gegenüber den älteren Daten nahezu identische oder leicht nichtkonservative Werte, so dass die bestehenden Datenblätter beibehalten wurden. Manchmal zeichnete sich auch kein einheitliches Bild ab: Während kritische Massen und Volumina mancher Systeme bei identischer Konzentration der älteren Datenblätter konservative Werte gegenüber den Neuberechnungen zeigten, offenbarte sich bei Zylinder- und Schichtdicken für identische Systeme ein umgekehrtes Bild, oder anders herum (vgl. auch Kap. 3.5).

Bei bestimmten, wichtigen Systemen wie niedrig angereicherten Uran-dioxid-Wasser-Systemen, blieben differierende Alt- und Neudaten zumindest in Tabellenwerk entsprechend kommentiert parallel nebeneinander bestehen, z. B. Tab. 1.B.A in Band 2 Teil 1.

Andere Datenarten als kritische Parameter, wie etwa Werte zum materiellem Buckling B_m^2 , zu Wanderflächen, den Diffusionslängenquadraten L^2 , den Extrapolationslängen λ und den Fermialtern τ , wurden großteils – zumindest vorübergehend – aus dem Datensatz entfernt bzw. für spätere Revisionen zurückgestellt. Dies liegt zum einen an deren schwieriger Überprüfbarkeit und Validierbarkeit, zum anderen an ihrer heutigen geringen Relevanz angesichts moderner Rechenverfahren und Wirkungsquerschnittsdaten. In einer künftigen Ausgabe des Handbuchs werden diese Werte möglicherweise nach Überprüfung und ggf. Aktualisierung wieder implementiert werden.

Ersatzlos entfernt wurden kritische Kugelmassen und –volumina, sowie Zylinder- und Schichtdicken von heterogenen moderierten Stabsystemen. Die Bestimmung dieser Größen über homogenisierte, zellgewichtete Wirkungsquerschnitte und anschließendem eindimensionalen „critical dimension search“ ist nicht mehr zeitgemäß, zumal die physikalische Interpretation z. B. der Kugelmasse eines Stabsystems heutzutage fragwürdig erscheint. In der derzeitigen Praxis werden die Kritikalitätsanalysen zu derartigen Systemen mit modernen Rechenverfahren in expliziter Geometrie in hoher Genauigkeit durchgeführt. Aus dem gleichen Grund wurden vergleichbare Datentypen (Teil 7) auch aus der DIN 25403 „Kritikalitätssicherheit bei der Verarbeitung und Handhabung von Kernbrennstoffen“ /DIN 12/ zurückgezogen /DIN 14/.

Weiterhin wurde eine Reihe von Daten und Parametern zu wässrigen Spaltstofflösungen in endlichen, betonreflektierten Anordnungen entfernt. Diese Werte waren sehr speziell abgestimmt auf einen bestimmten Anlagentyp, explizite (Baryt-)Beton-Zusammensetzungen, Borkonzentrationen, Cadmiumbeschichtungen, Stahltypen, Geometrien usw., und lieferten nur begrenzt allgemeine Anhaltspunkte. Dies betrifft v. a. mehr oder weniger explizite Anordnungen mit Plutoniumnitrat- bzw. Uranyl-/Plutoniumnitrat-Lösungen welche bei der ehemals geplanten und erforschten Wiederaufarbeitung in Deutschland von Interesse waren und auf andere Anlagen und auch auf die heutige Zeit nur begrenzt übertragbar sind. In einer späteren Revision des Handbuchs werden eventuell neu gerechnete, allgemeinere Daten dieses Typs wieder implementiert werden; dies ist nach derzeitigem Stand noch nicht festgelegt.

3.2 Kritische Experimente mit Plutoniumnitrat

3.2.1 Zielsetzung

Ziel der Untersuchungen ist die Validierung der neu berechneten kritischen Parameterkurven (krit. Kugelmassen, Kugelvolumina, Zylinderdicken, Schichtdicken, z. T. auch infinite Multiplikationsfaktoren) für die Revision der letzten Arbeitsfassung von 2013 des GRS „Handbuch zur Kritikalität“ /GRS 13/. Dazu wurden wasserreflektierte, niedrig konzentrierte kugelförmige Plutoniumnitrat-Lösungen in Wasser aus /NEA 13/ nachgerechnet und einer Sensitivitäts- und Korrelationsanalyse unterzogen.

Die Experimente wurden mit der Rechensequenz CSAS5 des amerikanischen Codepakets SCALE /SCA 11/ Version 6.1.2 nachgerechnet und mit den Parameterkurven aus dem Handbuch verglichen. In allen Rechnungen wurde die Querschnittsbibliothek v7-238 in 238-Gruppenstruktur verwendet, und die Resonanzselbstabschirmung durch die Resonanzbehandlungsmethode CENTRM berücksichtigt. Die Rechnungen wurden mit der eindimensionalen Rechensequenz CSAS1 wiederholt, um sie mit den kritischen Parameterkurven vergleichen zu können, die mit dieser Sequenz gerechnet wurden. Ein weiterer Vorteil liegt in der deutlich geringeren Rechenzeit, was für die Sensitivitäts- und Korrelationsanalyse von Vorteil ist. Die errechneten Multiplikationsfaktoren von Experimenten mit Plutoniumdichten nahe des Wertes bei der minimalen kritischen Masse wurden einer statistischen Analyse unterzogen, um Aussagen über die Unsicherheiten der gerechneten Parameterkurven treffen zu können. Diese münden in die Quantifizierung eines Bias des verwendeten Codes, mit dem auch die Parameterkurven gerechnet wurden, um die entsprechende Konservativität auch bei Beachtung der experimentellen Unsicherheiten nachzuweisen bzw. zu gewährleisten.

In einem zweiten Schritt wird die Sensitivität von k_{eff} auf die Unsicherheiten der experimentellen Messungen berechnet, um zu analysieren welche fehlerbehafteten Größen ausschlaggebend für die Unsicherheit von k_{eff} sind.

In einem weiteren Schritt wird untersucht, in wie weit Korrelationen zwischen den Experimenten relevant sind und berücksichtigt werden müssen, und ob sich das Ergebnis der Validierung der kritischen Parameterkurven dadurch signifikant verändert.

3.2.2 Beschreibung der Experimente

Bei allen untersuchten Experimenten handelt es sich um Lösungen von niedrig konzentriertem Plutoniumnitrat in wässriger Lösung, beschrieben in dem „ICSBE-Handbook“ /NEA 13/ als PU-SOL-THERM-0##, im Folgenden mit PST-0## abgekürzt. Fast sämtliche Versuche bestehen aus kugelförmigen Stahlgefäßen. In zwei Ausnahmen sind die Gefäße aus Aluminium gefertigt. Der Einfluss von Zu- und Abläufen, Haltestrukturen und Messinstrumenten wird meist berücksichtigt, indem das Kugelvolumen in der Experimentbeschreibung so modifiziert ist, dass die Vernachlässigung dieser Strukturen entsprechend kompensiert wird. Die Kugeln befinden sich in einem Wassertank und sind von mindestens 30 cm Wasser als Reflektor auf allen Seiten umgeben. Aufgrund des hohen Verhältnisses von Moderator zu Spaltstoff innerhalb der Lösung handelt es sich um thermische Systeme. Alle untersuchten Fälle sind leicht untermoderiert, was jew. durch eine $\pm 10\%$ ige Variation der ^1H -Kernzahldichten bestätigt wurde.

In Tab. 3.1 sind die wesentlichen Parameter der untersuchten Serien aufgelistet. Eine ausführliche Beschreibung inklusive aller Vereinfachungen und Annahmen findet sich in /NEA 13/.

Tab. 3.1 Liste der untersuchten Plutonium-Lösungsexperimente

Experimentserien	Kugeldurchmesser	Fälle pro Serie	Fälle in Abb.	Benchmark Fehler
PST-003	13"	8 (01 - 08)	01 - 08	0,0047 angenommen
PST-004	14"	13 (01 - 13)	09 - 21	0,0047 angenommen
PST-005	14"	9 (01 - 09)	22 - 30	0,0047 angenommen
PST-006	15"	3 (01 - 03)	31 - 33	0,0035 gerechnet
PST-020	14"	15 (01 - 03, 05 - 16) 5 (10 - 13, 16)	34 - 48	0,0047 gerechnet
PST-021	15,2"	4 (04 - 06, 10)	41 - 44	0,0025 - 0,0044 gerechnet

Insgesamt stehen 52 experimentelle Konfigurationen in sechs Serien zur Verfügung, deren Plutoniumkonzentration und experimenteller Aufbau einen sinnvollen Vergleich mit den theoretischen Kurven erlauben. Die Kugeln waren, bis auf wenige Ausnahmen, vollständig mit Lösung gefüllt. Für Serie 020 sind in den Experimentbeschreibungen äquivalente Fälle beschrieben (Fälle 10–16), in denen dieser kleine Hohlraum durch

eine Reduzierung des Kugeldurchmessers kompensiert ist. Somit werden im Folgenden nur sieben der insg. 15 beschriebenen Fälle aus Serie 020 verwendet, da sie von den ersten acht abgeleitet sind. Damit reduziert sich die Gesamtzahl der weitgehend unabhängigen Experimente auf 44.

In Serie 021 ist in den Fällen 4 und 5 die Kugel nicht vollständig mit Lösung gefüllt. In den drei Fällen 4, 5 und 6 dieser Serie wird im Modell im Reflektor die Verdrängung des Wassers durch das Einlass- und Halterrohr explizit berücksichtigt. Fall 10 nimmt eine fehlende Stahlkugel an.

3.2.3 Eingabeparameter für die Kritikalitätsrechnungen

Die Monte Carlo Kritikalitätsrechnungen in KENO-Va wurden mit 20 000 Startneutronen durchgeführt. Als Abbruchkriterium der Rechnung wurde ein statistischer Fehler von k_{eff} von 5×10^{-5} angesetzt. Da die ersten Generationen noch eine relativ große Varianz aufweisen, wurden die ersten 50 Generationen verworfen. Das Abbruchkriterium wurde typischerweise nach etwa 15 000 Neutronengenerationen erreicht.

Die Angabe der Kernzahldichten in den Experimentbeschreibungen ermöglicht die direkte Eingabe dieser in den KENO-Va Eingabedateien für die Lösungsbestandteile Plutonium (^{238}Pu , ^{239}Pu , ^{240}Pu , ^{241}Pu , ^{242}Pu), Stickstoff (N), Wasserstoff (H) und Sauerstoff (O), und die Kugelhüllenbestandteile Eisen (Fe), Chrom (Cr), Nickel (Ni), Mangan (Mn), Aluminium (Al) und Cadmium (Cd). Bis auf Plutonium werden die natürlichen Isotopenverhältnisse angenommen. Die Temperatur aller Komponenten der Experimente liegt bei den Serien 003, 004, 005 und 006 bei 300 K, bei den Serien 020 und 021 bei 298 K. Entsprechend wird die Dichte des reflektierenden Wassers mit $0,99651 \text{ g/cm}^3$ bzw. $0,997 \text{ g/cm}^3$ angenommen. Die jeweiligen Kugelradien der Spaltlösung, des Behälters und des Wasserreflektors wurden aus den Experimentbeschreibungen übernommen.

In Abb. 3.5 sind die Plutoniumdichten ρ_{Pu} in g/cm^3 und in Abb. 3.6 die Gewichtsprozent Gew.-% an ^{240}Pu für alle untersuchten Fälle gezeigt. Die gerechneten Serien sind in unterschiedlichen Farben dargestellt. In den Serien 003, 004, 005 und 006 waren laut Experimentbeschreibungen nur ^{239}Pu und ^{240}Pu vorhanden. In der Serie 020 war neben den in Abb. 3.6 gezeigten Gew.% ^{240}Pu auch 0,006 Gew.-% ^{238}Pu , 0,311 Gew.-% ^{241}Pu und 0,009 Gew.-% ^{242}Pu vorhanden. In der Serie 021 war neben den in Abb. 3.6 ge-

zeigten Gew.-% ^{240}Pu auch 0,006 Gew.-% ^{238}Pu , 0,283 Gew.-% ^{241}Pu und 0,009 Gew.-% ^{242}Pu vorhanden. Der Rest zu 100 % Pu bestand jeweils aus ^{239}Pu .

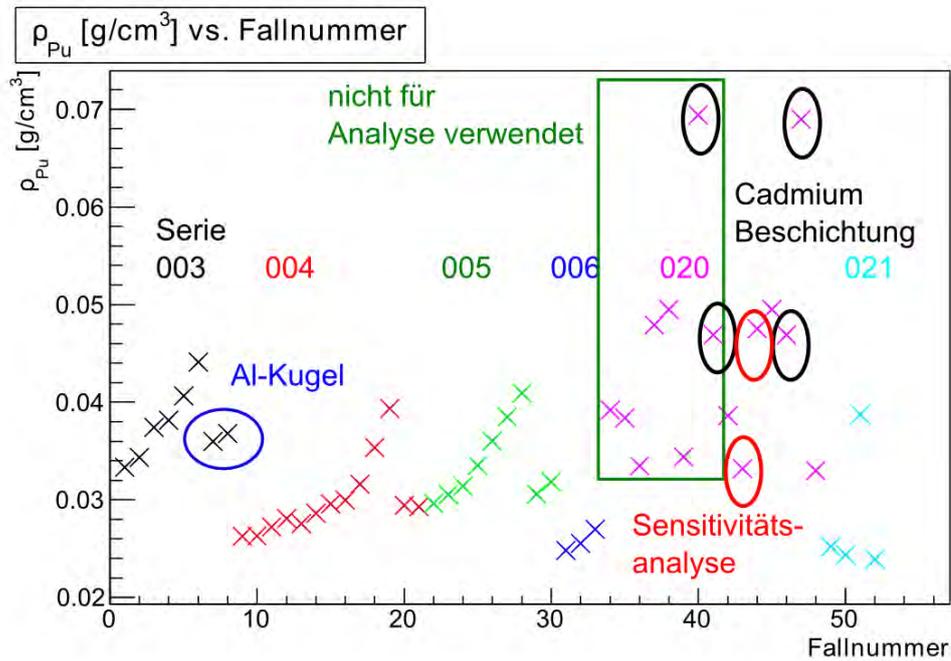


Abb. 3.5 Plutoniumdichte für alle untersuchten experimentellen Fälle

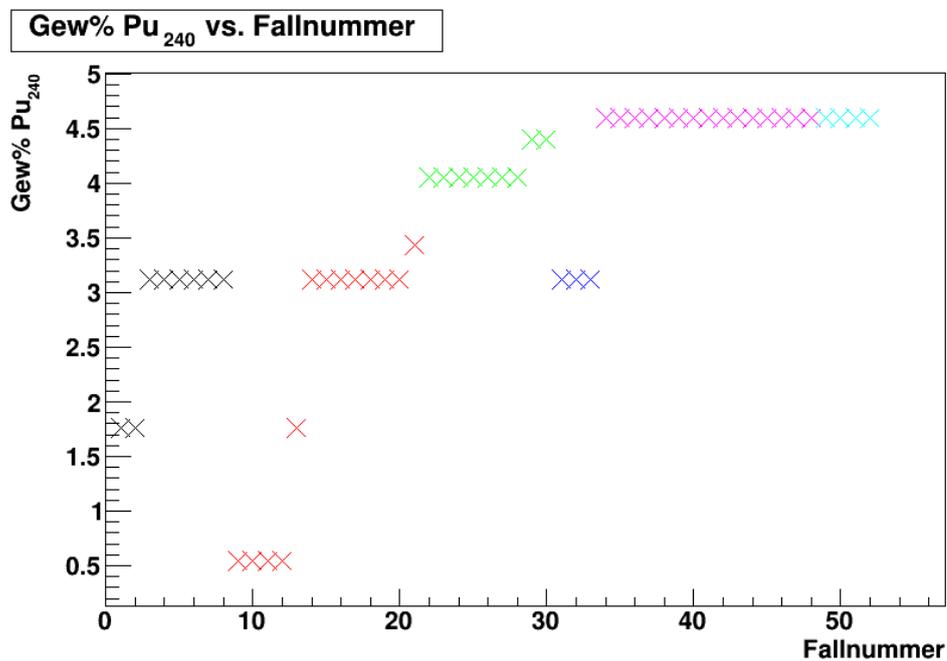


Abb. 3.6 ^{240}Pu Gewichtsprozent für alle untersuchten experimentellen Fälle

In Abb. 3.5 sind zusätzlich einige Fälle speziell gekennzeichnet, die Besonderheiten aufweisen, oder im Folgenden näher betrachtet werden. Dabei gibt es zwei Fälle mit

Aluminium anstelle Stahl als Kugelbehälter (Fälle 7, 8; blau), und zwei Fälle für die in Kap. 3.2.5 Sensitivitätsanalysen der experimentell gemessenen Eingangsgrößen durchgeführt wurden (Fälle 43, 44; rot). Die 2×2 Fälle (40, 41, 46, 47; schwarz) mit zusätzlicher Cadmium-Beschichtung auf der Stahlkugel stellen Sonderfälle dar die in der allgemeinen Analyse nicht einbezogen und gesondert betrachtet werden. Für Serie 020 sind auch die äquivalenten Fälle gezeigt (Fälle 34 – 41), in denen die Kugeln nicht komplett gefüllt sind und die im weiteren Verlauf nicht betrachtet werden.

3.2.4 Ergebnisse der Experimentnachrechnungen

Multiplikationsfaktoren

In Abb. 3.7 sind errechneten effektiven Multiplikationsfaktoren k_{eff} für alle betrachteten Benchmark-Experimente aufgetragen. Die vertikalen Fehlerbalken beinhalten zum einen die statistische Unsicherheit von k_{eff} aufgrund von dem Abbruchkriterium der Monte Carlo-Rechnung (5×10^{-5}), zum anderen den messtechnischen Fehler aufgrund von experimentellen Unsicherheiten (siehe Tab. 3.1). Die beiden Experimente mit Cadmiumbeschichtung (schwarze Ellipsen in Abb. 3.5) weichen dabei deutlich von den anderen Experimenten ab, weshalb sie für ein besseres Verständnis vertieft betrachtet werden. Ohne diese beiden Experimente und ohne die doppelten Fälle aus Serie 020 ergeben sich insgesamt 42 Konfigurationen, deren errechnete Werte für k_{eff} in Abb. 3.8 dargestellt sind.

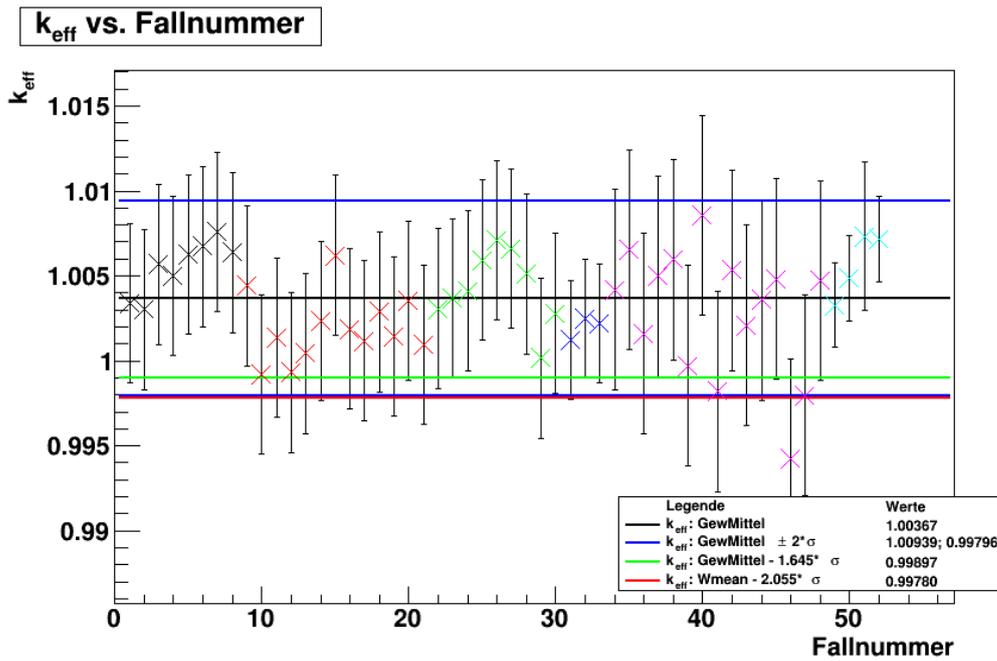


Abb. 3.7 Bandbreite der berechneten effektiven Multiplikationsfaktoren der Plutoniumnitrat-Lösungsexperimente

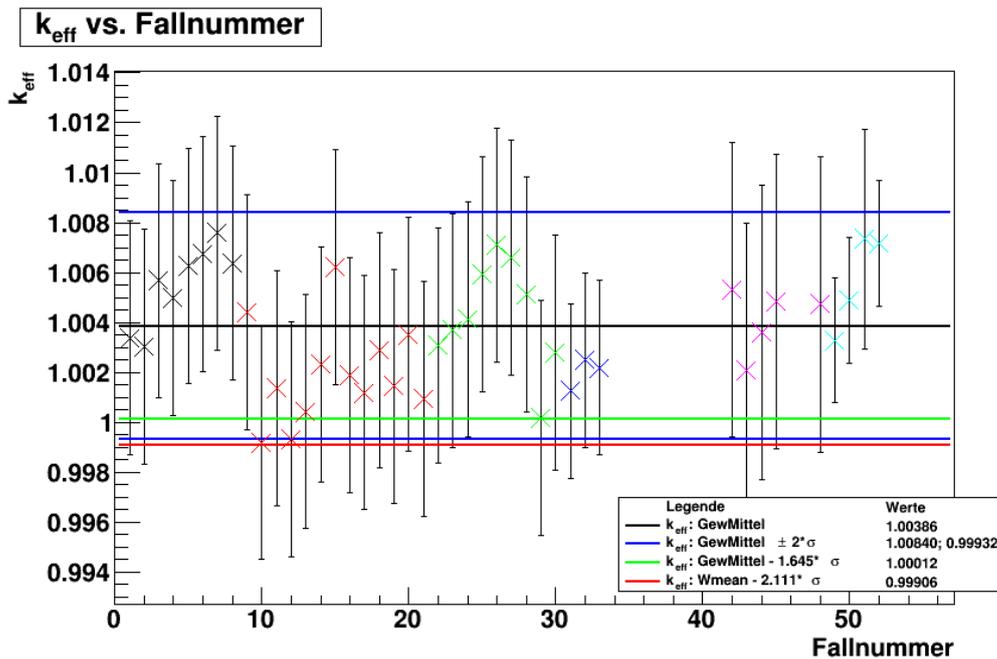


Abb. 3.8 Variation der berechneten effektiven Multiplikationsfaktoren der Plutoniumnitrat-Lösungsexperimente ohne die mit Cadmium beschichteten Fälle

Es ergibt sich ein mittlerer Wert von $k_{\text{eff}} = 1,00386 \pm 0,00035$ mit einer Standardabweichung von $\sigma = 0,00227 \pm 0,00025$. Dabei wurden die einzelnen Werte mit den inversen experimentellen Fehlern gewichtet. Da bei Kritikalitätssicherheitsbetrachtun-

gen vor allem die Konservativität von entscheidender Bedeutung ist, werden entsprechende Limits betrachtet, die die Streuung der berechneten Werte berücksichtigen. Ein solches Limit ist das einseitige 95%-Konfidenzlimit, das besagt, dass bei einer Normalverteilung 95% der Werte oberhalb dieses Limits liegen müssen. Es ist gegeben durch

$$k_{eff,95-Limit} = \langle k_{eff} \rangle - 1,645 * \sigma(k_{eff}) = 1,00012 \quad (3.1)$$

Die berechneten Multiplikationsfaktoren der 42 untersuchten Fälle erfüllen mit $W = 0,97$ und einem P-Wert von 0,28 die Normalverteilung bei 0,05 Ebene.

Da eine Stichprobe von nur 42 Werten aus der Verteilung der k_{eff} -Werte vorliegt, sollte das 95,95-Toleranzlimit angewandt werden. Dieses Limit besagt, dass die Werte mit einer 95% Wahrscheinlichkeit über dem 95%-Limit liegen sollen. Es ist abhängig von der Größe der Stichproben und nähert sich für $n = \infty$ dem 95%-Limit von $1,645 * \sigma(k_{eff})$ an. Nach /OWE 63/ liegt es bei einer Stichprobe aus 42 Werten bei

$$k_{eff,95,95-Limit} = \langle k_{eff} \rangle - 2,1110 * \sigma(k_{eff}) = 0,99906 \quad (3.2)$$

Es ist dabei leicht nicht-konservativ, was zu folgendem Bias der Kurve für die kritische Masse in der Nähe des Minimums von ρ_{Pu} führt:

$$k_{eff, bias} = k_{eff,95,95-Limit} - 1 = -0,00094 \quad (3.3)$$

In der bisherigen Auswertung wurde nur der gewichtete Mittelwert der berechneten k_{eff} Werte betrachtet. Aus diesem Grund wird in den folgenden Streudiagrammen überprüft, ob sich signifikante Abhängigkeiten der Werte von k_{eff} von den Unsicherheiten in den experimentellen Parametern ermitteln lassen. Zu diesem Zweck wurden entsprechende Trendanalysen durchgeführt, um ggf. funktionale Zusammenhänge zwischen den berechneten Werten von k_{eff} und verschiedenen physikalischen Parametern der Systeme zu identifizieren.

In Abb. 3.9 bis Abb. 3.13 sind die berechneten k_{eff} Werte der 42 relevanten Fälle gegen die Plutoniumdichte ρ_{Pu} , den prozentualen Gewichtsanteil von ^{240}Pu , die Nitratdichte ρ_{NO_3} , das Moderationsverhältnis H/Pu_{ges} und die Energie der mittleren Lethargie der spaltenden Neutronen (Energy of Average Lethargy causing Fission, EALF) aufgetra-

gen. Die Daten werden jeweils mit einer Geraden unter Beachtung der Fehlerbalken durch Minimierung von χ^2 gefittet. Dabei wird der x-Aufpunkt der Geraden auf den Mittelwert der Abzissengröße a_3 verschoben, da sonst die Steigung a_2 und der Ordinatenabschnitt a_1 stark korreliert sind:

$$x = a_1 + a_2 * (x - a_3) \quad (3.4)$$

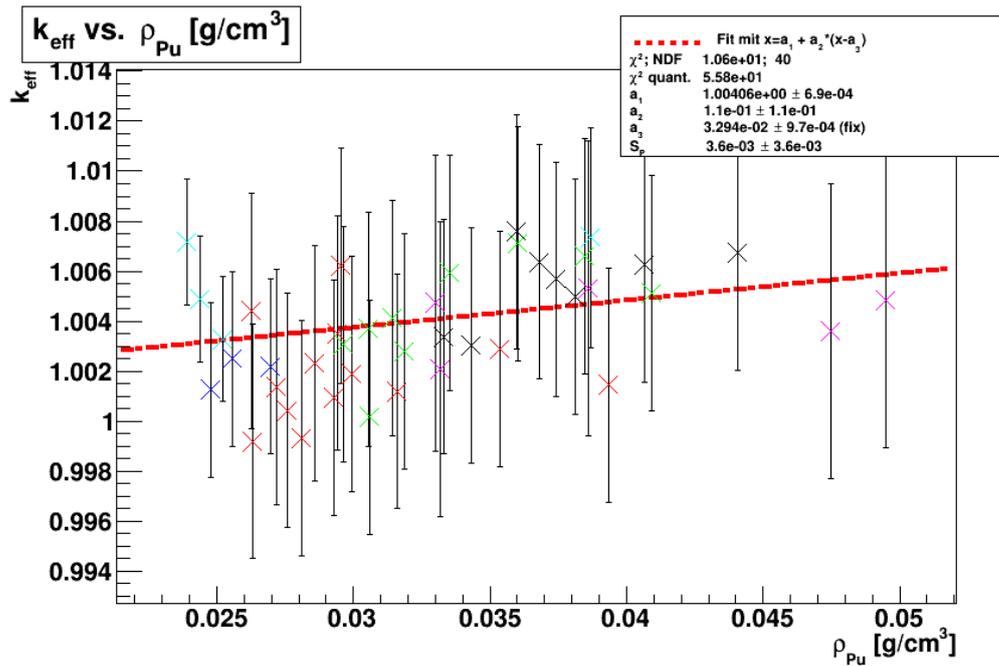


Abb. 3.9 Abhängigkeit von k_{eff} von der Plutoniumdichte

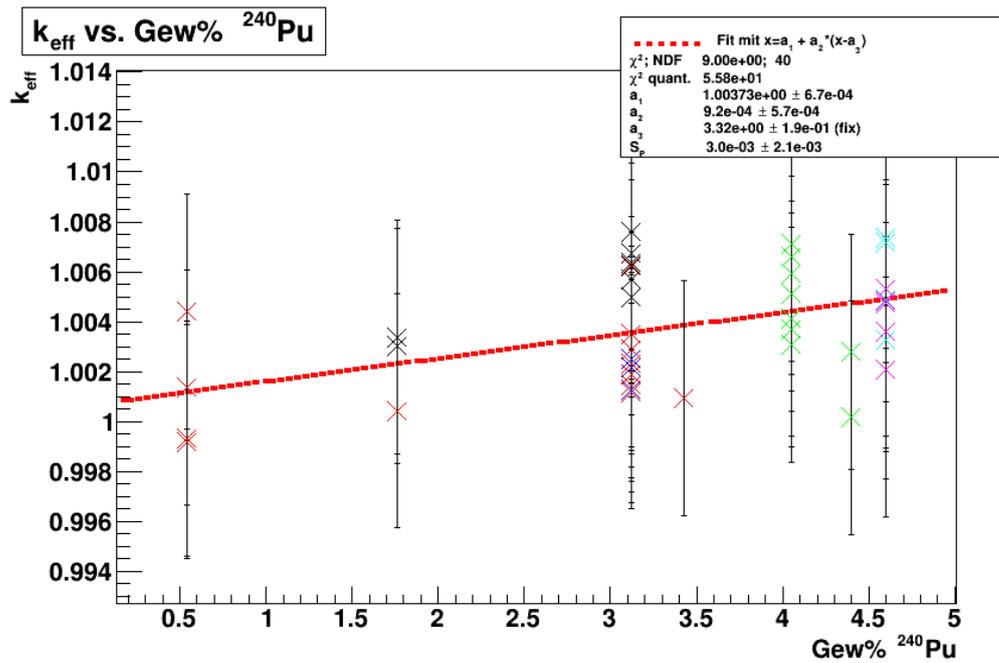


Abb. 3.10 Abhängigkeit von k_{eff} von dem prozentualen Gewichtsanteil von ^{240}Pu

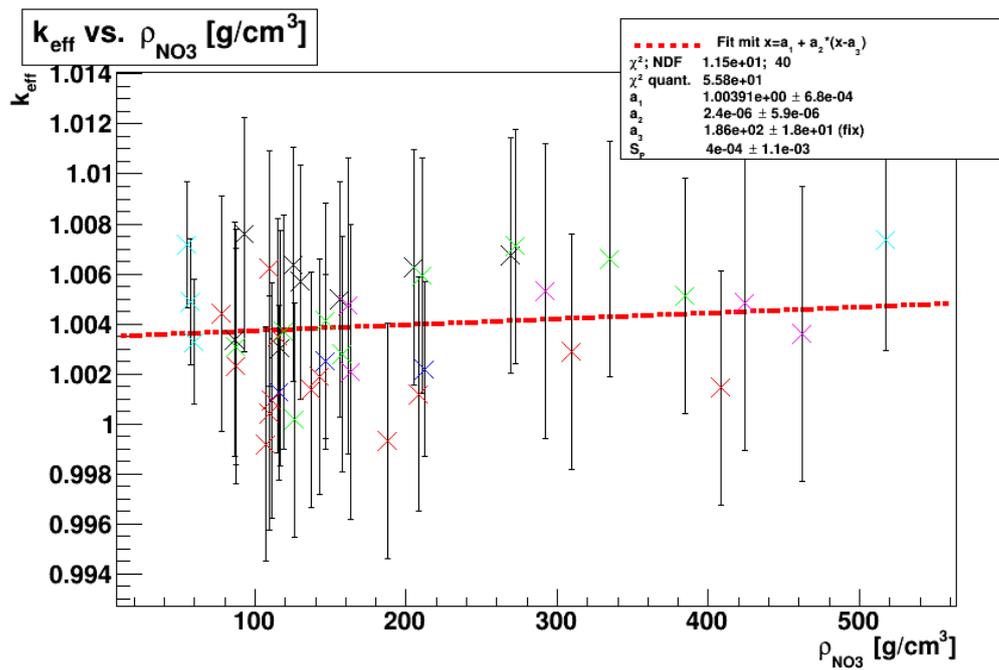


Abb. 3.11 Abhängigkeit von k_{eff} von der Nitratdichte

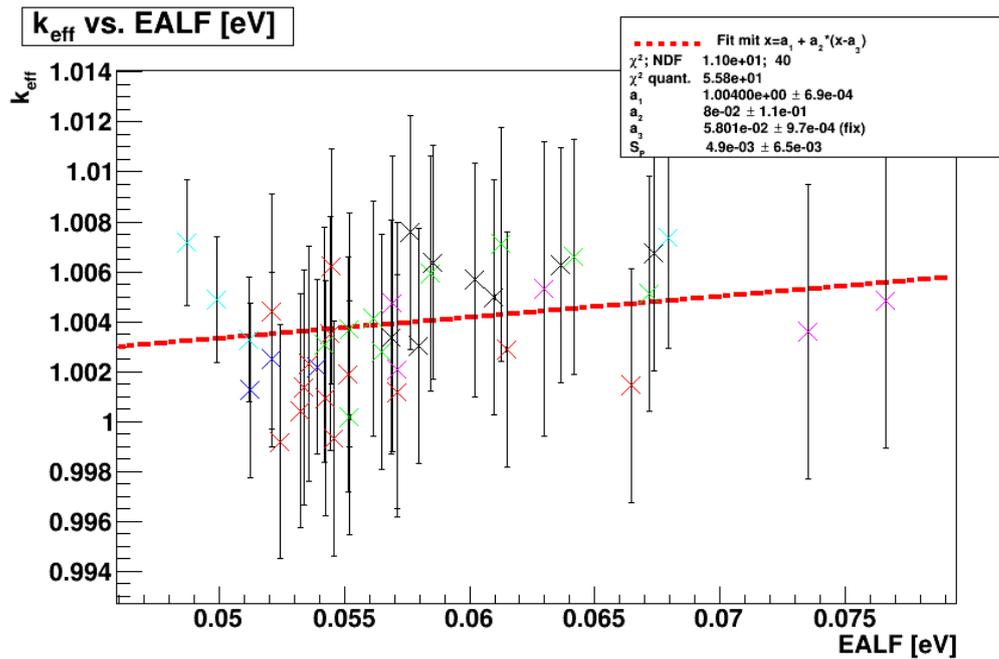


Abb. 3.12 Abhängigkeit von k_{eff} von dem Parameter EALF

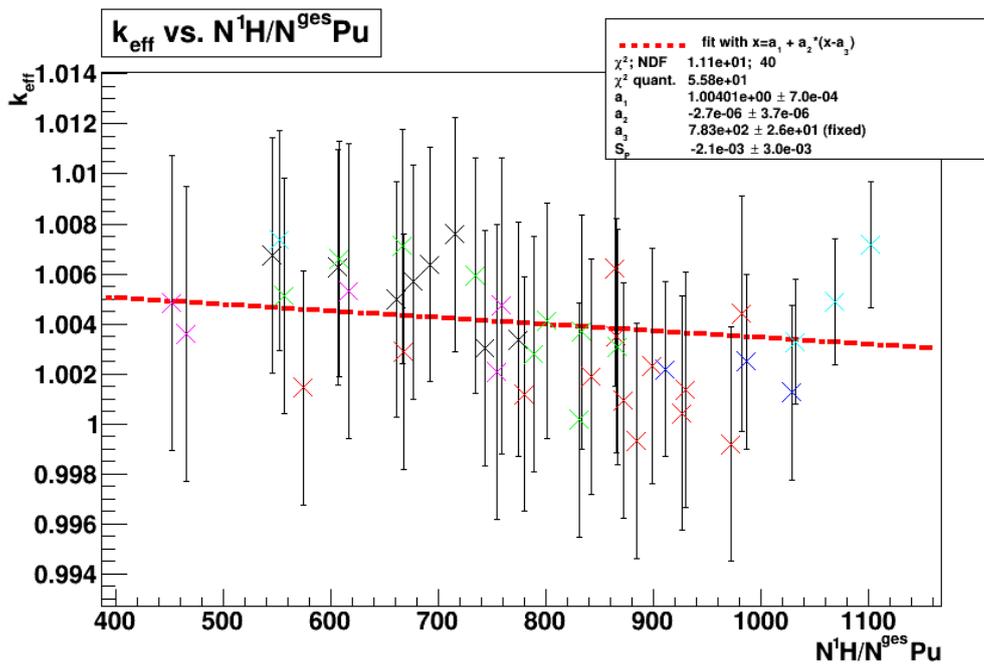


Abb. 3.13 Abhängigkeit von k_{eff} von dem Moderationsverhältnis

Tab. 3.2 Tabelle der Abhängigkeiten von k_{eff} von experimentellen Größen

Größe	a_1	a_2	a_3
ρ_{Pu}	$1,00406 \pm 0,00069$	$0,11 \pm 0,11$	$0,03294 \pm 0,00097$

Gew.% ²⁴⁰ Pu	1,00373 ± 0,00067	0,00092 ± 0,00057	3,32 ± 0,19
ρ _{NO3}	1,00391 ± 0,00068	2,4 e-6 ± 5,9 e-6	186 ± 18
EALF	1,00400 ± 0,00069	0,08 ± 0,11	0,05801 ± 0,00097
H/ ^{ges} Pu	1,00401 ± 0,00070	-2,7 e-6 ± 3,6 e-6	783 ± 26

In Tab. 3.2 sind die Fitparameter eingetragen. Dabei fällt auf, dass bis auf bei EALF der Fehler der Steigung größer ist als die Steigung selber, man also keine signifikanten Trends angeben kann. Bei Gew.-% ²⁴⁰Pu liegt ein Fehler von 62 % vor, sodass auch hier keine signifikante Aussage zu treffen ist, vor allem bei dem sehr kleinen Wert der Steigung.

Energie der durchschnittlichen Lethargie der spaltenden Neutronen (EALF)

Zusätzlich wurde der Einfluss von ρ_{Pu} auf die Energie der durchschnittlichen Lethargie der Spaltung auslösenden Neutronen (EALF) und die durchschnittliche erzeugte Neutronenzahl $\bar{\nu}$ untersucht. Die mittlere EALF liegt bei 0,0580±0,0095 eV und steigt mit ρ_{Pu} nahezu linear an, vgl. Abb. 3.13. Bei einer Steigung von 0,91116 hat der Fehler nur einen Wert von 0,000057. Dieser Anstieg liegt an dem mit zunehmender Plutoniumdichte abnehmenden Moderationsverhältnis H/Pu_{ges}.

Die mittlere erzeugte Neutronenzahl $\bar{\nu}$ liegt bei 2,8749±0,000036 und reduziert sich mit ρ_{Pu} mit einer Steigung von 0,0329±0,0010 nahezu linear, vgl. Abb. 3.15.

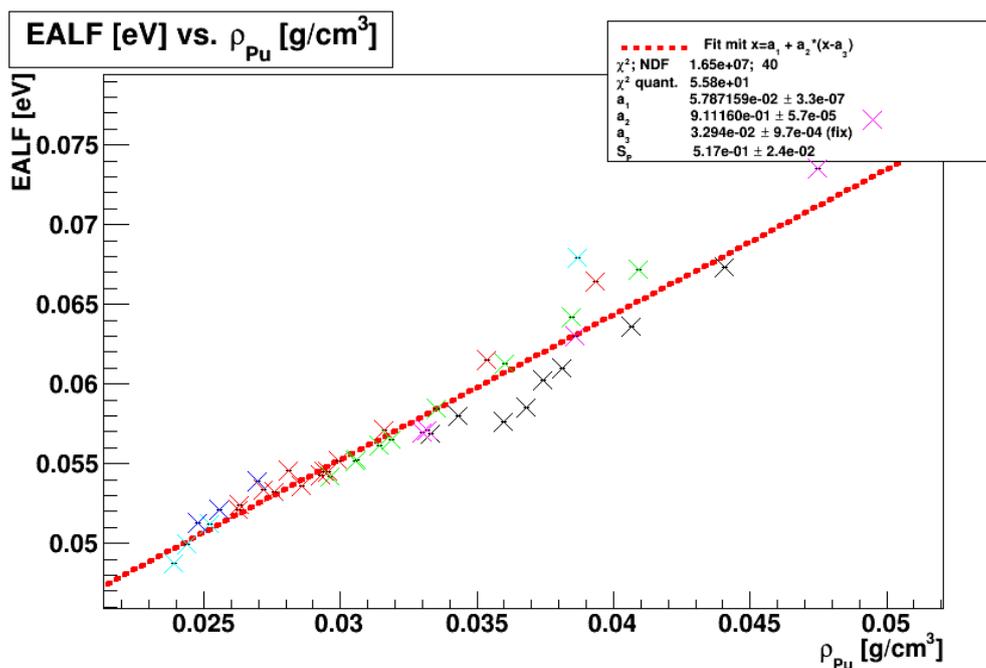


Abb. 3.14 Abhängigkeit von EALF von der Plutoniumdichte

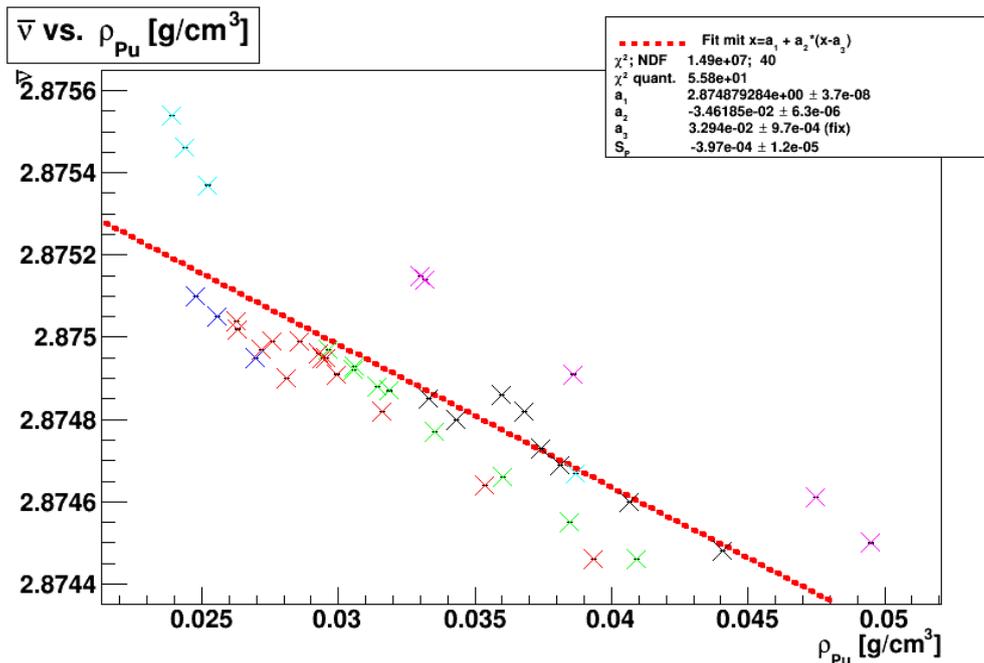


Abb. 3.15 Abhängigkeit der Anzahl der im Mittel freigesetzten Neutronen von der Plutoniumdichte

Diskussion der Experimente mit Cadmium-Beschichtung

Wie in Abb. 3.7 ersichtlich zeigen die berechneten effektiven Multiplikationsfaktoren der beiden Experimente mit cadmiumbeschichteten Stahlzylindern deutliche Abweichungen von $k_{\text{eff}} = 1,0$ hin zu nicht konservativen, d. h. niedrigeren Werten. Cadmium ist im thermischen Energiebereich ein starker Neutronenabsorber und reduziert bei der hier verwendeten Dicke von 0,03 inch \cong 0,762 mm den Fluss der thermischen Neutronen in etwa um einen Faktor 6×10^3 , abgeschätzt anhand einer typischen Neutronenabsorption von 1×10^5 pro 1 mm Cadmium. Dieser Wert wird wir aus einem totalen makroskopischen Reaktionsquerschnitt von 115 cm^{-1} abgeleitet /RIN91/. Effektiv wird also die ansonsten reaktivitätserhöhende Wirkung des Wasserreflektors deutlich reduziert. Die Analyse der Daten lässt vermuten, dass der absorbierende Effekt von KENO-Va überschätzt wird, oder dass die Angabe der Dicke der Cadmium-Schicht ungenau ist. Für die Cadmiumschichtdicke sind in der Experimentbeschreibung keine Fehler angegeben, dafür allerdings eine Erhöhung in k_{eff} von $\Delta k_{\text{eff}} = 0,0002$ für eine um ein Drittel reduzierte Schichtdicke von 0,02 inch \cong 0,508 mm. Laut der Experimentbeschreibung war dieser Wert für ähnliche Experimente typisch. Eigene Nachrechnungen mit KENO-Va ergaben ähnliche Erhöhungen von $\Delta k_{\text{eff}} = 0,00022$ bzw. 0,00045 für die beiden Fälle.

Selbst eine Schichtdicke von lediglich 0,01 inch \cong 0,254 mm ergab nur eine Erhöhung von $\Delta k_{\text{eff}} = 0,0013$ bzw. 0,0016.

Die Unterschätzung der Schichtdicke um 0,01 inch \cong 0,254 mm kann die Abweichung vom Durchschnitt der Nachrechnungen aller Fälle nicht erklären. Es wird angenommen, dass die Abweichung von $k_{\text{eff}} = 1,0000$ aus einem durch KENO-Va möglicherweise zu gering berechneten Einfluss von Cadmium herrührt, eventuell aufgrund fehlerhafter Wirkungsquerschnitte; dies ist allerdings spekulativ. Um einen systematischen Effekt von Cadmium auf die Anwendung der gerechneten kritischen Kurven zu ermitteln, müsste eine ausgiebige Studie mit mehreren Experimenten mit Cadmiumbeschichtung durchgeführt werden. Aus der Analyse der zwei hier betrachteten Fälle lässt sich lediglich sagen, dass man bei Berechnung von, bzw. bei der Anwendung der kritischen Kurven auf Systeme, die Cadmium enthalten, besondere Vorsicht walten lassen muss, um konservative Aussagen zu treffen.

Annahme von Vakuum statt Stahl- bzw. Aluminiumkugeln

Um den Einfluss des Kugelmaterials auf den Multiplikationsfaktor zu untersuchen, wurden die Rechnungen aller Fälle wiederholt mit der Annahme von Vakuum statt dem jeweils verwendeten Kugelmaterial. In Abb. 3.16 sind die k_{eff} -Werte für alle Fälle gezeigt, bei den Cadmium-beschichteten Fällen einmal mit (Fälle 46, 47) und noch einmal ohne Cadmium-Beschichtung (Fälle 53, 54). Man erkennt, dass das mittlere k_{eff} bei den meisten Fällen deutlich größer ist, sodass der Mittelwert hier bei $k_{\text{eff}} = 1,0127 \pm 0,0032$ liegt, also um $\Delta k_{\text{eff}} = 0,012$ höher als bei der Berechnung mit Kugelschale. Dieser Wert gilt wiederum ohne die Cadmium-beschichteten Fälle 46, 47, 53, 54. Dies zeigt die Neutronen absorbierende Wirkung von Stahl, hervorgerufen vor allem von dem enthaltenen Eisen mit einem mittleren thermischen Absorptionsquerschnitt von ca. 2,7 barn.

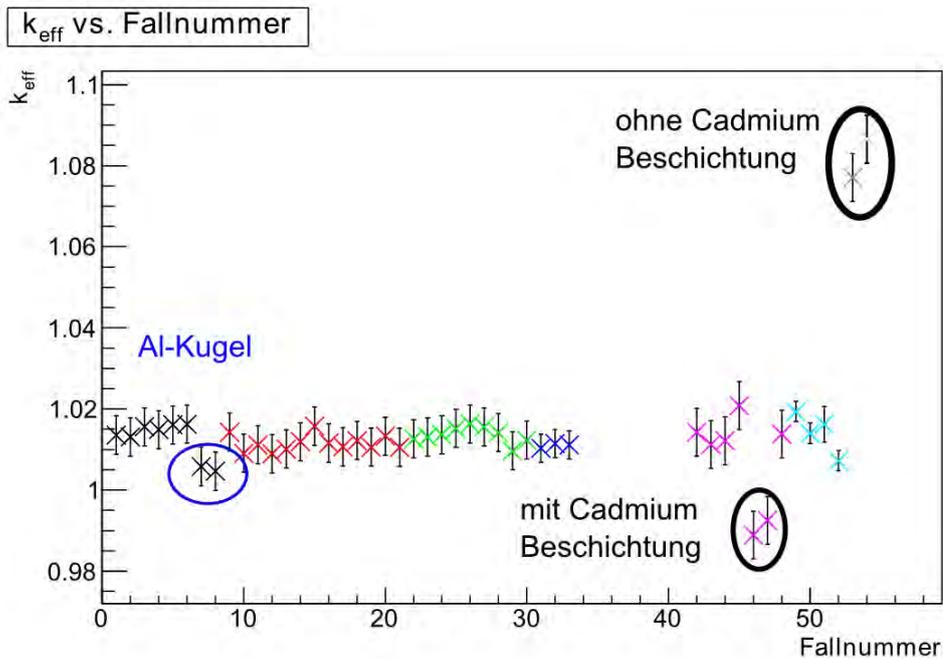


Abb. 3.16 Variation der effektiven Kritikalität inklusive Cadmium beschichteter Fälle ohne Kugelmateriale

Bei den zwei Fällen mit Aluminium-Kugel ist der Unterschied mit $\Delta k_{\text{eff}} = 0,0017$ deutlich geringer aufgrund des im Vergleich deutlich niedrigeren Absorptionswirkungsquerschnitts $\sigma(n, \gamma) \approx 0,23$ barn des einzigen natürlich vorkommenden, stabilen Isotops ^{27}Al .

Bei den beiden mit Cadmium beschichteten Fällen liegt k_{eff} mit $\Delta k_{\text{eff}} = 0,0054$ leicht höher, da auch hier die absorbierende Wirkung der Stahlkugel wegfällt. Da diese bei jenen zwei Fällen aber gegenüber der Absorption durch Cadmium sehr gering ist, fällt der Effekt deutlich schwächer aus.

Wird auch die Cadmium-Beschichtung für die Rechnung entfernt, erhält man die beiden Fälle 53, 54. Da hierbei die starke Absorption des Cadmiums entfällt, führt die Moderation und Reflektion der umgebenden Wasserschicht zu einer starken Erhöhung des berechneten k_{eff} um $\Delta k_{\text{eff}} = 0,088$, bzw. $0,094$. Dies kann nun mit der Erniedrigung von k_{eff} um $\Delta k_{\text{eff}} = 0,047$, bzw. $0,052$ bei Entfernung der Wasserschicht aber unter Beibehaltung der Cadmiumschicht und Stahlkugel verglichen werden. Man erkennt, dass hier, in diesem gut thermalisierten System, die $0,762\text{mm}$ Cadmium-Schicht auf k_{eff} relativ einen höheren Einfluss ausübt als die moderierende und reflektierende 30cm Wasserschicht.

Vergleich der Ergebnisse mit CSAS1 Rechnungen

Um die Ergebnisse mit den auf der CSAS1-Sequenz basierenden kritischen Parameterkurven vergleichen zu können, wurden die Rechnungen mit CSAS1 wiederholt. Diese Sequenz ist auf eindimensionale Systeme limitiert, was bei den meisten hier untersuchten, einfachen kugelsymmetrischen Anordnungen ausreichend ist.

Aus den bestehenden Eingabedateien für CSAS5 wurden hierzu in den jeweiligen Eingabedateien – wo sinnvoll – nur die Geometriebeschreibung und die Stichworte für CSAS5 entfernt, und die Sequenz auf CSAS1 geändert. Auch hier wird die Querschnittsbibliothek v7-238 zusammen mit CENTRM eingesetzt.

Die gerechneten effektiven Multiplikationsfaktoren sind in Abb. 3.17 gezeigt. Vergleicht man diese Abbildung mit Abb. 3.8, so ist eine große Ähnlichkeit zu erkennen. Das mittlere gewichtete k_{eff} liegt mit $\Delta k_{\text{eff}} = 0,00006$ bzw. $k_{\text{eff}} = 1,00405$ etwas höher, was deutlich innerhalb des experimentellen Benchmark-Fehlers und im Bereich der Genauigkeit der Monte Carlo Rechnungen für k_{eff} liegt.

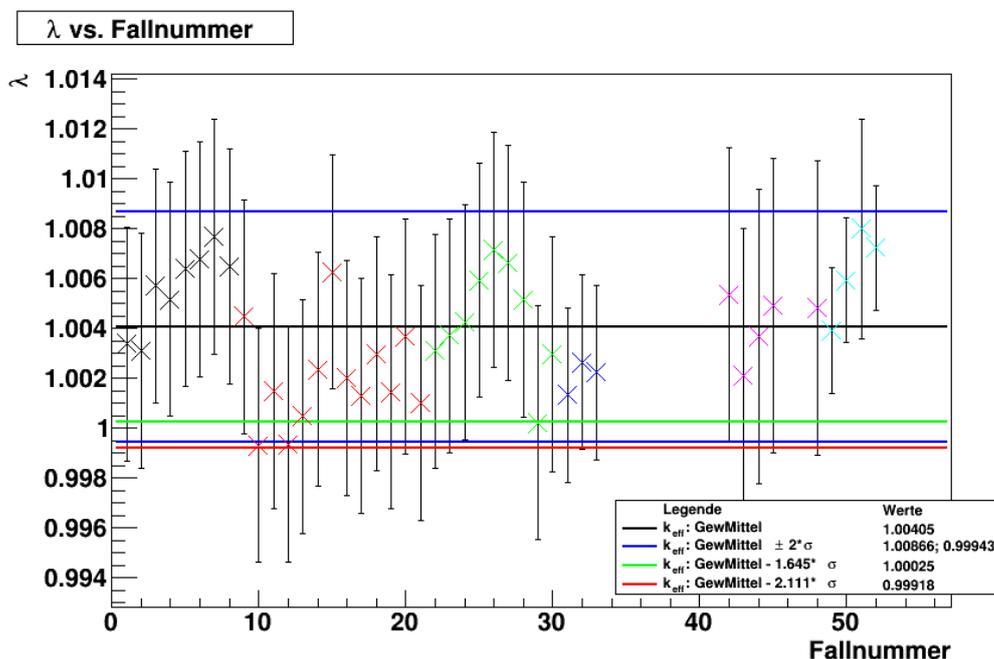


Abb. 3.17 Variation der mit CSAS1 berechneten effektiven Multiplikationsfaktoren ohne die mit Cadmium beschichteten Fälle

Somit können durch die Experimentnachrechnungen die mit CSAS5 gewonnenen Erkenntnisse auf die mit CSAS1 berechneten kritischen Parameterkurven übertragen werden.

3.2.5 Sensitivitätsanalysen

Im nächsten Schritt dieser Untersuchungen wurde eine Sensitivitätsanalyse durchgeführt, um zu ermitteln, in wie weit sich experimentelle Messfehler auf den berechneten Wert von k_{eff} auswirken. Die ersten beiden Fälle wurden aus dem Satz der nachgerechneten Experimente ausgewählt, da die dort vorliegenden Plutoniumdichten nahe an der Dichte $\rho_{\text{Pu,min.krit.Masse}} \sim 0,035 \text{ g/cm}^3$ liegen, bei der nach dem GRS „Handbuch zur Kritikalität“, Stand 2013, /GRS 13/ das Minimum der kritischen Kugelmasse bei optimaler Moderation und Reflexion auftritt, vgl. auch Abb. 3.1. Da in diesem Handbuch Kurven mit 0 bzw. 5 Gew.% ^{240}Pu angegeben sind, wurden zwei experimentelle Fälle gewählt, die möglichst diesen Werten entsprechen.

Für die Sensitivitätsanalyse wurden die Kernzahldichten in den Eingabedateien nicht direkt aus den Experimentbeschreibungen übernommen. Stattdessen wurden sie aus experimentell gemessenen Größen errechnet (s. u.). Die gemessenen Größen, daraus abgeleitete Größen und deren experimentellen Unsicherheiten sind in Tab. 3.3 für die zwei Serien aufgelistet. Dabei sind in unterschiedlichen Serien unterschiedliche Parameter direkt gemessen und mit unterschiedlichen Unsicherheiten behaftet. Die angegebenen Unsicherheiten werden mangels expliziter Angabe in der Beschreibung als Standardabweichung der Messgrößen interpretiert.

Tab. 3.3 Liste der mit Unsicherheiten behafteten experimentellen Parameter

Gemessene, fehler-behaftete Größen	Variable	% Unsicherheit PST-004	% Unsicherheit PST-020	Verteilung
Gesamtdichte	ρ_{ges}	0,03 %	0,4 %	beta(4,4)
Plutoniumdichte	ρ_{Pu}	1,0 %	1,0 %	beta(4,4)
Eisendichte	ρ_{Fe}	1,4 %	-	beta(4,4)
Nitratdichte	ρ_{NO_3}	0,6 %	-	beta(4,4)
Säure Molarität	N^a	-	1,0 %	beta(4,4)
Gewichtsprozent ^{238}Pu	$W\% \text{ } ^{238}\text{Pu}$	-	16,67 %	beta(4,4)
Gewichtsprozent ^{239}Pu	$W\% \text{ } ^{239}\text{Pu}$	-	0,04 %	beta(4,4)
Gewichtsprozent ^{240}Pu	$W\% \text{ } ^{240}\text{Pu}$	7 %	-	beta(4,4)

Gemessene, fehlerbehaftete Größen	Variable	% Unsicherheit PST-004	% Unsicherheit PST-020	Verteilung
Gewichtsprozent ^{241}Pu	$W\%^{241}\text{Pu}$	-	1,93 %	beta(4,4)
Gewichtsprozent ^{242}Pu	$W\%^{242}\text{Pu}$	-	11,11 %	beta(4,4)
Volumen	V	0,3 %	0,25 %	beta(4,4)
Wanddicke	r_{wall}	10 %	-	beta(4,4)
Temperatur	$T_{\text{H}_2\text{O}}$	0,09 %	-	beta(4,4)

Tab. 3.4 Liste der aus den Experiment-Parametern abgeleiteten Größen

Abgeleitete Größen und deren Unsicherheiten	Variable	% Unsicherheit PST-004	% Unsicherheit PST-020
Nitratdichte	ρ_{NO_3}	-	1,0 %
Wasserdichte	$\rho_{\text{H}_2\text{O}}$	0,9 %	0.862 %
Gewichtsprozent ^{239}Pu	$W\%^{239}\text{Pu}$	0,04 %	-
Gewichtsprozent ^{240}Pu	$W\%^{240}\text{Pu}$	-	0,75 %
Radius Spaltstoff	r_{Stoff}	0,08 %	0,08 %
Radius Kugelhülle	$r_{\text{Hülle}}$	0,08 %	0,08 %
Radius Wasserreflektor	$r_{\text{Reflektor}}$	0,02 %	0,02 %

Zur Berechnung der abgeleiteten Größen (Tab. 3.4) wurden folgende Formeln verwendet, soweit sie nicht direkt gemessen wurden /NEA 13/:

$$\rho_{\text{NO}_3} = 1,0373 * \rho_{\text{Pu}} + 62,04 * N^a \quad (\text{Serie 02})$$

$$\rho_{\text{H}_2\text{O}} = \rho_{\text{ges}} - \rho_{\text{Pu}} - \rho_{\text{NO}_3} - 1,0079 * N^a \quad (\text{Serie 020})$$

$$\rho_{\text{H}_2\text{O}} = \rho_{\text{ges}} - 0,9831 * \rho_{\text{Pu}} - 1,016 * \rho_{\text{NO}_3} - \rho_{\text{Fe}} \quad (\text{Serie 004})$$

$$W\%^{240}\text{Pu} = 100\% - W\%^{238}\text{Pu} - W\%^{239}\text{Pu} - W\%^{240}\text{Pu} - W\%^{241}\text{Pu} \quad (\text{Serie 020})$$

$$W\%^{239}\text{Pu} = 100\% - W\%^{239}\text{Pu} \quad (\text{Serie 004})$$

$$r_{\text{fuel}} = \sqrt[3]{\frac{3}{4} * \pi * V} \quad (3.5)$$

$$r_{Stoff} = \sqrt[3]{\frac{3}{4} * \pi * V} + \frac{d_{Schale}}{2}; \quad r_{Reflektor} = \sqrt[3]{\frac{3}{4} * \pi * V} + r_{Schale} + \frac{d_{H_2O}}{2} \quad (3.6)$$

Für die Erzeugung der Stichproben von zufällig verteilten Werten der gemessenen Größen wurde das Programm SUSA für Excel /KLO 08/ verwendet. In einer Konfigurationsdatei können neben der Samplegröße, dem Namen der Ausgabedatei und dem Trennzeichen für jede variierte Größe der Variablenname, die Art der Verteilung (normal-, gleich-, oder beta-verteilt), der Mittelwert und die Standardabweichung, bzw. die Grenzen der Verteilung, ein Startwert (seed) für den deterministischen Zufallszahlengenerator und ein beliebiger Kommentar angegeben werden. Daraufhin werden die entsprechenden Zufallsverteilungen für alle Variablen erstellt und im bewährten „.lst“-Format gespeichert.

Für die hier vorliegende Analyse wurden 500 Stichproben mit zufallsverteilten Eingangsgrößen gerechnet. Dabei wurde jeweils eine Beta(4,4) Verteilung angenommen, deren Grenzen entsprechend der angegebenen experimentellen Unsicherheiten gewählt wurden. Diese Verteilung ähnelt einer Gaußverteilung, die aber nach beiden Seiten definierte Grenzen besitzt (3σ). Die Mittelwerte der zufallsverteilten Größen stimmen mit den gegebenen Nominalwerten überein ($\delta < 0,07\%$). Der zu erwartende relative Fehler der Standardabweichungen ist gegeben durch:

$$\frac{\Delta\sigma}{\sigma} = \frac{1}{\sqrt{2*(n-1)}} = 3,2\%$$

. Die Abweichungen der Standardabweichungen von den gegebenen experimentellen Fehlern liegen zwischen 0,6% und 5,1%. Da es sich auch hierbei um eine Wahrscheinlichkeitsverteilung handelt, ist dieser Sachverhalt konsistent.

Aus diesen zufallsverteilten Messgrößen bzw. den daraus abgeleiteten Größen aus Tab. 3.4 werden die Kernzahldichten mit folgenden Formeln berechnet /NEA 13/:

$$N_{i\#Pu} = 6,0221e^{-4} * \frac{w\%_{i\#Pu}}{100*2\#\#} * \rho_{Pu}; \quad N_{Pu_{tot}} = \sum_{i=238}^{242} N_{iPu} \quad (3.7)$$

$$N_{^{14}N} = 9,7123e^{-6} * \rho_{NO_3}; \quad N_{^1H} = 6,68558e^{-5} * \rho_{H_2O} + N_{^{14}N} - 4 * N_{Pu_{tot}} \quad (3.8)$$

$$N_{16O} = 3,34279e^{-5} * \rho_{H_2O} + 3 * N_{14N}; \quad N_{26Fe} = 1,07832e^{-5} * \rho_{Fe} \quad (3.9)$$

Die Verteilung der zufallsverteilten Eingangsgrößen der KENO-Va Rechnungen (Kernzahl-dichten, Radien und Temperaturen) wurden folgendermaßen auf Plausibilität überprüft: Ihre Mittelwerte weichen weniger als 0,1 % von den Nominalwerten der Referenzfälle ab. Die Standardabweichungen dieser Werte wurden mit experimentell gegebenen Fehlern verglichen. Obwohl eine genaue Übereinstimmung aufgrund der Formeln zur Berechnung nicht gegeben ist, kann so abgeschätzt werden, dass die Unsicherheiten der Verteilungen plausibel sind. Die Berechnung und das anschließende Erzeugen der zahlreichen KENO-Va Eingabedateien erfolgt automatisiert mit dem Programmpaket SUnCISTT /ROW 14/. Die Parameter der drei gerechneten Fälle, die sich am meisten unterscheiden, sind in Tab. 3.5 eingetragen.

Tab. 3.5 Tabelle der Parameter-Unterschiede zwischen den betrachteten experimentellen Serien mit Plutoniumnitratlösungen

Parameter	PST-004_04	PST-020_11
W% ²⁴⁰ Pu	0,54 %	4,66 %
$\rho_{Pu} [g/cm^3]$	0,02809	0,0332
Pu Komponenten	^{239,240} Pu	^{238,239,240,241,242} Pu
Ermittlung ρ_{NO_3}	gemessen	Säure Molarität $\rightarrow \rho_{NO_3}$

Für die Kritikalitätsberechnungen wurde wieder die Sequenz CSAS5 mit der Wirkungsquerschnitts-Bibliothek v7-238 verwendet. Um bei den 500 Stichproben der Sensitivitätsanalyse den Rechenaufwand nicht unnötig hoch werden zu lassen, wurde das Abbruchkriterium für die Monte Carlo-Rechnungen auf 5.0×10^{-4} erhöht. Dieser Wert liegt immer noch etwa eine Größenordnung unter den zu erwartenden experimentellen Unsicherheiten von $5,9 \times 10^{-3}$.

Nach Berechnung aller 500 Stichproben können diese statistisch ausgewertet und die Abhängigkeiten von den experimentell unsicheren Parametern angegeben werden. Die Ergebnisse der Rechnungen werden automatisiert mit SUnCISTT ausgelesen und in eine Tabelle übertragen, die zur weiteren Analyse verwendet wird.

Multiplikationsfaktoren

In Tab. 3.6 ist ein Vergleich der ermittelten k_{eff} -Werte und deren Fehler angegeben.

Tab. 3.6 Liste der k_{eff} -Werte aus der Sensitivitätsanalyse

Parameter	PST-004_04	PST-020_11	PST-020_12
$k_{\text{eff,Bench}}$	1,0000	1,0000	1,0000
$\sigma(k_{\text{eff,Bench}})$	$\pm 0,0059$	$\pm 0,0059$	$\pm 0,0059$
$k_{\text{eff,Ref.NsAusExp}}$	$0,99932 \pm 5e-5$	$1,00209 \pm 5e-5$	$1,00359 \pm 5e-5$
$k_{\text{eff,Ref.NsAus}\rho}$	$0,99933 \pm 5e-5$	$1,00206 \pm 5e-5$	$1,00353 \pm 5e-5$
$k_{\text{eff,mean}}$	$0,99973 \pm 1,19e-4$	$1,00219 \pm 1,16e-4$	$1,00368 \pm 1,57e-4$
$\sigma(k_{\text{eff,mean}})$	$\pm 0,002665$	$\pm 0,002601$	$\pm 0,003512$

$k_{\text{eff,Bench}}$ steht für den experimentellen Benchmark k_{eff} -Wert, der als $k_{\text{eff}} = 1,0$ für den erreichten kritischen Zustand festgelegt ist. Die angegebenen Unsicherheiten $\sigma(k_{\text{eff,Bench}})$ sind die durch Fehlerfortpflanzung der experimentellen Größen ermittelten Unsicherheiten in k_{eff} nach /NEA 13/. Allerdings wurden diese nur für die Serie PST-020 berechnet; für PST-004 wurden sie als obere Fehlergrenze von anderen Serien übernommen. $k_{\text{eff,Ref.NsAusExp}}$ steht für den Referenzfall, bei dem die Kernzahldichten N_s direkt aus den Experimentbeschreibungen übernommen sind (s. o.). $k_{\text{eff,Ref.NsAus}\rho}$ steht für den Referenzfall, bei dem die Kernzahldichten N_s aus den Referenzdichten ρ errechnet wurden. Die Unsicherheiten in $k_{\text{eff,Ref.NsAusExp}}$ und $k_{\text{eff,Ref.NsAus}\rho}$ sind durch das Abbruchkriterium der Monte Carlo-Rechnungen gegeben. Innerhalb dieser Fehler stimmen die jeweiligen Werte gut überein.

$k_{\text{eff,mean}}$ steht für das mittlere k_{eff} nach der Sensitivitätsanalyse, der angegebene Fehler ist das Abbruchkriterium für die Monte Carlo-Rechnung jedes Falles. $\sigma(k_{\text{eff,mean}})$ steht für die Standardabweichung von $k_{\text{eff,mean}}$. Für die beiden betrachteten Fälle stimmen die $k_{\text{eff,mean}}$ mit den k_{eff} der Nominalfälle innerhalb einer Standardabweichung überein.

$\sigma(k_{\text{eff,mean}})$, der Fehler von k_{eff} aus dem Monte Carlo-Ansatz der Fehlerfortpflanzung ist für alle drei betrachteten Fälle in etwa halb so groß wie der entsprechende Fehler von k_{eff} aus der Fehlerfortpflanzung, der in den Experimentbeschreibungen angegeben ist. Laut den Experimentbeschreibungen in /NEA 13/ wurden für die Serie PST-020 nur diejenigen Lösungen ausgewertet, bei denen erwartet wurde, dass die Parameter den größtmöglichen Effekt auf k_{eff} haben. Daraus wurde eine einzige „Worst-Case“ Unsi-

cherheit ermittelt, die größer als die Unsicherheiten der einzelnen Experimente sein sollte. Wie schon erwähnt, wurde für die Serie PST-004 die Unsicherheit nicht individuell berechnet, sondern als „Worst-Case“ Unsicherheit der Wert von den 12 Inch-Kugeln übernommen. Aus diesen Gründen ist nicht zu erwarten, dass die für jeden Fall individuell berechneten Unsicherheiten genau mit den angegebenen experimentellen Werten übereinstimmen, sondern geringere Werte aufweisen.

Ergebnisse der Sensitivitätsanalyse

Im Folgenden wird die Sensitivitätsanalyse von k_{eff} auf die unsicherheitsbehafteten experimentellen Größen exemplarisch anhand der Fälle PST-020-11 und PST-004-04 dargestellt. Mit SUSA kann durch Einlesen sowohl der Eingabeliste als auch der Ergebnisliste die Sensitivitäten der Ergebnisgrößen auf die Variation der Eingabeparameter berechnet werden. Hierzu werden sowohl der Pearson Korrelationskoeffizient als auch der p-Wert berechnet. Der erstgenannte Wert gibt an, wie stark zwei Verteilungen miteinander korreliert sind (großer Wert bedeutet hohe Korrelation), der zweite Wert ist ein Maß dafür, wie wahrscheinlich es ist, dass nicht-korrelierte Verteilungen die entsprechende Abhängigkeit erzeugen (kleiner Wert bedeutet hohe Wahrscheinlichkeit für eine Korrelation).

In Abb. 3.18 sind diese Ergebnisse für den Fall PST-020-11 dargestellt. Deutlich zu erkennen ist die positive Korrelation von k_{eff} mit ρ_{Pu} und ρ_{Ges} , während die Korrelation mit der Säuremolarität ρ_{Na} negativ ist. Diese Effekte können wie folgt erklärt werden: Mit zunehmendem ρ_{Pu} steht mehr Spaltstoff zur Verfügung, was zu einer Erhöhung der Reaktivität führt. Bei Erhöhung von ρ_{Na} sinkt das Moderationsverhältnis in dieser untermodierten Lösung leicht, und $N_{14\text{N}}$ nimmt stark zu, so dass dessen absorbierende Wirkung zusätzlich steigt. Mit zunehmendem ρ_{Ges} bei gleichbleibendem Moderationsverhältnis nimmt die gesamte zur Verfügung stehende Spaltmasse zu, was eine positive Wirkung auf k_{eff} hat. Eine leichte Abhängigkeit ist auch vom Volumen erkennbar, mit dem die zur Verfügung stehende Spaltmasse steigt. Mit zunehmenden Gew.-% ^{239}Pu steigt k_{eff} leicht an, da der sein Wirkungsquerschnitt der Spaltung den der anderen Isotope übertrifft.

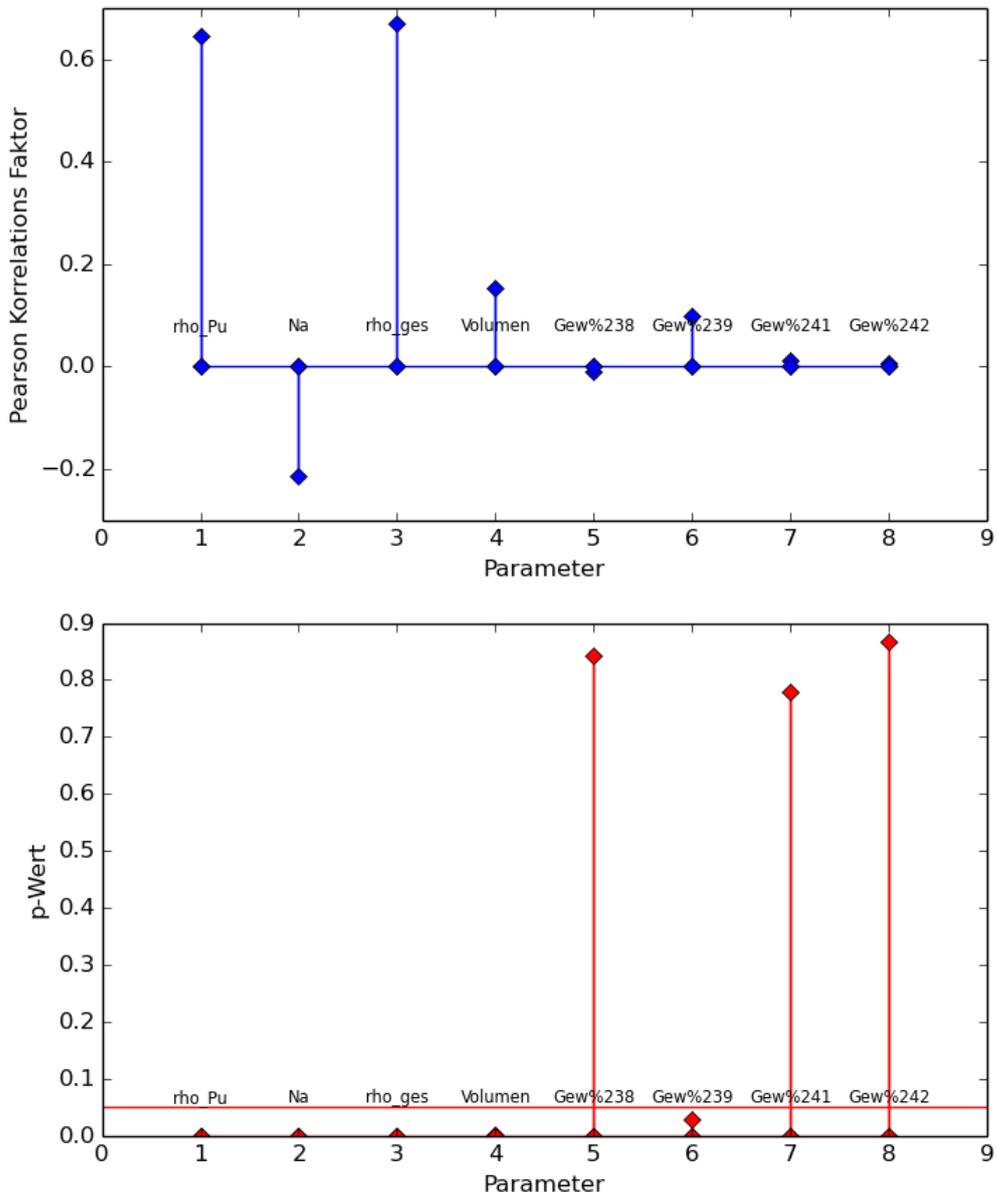


Abb. 3.18 Korrelationen von k_{eff} mit den experimentellen Eingangsgrößen für den Fall PST-020-11

In dieser Sensitivitätsanalyse werden die Pearson Korrelationskoeffizienten zwischen den variierten Parametern und k_{eff} berechnet. Dies ergibt ein Maß für den Einfluss der tatsächlichen Unsicherheiten der einzelnen Parameter auf die Unsicherheit von k_{eff} .

Dabei ist zu erkennen, dass vor allem die chemische Zusammensetzung (Dichteleration) der Lösung für die Bestimmung relevant ist und nicht der Plutoniumvektor oder

geometrische Größen. Die hier betrachtete Pearson Korrelation ist nicht zu verwechseln mit der Sensitivität von k_{eff} auf die einzelnen Größen. Da z. B. die experimentellen Unsicherheiten des Volumens und der Gew.-% von ^{239}Pu sehr gering sind, sind auch deren Korrelationen mit k_{eff} relativ gering.

Eine weitere Möglichkeit der Analyse ist die Angabe der Sensitivität: $S_P = \frac{\Delta y/y}{\Delta x/x}$. Diese gibt die auf die Mittelwerte der x und y-Größen normierte Steigung an, wenn man k_{eff} gegen die entsprechenden Parameter aufträgt. In Abb. 3.19 ist k_{eff} in Abhängigkeit von ρ_{ges} aufgetragen. Die starke positive Sensitivität ist evident. Die Korrelation ist dadurch ebenfalls positiv. Da die Streuung der Werte in y-Richtung gering ist, hat auch der Korrelationskoeffizient einen hohen Wert.

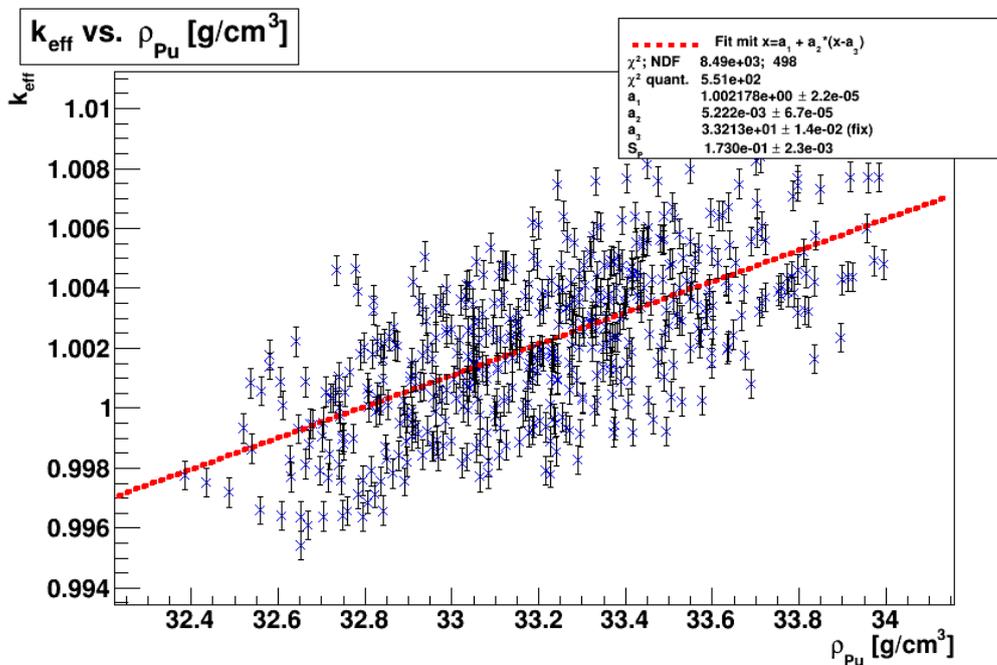


Abb. 3.19 k_{eff} in Abhängigkeit von der Plutoniumdichte für PST-020-11

$$\delta S_P = \left(\left| \frac{\delta(\Delta y/\Delta x)}{\Delta y/\Delta x} \right| + \left| \frac{\delta x}{x} \right| + \left| \frac{\delta x}{x} \right| \right) * S_P$$

Der Fehler der Sensitivität ist die Summe der Fehler der Steigung und der Mittelwerte der x und y-Größen. In Tab. 3.7 sind die Korrelation R, S_P und δS_P für alle fehlerbehafteten Größen eingetragen, wobei die höchsten Einträge rot, die mittleren orange und die vernachlässigbaren schwarz gehalten sind.

Teilt man nun S_P durch δS_P , was dem inversen relativen Fehler von S_P entspricht, so erhält man ein Maß für die Signifikanz der Sensitivität. Die Verhältnisse dieser Werte

entsprechen in etwa den Verhältnissen der Korrelationen R, die in Abb. 3.18 dargestellt sind. Dabei fällt auf, dass die relevanten Korrelationen nicht zwangsläufig mit den relevanten Sensitivitäten zusammenfallen, man also zwischen diesen klar unterscheiden muss.

Tab. 3.7 Liste der ermittelten Sensitivitäten und deren Fehler

c	ρ_{Pu}	N^a	ρ_{ges}	V	$W\% \text{ } ^{238}\text{Pu}$	$W\% \text{ } ^{239}\text{Pu}$	$W\% \text{ } ^{241}\text{Pu}$	$W\% \text{ } ^{242}\text{Pu}$
R	0.64	-0.21	0.67	0.15	-0.0075	0.097	0.012	0.007
S_P	0.17	-0.06	0.44	0.16	-0.00015	0.65	0.0017	0.00032
δS_P	0.0023	0.0022	0.0055	0.009	0.00013	0.06	0.0011	0.0002
$\frac{S_P}{\delta S_P}$	73.9	-27.3	80.0	17.8	-1.2	10.8	1.5	1.6

Die gleiche Sensitivitätsanalyse für den Fall PST-040-04 ist in Abb. 3.20 gezeigt und die entsprechenden Korrelationskoeffizienten und Sensitivitäten in Tab. 3.8 zusammengefasst.

Für diesen Fall sind die Korrelationen etwas anders verteilt. Zum einen sind hier in der Experimentbeschreibung andere Messgrößen angegeben, wie z. B. die Eisendichte ρ_{Fe} in der Lösung, nur ^{239}Pu und ^{240}Pu und die direkte Messung der Dichte ρ_{NO_3} der Nitrationen NO_3^- . Zum anderen ist die Unsicherheit der Gesamtdichte um mehr als einen Faktor 10 kleiner angegeben, weshalb die Korrelation von k_{eff} mit ρ_{Ges} nahezu verschwindet.

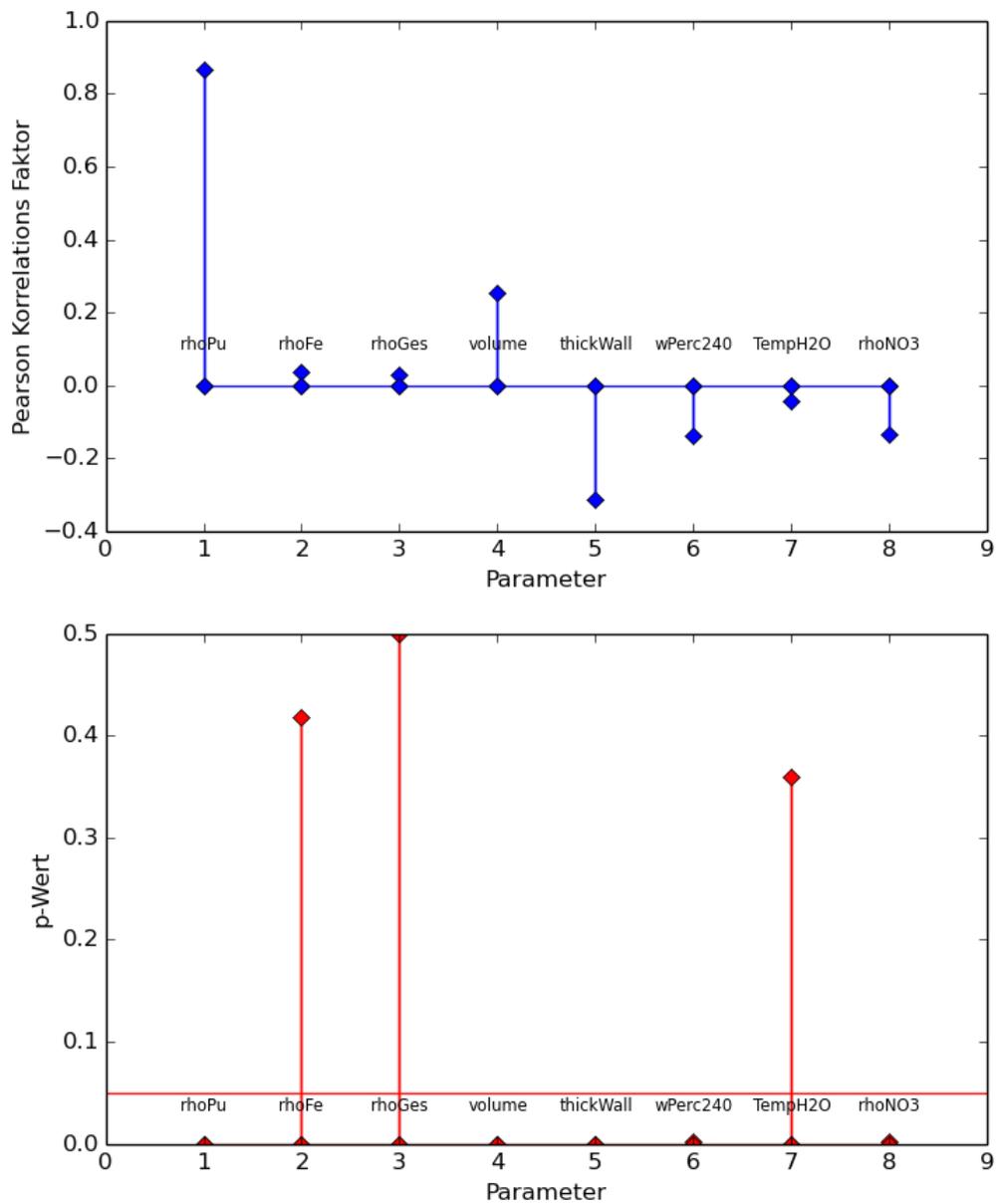


Abb. 3.20 Korrelationen von k_{eff} mit den experimentellen Eingangsgrößen für den Fall PST-020-04

Die Sensitivitäten für Fall PST-020-04 zeigen ein ähnliches Bild wie für Fall PST-020-12. Die wichtigsten Beiträge sind die Plutonium- und die Gesamtdichte, das Volumen und der Anteil des spaltbaren Plutoniums. $S_P/\delta S_P$ stimmt auch für den Fall PST-004-04 gut mit dem Ergebnis der Sensitivitätsanalyse überein.

Tab. 3.8 Tabelle der Korrelationen und Sensitivitäten und deren Fehler des Falls PST-004-04

	ρ_{Pu}	ρ_{Fe}	ρ_{ges}	V	r_{Wall}	$W\% \text{ } ^{240}Pu$	T_{H_2O}	ρ_{NO_3}
PST-004-04								
R	0.87	0.039	0.028	0.25	-0.31	-0.14	-0.044	-0.13
S_p	0.24	0.0064	0.23	0.23	-0.008	-0.00052	-0.13	-0.056
δS_p	0.0024	0.0016	0.072	0.0075	0.00026	0.00032	0.023	0.0035
$\frac{S_p}{\delta S_p}$	100.0	4.0	3.2	30.7	-30.8	-1.6	-5.7	-16.0

Die hier vorgestellte Sensitivitätsanalyse wurde auch für alle Fälle der Serien 003, 004, 005 und 020 durchgeführt. Dabei ergibt die Analyse innerhalb einer Serie weitgehend ähnliche Sensitivitäten. Da die gemessenen Größen und deren experimentelle Fehler der Serien 003 und 005 die gleichen sind, wie bei Serie 004, fallen auch die entsprechenden Sensitivitäten sehr ähnlich aus und lassen keine weiteren Erkenntnisse zu. Aus diesem Grund sind sie hier nicht weiter beschrieben.

3.2.6 Benchmark-Korrelationen

Im vorangegangenen Kapitel wurde die Sensitivität von k_{eff} der einzelnen Fälle auf die mit experimentellen Unsicherheiten behafteten Eingangsgrößen betrachtet. In diesem Kapitel wird der Einfluss von Korrelationen dieser Unsicherheiten zwischen verschiedenen Experimenten bzw. Experimentkonfigurationen untersucht. Ziel ist es zu ermitteln, ob diese Korrelationen relevant sind und betrachtet werden müssen und sich so ein zusätzlicher Bias des Codes ergibt, oder ob sie bei der Biasbestimmung vernachlässigt werden können.

Zur Berechnung der Korrelationen zwischen den Fällen wurde die oben beschriebene Sensitivitätsanalyse der Experimentserien 003, 004, 005 und 020 wiederholt, wobei die zwischen unterschiedlichen Fällen innerhalb einer Serie korrelierten Eingangsgrößen nicht unabhängig innerhalb ihrer Fehlergrenzen variiert wurden, sondern jeweils gemeinsam. Für die Serien 003, 004 und 005 sind dies jeweils das Kugelvolumen, die Wanddicke und die Anreicherung von ^{240}Pu . Letztere wurde für unterschiedliche Anreicherungen jeweils neu variiert (siehe Abb. 3.6). Bei Serie 020 wurden das Kugelvolumen, und die Anreicherung von ^{238}Pu , ^{240}Pu , ^{241}Pu und ^{242}Pu gemeinsam für alle Fälle variiert. Aufgrund der Menge der zu rechnenden Fälle (36 Fälle, 100 Proben pro Fall)

und der geringen Abweichung zu CSAS5 Rechnungen (vgl. auch Kap. 3.4) wurde die Sequenz CSAS1 verwendet. In Abb. 3.21 ist die Korrelationsmatrix aller gerechneten Fälle gezeigt. Wie zu erwarten sind die Korrelationen zwischen den Serien verschwindend gering, da sämtliche Eingangsparameter nur innerhalb einer Serie zusammen variiert wurden. Die Diagonalität der Matrix und eine Selbstkorrelation aller Fälle von 1,0 dienen als erste Überprüfung der Konsistenz und Richtigkeit der Korrelationsrechnung.

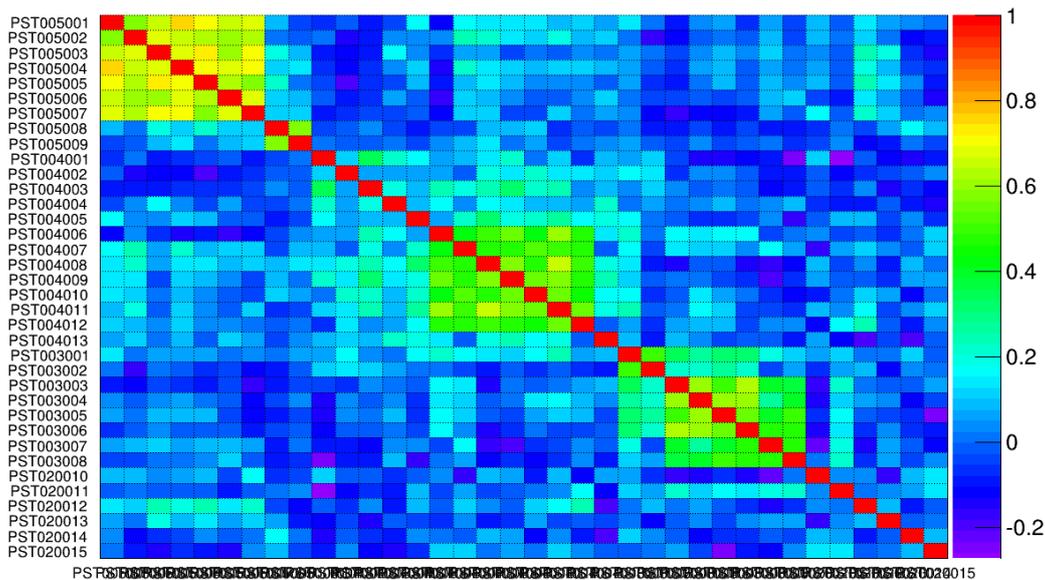


Abb. 3.21 Korrelationsmatrix der Multiplikationsfaktoren aller betrachteten Benchmark-Experimente

Wird die Abbildung von unten rechts nach oben links betrachtet, können folgende Sachverhalte festgestellt werden. Die Fälle der Serie 020 sind untereinander gar nicht korreliert. Dies kann damit erklärt werden, dass der experimentelle Fehler von ρ_{ges} , das für jeden Fall einzeln variiert ist, mit 0,4% um mehr als einen Faktor 10 größer ist als bei den anderen Serien. Schon in der Sensitivitätsanalyse wurde für diese Serie gezeigt, dass k_{eff} neben ρ_{ges} hauptsächlich auf ρ_{Pu} und N_a sensitiv reagiert, die alle individuell für jeden Fall variiert werden. Es ist also keine Korrelation zwischen den Fällen zu erwarten.

Die anderen drei Serien weisen jeweils einen Block von korrelierten Experimenten auf, wobei die Korrelationen zwischen Fällen mit gleicher Anreicherung von ^{240}Pu auftreten. Die Korrelationen sind mit Werten zwischen 0,4 und 0,7 als mittelstark zu bewerten. Auf der einen Seite hat die Sensitivitätsanalyse in Kap. 3.2.5 gezeigt, dass k_{eff} für diese

Fälle auch auf das Volumen, die Wanddicke der Kugel und die Anreicherung von ^{240}Pu sensitiv reagiert. Da die Variationen dieser Eingangsgrößen bei gleicher Anreicherung für alle Fälle einer Serie gleich sind, ist eine gewisse Korrelation zu erwarten. Da die Sensitivität von k_{eff} auf ρ_{Pu} aber dominierend ist, sind die Korrelationen nicht sehr stark ausgeprägt. Damit eine Korrelation auftritt, muss die Anreicherung von ^{240}Pu einen gewissen Grad überschreiten. Die ersten vier Fälle der Serie 004 sind unkorreliert, während die Korrelation mit steigender Anreicherung von den ersten beiden Fällen der Serie 003 über die Serien 003 und 004 zu 005 zunimmt. Je größer die Gew.-% ^{240}Pu werden, desto sensibler reagiert k_{eff} auf dessen Variation.

Wird die entsprechende Korrelationsmatrix der gleichen Fälle mit unkorrelierten Eingangsgrößen berechnet, so findet sich bis auf der Diagonalen von 1,0 nur ein leichtes insignifikanten Schwanken der Korrelationen um 0.

In einem weiteren Schritt könnte analysiert werden, in welchem Grad die Serien untereinander aufgrund von Verwendung von denselben Experimentaufbauten oder Plutoniumumlösungen korreliert sind. Dafür wären eine weitere ausführliche Literaturrecherche und weiterführende Rechnungen notwendig, was den Rahmen der vorliegenden Arbeit sprengt.

Berechnung des Bias unter Berücksichtigung von Korrelationen

In einem weiteren Schritt wurde der Einfluss der Korrelationen auf die Berechnung des Bias untersucht. Dafür wurde das RooFitLab Werkzeug verwendet [MUE 10], das am Karlsruher Institute for Technology (KIT) auf der Basis von ROOT entwickelt wurde. Mit diesem kann der Mittelwert von k_{eff} unter verschiedenen Bedingungen berechnet werden: Der einfache Mittelwert, ein linearer Fit unter Berücksichtigung der Unsicherheiten von k_{eff} und ein Fit unter Berücksichtigung der Unsicherheiten der k_{eff} der Benchmark-Experimente und deren Korrelationen. Die Ergebnisse sind in Tab. 3.9 zusammengefasst.

Tab. 3.9 Fit von k_{eff} , ausgewertet bei einer Plutoniumkonzentration von $\rho_{\text{Pu}}=35 \text{ g/l}$

	Fit Variante		
	Mittelwert	k_{eff} Varianzen	k_{eff} Kovarianzen
a [1/eV]	-	$0,000210 \pm 0,000089$	$0,000127 \pm 0,000076$
b	$1,00403 \pm 0,00050$	$1,00421 \pm 0,00051$	$1,00373 \pm 0,00066$

Die berechneten Werte für k_{eff} stimmen bei allen drei Methoden innerhalb ihrer Fehlertoleranzen überein. Auch stimmen die Werte mit den zuvor berechneten Benchmark- k_{eff} -Werten innerhalb der Fehlertoleranzen überein. Für diese einfachen Experimentkonfigurationen und den geringen Einflüssen der korrelierten Eingangsgrößen auf k_{eff} ergibt sich somit kein signifikanter Einfluss auf die Berechnung des Bias in k_{eff} bei Beachtung der Korrelationen. Man kann daraus folgern, dass diese Experimente mit Plutoniumnitrat-Lösungen im Hinblick auf Validierung von Kritikalitätsrechenverfahren hinreichend unabhängig sind und in vollem Umfang für diesen Zweck herangezogen werden können. Insbesondere sind die Aussagen über den Bias von CSAS1 für die Berechnung der kritischen Parameterkurven ohne weitere Betrachtung von Korrelationen gültig.

Diese Aussage ist nicht allgemein gültig. Es sei auf vergleichbare Analysen von wasserreflektierten und -moderierten UO_2 -Brennstab-Anordnungen hingewiesen, beschrieben in /BEH 14/, bei denen die starke Korrelation der gerechneten Fälle zu deutlichen Abweichungen von k_{eff} bei Betrachtung der Kovarianzen geführt hat. Es kann also keine generelle Aussage über die Wichtigkeit der Beachtung von Kovarianzen abgeleitet werden. Dies muss von Fall zu Fall individuell entschieden werden.

3.3 Kritische Experimente mit ^{233}U Uranylinitrat

3.3.1 Auswahl der Experimente

Zur Validierung der neu berechneten kritischen Parameterkurven für ^{233}U Uranylinitrat wurden folgende Experimente aus dem ICSBEP Handbuch für kritische Benchmark-Experimente /NEA 13/ ausgewählt, nachgerechnet und ausgewertet: U233SI-001(001), U233ST-001(001-005), U233ST-002(004), U233ST-005(002), U233ST-006(038a), U233ST-008(001), U233ST-009(001-004), U233ST-012(001), U233ST-013(001), U233ST-014(001-016), U233ST-016(001,007,012,013,019,022,025,029,033) und U233ST-017(221h,225b,232b,249c).

Bei allen diesen Experimenten handelt es sich um Anordnungen von verschiedenen Behältern gefüllt mit Uranylinitratlösungen mit hohem ^{233}U -Anteil $> 95\%$ im Uran. Es kamen Kugeln, Zylinder und Flaschen zur Anwendung, einzeln oder in verschiedenen Aufstellungen, reflektiert (H_2O oder Plexiglas) und unreflektiert. Der jeweilige genaue Aufbau ist in den Beschreibungen der Experimente im Handbuch wiedergegeben. Zu-

sätzlich werden die Fälle von kleinster kritischer Masse und kleinstem kritischem Volumen in Kugelgeometrie mit 100% ^{233}U Lösung als Anwendungsfälle betrachtet.

3.3.1.1 Berechnete k_{eff} Werte der kritischen Benchmark-Experimente und Auswertung

In Abb. 3.22 sind die errechneten Multiplikationsfaktoren k_{eff} für alle untersuchten kritischen Benchmark-Experimente und -Konfigurationen aufgetragen. Mit eingezeichnet sind der kritische Grenzwert $k = 1,0$, der Mittelwert der errechneten Multiplikationsfaktoren $k_M = 1,00253$, sowie das 95%/95%-Toleranzintervall $k_{\text{limit}} = 0,98833$ auf Basis der Standardabweichung von $1\sigma = 0,0071$ und des Stichprobenumfangs von 45 Experimenten.

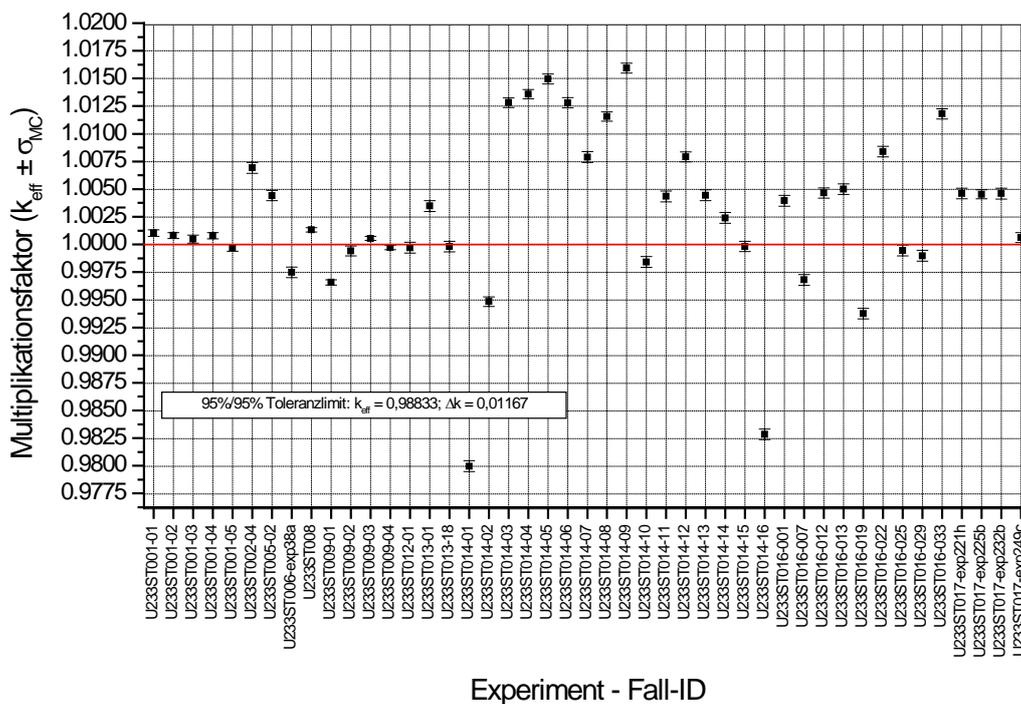


Abb. 3.22 Berechnete Multiplikationsfaktoren k_{eff} der analysierten kritischen Benchmark-Experimente mit Mittelwert und 95%/95%-Toleranzintervall

In Abb. 3.23 sind die berechneten k_{eff} -Werte der Experiment-Nachrechnungen nochmals dargestellt. Schwarz gekennzeichnet sind die im ICSBEP-Handbuch für kritische Experimente aufgeführten Werte für das Benchmark Modell, die Fehlerbalken zeigen die experimentellen Fehler (1σ) an. Rot sind die Nominalfälle wie in Abb. 3.22 darge-

stellt, die Fehlerbalken zeigen hier die Monte Carlo Genauigkeit an. Blau sind die Ergebnisse der TSUNAMI-3D-K5 /SCA11/, /REA11/ Rechnungen eingezeichnet, die Fehlerbalken zeigen Unsicherheiten in k_{eff} aufgrund von Unsicherheiten in den Wirkungsquerschnitten an. Grün sind die Nominalgfälle des Sampling-Verfahrens, die Fehlerbalken zeigen hier die Monte Carlo Genauigkeit an. Gelb und Lila sind die Ergebnisse mit individuell und gemeinsam variierten Parametern, die Fehlerbalken zeigen dabei jeweils Unsicherheiten aufgrund von Herstellungstoleranzen an.

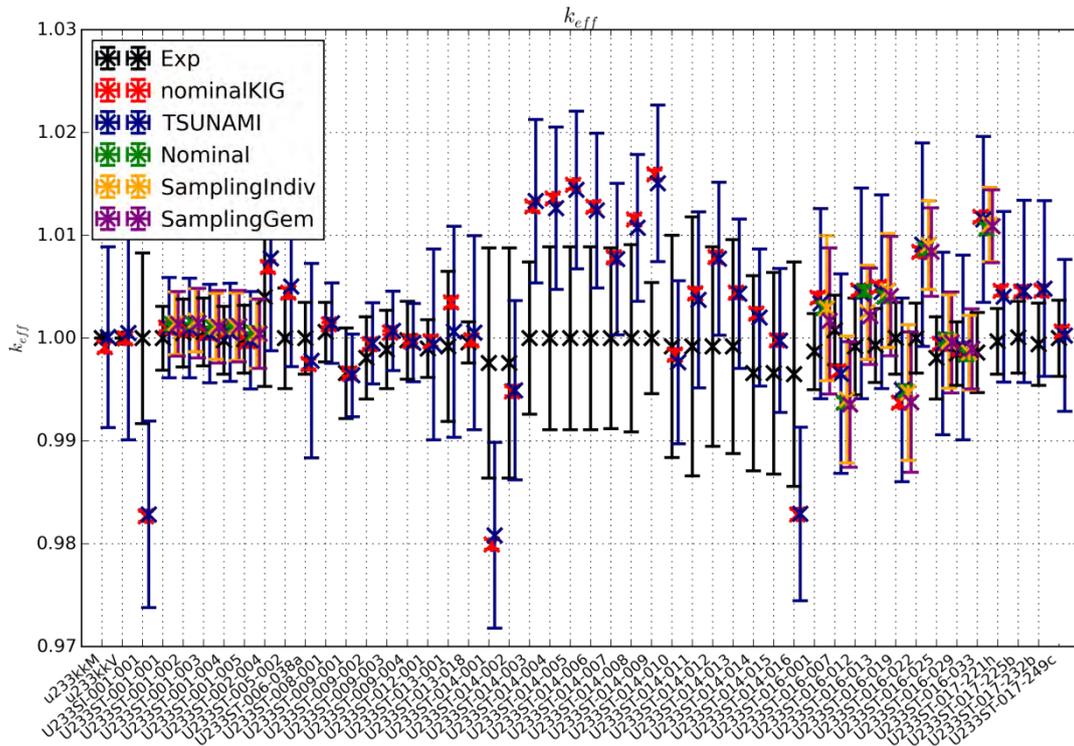


Abb. 3.23 Berechnete Multiplikationsfaktoren der Experimente mit ^{233}U

In Abb. 3.24 sind die Serien U233ST-001 und U233ST-016 nochmal vergrößert dargestellt, für die die anschließend beschriebenen Unsicherheits- und Korrelationsanalysen durchgeführt wurde.

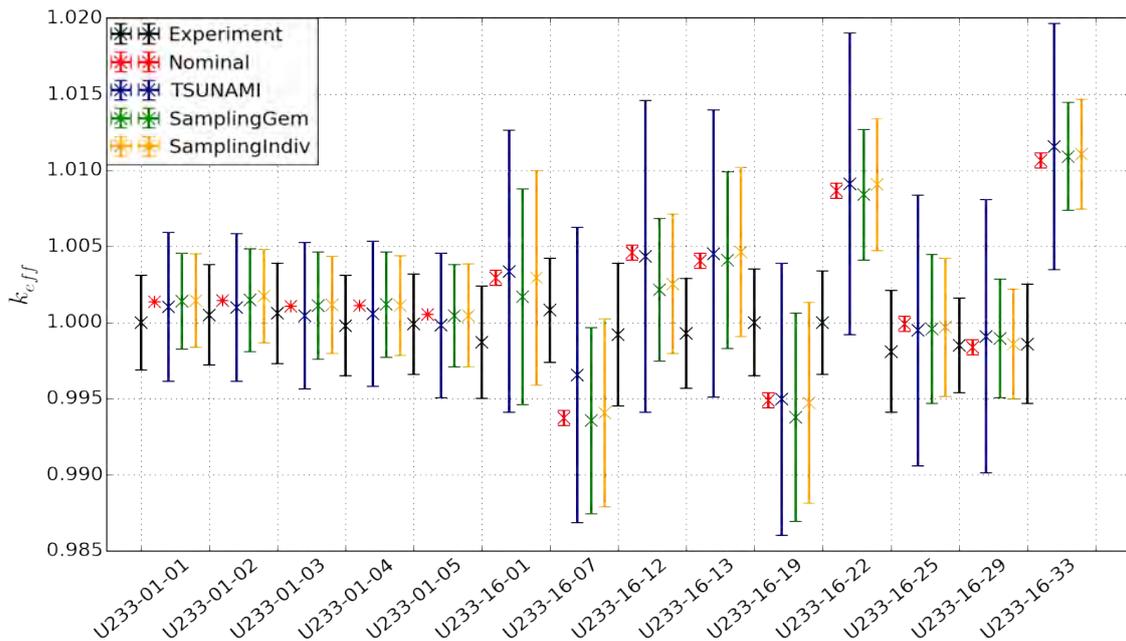


Abb. 3.24 Berechnete Multiplikationsfaktoren der Experimente mit ^{233}U (Ausschnitt)

Für die Serie U233ST-001 werden die im Handbuch ermittelten Benchmark k_{eff} -Werte leicht überschätzt, liegen aber deutlich innerhalb der experimentellen Fehler. Die k_{eff} -Werte der Fälle des Samplingverfahrens sind identisch, liegen aber leicht über denen der Nominalfälle. Dies dürfte daran liegen, dass für das Sampling dieser Serie die ein-dimensionale Sequenz CSAS1 verwendet wurde um Rechenzeit zu sparen, bzw. die Kernzahldichten und Kugelinnen- und Außenradien aus den Dichten, bzw. Volumen der Kugel berechnet wurden, anstatt die im Handbuch gegebenen Werte zu benutzen. Die Unsicherheiten von k_{eff} aufgrund des individuellen und gemeinsamen Samplings auf den angegebenen Toleranzen stimmen sehr gut mit dem im ICSBEP-Handbuch durch Fehlerfortpflanzung ermittelten Unsicherheiten überein. Die Unsicherheiten in k_{eff} aufgrund von Unsicherheiten der Wirkungsquerschnitte liegen etwa 40% höher als die Unsicherheiten aufgrund der variierten Parameter.

Bei der Serie U233ST-016 weichen die berechneten Werte für k_{eff} deutlicher von den im Benchmark erreichten Werten von $k_{\text{eff}} = 1$ ab, sowohl für die vorhandenen Eingabedateien als auch für die im Zuge des Samplings teilweise neu und automatisiert erstellten Eingabedateien. Da die berechneten k_{eff} -Werte dieser zwei teilweise unabhängig erstellten Eingabedateien nahe zusammen liegen und sie auch den relativ großen Abweichungen vom Zielwert der im Handbuch angegebenen Beispielrechnungen folgen (sowohl in Richtung als auch Auslenkung) kann man von korrekt erstellten Eingabedateien ausgehen. Die Abweichungen sind vermutlich durch Abweichungen der experi-

mentell ermittelten Parameter von den wahren Werten bedingt. Die Unsicherheiten aufgrund von Unsicherheiten der Wirkungsquerschnitte liegen deutlich über den Unsicherheiten aufgrund von Herstellungstoleranzen, um Faktoren 2 bis 3.

3.3.1.2 Urandichte und EALF

In Abb. 3.25 ist die Dichte von Uran in gU/cm^3 für alle betrachteten experimentellen Fälle dargestellt. Die rote Linie markiert die Konzentration bei der die kleinste kritische Masse auftritt, die blaue Linie die des kleinsten kritischen Volumens.

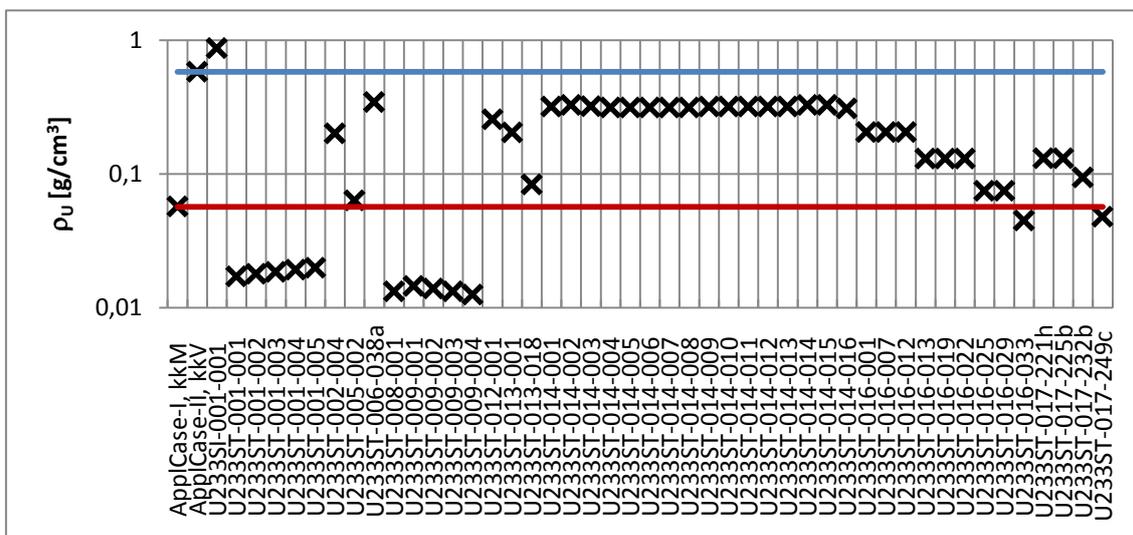


Abb. 3.25 Urandichten der Lösungen in den ausgewählten Experimenten mit ^{233}U

In Abb. 3.26 sind die Energiewerte der mittleren Lethargie der zur Spaltung führenden Neutronen (Energy of Average Lethargy causing Fission, EALF) dargestellt.

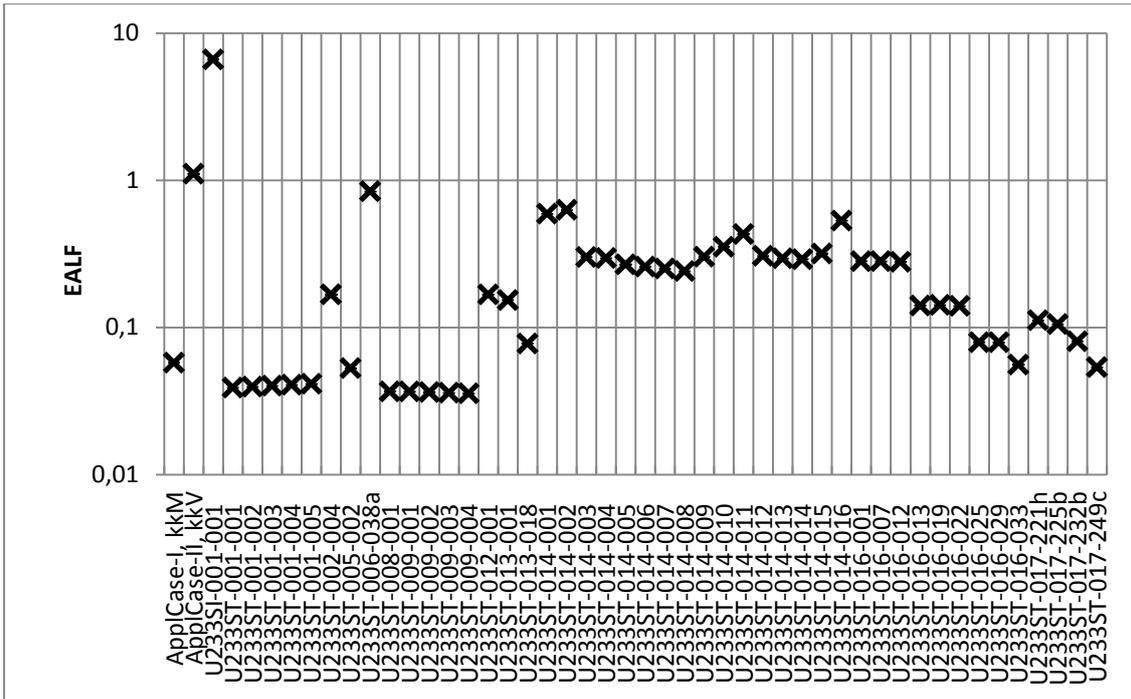


Abb. 3.26 Werte von EALF der ausgewählten Experimente mit ^{233}U

Vergleicht man diese mit der Urandichte der vorhergehenden Abbildung, erkennt man eine deutliche Korrelation der Werte. Dieser Zusammenhang ergibt sich, da eine Änderung der Urandichte bei etwa gleichbleibender Gesamtdichte der Lösung direkt das Moderationsverhältnis H/U beeinflusst. Dieses wiederum ist ausschlaggebend für die Thermalisierung der Neutronen und damit für den Spektralparameter EALF.

Noch deutlicher tritt diese Korrelation zu Tage, wenn EALF gegen die Urandichte aufgetragen wird, wie in Abb. 3.27 dargestellt ist.

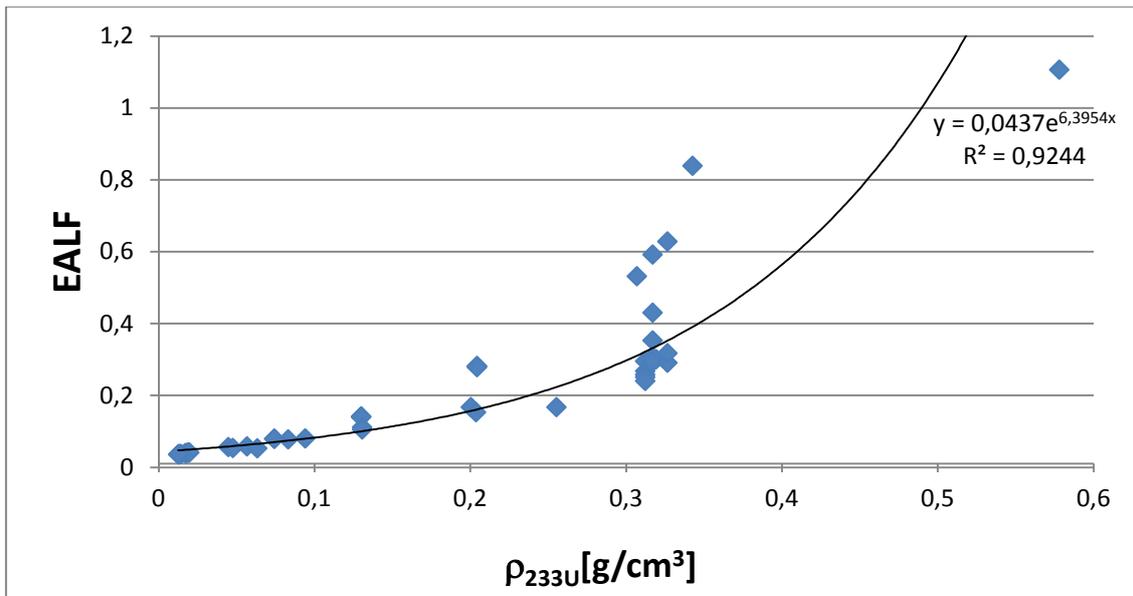


Abb. 3.27 Werte von EALF gegenüber den Urandichten der betrachteten kritischen Benchmark-Experimente mit ^{233}U

Der Wert für das Experiment U233SI-001-001 bei $\rho^{233}\text{U} = 1,25$ und EALF = 6,6 ist nicht dargestellt, beim Fit jedoch berücksichtigt.

Der Fall U233SI-001-001 wurde hier nicht mit dargestellt, da er bei $\rho^{233}\text{U} = 1,25$ und EALF = 6,6 sowohl x- als auch y-Skala deutlich erweitern und die Abbildung damit unübersichtlich machen würde. In den Daten ist ein monotoner Zusammenhang erkennbar. Bei niedrigen Dichten steigt EALF nahezu linear an. Der deutlich steilere Anstieg bei Dichten um $\rho^{233}\text{U} = 0,3$ kann entweder durch ein anderes Verhalten von EALF bedingt sein, oder durch eine größere Streuung der Werte aufgrund der vielen Experimente aus verschiedenen Experimentserien mit unterschiedlichen Versuchsaufbauten bei dieser Dichte. Für die zweite Erklärung spricht auch die gefittete Trendlinie, die dieser Gruppe nicht direkt folgt, sondern einen flachen Anstieg zeigt. Der Fit schließt den nicht gezeigten Punkt von U233SI-001-001 mit ein.

3.3.1.3 Trendanalyse

Um einen etwaigen Trend des Multiplikationsfaktors k_{eff} mit ansteigenden Werten von EALF zu identifizieren, wurden die entsprechenden Wertepaare aufgetragen, und eine lineare Regression durchgeführt. Dies ist in Abb. 3.28 dargestellt.

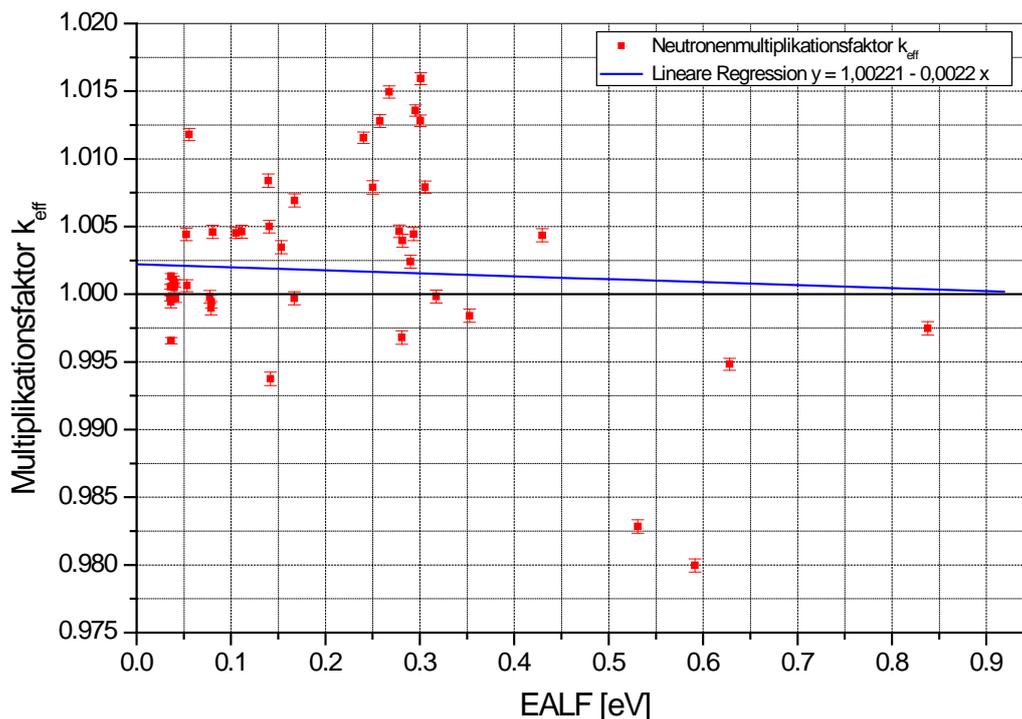


Abb. 3.28 Trendanalyse des Neutronenmultiplikationsfaktors k_{eff} über dem EALF-Wert aller betrachteten kritischen Benchmark-Experimente

Statistisch ist innerhalb der Standardabweichung der Regressionsgeraden kein signifikanter Trend erkennbar. Visuell erkennt man in Abb. 3.28 aber durchaus, dass die Mehrzahl der Datenpunkte unterhalb einem EALF von etwa 0,45 eV – bei relativ breiter Streuung – ca. 0,5% oberhalb von $k_{\text{eff}} = 1,0$ liegen. Dagegen liegen die errechneten Werte von k_{eff} für die vier Datenpunkte oberhalb des EALF von 0,45 eV sämtlich signifikant unterhalb von $k_{\text{eff}} = 1,0$, wobei diese vier Datenpunkte nicht zu Konfigurationen aus einer einzigen Experimentserie gehören. Es kann deshalb ein Trend von sinkendem k_{eff} bei steigendem EALF und damit steigender Urankonzentration vermutet werden. Bei der bestehenden Datenlage kann dies aber nicht eindeutig nachgewiesen und insbesondere nicht quantifiziert werden.

Der zur Konzentration der kleinsten kritischen Kugelmasse gehörige Wert von EALF liegt bei etwa 0,045 eV (vgl. auch Abb. 3.38 in Kap. 3.3.3.3) und liegt damit in dem experimentell gut abgedeckten Bereich der niedrigeren Konzentrationen, weshalb der Wert durch den tendenziell positiven Bias eher als konservativ angenommen werden kann, soweit dies auf Basis dieser eingeschränkten Auswahl an Experimenten überhaupt abgeleitet werden kann.

3.3.1.4 TSUNAMI-IP c_k Analyse

Die Vergleichbarkeit und neutronische Ähnlichkeit der untersuchten experimentellen Konfigurationen mit den Anwendungsfällen „kleinste kritische Masse“ (kkM) und „kleinstes kritisches Volumen“ (kkV) auf Basis der zu Grunde liegenden problemspezifischen Wirkungsquerschnitte wurde mit dem Verfahren TSUNAMI-IP /REA 11/ aus dem Codepaket SCALE /SCA 11/ Version 6.1.2 untersucht. Die mit diesem Werkzeug ermittelten Werte c_k , welche ein Maß für die paarweise Ähnlichkeit zweier Spaltstoffsysteme liefern, sind in Abb. 3.29 für jedes Experiment gegenüber den beiden Anwendungsfällen dargestellt. Tab. 3.10 listet die Nummerierung der betrachteten Experimentfälle auf.

Tab. 3.10 Liste und Nomenklatur der in die c_k -Analyse eingegangenen kritischen Benchmark-Experimente mit ^{233}U ranlynitrat

Experiment #	Kennung nach ICSBEP
1	U233SI001-01
2	U233ST001-01
3	U233ST001-02
4	U233ST001-03
5	U233ST001-04
6	U233ST001-05
7	U233ST002-04
8	U233ST005-02
9	U233ST006-exp38a
10	U233ST008
11	U233ST009-01
12	U233ST009-02
13	U233ST009-03
14	U233ST009-04
15	U233ST012-01
16	U233ST013-01
17	U233ST013-18
18	U233ST014-01
19	U233ST014-02
20	U233ST014-03
21	U233ST014-04

Experiment #	Kennung nach ICSBEP
22	U233ST014-05
23	U233ST014-06
24	U233ST014-07
25	U233ST014-08
26	U233ST014-09
27	U233ST014-10
28	U233ST014-11
29	U233ST014-12
30	U233ST014-13
31	U233ST014-14
32	U233ST014-15
33	U233ST014-16
34	U233ST016-001
35	U233ST016-007
36	U233ST016-012
37	U233ST016-013
38	U233ST016-019
39	U233ST016-022
40	U233ST016-025
41	U233ST016-029
42	U233ST016-033
43	U233ST017-exp221h
44	U233ST017-exp225b
45	U233ST017-exp232b
46	U233ST017-exp249c

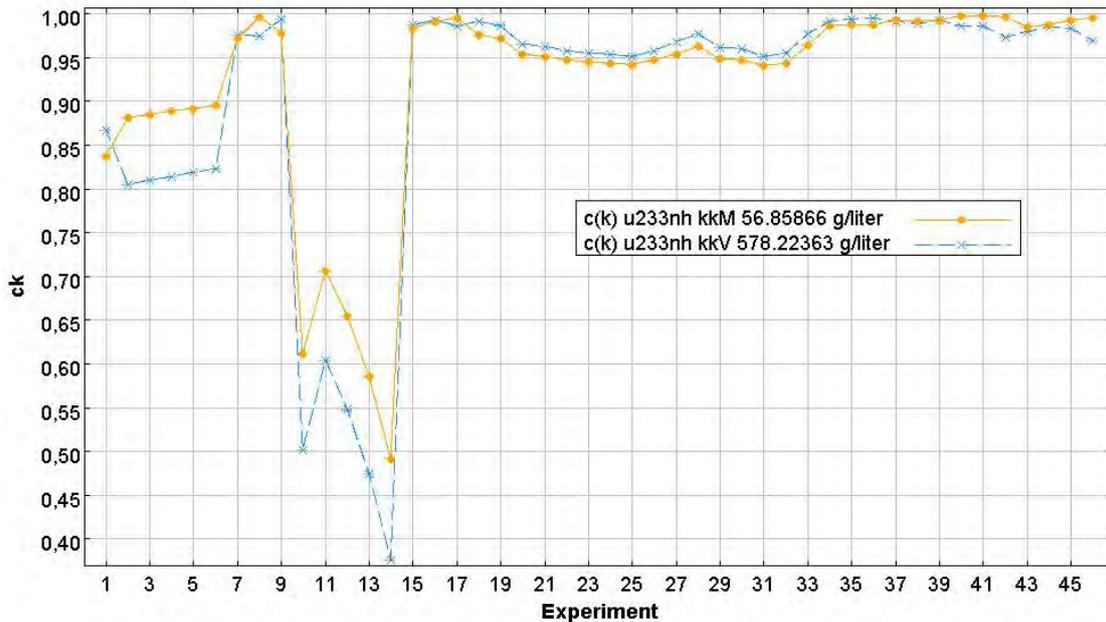


Abb. 3.29 TSUNAMI-IP Parameter c_k für den Vergleich der kritischen Benchmark-Experimente mit den Anwendungssystemen kleinste kritische Kugelmasse und kleinstes kritisches Kugelvolumen

Man erkennt in Abb. 3.29, dass die Experimentfälle #1 bis #9 mit Werten von $0,8 < c_k < 0,9$ eine bedingt gute Vergleichbarkeit und die Experimentfälle #15 bis #46 mit $c_k > 0,9$ eine gute Vergleichbarkeit aufweisen. Dies sind diejenigen Fälle welche hinsichtlich Urankonzentration und EALF in einem ähnlichen Bereich wie die Anwendungsfälle liegen. Vor allem die Fälle #15 bis #46 sind also gut für eine Validierung von kkM und kkV geeignet.

Die Experimentfälle #10 bis #14 mit Werten von z. T. $c_k \ll 0,75$ sind die experimentellen Konfigurationen U233ST008 (#10) und U233ST009-01 (#11) bis -04 (#14). Diese Konfigurationen besitzen Werte für EALF zwischen ca. 0,0355 und 0,0367. Dies gilt in etwa auch für die Konfigurationen U233ST001-01 (#02) bis -05 (#06), welche Werte für EALF von etwa 0,04 aufweise, die aber im Vergleich deutlich höhere Werte für c_k gegenüber den Systemem kkM und kkV aufweisen. Diese Systeme liegen im stark untermoderierten Bereich und sind deshalb sehr stark sensitiv auf bereits geringe Änderungen der Urankonzentration, während die untermoderierten Systeme eine deutlich geringere Sensitivität auf die Urankonzentration aufweisen. Dies ist in höherer Detailtiefe in Kap. 3.3.3.3 diskutiert und dort in Abb. 3.38 auch grafisch dargestellt.

3.3.2 Sensitivitätsanalysen

3.3.2.1 Sensitivitäten auf Variationen innerhalb Herstellungstoleranzen

In Abb. 3.30 und Abb. 3.31 sind die Sensitivitäten von k_{eff} der Serien U233ST-001 und U233ST-016 auf die Variation der technischen Parameter innerhalb deren Herstellungstoleranzen gezeigt. Dabei ist zu beachten, dass diese Sensitivitäten absolut und nicht relativ zu den Variationen sind. Dies bedeutet, ein größerer Wert einer Herstellungstoleranz bedingt auch eine höhere Sensitivität von k_{eff} auf diesen Parameter.

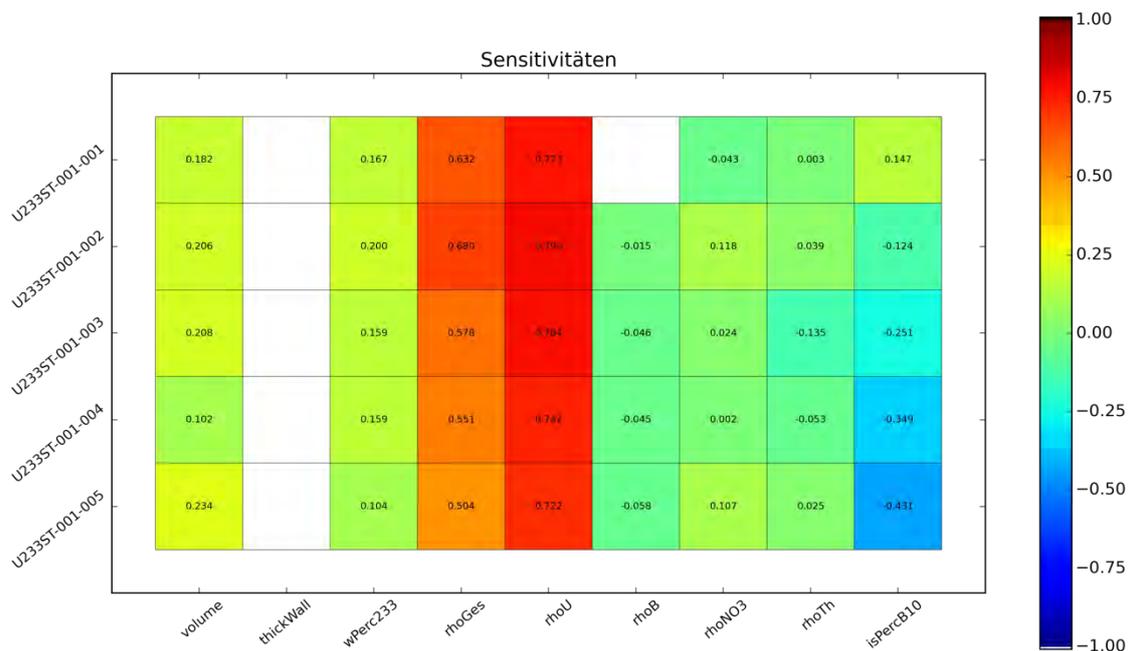


Abb. 3.30 Sensitivitäten der berechneten Multiplikationsfaktoren der Experimentserie U233ST-001 auf unterschiedliche technische Parameter

Bei der Serie U233ST-001 ist k_{eff} vor allem auf die Unsicherheit der Urandichte („rhoU“) und der Gesamtdichte („rhoGes“) sensitiv. Mit der Experimentnummer steigt die Bor-konzentration von #001 zu #005 an, was zu einer ansteigenden negativen Sensitivität auf die Konzentration von ^{10}B („isPercB10“) führt.

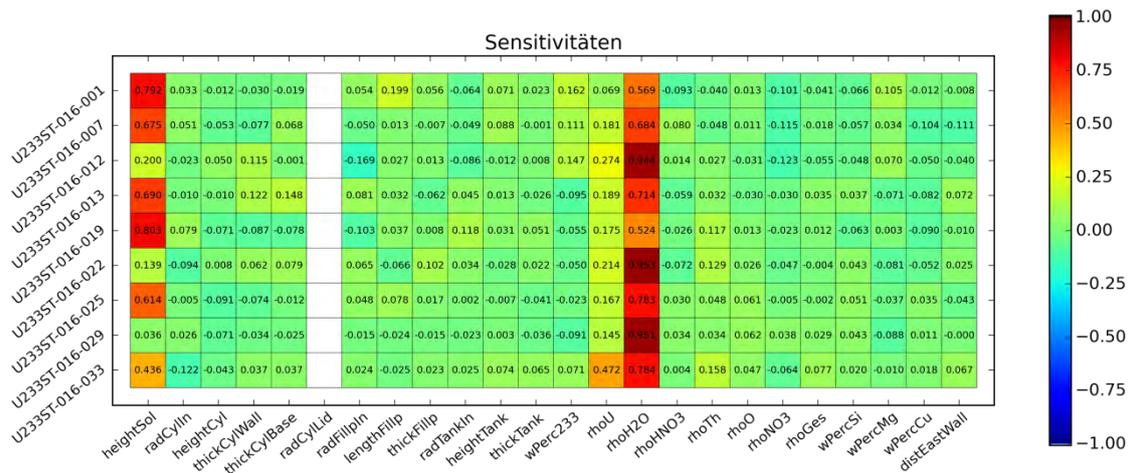


Abb. 3.31 Sensitivitäten der berechneten Multiplikationsfaktoren der Experimentserie U233ST-016 auf unterschiedliche technische Parameter

Bei der Serie U233ST-016 ist k_{eff} vor allem auf die Wasserdichte („rhoH2O“) und die kritische Höhe der Lösung („heightSol“) sensitiv. Da in den verschiedenen Konfigurationen Zylinder mit unterschiedlichen Durchmessern verwendet wurden (001, 019: 20 Zoll, 007, 013, 025: 15 Zoll, 012, 022, 029: 10), die Ungenauigkeit in den Füllhöhen aber absolut und für alle Fälle gleich angegeben ist, wirkt er sich bei den Zylindern mit kleinerem Radius weniger auf das Volumen auf. Dadurch fallen auch die Sensitivitäten auf die zugehörigen Parameter, z. B. Tankinnenradius („radTankin“) geringer aus.

3.3.2.2 Sensitivitäten auf Variationen des Nuklidvektors

In den kritischen Benchmark-Experimenten besteht der Uranvektor aus herstellungstechnischen Gründen typischerweise nicht zu 100% aus ^{233}U , sondern enthält auch kleine Anteile $\approx 1\%$ von $^{234,235,236,238}\text{U}$ sowie z.T. auch ^{232}Th . Um den Einfluss dieser Beimengungen und deren Unsicherheit auf den Multiplikationsfaktor k_{eff} zu evaluieren, wurden Parameterstudien durchgeführt, welche die entsprechenden Kernzahldichten linear und unabhängig voneinander variieren. Zudem wurden die Kernzahldichten von ^1H sowie des milden Neutronengifts ^{14}N variiert. Abb. 3.32 zeigt das Ergebnis dieser Variation exemplarisch anhand der experimentellen Konfiguration U233-SOL-THERM-009-01.

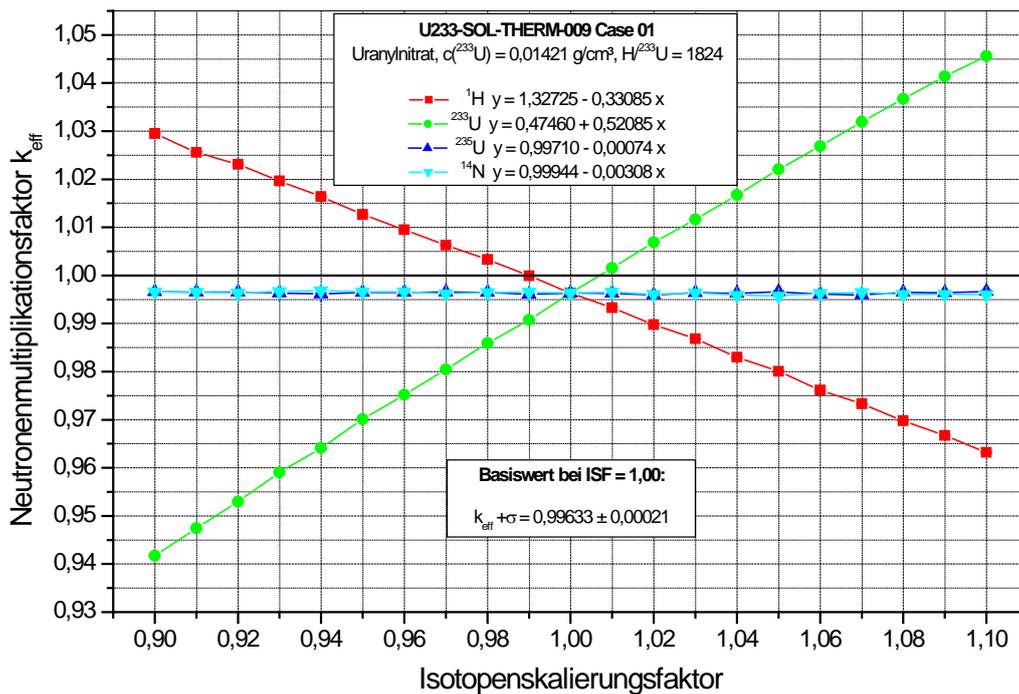


Abb. 3.32 Sensitivität des berechneten Multiplikationsfaktors k_{eff} auf Variationen des exakten Uran-Isotopenvektors am Beispiel der Konfiguration U233-SOL-THERM-009-01

Man erkennt aus der Abbildung, dass hinsichtlich ^{14}N und ^{235}U keine signifikante Sensitivität vorhanden ist. Eine Zunahme von ^{233}U bedingt durch eine entsprechende Zunahme der Spaltstoffmasse einen linearen Anstieg in k_{eff} , während eine Zunahme von ^1H eine Abnahme von k_{eff} bedingt, was durch die übermoderierten Bedingungen der Konfiguration bedingt (vgl. auch Abb. 3.38) und somit konsistent ist.

3.3.3 Benchmark-Korrelationen

3.3.3.1 Korrelationen aufgrund von Unsicherheiten der Wirkungsquerschnitte der Benchmark-Experimente

In Abb. 3.33 sind die Korrelationen zwischen allen gerechneten Experimenten aufgrund von Unsicherheiten der Wirkungsquerschnitte gezeigt. Diese sogenannten c_k -Werte als Maß für die neutronenphysikalische Ähnlichkeit auf Basis der jeweiligen problemspezifischen Wirkungsquerschnitte wurden mit TSUNAMI-3D-K5 und TSUNAMI-IP /REA 11/ des SCALE Pakets /SCA 11/ ermittelt.

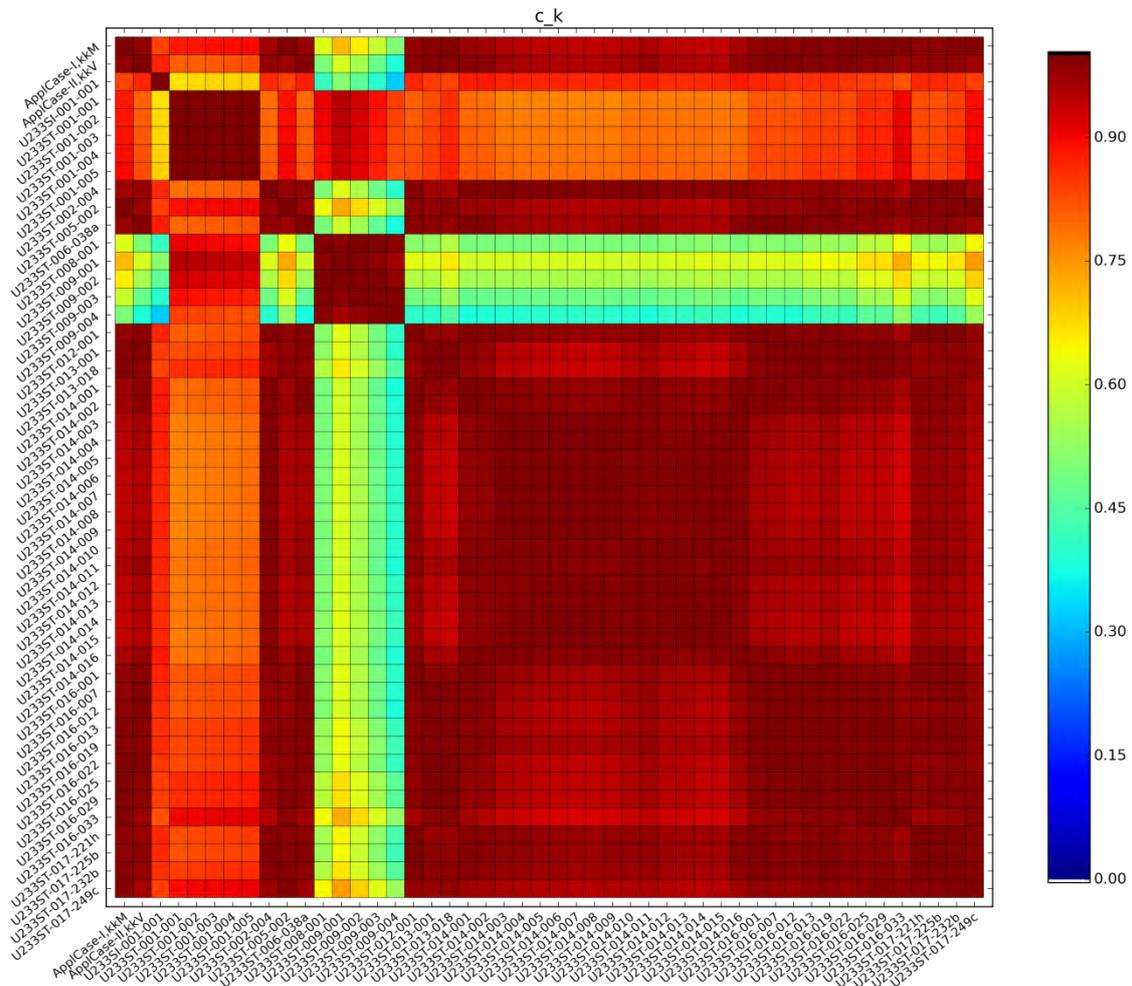


Abb. 3.33 Korrelationskoeffizient c_k zwischen den ausgewählten Experimenten mit ^{233}U und den Anwendungsfällen kleinster kritischer Masse und kleinstem kritischen Volumen

Innerhalb jeder Experimentenserie ergibt sich eine nahezu vollständige Korrelation. Vergleicht man die Korrelationsmatrix mit den Abbildungen von oben, wird ersichtlich, dass die Korrelationen zurückgehen, wenn sich die Urandichten und damit die EALF-Werte unterscheiden. Besonders auffällig ist dies bei den Serien U233ST-008 und U233ST-009 bzw. U233ST-001, die sich mit Korrelationsfaktoren um 0,5 und 0,8 deutlich von den anderen Fällen abheben, die typischerweise Werte größer 0,95 besitzen. Innerhalb dieser Gruppen kann man eine Struktur erkennen, dass die Korrelationen bei ähnlicheren Urandichten stets höher sind.

Ersichtlich ist auch, dass eine Verringerung der Korrelationen vor allem bei niedrigen Dichten auftritt, da hier Übermoderation vorherrscht und sich dadurch die Neutronik (EALF) in Abhängigkeit vom Moderationsverhältnis aufgrund des höheren Gradienten ausgeprägter verändert, vgl. hierzu auch Abb. 3.38.

3.3.3.2 Korrelationen aufgrund von Herstellungstoleranzen

In Abb. 3.34 sind die Korrelationen der einzelnen Experimente der Serie U233ST-001 aufgrund von Herstellungstoleranzen gezeigt.

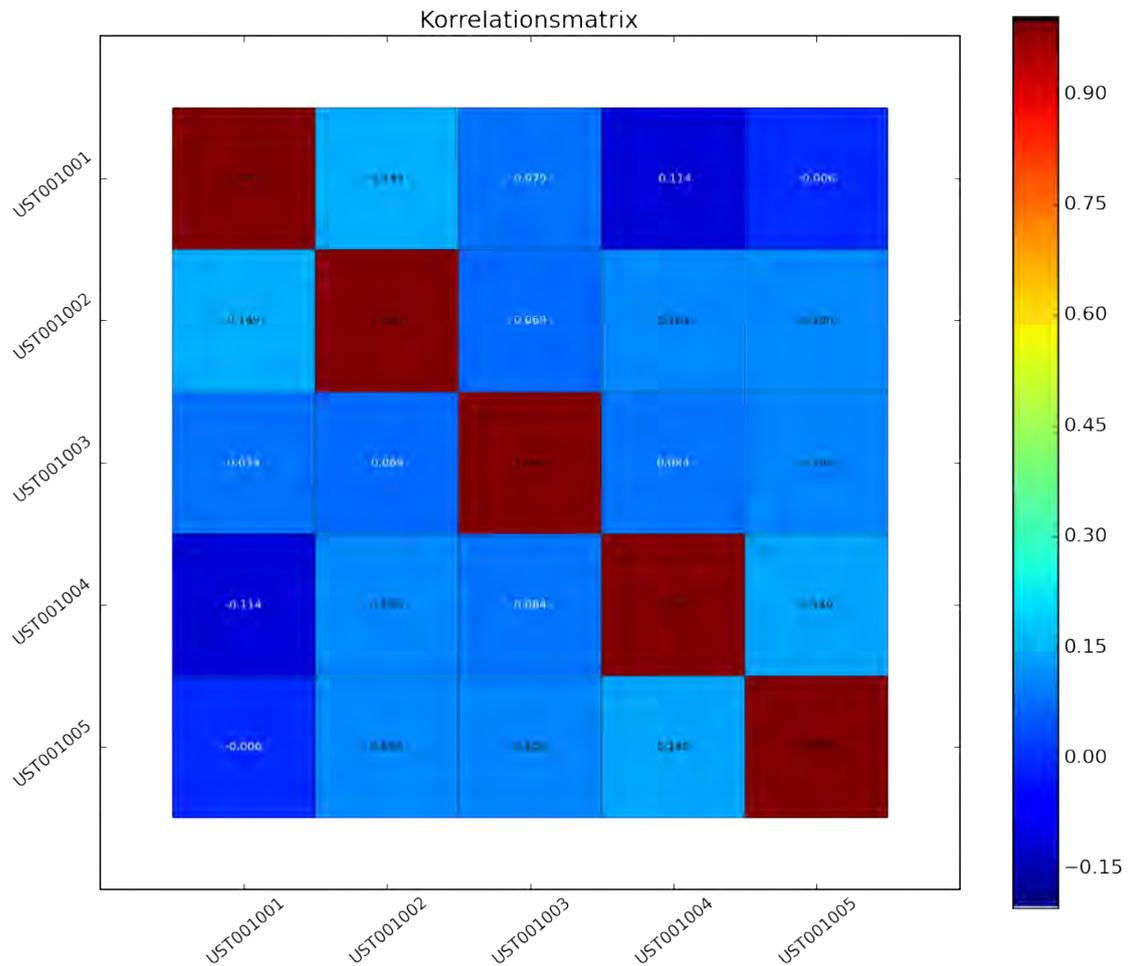


Abb. 3.34 Korrelationsmatrix ausgewählter Experimente mit ^{233}U auf Basis von Herstellungstoleranzen

Die Experimente sind so gut wie unkorreliert, da diejenigen variierten Parameter, auf die k_{eff} am sensitivsten reagiert (ρ_{Ges} , ρ_{U}) unkorreliert sind und für jedes Experiment individuell variiert werden.

In Abb. 3.35 ist dieselbe Analyse für die Serie U233ST-016 gezeigt.

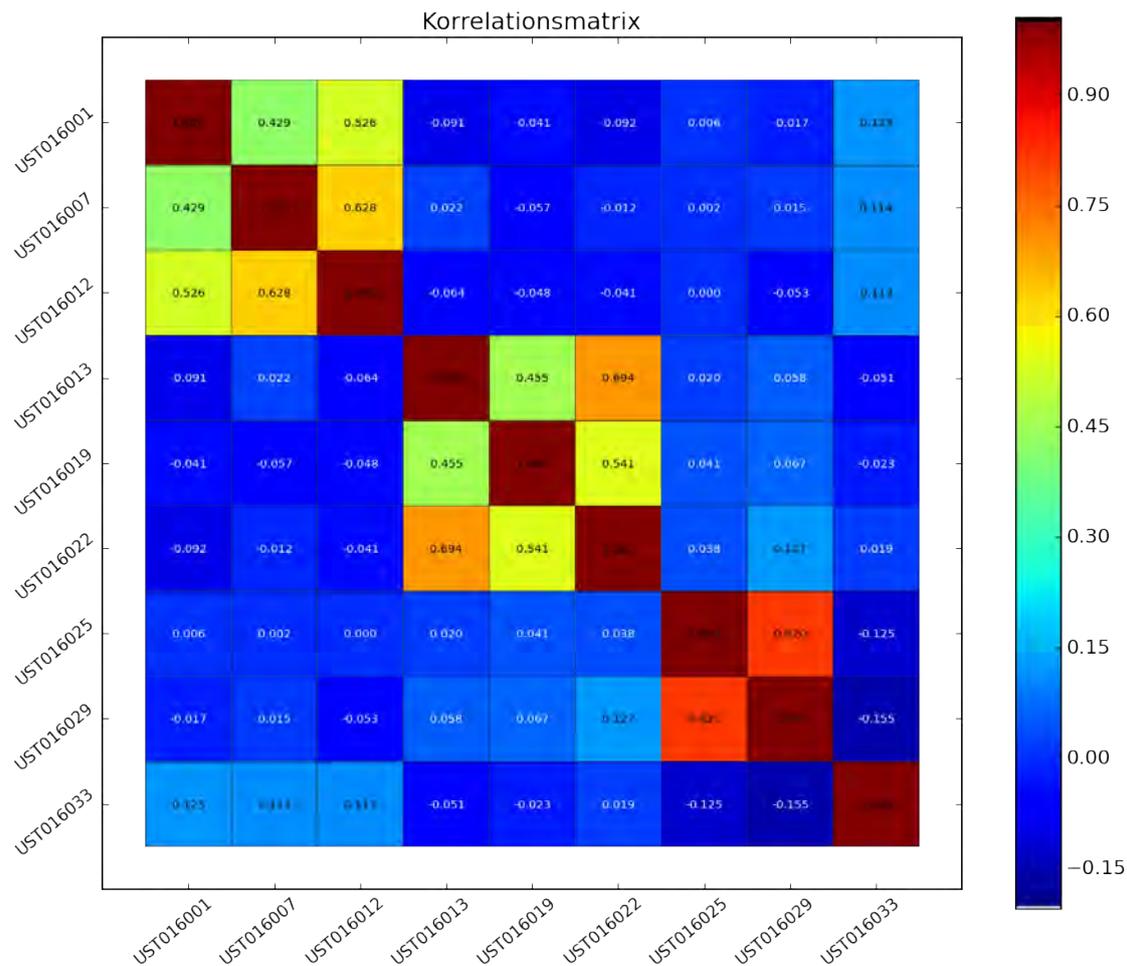


Abb. 3.35 Korrelationsmatrix weiterer ausgewählter Experimente mit ^{233}U auf Basis von Herstellungstoleranzen

Deutlich treten drei Untergruppen zutage, die eine erhöhte Korrelation zeigen. Dies ist zu erklären, da sich die drei Experimentgruppen (001, 007, 012), (013, 019, 022) und (025, 029) dieselbe Lösung verwenden und so über die Parameter $\rho_{\text{H}_2\text{O}}$ und ρ_{U} korreliert sind. Im letzten Abschnitt wurde gezeigt, dass k_{eff} auf diese zwei Werte neben der Füllhöhe, die für jedes Experiment individuell variiert werden, am sensitivsten reagiert.

3.3.3.3 Korrelationen aufgrund von Unsicherheiten der Wirkungsquerschnitte der kritischen Parameterkurven

Mithilfe von TSUNAMI /REA11/, /SCA11/ wurden die neutronenphysikalischen Ähnlichkeiten aufgrund von Unsicherheiten der Wirkungsquerschnitte (Korrelationen c_k) der 151 berechneten Datenpunkte der kritischen Parameterkurven untereinander paarweise bestimmt. Dadurch lässt sich u. a. abschätzen, auf welchen Konzentrationsbereich man die Validierung auf Basis der ausgewählten und untersuchten Experimente über-

tragen kann. In erster Näherung sind dies alle Konzentrationswerte, deren Wert von c_k in Bezug auf kkM (Datenpunkt 48) oberhalb von 0,9 liegt. In Abb. 3.36 sind diese Korrelationen aufgrund von Unsicherheiten der Wirkungsquerschnitte für die 151 Einzelrechnungen gezeigt, aus denen die zugehörigen Kurven der kritischen Masse und auch des kritischen Volumens für das Handbuch zur Kritikalität berechnet wurden.

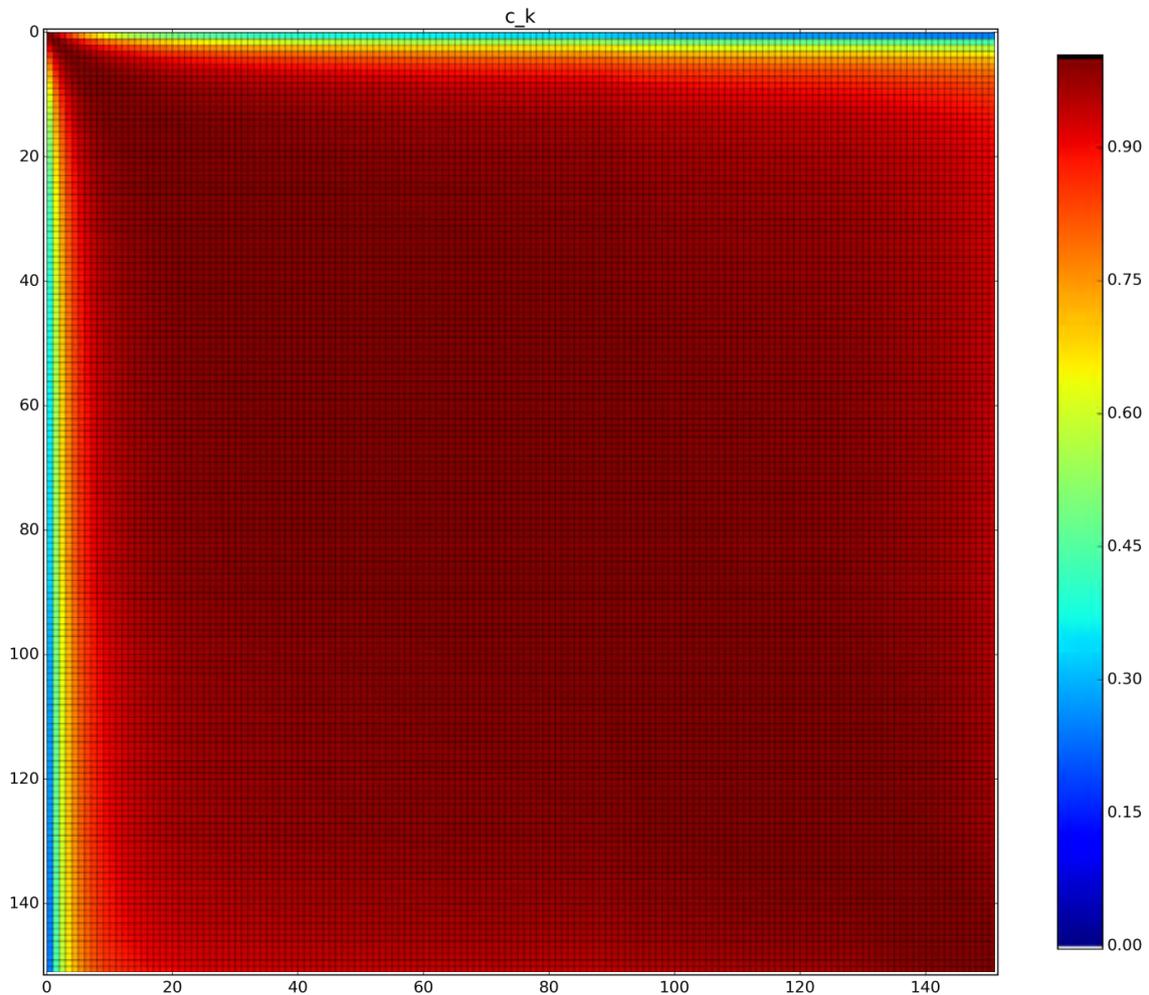


Abb. 3.36 Korrelationsparameter c_k zwischen allen Einzelrechnungen der Kurve kritischer Kugelmassen von ^{233}U -Nitrat-Lösungen unterschiedlicher Urandichte

Alle Fälle zeigen eine sehr hohe Korrelation, bis auf die ersten Datenpunkte, die einer sehr geringen ^{233}U -Konzentration entsprechen und (z. T. stark) übermoderiert sind. Es zeigt sich also ein ähnliches Bild wie bei den gerechneten Experimenten im letzten Abschnitt. Um etwaige Details besser erkennen zu können, ist in Abb. 3.37 der Wertebereich auf 0,9 bis 1,0 eingeschränkt. Werte, die darunter liegen werden weiss dargestellt.

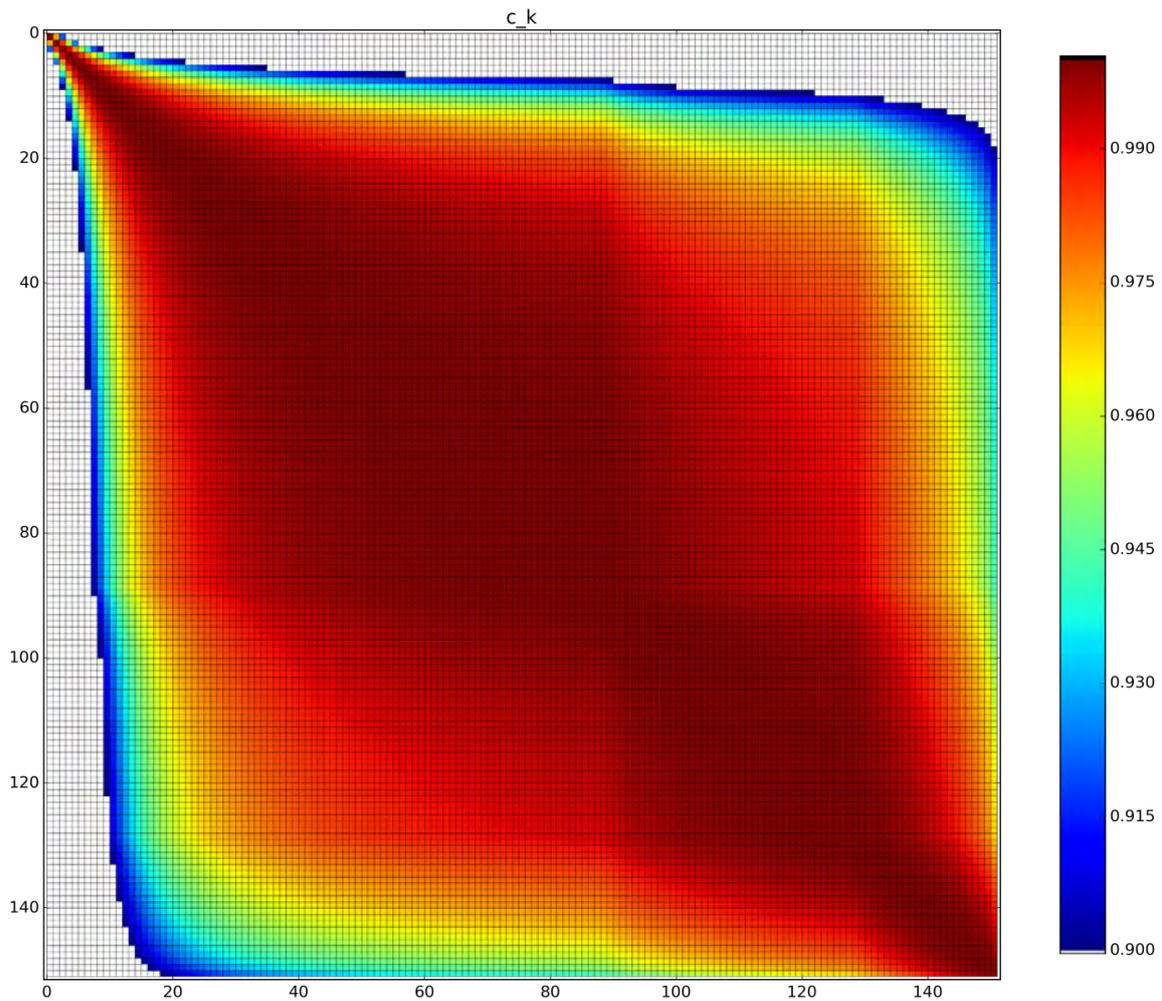


Abb. 3.37 Korrelationsparameter c_k zwischen allen Einzelrechnungen der Kurve kritischer Kugelmassen von ^{233}U -Nitrat-Lösungen unterschiedlicher Urandichte (Skalierungsausschnitt)

In dieser Abbildung ist nochmals deutlicher zu erkennen, wie die Korrelationen zwischen den Fällen voneinander abhängen. Die Struktur dieser schräg liegenden „zweifachen Sanduhr“ hat keine physikalische Bedeutung, sondern erscheint in dieser Darstellung als Artefakt, da der Anstieg von $r_{233\text{U}}$ nicht monoton ist sondern bei 0,10 und 0,50 g/cm^3 (Datenpunkte 90 und 129) Sprünge in der gewählten Schrittweite macht (vgl. auch Abb. 3.39).

In Abb. 3.38 sind kritische Kugelmasse und EALF der entsprechenden Parameterkurve zusammen in linearer Darstellung aufgetragen.

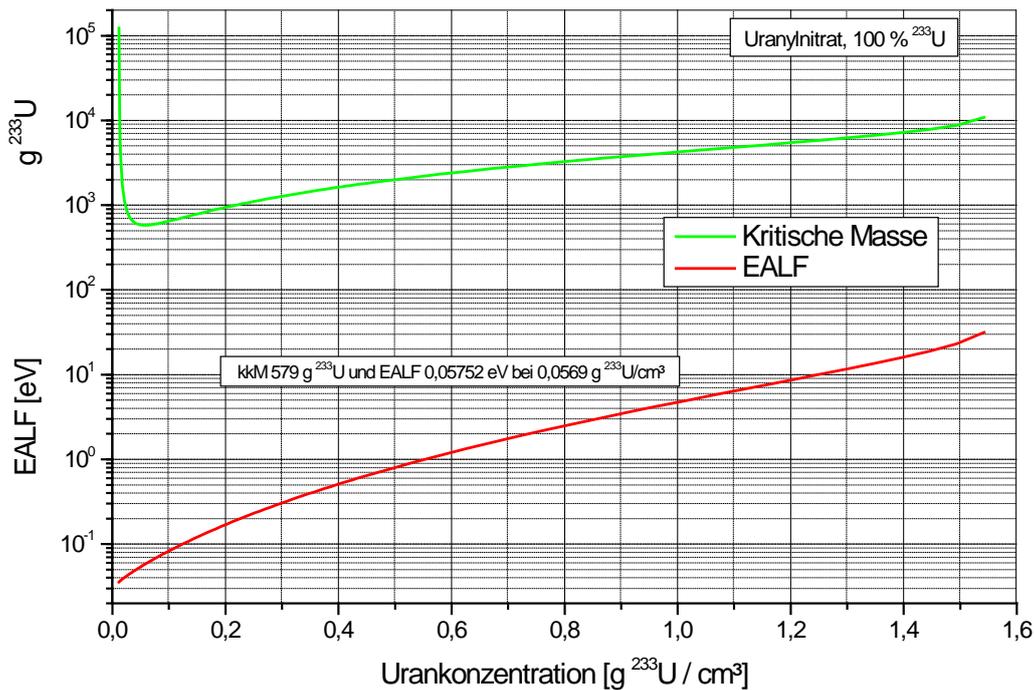


Abb. 3.38 Kritische Kugelmasse und EALF der kritischen Parameterkurve in Abhängigkeit von der Urankonzentration, in linearer Auftragung

Durch die lineare Auftragung der Konzentration auf der Abszisse ist in Abb. 3.38 gegenüber der entsprechenden logarithmischen Auftragung in Abb. 3.1 besser zu erkennen, dass der übermoderierte Konzentrationsbereich oberhalb von $0,0569 \text{ g}^{233}\text{U}/\text{cm}^3$ deutlich ausgedehnter ist als der untermoderierte Bereich darunter. Zudem erkennt man bei abnehmender Konzentration einen rapiden Anstieg der kritischen Kugelmasse bereits knapp unterhalb der kleinsten kritischen Masse. Dagegen ist der Anstieg der kritischen Masse bei zunehmender Urankonzentration bis hin zur Löslichkeitsgrenze mit einem deutlich geringeren Betrag des Gradienten vergleichsweise moderat.

Während im übermoderierten Bereich die Unsicherheiten in den Wirkungsquerschnitten von ^1H , also Streuung und Absorption, die resultierenden Unsicherheiten in k_{eff} dominieren, werden letztere im untermoderierten Bereich durch die Unsicherheiten in den verschiedenen Wirkungsquerschnitten des ^{233}U dominiert. Dadurch können die in Abb. 3.36 bzw. Abb. 3.37 dargestellten Phänomene hinsichtlich der neutronischen Ähnlichkeit bzw. Verschiedenheit der scheinbar allesamt ähnlichen Systeme gut erklärt werden. Die Unsicherheiten eines übermoderierten Systems werden von völlig verschiedenen Wirkungsquerschnittunsicherheiten dominiert als die eines untermoderierten Systems, auch trotz auf den ersten Blick recht ähnlicher ^{233}U -Konzentrationen.

Für den exemplarischen Fall mit der Urandichte $\rho_{233\text{U}} = 0,0463 \text{ g/cm}^3$ (Datenpunkt #37) sind die jeweiligen die c_k -Werte zu allen anderen Proben gegen deren ^{233}U -Dichte in Abb. 3.39 aufgetragen.

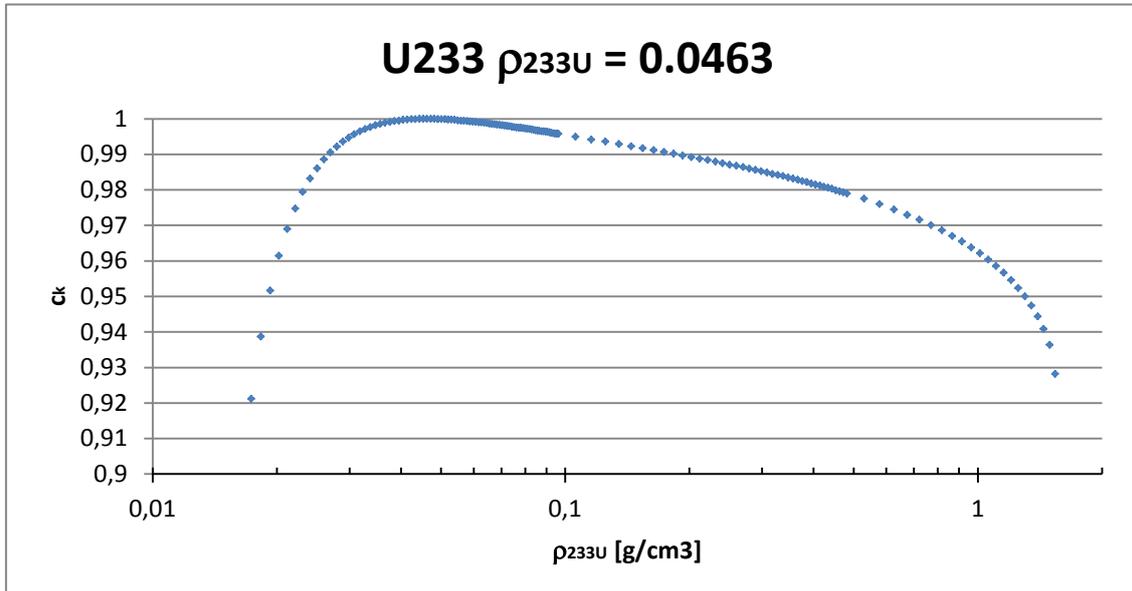


Abb. 3.39 Parameter c_k aller Parameterkurvenwerte gegen einen ausgewählten Wert der Parameterkurve

Hieraus ist ersichtlich, dass sich die Korrelation zwischen den Fällen mit der Urankonzentration kontinuierlich entwickelt. Bei $0,1 \text{ g/cm}^3$ und $0,5 \text{ g/cm}^3$ erkennt man durch die Sprünge in der Datenpunktedichte die Sprünge zu größeren Abständen der Konzentrationswerte zwischen den einzelnen Rechnungen, was den artefaktischen Einschnürungen in Abb. 3.37 entspricht. Über einen sehr weiten Konzentrationsbereich liegt der Wert von $c_k > 0,9$, was auf eine hohe neutronische Ähnlichkeit auf Basis der gemeinsamen Unsicherheiten in den Wirkungsquerschnitten hindeutet. Dies bedeutet ebenfalls, dass die gewählten Experimente, welche großteils ebenfalls mehr oder weniger untermoderiert sind, für einen Großteil der Konzentrationswerte zur Validierung gut geeignet sind.

3.4 Vergleichsrechnungen mit anderen Rechenverfahren

Bei den Kurvenpunkten der minimalen kritischen Kugelmassen und -volumina wurden die zugehörigen Systeme zu Vergleichszwecken auch mit anderen Rechenverfahren modelliert. Zusätzlich zu der Sequenz CSAS1 aus SCALE Version 6.1.2, mit der die Parameterkurven berechnet wurden, wurde auch die Sequenz CSAS5 eingesetzt, die

bei identischer Querschnittsprozessierung anstelle des eindimensionalen deterministischen Transportcodes XSDRN den dreidimensionalen Monte Carlo Code KENO-Va zur Flussberechnung verwendet. In beiden Fällen wurde die ENDF/B-VII.1 basierte Wirkungsquerschnittsbibliothek v7-238 verwendet.

Zusätzlich wurden die sphärischen Systeme auch in dem Monte Carlo Transportverfahren MCNP /GOO 13/ in den Versionen 5 und 6 modelliert, wobei hier die ebenfalls ENDF/B-VII.1 basierte Wirkungsquerschnitte (.70c) verwendet wurde.

Um identische Materialdefinitionen in den verschiedenen Rechenverfahren zu garantieren, wurden die vom Materialprozessor von SCALE berechneten Kernzahldichten, welche in der Ausgabedatei in der sog. „mixing table“ angegeben werden, eins zu eins in die MCNP Eingabedateien übertragen. Diese Prozedur wurde für alle neu berechneten kritischen Parameterkurven für Massen und Volumina durchgeführt.

Dabei zeigte sich, dass alle Vergleichsrechnungen für jeweils gleiche Datenpunkte sehr gute Übereinstimmungen in errechneten Multiplikationsfaktor k_{eff} aufweisen. Dies ist in Tab. 3.11 ($^{239}\text{PuNO}_3$) und Tab. 3.12 ($^{233}\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$) für zwei der betrachteten Substanzen exemplarisch vorgestellt.

Tab. 3.11 Mit unterschiedlichen Rechenverfahren ermittelte Multiplikationsfaktoren des Systems der kleinsten kritischen Kugelmasse von $^{239}\text{PuNO}_3$

Rechenverfahren	Multiplikationsfaktor k_{eff}
CSAS1	0,999890
CSAS5	0,999690 ± 0,000180
MCNP 5	0,999230 ± 0,000500
MCNP 6	0,999230 ± 0,000500

Tab. 3.12 Mit unterschiedlichen Rechenverfahren ermittelte Multiplikationsfaktoren des Systems der kleinsten kritischen Kugelmasse von $^{233}\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$

Rechenverfahren	Multiplikationsfaktor k_{eff}
CSAS1	0,999730
CSAS5	0,999120 ± 0,000490
MCNP 5	0,999590 ± 0,000570
MCNP 6	0,999590 ± 0,000570

Man sieht dass alle berechneten Multiplikationsfaktoren innerhalb von 2σ miteinander und zudem innerhalb der experimentellen Fehlergrenzen auch mit $k_{\text{eff}} = 1,0$ übereinstimmen. Stichprobenweise wurden auch noch weitere, hier nicht explizit aufgeführte Rechnungen z.B. mit der Sequenz CSAS6 aus SCALE sowie mit MCNP und ENDF/B-VI basierten Wirkungsquerschnitten (.66c) durchgeführt, die dieses Bild gänzlich bestätigen.

Als zusätzlicher Befund wurde festgestellt dass MCNP 5 und MCNP 6 bei Verwendung der gleichen Wirkungsquerschnittsbibliothek für gleiche Systeme nicht nur innerhalb der statistischen Unsicherheit sondern exakt die identischen Werte für k_{eff} berechnen. Dieser Effekt zeigte sich auch bei entsprechenden Analysen anhand anderer als der in der vorliegenden Arbeit betrachteten und beschriebenen Eingabedateien. Dies legt den Schluss nahe dass beim Versionswechsel des MCNP-Codes von 5 auf 6 die Kritikalitätsroutine innerhalb MCNP keine für das Ergebnis signifikante Veränderung erfahren hat. Allerdings benötigte Version 6 im direkten Vergleich um 50 bis 100% mehr Rechenzeit zum Abschluss der jeweiligen Berechnung, weshalb vorerst die Verwendung der älteren Version 5 für Kritikalitätsberechnungen ratsam erscheint.

3.5 Vergleich zwischen älteren und neu berechneten Daten

3.5.1 Vergleichsmethodik

Insgesamt wurden die älteren Daten aus dem bisherigen „Handbuch zur Kritikalität“ (im Folgenden mit „Altdaten“ bezeichnet) und die neu berechneten Werte der vorliegenden Arbeit, insbesondere die kritischen Massen von zehn verschiedenen Spaltstoffsystemen, und darüber hinaus die Spaltstoff/Moderator-Verhältnisse für Plutoniumnitrat-Spaltstoffsysteme mit unterschiedlichen H^+ -Molaritäten miteinander verglichen. Dazu wurden die kritischen Massen aus den jeweiligen Datenblättern des Kritikalitätshandbuchs, also den bestehenden Altdaten und den sie ggf. ersetzenden neuen Berechnungen (Neudaten), abgelesen und die prozentualen relativen Abweichungen nach der Relation:

$$\text{Relative Abweichung (\%)} = 100 \times \frac{|\text{Wert}(\text{neu}) - \text{Wert}(\text{alt})|}{\text{Wert}(\text{alt})}$$

für eine den ganzen Bereich der Spaltstoffdichte abdeckende Anzahl von Werten ermittelt. Gemäß dieser Definition bedeuten positive relative Abweichungen eine Konservativität der Altdaten gegenüber den Neuberechnungen und umgekehrt. Bedingt durch den Ablesevorgang v. a. aus den älteren Datenblättern sind die auf diese Weise ermittelten relativen Abweichungen z.T. mit schwer quantifizierbaren Ungenauigkeiten behaftet.

Wenn auch dadurch die relative Abweichung für einen einzelnen Wert Datenpunkt einen bestimmten Fehler aufweist, so kann die Gesamtheit der relativen Abweichungen aller Datenpunkte für ein Spaltstoffsystem dennoch Hinweise zur Beantwortung der Frage geben, ob die Alt- oder Neudaten konservativer sind, sowie auf mögliche Trends. Hilfestellung dabei kann der Mittelwert aller relativen Abweichungen geben: Unter der Annahme, dass sich bei der Mittelung die ablesebedingten Ungenauigkeiten wenigstens teilweise herausheben, kann aus einem positiven Mittelwert auf konservative Altdaten und bei einem negativen Mittelwert auf konservative Neuberechnungen geschlossen werden. Als besonders hilfreich erweist sich diese Methode beim Fehlen von erkennbaren Trends.

3.5.2 Untersuchte Spaltstoffsysteme

Im Einzelnen wurden die folgenden Systeme betrachtet:

- Zwei homogene Plutoniumdioxid-Wasser-Systeme mit unterschiedlichen Pu-Vektoren (1. Fall Pu(100), 2. Fall Pu(95/5)).
- Zwei homogene Uran-Plutonium-Mischoxid-Wasser-Systeme, beide mit einem Gewichtsanteil von 30 % Plutonium, aber unterschiedlichen Spaltstoffvektoren (1. Fall U(100) und Pu(100), 2. Fall U(6,5/93,5) und Pu(85/10/5)).
- Ein homogenes Plutoniumnitratssystem ohne Angabe eines Pu-Vektors zur Ermittlung der Pu-Konzentration als Funktion des Moderationsverhältnisses H/Pu für drei verschiedene H⁺-Molaritäten (0 M, 3 M und 6 M).
- Ein homogenes ²³³U-Nitrat-Wasser-System.
- Ein homogenes Plutonylnitrat-System (Pu-Vektor Pu(95/5)).
- Vier homogene Plutoniumnitrat-Systeme mit unterschiedlichen Pu-Vektoren, (1. Pu(100), 2. Pu(95/5), 3. Pu(85/10/5) und 4. Pu(59/25/12/4)).

Dabei gilt die in Kap. 3.1.1 definierte Nomenklatur der Isotopenvektoren des Plutoniums.

3.5.2.1 Homogene Plutoniumdioxid-Wassersysteme

In Abb. 3.40 sind die kritischen Kugelmassen für vollständig reflektierte homogene Plutoniumdioxid-Wassersysteme in Abhängigkeiten der von der Plutoniumkonzentration für zwei unterschiedliche Plutoniumvektoren für Altdaten und für neue Berechnungen dargestellt.

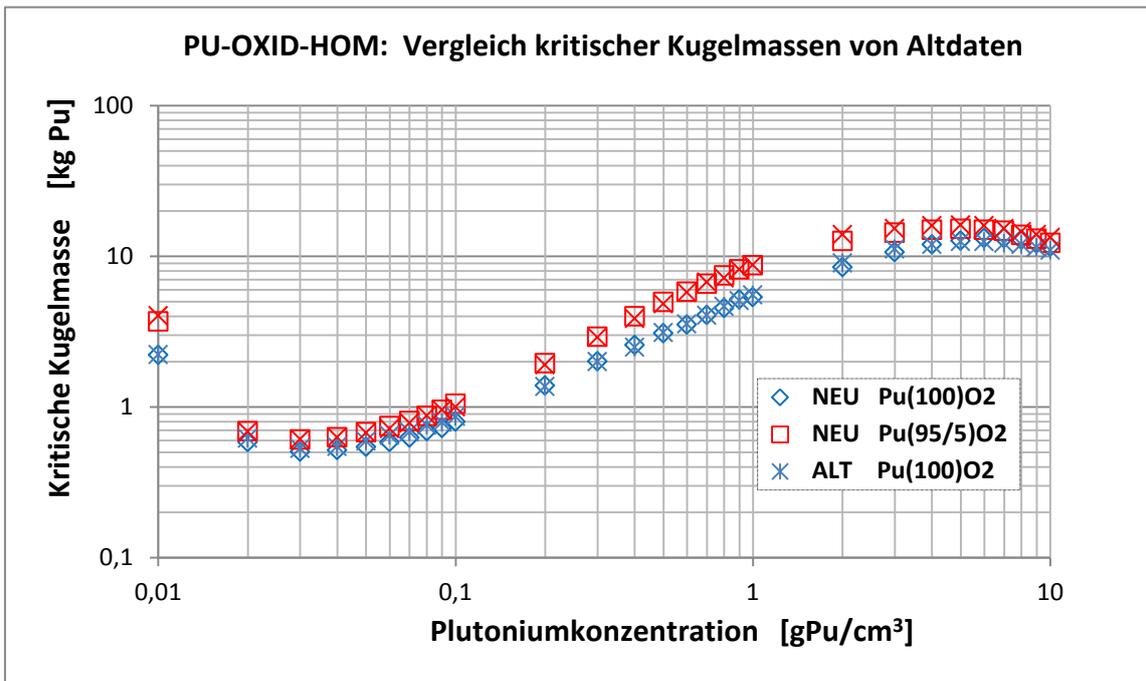


Abb. 3.40 Kritische Kugelmassen für homogene Plutoniumdioxid-Wassersysteme in Abhängigkeit von der Plutoniumkonzentration. Vergleich von Altdaten mit neuen Berechnungen

Nach Abb. 3.40 weisen die Altdaten und die neuen Berechnungen für beide Plutoniumvektoren keine signifikanten Abweichungen auf. Abb. 3.41 zeigt die relativen Abweichungen im Detail.

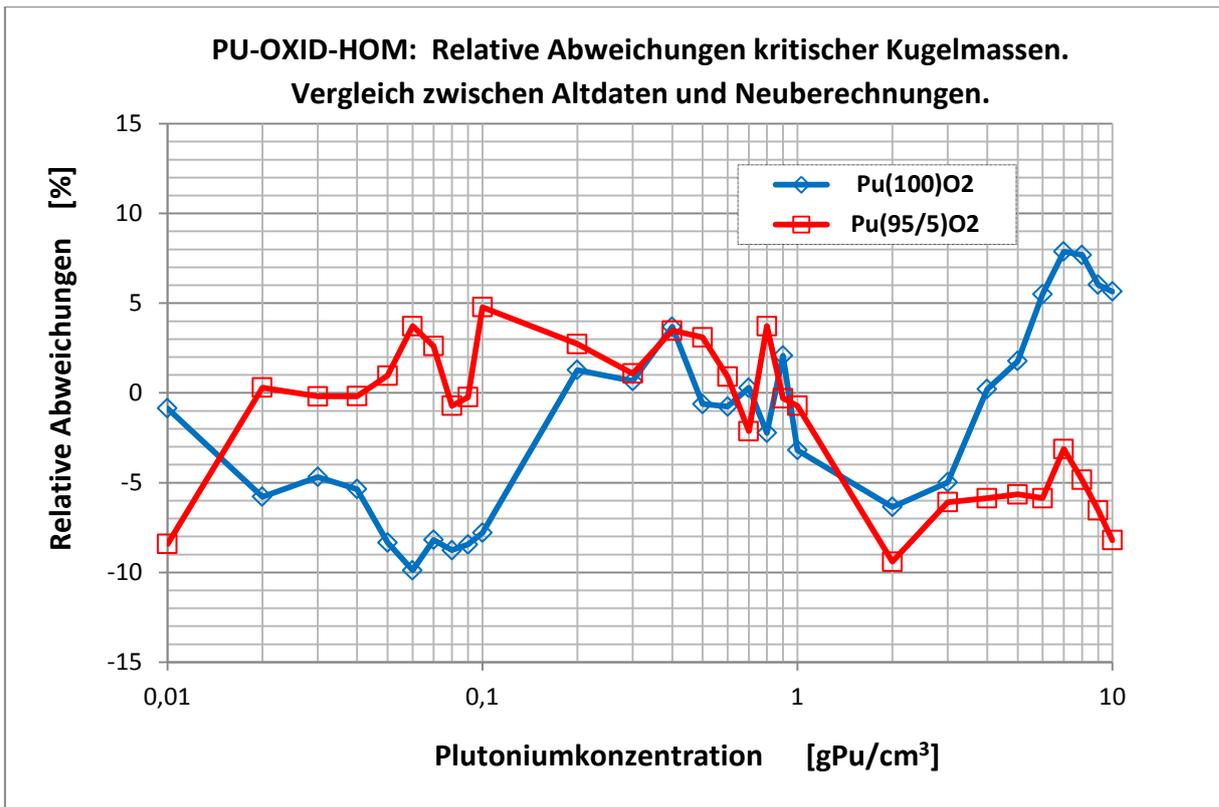


Abb. 3.41 Relative Abweichungen zwischen neuen Berechnungen und Altdaten für kritische Kugelmassen von homogenen Plutoniumdioxid-Wassersystemen

Nach Abb. 3.41 bewegen sich die relativen Abweichungen für sämtliche untersuchten Werte im Intervall von -10% bis $+10\%$. Dabei ist eine systematische Abhängigkeit der relativen Abweichungen von der Plutoniumkonzentration nicht zu beobachten.

In ihrer Gesamtheit sind die neu berechneten Werte etwas konservativer als die Altdaten, was sowohl durch die Mittelwerte der relativen Abweichungen aller untersuchten Werte ($-1,55$ für $\text{Pu}(100)\text{O}_2$ und $-1,47$ für $\text{Pu}(95/5)\text{O}_2$) als auch durch die im Vergleich zu den Altdaten niedrigeren kleinsten kritischen Kugelmassen (vgl. Tab. 3.13) unterstrichen wird.

Die kleinsten kritischen Massen und die zugehörigen Pu-Konzentrationen für die Neuberechnungen und die Altdaten sind in Tab. 3.13 zusammengestellt.

Tab. 3.13 Vergleich der kleinsten kritischen Kugelmassen und zugehörigen Pu-Konzentrationen für Altdaten und Neuberechnungen

System	Kleinste kritische Kugelmasse [kg Pu]	Konzentration [gPu/cm ³]
Pu(100)O ₂ neu	0,505	0,032
Pu(100)O ₂ alt	0,530	0,030
Pu(95/5)O ₂ neu	0,608	0,031
Pu(95/5)O ₂ alt	0,610	0,030

3.5.2.2 Homogene Uran-Plutonium-Mischoxid-Wasser-Systeme

Abb. 3.42 zeigt den Vergleich der aus Altdaten und Neuberechnungen abgeleiteten kritischen Kugelmassen für zwei homogene Uran-Plutonium-Mischoxid-Wasser-Systeme, beide mit Gewichtsanteilen von 30 % Plutonium und 70 % Uran im Schwermetall, aber mit unterschiedlichen Spaltstoffvektoren. Im ersten Fall bestehen das Uran vollständig aus ²³⁵U und das Plutonium aus ²³⁹Pu. Im zweiten Fall ist das Uran zu 93,5 % mit ²³⁵U angereichert (Rest ²³⁸U), und das Plutonium setzt sich zu 85 % aus ²³⁹Pu, zu 10 % aus ²⁴⁰Pu und zu 5 % aus ²⁴¹Pu zusammen. Diese Spaltstoff-Zusammensetzungen sind repräsentativ bzw. abdeckend für bestimmte Brüterbrennstoffe. Die Altdaten stammen aus dem Jahr 1971, die Neuberechnungen aus 2013.

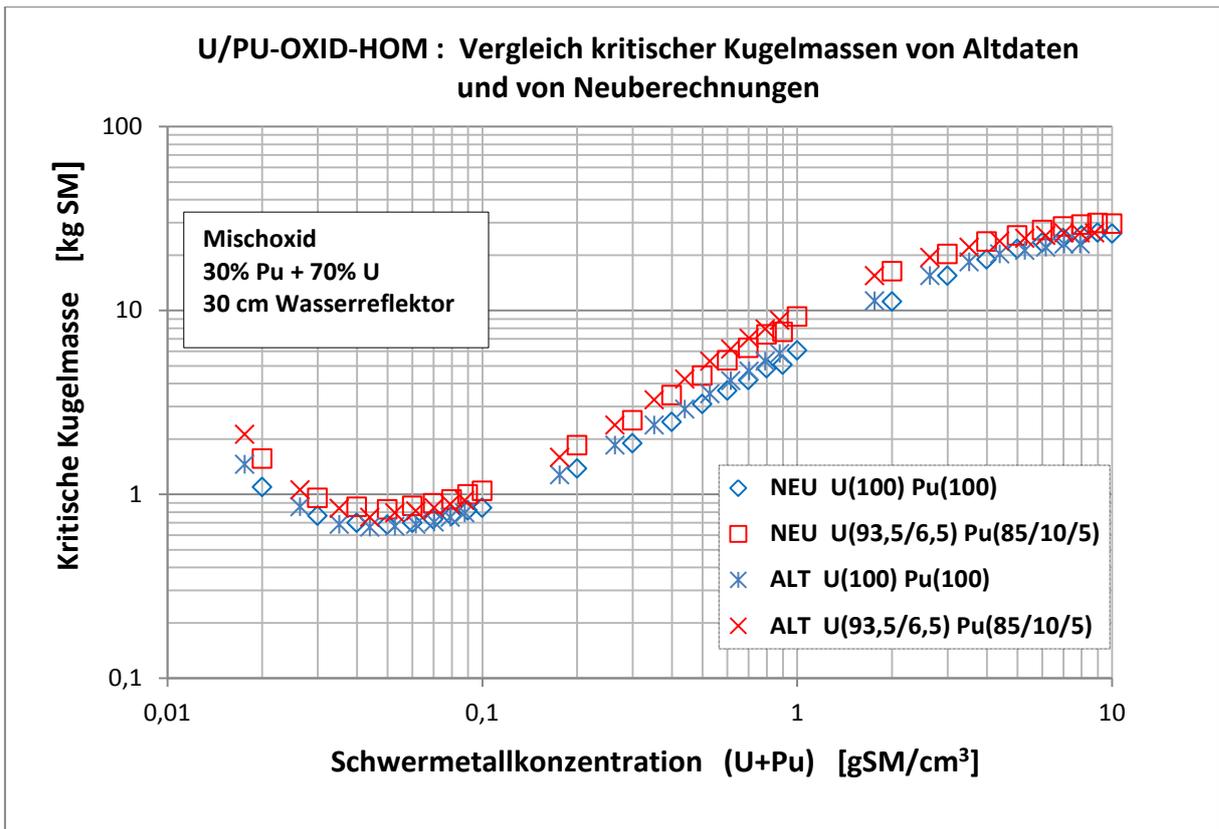


Abb. 3.42 Kritische Kugelmassen für homogene Uran-Plutonium-Mischoxid-Wassersysteme in Abhängigkeit von der Schwermetallkonzentration. Vergleich von Altdaten mit neuen Berechnungen

Nach Abb. 3.42 weisen die Altdaten und die neuen Berechnungen für beide Plutoniumvektoren keine signifikanten Abweichungen auf. Abb. 3.43 zeigt die relativen Abweichungen im Detail.

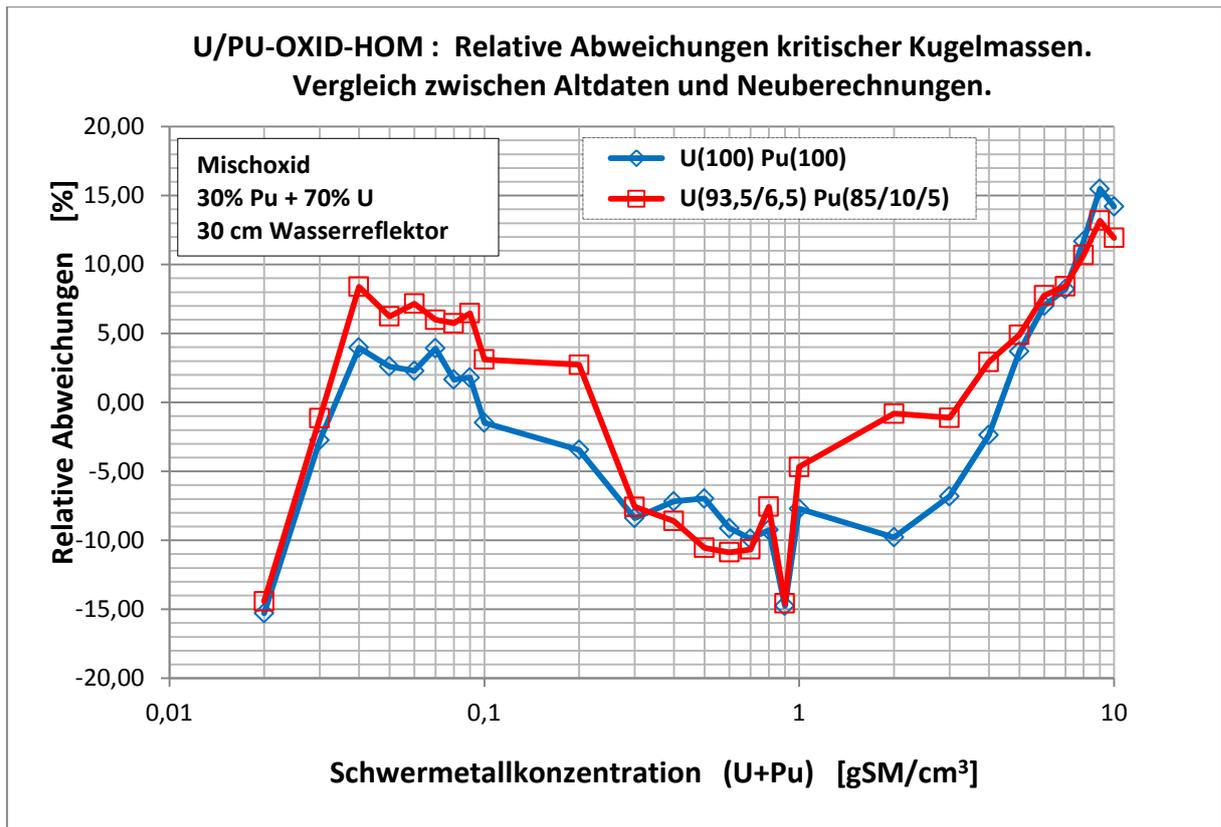


Abb. 3.43 Relative Abweichungen zwischen neuen Berechnungen und Altdaten für kritische Kugelmassen von homogenen Plutoniumdioxid-Wassersystemen

Nach Abb. 3.43 liegen die relativen Abweichungen für sämtliche untersuchten Werte im Intervall von -15% bis $+15\%$. Dabei ist eine systematische Abhängigkeit der relativen Abweichungen von der Schwermetallkonzentration nicht zu beobachten. Die relativen Abweichungen zeigen ein durchaus ambivalentes Verhalten: Bei kleinen Schwermetallkonzentrationen weisen sie negative Werte auf, ab $0,03\text{ gSM/cm}^3$ werden sie positiv, ab $0,3\text{ gSM/cm}^3$ wieder negativ und ab 3 gSM/cm^3 erneut positiv.

Betrachtet man nur die Mittelwerte der relativen Abweichungen aller untersuchten Werte, dann erweisen sich die Neuberechneten Werte für das System U(100) Pu(100) in ihrer Gesamtheit als geringfügig konservativ, und für U(93,5/6,5) Pu(85/10/5) als geringfügig weniger konservativ als die Altdaten, denn diese Mittelwerte betragen für das System U(100) Pu(100) $-1,43$ und für U(93,5/6,5) Pu(85/10/5) $+0,49$.

Werden dagegen die kleinsten kritischen Kugelmassen (vgl. Tabelle 2) berücksichtigt, dann zeigen sich die neu berechneten Werte für beide Systeme gegenüber den Altdaten als leicht konservativ.

Die kleinsten kritischen Massen und die zugehörigen Schwermetallkonzentrationen für die Neuberechnungen und die Altdaten sind in Tab. 3.14 zusammengestellt.

Tab. 3.14 Vergleich der kleinsten kritischen Kugelmassen und zugehörigen Schwermetallkonzentrationen für Altdaten und Neuberechnungen

System	Kleinste kritische Kugelmasse [kg SM]	Konzentration [gSM/cm³]
U(100) Pu(100) neu	0,681	0,046
U(100) Pu(100) alt	0,743	0,052
U(93,5/6,5) Pu(85/10/5) neu	0,872	0,047
U(93,5/6,5) Pu(85/10/5) alt	0,903	0,054

3.5.2.3 Homogene Plutoniumnitratsysteme zur Ermittlung der Pu-Konzentration als Funktion des Moderationsverhältnisses H/Pu

Die Abb. 3.44 zeigt eine Gegenüberstellung der auf Altdaten und neuen Berechnungen basierenden Relationen zwischen den Plutoniumkonzentrationen in einem homogenen Plutoniumnitrat-Wassersystem mit den Molaritäten ($H^+ = 0\text{ M}$, $H^+ = 3\text{ M}$ und $H^+ = 6\text{ M}$) und dem zugehörigen Moderationsverhältnis H/Pu.

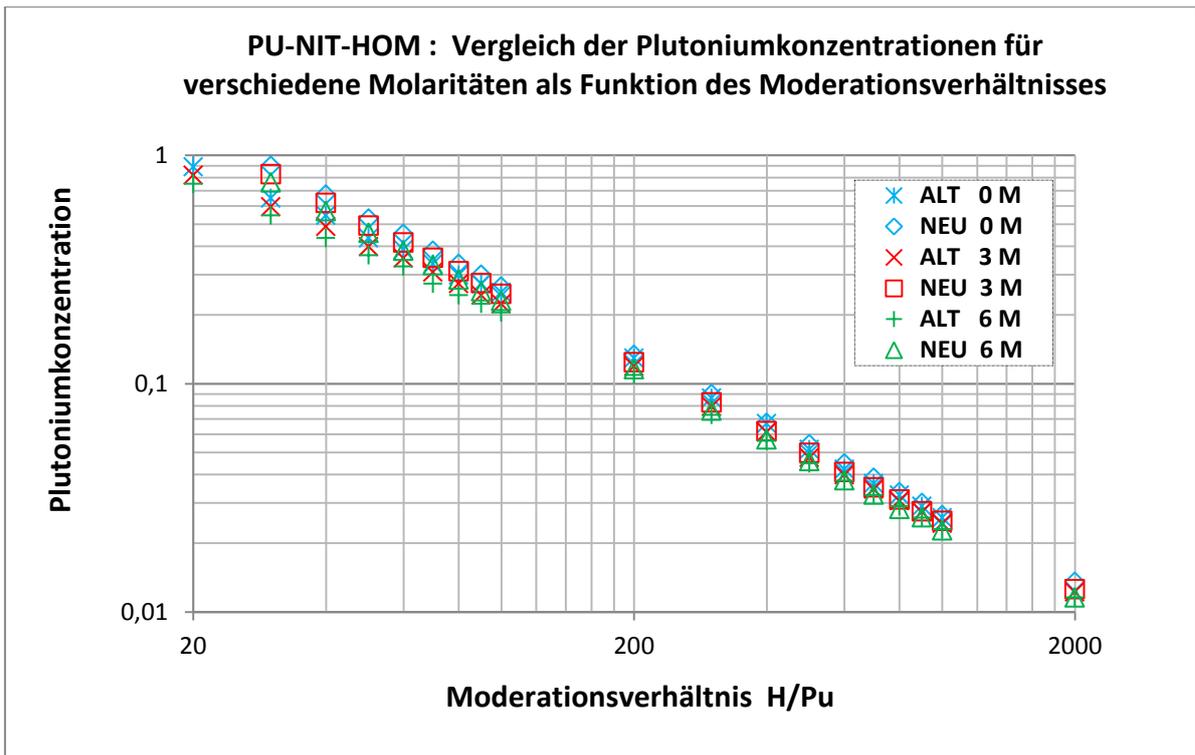


Abb. 3.44 Plutoniumkonzentrationen für homogene Plutoniumnitrat-Wassersysteme mit unterschiedlichen Molaritäten als Funktion des Moderationsverhältnisses H/Pu für Altdaten und Neuberechnungen

Gemäß Abb. 3.44 weisen die verschiedenen Kurven durchaus ähnliche Verläufe auf, wobei im vorliegenden Darstellungsformat keine signifikanten Unterschiede zwischen den einzelnen Molaritäten erkennbar sind.

Die Abb. 3.45 zeigt – jeweils für eine bestimmte Molarität – die relativen Abweichungen zwischen den neu berechneten Werten und den Altdaten.

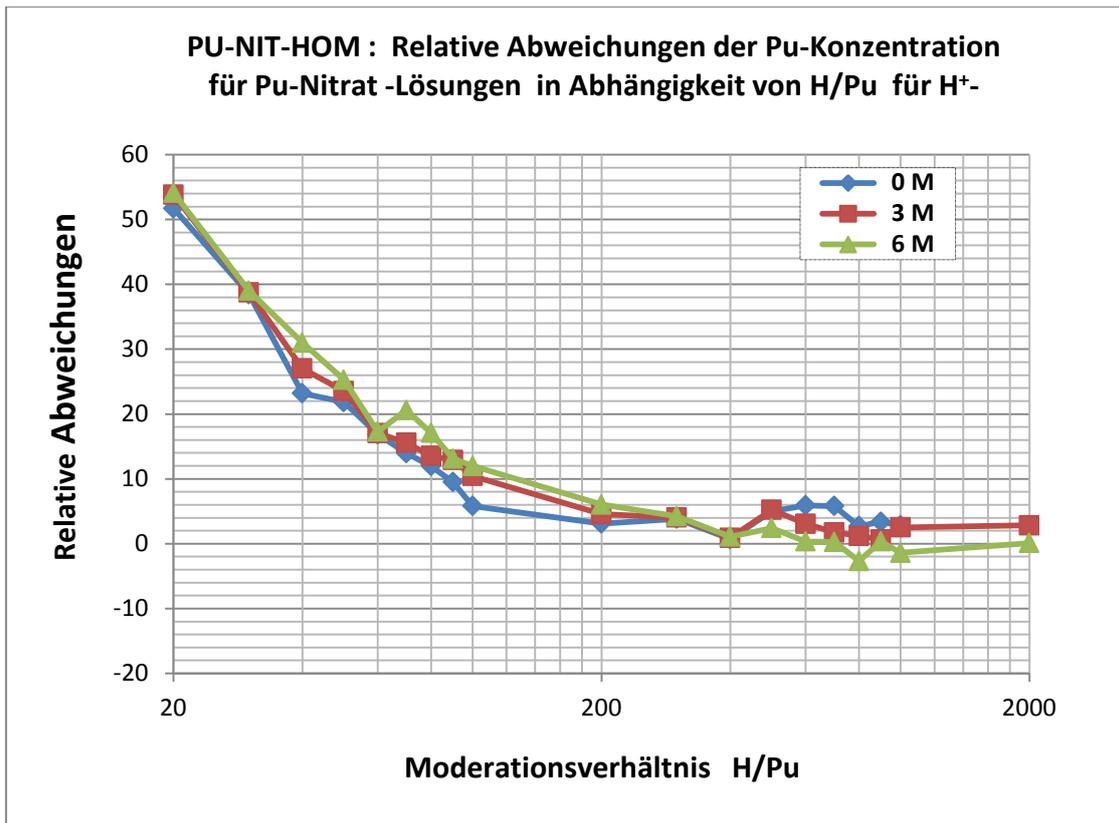


Abb. 3.45 Relative Abweichungen der Plutoniumkonzentration als Funktion von Moderationsverhältnis und Molarität zwischen Altdaten und Neuberechnungen

Wie aus Abb. 3.45 ersichtlich, weisen die relativen Abweichungen der drei untersuchten Molaritäten ein sehr ähnliches Verhalten auf. Bei niedrigem Moderationsverhältnis H/Pu treten große Abweichungen zwischen Neuberechnungen und Altdaten auf, die mit größer werdendem H/Pu stetig abnehmen und schließlich nahezu verschwinden.

Eine Erklärungsmöglichkeit für diese systematischen Abweichungen liegt in der Verwendung von unterschiedlichen theoretischen Dichten und Strukturformeln bei der Ermittlung der Altdaten und bei den Neuberechnungen. So gibt das frühere GRS Handbuch zur Kritikalität für Plutoniumnitrat ($\text{Pu}(\text{NO}_3)_4 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$) eine theoretische Dichte von $2,90 \text{ g/cm}^3$ an. Auf dieser Dichte basieren vermutlich die Altdaten. Die neuere SCALE-Version, mit der die Neuberechnungen durchgeführt wurden, verwendet hingegen einen Wert von $2,447 \text{ g/cm}^3$.

Eine ähnliche Problematik ist für Uranylinitrat feststellbar. Auch in diesem Fall werden unterschiedliche Werte für theoretische Dichte (GRS Handbuch zur Kritikalität für $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$: $2,807 \text{ g/cm}^3$, neuere SCALE-Versionen für $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$: $2,203 \text{ g/cm}^3$)

angegeben. Damit könnte auch die systematische Zunahme der relativen Abweichungen mit der Urankonzentration für ^{233}U -Nitrat (vgl. Kap. 3.5.2.4) erklärt werden.

3.5.2.4 Homogenes ^{233}U -Nitrat-Wasser-System

In Abb. 3.46 sind die kritischen Kugelmassen für ein vollständig reflektiertes homogenes ^{233}U -Nitrat-Wassersystem in Abhängigkeiten der von der Urankonzentration für Altdaten und für neue Berechnungen dargestellt.

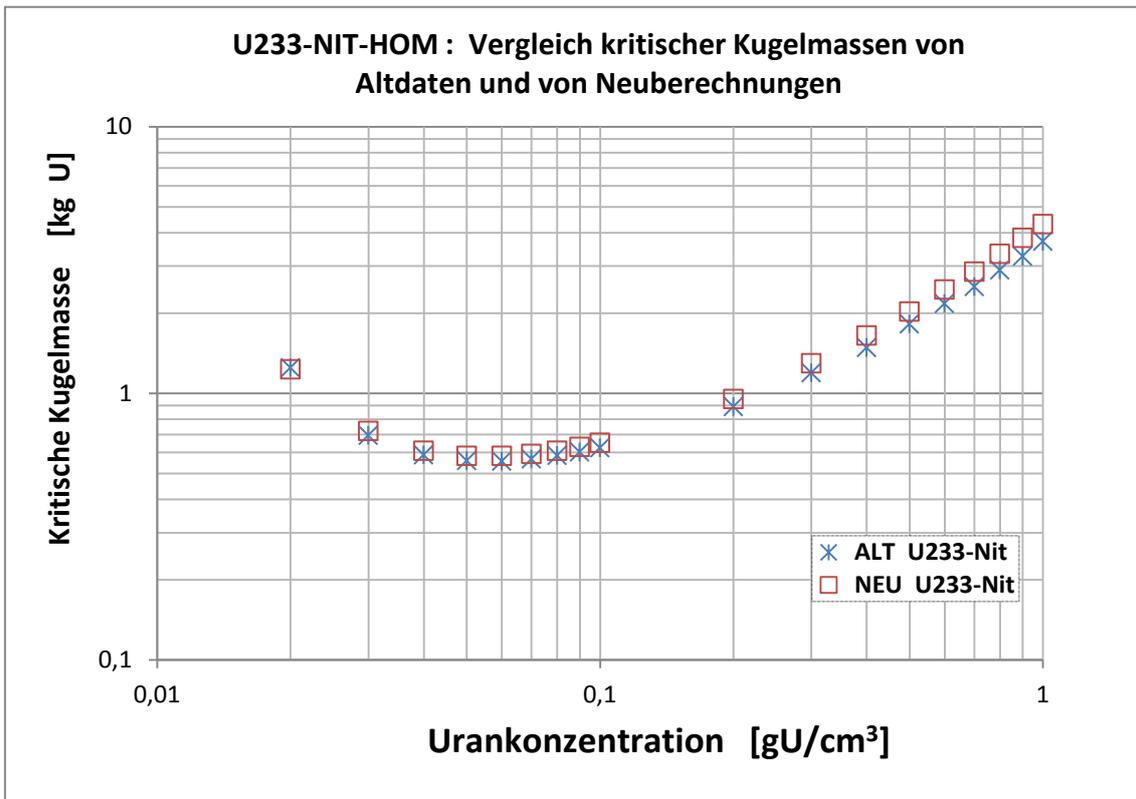


Abb. 3.46 Kritische Kugelmassen für homogene ^{233}U -Nitrat-Wassersysteme in Abhängigkeit von der Urankonzentration. Vergleich von Altdaten mit neuen Berechnungen

Nach Abb. 3.46 weisen die Altdaten und die neuen Berechnungen für niedrige Urankonzentration nur geringe Abweichungen auf. Mit zunehmender Urankonzentration werden auch die Abweichungen größer. Abb. 3.47 zeigt die relativen Abweichungen im Detail.

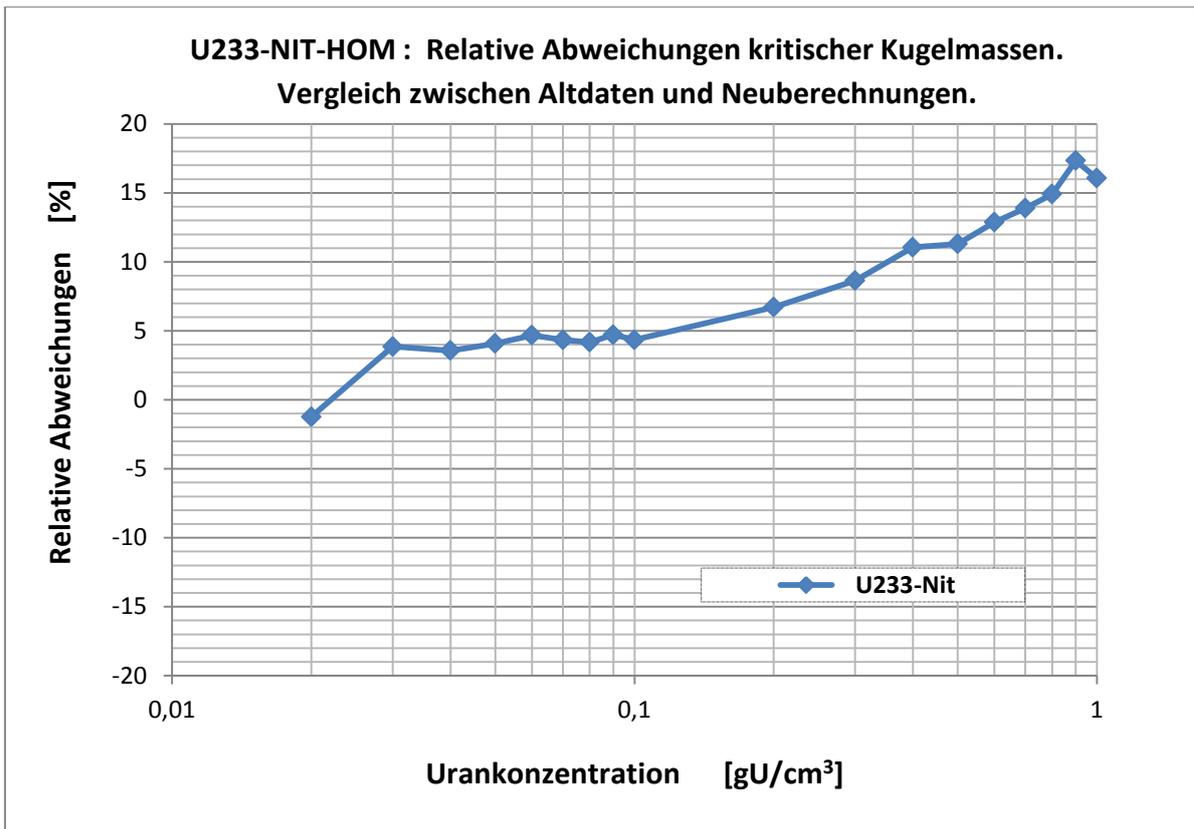


Abb. 3.47 Relative Abweichungen zwischen neuen Berechnungen und Altdaten für die kritischen Kugelmassen homogener ²³³U-Nitrat-Wassersysteme

Nach Abb. 3.47 bewegen sich die relativen Abweichungen für sämtliche untersuchten Werte im Intervall von -1 % bis +17 %. Dabei kann eine systematische Zunahme der relativen Abweichungen mit steigender Urankonzentration beobachtet werden, wobei sich die Altdaten als wesentlich konservativer als die Neuberechneten Werte erweisen. Der Mittelwert aller relativen Abweichungen beträgt +8,07 und unterstreicht zusammen mit der im Vergleich zu den Altdaten höheren kleinsten kritischen Kugelmasse (vgl. Tab. 3.15) die Konservativität der Altdaten gegenüber den Neuberechnungen.

Die kleinste kritische Massen und die zugehörigen ²³³U-Konzentrationen für die Neuberechnung und die Altdaten sind in Tab. 3.15 zusammengestellt.

Tab. 3.15 Vergleich der kleinsten kritischen Kugelmassen und der zugehörigen ^{233}U -Konzentrationen für Altdaten und Neuberechnung

System	Kleinste kritische Kugelmasse [kg ^{233}U]	Konzentration [gU/cm ³]
^{233}U -Nitrat neu	0,573	0,058
^{233}U -Nitrat alt	0,550	0,055

Die systematische Zunahme der relativen Abweichungen mit der Urankonzentration findet ihre Entsprechung im Verhalten der relativen Abweichungen bei der Berechnung der Plutoniumkonzentration in Abhängigkeit vom Moderationsverhältnis H/Pu in homogenen Plutoniumnitrat-Wasser-Systemen (vgl. Kap. 0). Dort nehmen die relativen Abweichungen mit zunehmendem Moderationsverhältnis – also abnehmender Schwermetallkonzentration – kontinuierlich ab. Möglicherweise liegt die Ursache sowohl für Plutoniumnitrat als auch für Uranylinitrat in unterschiedlichen Ausgangsdaten bei der Ermittlung der Altdaten und bei den Neuberechnungen. In beiden Fällen wurden vermutlich unterschiedliche theoretische Dichten und Dichterelationen für Altdaten und Neuberechnungen verwendet.

3.5.2.5 Homogenes Plutonylnitrat-System

Abb. 3.48 zeigt den Vergleich der aus Altdaten und Neuberechnungen abgeleiteten kritischen Kugelmassen für ein homogenes Plutonylnitrat-Wassersystem mit einem Plutoniumvektor von 95 % ^{239}Pu und 5 % ^{240}Pu . Die Altdaten stammen aus dem Jahr 1987, die Neuberechnungen aus 2014.

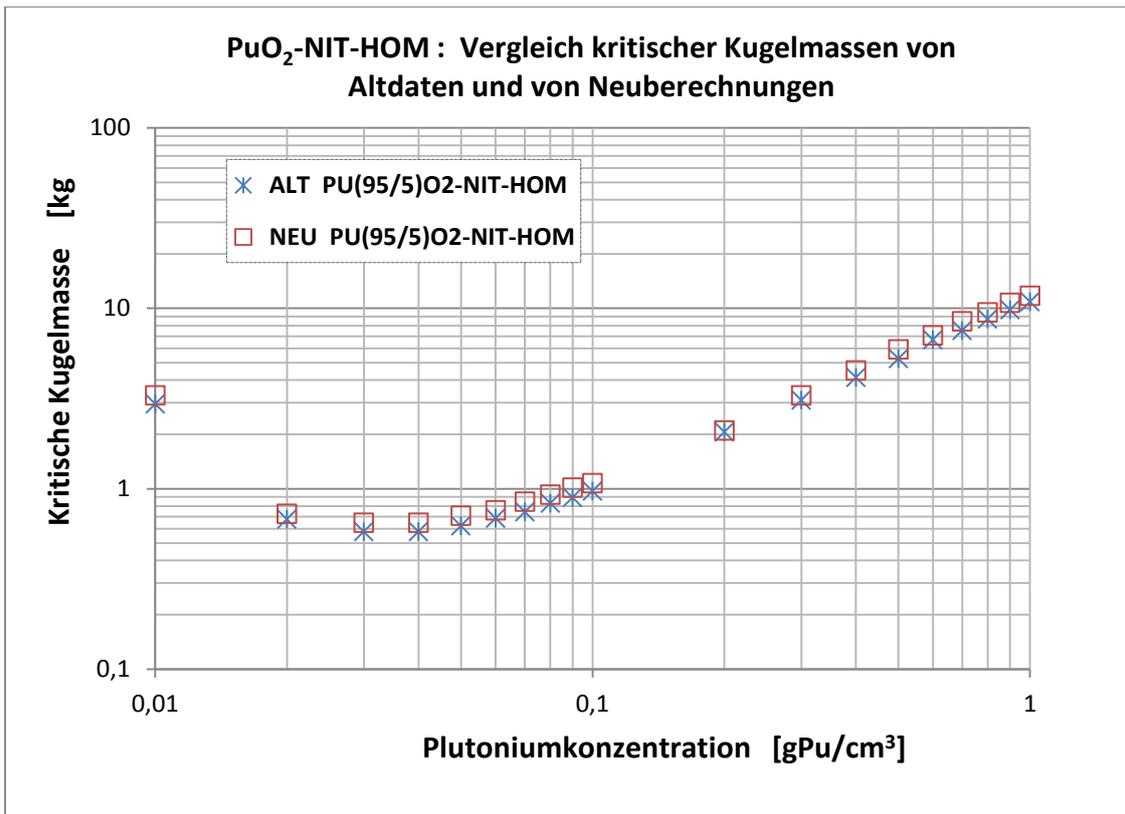


Abb. 3.48 Kritische Kugelmassen für ein homogenes Plutonylnitrat-Wassersystem. Vergleich zwischen Altdaten und Neuberechnungen

Aus Abb. 3.48 ist insgesamt eine gute Übereinstimmung zwischen den Altdaten und den Neuberechnungen ersichtlich. Die Abb. 3.49 zeigt die relativen Abweichungen zwischen Neuberechnungen und Altdaten für Plutoniumkonzentrationen im Bereich von 0,01 bis 0,7 gPu/cm³.

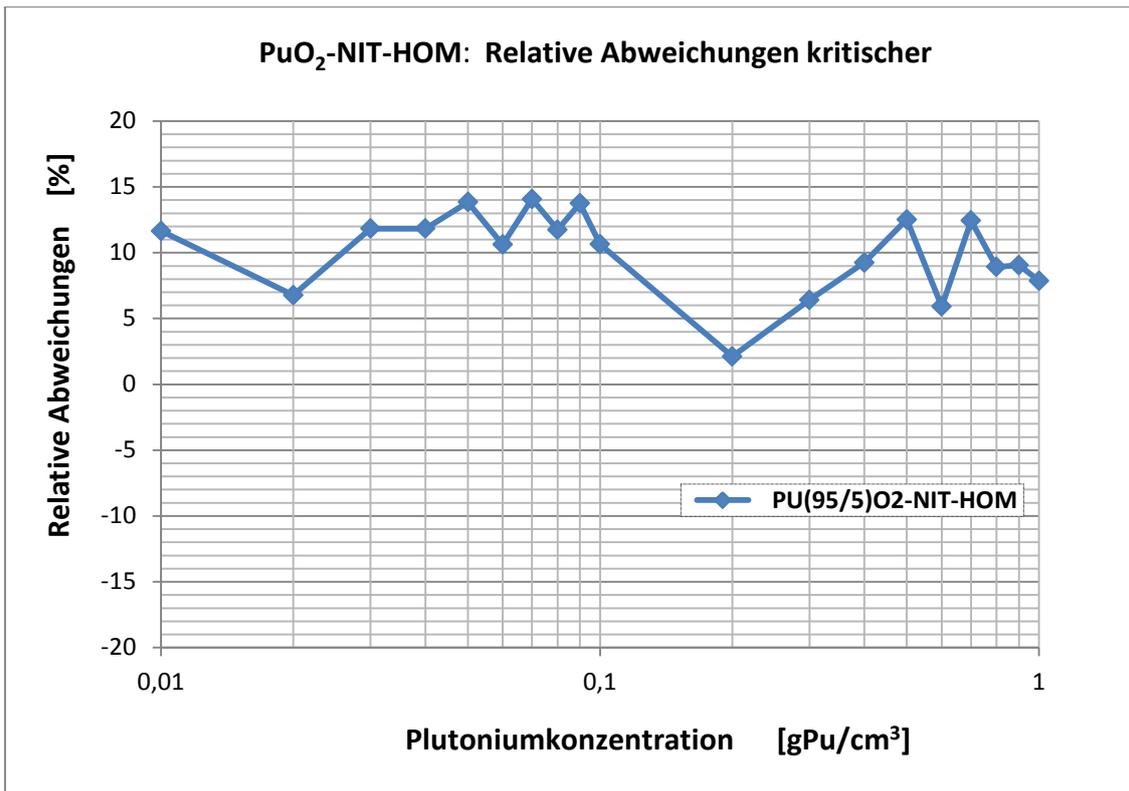


Abb. 3.49 Relative Abweichungen zwischen neuen Berechnungen und Altdaten für kritische Kugelmassen für ein homogenes Plutonylnitrat-Wassersystem

Nach Abb. 3.49 liegen die relativen Abweichungen für sämtliche untersuchten Werte im Intervall von +2 % bis +14 %. Dabei kann keine Systematik der relativen Abweichungen in Abhängigkeit von der Plutoniumkonzentration beobachtet werden. Demnach müssen die Altdaten im Vergleich zu den Neuberechneten Werten als konservativ betrachtet werden. Der Mittelwert aller relativen Abweichungen beträgt +10,06 % und unterstreicht zusammen mit der im Vergleich zu den Altdaten höheren kleinsten kritischen Kugelmasse (vgl. Tab. 3.16) die Konservativität der Altdaten gegenüber den Neuberechnungen.

Die kleinste kritische Massen und die zugehörigen Plutonium-Konzentrationen für die Neuberechnung und die Altdaten sind in Tab. 3.16 zusammengestellt.

Tab. 3.16 Vergleich der kleinsten kritischen Kugelmassen und der zugehörigen Pu-Konzentrationen für Altdaten und Neuberechnung

System	Kleinste kritische Kugelmasse [kg Pu]	Konzentration [gPu/cm ³]
PuO ₂ -Nitrat neu	0,632	0,031
PuO ₂ -Nitrat alt	0,570	0,032

3.5.2.6 Homogene Plutoniumnitrat-Systeme

Abb. 3.50 zeigt die relativen Abweichungen der aus Altdaten und Neuberechnungen abgeleiteten kritischen Kugelmassen für homogene Plutoniumnitrat-Wassersysteme mit verschiedenen Plutoniumvektoren. Untersucht wurden dabei Plutoniumvektoren mit reinem ²³⁹Pu (Pu(100), mit 95 % ²³⁹Pu und 5 % ²⁴⁰Pu Pu(95/5), mit 85 % ²³⁹Pu, 10 % ²⁴⁰Pu und 5 % ²⁴¹Pu (Pu(85/10/5), sowie mit 59 % ²³⁹Pu, 25 % ²⁴⁰Pu, 12 % ²⁴¹Pu und 4 % ²⁴²Pu (Pu(59/25/12/4)).

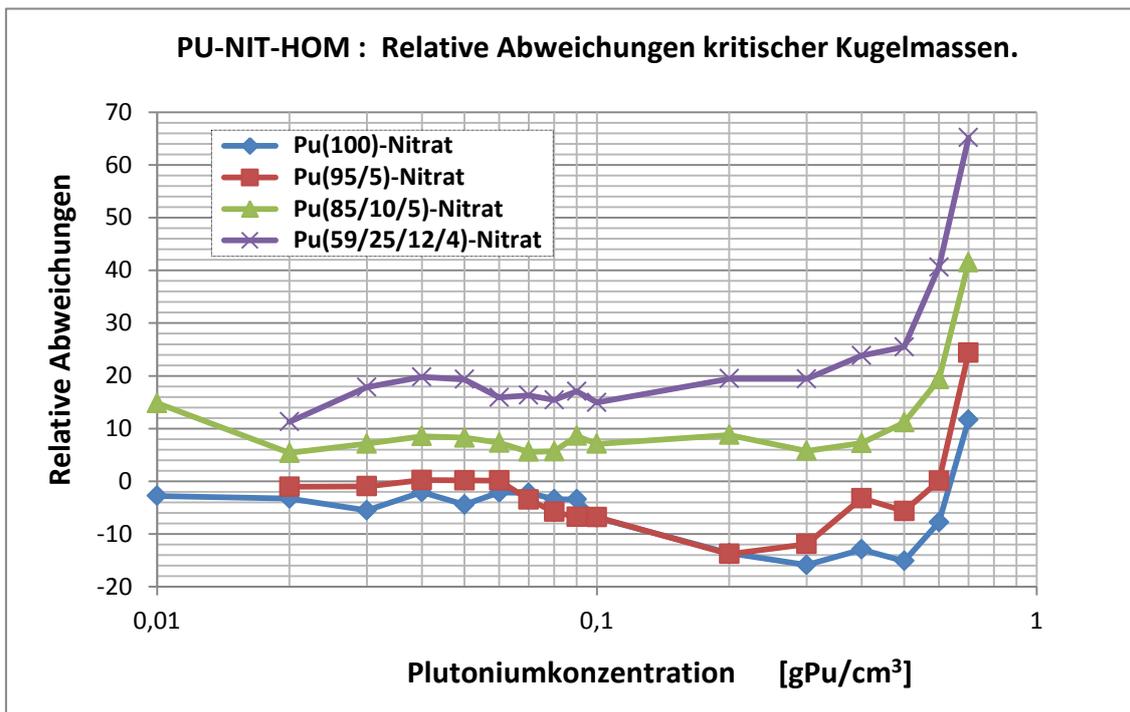


Abb. 3.50 Relative Abweichungen zwischen neuen Berechnungen und Altdaten für kritische Kugelmassen für homogene Plutoniumnitrat-Wassersysteme

Nach Abb. 3.50 weisen die relativen Abweichungen aller vier untersuchten Plutoniumvektoren ein ähnliches Grundverhalten auf: Mehr oder weniger konstante Werte im Bereich von 0,01 gPu/cm³ bis 0,3 gPu/cm³ und anschließend ein starker Anstieg bis

hin zur maximalen Plutoniumkonzentration. Dieses Verhalten ist vermutlich auf die bereits in den Kapiteln 0 und 3.5.2.4 angesprochene Verwendung von unterschiedlichen Basisdaten bei den Rechnungen zu den Altdaten und den Neuberechnungen zurückzuführen.

Neben diesem Grundverhalten zeigen die vier Systeme auch deutliche Unterschiede. Während bei den Systemen mit den Plutoniumvektoren Pu(100) und Pu(95/5) die Neuberechnungen – mit Ausnahme des bereits angesprochenen Anstiegs jenseits von 0,3 g Pu/cm³ – konservativer als die Altdaten sind, ist es bei den Systemen mit den Plutoniumvektoren Pu(85/10/5) und Pu(59/25/12/4) genau umgekehrt. Dies zeigt sich auch in den Mittelwerten der relativen Abweichungen. Diese belaufen sich für das System mit Pu(100) auf -5,61 %, für das mit Pu(95/5) auf -2,29 %, für das mit Pu(85/10/5) auf +10,77 % und für das mit Pu(59/25/12/4) auf +22,78 %. Untermauert wird diese Aussage durch den Vergleich der kleinsten kritischen Massen aus Altdaten und für Neuberechnungen erfolgt. Aus Tab. 3.17 ist ersichtlich, dass bei den Systemen mit Pu(100) und Pu(95/5) die kleinsten kritischen Massen der Neuberechnungen kleiner als die der Altdaten sind; bei den anderen Systemen sind die kleinsten kritischen Massen der Altdaten kleiner.

Tab. 3.17 Vergleich der kleinsten kritischen Kugelmassen und zugehörigen Plutoniumkonzentrationen für Altdaten und Neuberechnungen

System	Kleinste kritische Kugelmasse [kg Pu]	Konzentration [gPu/cm ³]
Pu(100) neu	0,516	0,031
Pu(100) alt	0,545	0,032
Pu(95/5) neu	0,633	0,032
Pu(95/5) alt	0,645	0,035
Pu(85/10/5) neu	0,727	0,032
Pu(85/10/5) alt	0,680	0,031
Pu(59/25/12/4) neu	1,396	0,039
Pu(59/25/12/4) alt	1,178	0,037

3.5.3 Schlussfolgerungen

Ein Vergleich der auf sogenannten Altdaten und auf Neuberechnungen fußenden kritischen Kugelmassen hat gezeigt, dass die Frage nach der Konservativität der Neuberechnungen für jedes System einzeln behandelt werden muss.

So erweisen sich in dieser Untersuchung die Neuberechnungen im Fall der homogenen Plutoniumdioxid-Wasser-Systeme und der homogenen Uran-Plutonium-Mischoxid-Wasser-Systeme als konservativer als die Altdaten. Beim homogenen ^{233}U -Nitrat-Wasser-System und beim homogenen Plutonylnitrat-System hingegen sind die Altdaten konservativer.

Eine diesbezügliche Sonderstellung nehmen die homogenen Plutoniumnitrat-Wassersysteme ein. Für zwei Systeme mit den Plutoniumvektoren Pu(100) und Pu(95/5) sind die Neuberechnungen konservativer als die Altdaten und für die Systeme mit Pu(85/10/5) und Pu(59/25/12/4) erweisen sich die Altdaten als konservativer.

Ein weiterer wichtiger Gesichtspunkt beim Datenvergleich ist die Verwendung von einheitlichen Basisdaten. Bedingt durch Fortschritte in Wissenschaft und Technik sind die Basisdaten (z. B. Strukturformel, theoretische Dichte, Dichterelation) der Systeme im Lauf der Zeit Änderungen unterworfen. Dies erschwert einen Vergleich zwischen den sogenannten Altdaten und den Neuberechnungen. Dies betraf in dieser Untersuchung vor allen Dingen die Nitrat-Systeme.

3.6 Vergleich kritischer Parameter mit Werten nach DIN 25403

Im Rahmen einer Überprüfung der Norm DIN 25403 "Kritikalitätssicherheit bei der Verarbeitung und Handhabung von Kernbrennstoffen" /DIN 12/ wurden kritische Parameter für homogene Spaltstoff-Moderator-Mischungen aus deren Teilen 2 bis 8 (ohne 7¹) mit den entsprechenden Werten aus dem GRS "Handbuch zur Kritikalität", Arbeitsfassung März 2013 (im Folgenden als „HK2013“ bezeichnet), verglichen.

¹ DIN25403 Teil 7 enthält kritische Parameter zu heterogenen Urandioxid-Wasser-Systemen; dieser Teil wurde im Jahr 2014 zurückgezogen /DIN 14/, vgl. auch Kap. 3.1.2.

Betrachtet wurden dabei die folgenden Spaltstoffsyste

- Uran-235-Metall-Leichtwasser-Mischungen (DIN 25403-02).
- Plutonium-239-Metall-Leichtwasser-Mischungen (DIN 25403-03),
- Urandioxid-Leichtwasser-Mischungen (DIN 25403-04),
- Plutonium-239-Dioxid-Leichtwasser-Mischungen (DIN 25403-05),
- Plutonium-239-Nitrat-Leichtwasser-Mischungen (DIN 25403-06) und
- Uranylinitrat-(100 % Uran 235)-Leichtwasser-Mischungen (DIN 25403-08).

Für jedes dieser Spaltstoffsyste werden die entsprechenden Werte der Kritikalitätsparameter von DIN 25403 und vom Handbuch zur Kritikalität in Tabellen gegenübergestellt. Soweit keine Zahlenwerte im Handbuch verfügbar sind, werden die Daten den zugehörigen Abbildungen entnommen.

3.6.1 Vergleich der Kritikalitätsparameter

Die den Kritikalitätsparametern zugrunde liegenden Kurven basieren auf 16-Gruppen-Rechnungen mit den Programmen GAMTEC (Spektralcode), GAM-II, DTF-IV (S_N-Transportcode) und KENO-II (Monte-Carlo-Code). Anisotrope Streuung wurde in P₁-Approximation berücksichtigt, die Rechnungen wurden meist in S₈-Ordnung ausgeführt. Die Resonanzbehandlung von ²³⁸U erfolgte nach der Methode von Nordheim. Ein Teil der Rechnungen wurde unter Verwendung der 16-Gruppen-Wirkungsquerschnitte von Hansen und Roach durchgeführt.

Teilweise wurden für die im Folgenden betrachteten Spaltstoffsyste die kleinsten kritische Werte mit moderneren Rechenverfahren überprüft und gegebenenfalls verbessert. Darauf wird im jeweiligen Spaltstoffsyste eingegangen. Sämtliche aufgeführten kritischen Werte gelten für voll wasserreflektierte Systeme.

3.6.1.1 Kritikalitätsdaten für ²³⁵U-Metall-Leichtwasser-Mischungen

Tab. 3.18 zeigt eine Gegenüberstellung der aus DIN 25403-2 und aus HK2013 entnommenen kleinsten kritischen Dimensionen für homogene ²³⁵U-Wasser-Systeme mit einem konstanten ²³⁵U-Anteil von 100 %.

Die kleinsten kritischen Werte im HK2013 wurden unter Berücksichtigung der neueren Veröffentlichungen überprüft und in einigen Fällen neu berechnet. Dazu wurde das Programmsystem SCALE Version 4.3 eingesetzt. Es wurden Wirkungsquerschnittbibliotheken mit 44 und 238 Energiegruppen auf der Basis von ENDF/B-V Kerndaten verwendet.

Tab. 3.18 Vergleich kritische Parameter für homogene U-235-Metall-Leichtwasser-Mischungen zwischen DIN 25403-2 und HK2013

Kleinste kritische Werte für Uran-235-Metall homogene Uran-235-Leichtwasser-Mischungen	DIN 25403-2	HK2013
Uran-235-Kugelmasse Lösung (reaktivste Konzentration) [kg]	0,77	0,8
Kugelvolumen Metall ($\rho = 18,9 \text{ g/cm}^3$) l	1,09	1,1
Zylinderdurchmesser Metall ($\rho = 18,9 \text{ g/cm}^3$) [cm]	7,50	7,6
Schichtdicke Metall ($\rho = 18,9 \text{ g/cm}^3$) [cm]	1,58	1,5
Uran-235-Konzentration [g/cm^3]	0,0121	0,0121

Aus Tab. 3.18 ist eine gute Übereinstimmung zwischen den DIN- und den HK2013-Werten ersichtlich. Die relativen Abweichungen – bezogen auf HK2013 – liegen im Intervall zwischen -4 und +5%.

3.6.1.2 Kritikalitätsdaten für Plutonium-Metall und homogene Plutonium-Leichtwasser-Mischungen

Die folgende Tab. 3.19 enthält Kritikalitätsparameter sowohl nach DIN 25403-3 als auch nach HK2013 für homogene ^{239}Pu - ^{240}Pu - H_2O -Mischungen für Massenanteile des Isotops ^{240}Pu von 0 % und 5 %. Das restliche Plutonium ist stets reines ^{239}Pu .

Die Berechnung der Kritikalitätsparameter in HK2013 erfolgte im Wesentlichen mit den eingangs aufgeführten Rechenverfahren. Diese Werte wurden an verschiedenen Experimenten bei variablem ^{240}Pu -Anteil von GRS sowie von anderen Autoren geprüft. Die Übereinstimmung mit dem Experiment ist meist sehr gut.

Tab. 3.19 Vergleich kritischer Parameter für homogene ^{239}Pu - ^{240}Pu -H₂O-Mischungen zwischen DIN 25403-3 und HK2013

Kleinste kritische Werte für	100 % Pu-239		95 % Pu-239 + 5 % Pu-240	
	DIN 25403-3	HK2013	DIN 25403-3	HK2013
Pu-Metall				
homogene Pu-Leichtwasser-Mischungen				
Pu-Kugelmasse Lösung (reaktivste Konzentration) [kg]	0,50	0,51	0,62	0,61
Kugelvolumen Metall ($\rho = 19,6 \text{ g/cm}^3$)	0,28	0,27	0,30	0,34
Zylinderdurchmesser Metall ($\rho = 19,6 \text{ g/cm}^3$) [cm]	4,65	4,5	4,78	4,5
Schichtdicke Metall ($\rho = 19,6 \text{ g/cm}^3$) [cm]	0,87	0,72	0,97	0,8
Pu-Konzentration [g/cm^3]	0,0072	0,0072	0,0078	

Tab. 3.19 weist bezüglich der Übereinstimmung zwischen den DIN- und den HK2013-Werten ein ambivalentes Verhalten auf. Gute Übereinstimmung mit relativen Abweichungen im Bereich zwischen -2% und +6% ist zu verzeichnen sowohl für 100% ^{239}Pu als auch für Pu(95/5) bei den Kritikalitätsparametern Kugelmasse und Zylinderdurchmesser und für Pu(100) beim Kugelvolumen. Die relativen Abweichungen der verbleibenden Kritikalitätsparameter – bezogen auf HK2013 – liegen im Intervall zwischen -12% und +21%. Relative Abweichungen größer als 5% sind bei den Schichtdicken für 100% ^{239}Pu (+20,83%) und Pu(95/5) (+21,25%) sowie bei Kugelvolumen (-11,76%) und Zylinderdurchmesser (+6,22%) für Pu(95/5) zu verzeichnen.

3.6.1.3 Kritikalitätsdaten für Urandioxid-Leichtwasser-Mischungen

Tab. 3.20 und Tab. 3.21 zeigen eine Gegenüberstellung der aus DIN 25403-4 und aus HK2013 entnommenen kleinsten kritischen Dimensionen für homogene Urandioxid-Leichtwasser-Mischungen für ^{235}U -Anreicherungen von 100% und 20% (Tab. 3.20) und für solche von 5% (Tab. 3.21). Die kleinsten kritischen Parameter in HK2013 wurden anhand verschiedener Veröffentlichungen überprüft und in einigen Fällen neu berechnet. Dazu wurde das Programmsystem SCALE Version 4.3 mit der auf ENDF/B-V-Daten basierenden 44-Gruppen-Bibliothek eingesetzt. Die so berechneten Werte wurden teilweise in die Tabelle aufgenommen. Ebenfalls neu aufgenommen wurden Daten, welche mit dem Programmsystem SCALE Version 6 mit der auf ENDF/B VII.0-Daten basierenden 238-Gruppen-Bibliothek berechnet wurden.

Tab. 3.20 Vergleich kritischer Parameter von homogenen $^{235}\text{UO}_2$ - $^{238}\text{UO}_2$ - H_2O -Mischungen mit 100 % und 20 % ^{235}U -Anreicherung zwischen DIN 25403-3 und HK2013

Kleinste kritische Werte für	100 % U-235		20 % U-235	
	DIN 25403-4	HK2013	DIN 25403-4	HK2013
homogene Urandioxid-Leichtwasser-Mischungen				
Uran-Kugelmasse Lösung (reaktivste Konzentration) [kg]	0,77	0,8	5,09	5,0
Kugelvolumen Oxid ($\rho = 10,96 \text{ g/cm}^3$) [cm]	4,02			
Kugelvolumen Lösung (reaktivste Konzentration)		5,6	10,50	10,8
Zylinderdurchmesser Oxid ($\rho = 10,96 \text{ g/cm}^3$) [cm]	12,10			
Zylinderdurchmesser Lösung (reaktivste Konzentration) [cm]		14,0	17,74	17,8
Schichtdicke Oxid ($\rho = 10,96 \text{ g/cm}^3$) [cm]	3,30			
Schichtdicke Lösung (reaktivste Konzentration) [cm]		4,8	7,15	7,5

Für UO_2 - H_2O -Mischungen mit 100 % ^{235}U liegen in HK2013 nur für die reaktivste Konzentration der Lösung Werte der Kritikalitätsparameter Kugelvolumen, Zylinderdurchmesser und Schichtdicke vor.

Tab. 3.21 Vergleich kritischer Parameter für eine homogene $^{235}\text{UO}_2$ - $^{238}\text{UO}_2$ - H_2O -Mischungen mit 5 % ^{235}U -Anreicherung zwischen DIN 25403-4 und HK2013 unter Verwendung zweier verschiedener Wirkungsquerschnittsbibliotheken

Kleinste kritische Werte für	DIN 25403-4	HK2013	
Urandioxid 5 % U-235		ENDF/B-V	ENDF/B-VII.0
homogene Urandioxid-Leichtwasser-Mischungen			
Uran-Kugelmasse Lösung (reaktivste Konzentration) [kg]	36,79	37,75	36,5
Kugelvolumen Lösung (reaktivste Konzentration)	27,86	28,9	27,2
Zylinderdurchmesser Lösung (reaktivste Konzentration) [cm]	25,56	26,1	25,4
Schichtdicke Lösung (reaktivste Konzentration) [cm]	12,15	12,4	11,9

Tab. 3.20 und Tab. 3.21 zeigen eine gute Übereinstimmung zwischen den DIN- und den HK2013-Werten. Die relativen Abweichungen – bezogen auf HK2013 – liegen im

Intervall zwischen -5% und +2%. Besonders fällt in Tab. 3.21 auf, dass die mit ENDF/B-V-Wirkungsquerschnitten ermittelten Handbuchwerte in allen Fällen weniger konservativ als die DIN-Werte, die ENDF/B-VII.0-Werte hingegen stets konservativer sind.

3.6.1.4 Kritikalitätsdaten für Plutoniumdioxid-Leichtwasser-Mischungen

Die nachfolgende Tab. 3.22 enthält Kritikalitätsparameter sowohl nach DIN 25403 als auch nach HK2013 für homogene $^{239}\text{PuO}_2$ - $^{240}\text{PuO}_2$ - H_2O -Mischungen für Massenanteile des Isotops ^{239}Pu von 100% und 95%. Bei den verbleibenden Pu-Massenanteilen handelt es sich stets um ^{240}Pu .

Die Berechnung der Kritikalitätsparameter in HK2013 erfolgte im Wesentlichen mit den eingangs des Kapitels aufgeführten Rechenverfahren. Die Werte für 5% ^{240}Pu basieren auf Berechnungen mit dem S_N -Transportcode XSDRNPM. Zur Erzeugung der Wirkungsquerschnitte wurde dabei das Programmsystem SCALE mit einer auf ENDF/B-IV-Daten beruhenden 27-Gruppenbibliothek eingesetzt.

Tab. 3.22 Vergleich kritischer Parameter von homogenen $^{239}\text{PuO}_2$ - $^{240}\text{PuO}_2$ - H_2O -Mischungen mit ^{239}Pu -Anreicherung von 100% und 95% zwischen DIN 25403-5 und HK2013

Kleinste kritische Werte für	100 % Pu-239		95 % Pu-239 + 5 % Pu-240	
	DIN 25403-5	HK2013	DIN 25403-5	HK2013
homogene Pu-Dioxid-Leichtwasser-Mischungen				
Pu-Kugelmasse Lösung (reaktivste Konzentration) [kg]	0,50	0,51	0,58	0,6
Kugelvolumen PuO_2 (Metалldichte 10,11 g/cm ³)	1,15	1,07	1,23	1,2
Zylinderdurchmesser PuO_2 (Metалldichte 10,11 g/cm ³) [cm]	7,70	7,40	7,97	7,8
Schichtdicke PuO_2 (Metалldichte 10,11 g/cm ³) [cm]	1,78	1,75	2,00	1,9

Nach Tab. 3.22 ist eine relativ gute Übereinstimmung zwischen den DIN- und den HK2013-Werten feststellbar. Die relativen Abweichungen – bezogen auf HK2013 – liegen im Intervall zwischen -3% und +7%. Relative Abweichungen größer als 5% sind bei Kugelvolumen für 100% ^{239}Pu mit +7,48% und bei Schichtdicke für Pu(95/5) mit +5,26% zu verzeichnen.

3.6.1.5 Kritikalitätsdaten für Plutoniumnitrat-Leichtwasser-Mischungen

Tab. 3.23 zeigt eine Gegenüberstellung der auf DIN 25403 und auf HK2013 basierenden Kritikalitätsparameter für homogene ^{239}Pu - ^{240}Pu -Nitrat-Mischungen für Massenanteile des Isotops ^{239}Pu von 100 % und 95 %. Bei den verbleibenden Pu-Massenanteilen handelt es sich stets um ^{240}Pu . Die Berechnung der Kritikalitätsparameter in HK2013 erfolgte im Wesentlichen mit den eingangs in Kap. 3.6.1 aufgeführten Rechenverfahren.

Tab. 3.23 Vergleich kritischer Parameter von homogenen ^{239}Pu - ^{240}Pu -Nitrat-Mischungen mit ^{239}Pu -Anreicherung von 100 % und 95 % zwischen DIN 25403-6 und HK2013

Kleinste kritische Werte für	100 % Pu-239		95 % Pu-239 + 5 % Pu-240	
	DIN 25403-6	HK2013	DIN 25403-6	HK2013
homogene Pu-Nitrat-Leichtwasser-Mischungen				
Pu-Kugelmasse [kg]	0,52	0,54	0,64	0,63
Kugelvolumen [l]	8,10	8,3	11,40	11,2
Zylinderdurchmesser [m]	16,00	16,2	18,30	18,1
Schichtdicke [kg]	5,90	6,2	7,40	7,5

Tab. 3.23 zeigt eine gute Übereinstimmung zwischen den DIN- und den HK2013-Werten. Die relativen Abweichungen – bezogen auf HK2013 – liegen im Intervall zwischen -5 % und +2 %. Dabei erweisen sich für 100 % ^{239}Pu die Kritikalitätsparameter nach DIN 25403 im Vergleich zu den HK2013-Werten als konservativer, für Pu(95/5) verhält es sich – mit Ausnahme der Schichtdicke – genau umgekehrt.

3.6.1.6 Kritikalitätsdaten für Uran-Nitrat-Leichtwasser-Mischungen

Die nachfolgende Tab. 3.24 vergleicht die auf DIN 25403 basierenden Kritikalitätsparameter für homogene ^{235}U -Nitrat-Mischungen mit denen nach HK2013. Die in HK2013 aufgelisteten Kritikalitätsparameter beruhen auf älteren Rechnungen, sodass bei direkter Anwendung dieser Daten gegebenenfalls höhere Sicherheitsabschläge empfohlen werden.

Tab. 3.24 Vergleich kritische Parameter für homogene U-235-Nitrat-Leichtwasser-Mischungen zwischen DIN 25403-8 und HK2013

Kleinste kritische Werte für Uranylinitrat 100 % U-235 homogene U-Nitrat-Leichtwasser-Mischungen	DIN 25403-8 HK2013	
U-Kugelmasse [kg]	0,79	0,82
Kugelvolumen	6,38	6,4
Zylinderdurchmesser [cm]	14,70	14,8
Schichtdicke [cm]	5,26	4,4

Tab. 3.24 weist bezüglich der Übereinstimmung zwischen den DIN- und den HK2013-Werten ein ambivalentes Verhalten auf. Gute Übereinstimmung mit relativen Abweichungen im Bereich zwischen -4 % und 0 % ist bei den Kritikalitätsparametern Kugelmasse, Kugelvolumen und Zylinderdurchmesser zu verzeichnen. Für die Schichtdicke hingegen beträgt die relative Abweichung +20 %.

3.6.2 Übersicht der Vergleichsergebnisse

Der Vergleich zwischen den Kritikalitätsparametern nach DIN 25403 und HK2013 zeigt summarisch gesehen gute Übereinstimmung. In der Tab. 3.25 werden die prozentualen relativen Abweichungen $(\text{DIN}-\text{HK2013})/\text{HK2013}$ zwischen ihnen für die betrachteten Systeme aufgelistet.

Tab. 3.25 Relative prozentuale Abweichungen zwischen den auf DIN 25403 und HK2013 basierenden Kritikalitätsparametern

DIN	System	Relative Abweichungen der Kritikalitätsparameter %			
		Kugel Masse	Kugel Volumen	Zylinder Durchmesser	Schicht Dicke
DIN 25403-02	U-Metall-H ₂ O homogen 100 % ²³⁵ U	-3,75	-0,91	-1,32	5,33
DIN 25403-03	Pu-Metall-H ₂ O homogen 100 % ²³⁹ Pu	-1,96	3,70	3,33	20,83
DIN 25403-03	Pu-Metall-H ₂ O homogen 95 % ²³⁹ Pu	1,64	-11,76	6,22	21,25
DIN 25403-04	UO ₂ -H ₂ O homogen 100 % ²³⁵ U	-3,75	-----	-----	-----
DIN 25403-04	UO ₂ -H ₂ O homogen 20 % ²³⁵ U	1,80	-2,78	-0,34	-4,67
DIN 25403-04	UO ₂ -H ₂ O homogen 5 % ²³⁵ U ENDF/B-VI	-2,54	-3,60	-2,07	-2,02
DIN 25403-04	UO ₂ -H ₂ O homogen	0,79	2,48	0,63	2,10

DIN	System	Relative Abweichungen der Kritikalitätsparameter %			
	5 % ²³⁵ U ENDF/B-VII.0				
DIN 25403-05	PuO ₂ -H ₂ O homogen 100 % ²³⁹ Pu	-1,96	7,48	4,05	1,71
DIN 25403-05	PuO ₂ -H ₂ O homogen 95 % ²³⁹ Pu	-3,33	2,50	2,18	5,26
DIN 25403-06	Pu-Nitrat-H ₂ O homogen 100 % ²³⁹ Pu	-3,70	-2,41	-1,23	-4,84
DIN 25403-06	Pu-Nitrat-H ₂ O homogen 95 % ²³⁹ Pu	1,59	1,79	1,10	-1,33
DIN 25403-08	U-Nitrat-H ₂ O homogen 100 % ²³⁵ U	-3,66	-0,31	-0,68	19,55

Aus Tab. 3.25 ist ersichtlich, dass von den 45 verglichenen kritischen Werten ein Großteil (37 bzw. 82 %) Abweichungen im Intervall von -5% bis +5% aufweist. Von den verbleibenden acht kritischen Werten mit größeren Abweichungen liegen sieben im positiven Bereich (von +5,33% bis +21,25%) und zeigen damit an, dass in diesen Fällen die HK2013-Werte konservativer als die DIN-Werte sind. In einem Fall (Kugelvolumen Pu-Metall-H₂O mit 95 % ²³⁹Pu) ist die DIN-Norm konservativer (-11,78%).

4 Innovative Kernbrennstoffkonzepte

4.1 Urananreicherung mit Lasertechnologie, SILEX-Verfahren

4.1.1 Historische Entwicklung

In den 1970er Jahren war die Urananreicherung nach dem Gasdiffusionsverfahren der aktuelle Stand der Technik und international bereits im großtechnischen Maßstab realisiert. Als konkurrierende Verfahren wurden zu dieser Zeit zunächst vorwiegend andere gasdynamische Isotopentrennverfahren erforscht, wie z. B. ein von der Uranium Enrichment Corporation of South Africa, Ltd. (UCOR) entwickeltes Verfahren mit Hilfe von konischen Wirbelrohrseparatoren (helikon vortex tubes, auch „stehende Zentrifugen“ genannt). Diese Methode wurde wegen ihres ebenfalls sehr hohen Energieverbrauchs, der teilweise über dem der üblichen Diffusionsverfahren lag, in der Zwischenzeit aufgegeben. Vor allem aus Kostengründen wurde nach Alternativen zu diesen sehr energieintensiven Technologien gesucht². Einige seinerzeit sehr optimistisch beurteilte Methoden zur Separation und Anreicherung von ^{235}U basieren auf den geringfügig unterschiedlichen optischen Anregungsenergien von ^{235}U und ^{238}U , die durch die verschiedenen Atomkernmassen begründet sind (Isotopieverschiebung). Diese unterschiedlichen Anregungsenergien können benutzt werden, um mittels eines sehr schmalbandigen Lasers selektiv Atome oder Moleküle mit ^{235}U anzuregen und dann durch physikalische oder chemische Folgereaktionen von den nicht angeregten ^{238}U -Pendants abzuseparieren.

Mehrere unterschiedliche, unter dem Begriff **Laseranreicherung** zusammengefasste Verfahren wurden entwickelt und im Labormaßstab erfolgreich erprobt. Wichtige Fortschritte wurden in jener Zeit z. B. in USA, Sowjetunion, Frankreich, Deutschland, Brasilien oder Südafrika erzielt /SCH 98/. Die bekanntesten Verfahren aus dieser Gruppe sind **AVLIS** (Atomic Vapour Laser Isotope Separation; siehe Kap. 4.1.2), bei dem das

² Eine vollständige Aufzählung und Beschreibung der verfolgten Ansätze würde den Rahmen der vorliegenden Arbeit, welche sich mit Methoden zur Anreicherung mit Hilfe von Lasertechnologie – vornehmlich SILEX – beschäftigt, sprengen. Es sei jedoch erwähnt, dass auch die Entwicklung der heutigen modernen Zentrifugentechnologie in diesem Umfeld ihren Ausgangspunkt hatte.

Uran elementar in der Dampfphase verwendet wird, und **MLIS** (Molecular Laser Isotope Separation; siehe Kap. 4.1.3), bei dem Moleküle von Uranhexafluorid UF_6 in der Gasphase verwendet werden. Nähere physikalische und technische Einzelheiten sind in den entsprechenden Unterkapiteln beschrieben.

Von diesen Verfahren erwartete man sich mehrere Vorteile in jeweils unterschiedlicher Ausprägung. Dazu gehörten ein vergleichsweise niedriger Energieverbrauch, gute Abtrennfaktoren und damit die Notwendigkeit nur weniger aufeinanderfolgender Kaskaden, sowie der daraus resultierende geringe Platzbedarf. Dadurch versprach man sich gegenüber dem Diffusionsverfahren eine deutliche Reduktion der Kosten pro Tonne Urantrennarbeit (tUTA). Die Effizienz dieser Verfahren erlaubte im Prinzip auch eine weitere Abreicherung von bereits mittels Diffusionsverfahren abgereichertem Uran. Da allerdings gerade diese Faktoren die weltweite Überwachung hinsichtlich Proliferation deutlich erschweren können, wurden diese Technologien unter verschiedenen Fachleuten und Interessengruppen kontrovers diskutiert. Es ist noch zu ergänzen, dass die allgemeine Anwendung dieser Verfahren nicht auf die Isotopentrennung von Uran beschränkt ist, sondern bei Verwendung geeigneter Laserwellenlängen prinzipiell bei allen Elementen durchgeführt werden kann. Praktische Bedeutung haben sie bisher v. a. bei Schwefel-, Iod- und Siliziumisotopen erlangt. Sie könnten grundsätzlich auch zur Anreicherung anderer Aktinoidenisotope wie z. B. ^{239}Pu aus LWR-Plutonium verwendet werden. Als grobe Faustregel gilt indes, dass die Isotopenselektivität umso größer ist, je geringer die Masse des interessierenden Elements ist – was eine Plutoniumanreicherung z. B. ^{239}Pu vs ^{240}Pu , Massendifferenz $1 u \approx 0,42\%$, äußerst ineffizient macht.

Im Laufe der 1990er Jahre wurden die Forschungsarbeiten zur Laseranreicherung international, mit Ausnahme eines Labors in Australien, weitgehend eingestellt. Die Gründe dafür waren vielfältig. Zum einen hatte man, je nach Verfahren, mit immensen unvorhergesehenen technischen Schwierigkeiten zu kämpfen, die einer Hochskalierung der Verfahren vom Labormaßstab zum kommerziellen Einsatz entgegenstanden. Dazu kam, dass durch die Fortschritte bei der Zentrifugentechnologie sowie der Verfügbarkeit von angereichertem Uran aus der Abrüstung („Megatons to Megawatts“) die Anreize zur Entwicklung dieser Technologien stark abgenommen hatten. Letzten Endes konnte keines der damals bekannten Verfahren zur Laseranreicherung die an sie gestellten hohen Erwartungen erfüllen. Bislang wurde weltweit keine großtechnische Anlage nach einem Laseranreicherungsprinzip im kommerziellen Maßstab realisiert. Ein Überblick über den Stand der Laseranreicherungsverfahren zu dieser Zeit, v. a. AVLIS, sowie ein umfangreiches Quellenverzeichnis finden sich z. B. in /SCH98/.

In jüngerer Zeit stieß eine Weiterentwicklung dieser Technologien wieder auf neues Interesse. Bereits in den 1990er Jahren wurde von der Firma Klydon /KLY 14/ in Südafrika eine Weiterentwicklung des bereits erwähnten UCOR-Verfahrens zur Einsatzreife gebracht, der sog. „Aerodynamic Separation Process (ASP)“. Dieses Verfahren, das bei Elementen wie Silizium oder Kohlenstoff zur Isotopentrennung genutzt wird, wurde 1995 an die australische Firma Silex Systems Ltd., kurz SSL, lizenziert, wo es speziell zur Uranisotopentrennung weiterentwickelt wurde. 1996 wurde dieses **SILEX**-Verfahren (Separation of Isotopes by Laser EXcitation) exklusiv von der US-amerikanischen Firma United States Enrichment Corporation (USEC) lizenziert, mit dem Ziel, eine kommerzielle Anreicherungsanlage in USA zu errichten. Nach dem Ausstieg von USEC aus dem Projekt in 2003 zugunsten der Zentrifugentechnologie wurde 2007 eine exklusive Lizenz an General Electric Hitachi (GeH) vergeben. Die 2008 von GeH gegründete Tochterfirma Global Laser Enrichment (GLE) mit Beteiligung der kanadischen Cameco stellte im August 2011 bei der US NRC einen Antrag zum Bau einer Anreicherungsanlage nach dem SILEX-Verfahren in der Nähe von Wilmington NC, mit einer Kapazität von bis zu 6000t UTA jährlich und bis zu 8 Gew.-% Anreicherung ²³⁵U. Die entsprechende Genehmigung wurde im September 2012 erteilt. Nach Informationen vom 24. Februar 2014 strebt GLE zudem an, eine Lizenz zum Bau einer SILEX-Anlage an dem von der USEC aufgegebenen Standort Paducah als Ersatz der ehemaligen Gasdiffusionsanreicherungsanlage zu erhalten. Die Antragstellung wurde für September 2014 erwartet /PLA 14/. Der Bau einer derartigen Anlage außerhalb der USA ist nicht vorgesehen. Parallel dazu entbrannte erneut die internationale Diskussion hinsichtlich Proliferationsbedenken. Einen aktuellen Überblick über die Problematik der Laseranreicherung im Zusammenhang mit Fragen der Proliferation und Rüstungskontrolle geben z.B. /ROU 10, SER 10, DPG 12, FUS 13/ sowie deren weiterführende Quellen.

Während Verfahren wie AVLIS und MLIS heute allgemein gut bekannt sind, sind zahlreiche Details des SILEX-Verfahrens aus Sicherheitsgründen klassifiziert und unterliegen neben dem üblichen Schutz von Geschäftsgeheimnissen zudem der Geheimhaltung – in den USA für kommerzielles Know-how in Privatbesitz ein sehr ungewöhnlicher Fall. Man kann aber davon ausgehen, dass einige zu Grunde liegende physikalische Prinzipien bestimmten Varianten des MLIS-Verfahrens ähnlich sein dürften. In den folgenden Unterkapiteln werden die Verfahren AVLIS und MLIS sowie der frei zugängliche Kenntnisstand und eine Reihe von Vermutungen zum SILEX-Verfahren beschrieben.

4.1.2 Laserisotopentrennverfahren AVLIS

Die Entwicklung des Verfahrens AVLIS (Atomic Vapour Laser Isotope Separation), zu Deutsch Atomdampf-Laserisotopentrennung, wurde v. a. am Lawrence Livermore National Laboratory (LLNL) in den USA vorangetrieben /DAV77/. Hierbei liegt das Uran gasförmig als elementarer Atomdampf vor, welcher zumeist durch Laserablation von festem oder flüssigem Metall erzeugt wird. Dabei werden Temperaturen bis zu 3400 °C erreicht, und es wird starke Röntgenstrahlung erzeugt welche abgeschirmt werden muss /USN98/. In der Gasphase wird das Isotop ^{235}U durch Laserbestrahlung selektiv durch Anregung eines Elektronenniveaus ins Kontinuum ionisiert (Photoionisation) und durch ein starkes elektrisches Feld von dem neutral bleibenden ^{238}U aus dem Partikelstrahl abgetrennt. In Abb. 4.1 ist das Grundprinzip des AVLIS-Prozesses vereinfacht schematisch dargestellt /CAM98/.

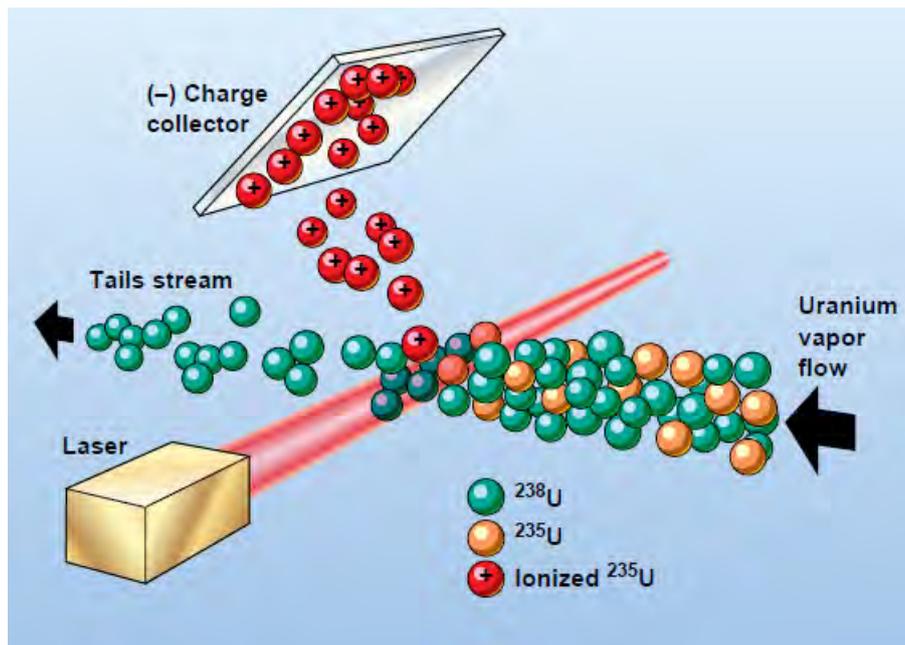


Abb. 4.1 Vereinfachtes Schema des AVLIS-Prozesses

Die Ionisierungsenergie von ^{235}U liegt bei etwa 6,194 eV (Wellenzahl 49957 cm^{-1} , entspricht einer Wellenlänge von $\lambda \approx 200\text{ nm}$, UV-C)³, weshalb die Absorption eines ein-

³ Die Wellenzahl $\tilde{\nu}$ ist eine in der Optik und Spektroskopie häufig verwendete Kenngröße. Sie ist der Kehrwert der Wellenlänge λ . Die zugehörige Energie E errechnet sich zu $E = hc/\lambda = hc \times \tilde{\nu}$, mit dem Planckschen Wirkungsquantum h und der Vakuumlichtgeschwindigkeit c . Energie und Wellenzahl sind also direkt proportional. Ein Elektronenvolt (eV) entspricht einer Wellenzahl von $8065,54\text{ cm}^{-1}$.

zelenen Photons im sichtbaren oder infraroten Spektralbereich nicht für eine Elektronendissoziation ausreicht. Typischerweise ist die Absorption von drei oder vier Photonen pro Atom für eine Ionisation erforderlich. Die verwendete Wellenlänge liegt etwa bei $\lambda \approx 600 \text{ nm}$ (sichtbares Licht, orange; Wellenzahl etwa $16\,667 \text{ cm}^{-1}$, Photonenenergie etwa 2 eV)⁴, während die Trennschärfe-bestimmende Isotopieverschiebung von atomarem ^{235}U gegenüber ^{238}U etwa $4,2 \times 10^{-5} \text{ eV}$ beträgt /USN08/, was bei einer Wellenlänge von 600 nm eine Differenz von etwa $0,005 \text{ nm}$ (ca. $8,3 \times 10^{-4} \%$) bedeutet.

Als Laser wurde typischerweise ein sehr fein abgestimmter Farbstofflaser verwendet, der in früheren Verfahren mit einem Kupferdampflaser, später durch moderne YAG-Laser gepumpt war. Auch der Einsatz eines modernen, Nd:YAG-gepumpten Titan-Saphir-Lasers mit oder ohne Frequenzverdoppler ist heute vorstellbar /PAR 04/.

Theoretisch ist dadurch eine optische Selektivität $>20\,000$ möglich. Diese konnte jedoch in der praktischen Anwendung aus mehreren Gründen nicht erreicht werden. Bei Stößen der Atome untereinander in der Gasphase findet ein Elektronenaustausch statt, der zum Verlust der Isotopenselektivität führt, weshalb man mit sehr geringen Dichten von weniger als 10^{13} Atomen pro cm^3 arbeiten muss um eine sinnvolle Selektivität zu erreichen. Zudem ist der Absorptionsquerschnitt für Ionisation relativ niedrig, was eine geringe Ausnutzung des Laserlichts bewirkt. Ebenfalls problematisch erwies sich die thermische Ionisation im Verdampferofen, die die Selektivität weiter beeinträchtigte. Dies führte in Konsequenz zu einem ökonomisch wenig attraktiven weil geringen Materialdurchsatz pro Trennstufe, bei vergleichsweise hohem und damit kostenintensiven Aufwand an Laserlicht. Aufgrund dieser Tatsache und der erforderlichen hohen Temperaturen ist der Energieverbrauch weniger günstig als bei anderen, somit effizienteren Laseranreicherungsverfahren wie MLIS oder SILEX.

In Abb. 4.2 ist der Versuchsaufbau zu einem AVLIS-Experiment am Lawrence Livermore National Laboratory (LLNL) abgebildet /CAM98/. Grün zu sehen ist das Licht des Kupferdampflasers, der den Farbstofflaser pumpt, welcher das orange Licht erzeugt. Letzteres wird zur Ionisation der ^{235}U -Isotope im Urandampf verwendet.

⁴ In der Optik wird v. a. in englischsprachigen Fachpublikationen häufig noch die Einheit „Ångström“ (Å) als Längeneinheit verwendet. Die Umrechnung lautet $1 \text{ Å} = 0,1 \text{ nm}$. Das Ångström ist keine SI-Einheit.

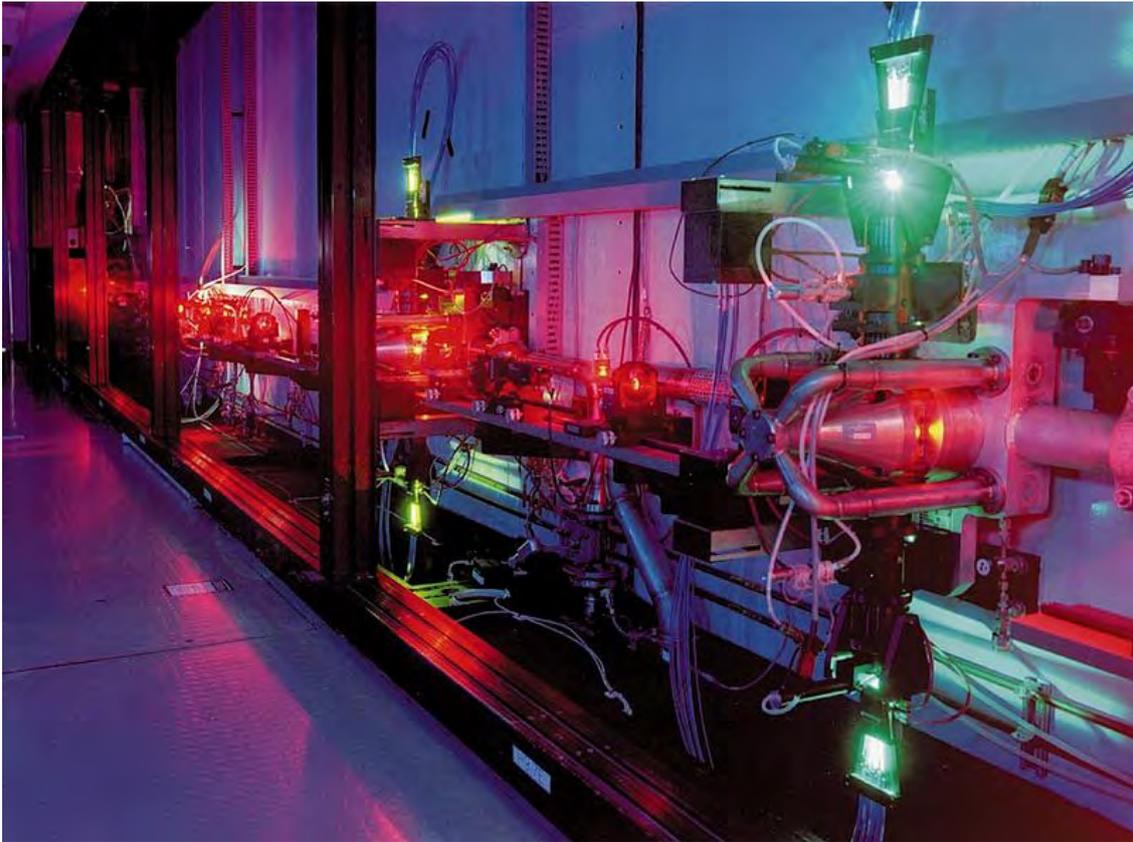


Abb. 4.2 Versuchsaufbau zu einem AVLIS-Experiment am Lawrence Livermore National Laboratory

Im Jahr 1985 wurde das AVLIS-Verfahren vom US DoE als präferierte Laseranreicherungstechnologie für die USA ausgewählt /STE 85/. Großtechnisch erlangte das AVLIS-Verfahren letztlich dennoch keine Bedeutung. Eine im selben Jahr in Livermore, Kalifornien, errichtete Demonstrationsanlage mit einer geplanten Kapazität von 500tUTA /PAI88/ wurde 1999 wegen Materialproblemen v. a. mit dem erhitzten elementaren Uran, wegen mangelnder Zuverlässigkeit und zu geringer Ausnutzung des Laserlichts (vgl. oben) stillgelegt /FUS 13/.

Eine ähnliche, von CEA in Frankreich verfolgte und von COGEMA kofinanzierte Variante trägt die Bezeichnung SILVA (Séparation Isotopique par Laser de la Vapeur Atomique). Zunächst wurden gute Ergebnisse erzielt, doch nach dem Beschluss der COGEMA, die stillzulegende Gasdiffusionsanreicherungsanlage EURODIF (George Besse I) in Tricastin durch Zentrifugentechnik zu ersetzen (George Besse II), wurde das SILVA-Programm 2003 beendet. Das Grundprinzip des Verfahrens wurde in Frankreich jedoch jüngst zur Isotopentrennung anderer Elemente wie Neodym oder Zirkon wieder aufgenommen und wird weiter erprobt, jedoch nicht mehr zur Urananreicherung. Abb. 4.3 zeigt eine schematische Darstellung des Verfahrens /JUL 07/.

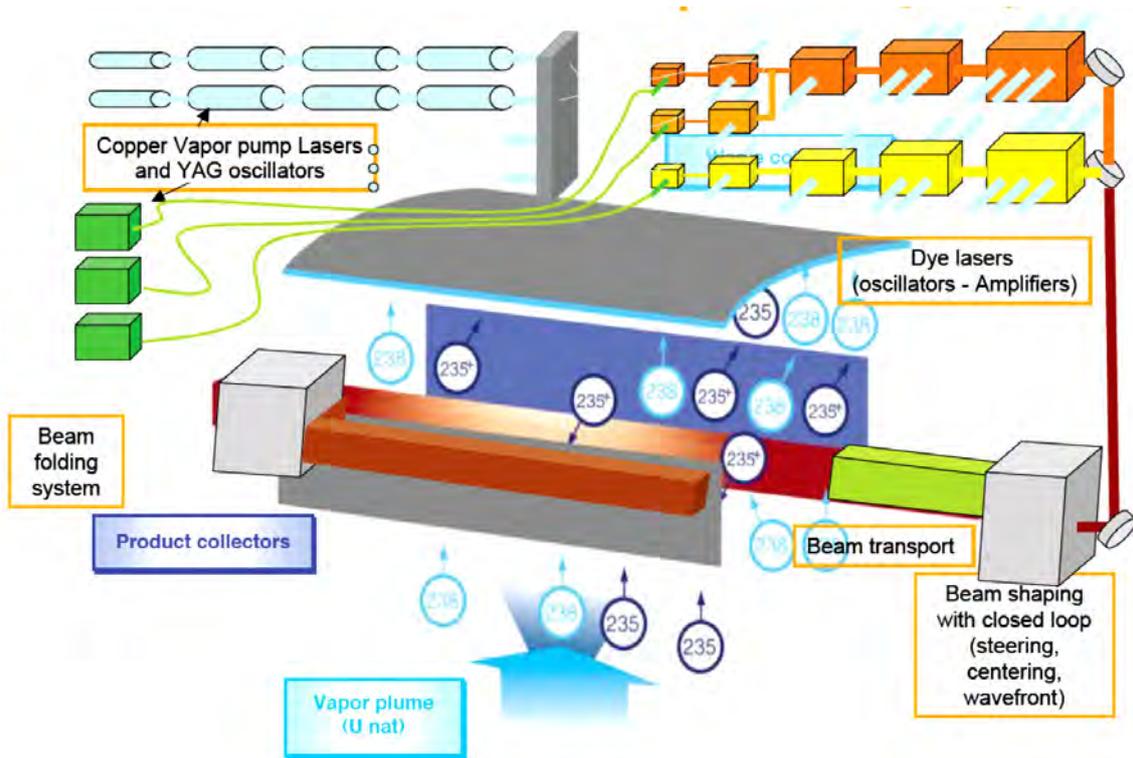


Abb. 4.3 Schematische Darstellung des französischen AVLIS-Verfahrens SILVA

4.1.3 Laserisotopentrennverfahren MLIS

Das andere wichtige Trennverfahren mittels Laser, MLIS (Molecular Laser Isotope Separation), zu Deutsch Molekular-Laserisotopentrennung, wurde zunächst am Los Alamos National Laboratory (LANL), USA, entwickelt /JEN82/, um dann in zahlreichen anderen Ländern aufgegriffen zu werden, darunter auch in Deutschland.

Zur Anreicherung geht man hier von der gasförmigen Verbindung Uranhexafluorid (UF_6) aus. Einer der Vorteile gegenüber dem Uranmetaldampf-Verfahren AVLIS besteht darin, dass man bei MLIS auf umfangreiche Erfahrungen und Kenntnisse bei der Handhabung von Uranhexafluorid aus anderen Anreicherungstechnologien (Diffusion, Zentrifuge) zurückgreifen kann. Ebenso wie beim AVLIS-Verfahren nutzt man die Isotopieverschiebung, d. h. den Umstand, dass auch im Termschema der Molekülschwingungen sich die Energieniveaus der Verbindung mit den verschiedenen Isotopen (sog. Isotopomere) geringfügig unterscheiden; hier sind diese $^{235}\text{UF}_6$ und $^{238}\text{UF}_6$. Durch Bestrahlung mit Laserlicht kann erreicht werden, dass bestimmte Molekülschwingungsniveaus, beim Uranhexafluorid typischerweise das Niveau ν_3 , isotopenselektiv angeregt werden. Die Isotopieverschiebung dieses Niveaus beträgt lediglich $0,6\text{ cm}^{-1}$ /EER 10/. Da Fluor monoisotop als ^{19}F vorliegt, kommt es hierdurch ebenso wie bei

anderen Anreicherungsverfahren nicht zu Störungen aufgrund zusätzlicher nicht durch Uranisotope bedingter Massendifferenzen.

Diese selektive Anregung der relevanten Schwingungsniveaus von $^{235}\text{UF}_6$ funktioniert effektiv nur im Grundzustand der Molekülschwingung. Diese ist bei Raumtemperatur aufgrund der Boltzmannverteilung nur zu ca. 1% besetzt. Das beobachtete Absorptionsspektrum entspricht hier einer Mischung von Übergängen zwischen verschiedenen angeregten Schwingungs- und Rotationsniveaus, wobei sich die Linien der verschiedenen Isotope überlagern. Die Breite der Absorptionsbande ist daher wesentlich größer als die Isotopieverschiebung, was die Selektivität erheblich reduziert. Man muss daher zu tieferen Temperaturen übergehen. Bei 55 K, also ca. -220°C , erreicht die Besetzung des Grundzustands einen Wert von etwa 90%. Hier kann eine optische Selektivität von etwa 500 erreicht werden /EER 76, FUS 13/.

Um eine Sublimation des Uranhexafluorids und seine Ausfällung als Feststoff bei dieser niedrigen Temperatur zu verhindern, erfolgt die Abkühlung adiabatisch beim Durchströmen eines Überschall-Molekülstrahls durch eine Schlitzdüse. Um die thermodynamischen Eigenschaften des Gases bei diesem Prozess zu verbessern, ist es notwendig das Uranhexafluorid zu einem geringen Anteil in ein geeignetes Trägergas wie z. B. Stickstoff N_2 , Argon Ar oder andere einzumischen /JEN 82/. Dieses Trägergas wird bei der Isotopentrennung je nach MLIS-Variante nicht verbraucht und kann in diesem Fall wiederverwendet werden (siehe unten).

Die Anregung durch den Laser erfolgt typischerweise gepulst bei Pulsfrequenzen von 30 bis 500 Hz und Pulsdauern im Bereich von ca. 100 ns. Die Pulsenergie liegt im Bereich von 1 J. Zur Anwendung kam meist ein frequenzstabilisierter Kohlenstoffdioxid-Laser. Dessen Grundwellenlänge von $\lambda \approx 10,8 \mu\text{m}$ (entspricht $925,93 \text{ cm}^{-1}$ bzw. $0,1148 \text{ eV}$) wird mit Hilfe eines Stickstoff-gekühlten Raman-Konverters durch nicht-lineare optische Prozesse (Stokes-Raman-Streuung in para-Wasserstoff, siehe z. B. /TSU 99/) bei etwa 50 mbar Druck und einer Temperatur von 77 K zu der für die Schwingungsanregung von Uranhexafluorid geeigneteren Wellenlänge von $16 \mu\text{m}$ (entspricht 625 cm^{-1} bzw. $0,07749 \text{ eV}$) verschoben. Zur Verbesserung der Trennschärfe der Wellenlänge sind weitere z. T. komplexe optische Komponenten erforderlich.

Während alle MLIS-Varianten bis zu diesem Punkt qualitativ ähnlich ablaufen, unterscheidet man ab hier zwei wichtige Unterkategorien des Verfahrens. Zum einen existieren Varianten welche das UF_6 isotopenselektiv chemisch verändern z. B. MOLIS

(Molecular Obliteration Laser Isotope Separation), CHEMLIS (Chemically Enhanced MLIS) und CRISLA (Chemical Reaction by Isotope Selective Laser Activation), so dass die angereicherte und abgereicherte Fraktion in unterschiedlichen chemischen Verbindungen vorliegen und auf dieser Basis separiert werden können. Zum anderen gibt es Verfahren welche auf unterschiedlichen Kondensationseigenschaften der Isotopomeren beruhen, die als SILARC (Separation of Isotopes by Laser Assisted Retardation of Condensation) bezeichnet werden; auch das Akronym LASCOR (Laser Assisted Condensation Repression) ist dafür geläufig. Hier liegen sowohl die angereicherte als auch die abgereicherte Fraktion beide chemisch nach wie vor als Uranhexafluorid vor /EER 98, EER 03, PAR 04, EER 10, SER 10/.

Bei den chemisch verändernden Varianten wird zunächst mit einem Infrarot-Laser wie oben beschrieben ein isotopenselektiv angeregter Molekülzustand erzeugt. Dann werden in einem Folgeprozess durch weitere Photonenabsorption die Moleküle nur dieses angeregten Isotopomers dissoziiert, d. h. in zwei Bruchstücke aufgetrennt. Die Dissoziationsenergie von $^{235}\text{UF}_6$ liegt bei etwa 3,87 eV /PAR 04/, das entspricht einer Wellenzahl von ca. $312\,140\text{ cm}^{-1}$ bzw. einer Wellenlänge von $\lambda \approx 320\text{ nm}$, also UV-A. Es gibt dabei mehrstufige Varianten mit verschiedenen Wellenlängen im Infrarot, oder in einem zweistufigen Prozess mit einer Wellenlänge im Infrarot und einer zweiten Wellenlänge im Ultraviolett z. B. eines Excimer-Lasers.

Mit der ersten Stufe des eingesetzten Infrarot-Lasers wird dabei selektiv $^{235}\text{UF}_6$ vom Grundzustand in einen höheren Schwingungszustand angeregt. Dieser angeregte Zustand kann dann durch weitere Photonenabsorption(en) dissoziiert, d. h. photochemisch gespalten werden (MPD, Multi Photon Dissociation; falls nur Infrarot-Wellenlängen verwendet werden auch IRMPD genannt), während der nicht angeregte Zustand erhalten bleibt. Dies ermöglicht es z. B., selektiv $^{235}\text{UF}_6$ zu Uranpentafluorid $^{235}\text{UF}_5$ umzuwandeln, welches konglomeriert und als Staub aus der Gasphase ausfällt während $^{238}\text{UF}_6$ gasförmig zurückbleibt /JEN 82, SCH 98, FUS 13/. Allerdings besitzt Uranpentafluorid ungünstige mechanische Eigenschaften, welche sich in Form von Reiben, Kratzen oder Scheuern abträglich auf diverse optische Komponenten auswirken.

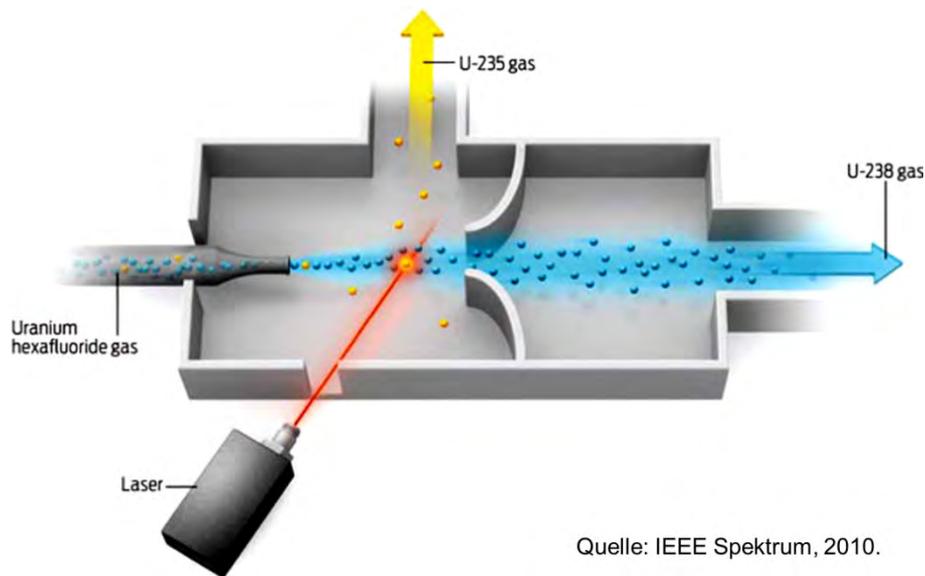
In einer weiteren CHEMLIS-Variante wird Chlorwasserstoff HCl als Trägergas verwendet, das sich gut als Reaktionspartner mit dem angeregten Uranhexafluorid zur isotopenselektiven Uranpentafluoriderzeugung eignet, insbesondere in Verbindung mit einer Kombination aus Kohlenstoffmonoxid- und -dioxid-Laser. Allerdings entstehen hier ne-

ben $^{235}\text{UF}_5$ auch die chemisch reaktiven Verbindungen Fluorwasserstoff HF und molekulares Chlor Cl_2 als Reaktionsnebenprodukte /LIY 10/, welche u. a. aufgrund ihrer Korrosivität ebenfalls ungünstige Eigenschaften für den Gesamtprozess aufweisen.

Bei der zweiten Kategorie werden die unterschiedlichen Kondensationseigenschaften von UF_6 zu Dimeren, Multimeren oder Van der Waals-Clustern der selektiv angeregten Isotopenmoleküle im adiabatisch gekühlten Überschall-Gasstrahl (free-jet-SILARC), oder an gekühlten Wänden bei einem unterschallschnellen Gasstrahl (cold-wall-SILARC) ausgenutzt.

Bei der schnellen adiabatischen Abkühlung des UF_6 im Überschall-Gasstrahl kommt es zu einer Dimerisierung der Moleküle entweder der anzureichernden Verbindung mit sich selbst oder mit dem Trägergas. Während dieses Phänomen in den chemisch basierten MLIS-Verfahren oft störend wirkt und z. B. durch ein geeignetes Trägergas unterbunden werden muss, wird es im free-jet-SILARC gezielt zur Isotopenseparation ausgenutzt. Die selektive Laseranregung verhindert die Dimerisierung von $^{235}\text{UF}_6$, während $^{238}\text{UF}_6$ dimerisieren oder multimerisieren kann. Die Lasereinstrahlung kann dabei coaxial oder transversal erfolgen. Über einen Abscheider werden dann die deutlich schwereren Dimere und Multimere, welche aufgrund ihrer um Faktoren höheren Masse länger im Zentrum des Gasstrahls verweilen, von den leichteren Monomeren separiert, die den Strahl schneller verlassen.

In Abb. 4.4 ist in einem exemplarischen Schema dargestellt, wie bei dem free-jet-SILARC Verfahren die selektive Anregung und Verhinderung der Dimerisierung zum Austrag von ^{235}U -haltigem Gas aus dem Hauptstrahl und somit zur Isotopenseparation genutzt wird /UPS 10, EER 10/. In dem gezeigten Beispiel erfolgt die Lasereinstrahlung transversal.



Quelle: IEEE Spektrum, 2010.

Abb. 4.4 Beispiel für eine Isotopentrennung nach dem MLIS-Verfahren SILARC

Als Ergebnis erhält man eine angereicherte und eine abgereicherte Fraktion. Da Eingangs- und Ausgangsprodukt chemisch identisch sind, kann man diesen Vorgang im Prinzip relativ einfach in einem einzigen coaxialen Laserstrahl mehrfach hintereinander kaskadieren. Deshalb und aufgrund der Überschallgeschwindigkeit des Gases könnten bei dieser Methode großtechnisch sinnvolle Durchsätze prinzipiell erreichbar werden. In Abb. 4.5 ist eine derartige Kaskadierung mit zwei Laserwellenlängen (IR und UV) schematisch dargestellt /JEN 82/.

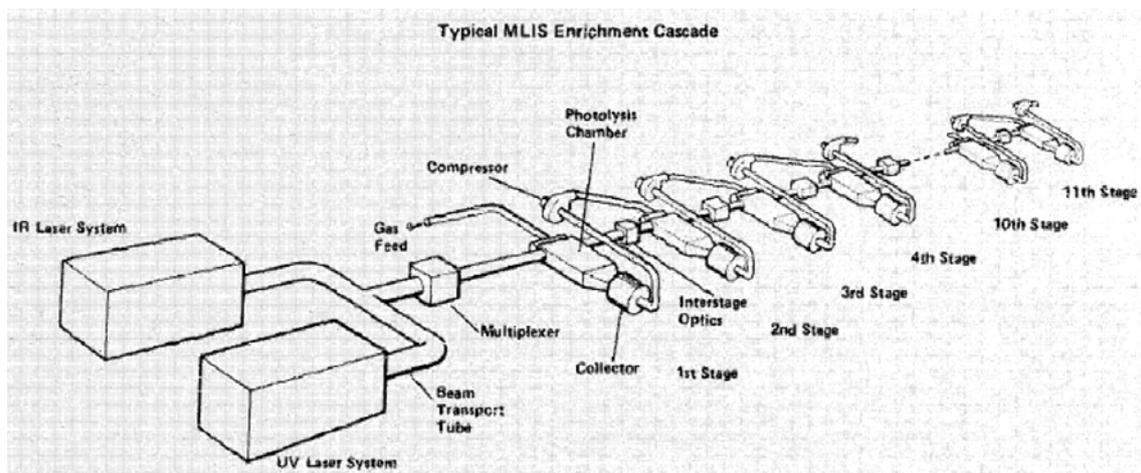


Abb. 4.5 Mehrstufige MLIS Anreicherungskaskade (Schema)

Beim cold-wall-SILARC Verfahren wird der Gasstrahl unterhalb der Schallgeschwindigkeit durch ein gekühltes Rohr geleitet, durch welches der Laserstrahl coaxial im Zentrum des Gasstrahls gelenkt wird. Bei geeignet gewählten thermodynamischen Parametern (Temperatur, Druck, u. a.) sorgt die selektive Laseranregung für eine angereicherte

Fraktion im Gasstrahl, die das Rohr verlässt, sowie eine abgereicherte Fraktion im Kondensat an der gekühlten Innenwand des Rohres. Wegen des geringen Durchsatzes ist dieses Verfahren nicht für die Urananreicherung in großtechnischen Mengen geeignet. Aufgrund seiner technischen Einfachheit wird es heute dennoch zur Gewinnung geringer Mengen von Isotopen z. B. zu medizinischen Zwecken eingesetzt.

Wie im Fall des AVLIS-Verfahrens wurde auch kein MLIS-Verfahren großtechnisch realisiert. In USA wurde die Förderung von MLIS mit Forschungsgeldern des US DoE im Juni 1985 zugunsten der Entwicklung des damals vielversprechenderen AVLIS-Verfahrens eingestellt /STE 85/, vgl. auch Kap. 4.1.2. In Deutschland hat die Firma Uranit GmbH Jülich um 1991/92 mittels IRMPD-MLIS eine für Reaktoruran geeignete Selektivität in einer einzigen Trennstufe im Labormaßstab demonstrieren können. Das Verfahren wurde dennoch aufgegeben, da zu viel weiterer Entwicklungsbedarf für den kommerziellen Maßstab (Skalierbarkeit) und zu wenig Aussicht auf Konkurrenzfähigkeit des Verfahrens abzusehen war /FUS 13/.

4.1.4 Laserisotopentrennverfahren SILEX

Wie bereits in Kap. 4.1.1 erwähnt sind einige Teile des SILEX-Verfahrens sicherheitsklassifiziert, weshalb entsprechende Informationen nicht frei zugänglich sind /LYM 05, ROU 10, FUS 13/. Was über das Verfahren v. a. in den eben genannten drei Quellen sowie deren Verweisen publiziert ist, soll an dieser Stelle überblicksartig beschrieben werden. Da die Vermutungen unterschiedlicher Autoren in die Diskussion einfließen, kommt es bei manchen Details zu widersprüchlichen Aussagen in der verfügbaren Literatur.

Zunächst ist bekannt, dass sowohl der Eingangsmassenstrom (Feed) als auch die an- und abgereicherten Ausgangsmassenströme (Product, Tails) aus Uranhexafluorid in einem Trägergas bestehen. Wie beim MLIS-Verfahren wird das Gasgemisch adiabatisch durch Expansion aus einer Düse auf sehr tiefe Temperaturen gekühlt. Die genaue Art des Trägergases, seine Dichte und der enthaltene Anteil an Uranhexafluorid sind klassifiziert und zudem als kommerziell proprietäre Information geschützt /LYM 05/. Der Energiebedarf von SILEX wird gegenüber herkömmlichen MLIS-Verfahren als geringer bezeichnet. Dies wird auch von Förderern dieser Technologie unterstrichen, die zudem betonen dass der Energiebedarf und die Kosten infolgedessen sogar niedriger liegen als bei der Zentrifugentechnik /ROU 10/.

Bekannt ist weiterhin, dass wie bei allen MLIS-Verfahren der Anteil des Trägergases der deutlich höhere ist. Der Anregungsmechanismus zur Isotopenselektion erfolgt auch hier über eine Erhöhung der Schwingungsenergie des Moleküls durch einen Infrarot-Laser /ROU 10/. Somit scheint das SILEX-Verfahren im Prinzip die Weiterentwicklung einer free-jet-SILARC-Variante zu sein.

Bei der Entwicklung im Laborbetrieb wurde ähnlich zu MLIS ein Kohlenstoffdioxidlaser mit Ramankonverter zur Anregung verwendet /LYM05/, mit den bereits in Kap. 4.1.3 beschriebenen spezifischen Kenngrößen für die Pulsfrequenz, -dauer und -energie. Während bislang Kohlenstoffmonoxid- und Kohlenstoffdioxid-Laser bzw. eine Kombination der beiden als einzige effiziente Lösung zur Erzeugung von geeigneter Infrarotstrahlung in Frage kamen, stehen aufgrund neuerer Entwicklungen in der nichtlinearen Optik sowie in der Lasertechnologie heute bzw. in naher Zukunft möglicherweise Alternativen zur Verfügung. Zu nennen sind hier an erster Stelle der Freie-Elektronen-Laser (FEL) im Infrarotbetrieb, sowie neuartige Halbleiterlaser. Ob diese Laser im geplanten oder in einem künftigen großtechnischen Einsatz des SILEX (oder anderer MLIS-Verfahren) eine signifikante Rolle spielen, kann hier nicht abgeschätzt werden. Bei Überlegungen zur Proliferationsresistenz und Technologieexportkontrolle spielen diese Aspekte jedoch eine wichtige Rolle /ROU 10/.

Man geht weiterhin davon aus, dass beim SILEX-Verfahren eine sog. „Zentrifuge mit stehender Wand“ als Reaktionsraum verwendet wird, vermutlich basierend auf einem konischen Wirbelrohrseparator ähnlich den südafrikanischen UCOR- bzw. ASP-Verfahren, welche die Ausgangspunkte der SILEX-Entwicklung darstellen (vgl. Kap. 4.1.1). Der erreichbare Anreicherungsfaktor wird auf zwei bis zwanzig geschätzt.

Abb. 4.6 illustriert das gemutmaßte, stark vereinfachte Prozessschema in dem Wirbelrohr nach /FUS 13/. Der Buchstabe F (Feed) symbolisiert den tangential in das konische Wirbelrohr eingebrachten, adiabatisch abgekühlten Gasstrom aus der Trenndüse. T bezeichnet den mit dem leichteren Isotop ^{235}U abgereicherten Tails-Massenstrom, der sich bei diesem Verfahren durch den Zentrifugeneffekt an der Rohrwandung konzentriert, und P den angereicherten Product-Massenstrom, der sich im Rohrinernen konzentriert. $16\ \mu\text{m}$ bezeichnet das eingestrahelte Infrarot-Laserlicht.

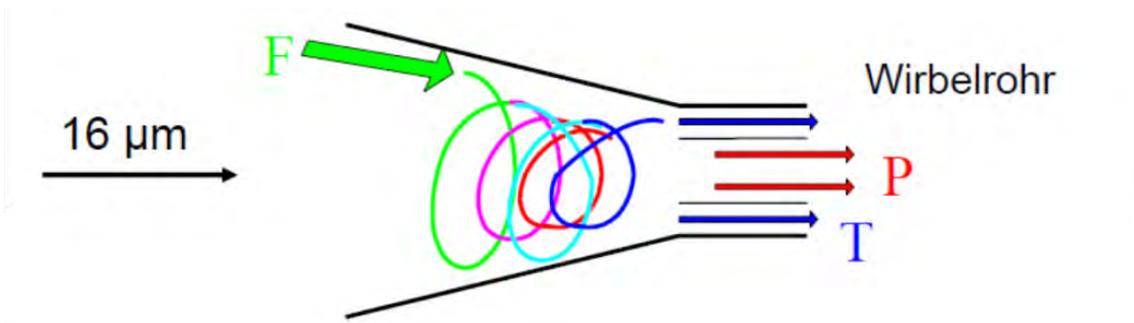


Abb. 4.6 Schematische Darstellung einer gemutmaßten Möglichkeit des Separationsprozesses beim SILEX-Verfahren

Ein derartiger Aufbau würde die Vermutung einer SILARC-Variante bestätigen und ebenfalls bedeuten, dass es sich bei dem SILEX-Verfahren nicht um einen Infrarot-Mehrphotonen-Moleküldissoziationsprozess handelt, da die Trenndüse mit einer Öffnung von etwa 0,2 mm für einen meterlangen Laserstrahl zu eng wäre. Diese Schlussfolgerung passt zu entsprechenden, in /LYM05/ getroffenen Aussagen.

Vielmehr gibt es Überlegungen, dass das Uranhexafluorid mit sich selbst oder dem Trägergas – z. B. Wasserstoff H_2 , Kohlenstoffdioxid CO_2 oder Xenon Xe – Molekülcluster ähnlich zum SILARC-Verfahren bildet, die isotopenselektiv durch die Laseranregung über Ein- oder Zwei-Photonen-Dissoziation aufgespalten werden /FUS 13/, bzw. dass die Clusterbildung analog zu ähnlichen Methoden bei anderen Elementen wie in /EER 10/ beschrieben selektiv unterdrückt werden könnte (/EER 10/ betrachtet dabei kein Wirbelrohr). Diese Clusterbildung zwischen Uranhexafluorid und dem Trägergas würde eine sehr starke Expansion und Abkühlung des einströmenden Gases erfordern. Damit könnte letztlich ein Massenunterschied von Faktoren deutlich > 3 zwischen Product- und Tails-Massenstrom erreicht werden /FUS 13/, mit einer durch den Zentrifugeneffekt im Wirbelrohr entsprechend erhöhten Selektivität der Komponenten des Gasmisches.

Wie bereits erwähnt ist die genaue Wahl des Trägergases beim SILEX-Verfahren nicht öffentlich bekannt. Grundsätzlich bestehen mehrere Möglichkeiten. Beispielsweise für die Anreicherung des Siliziumisotops ^{28}Si verwendet Klydon, Südafrika, die Verbindung Siliziumtetrahydrid (Silan) SiH_4 mit H_2 als Trägergas /KLY 14/. Bei einer Verwendung von CO_2 als Trägergas könnte dessen langwellige Absorptionslinie bei etwa 667 cm^{-1} (entspricht einer Wellenlänge von ca. $\lambda = 15\text{ }\mu\text{m}$ bzw. einer Photonenenergie von ca. 0,0827 eV) ein Problem darstellen, die trotz der tiefen Temperatur des Gases vielleicht noch mit der Laserwellenlänge überlappt und so die Selektivität des Verfahrens bzgl.

der Uranisotope beeinträchtigen könnte. Bei der Verwendung von Xenon als Trägergas würde man zur Clusterbildung noch tiefere Temperaturen benötigen, weshalb entsprechend mehr Kompressionsarbeit und deshalb mehr Energieeinsatz bei der Erzeugung des Überschall-Gasstrahls erforderlich wäre. Letztlich ist die Selektivität vermutlich jedenfalls durch den gasdynamischen Prozess und nicht durch optische Parameter und Randbedingungen begrenzt /FUS 13/. Das Trägergas würde durch die Clusterbildung und deren anschließender Zerstörung nicht verbraucht und könnte somit, wie in /LYM05, FUS 13/ angegeben, abgetrennt und rezykliert werden.

Gegenüber den MLIS-Verfahren, v. a. jenen mit Mehrphotonenprozessen, würde sich bei dem oben beschriebenen, gemutmaßten Verfahren eine Reihe von Vorteilen ergeben. Bereits in einem Einphotonenprozess würde sich durch den hohen Absorptionsquerschnitt von etwa 10^{-16} cm^2 eine vollständige Absorption aller Photonen eines Laserpulses durch das Uranhexafluorid ergeben. Dadurch könnte die Pulsfrequenz des Lasers in einem realistisch sinnvollen Bereich bleiben, d.h. es wären keine Pulsfrequenzen im kHz-Bereich oder höher erforderlich /FUS 13/, und eine serielle Kaskade wäre im Idealfall unnötig. Zudem bestehen auch die an- und abgereicherten Massenströme aus Uranhexafluorid, das nach Abtrennung des Trägergases ohne weitere chemische Bearbeitung mit bekannten, bewährten Technologien (Autoklaven, Transportbehälter, usw.) direkt weiter verarbeitet werden kann. Ähnlich wie bei dem Anreicherungsverfahren nach der free-jet-SILARC Methode wäre dann auch der SILEX-Prozess vermutlich mit einem einzigen Laserstrahlbündel mehrstufig kaskadierbar falls sich doch die Notwendigkeit dazu ergäbe.

Es sei zum Abschluss noch einmal deutlich wiederholt und betont, dass sich eine Reihe der hier gemachten Angaben auf Vermutungen hauptsächlich nach /FUS 13/ stützt und nicht weiter mit frei zugänglichen Quellen belegbar ist.

Sicherheitstechnische Überlegungen zum SILEX-Verfahren

Auf Basis der diskutierten Fakten und Vermutungen lassen sich Schlüsse auf die konventionellen und nuklearen Sicherheitsbedingungen des SILEX-Verfahrens ziehen.

Hinsichtlich der konventionellen Sicherheit ist insbesondere für das Betriebspersonal der Umgang mit der Lasereinrichtung und ggf. mit dem Ramankonverter, welcher ständige Kühlung mit flüssigem Stickstoff benötigt, zu beachten. Dies beinhaltet den Umgang mit starken elektrischen und optischen Energiequellen. Störfallbedingte Auswir-

kungen auf die Umgebung außerhalb des Betriebsgeländes sind hier ausgenommen von Brandschutzaspekten nicht zu besorgen. Sollte Wasserstoff als Trägergas zum Einsatz kommen, ist auch dessen spezifische Gefährdung hinsichtlich Brand bzw. Knallgasexplosion mit einzubeziehen; für inerte Trägergase wie Kohlenstoffdioxid oder Edelgase entfällt diese Überlegung. Alle diese Aspekte sind jedoch prinzipiell gut beherrschbar.

Im nuklearen Bereich gelten für den Umgang mit Uranhexafluorid grundsätzlich dieselben chemotoxischen und radiotoxischen Aspekte wie bei den anderen bekannten Anreicherungsverfahren. Dies gilt einschließlich der Kritikalitätssicherheitsaspekte, z. B. im Falle der Bildung von Uranylfluorid UO_2F_2 durch Reaktion von Uranhexafluorid mit Wasser etwa unter Störfallbedingungen.

Es ist dabei zu beachten, dass das Uranhexafluorid zur Erzeugung des Überschall-Gasstrahls unter hohen Drücken gehandhabt wird, was zwar zusätzliche Anforderungen an die Sicherheitsbetrachtungen stellt, heute aber ebenfalls gut beherrschbar ist. Bei der Handhabung des Gases im Überdruckbereich ist jedoch eine unbeabsichtigte Abkühlung mit dem Phasenübergang gasförmig zu flüssig und vor allem flüssig zu fest zu vermeiden bzw. in der Auslegung zu verhindern oder geeignet zu berücksichtigen. Letzterer Übergang geht durch einen Dichtesprung von – je nach Druck und Temperatur – ca. $3,7 \text{ g/cm}^3$ auf ca. $5,1 \text{ g/cm}^3$ und damit einer spontanen Volumenreduktion um ca. 35% einher, und bei einer anschließenden erneuten Erwärmung mit einer entsprechenden Volumenzunahme /URE 13/. Dieser Effekt führte im Jahr 1986 in Gore, USA, bei der versuchten Entleerung eines überfüllten Uranhexafluorid-Transportbehälters aufgrund unvorhergesehener, ungünstiger Umstände zu einem schweren Unfall mit Bersten eines 48Y-Behälters /SHU 86/.

Abb. 4.7 zeigt das Phasen- und ein Dichtediagramm von Uranhexafluorid /URE 13/, um diese Besonderheit zu verdeutlichen.

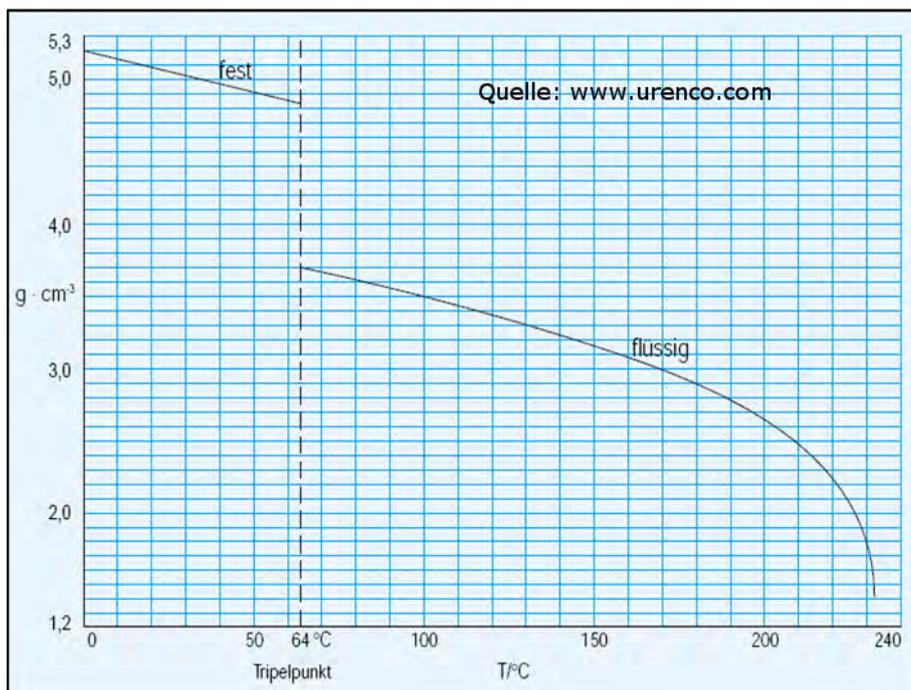
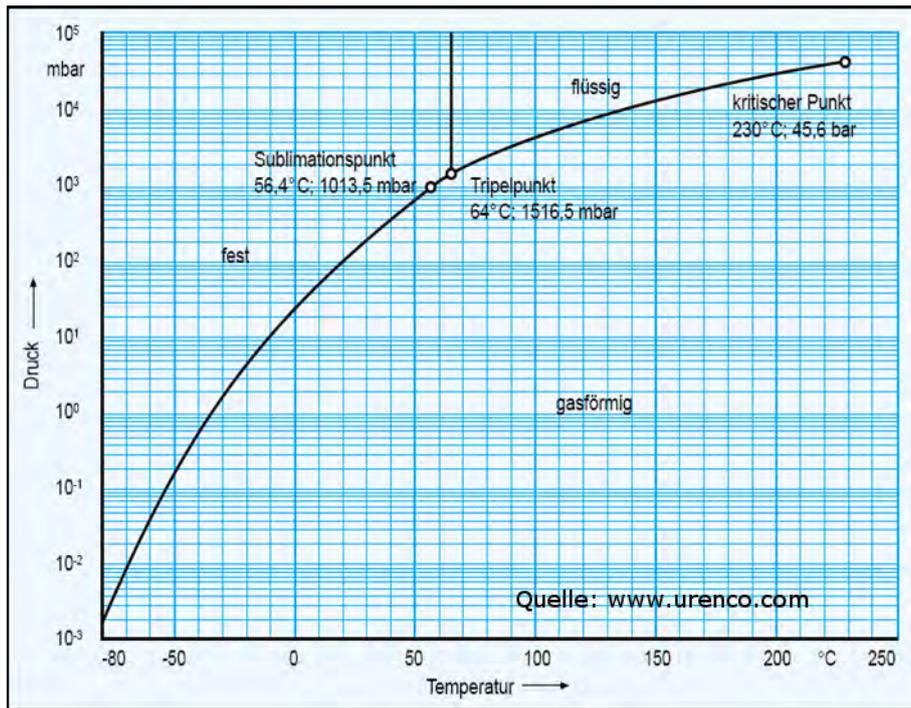


Abb. 4.7 Phasen- und Dichtediagramm von Uranhexafluorid UF_6 nach URENCO

Insgesamt erscheint die Anreicherung nach dem SILEX-Verfahren auf Basis der verfügbaren Informationen, ohne präzise Kenntnis des genauen Verfahrens, nicht mit einem signifikant höheren Gefährdungspotential verbunden zu sein als andere Technologien zur Urananreicherung.

4.2 Brennstoffkonzepte

In folgendem Kapitel sind die Ergebnisse von Literaturrecherchen zu Kernbrennstoffkonzepten zusammengefasst, welche gegenwärtig international als Weiterentwicklung bestehender Konzepte für etablierte Reaktortypen, als Konzepte zur Nutzung von Thorium, sowie für zukünftige fortschrittliche Anlagen diskutiert und erforscht werden.

4.2.1 Entwicklungen bezüglich Brennstoffkonzepte in Leichtwasserreaktoren

4.2.1.1 Abbrennbare Absorber

Die Verwendung von abbrennbaren Neutronenabsorbern in Brennstoffen von Leichtwasserreaktoren stellt heute ein etabliertes Verfahren dar. Das weltweit am häufigsten eingesetzte Material ist dabei dem Brennstoff UO_2 beigemischte Gadolinium (Gd), seltener auch Erbium, oder an der Brennstoffoberfläche als Ummantelung angebrachte ZrB_2 Verbindungen /FIE 03, HES 09/. Im Berichtszeitraum beschäftigen sich einige neuere Untersuchungen mit dem Zusatz von Bor in die Brennstoffmatrix /LEE 12, RHE 12, JEO 14, JEO 15/. Die aktuelle Forschung zielt dabei vor allem auf den Druckaufbau innerhalb des Brennstabs durch die Helium-Produktion (jedes von ^{10}B absorbierte Neutron erzeugt Heliumgas). Die Effekte werden beschrieben in /JEO 14/ und /JEO 15/. Eine detailliertere spezifische Analyse in /JEO 15/ kommt zu dem Schluss, dass durch Hinzufügen von 500 ppm Bor in die UO_2 Brennstoffmatrix ein signifikanter Druckanstieg am Ende eines LWR-Zyklus zu erwarten ist. Für eine genauere Aussage und zur Abschätzung eventueller Materialkonsequenzen, z. B. Spannungszustände des Brennstoff-Hüllrohrs, müssen weitere experimentelle Studien durchgeführt werden. Für die von in /FIE 03/ beschriebenen Brennstäbe mit ZrB_2 Ummantelung des Brennstoffs stellen die Autoren keine sicherheitsrelevanten Einschränkungen durch die Heliumproduktion fest.

4.2.1.2 Verbesserung der thermischen Eigenschaften von UO_2 -Brennstoffen

Die verhältnismäßig niedrigere Wärmeleitfähigkeit von UO_2 -Brennstoffen in Leichtwasserreaktoren führt zu makroskopischen Effekten, die sich in der Konsequenz auf die Sicherheit der Reaktoren während des Betriebs auswirken. Eine verbesserte Wärme-

leitfähigkeit würde zu niedrigeren Brennstofftemperaturen führen, was in einer geringeren Freisetzung von Spaltgasen und somit zu einer Druckverminderung im Inneren der Brennstäbe führen würde. Ebenso würde durch eine bessere Wärmeleitfähigkeit der Temperaturgradient innerhalb der Brennstoffpellets abnehmen und so weniger thermische Belastungen auftreten. Letztere können u. a. verantwortlich für unerwünschte Effekte wie Restrukturierungen, Deformationen und Brüche sein. Ein Ansatz, um die Wärmeleitfähigkeit des UO_2 -Brennstoffes zu verbessern ist, Berylliumoxid (Beryllerde, BeO) der Brennstoffmatrix beizumischen. Unter allen bekannten Oxiden besitzt BeO die mit höchste thermische Leitfähigkeit (ca. 260-300 W/(mK) bei 20°C), die um ein vielfaches höher als die von UO_2 ist /SUK 14/. Der hohe Schmelzpunkt, die guten chemischen Eigenschaften in Bezug auf Verbindungen mit UO_2 und die niedrigen Neutronenabsorptionsraten machen BeO zu einem sehr guten Kandidaten. Dem gegenüber stehen die für alle keramischen Stoffe gültigen Strahlungseffekte durch Neutronen, die die Wärmeleitfähigkeit vermindern können. In /SUK 14/ wurden theoretische Überlegungen und Modellrechnungen angefertigt, um die Degenerierung der thermischen Leitfähigkeit von BeO durch Bestrahlung in UO_2 - BeO Brennstoffen zu untersuchen. Insgesamt gibt es jedoch nur sehr wenige experimentell ermittelte Werte, mit denen die Modellrechnungen verglichen werden können. Ein Beispiel sind die momentan durchgeführten Experimente am Halden-Reaktor in Norwegen mit 90 Vol.-% UO_2 und 10 Vol.-% BeO (entspricht ca. 97 Gew.-% UO_2 und 3 Gew.-% BeO). Diese Werte wurden auch für die Berechnungen in /SUK 14/ benutzt. Untersucht wurden die zwei verschiedenen Hüllrohrmaterialien Zircalloy-4 und Siliziumcarbid (SiC). Als Resultat der Studie und den darin durchgeführten Sensitivitätsstudien kann festgehalten werden, dass für SiC Hüllrohrmaterialien eine größere Verbesserung bezüglich der thermischen Eigenschaften der UO_2 - BeO Brennstoffe festgestellt werden konnte. Zu einer besseren Einschätzung der Ergebnisse werden mehr experimentelle Daten zum Vergleich benötigt.

4.2.1.3 Neuere Entwicklungen bezüglich Hüllrohrmaterialien

Der Ablauf des Reaktorunfalls in Fukushima hat unter anderem den Forschungen nach neuen Hüllrohrmaterialien neuen Antrieb gegeben. Gegenüber den heute in Leistungsreaktoren fast ausschließlich verwendeten Zirkonlegierungen verspricht man sich davon unter anderem eine geringere Oxidationsrate und eine höhere strukturelle Belastbarkeit bei höheren Temperaturen. Im Falle eines Kühlmittelverlusts würde so zusätzliche Karenzzeit zur Verfügung stehen um die Kühlung der Brennelemente wiederherzustellen. Für den normalen Reaktorbetrieb erwartet man sich eine geringere Rate an

Hüllrohrdefekten bzw. größere Toleranzen, welche die neuen Materialien ggf. für den Einsatz mit höher angereicherten Brennstoffen oder Hochabbränden empfehlen würde. Als geeignete Materialien wurden auf der Basis von Computeranalysen bisher neuartige Legierungen auf der Basis von Stählen oder überzogenem Molybdän diskutiert, dazu Keramikverbundstoffe aus Siliziumcarbiden /AVS 13/. Aufgrund der Stoffeigenschaften wie ein hoher Schmelzpunkt (2730 °C), niedrige chemische Aktivität, geringer Neutronenwirkungsquerschnitt und keine nennenswerten Kriecheigenschaften bei hohen Temperaturen, ist es ein interessantes Hüllrohrmaterial für Leichtwasserreaktoren (LWR).

Die Integrität des Hüllrohrs in LWR ist von großer Bedeutung, so dass die thermische Leistung des Reaktorkerns im Wesentlichen durch die resultierende thermische und mechanische Belastung auf das Hüllrohrmaterial limitiert wird. Prinzipiell könnten Hüllrohre aus SiC im Vergleich zu Zirkonium-Aluminium Verbindungen (Zircalloy) Vorteile in Bezug auf größere Sicherheitsmargen bei Anlagenstörfällen wie Verlust des Kühlmittels bringen. Auch sind prinzipiell höhere Abbrände als bisher möglich /LEE 13/.

Verschiedene Hüllrohr-Entwürfe aus SiC-Materialien wurden bereits unter DWR-ähnlichen Bedingungen testbestrahlt. Neben der beabsichtigten Reduzierung der Oxidation und erhöhter Temperaturresistenz kam es vor allem durch ungleichmäßige Schwellraten der Verbundstoffe zu Materialdefekten, die auch damit zusammenhängen, dass man in Herstellung und Verarbeitung der Mehrkomponenten-Hüllrohre noch wesentlich weniger Erfahrungen hat sammeln können als bei Metallen /MIT 13, STE 13/. Ein tiefer gehender und aktueller Überblick über den Stand der Technik sowie deren Evaluation ist z. B. in /KAT 15/ gegeben.

Tab. 4.1 Vergleich einiger Eigenschaften von SiC mit Zircalloy nach /LEE 13/

Eigenschaft	Zircalloy	SiC
Belastbarkeit bei hohen Temperaturen	2 % Abnahme der Belastbarkeit pro 10 °C (> 300 °C)	Konstant bis ca. 1600 °C
Schmelzpunkt	1760 °C	2730 °C (hochreines SiC)

4.2.2 Thorium-Brennstoffe

Seit den Anfängen der Kernenergie wurde Thorium als ein potenzieller Brennstoff gesehen, der Natururan ersetzen bzw. ergänzen kann. Die ursprüngliche Idee eines Tho-

rium Konverters zur Erzeugung von ^{233}U wurde 1944 von Eugene Wigner vorgeschlagen /LAW 04/. Reines Thorium stellt jedoch keine Alternative zu Uran als Brennstoff dar, da ein spaltbares Thorium Isotop fehlt: Es ist nicht möglich, eine Kettenreaktion aus reinem Thorium zu erzeugen. Jedes auf Thorium basierte nukleare System würde abhängig von zuvor generiertem spaltbarem Material sein (extrahiert oder erbrütet mittels Uranbrennstoffen). Aus Thorium entsteht jedoch durch Neutroneneinfang das spaltbare Nuklid ^{233}U , welches hervorragende neutronenphysikalische Eigenschaften besitzt, insbesondere in thermischen Reaktoren. Dies macht die Verwendung von Thorium im Brennstoffkreislauf aus wissenschaftlicher Sicht interessant, trotz der Vielzahl an bekannten Schwierigkeiten bezüglich der technischen und industriellen Umsetzung (siehe z. B. /KIG 13/ und enthaltenen Referenzen).

Dem anfänglichen Forschungsinteresse lag vor allem der Gedanke zu Grunde, dass die natürlichen Uranvorkommen weltweit für die Energieversorgung nicht ausreichen könnten. Thorium kommt ca. dreimal so häufig vor und wäre somit eine gute Ergänzung. Die Möglichkeit der besseren Ausnutzung des UO_2 - bzw. UO_2/PuO_2 -Mischoxid Brennstoffs durch Verwendung von Thorium-basierten Brennstoffen macht die Forschung auch unter den Gesichtspunkten des Brennstoffkreislaufes und Abfallmanagements attraktiv.

Die Forschung auf dem Gebiet der Thoriumbrennstoffe und deren Kreisläufe ist heute aus eine Reihe von Gründen wesentlich weniger umfangreich geworden /NEA 15/:

- Der anfängliche Referenzzyklus basierte auf der Verwendung von hochangereichertem Uran. Die Limitierung auf niedrig angereichertes Uran mit max. 20% Anreicherung erschwerte die technische Umsetzung deutlich und verminderte die Gesamtperformance.
- Das Verbot der Wiederaufarbeitung abgebrannter Brennelemente in einigen Ländern verhinderte dort auch die (Rück-)Gewinnung des ^{233}U aus dem bestrahlten Thorium (z. B. USA, Deutschland).
- Der Uran/Plutonium-Brennstoffkreislauf ist weit und in industriellem Maßstab entwickelt, z. T. inklusive der Wiederaufbereitung (z. B. in Frankreich).

Auch in Deutschland wurden in der Vergangenheit Thorium-basierte Brennstoffe als Alternative zum bestehenden Brennstoffkreislauf erforscht, zum Beispiel in dem heute im sicheren Einschluss befindlichem THTR-300 Reaktor /THT 16/. Nach /NEA 15/ kann die Forschung in Deutschland in drei Phasen eingeteilt werden:

- Eine frühe Phase von 1968 bis 1977, gekennzeichnet durch eine Zusammenarbeit von Industrie und Forschung zur Untersuchung von Möglichkeiten des Plutonium-Recyclings als Thorium / Plutonium MOX in DWR.
- Verschiedene Forschungs- und Entwicklungsprogramme zur Bestrahlung von Thorium / Plutonium-Brennstoff in SWR in der Anlage KKL Lingen, finanziert vom Bundesministerium für Forschung und Entwicklung.
- Die Zusammenarbeit zwischen Kraftwerk Union (KWU) AG, KFA-Jülich, NUKEM und NUCLEBRAS/CDTN, Brasilien von 1979 bis 1988, finanziert vom Bundesministerium für Forschung und Entwicklung.
- Die Bestrahlung eines Teststabes mit Thorium-/Plutonium-Brennstoff im Kernkraftwerk Obrigheim von 2000 bis 2005, finanziert durch das 5. und 6. Rahmenprogramm der Europäischen Union.

Auf internationaler Ebene sind heutige Forschungsaktivitäten durch folgende Punkte motiviert:

- Thorium-basierte Brennstoffe erlauben prinzipiell höhere Abbrände.
- Höhere Schmelztemperaturen und verbesserte thermische Eigenschaften Thorium-basierter Brennstoffe ermöglichen Unfall-tolerantere Brennstoffe.
- Niedrigere Produktionsraten von Plutonium und Minoren Aktinoide in Thorium/Uran-Brennstoffe im Allgemeinen, sowie die Möglichkeit mit Thorium bestehende Plutoniumbestände als Brennstoffe abzubauen.
- Prinzipielles Erreichen von höheren Konversionsfaktoren in thermischen und epithermischen Neutronenspektren unter Verwendung von Thorium-basierten Brennstoffen in evolutionären Systemen (z.B. fortschrittlichen Schwerwasserreaktoren (Advanced Heavy Water Reactors - AHWR)).
- Thorium als Zusatz in UO_2 -Brennstoffen in Leichtwasserreaktoren kann die keramischen Eigenschaften des Brennstoffs sowie die Betriebseigenschaften im Reaktorkern verbessern und so zu einer Verbesserung der betrieblichen Sicherheitsmargen führen.

4.2.2.1 Aktuelle Forschung zu Thorium Brennstoffen

Im Folgenden werden einige aktuelle Forschungs- und Entwicklungsprogramme vorgestellt, deren kurz- bis mittelfristige Ziele die Verwendung von Thorium in bestehenden Reaktorkonzepten (LWR und Schwerwasserreaktoren) sind.

THOR Energy, Norwegen

Das norwegische Technologieunternehmen THOR Energy startete 2013 ein Bestrahlungsprogramm mit Thorium/Plutonium-Brennstoffen zur Qualifikation in LWR /NEA 15, THO 16/. Das Programm wird von dem norwegischen Institut für Energietechnik IFE überwacht. Das Bestrahlungsprogramm findet im Halden-Reaktor der NEA statt. Die zweite Phase eines fünfjährigen Probetriebs von Thorium-basierten Kernbrennstoffen ist angelaufen. Ziel ist es, die Leistung des Brennstoffs zu quantifizieren und sie für den kommerziellen Einsatz zu qualifizieren. Die ersten Bestrahlungsversuche der Thorium-Brennstoffproben wurden in Halden im April 2013 durchgeführt, die zweite Testreihe wurde im Dezember 2015 gestartet und soll die Testergebnisse der ersten Phase verifizieren. Die Teststäbe werden derzeit auf Schlüsseigenschaften wie Wärmeleitfähigkeit oder Anschwellen des Brennstoffs und Spaltgasfreisetzung als Funktion vom Abbrand untersucht. Die zweite Phase besteht aus zwölf instrumentierten Brennstäben mit drei verschiedenen Uran-basierten Thorium-Brennstoffen. Die Bestrahlungsexperimente werden gemeinsam finanziert und ausgeführt von dem dazu gegründeten International Thorium Consortium, bestehend aus Thor Energy AS (Norwegen), Westinghouse Electric Company (USA/Schweden), Fortum (Finnland), Institute for Energy Technology (Norwegen), Rhodia (Frankreich) und seit 2015 zusätzlich dem Korea Atomic Energy Research Institute KAERI (Korea).



Abb. 4.8 Nahaufnahme des Prüfstandes des zweiten Bestrahlungsexperiments von Thor Energy. Photo: T.Tandberg /THO 16/

Areva und Solvay/Rhodia

Ende Dezember 2013 wurde eine gemeinsame Vereinbarung zwischen den Firmen Areva und Solvay/Rhodia geschlossen. Das Ziel ist die Entwicklung eines gemeinsamen Forschungs- und Entwicklungsprogramms (F&E) bzgl. des Einsatzes von Thorium als potentiellen Brennstoff in kerntechnischen Anlagen, komplementär zu den vorhandenen Uran/ Plutonium Brennstoffzyklen /SOL 13/. Beide Unternehmen verfügen über Thorium aus Frankreich /NEA 15/. Das F&E Programm soll für die Entwicklung von qualifizierten Thoriumbrennstoffen in Reaktoren der Generation III ausgerichtet sein und beinhaltet Pläne für Bestrahlung von Brennstoffproben in kommerziellen Kernkraftwerken. Zusätzlich enthält das Programm F&E Ansätze für das hintere Ende des Brennstoffkreislaufs (back end) zu Möglichkeiten des Brennstoffrecyclings unter Verwendung von Thorium /NEA 15/.

Thoria Roadmap Project

Zur Identifizierung und Bewältigung von Defiziten im Kenntnisstand von Thoriumoxid Brennstoffen hat das kanadische Unternehmen Canadian Nuclear Laboratories (CNL,

vormals Atomic Energy of Canada Limited, AECL) das mehrjährige "Thoria Roadmap Projekt" initiiert. Die erste Phase begann 2011 und bestimmte welches grundlegende Verständnis erforderlich ist um zukünftige Thoriumoxid Brennstoffzyklen sowie Designs für verschiedene Reaktortypen zu entwickeln. Die zweite Phase wurde 2013 initiiert und soll den Status des aktuellen Kenntnisstands sowohl intern als auch extern bestimmen, um Lücken („gaps“) zwischen den erwarteten künftigen Anforderungen und der bestehenden Wissensbasis zu identifizieren. Die dritte Phase wird eine Roadmap erstellen um diese Lücken zu schließen, während die vierte Phase den erstellten Plan ausführen wird.

4.2.2.2 Thorium und Generation IV Reaktoren in China

Die „Staatliche Kommission für Entwicklung und Reform“ in China fördert Forschungs- und Entwicklungsprogramme zum Thema fortschrittlicher Brennstoffzyklen vor dem Hintergrund der Wiederaufarbeitung /NWA 16/. Mit dem Ziel einer effektiveren Nutzung des Urans als Brennstoff beinhaltet das Programm dabei auch die Untersuchung der Verwendung von Thorium. China hat u. a. ein gesteigertes Interesse an der Verwendung von Thorium als Brennstoff, da das Land, ähnlich wie auch Indien, größere geologische Vorkommen von Thorium als von Uran besitzen /HUR 15/.

Innerhalb der Förderung hat das „Institute of Nuclear Energy Technology“ (INET) in der Nähe von Beijing verschiedene Möglichkeiten des Thorium Einsatzes im vorhandenen Brennstoffzyklus untersucht. Der Schwerpunkt lag dabei auf Einsatzmöglichkeiten in Reaktoren der Qinshan Phase III Baureihe /NWA 16/.

2011 startete die Chinesische Akademie der Wissenschaft ein umfängliches Forschungs- und Entwicklungsprogramm zu Thorium-brütenden Flüssigsalzreaktoren (international Th-MSR oder TMSR, oder auch Flüssig-Fluorid-Thorium-Reaktoren, LFTR). Aus der Zusammenarbeit mit dem Oak-Ridge National Laboratory (ORNL) in den USA soll ein dem ehemaligen ORNL-Testreaktor (betrieben von 1965-1969) ähnlicher Reaktortyp mit einer Leistung von 7 MW_{th} erbaut werden.

Zur Demonstration eines Brennstoffzyklus unter Verwendung von Thorium ist ein Beschleuniger-getriebener, unterkritischer Flüssigbrennstoffreaktor mit 2 MW_e Leistung vom Shanghai Institute of Nuclear Applied Physics (SINAP) entwickelt worden.

Mittelfristig sind sowohl Reaktoren und Konzepte zum offenen (TMSR-SF I bis III, 2025 bis 2030, für den Einsatz von festen Brennstoffen) und geschlossenen Thoriumkreislauf (TMSR-LF I bis III, 2018 bis 2035, flüssige Brennstoffe) sowie Konzepte zu schnellen Reaktoren zur Nutzung von Minoren Aktinoiden als Brennstoff geplant. Bemerkenswert ist auch, dass der TMSR-SF I Reaktor ähnlich wie der in Deutschland betriebene Thorium-Hochtemperaturreaktor THTR-300 mit Brennelementkugeln aus Graphit und Brennstoff mit 60 mm Durchmesser betrieben wird. Der zweite Typ, TMSR-FR II, soll eine Leistung von $100 \text{ MW}_{\text{th}}$ (45 MW_{e}) haben und Brennstoffkugeln mit 30 mm Durchmesser und 15 % ^{235}U (insgesamt 470 kg) mit einer Fluor-Lithium-Beryllium-(FLiBe)Kühlung und einem 1,9 m hohen Kern haben, bei einer maximalen Betriebstemperatur von 700°C . Als näheres Forschungsziel wurde die Herstellung sowie Erprobung von ThF_4 und ThO_2 in Flüssigsalzreaktoren definiert.

Seit 2008 arbeiten das Nuclear Power Institute of China (NPIC) und die Atomic Energy of Canada Ltd (AECL), jetzt mittels Candu Energy Inc., an Weiterentwicklungen des Advanced Fuel Candu Reactor (AFCR) vertraglich zusammen. Die Zusammenarbeit zielt u. a. auf die Weiterentwicklung der Candu 6 und Generation III Enhanced Candu 6 (EC6) Reaktortypen, zur verbesserten Nutzung von recyceltem Uran und Thorium-Brennstoffen. Auf Grundlage der Zusammenarbeit kam ein Expertengremium in China 2014 zu dem Schluss, dass die Verwendung von Thorium in Reaktoren des Typs EC6 technisch umsetzbar ist, und charakterisierte das Design im Vergleich zu bereits genehmigten Reaktoren als verbessert bzgl. der Sicherheit und als ökonomisch /WNA 16/.

4.2.3 Aktuelle Gesamtschätzungen

Auf der TopFuel Konferenz vom September 2015 wurde von Mitarbeitern des National Nuclear Laboratory NNL, UK, Ergebnisse einer Untersuchung zur technologischen Reife (Technology Readiness Level - TRL) verschiedener Hüllrohrmaterialien und Brennstoffe gegeben /SHE 15/. Die präsentierten Ergebnisse basieren zum Teil auf vorangegangenen und bereits publizierte Untersuchungen /SHE 13, SHE 14/. In den Arbeiten werden TRLs von international diskutierten, potentiellen Brennstoffen für Generatoren der Generation III, III+ und IV und der sog. Small Modular Reactors (SMR) untersucht. Die Brennstoffkonzepte beinhalten dabei folgende Brennstoffe:

- Standard Brennstoffe (UO_2 und U/Pu-MOX mit höchstens 12 % PuO_2)
- Neuere Geometrien (Annular Pellets, Dual-gekühlte Brennstoffe)

- Fortschrittliche Materialien (UO₂, MOX, Metalle)
- Andere chemische Verbindungen des Uran (Carbide, Nitride, Silizide)
- Neue Elemente (Thorium-basierte Brennstoffe, Brennstoffe mit Minoren Aktinoiden)
- Weitere Materialien (Inert Matrix Brennstoffe, Dispersionsbrennstoffe, Zirkonhydrid-basierte Brennstoffe, „Coated Particles“)
- Flüssige Brennstoffe, z. B. Salzschmelzen

Nicht berücksichtigt werden in der Studie Brennstoffkonzepte für militärische Zwecke oder experimentelle Forschungsreaktoren. Die Einschätzung der technologischen Reife folgt einer Skala von 1 bis 10 die in einer ähnlichen Form auch vom Idaho National Laboratory und der NASA benutzt wird. Grundlage der Bewertung waren ausgiebige Studien publizierter Artikel aus Journalen, Konferenzen und Berichten nationaler Institute sowie relevante Veröffentlichungen von Organisationen wie der IAEA oder OECD-NEA. Eine detaillierte Darstellung der Ergebnisse findet sich in einem National Nuclear Laboratory Report /SHE 13b/. Im Folgenden werden einige grafisch dargestellte Ergebnisse aus /SHE 15/ zitiert. In den Darstellungen fällt auf, dass einige Brennstoffe eine höhere TRL-Einstufung als die zugehörigen Hüllrohrmaterialien erlangen. Ebenso weisen einige der Brennstoffe mit verbesserten Sicherheitsaspekten für Reaktoren der Generation III und III+ noch relativ niedrige TRL-Einschätzungen auf. Diese beiden Resultate könnten als Motivation für zukünftige, kurzfristige internationale Forschungsschwerpunkte benutzt werden.

TRL	Definition & Description
10	Long term operation of many actual systems <i>e.g. long term use within commercial reactor fleets i.e. many thousands of hours operating experience</i>
9	Successful operation of actual system <i>e.g. assemblies successful after irradiation in reload quantities (at least one third of a full reactor core)</i>
8	Actual system constructed and commissioned <i>e.g. assemblies fabricated in reload quantities, may include irradiation with only limited success</i>
7	Prototype successfully demonstrated <i>e.g. lead use assemblies successful in a prototype or commercial reactor</i>
6	Prototype construction (much more representative than basic system) <i>e.g. lead use assemblies irradiated in a prototype or commercial reactor but with only limited success</i>
5	Basic system successfully demonstrated <i>e.g. test rods have been irradiated and performed successfully in a test reactor</i>
4	Integration of components into a basic system <i>e.g. test rods subjected to out-of-reactor tests and/or irradiated in test reactor but with only limited success</i>
3	Basic components successfully demonstrated <i>e.g. fuel and/or cladding components have been tested out-of-reactor and/or irradiated as a component only</i>
2	Practical applications suggested <i>e.g. fuel and cladding designs have been established</i>
1	Research into the principles underlying the technology <i>e.g. promising materials have been identified</i>

Abb. 4.9 In /SHE 15/ vorgenommene Klassifizierung der technologischen Reife

Fuel categories		Best case TRL	Justification and reference
Standard	UO ₂	10	Vast majority of fuel that has been used in almost all commercial reactors worldwide for decades [7].
	MOX (<12%PuO ₂)	10	Used in many commercial LWRs [7].
New geometries	Annular pellets in LWRs (exc. VVER)	7	Lead assemblies successfully irradiated in Japanese commercial boiling water reactor (BWR) [8].
	Dual Cooled Fuel (DCF)	5	Test rods irradiated in Korean commercial PWR [9].
Evolutionary materials	Advanced UO ₂	9	AREVA Cr ₂ O ₃ doped and Westinghouse Cr ₂ O ₃ -Al ₂ O ₃ doped fuel are now commercial products [7].
	Advanced MOX	9	High PuO ₂ content MOX used in commercial scale SFR in Russia [7].
	Advanced Metal	7	Hundreds of U-Pu-Zr fuel rods irradiated in prototype SFR in USA [10].
New compounds	Carbide	7	Manufacture and irradiation of (U,Pu)C on a prototype scale for SFR especially in India [11].
	Nitride	7	Manufacture and irradiation of UN on a prototype scale for SFR in Russia [12].
	Uranium silicide	4	U ₃ Si ₂ LWR rodlet irradiation programme by Westinghouse-led consortium [13].
New elements	Thorium	8	Significant amount of Th-bearing fuel irradiated in commercial PHWRs in India [14].
	Minor Actinides (MAs)	4	A number of test irradiations of MA fuel have been carried out, targeting SFR application [10].
Including other materials	Inert Matrix Fuels (IMFs)	5	Successful test irradiations of various IMF types targeting Pu and/or MA disposition [10].
	Dispersion	5	Successful irradiation of dispersion fuels based on research reactor designs have been performed [15].
	Zirconium hydride-based	5	Widespread use in TRIGA research reactors with concept development for LWRs [16].
	Coated particle-based	7	Significant manufacturing and irradiation experience for prototype HTRs [17].
Liquid-based	Molten salt	4	Experience of the use of U-based molten salt fuels in test reactors in the USA in the 1950s and 60s [18].

Abb. 4.10 Ergebnis der TRL in /SHE 15/ für die untersuchten Brennstoffkategorien
Die Referenzen beziehen sich auf die Referenzen in /SHE 15/

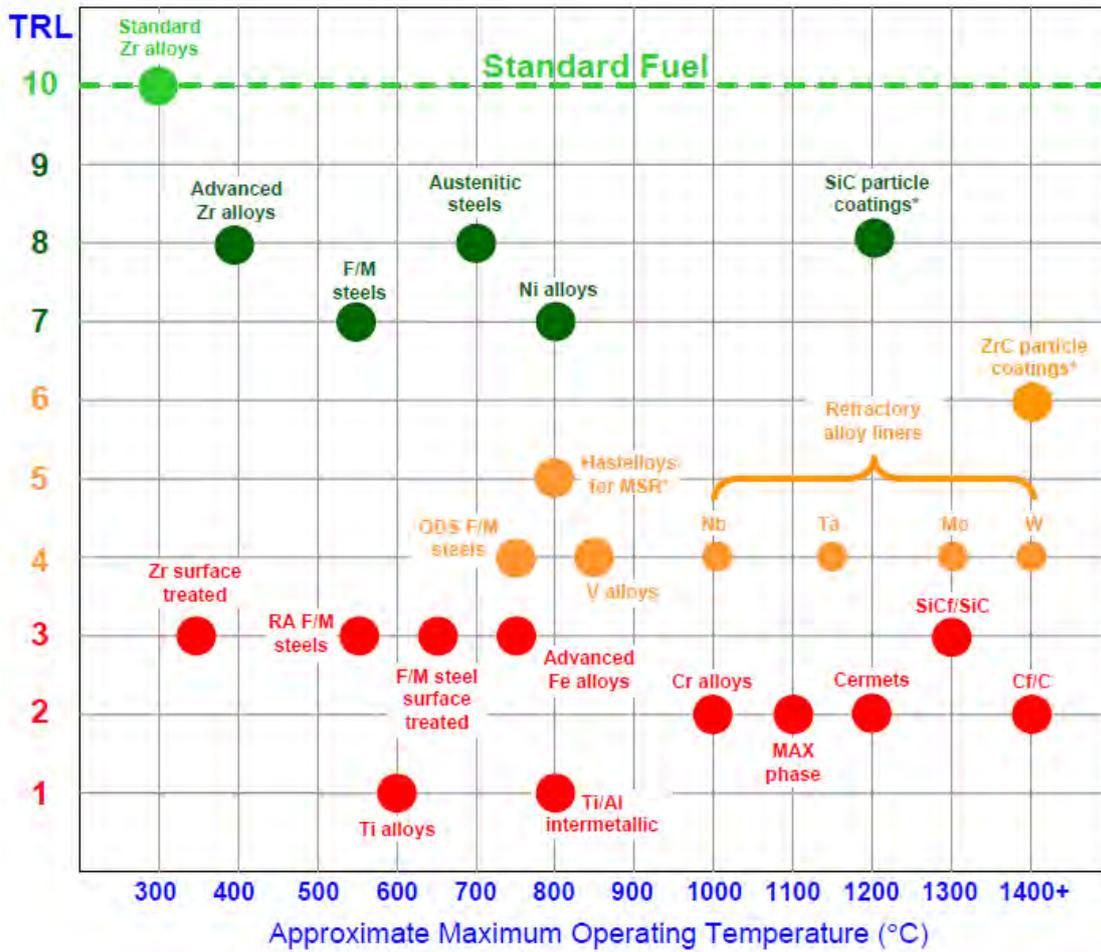


Abb. 4.11 In /SHE 15/ vorgenommene Einschätzung der technologischen Reife neuerer Hüllrohrmaterialien

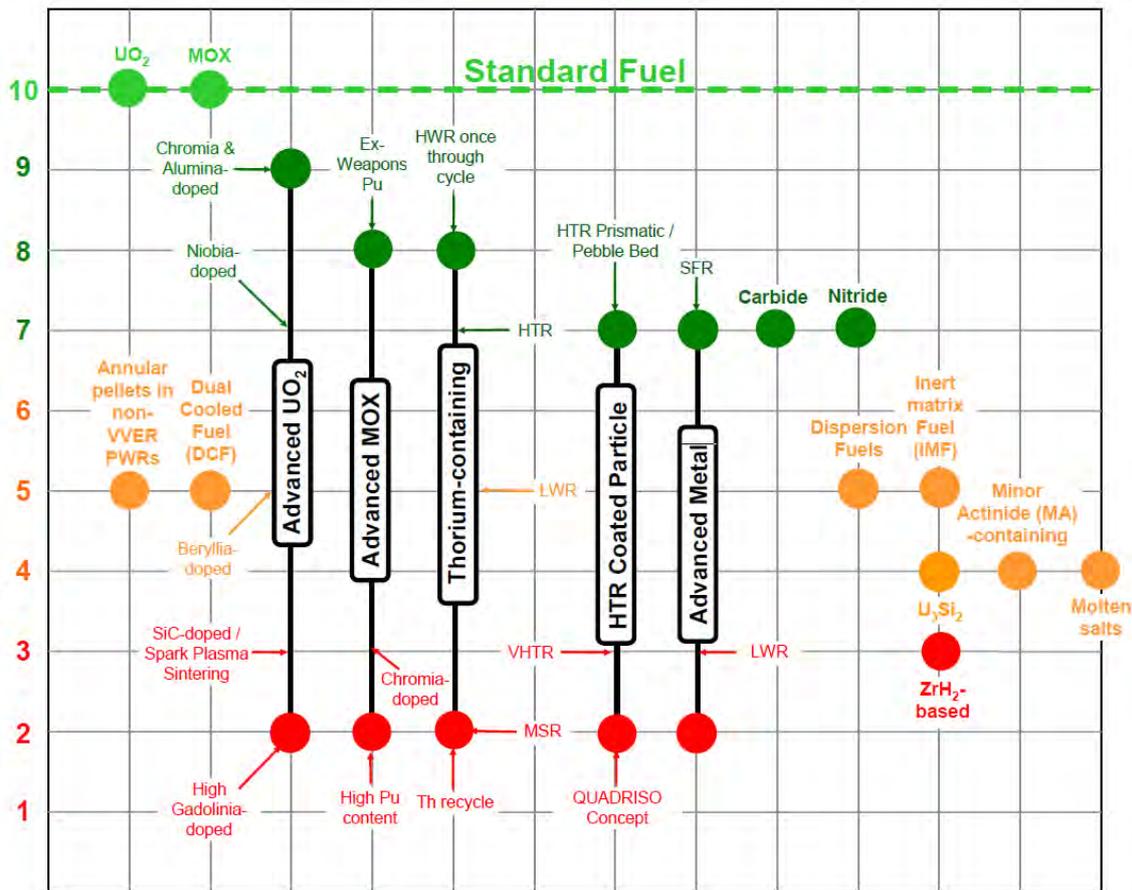


Abb. 4.12 In /SHE 15/ vorgenommene Einschätzung der technologischen Reife neuerer Kernbrennstoff-Materialien

4.2.4 Neuere Entwicklungen bezüglich Brennelemente

4.2.4.1 CF3 Design für DWR

Auf der Top Fuel 2015 Konferenz wurden in einem Beitrag die Fortschritte in der Entwicklung des sog. CF3 Designs für DWR Brennelemente gegeben /YON 15/. Dabei handelt es sich um eine neuere Entwicklung eines Brennelementes für hohe Abbrände bei 18-monatigen Zyklen der China National Nuclear Corporation. Es besteht aus 264 Brennstäben in einer 17x17 Anordnung mit 24 Führungsrohren und einem Instrumentierungsstab. Die weitere Struktur beinhaltet acht Gitter und drei dazwischen liegende vermischende Gitter zur Verbesserung der thermischen Eigenschaften. Die aktive Länge beträgt 12ft. (3,657m). Das Design bietet u. a. eine verbesserte Steifigkeit des Brennelementes, sowie verbesserte thermische Eigenschaften. Die Verwendung des Materials N36 als Hüllrohrmaterial soll einen stabweisen Abbrand in Höhe von

62 GWd/tU, bzw. einen über das Brennelement gemittelten Abbrand von 52 GWd/tU in einem 18 Monate dauernden Zyklus erlauben. Bei dem Material handelt es sich um eine Zirkonlegierung (je 1 Gew. % Sn und Nb, 0,3 Gew. % Fe, Rest Zr), die für die Hüllrohre, Führungsrohre und Abstandsgitter verwendet werden soll.

Die in /YOU 15/ präsentierten Ergebnisse für Materialtests außerhalb von Reaktoren zeigen vergleichbare bis verbesserte Eigenschaften für Korrosion, Gewichtszunahme und Kriechvorgänge. Weitere Tests, wie z.B. mechanische Test des Brennelements oder hydraulische Test werden in /YOU 15/ nur kurz erwähnt.

Seit dem Juli 2014 werden vier CF3 Brennelemente im Reaktor Qinshan Phase II Unit 2 (Typ CNP600) getestet. Bei den vier Brennelementen bestehen die Hüllrohre aus N36, die Führungsrohre und Teile der Gitter aus rekristalisiertem Zr-4. Bisher sind keine Anzeichen von Anomalitäten berichtet worden.

Es ist geplant, weitere Testelemente in Reaktoren des Typs CNP1000 zu testen.

4.2.5 Geschlossener Brennstoffkreislauf im Zusammenhang mit dem natriumgekühlten Brutreaktor BN-800

Am 10. Dezember 2015 wurde der Schnelle Brutreaktor Beloyarsk-4 vom Typ BN-800 zum ersten Mal an das kommerzielle Stromnetz angeschlossen /IAE 16/. Der Zustand der Kritikalität wurde erstmalig zum 27. Juni 2014 gemeldet.

Bei der Baulinie BN-800 handelt es sich um einen natriumgekühlten schnellen Reaktor der i.W. eine Weiterentwicklung der vorangegangenen Baulinie BN-600 ist. Designstudien wurden bereits 1980 begonnen und 1992 soweit abgeschlossen, dass 1998 eine Konstruktionsgenehmigung erteilt wurde /JSC 16/.

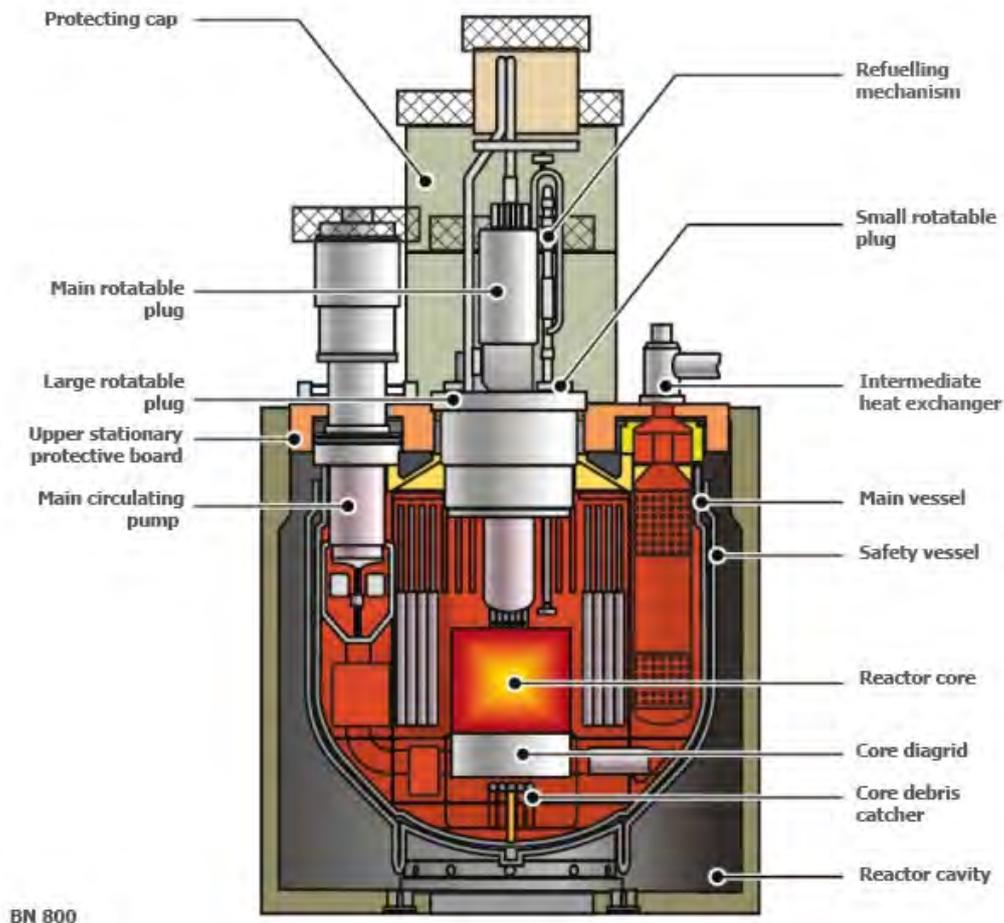


Abb. 4.13 Schematische Skizze des BN-800 Reaktors nach /OKB 16/

Der Reaktortyp BN-800 ist für drei verschiedene Brennstoffkreisläufe entworfen worden, wie in Tab. 4.2 dargestellt. Der Reaktor kann zusammen mit dem ebenfalls auf dem Gelände befindlichen BN-600 Reaktor (Beloyarsk-3) nach Angaben von /JSC 16/ sehr effektiv dazu genutzt werden, jährlich bis zu drei Tonnen waffenfähiges Plutonium (z. B. aus dem nahe gelegenen Mayak) in MOX-Brennstoffen in abgebrannte Kernbrennstoffe zu transformieren. In geschlossenen Kreisläufen können MOX- oder Nitrid-Brennelemente verwendet werden. Dabei würden die entstehenden Aktinoide wie z. B. Plutonium effektiver als bei bestehenden Reaktoren verbraucht werden. So wäre eine Reduzierung der Abfallmenge prinzipiell möglich. Der Reaktor kann für verschiedene Anwendungen genutzt werden /JSC 16/:

- Erzeugung von elektrischer Leistung sowie Wärmeleistung
- Abbau oder Erzeugung von Plutonium
- Abbau von waffenfähigem Plutonium
- Weiterverarbeitung von langlebigen Transuranen aus bestehenden Abfällen

- Produktion von Isotopen für Wissenschaft und Medizin

Tab. 4.2 Szenarien für den Brennstoffkreislauf im BN-800

Szenario	Brennstoff	Charakteristik
Offener Kreislauf	MOX	Abbau der Bestände an waffenfähigem Plutonium
Geschlossener Kreislauf	MOX	Nachweis eines geschlossenen Kreislaufs mit verminderter Generierung von Minoren Aktinoiden und Plutonium im Vergleich zu bestehenden thermischen Reaktoren
Geschlossener Kreislauf	Nitrid	Ausarbeitung zur Möglichkeit höherer Sicherheitsmargen

4.2.6 Neuere Entwicklungen zu Partitionierung und Transmutation

Die in der Forschungs- und Entwicklungsphase befindliche Methodik der Transmutation partitionierter, bestrahlter Kernbrennstoffe aus Kernkraftwerken wird allgemein als Möglichkeit angesehen, sowohl das Volumen der wärmeentwickelnden hochradioaktiven Abfälle als auch deren mittel- und langfristige Aktivität zu reduzieren. Mit diesen Maßnahmen wird die Erwartung verknüpft, dass der Aufwand für ein Endlager für wärmeentwickelnde Abfälle reduziert werden kann.

Bei dem der Transmutation vorangestellten Prozess der Partitionierung wird der abgebrannte Brennstoff je nach Verfahren aufgeteilt in Uran, Plutonium, Minore Aktinoide wie Neptunium, Americium und Curium und die übrig bleibenden Spalt- und Aktivierungsstoffe aus dem vorangegangenen Betrieb der Kernkraftwerke. Der Prozess der Transmutation wandelt die genannten Minoren Aktinoide und Plutonium in kurzlebige Spaltprodukte um, die als wärmeentwickelnde Abfälle mit geringerer Langzeitaktivität endgelagert werden müssen. Zusätzlich sind die abgetrennten Spalt- und Aktivierungsprodukte zu entsorgen. Das ebenfalls abgetrennte Uran und ggf. Plutonium stellen Wertstoffe dar, die prinzipiell als Brennstoffe weiterverarbeitet werden können, was das anfallende Abfallvolumen für ein Endlager weiter verringern würde. Weitere prozessabhängige Sekundärprodukte wie Betriebsabfälle müssen – klassifiziert nach ihrer Wärmeentwicklung – ebenfalls endgelagert werden.

In /MER 15/ wird die Frage erörtert, ob der nach der Abschaltung der Kernkraftwerke in Deutschland vorhandene Abfall an transuranen Elementen unter neutronenphysikalischen Annahmen transmutiert werden kann. Die Autoren legen dabei einen Zweiwege-

zyklus in Flüssigsalzreaktoren (Molten Salt Reactors - MSR) zu Grunde und wenden diesen auf die zu erwartende Abfallmenge an. Unter diesen Annahmen argumentieren sie, dass 99,8% der zu erwartenden Transuranelemente abgebrannt werden können. Dazu benötigen sie jedoch drei MSR-Reaktoren mit jeweils 3000 MW thermischer Leistung. Diese Reaktoren müssten ca. 45 Jahre im Transmutationsmodus betrieben werden, gefolgt von einer langjährigen Laufzeit im Abbrandmodus (bis zu 35 Jahre zur Erreichung der genannten 99,8% Abbrand der transuranelemente). Es bleibt zu bemerken, dass, wie die Autoren auch feststellen, noch ein erheblicher Forschungs- und Entwicklungsaufwand betrieben werden müsste, bis die notwendigen Reaktoren überhaupt entwickelt sind. So bleibt die Studie sehr theoretisch, legt jedoch prinzipiell unter neutronenphysikalischen Aspekten die Möglichkeit der Transmutation des in Deutschland vorhandenen Abfalls an Transuranen dar.

5 Spezielle Auswertungen kritikalitätsrelevanter Vorkommnisse

5.1 The Horizontal Band Saw Incident at Babcock & Wilcox, NOG-L

Einleitung

Der Vortrag „The Horizontal Band Saw Incident at Babcock & Wilcox, NOG-L“ /WET 13/ von Larry L. Wetzel, P. E., bei der Konferenz „ANS Topical Meeting NCSD 2013 - Criticality Safety in the Modern Era: Raising the Bar“, die vom 29. September bis 03. Oktober 2009 in Wilmington NC, USA stattfand, beschreibt und analysiert ein kritikalitätsrelevantes Vorkommnis, das sich am 15. Juli 2009 in der Brennelementfabrik in Lynchburg (Bundesstaat Virginia, USA) ereignete.

Zu dem Vorkommnis wurden früher bereits sowohl ein Eintrag in der Datenbank VIBS (Lynchburg, Ereignisnummer 09/004) als auch eine Kurzbewertung (Erfassungsnummer 80/2009) erstellt. Das Vorkommnis wurde dabei auf der INES-Skala mit INES = 1 bewertet. Der Konferenzbeitrag konkretisiert die verfügbaren Informationen zu diesem Ereignis und bietet tiefere Einblicke in das damalige Geschehen, weshalb er hier z. T. auf Basis der bereits bestehenden Kenntnisse zu dem Vorkommnis näher beleuchtet wird. Informationen aus dem VIBS-Eintrag wurden deshalb teilweise in diese Zusammenfassung übernommen.

Vorgeschichte

In der Brennelementfertigungsanlage der Babcock & Wilcox Nuclear Operations Group in Lynchburg (NOG-L) wird im Bereich der Uranrückgewinnung eine horizontale liegende Bandsäge zur Zerkleinerung von Brennelementkomponenten mit hochangereichertem Spaltstoff verwendet. Die zum Sägevorgang erforderliche Schneideflüssigkeit tropft unter dem Einfluss der Schwerkraft nach dem Sägen zusammen mit Sägeabfällen in den im Inneren der Säge und unterhalb des Schneidetisches befindlichen Sammelbehälter. Von dort aus wird die Schneideflüssigkeit mit einer Pumpe zurück zum Sägeblatt gepumpt. Somit durchläuft die Sägeflüssigkeit ein Umlaufsystem, bei dem eine Akkumulation von spaltstoffhaltigen Sägeabfällen im Sammelbehälter nicht ausgeschlossen werden kann.

Nach Stilllegung der alten Zerschneideeinrichtung wurden die Säge und die zugehörigen Komponenten abgebaut und eingelagert. Im Jahr 2003 sollte die Zerschneideeinrichtung in einem neuen Gebäude wieder aufgebaut und in Betrieb genommen werden. Dazu wurde die dafür erforderliche „Safety Evaluation Request“ (SER) mit der Nummer 03-087 ausgearbeitet. Die Anwendung der kritikalitätsrelevanten Anforderungen (NCS, Nuclear Criticality Safety) auf SER 03-087 führte zu den Maßgaben, dass das Umlaufsystem für die Schneideflüssigkeit aus Komponenten mit jeweils sicherer Geometrie zu bestehen habe und dass jeder bislang in der Säge eingebaute Sammelbehälter unbrauchbar (wörtlich „disable“) gemacht werden müsse. Im Zuge des Einbaus der neuen geometrisch sicheren Komponenten wurde der neue geometrisch sichere Sammelbehälter oberhalb des alten eingebaut und über eine Schlauchleitung mit einem horizontal liegenden, ebenfalls geometrisch sicheren Zylinder verbunden. Eine daran angeschlossene Pumpe sorgte für den Umlauf der Schneideflüssigkeit.

Im Frühjahr 2004 war die Planungsphase für das neue geometrisch sichere Umlaufsystem für die Schneideflüssigkeit abgeschlossen. Die Konstruktionspläne für den neuen geometrisch sicheren Sammelbehälter, der in den alten eingeschoben werden konnte, ohne ihn jedoch hermetisch zu versiegeln, wurden von der für die Umbaumaßnahmen zuständigen Fachabteilung nicht geprüft.

Am 21. Mai 2004 erteilte der NCS-Ingenieur den Planungen zur Umsetzung von SER 03-087 die Freigabe. Die Freigabedokumente beweisen, dass der NCS-Ingenieur den Anschluss des neuen Umlaufsystems für die Schneideflüssigkeit an die Anlage verifiziert hatte. Es erfolgte keine Überprüfung ob der alte Sammelbehälter – wie in den NCS-Festlegungen gefordert – unbrauchbar gemacht worden war. Zwar waren die Aus- und Eingänge des alten Sammelbehälters verschlossen aber nicht hermetisch versiegelt worden. Insbesondere beim Betrieb der Säge kam es dann durch Vibrationen zu Undichtigkeiten. Das System arbeitete in dieser Konfiguration seit der Freigabe von SER 03-087, also mehr als fünf Jahre lang. In dieser Zeit wurden Wartungs- und Reparaturarbeiten an der Säge durchgeführt, ohne dass dabei entdeckt wurde dass der alte Sammelbehälter nicht hermetisch abgeschlossen war.

Beschreibung

Am Nachmittag des 15. Juli 2009 entdeckten zwei Mitarbeiter der Zerschneideeinrichtung das Austreten einer öligen Flüssigkeit aus der Säge. Quelle dafür war offenbar der alte Sammelbehälter. Die Mitarbeiter informierten ihren Vorgesetzten, der die Arbeiten

einstellen ließ und den NCS-Ingenieur informierte. Nach dessen Eintreffen entfernte ein Mitarbeiter den neuen Sammelbehälter, und es zeigte sich nunmehr dass der alte, nicht geometrisch sichere Sammelbehälter mit Schneideflüssigkeit gefüllt war.

Eine nähere Bestandsaufnahme der vorliegenden Situation führte zu der Erkenntnis, dass sich in einem Behälter mit unsicherer Geometrie eine Menge ungefähr 53 dm³ Schneideflüssigkeit befand, die ihrerseits eine zunächst unbekannte Masse an hochangereichertem Uran (HEU) enthielt. Zudem standen alle für die Kritikalitätssicherheit relevanten Vorkehrungen (Items Relied On For Safety – IROFS) nicht mehr zur Verfügung. Um 19:45 Uhr wurde daraufhin in der Fabrik der Alarmzustand deklariert (Aktivierung des Emergency Operation Center, EOC).

Der Alarmzustand wurde nach fast fünf Stunden gegen 0:35 Uhr wieder aufgehoben, nachdem die Massenkontrolle für das HEU-Material in der Schneideflüssigkeit wiederhergestellt war. Die Massenkontrolle basierte auf der Entnahme von Proben und deren Analyse. Auf diese Weise wurde nachgewiesen, dass die in der Flüssigkeit vorhandene HEU-Masse bei ca. 1 % und somit deutlich unterhalb der kritischen Masse lag, bei einer Konzentration von ca. 0,18 g/l sowie einiger uranhaltiger Feinanteile in der Flüssigkeit. Schlämme befanden sich anders als zunächst befürchtet nicht in dem Behälter.

Ursachen

Ein Spezialistenteam der Aufsichtsbehörde Nuclear Regulatory Commission (NRC) wurde in die Anlage entsandt, um die näheren Umstände des Vorkommnisses zu untersuchen. Dabei kristallisierten sich schwerpunktmäßig zwei Ursachen auf der organisatorischen Ebene heraus:

Ursache 1: Die Konstruktionsunterlagen für den neuen Sammelbehälter wurden weder von einem NCS-Ingenieur gesichtet und freigegeben noch wurden sie in die SER-Dokumentation aufgenommen. Zudem gab es keine Belege, dass der neue Sammelbehälter Bestandteil des neuen, in sicherer Geometrie ausgeführten Umlaufsystems für die Schneideflüssigkeit werden sollte.

Ursache 2: Das Dokument zur Freigabe von SER 03-087 durch den NCS-Ingenieur enthielt bezüglich des alten Sammelbehälters die nicht eindeutige und unzureichende Anweisung „disable“. Eine genauer spezifizierte Aussage (z. B. „Ausbau und Entfernung des alten Sammelbehälters“) hätte entscheidend zur Vermeidung dieses Ereignisses beigetragen.

nisses beigetragen können. Allerdings bezog sich die Verifizierung des NCS-Ingenieurs zu SER 03-087 primär auf den Anschluss der Bandsäge an das neue Umlaufsystem mit sicherer Geometrie.

Behebung

Die Schneideflüssigkeit wurde vollständig aus dem alten Sammelbehälter entfernt und in insgesamt 31 Behälter mit jeweils 2,5l Fassungsvermögen abgefüllt. Dabei wurde die Schneideflüssigkeit mittels Gammaskopie untersucht und aus den Messergebnissen die Gesamtmasse an ^{235}U in der Schneideflüssigkeit zu 13,76g ^{235}U bestimmt. Die kleinste kritische Kugelmasse liegt für diese Spaltstoffparameter im Bereich von 1300g ^{235}U , also nahezu einen Faktor einhundert höher.

Auswirkung

Das Ereignis hatte keine radiologischen Auswirkungen auf das Betriebspersonal oder die Umgebung.

Maßnahmen gegen eine Wiederholung

Die folgenden organisatorischen Maßnahmen wurden eingeleitet bzw. bereits abgeschlossen:

- Entwicklung und Umsetzung von Modifikationen bei der Bandsäge, die in Übereinstimmung mit den in der ISA (Integrated Safety Analysis, ISA) festgelegten Sicherheitskontrollen sind.
- Durchführung einer alle Belange der Zerschneideeinrichtung abdeckenden Sicherheitsüberprüfung (integrated safety review, ISR). Diese Maßnahme ist bereits abgeschlossen.
- Implementierung einer neuen RWP (Radiation Work Permit) mit spezifischen Anweisungen des NCS-Ingenieurs um eine Übereinstimmung mit der bereits bestehenden Sicherheitsbasis des Systems zu gewährleisten.
- Entwicklung und Umsetzung eines Verfahrens zur Überprüfung von sicherheitsrelevanten Anordnungen durch andere Mitarbeiter (peer checking).

- Abschluss der Überprüfung der auf der SER basierenden Anforderungen an die Modifikationen im Hinblick auf die Effektivität der abrufbaren Dokumentation durch NCS-Mitarbeiter. Diese Maßnahme ist bereits abgeschlossen.

Bewertung

Durch die unkontrollierte Ansammlung von Spaltmaterial in einer unsicheren Geometrie bestand im Prinzip das Risiko einer Kritikalität. Das Ereignis wurde von der GRS als INES-Stufe 1 bewertet.

Weitere Angaben zu dem Ereignis finden sich auf den Websites der NRC unter

- 1) NRC Daily Event Report, Event Number 45207, (<http://www.nrc.gov/reading-rm/doc-collections/event-status/event/2009/20090716en.html#en45207>),
- 2) NRC Preliminary Notification PNO-II-09-002 vom 16.07.2009 (<http://www.nrc.gov/reading-rm/doc-collections/event-status/prelim-notice/2009/>),
- 3) NRC News II-09-038 vom 16.07.2009: 'NRC Activates Incident Response Centers After Alert Declared at B&W in Lynchburg, Va.' (<http://www.nrc.gov/reading-rm/doc-collections/news/2009/>),
- 4) NRC News II-09-042 vom 20.07.2009: 'NRC Sends Special Inspection Team to B&W in Lynchburg, Va.' (<http://www.nrc.gov/reading-rm/doc-collections/news/2009/>),
- 5) NRC News II-10-002 vom 12.01.2010: 'NRC Proposes \$32,500 Civil Penalty for Babcock & Wilcox in Lynchburg' (<http://www.nrc.gov/reading-rm/doc-collections/news/2010/>).

Bemerkung

Im Januar 2010 verurteilte die Aufsichtsbehörde NRC die Betreiberfirma Babcock & Wilcox zur Zahlung eines Bußgelds in Höhe von 32.500 US\$, da der Alarmzustand erst mehr als zwei Stunden nach Entdeckung der Flüssigkeitsansammlung aktiviert wurde (s. o.). Laut der jüngeren Quelle /WET 13/ hingegen kam es dagegen zu keinem Bußgeld.

5.2 Recent Events and a Comparison with Historical Accidents

5.2.1 Hintergrund und Motivation

Die Ausarbeitung "Recent Events and a Comparison with Historical Accidents" von Timothy Sippel (USNRC) /SIP 15/, vorgetragen bei dem „OECD Nuclear Energy Agency (NEA) Committee on the Safety of Nuclear Installations (CSNI) Working Group on Fuel Cycle Safety (WGFCS) International Workshop on Operational and Regulatory Aspects of Criticality Safety (ORACS)“ vom 19.–21. Mai 2015 in Albuquerque, New Mexico, USA, vergleicht drei kritikalitätsrelevante Vorkommnisse ohne tatsächlich eingetretene Kritikalitätsexkursion in US-amerikanischen Anlagen des Brennstoffkreislaufs aus dem ersten Jahrzehnt dieses Jahrhunderts mit elf Kritikalitätsunfällen (Exkursionen), die sich während der letzten fünf Jahrzehnte des zwanzigsten Jahrhunderts weltweit (USA, RF, GB, J) ereignet hatten.

Das Ziel jener Ausarbeitung war es, aufzuzeigen dass die Ursachen historischer Kritikalitätsunfälle potentiell auch heute noch in modernen Anlagen auftreten und dort zu kritikalitätsrelevanten Vorkommnissen führen. Deshalb sei die Studie vergangener Unfälle trotz deren Alters immer noch wertvoll und weiterhin zur Ableitung weiterer „Lessons Learned“ geeignet und auch notwendig. Auf diesen Aspekt wird in der Zusammenfassung in Kap. 5.2.5 vertieft eingegangen.

5.2.2 Methodik

Für den Vergleich wurde in /SIP 15/ folgende Methode angewandt: Es wurden drei Gruppen von Ereignissen gebildet, jeweils eine für jedes der drei betrachteten „modernen“ Vorkommnisse. Jedes der „historischen“ Vorkommnisse wurde entsprechend der Vergleichbarkeit mit dem jeweiligen „modernen“ Vorkommnis einer dieser Gruppen zugeordnet; dabei konnte in einem Fall ein „historisches“ Vorkommnis (Mayak, 10.12.1068) sowohl Gruppe 2 als auch 3 zugeordnet werden. Für jedes dieser somit insgesamt 15 Vorkommnisse wurden aus einem Pool von 15 möglichen Ursachen der oder diejenigen relevanten auslösenden Faktoren bestimmt und gruppenintern zusammengefasst. Zusätzlich wurde in jeder der Gruppen das „moderne“ Vorkommnis mit dem ihm im Hinblick auf die auslösenden Faktoren ähnlichste „historische“ Ereignis im Detail ausführlich diskutiert, und die Ursachen, warum es im „historischen“ Fall zu einer Exkursion kam und im „modernen“ nicht, entsprechend herausgearbeitet.

5.2.3 Datenbasis

In Tab. 5.1 sind die betrachteten Ereignisse nach Gruppen geordnet aufgelistet. Das erste Element jeder Gruppe ist das „moderne“ Vorkommnis (Anlagenname unterstrichen), dem vier bis fünf „historische“ Vorkommnisse folgen. Neben dem Namen und der Nationalität der betroffenen Anlage verzeichnet Tab. 5.1 außerdem das Datum, den VIBS-Titel und die INES-Einstufung des Vorkommnisses.

Da in Tab. 5.1 Daten aus zwei unterschiedlichen Quellen, nämlich der Präsentation von Timothy Sippel /SIP 15/ und der Vorkommnis-Datenbank VIBS /MES91/, zusammengeführt wurden, sind Abweichungen – in diesem Fall bei der exakten Bezeichnung der Anlage und beim Ereignisdatum – v. a. bei älteren Ereignissen in sowjetischen Anlagen möglich. In diesen Fällen wurden beide Versionen angegeben, wobei die VIBS-Daten in Klammern gesetzt wurden. Zu Titel und INES-Einstufung der Vorkommnisse sind in der GRS derzeit nur die VIBS-Daten verfügbar.

Tab. 5.1 Zusammenstellung der vergleichend betrachteten kritikalitätsrelevanten Vorkommnisse und Kritikalitätsunfälle

Anlage	Land	Datum	Titel	INES
Gruppe 1: <u>Columbia</u> „Incinerator Event“	USA	04.03.2004	Uranansammlung im Abgas-systems des Verbrennungs-ofens	1
Siberian Chemical Combine (Tomsk)	RF	14.07.1961 (14.08.1961)	Kritikalitätsstörfall	3
Siberian Chemical Combine (Tomsk)	RF	02.12.1963 (13.12.1963)	Kritikalitätsstörfall in einem Behälter mit hochangereicher-ter Uranlösung	3
Elektrostal	RF	03.11.1965 (13.11.1965)	Kritikalitätsstörfall durch An-sammlung von UO ₂ in einer Wasservorlage einer Pumpe	3
Windscale Works (Sellafield)	GB	24.08.1970	Kritikalitätsstörfall mit Plutoniumlösung	3
Novosibirsk Chemical (Nowosibirsk)	RF	15.05.1997	Kritikalitätsexkursion	3

Anlage	Land	Datum	Titel	INES
Gruppe 2: Erwin „Solution Spill“	USA	06.03.2006	Kritikalitätsrelevante Leckage von hochangereicherter Uranlösung	2
Oak Ridge Y-12 Plant	USA	16.06.1958	Kritikalitätsstörfall mit Uranlösung	3
Idaho Chemical (Idaho)	USA	25.05.1961	Kritikalitätsstörfall mit Uranlösung	3
Hanford	USA	07.04.1962	Kritikalitätsstörfall mit Plutoniumlösung	3
Mayak (Chelyabinsk)	RF	10.12.1968	Kritikalitätsstörfall beim Umfüllen von Plutoniumlösung in geometrisch unsicheren Tank	4
Gruppe 3: Lynchburg „Vacuum Cleaner Event“	USA	26.07.2007	Freisetzung von uranhaltigem Abwasser aus einem Staubsauger	1
Mayak (Chelyabinsk)	RF	02.01.1958	Kritikalitätsstörfall in einem Behälter mit hochangereicherter Uranlösung	4
United Nuclear Fuels (Wood River Junction)	USA	24.07.1964	Kritikalitätsunfall mit Uranlösung	4
Mayak (Chelyabinsk)	RF	10.12.1968	Kritikalitätsstörfall beim Umfüllen von Plutoniumlösung in geometrisch unsicheren Tank	4
JCO Fuel Fabrication Plant (Tokai JCO)	J	30.09.1999	Kritikalitätsunfall	4

Dabei wurden 15 mögliche auslösende Faktoren, die den Vorkommnissen zugeordnet wurden, identifiziert:

1. Anordnung nicht oder nicht hinreichend analysiert
(Upset not analyzed or improperly analyzed),
2. Anordnung als unglaublich nicht betrachtet
(Upset dismissed as incredible),
3. Prozess schlecht verstanden oder übermäßig komplex
(Process poorly understood or overly complex),

4. Neuer oder ungewöhnlicher Ablaufhergang
(New or unusual process evolution),
5. Hoher Verlass auf administrative Kontrollen
(Heavy reliance on administrative control),
6. Unzureichende Kommunikation
(Poor communication),
7. Beteiligung ungünstiger Geometrie
(Involved unfavorable geometry),
8. Komponentenversagen
(Equipment failure),
9. Schlechte(s) Konfigurationsmanagement/Änderungskontrolle
(Poor configuration management/change control),
10. Unzureichend gesicherte Vorrichtungen außer Betrieb
(Improperly secured out-of-service equipment),
11. Ungeeignete Arbeitsabläufe/Berücksichtigung menschlichen Verhaltens
(Inadequate procedure/poor human factors),
12. Keine vorgeschriebenen Vorgehensweisen/mündliche Anweisungen
(No procedures/Verbal instructions),
13. Vorgeschriebene Vorgehensweisen nicht befolgt/Hilfskonstruktionen
(Procedure not followed/Workaround),
14. Unsachgemäße Wartung/Überprüfung nach Wartung
(Improper maintenance/post-maintenance testing),
15. Material in unerwarteter Position/Anhäufung
(Material in unexpected location/accumulation).

Diese auslösenden Faktoren sind nicht immer voneinander unabhängig und können auch in Kombinationen auftreten. So können beispielsweise beim Versagen einer Komponente (Equipment failure) auch noch andere Faktoren wie Nichteinhaltung von vorgeschriebenen Vorgehensweisen (Procedure not followed/Workaround) oder/und Mängel bei Wartung und Instandsetzung (Improper maintenance/post-maintenance testing) involviert sein. Deshalb können in der Regel jedem Vorkommnis mehrere auslösende Faktoren zugeordnet werden.

5.2.4 Vergleichende Bewertung der betrachteten Ereignisse und Unfälle

5.2.4.1 Auswertung für die erste Gruppe „Incinerator Event“

Beschreibung der untersuchten Vorkommnisse

Das „moderne“ Vorkommnis der ersten Gruppe ereignete sich am 04.03.2004 in der Brennelementefabrik Columbia.

- Betreiber: Westinghouse Electric Co. LLC
- Standort: Docket No. 70-1151, Columbia, Bundesstaat South Carolina
- Zweck: Herstellung fertiger DWR-Brennelemente aus Uranhexafluorid UF₆
- Kapazität: 1150 tU/a
- Betrieb: seit 1969

Beschreibung des Vorkommnisses: Bei einer Überprüfung der Aufzeichnungen des Verbrennungsofens stellte sich heraus, dass sich im Abgassystem mehr als die zu erwartende Menge an uranhaltigem Material akkumuliert hatte. Nachfolgende Untersuchungen ergaben, dass auch in der Asche des Ofens erhöhte Urankonzentrationen vorlagen.

Ursache: Unbekannt.

Auswirkungen: Keine radiologischen Auswirkungen.

Bewertung: INES-Stufe 1 (GRS-Bewertung); eine Kritikalitätsexkursion war aufgrund der geringen Mengen von Spaltmaterial nicht möglich.

Bemerkung: Bei der Sicherheitsanalyse des Abgassystems wurde davon ausgegangen, dass eine Kritikalität wegen des geringen Übertrags von Uran aus dem Ofen in die Abgasstrecke nicht möglich ist. Dabei wurde unterstellt, dass die Urankonzentrationen im Abgassystem deutlich unterhalb des kritischen Grenzwerts liegen.

In Tab. 5.2 nach /SIP 15/ werden jedem Ereignis der Gruppe 1 die jeweiligen auslösenden Faktoren zugeordnet.

Tab. 5.2 Auslösende Faktoren für Ereignisse der Gruppe 1

Causal Factors	The Incinerator Event	Siberian Chemical Combine, 14 July 1961	Siberian Chemical Combine, 2 Dec 1963	Electrostal, 3 Nov 1965	Windscale Works, 24 Aug 1970	Novosibirsk Chemical, 15 May 1997
Upset not analyzed or improperly analyzed						
Upset dismissed as incredible						
Process poorly understood or overly complex						
New or unusual process evolution						
Heavy reliance on administrative control						
Poor communication						
Involved unfavorable geometry						
Equipment failure						
Poor configuration management/change control						
Improperly secured out-of-service equipment						
Inadequate procedure/poor human factors						
No procedures/Verbal instructions						
Procedure not followed/Workaround						
Improper maintenance/post-maintenance testing						
Material in unexpected location/accumulation						

Aus Tab. 5.2 wird ersichtlich, dass für jedes der untersuchten Ereignisse mehrere auslösende Faktoren (zwischen drei und acht) erkannt wurden. Von den acht auslösenden Faktoren beim „modernen“ Vorkommnis (Incinerator Event) werden auch einige den „historischen“ Vorkommnissen der ersten Gruppe zugeordnet, die meisten (fünf) beim Vorkommnis vom 15.05.1997 in Novosibirsk Chemical (Nowosibirsk). Deshalb wird in der Gruppe eins dieses „historische“ Vorkommnis mit dem „modernen“ Vorkommnis verglichen.

Beschreibung des Vorkommnisses: Am 15. Mai 1997 kam es in einer Fabrik in Nowosibirsk zu einer Kritikalitätsexkursion. In dieser Anlage werden Brennelemente mit 90% Urananreicherung für Forschungsreaktoren hergestellt. Die röhrenförmigen Brennelemente werden aus einer Uran-Aluminium-Legierung gefertigt, die man durch Walzen und Sintern von Metallpulver gewinnt. Zur Oberflächenbehandlung werden die Brennelemente in einer Lauge abgeätzt. Diese gelangt anschließend in einen Sammelbehälter für flüssige Reststoffe, in dem es zur Kritikalität kam. Der 'Slab'-Behälter (Dimensionen: 3 m x 2 m x 0,1 m mit abgeschrägtem Boden) stand in einem ca. 30 m² großen, nicht betretbaren Raum.

Ursachen: Die Informationen zu diesem Vorkommnis sind unvollständig und teilweise widersprüchlich. Nach Angaben von Vertretern der russischen Aufsichtsbehörde Gosatomnadzor (GAN) stellte die Anlage früher nur Brennelemente bis zu 36% Uran-Anreicherung her; zum Zeitpunkt der Umstellung auf 90% Anreicherung existierte Gosatomnadzor noch nicht als eigenständige Aufsichtsbehörde. Offenbar war der 'Slab'- Behälter für die geänderten Betriebsbedingungen nicht mehr geeignet. Als weitere mögliche Ursache für die Exkursion nennt Gosatomnadzor den verstopften Abfluss des Behälters, der nach Ansicht der Behörde als Auflösebehälter verwendet wurde. Vermutlich führte der verstopfte Abfluss zu einem Anstieg des Flüssigkeitspegels im Behälter; schließlich wurde das kritische Volumen überschritten und es trat Kritikalität ein. Als Fazit kann man ziehen dass ein Mitauslöser für die Exkursion somit die unerlaubte Verwendung des Behälters war zu einem Zweck, für den er nicht ausgelegt wurde. Diese Schlussfolgerung wird durch das Ergebnis einer späteren Untersuchung gestützt, in welcher an der Behälterinnenseite eine ca. 4 cm dicke Ablagerungsschicht gefunden wurde; der Behälter war seit über 10 Jahren in Betrieb und für eine wiederkehrende Prüfung nicht zugänglich gewesen.

Auswirkungen: Unmittelbar nach der Exkursion wurde in 0,5 m Abstand von der Behälterwand eine Dosisleistung von etwa 100 mSv/hr (10 rem/hr) gemessen. Der Behälter blieb intakt, Flüssigkeit wurde nicht freigesetzt. Die Spaltzahl wurde auf $10E+14$ bis $10E+15$ geschätzt. Das russische Nuklearministerium machte in Zusammenhang mit dieser Exkursion die folgenden Aussagen:

- Die Strahlungspegel außerhalb der Anlage und im größten Teil der Anlage blieben im Normalbereich.
- Das gesamte Personal wurde einer medizinischen Untersuchung unterzogen.
- Niemand wurde verletzt oder kontaminiert.
- Es fand keine Freisetzung von Radioaktivität in die Umgebung statt.

Allerdings sollen anderen Berichten zur Folge einige Mitarbeiter ernstlich kontaminiert oder bestrahlt worden sein.

Bewertung: INES-Stufe 3 (GRS-Bewertung).

Gemeinsame auslösende Faktoren

Als gemeinsame auslösende Faktoren wurden im Vortrag identifiziert:

- Upset not analyzed or improperly analyzed,
- Upset dismissed as incredible,
- Involved unfavorable geometry,
- Poor configuration management/change control and
- Material in unexpected location/accumulation.

Die aufgeführten fünf auslösenden Faktoren sind nicht gänzlich voneinander unabhängig, sondern bedingen sich teilweise gegenseitig, wie die nachfolgenden Betrachtungen zeigen.

Beim „modernen“ Vorkommnis akkumulierte im Abgassystem mehr als die maximal angenommene Menge an uranhaltigem Material und auch in der Asche des Ofens kam es zu höheren Urankonzentrationen als erwartet. Weil mit beidem nicht gerechnet wurde, lag weder eine sichere Geometrie vor noch wurden regelmäßige Inspektionen angeordnet und durchgeführt. So bedingte eine unzureichende Sicherheitsanalyse indirekt die restlichen auslösenden Faktoren.

Auch dem „historischen“ Vorkommnis liegt eine mangelhafte Sicherheitsanalyse zugrunde. In der Anlage wurde die Anreicherung der hergestellten Brennelemente von 36 % auf 90 % umgestellt als die jetzt zuständige Aufsichtsbehörde Gosatomnadzor noch nicht existierte und somit keine zuverlässige behördliche Überwachung der Sicherheitsanalysen und –konzepte gewährleistet war. Die missbräuchliche Verwendung eines Sammelbehälters als Auflösebehälter bedingte die unsichere Geometrie, die Ablagerungen im Behälter und der verstopfte Abfluss führten zur unerwarteten Spaltstoffakkumulation, welche noch durch die Unzugänglichkeit des Behälters und die damit nicht möglichen Inspektionen begünstigt wurde.

Zusammenstellung kritikalitätsrelevanter Aspekte für das „moderne“ und das „historische“ Vorkommnis

Nachdem im vorhergegangenen Unterkapitel die gemeinsamen auslösenden Faktoren für das „moderne“ und das „historische“ Vorkommnis betrachtet wurden, sollen hier die

Ursachen aufgelistet werden, warum es beim „historische“ Vorkommnis zu einer Kritikalitätsexkursion kam und beim „modernen“ nicht.

Entscheidende Faktoren für das Entstehen einer Kritikalitätsexkursion sind neben der Geometrie und der Moderation die Anreicherung des Spaltstoffs. Hier besteht der entscheidende Unterschied zwischen den beiden Vorkommnissen: Während die Brennelementfabrik Columbia Brennelemente für Leistungsreaktoren im kommerziellen Einsatz mit einer typischen Anfangsanreicherung von 5 % U235 herstellt, produzierte die Anlage Novosibirsk Chemical Brennelemente für Forschungsreaktoren mit Anreicherungen von bis zu 90 %. Damit liegt beim „historischen“ Vorkommnis in Novosibirsk Chemical der deutlich reaktivere Spaltstoff vor.

Auch die Moderationsverhältnisse der beiden Vorkommnisse unterscheiden sich signifikant. Der für eine Kritikalitätsexkursion relevante Spaltstoff liegt beim „modernen“ Vorkommnis in Form von uranhaltiger trockener Asche und beim „historischen“ Vorkommnis als Suspensionen von Uranoxid und Wasser vor. Somit kann das Moderationsverhältnis beim „modernen“ Vorkommnis als wesentlich kleiner als beim „historischen“ Vorkommnis angenommen werden.

Zusammenfassend kann festgehalten werden, dass die Kombination aus reaktiverem Spaltstoff und besserer Moderation beim „historischen“ Vorkommnis zur Kritikalitätsexkursion führte.

5.2.4.2 Auswertung für die zweite Gruppe „Solution Spill“

Beschreibung der untersuchten Vorkommnisse

Das „moderne“ Vorkommnis der zweiten Gruppe ereignete sich am 06.03.2006 in der Brennelementefabrik Erwin, in der hochangereichertes Uran (HEU) zu Brennelementen für Schiffsreaktoren verarbeitet wird.

- Betreiber: Nuclear Fuel Services, Inc.
- Standort: Docket No. 70-143, Erwin, Bundesstaat Tennessee
- Zweck: Herstellung von Schiffsantriebs- und HTR-Brennstoff, Spaltstoffrückgewinnung
- Betrieb: seit 1957

Bemerkungen: Die Teilanlage für LWR-UO₂-Brennstoff ist stillgelegt

Beschreibung: Im Zusammenhang mit der Errichtung eines neuen Prozesssystems wurde eine Handschuhbox, die mit Sackfiltern ausgestattet war, an eine Rohrleitung zum Transfer von HEU-Lösung angeschlossen. Bei Beginn der Verarbeitung der HEU-Lösung entschied sich der Betreiber, die Handschuhbox nicht zu verwenden, ließ die Verbindung mit der Transferleitung jedoch bestehen. Zuvor war ein Systemdiagramm aktualisiert worden, wobei versehentlich ein Probenahmeventil fälschlicherweise als Kegelventil gekennzeichnet worden war. Das Probenahmeventil leitete Flüssigkeit in eine Probenahmeleitung, ohne den Zufluss zur Handschuhbox zu stoppen. Bereits mehrmals hatten zuvor Arbeiter über eine sichtbare gelbliche Flüssigkeit in der Handschuhbox berichtet. Den Meldungen wurde jedoch nicht gründlich nachgegangen, da man die Flüssigkeit für Natururanlösung aus der Testphase des neuen Prozesssystems hielt. Der Betreiber entschied, die unbenutzte Handschuhbox an einen anderen Platz zu bringen. Beim Öffnen der Filtergehäuse beobachteten die Arbeiter ebenfalls die gelbliche Flüssigkeit und erhielten die Anweisung, diese zu entfernen. Dies wurde auch durchgeführt. Anschließend wurde das System jedoch nicht richtig abgedichtet. Dies führte dazu, dass beim nächsten Transfer von HEU-Lösung durch die Rohrleitung etwa 35 Liter der Lösung in die Handschuhbox ausliefen. Als erste Maßnahme zur Verhinderung einer kritischen Masse in der Umschließung sind Öffnungen vorhanden, damit bei Leckagen die Flüssigkeit auf den Boden auslaufen kann. Da die Umschließung als nicht mehr in Betrieb galt, war jedoch nie geprüft worden, ob die Auslassöffnungen auch wirklich durchlässig und frei von Schmutz waren. Die Flüssigkeit breitete sich auf dem Boden aus und lief auch unter eine Tür. Ein Arbeiter im Nebenraum bemerkte die Lache und alarmierte seine Kollegen. Als weitere Maßnahme zur Verhinderung einer kritischen Masse sollte der Fußboden völlig eben sein. Bei der Nachuntersuchung des Zwischenfalls wurde jedoch an einer Stelle des Bodens in der Nähe der Tür eine Vertiefung gefunden, durch die die Kritikalitätssicherheit eingeschränkt wurde. Der Betreiber stoppte alle Arbeiten zur HEU-Verarbeitung in dem betroffenen Prozessbereich. Vor einer Wiederinbetriebnahme müssen angemessene Abhilfemaßnahmen vorgenommen und von den Behörden genehmigt werden.

Ursache: Mehrere Ursachen trugen zu dem Ereignis bei:

- Früher beobachteten Undichtigkeiten war vom verantwortlichen Personal keine ausreichende Beachtung geschenkt worden.
- In einem Diagramm waren Ventile falsch bezeichnet worden.

- Instandhaltungsmaßnahmen und wiederkehrende Prüfungen waren nicht sachgemäß durchgeführt worden.
- Der Fußboden wies Unebenheiten auf und hätte dadurch die Akkumulation von Spaltmaterial ermöglichen können.

Auswirkungen: Oberflächenkontamination auf dem Fußboden durch ausgelaufene Uranlösung. Offenbar keine Auswirkungen auf Mitarbeiter und Umgebung.

Bewertung: INES-Stufe 2; die Gesamtmenge der transferierten Flüssigkeit hätte ausgereicht, um unter ungünstigeren Umständen eine Kritikalitätsexkursion in der Handschuhbox oder in der Bodenvertiefung hervorzurufen. In diesem Fall wäre sehr wahrscheinlich mindestens ein Arbeiter durch Strahlungseinwirkung gesundheitlich schwer geschädigt worden oder gar zu Tode gekommen.

In Tab. 5.3 nach /SIP 15/ werden jedem Ereignis der Gruppe 2 die jeweiligen auslösenden Faktoren zugeordnet.

Tab. 5.3 Auslösende Faktoren für Ereignisse der Gruppe 2

Causal Factors	The Solution Spill	Oak Ridge, 16 June 1958	Idaho Chemical, 25 January 1961	Hanford, 7 April 1962	Mayak, 10 Dec 1968
Upset not analyzed or improperly analyzed					
Upset dismissed as incredible					
Process poorly understood or overly complex					
New or unusual process evolution					
Heavy reliance on administrative control					
Poor communication					
Involved unfavorable geometry					
Equipment failure					
Poor configuration management/change control					
Improperly secured out-of-service equipment					
Inadequate procedure/poor human factors					
No procedures/Verbal instructions					
Procedure not followed/Workaround					
Improper maintenance/post-maintenance testing					
Material in unexpected location/accumulation					

Wie aus Tab. 5.3 ersichtlich ist, wurden für jedes der untersuchten Ereignisse mehrere auslösende Faktoren (zwischen fünf und zehn) identifiziert. Von den neun auslösenden Faktoren beim „modernen“ Vorkommnis (Solution Spill) werden auch einige den „historischen“ Vorkommnissen der zweiten Gruppe zugeordnet, die meisten (neun) dem Vorkommnis vom 16.06.1958 in Oak Ridge. Deshalb wird in der Gruppe drei dieses „historische“ Vorkommnis mit dem „modernen“ Vorkommnis verglichen.

Beschreibung des „historischen“ Vorkommnisses: In der Anlage Y-12 wurden Komponenten aus hoch angereichertem Uran gefertigt. Der Zwischenfall ereignete sich in einem Anlagenteil, in dem hoch angereichertes Uran durch ein chemisches Auflösungsverfahren aus Fertigungsschrott zurückgewonnen wird. Der Verfahrensablauf sieht vor, dass die uranhaltige Lösung in Behältern mit vermeintlich sicherer Geometrie aufbewahrt wird. Im Rahmen einer Materialbilanzierung wurde eine Reihe von Lagerbehältern entleert, demontiert und gereinigt. Nach einem Dichtigkeitstest mit Wasser wurden sie wieder zusammengebaut; das Wasser sollte anschließend in ein 208-Liter-Fass abgelassen werden. Vor der Durchführung des Dichtigkeitstest wurde übersehen, dass sich aufgrund eines undichten Ventils, mit dessen Hilfe die Tanks von den vorherigen Prozessschritten abgesperrt werden können, Uranlösung im Kollektorrohr unter den Tanks angesammelt hatte. In den Tanks und im Kollektorrohr war die Lösung noch unterkritisch. Nach dem Ablassen der Lösung in das Fass mit unsicherer Geometrie und dem anschließenden Zufluss von Wasser war dies jedoch nicht mehr der Fall. Eine erste Kritikalitätsexkursion ereignete sich mit etwa 2,1 kg Uran-235 in 56 Litern Lösung. Eine Folge von weiteren Exkursionspulsen produzierte insgesamt $1,3E+18$ Spaltungen über einen Zeitraum von etwa 2,8 Minuten, bevor das weiterhin zufließende Wasser die Lösung auf einen unterkritischen Wert verdünnt hatte. Obwohl die Höhe des ersten und stärksten Pulses nicht aufgezeichnet wurde, ließen spätere Exkursions-Experimente einen wahrscheinlichen Wert von 6 bis $7E+16$ Spaltungen vermuten. Ein "blauer Blitz" zu Beginn wurde beobachtet, doch gab es keinen Hinweis darauf, dass die Lösung aus dem offenen Behälter heraus gespritzt war.

Ursache: Defektes Ventil in Verbindung mit Auslegungsfehlern.

Auswirkungen: Fünf Personen wurden sehr stark bestrahlt und drei weitere bedeutend. Die beteiligten Personen erhielten folgende Ganzkörperdosen: 3,65 Sv in 2 m Abstand, 3,39 Sv in etwa 5,5 m Abstand, 3,27 Sv in etwa 4,9 m Abstand, 2,70 Sv in etwa 4,6 m Abstand, 2,36 Sv in etwa 6,7 m Abstand, 0,685 Sv in 9,4 m Abstand, 0,685 Sv in 11 m Abstand und 0,228 Sv in 15,2 m Abstand. Diese Dosen und Entfernungen vom Fass

können nicht im Einzelnen miteinander verglichen werden, weil ein Teil der Bestrahlung auch während der Räumung eintrat. Die erste Person, die dem Fass am nächsten stand und die sehr schnell ihren Standort verließ, war für etwa 5 s der Strahlung des ersten Impulses ausgesetzt. Andere Personen, die auf den Räumungsalarm reagierten, wurden vermutlich bis 15 s bestrahlt; das entspricht ungefähr der Zeit zwischen den ersten beiden Impulsen. Offensichtlich ist, dass die Bestrahlung durch die sofortige Räumung der Anlage begrenzt wurde.

Vorkehrungen gegen eine Wiederholung: Transferleitungen, die möglicherweise spaltbares Material enthielten, wurden, sobald sie nicht mehr benötigt wurden, demontiert und nicht nur abgesperrt. Nur geometrisch sichere Behälter wurden zur Verwendung in der Anlage zugelassen. Alle Lösungen und sonstiges Material wurden so behandelt, als wenn sie hoch angereichertes Uran enthielten. Die Anforderungen an schriftliche Betriebsanweisungen wurden geprüft und im Bedarfsfall revidiert. Eine umfassende Störfallanalyse insbesondere hinsichtlich der Kritikalitätssicherheit wurde veranlasst.

Bewertung: INES-Stufe 3 (GRS-Bewertung); dieser Kritikalitätsunfall ist bedeutsam in Bezug auf Interventionen, bei denen Teilbereiche gewartet werden und anderes spaltbares Material in Form von Lösungen enthalten. Hier ist in jedem Fall durch administrative und konstruktive (wenn möglich keine Niveauunterschiede), sowie direkte technische Maßnahmen (Abtrennung der Leitungen) ein ungewolltes Auslaufen von Lösungen mit spaltbarem Material in Behälter oder Fässer zu verhindern. Wenn möglich, ist die geometrische Sicherheit der Gefäße für die maximal vorkommende Anreicherung zu fordern. Durch das doppelte Störfallprinzip sind heute derartige Unfälle weitgehend ausgeschlossen.

Gemeinsame auslösende Faktoren

Als gemeinsame auslösende Faktoren wurden im Vortrag identifiziert:

- Upset not analyzed or improperly analyzed,
- Poor Communication,
- Involved unfavorable geometry,
- Equipment failure,
- Poor configuration management/change control,

- Improperly secured out-of-service equipment,
- Procedure not followed/Workaround,
- Improper maintenance/post-maintenance testing and
- Material in unexpected location/accumulation.

Im Folgenden soll versucht werden, die im Vortrag identifizierten auslösenden Faktoren mit den Informationen aus den hier verfügbaren und aufgeführten Vorkommnistexten in Bezug zu setzen.

Upset not analyzed or improperly analyzed: Die mehrstufigen Ereignisketten, die zu beiden Vorkommnissen führten, waren nur schwer vorherzusehen und deswegen auch nicht in der Sicherheitsanalyse berücksichtigt worden.

Poor Communication: Unzureichender Informationsaustausch hat bei beiden Vorkommnissen eine Rolle gespielt. Einfache Nachfragen hätten möglicherweise sowohl die ungeprüfte Verwendung des für die Drucktests der Lagerbehälter erforderlichen Absperrventils beim „historischen“ Vorkommnis als auch die Verwechslung von Kegel- und Probenahmeventil beim „modernen“ Vorkommnis verhindern helfen.

Involved unfavorable geometry: Die unsichere Geometrie beim „historischen“ Vorkommnis war durch das 208-Liter-Fass gegeben, in welches das zur Dichtigkeitsprüfung der Lagerbehälter verwendet Wasser zusammen mit der in das Kollektorrohr fehlgeleiteten Uranlösung eingefüllt wurde. Beim „modernen“ Vorkommnis ist der Aspekt der unsicheren Geometrie unter dem Aspekt einer potenziellen Gefährdung zu sehen. Sowohl bei dem mit 35 Liter HEU-Lösung gefluteten Handschuhkasten als auch auf dem unebenen Fußboden, auf den die Lösung beim Abfließen aus dem Handschuhkasten gelangte, hatte das Risiko einer kritikalitätsrelevanten Akkumulation von Spaltstoff bestanden.

Equipment failure: Beim „historischen“ Vorkommnis lag ein technisches Versagen eines Ventils vor, sodass es zu einer irregulären und unbemerkten Akkumulation von Uranlösung im Kollektorrohr kam. Beim „modernen“ Vorkommnis wurde im aktualisierten Systemdiagramm ein Kegelventil mit einem Probenahmeventil verwechselt. Als Konsequenz davon gelangte über die Probenahmeleitung HEU-Lösung in den Handschuhkasten.

Poor configuration management/change control: Mängel bei der Handhabung und Kontrolle der Konfiguration von Komponenten ist bei beiden Vorkommnissen feststellbar. Beim „historischen“ Vorkommnis wurden die Druckprüfungen der Lagerbehälter mit einer nicht getesteten Konfiguration vorgenommen und das undichte Absperrventil führte zur Akkumulation von Uranlösung. Beim „modernen“ Vorkommnis blieb die Verwechslung von Kegel- und Probenahmeventil bei der Aktualisierung des Systemdiagramms unentdeckt und als Folge daraus kam es zum Fehltransfer von HEU-Lösung in den Handschuhkasten.

Improperly secured out-of-service equipment: Beim „historischen“ Vorkommnis kann die Entladung, Zerlegung und Reinigung der Lagerbehälter als zeitlich begrenzte Außer-Dienst-Stellung angesehen werden. Somit können der ungeplante Transfer der Uranlösung in das Kollektorrohr beim Entladen der Behälter und die sich daraus ergebenden Folgen diesem auslösenden Faktor zugeordnet werden. Im Fall des „modernen“ Vorkommnisses wurde der außer Dienst gestellte Handschuhkasten nicht ordnungsgemäß gesichert (mangelnde Abdichtung, Trennung von der HEU-Transferleitung).

Procedure not followed/Workaround: Der Verfahrensablauf beim „historischen“ Vorkommnis sieht vor, dass die uranhaltige Lösung in Behältern mit sicherer Geometrie aufbewahrt wird, was aufgrund des Ventilversagens nicht mehr möglich war. Der außer Dienst gestellte Handschuhkasten im Fall des „modernen“ Vorkommnisses hätte – was nicht geschehen ist - unter anderem gegen die unkontrollierte Zu- und Abfuhr von Spaltstofflösung gesichert werden müssen.

Improper maintenance/post-maintenance testing: Die Entladung, Zerlegung und Reinigung der Lagerbehälter stellt eine Wartungsmaßnahme an den Behältern dar. Deshalb können der ungeplante Transfer der Uranlösung in das Kollektorrohr beim Entladen der Behälter und die sich daraus ergebenden Folgen dem auslösenden Faktor Mängel bei Wartungsmaßnahmen zugeordnet werden. Die Erstellung eines aktualisierten Systemdiagramms beim „modernen“ Vorkommnis kann als Wartungsmaßnahme betrachtet werden. Somit können die dabei erfolgten Verwechslungen von Kegel- mit Probenahmeventil und die daraus resultierenden Folgen ebenfalls den Mängeln bei Wartungsmaßnahmen zugerechnet werden.

Material in unexpected location/accumulation: Beim „historischen“ Vorkommnis handelt es sich dabei um die Ansammlung von Uranansammlung im Kollektorrohr und im 208-

Liter-Fass und beim "modernen" Vorkommnis um die Akkumulation von HEU-Lösung im Handschuhkasten und im Unebenheiten auf dem Fußboden.

Zusammenstellung kritikalitätsrelevanter Aspekte für das „moderne“ und das „historische“ Vorkommnis

Neben den vielen kritikalitätsrelevanten Gemeinsamkeiten dieser beiden Vorkommnisse, wie

- Beteiligung hochangereicherter Spaltstofflösung,
- Unbeabsichtigter Transfer der Lösung wegen Problemen mit einem Ventil,
- Unsachgemäße Abtrennung ausgesonderter Gerätschaften.
- Durchführung nichtanalysierter Prozessabläufe,
- Beeinträchtigungen beim anlageninternen Informationsfluss und
- Beteiligung von unsicherer Geometrie (208-Liter-Fass beim „historischen“ Vorkommnis und Handschuhkasten sowie Einsenkungen im Fußboden beim „modernen“ Vorkommnis)

besteht ein großer Unterschied zwischen ihnen darin, dass sich das „historische“ Vorkommnis im Rahmen einer außergewöhnlichen Operation (Reinigung, Drucküberprüfung und Zusammenbau von Lagerbehältern) und das „moderne“ Vorkommnis im Verlauf einer Routineoperation (Transfer von HEU-Lösung) ereigneten. Da alle Komponenten – auch der mittlerweile ausgesonderte Handschuhkasten – dafür sicherheitstechnisch ausgelegt waren, kam es nicht einmal beim Fehltransfer zu keiner kritikalitätsrelevanten Ansammlung von HEU-Lösung. Als glückliche Umstände erwiesen sich dabei die Fakten, dass die HEU-Lösung durch die Auslassöffnungen des offenbar nicht mehr gewarteten Handschuhkastens auf den Fußboden ablaufen konnte und sich dort auch nicht in Einsenkungen sammelte.

5.2.4.3 Auswertung für die dritte Gruppe „Vacuum Cleaner Event“

Beschreibung der untersuchten Vorkommnisse

Das „moderne“ Vorkommnis der dritten Gruppe ereignete sich am 26.07.2007 in der Brennelementefabrik Lynchburg.

- Betreiber: Babcock & Wilcox Nuclear Operations Group, Inc. (früher: AREVA NP, Inc.)
- Zweck: Herstellung von LWR-Brennelementen aus schwach angereichertem UO_2 -Pulver (geliefert durch General Electric)
- Kapazität: 400 tU/a
- Betrieb: seit 1970

Bemerkungen: Auf demselben Gelände sind noch eine Fertigungsanlage für Schiffsantriebsbrennstoff und Forschungseinrichtungen untergebracht.

Beschreibung: Am 26. Juli 2007 berichtete der Betreiber BWX Technologies, Inc. der Aufsichtsbehörde NRC über ein besonderes Vorkommnis in seiner Anlage Mount Athos in Lynchburg. Ein Staubsauger, der uranhaltige Abwässer enthielt, kippte um, als er zu einem anderen Ort gebracht werden sollte. Zwischen 18 und 22 Liter der darin enthaltenen Flüssigkeit mit einem sehr geringen Gehalt an Uran wurden aus dem Behälter freigesetzt. Im betroffenen Anlagenteil wird hochangereichertes Uran (HEU) sowohl in fester als auch in flüssiger Form verarbeitet und gelagert. Zur Reinigung der Böden in kontaminierten Bereichen wird Reinigungsflüssigkeit ausgebracht, die Böden anschließend mit einer Rotationsbürste geschrubbt und die Flüssigkeit mit einem handelsüblichen Industriestaubsauger entfernt. Die in der Anlage verwendeten Staubsauger haben ein Volumen von etwa 54 Litern und sind mit neutronenabsorbierenden Raschig-Ringen gefüllt. Auf diese Weise können von diesen Staubsaugern HEU-Lösungen mit U^{235} -Konzentrationen bis zu 400 g U/l aufgenommen werden. Der Transport eines Staubsaugers zwischen verschiedenen Einsatzorten erfolgt mit einem Gabelstapler. Zur Absicherung gegen eine Leckage der aufgenommenen Flüssigkeit wird der Staubsauger vorher in zwei große, den Staubsauger vollkommen einhüllende Kunststoffbeutel (Fassungsvermögen ca. 208 Liter) eingebracht. Der betroffene, teilweise mit HEU-Lösung (Urankonzentration kleiner als ein Gramm pro Liter) gefüllte Staubsauger wurde auf einer Zinke eines Gabelstaplers unter Mithilfe eines Mitarbei-

ters zum neuen Einsatzort gebracht. Beim Passieren einer Schräge vor einer Türöffnung fiel der Staubsauger vom Gabelstapler. Eine große Anzahl der Raschig-Ringe ergoss sich aus dem Staubsauger in die innere Kunststofftasche und ein Großteil des Staubsaugerinhalts (zwischen 18 und 22 Liter) in den Zwischenraum zwischen innerer und äußerer Kunststofftasche und war somit von den Raschig-Ringen getrennt. Wegen der kleinen Menge an spaltbarem Material bestand zu keinem Zeitpunkt die Gefahr einer Kritikalität. Es wurde auch niemand verletzt. Der Fertigungsbetrieb in der Anlage wurde nicht beeinträchtigt.

Bemerkung: Nachfolgende Untersuchungen des Vorkommnisses führten zu folgenden Ergebnissen:

- Die Urankonzentrationen in den Staubsaugern wurden nicht durch Kontrollen überwacht.
- Staubsauger mit Raschig-Ringen wurden auch bei vollständiger Befüllung mit HEU-Lösung transportiert,
- Radiologische Kontrollverfahren wurden nicht regelmäßig durch Mitarbeiter der Abteilung für Kritikalitätssicherheit überprüft.
- Die Mitarbeiter der Abteilung für Kritikalitätssicherheit hatten keine Kenntnis davon, dass Staubsauger auch bei voller Befüllung transportiert wurden.
- Seitens des Betreibers waren keine Analysen oder Kontrollen des Transportvorgangs der Staubsauger unter Aspekten der Kritikalitätssicherheit erfolgt.

Als Konsequenz aus dem Ereignis belegte die NRC den Betreiber mit einer Geldstrafe in Höhe von 32.500 Dollar.

Ursache: Vermutlich Unachtsamkeit (menschliches Fehlverhalten).

Auswirkungen: Das Ereignis hatte keine Auswirkungen auf das Betriebspersonal oder die Umgebung.

Bewertung: INES-Stufe 1 / Abweichung von den zulässigen Bereichen für den sicheren Betrieb der Anlage (GRS-Bewertung).

In Tab. 5.4 nach /SIP 15/ werden jedem Ereignis der Gruppe 3 die jeweiligen auslösenden Faktoren zugeordnet.

Tab. 5.4 Auslösende Faktoren für Ereignisse der Gruppe 3

Casual Factor	Vacuum Cleaner Event	United Nuclear Fuels, 24 July 1964	Mayak, 2 Jan 1958	Mayak, 10 Dec 1968	JCO Fuel Fabrication Plant, 30 Sept 1999
Upset not analyzed or improperly analyzed					
Upset dismissed as incredible					
Process poorly understood or overly complex					
New or unusual process evolution					
Heavy reliance on administrative control					
Poor communication					
Involved unfavorable geometry					
Equipment failure					
Poor configuration management/change control					
Improperly secured out-of-service equipment					
Inadequate procedure/poor human factors					
No procedures/Verbal instructions					
Procedure not followed/Workaround					
Improper maintenance/post-maintenance testing					
Material in unexpected location/accumulation					

Gemäß Tab. 5.4 können jedem der untersuchten Ereignisse mehrere auslösende Faktoren (zwischen acht und neun) zugeordnet werden. Von den acht auslösenden Faktoren beim „modernen“ Vorkommnis (Vacuum Cleaner Event) werden auch einige den „historischen“ Vorkommnissen der zweiten Gruppe zugeordnet, die meisten (sechs) bei den drei Vorkommnissen vom 24.07.1964 in United Nuclear Fuels (Wood River), vom 02.01.1958 und 10.12.1968 in Mayak (Chelyabinsk). Aus diesen drei Vorkommnissen der Gruppe drei wurde das Vorkommnis vom 24.07.1964 in United Nuclear Fuels (Wood River) als „historisches“ Vorkommnis zum Vergleich mit dem „modernen“ Vorkommnis vom in Lynchburg ausgewählt.

Kritikalitätsunfall mit Uranlösung in der Brennelementefabrik United Nuclear Fuels (Wood River), 24.07.1964

Beschreibung: Der Unfall entstand, als konzentrierte angereicherte Uranlösung fahrlässig in einen Behälter mit 45,7 cm Durchmesser (Volumen 75 l) gegossen wurde. Anfangsschwierigkeiten in dieser Wiedergewinnungsanlage für hochangereichertes Uran aus Altmaterial führten zu einer ungewöhnlichen Ansammlung von Trichloräthan-

Lösung mit niedriger Urankonzentration. Nur geringe Mengen Uran wurden durch langwierige Handumwälzung des Trichloräthans mit Natriumkarbonat-Lösung wiedergewonnen. So wurde ein einfacher Prozess improvisiert, bei dem das Trichloräthan in einen Behälter mit 45,7 cm Durchmesser geleitet wurde, der nur für die Herstellung der Natriumkarbonat-Lösung vorgesehen war, die im normalen Wiedergewinnungsprozess eingesetzt wird. Weder der Anlagendirektor noch einer der drei Schichtleiter kannten dieses Vorgehen. Unterdessen wurden Lösungen mit ungewöhnlich hoher Urankonzentration, die aus der Säuberung verstopfter Gerätschaften stammten, in 11 l-Flaschen (12,7 cm Durchmesser) gelagert, die kontaminiertes Trichloräthan enthielten. Am Unfalltag wurde anscheinend aus einer Flasche konzentrierte Uranlösung statt des Trichloräthans in die Natriumkarbonat-Lösung gegossen und im Behälter verrührt. Es entstand Kritikalität mit einem Lichtblitz und Impuls, der Teile der Lösung aus dem Behälter herausspritzen ließ. Danach schien es, dass genügend Lösung aus dem Behälter ausgestoßen worden war (der Inhalt des Gefäßes betrug dann 2 kg Uran in 41 bis 42 l Flüssigkeit) und die Turbulenz des Rührens ausreichte, den unterkritischen Zustand zu erhalten. Zwei Stunden nach dem ersten Störfall betraten zwei Männer den Bereich, stellten das Rührwerk ab und starteten es erneut einige Minuten später, um danach den Tank abzulassen. Ein zweiter, weniger gefährlicher Störfall, der erst später durch die Bestrahlung der zwei Operateure entdeckt wurde, weil der Strahlenalarm nach dem ersten Störfall noch immer ertönte, hatte sich ereignet, während das Rührwerk abgestellt war.

Ursache: Missachtung bestehender Vorschriften. Fahrlässigkeit. Verwendung ungeeigneter Behälter.

Auswirkungen: Durch den ersten Impuls von ca. $1E+17$ Spaltungen wurde ein Operateur auf den Boden geworfen und erhielt eine Strahlendosis von etwa 100 Sv. Das Opfer verstarb daran 49 Stunden später. Durch den zweiten Störfall erhielten die beiden Operateure 1000 und 600 mSv. Insgesamt entstanden etwa $1,3E+17$ Spaltungen.

Bewertung: INES-Stufe 4 (GRS-Bewertung).

Der Störfall zeigt besonders deutlich die Organisationsschwächen in der Anlage - die leitenden Angestellten kannten das Vorgehen nicht - und die Vernachlässigung der geometrischen Sicherheit zugunsten eines schnellen Prozesses. Weiterhin wurde die Situation nach dem ersten Impuls falsch beurteilt. Man nahm an, dass die Anlage nun unterkritisch bleiben würde und schickte zwei Operateure in den Unfallbereich. Durch

genaue Bilanzierung, entsprechende Kontrollinstrumentierung und Fernbedienung hätte der zweite Störfall vermieden werden können.

Gemeinsame auslösende Faktoren

Im Vortrag wurden die folgenden gemeinsamen auslösende Faktoren identifiziert:

- Upset not analyzed or improperly analyzed,
- Process poorly understood or overly complex,
- Involved unfavorable geometry,
- Poor configuration management/change control,
- Inadequate procedure/poor human factors and
- No procedures/Verbal instructions.

Im Folgenden soll versucht werden, die im Vortrag identifizierten auslösenden Faktoren mit den Informationen aus den hier verfügbaren und aufgeführten Vorkommnistexten in Bezug zu setzen.

Upset not analyzed or improperly analyzed: Der von den Mitarbeitern beim „historischen“ Vorkommnis zur Uranrückgewinnung verwendete vereinfachte Prozess war den Vorgesetzten nicht bekannt und sicherlich nicht analysiert. Beim „modernen“ Vorkommnis waren seitens des Betreibers keine Analysen oder Kontrollen zum Transportvorgang der Staubsauger erfolgt.

Process poorly understood or overly complex: Die kritikalitätsrelevanten Risiken des vereinfachten Prozesses zur Uranrückgewinnung unter Verwendung eines geometrisch nicht sicheren Behälters (Durchmesser 45,7 cm) im Fall des „historischen“ Vorkommnisses dürften den ausführenden Mitarbeitern vermutlich nicht bekannt gewesen sein. Beim „modernen“ Vorkommnis war das kritikalitätsrelevante Gefährdungspotenzial beim Staubsaugertransport nicht analysiert worden.

Involved unfavorable geometry: Beim „historischen“ Vorkommnis war die Verwendung des Behälters mit unsicherer Geometrie kritikalitätsauslösend. Im Fall des „modernen“ Vorkommnisses führte die beim Umsturz des Staubsaugers erfolgte räumliche Trennung der uranhaltigen Flüssigkeit aus dem Staubsauger von den Raschig-Ringen zu

einem erhöhten Kritikalitätsrisiko. Eine Kritikalitätsexkursion unterblieb aber auch aufgrund der niedrigen Urankonzentration in der Flüssigkeit.

Poor configuration management/change control: Damit sind sowohl die Verwendung des geometrisch nicht sicheren Behälters beim "historischen" Vorkommnis als auch beim „modernen“ Vorkommnis der Transport des Staubsaugers auf nur einer Zacke des Gabelstaplers unter stabilisierender Mithilfe eines Mitarbeiters gemeint.

Inadequate procedure/poor human factors: Dies trifft sowohl auf die unkontrollierte Verwendung einer Lösung mit ungewöhnlich hoher Urankonzentration im vereinfachten Prozess zur Uranrückgewinnung beim "historischen" Vorkommnis als auch auf den Transport von mit uranhaltiger Flüssigkeit gefüllten Staubsaugern ohne Kritikalitätsanalyse und ohne vorherige Ermittlung der jeweiligen Urankonzentrationen zu.

No procedures/Verbal instructions: Die Vorgehensweisen beim vereinfachten Prozess im Fall des „historischen“ Vorkommnisses wurden sicherlich nur mündlich weitergegeben und beruhten vermutlich auf Erfahrungswerten. Für das prinzipielle Vorgehen beim Transport von Staubsaugern beim „modernen“ Vorkommnis existieren offenbar schriftliche Anweisungen, die aber gerade auf dem Gebiet der Kritikalitätssicherheit einigermaßen unvollständig zu sein scheinen.

Zusammenstellung kritikalitätsrelevanter Aspekte für das „moderne“ und das „historische“ Vorkommnis

Neben den kritikalitätsrelevanten Gemeinsamkeiten dieser beiden Vorkommnisse, wie

- Beteiligung hochangereicherter Spaltstofflösung (HEU) mit normalerweise niedriger Urankonzentration,
- Gewährleistung der Kritikalitätssicherheit durch zusätzliche Maßnahmen (Unterbringung der Spaltstofflösung in gekennzeichneten geometrisch sicheren 11-l-Behältern beim „historischen“ Vorkommnis und Verwendung von Raschig-Ringen beim „modernen“ Vorkommnis) und,
- Beteiligung von unsicherer Geometrie (Behälter mit 45,7 cm Durchmesser beim „historischen“ Vorkommnis und den Staubsauger einhüllende Kunststofftaschen mit ca. 208 Liter Volumen beim „modernen“ Vorkommnis)

gibt es auch einige Unterschiede.

Als sich die Mitarbeiter beim „historischen“ Vorkommnis für den vereinfachten Prozess entschieden, verließen sie damit den Pfad der offiziell legitimierten Betriebsvorschriften und handelten ohne genehmigungsrechtliche Absicherung. Beim „modernen“ Vorkommnis wurden die diesbezüglichen Betriebsvorschriften befolgt, auch wenn diese sich – gerade im Hinblick auf die Kritikalitätssicherheit beim Transport der mit uranhaltiger Lösung befüllten Staubsauger – als unvollständig und verbesserungswürdig erwiesen.

Ein weiterer Unterschied zeigt sich in der Art und Weise, wie es zu den Vorkommnissen kam. Beim „historischen“ Vorkommnis wurde mit voller Absicht die uranhaltige Lösung in den geometrisch unsicheren Behälter gegossen und beim „modernen“ Vorkommnis lief sie nach einem Unfall aus.

Ein entscheidender Grund, warum es beim „historischen“ Vorkommnis zu einer Kritikalitätsexkursion kam und beim „modernen“ nicht, dürfte in der geringen Urankonzentration ($< 1 \text{ g Uran/l}$) der Uranlösung im Staubsauger liegen.

5.2.5 Bewertung

Die Tab. 5.5 nach /SIP 15/ zeigt eine generalisierte Gegenüberstellung der „modernen“ und der „historischen“ Vorkommnisse auf der Basis der bereits definierten auslösenden Faktoren. Zu diesem Zweck werden nochmals sowohl für jedes der drei „modernen“ Vorkommnisse separat (Spalten 2 – 4 in Tab. 5.5) als auch summarisch für alle 13 „historischen“ Vorkommnisse (Spalte 5) die Zuordnungen zu den auslösenden Faktoren aufgeführt. Diese Darstellung fußt auf den bereits in Tab. 5.2, Tab. 5.3 und Tab. 5.4 dargestellten Daten und soll aufzeigen ob und wenn auf welche Weise sich die auslösenden Faktoren bei „modernen“ und „historischen“ Vorkommnissen unterscheiden. Diese Analyse zeigt auf, hinblicklich welchen auslösenden Aspekten bzw. Kombinationen daraus nachwievor Potential zur Ableitung sicherheitstechnisch verbesserter Vorgehensweisen bestehen kann.

Tab. 5.5 Gegenüberstellung der auslösenden Faktoren für alle „modernen“ und „historischen“ Vorkommnisse

Causal Factors	The Incinerator Event	The Solution Spill	The Vacuum Cleaner Event	The Historical Accidents
Upset not analyzed or improperly analyzed	■	■	■	8
Upset dismissed as incredible	■			2
Process poorly understood or overly complex	■		■	6
New or unusual process evolution				9
Heavy reliance on administrative control				4
Poor communication	■		■	3
Involved unfavorable geometry	■	■	■	12
Equipment failure		■		4
Poor configuration management/change control	■	■		8
Improperly secured out-of-service equipment		■		1
Inadequate procedure/poor human factors			■	5
No procedures/Verbal instructions			■	3
Procedure not followed/Workaround	■	■		7
Improper maintenance/post-maintenance testing		■		3
Material in unexpected location/accumulation	■	■	■	8

1

Die Tab. 5.5 nach /SIP 15/ zeigt geringe Unstimmigkeiten im Vergleich zu den Tab. 5.2, Tab. 5.3 und Tab. 5.4, auf deren Daten sie basiert. So sind viele der unter „The Historical Accidents“ erfassten Zahlen um eine Einheit zu klein, was in der doppelten Verwendung eines der „historischen“ Vorkommnisse begründet sein dürfte. Außerdem wurden bei zwei „modernen“ Vorkommnissen jeweils ein auslösender Faktor vergessen: Bei „The Solution Spill“ der Faktor „Poor Communication“ und bei „The Vacuum Cleaner Event“ „Poor configuration management/change control“. Diese scheinbaren

und tatsächlichen Unstimmigkeiten wurden in Tab. 5.6 bereinigt, und ändern nichts an den daraus abgeleiteten Analysen.

Tab. 5.6 Gegenüberstellung der auslösenden Faktoren für alle „modernen“ und „historischen“ Vorkommnisse (modifiziert)

Causal Factors	The Incinerator Event	The Solution Spill	The Vacuum Cleaner Event	The Historical Accidents
Upset not analyzed or improperly analyzed				9
Upset dismissed as incredible				2
Process poorly understood or overly complex				7
New or unusual process evolution				10
Heavy reliance on administrative control				4
Poor communication				3
Involved unfavorable geometry				13
Equipment failure				5
Poor configuration management/change control				9
Improperly secured out-of-service equipment				1
Inadequate procedure/poor human factors				5
No procedures/Verbal instructions				4
Procedure not followed/Workaround				8
Improper maintenance/post-maintenance testing				3
Material in unexpected location/accumulation				9

Aus Tab. 5.5 ist ersichtlich, dass einige der auslösenden Faktoren, die bereits bei den „historischen“ Vorkommnissen häufig auftraten, dies auch bei den betrachteten „modernen“ Vorkommnissen tun. Dies gilt insbesondere für „Involved unfavourable geometry“, der bei den „historischen“ Vorkommnissen summarisch zwölfmal (13 in der modifizierten Tab. 5.6) und auch in jedem der „modernen“ Vorkommnisse registriert wird (Markierung durch roten Stern in Tab. 5.5). Darauf folgen „Upset not analyzed or improperly analyzed“, „Poor configuration management/change control“ und „Material in unexpected location/accumulation“ mit jeweils acht (neun in der modifizierter Tab. 5.6) Einträgen bei den „historischen“ Vorkommnissen (Markierung durch gelben Pfeil).

Eine deutliche Verbesserung beim Übergang von „historischen“ zu „modernen“ Vorkommnissen zeichnet sich hingegen bei dem auslösenden Faktor „New or unusual process evolution“ ab, der bei den „historischen“ Vorkommnissen neunmal (zehnmal in der modifizierten Tab. 5.6) und kein einziges Mal bei den „modernen“ Vorkommnissen aufgelistet wird.

Zusammenfassend kann also festgehalten werden, dass es naturgemäß zwar Verbesserungen auf dem Gebiet der Kritikalitätssicherheit gegeben hat, aber dass bis heute zahlreiche der auslösenden Vorkommnisse der „historischen“ Vorkommnisse auch bei den „modernen“ Vorkommnissen eine Rolle spielen. Es besteht diesbezüglich aber noch immer Verbesserungsbedarf, und dazu sollten weiterhin die Resultate der Analysen von „historischen“ Vorkommnissen herangezogen werden: „The causes of past accidents continue to cause events today, indicating that we have not completely learned from the past, and that the study of past accidents is still valuable.“ /SIP 15/.

Weitere Quellen, nach Vorkommnissen geordnet

Columbia, 04.03.2004

1. NRC Daily Events Report, Event Number 40567

Novosibirsk Chemical (Nowosibirsk), 15.05.1997

1. DOE: Operating Experience Weekly Summary 97-22, No. 4

2. GRS–A–2718 Besondere Vorkommnisse in ausländischen Kernbrennstoffversorgungsanlagen und Forschungszentren im Zeitraum 1997 – 1998, W. Mester, F.E. Moser, April 1999.

3. IAEA-Informationssystem NEWS (Nuclear Events Web-based System)

4. E-Mail von Valerie L. Putman (Idaho National Laboratory) an GRS vom 24.05.2006

5. Federal Register, Vol. 72, No. 86, May 4, 2007, (Report to Congress on Abnormal Occurrences Fiscal Year 2006; Dissemination of Information).

Oak Ridge, 16.06.1958

1. Significant incidents in nuclear fuel cycle facilities, IAEA-TECDOC-867 (1996), p 24, http://www.iaea.org/inis/collection/NCLCollectionStore/_Public/27/060/27060437.pdf

2. W.R. Stratton: A Review of Criticality Accidents - 2000 Revision; U.S. Report LA-3611, 26.9.1967, <https://www.ornl.gov/ptp/Library/accidents/la-13638.pdf>

3. CSNI/SOAR No. 3, OECD 1981.

4. Union Carbide Nuclear Comp.: Accidental Radiation Excursion at the Y-12-Plant, June 16, 1958. Final Report, Y 1234-12.9.1958.

5. E.H. Schulz: Vorkommnisse und Strahlenunfälle in kerntechnischen Anlagen, Thiemig 1966.

Lynchburg, 26.07.2007

1. NRC Daily Events Report, Event Number 43934.

2. NRC INFORMATION SERVICE 2007-30, September 13, 2007.

United Nuclear Fuels (Wood River), 24.07.1964

1. CSNI/SOAR No.3, OECD 1981.

2. W.R. Stratton: A Review of Criticality Accidents. U.S. Report LA-3611, 26.9.1967.

3. Nucleonics Week 5 (1964), No.31.

4. E.H. Schulz: Vorkommnisse und Strahlenunfälle in kerntechnischen Anlagen,
Thiemig 1966.

6 Überprüfung und Bewertung von Rechenmethoden zu nuklearen Sicherheitsanalysen

6.1 OECD-NEA EGUNF Benchmark Phase 1 zur Validierung von Streuquerschnitten von Silizium

6.1.1 Beschreibung und Aufgabenstellung

Von der OECD-NEA „Expert Group on Used Nuclear Fuel“ (EGUNF) wurde ein Rechenbenchmark initiiert, dessen Zielsetzung die Untersuchung der Wirkungsquerschnitte zur elastischen Neutronenstreuung an Siliziumdioxid (SiO_2) hinsichtlich der Reflexionseigenschaften dieses Materials ist. Vorrangig dient die Untersuchung der Kritikalitätssicherheitsanalyse bei der direkten Endlagerung von bestrahlten Kernbrennstoffen in Tongestein, dessen Hauptbestandteil SiO_2 ist. In Abb. 6.1 sind die relevanten energieabhängigen Wirkungsquerschnitte für Sauerstoff (^{16}O) und Silizium (^{28}Si) im Vergleich zu Wasserstoff (^1H) dargestellt.

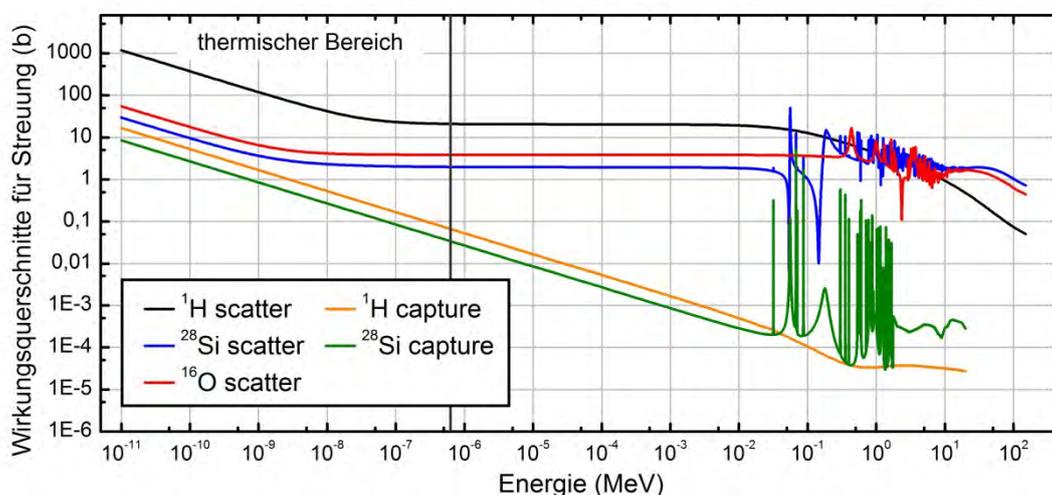


Abb. 6.1 Energieabhängige Wirkungsquerschnitte für Streuung und Einfang von Neutronen für ^1H , ^{16}O und ^{28}Si

Für die GRS hat die Validierung dieser Wirkungsquerschnitte zur Qualifizierung der verwendeten Werkzeuge eine hohe Bedeutung. Das *International Criticality Safety Benchmark Evaluation Project* (ICSBEP) gibt ein jährlich aktualisiertes Handbuch mit einer umfangreichen Sammlung von Benchmark Experimenten heraus, welche für die

Validierung von Berechnungsprogrammen und Wirkungsquerschnitten für Kritikalitäts-sicherheitsanalysen verwendet werden können. Trotz der großen Anzahl an Experimentserien im ICSBEP Handbuch gibt es jedoch nur acht Serien, die Siliziumdioxid enthalten. Das Spaltmaterial in diesen Serien ist zudem entweder Plutonium oder hochangereichertes Uran, das in den meisten Fällen in metallischer Form vorliegt, und nur zwei der Serien weisen ein thermisches Neutronenspektrum auf. Um zuverlässige Aussagen auch für Systeme mit niedrig angereichertem Uran in einem thermischem Neutronenspektrum treffen zu können, wie z. B. bei Untersuchungen zur Kritikalitätssicherheit in der Nachbetriebsphase eines Endlagers in unterschiedlichen Wirtsformationen /GMA04/, können Berechnungen an einem vorgegebenen System unter Verwendung verschiedener Berechnungsprogramme und nuklearer Daten verglichen werden.

Im Rahmen dieses Benchmarks wurden der Neutronenmultiplikationsfaktor k_{eff} sowie weitere Größen für ein vordefiniertes System unter Verwendung verschiedener Programme in Verbindung mit verschiedenen Querschnittsbibliotheken berechnet. Als System für diese Untersuchungen dient ein vereinfachtes 17×17 DWR-Brennelement, welches mit zwei Brennstoffkonfigurationen (unbestrahlter und bestrahlter Kernbrennstoff) in jeweils unterschiedlichen Moderator- und Reflektorumgebungen (Wasser, SiO_2 und Gemische beider sowie verschiedene Schichtstärken des Reflektors) betrachtet wird. Alle Geometrieparameter sowie die Materialdaten des Modells sind in der Problembeschreibung /YAM14/ vorgegeben.

6.1.2 Methodenbeschreibung

Die Kritikalitätsberechnungen erfolgten mit KENO-V.a über die Sequenz CSAS5 des Softwarepakets SCALE Version 6.1.2 /SCA11/. Zum Einsatz kamen vier auf ENDF/B basierende Wirkungsquerschnittsbibliotheken (v5-44, v5-238, v6-238 und v7-238) und die Module CENTRM und PMC zur Resonanzbehandlung. Mit bis zu 500 000 Neutronengenerationen (150 Skip) bei 10 000 Neutronen pro Generation wurde eine einheitliche numerische Rechengenauigkeit in Form der Standardabweichung des effektiven Neutronenmultiplikationsfaktors von $\sigma_k = 5 \times 10^{-5}$ angestrebt, welche zumeist nach jeweils ca. 25 000 Generationen erreicht wurde. Zur Modellierung des für die Analyse verwendeten vereinfachten 17×17 DWR Brennelement wurde jeweils eine Einheitszelle für einen Brennstab (*fuel cell*) und einen Führungsstab (*GT cell*) mit den entsprechend Parametern definiert. Über die Array-Funktion wurde das Brennelement nach Abb. 6.2 aufgebaut und in radialer Richtung von einem Reflektor variabler Schichtstär-

ke mit Vakuum-Randbedingungen umgeben. Um eine unendliche Ausdehnung in axialer Richtung zu realisieren, wurde das System mit einer Höhe von 10 cm modelliert und periodische Randbedingungen angesetzt. Die unterstellte Temperatur für alle Materialien betrug 293 K.

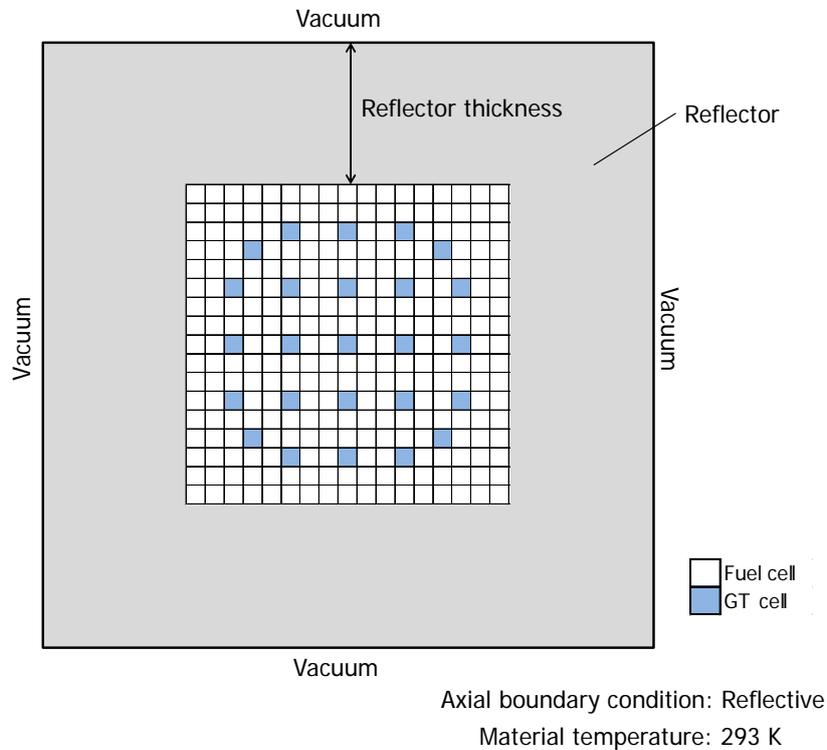


Abb. 6.2 Querschnitt der in dem EGUNF Phase 1 Benchmark betrachteten DWR Brennelement-Spezifikation

Für die Berechnung des thermischen Spektralindex wurden die energieguppenweisen Neutronenflüsse benötigt. Die optionale Ausgabe der Neutronenflüsse wurde über den Parameters *FLX* eingeschaltet. Der Grenzwert für die thermischen Neutronenflüsse lag bei 0,625 eV. Die Ausgabe des Moduls *KMART5* des Softwarepakets *SCALE* erlaubt die Berechnung der nach Element bzw. Isotop und Region aufgeschlüsselten Reaktionsraten für Streuung und Neutroneneinfang.

Die Erzeugung der fallspezifischen Eingabedateien erfolgte über eine Eingabedateivorlage mit Schlüsselwörtern für die fallspezifischen Parameter, wie z. B. die Kernzahldichten der Moderator- und Reflektor Komponenten erzeugt. Über ein HTML gesteuertes Skript, das sog. „IPython Notebooks“ /IPY07/ wurde die Vorlage eingelesen und die Schlüsselwörter durch entsprechende Parameterwerte ersetzt. Nach Durchführung der Rechnungen wurde der zweite Teil des Notebooks verwendet um die Ergebnisdateien

hinsichtlich der Ergebnisse auszulesen und auszuwerten und alle notwendigen Berechnungen durchzuführen.

6.1.3 Ergebnisse

Die Untersuchungen gliederten sich in zwei Teile. Im ersten Teil wurde ein unbestrahltes Brennelement mit Fallunterscheidungen nach Art des Moderators sowie Art und Schichtstärke des Reflektors betrachtet. Im zweiten Teil wurden Berechnungen unter Berücksichtigung eines vorgegebenen Abbrands durchgeführt, mit Fallunterscheidungen nach Abbrand (30 und 45 GWd/tSM), Abklingzeit (0, 30 000 und 20 Mio. Jahre) und Art und Schichtstärke des Reflektors.

6.1.3.1 Unbestrahltes Brennelement

Für das unbestrahlte Brennelement (BE) wurden insgesamt neunzehn Fälle betrachtet. Als Referenzfall diente ein wassermoderiertes und –reflektiertes System. Zur Untersuchung der Reflexionseigenschaft von SiO₂ wurde ein wassermoderiertes System mit jeweils trockenem SiO₂- (dry) bzw. wassergesättigtem SiO₂- (wet)-Reflektor betrachtet, mit einer SiO₂-Dichte von 1,6 g/cm³ in beiden Fällen. Bei SiO₂ (wet) wurde angenommen, dass alle Materialzwischenräume vollständig mit Wasser gefüllt sind, bei einer Wasserpartialdichte von 0,4067 g/cm³. Zusätzlich, als realitätsnäheren Fall, wurde auch ein mit SiO₂ (wet) moderiertes und reflektiertes System betrachtet. Die Spezifikationen und die entsprechenden Bezeichnungen sind in Tab. 6.1 zusammengefasst /YAM 14/.

Tab. 6.1 Fallspezifikationen und –bezeichnungen des EGUNF Rechenbenchmarks für das unbestrahlte Brennelement

Moderator-material	Reflektor-material	Reflektor-Schichtstärke						
		0 cm	10 cm	20 cm	40 cm	60 cm	90 cm	120 cm
H ₂ O	SiO ₂ (dry)	zero	sd10	sd20	sd40	sd60	sd90	sd120
	SiO ₂ (wet)		sw10	sw20	sw40	sw60	-	-
	H ₂ O		lw10	lw20	lw40	-	-	-
SiO ₂ (wet)	SiO ₂ (wet)	zero	sw10s	sw20s	sw40s	sw60s	-	-

Für den Benchmark-Vergleich wurden die effektiven Neutronenmultiplikationsfaktoren k_{eff} , die Reaktionsraten für Neutronenstreuung R_s für ¹⁶O, ²⁸Si und ¹H und Neutronen-

einfall R_c für ²⁸Si und ¹H im Reflektorbereich, die Verhältnisse der Absorptions- zu Produktionsraten A/P des Gesamtsystems sowie die thermischen Spektralindizes SI_{th} des Brennelementbereichs für die neunzehn Fälle des unbestrahlten Brennelements mit Spezifikationen aus Tab. 6.1 abgefragt.

6.1.3.1.1 Multiplikationsfaktoren

Zur Validierung der Wirkungsquerschnitte wurden die Berechnungen mit den vier Querschnittsbibliotheken v5-44, v5-238, v6-238 und v7-238 durchgeführt. Die Ergebnisse für den effektiven Neutronenmultiplikationsfaktor k_{eff} der neunzehn Fälle für die vier betrachteten Querschnittsbibliotheken sind in Tab. 6.2 zusammengefasst und in Abb. 6.3 in Form von relativen Abweichungen vom mittleren effektiven Neutronenmultiplikationsfaktor graphisch dargestellt, wobei die Rechengenauigkeit bei σ_k = 5×10⁻⁵ lag, vgl. auch Kap. 6.1.2.

Tab. 6.2 Fallspezifische berechnete k_{eff} Werte für das unbestrahlte Brennelement und vier Bibliotheken

Fall	v5-44	v5-238	v6-238	v7-238	σ in %
zero	0,65209	0,64993	0,64873	0,65464	0,35
lw10	0,92220	0,91976	0,91721	0,92487	0,31
lw20	0,92522	0,92279	0,92022	0,9279	0,31
lw40	0,92532	0,92275	0,92014	0,92797	0,32
sd10	0,79676	0,79485	0,79146	0,79756	0,30
sd20	0,86596	0,86333	0,85922	0,86523	0,30
sd40	0,93884	0,93563	0,93140	0,93709	0,29
sd60	0,97355	0,97064	0,96657	0,97207	0,27
sd90	0,99169	0,98900	0,98520	0,99048	0,25
sd120	0,99529	0,99253	0,98890	0,99421	0,24
sw10	0,93879	0,93678	0,93353	0,93986	0,26
sw20	0,97162	0,96935	0,96604	0,97261	0,26
sw40	0,97336	0,97115	0,96781	0,97447	0,26
sw60	0,97348	0,97116	0,96794	0,97447	0,26
zeros	0,30907	0,30430	0,30281	0,30728	0,80
sw10s	0,68872	0,68386	0,68020	0,68619	0,46
sw20s	0,74236	0,73753	0,73373	0,74034	0,44

Fall	v5-44	v5-238	v6-238	v7-238	σ in %
sw40s	0,74531	0,74032	0,7365	0,74333	0,45
sw60s	0,74535	0,74035	0,73666	0,74346	0,44

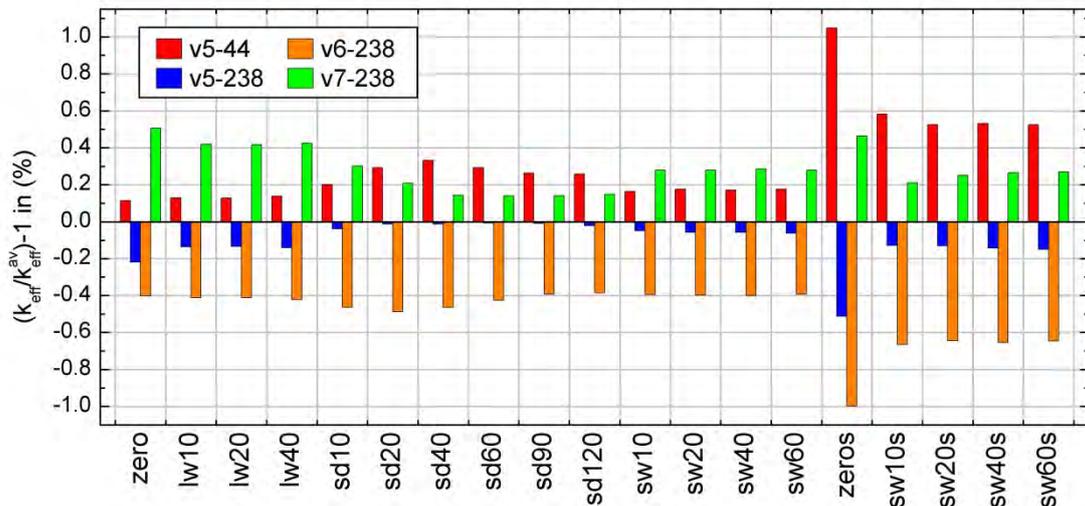


Abb. 6.3 Relative Abweichungen der k_{eff} Werte vom Mittelwert für das unbestrahlte Brennelement und vier Bibliotheken

Die Ergebnisse in Abb. 6.3 zeigen, dass die 1σ Abweichung bei 0,8% für den Fall *zeros* und unter 0,5% in allen anderen Fällen liegen. Es lässt sich auch eine signifikante Abhängigkeit vom Moderatormaterial bei den k_{eff} Werten feststellen. Dies deutet auf signifikante Unterschiede in den Wirkungsquerschnitten für Silizium (Si) unter den verwendeten Querschnittsbibliotheken hin. Darüber hinaus tendieren die Multiplikationsfaktoren bei Berechnungen mit den Bibliotheken v5-44, und v7-238 zur höheren und mit v5-238 und v6-238 zu niedrigeren k_{eff} Werten, was im Wesentlichen auf Unterschiede in den Wirkungsquerschnitten für die Uranisotope unter den verwendeten Querschnittsbibliotheken zurückzuführen ist.

6.1.3.1.2 Reaktionsraten der Streu- und Einfangquerschnitte

Im nächsten Schritt der Validierung der Wirkungsquerschnitte werden die Reaktionsraten der Streu- und Einfangquerschnitte im Reflektorbereich untersucht. Der Schwerpunkt hierbei liegt auf Streuung an den Isotopen ^{16}O , ^{28}Si und ^1H , sowie dem Neutroneneinfang durch die Isotope ^{28}Si und ^1H . Mit den älteren SCALE Querschnittsbibliotheken, wie die v5-44, v5-238, und v6-238, lassen sich keine nach Isotopen aufgeschlüsselten Daten für Silizium ausgeben. In diesen Fällen werden die Reaktionsraten nur für $^{\text{nat}}\text{Si}$ angegeben. Für die Bibliothek v7-238 werden die Reaktionsraten sowohl

für ^{nat}Si als auch für das Isotop ^{28}Si angegeben. Die Ergebnisse für die Reaktionsraten sind in den Tabellen Tab. 6.3 bis Tab. 6.7 zusammengefasst und in Form von relativen Abweichungen von Mittelwert der Reaktionsraten in den Abbildungen Abb. 6.4 bis Abb. 6.8 dargestellt.

Tab. 6.3 Berechnete Reaktionsraten für Streuung an $^{nat/28}\text{Si}$ (R_s^{Si}) im Reflektorbereich für das unbestrahlte Brennelement und vier Bibliotheken

Fall	v5-44	v5-238	v6-238	v7-238		σ in %
	^{nat}Si	^{nat}Si	^{nat}Si	^{nat}Si	^{28}Si	
sd10	8,002E-01	8,295E-01	8,254E-01	8,085E-01	7,476E-01	1,47
sd20	1,812E+00	1,858E+00	1,849E+00	1,801E+00	1,661E+00	1,31
sd40	4,190E+00	4,234E+00	4,229E+00	4,083E+00	3,739E+00	1,45
sd60	6,726E+00	6,777E+00	6,798E+00	6,533E+00	5,955E+00	1,56
sd90	9,971E+00	1,006E+01	1,015E+01	9,728E+00	8,839E+00	1,58
sd120	1,201E+01	1,212E+01	1,227E+01	1,175E+01	1,066E+01	1,58
sw10	8,732E-01	8,739E-01	8,752E-01	8,459E-01	7,737E-01	1,41
sw20	1,571E+00	1,573E+00	1,580E+00	1,521E+00	1,386E+00	1,50
sw40	1,922E+00	1,926E+00	1,940E+00	1,869E+00	1,700E+00	1,41
sw60	1,951E+00	1,956E+00	1,971E+00	1,900E+00	1,728E+00	1,37
sw10s	1,651E+00	1,663E+00	1,667E+00	1,610E+00	1,474E+00	1,37
sw20s	2,857E+00	2,879E+00	2,896E+00	2,782E+00	2,535E+00	1,53
sw40s	3,480E+00	3,511E+00	3,541E+00	3,403E+00	3,096E+00	1,47
sw60s	3,530E+00	3,562E+00	3,594E+00	3,454E+00	3,142E+00	1,47

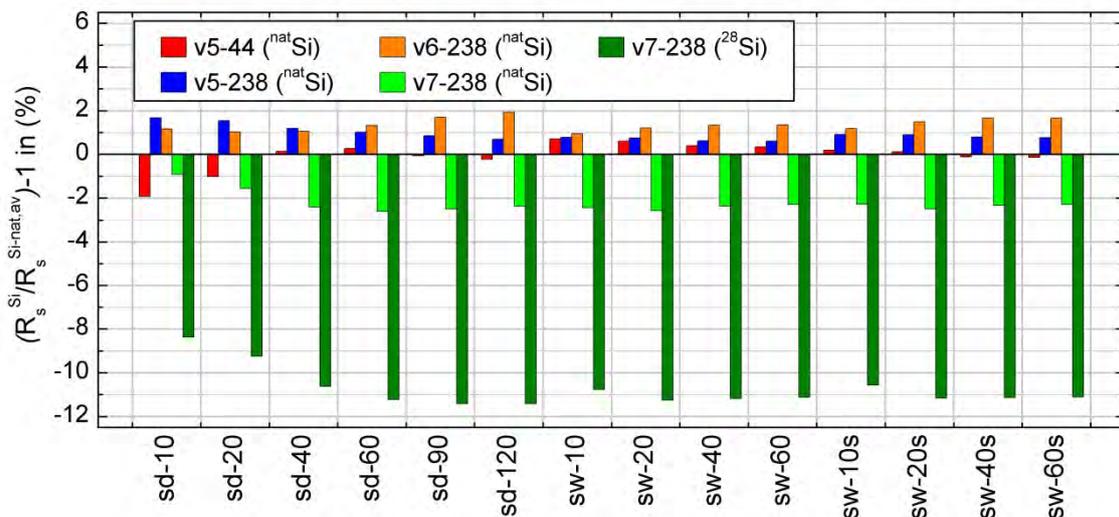


Abb. 6.4 Relative Abweichungen der berechneten R_s^{Si} vom Mittelwert $R_s^{\text{Si-nat,av}}$ im Reflektorbereich für das unbestrahlte Brennelement und vier Bibliotheken

Tab. 6.4 Berechnete Reaktionsraten für Neutroneneinfang von $^{nat/28}\text{Si}$ (R_c^{Si}) im Reflektorbereich für das unbestrahlte Brennelement und vier Bibliotheken

Fall	v5-44	v5-238	v6-238	v7-238		σ in %
	^{nat}Si	^{nat}Si	^{nat}Si	^{nat}Si	^{28}Si	
sd10	4,216E-03	4,214E-03	4,230E-03	4,193E-03	3,873E-03	0,31
sd20	1,073E-02	1,068E-02	1,067E-02	1,060E-02	9,780E-03	0,43
sd40	3,297E-02	3,238E-02	3,220E-02	3,216E-02	2,957E-02	1,00
sd60	7,294E-02	7,133E-02	7,085E-02	7,078E-02	6,541E-02	1,22
sd90	1,560E-01	1,549E-01	1,547E-01	1,540E-01	1,436E-01	0,46
sd120	2,288E-01	2,296E-01	2,305E-01	2,292E-01	2,144E-01	0,27
sw10	2,441E-02	2,449E-02	2,466E-02	2,480E-02	2,335E-02	0,61
sw20	6,048E-02	6,075E-02	6,124E-02	6,160E-02	5,808E-02	0,71
sw40	8,038E-02	8,081E-02	8,162E-02	8,226E-02	7,765E-02	0,89
sw60	8,205E-02	8,250E-02	8,337E-02	8,410E-02	7,938E-02	0,95
sw10s	4,227E-02	4,263E-02	4,302E-02	4,330E-02	4,071E-02	0,91
sw20s	1,067E-01	1,078E-01	1,088E-01	1,093E-01	1,031E-01	0,92
sw40s	1,424E-01	1,442E-01	1,459E-01	1,467E-01	1,385E-01	1,14
sw60s	1,453E-01	1,471E-01	1,489E-01	1,498E-01	1,414E-01	1,17

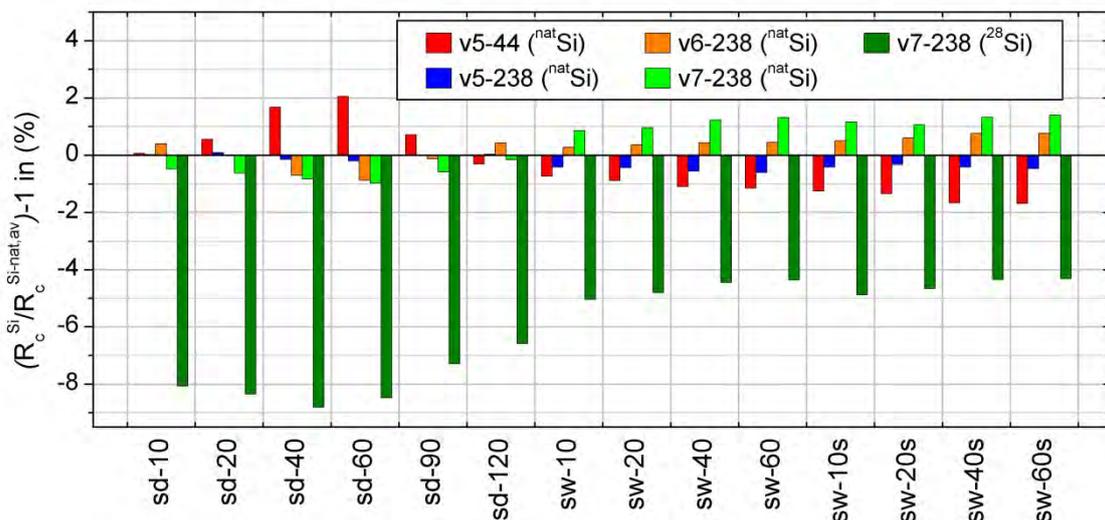


Abb. 6.5 Relative Abweichungen der berechneten R_c^{Si} vom Mittelwert $R_c^{\text{Si-nat,av}}$ im Reflektorbereich für das unbestrahlte Brennelement und vier Bibliotheken

Die Ergebnisse in Abb. 6.4 zeigen, dass die Standardabweichung der Reaktionsraten für Neutronenstreuung an ^{nat}Si für die vier Querschnittsbibliotheken (rot, blau, orange und hellgrün) bei etwa 1,5 % liegt. Bei den Rechnungen mit der ENDF/B-VII-basierten

v7-238 Bibliothek, welche sowohl Werte für ^{nat}Si als auch für das Isotop ^{28}Si enthält, lässt sich für ^{28}Si (dunkelgrün) eine Abweichung von etwa 11 % vom Mittelwert $R_s^{\text{Si-nat,av}}$ und um etwa 8,5 % vom ^{nat}Si Wert mit der v7-238 Bibliothek (hellgrün) feststellen.

Tab. 6.5 Berechnete Reaktionsraten für Streuung an ^1H (R_s^{H}) im Reflektorbereich für das unbestrahlte Brennelement und vier Bibliotheken

Fall	v5-44	v5-238	v6-238	v7-238	σ in %
lw10	5,138E+01	5,164E+01	5,237E+01	4,993E+01	1,73
lw20	7,236E+01	7,272E+01	7,379E+01	7,054E+01	1,62
lw40	7,622E+01	7,664E+01	7,782E+01	7,446E+01	1,58
sw10	1,751E+01	1,755E+01	1,776E+01	1,702E+01	1,55
sw20	3,930E+01	3,943E+01	4,003E+01	3,817E+01	1,71
sw40	5,100E+01	5,123E+01	5,212E+01	4,977E+01	1,64
sw60	5,198E+01	5,222E+01	5,316E+01	5,080E+01	1,62
sw10s	3,154E+01	3,179E+01	3,222E+01	3,093E+01	1,48
sw20s	7,021E+01	7,091E+01	7,207E+01	6,868E+01	1,74
sw40s	9,121E+01	9,224E+01	9,401E+01	8,961E+01	1,74
sw60s	9,290E+01	9,396E+01	9,580E+01	9,134E+01	1,74

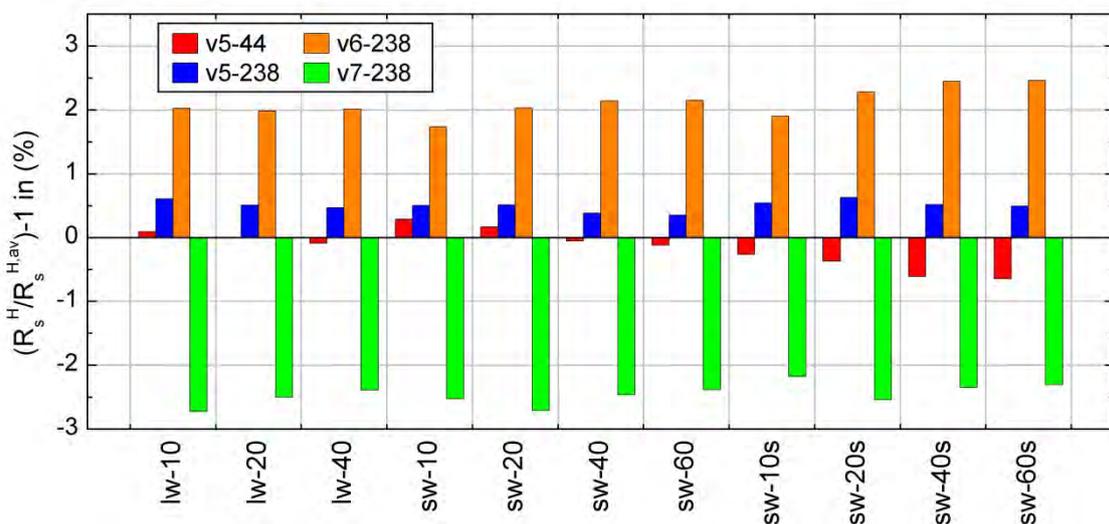


Abb. 6.6 Relative Abweichungen der berechneten R_s^{H} vom Mittelwert $R_s^{\text{H,av}}$ im Reflektorbereich für das unbestrahlte Brennelement und vier Bibliotheken

Die Reaktionsraten für Neutroneneinfang von Silizium R_c^{Si} in Tab. 6.4 sind 1-2 Größenordnungen kleiner verglichen mit den Reaktionsraten für Neutronenstreuung in Tab. 6.3. Die 1σ Abweichungen der Ergebnisse für ^{nat}Si in Abb. 6.5 liegen hier bei etwa

1,2%. Ein Vergleich der Ergebnisse für ^{nat}Si und das Isotop ^{28}Si zeigt, dass die Reaktionsraten für Neutroneneinfang von ^{28}Si (dunkelgrün) bis zu 8,5% unterhalb des Mittelwertes $R_c^{\text{Si-nat,av}}$ und bis zu 7,5% unter den ^{nat}Si Werten mit v7-238 (hellgrün) liegen.

Tab. 6.6 Berechnete Reaktionsraten für Neutroneneinfang von ^1H (R_c^{H}) im Reflektorbereich für das unbestrahlte Brennelement und vier Bibliotheken

Fall	v5-44	v5-238	v6-238	v7-238	σ in %
lw10	2,782E-01	2,798E-01	2,817E-01	2,759E-01	0,76
lw20	4,023E-01	4,046E-01	4,074E-01	4,005E-01	0,64
lw40	4,251E-01	4,277E-01	4,310E-01	4,241E-01	0,63
sw10	8,274E-02	8,300E-02	8,355E-02	8,183E-02	0,75
sw20	2,084E-01	2,094E-01	2,110E-01	2,065E-01	0,78
sw40	2,779E-01	2,794E-01	2,822E-01	2,768E-01	0,73
sw60	2,837E-01	2,853E-01	2,883E-01	2,830E-01	0,72
sw10s	1,434E-01	1,446E-01	1,458E-01	1,429E-01	0,78
sw20s	3,681E-01	3,721E-01	3,756E-01	3,671E-01	0,91
sw40s	4,931E-01	4,991E-01	5,050E-01	4,943E-01	0,94
sw60s	5,032E-01	5,094E-01	5,156E-01	5,049E-01	0,94

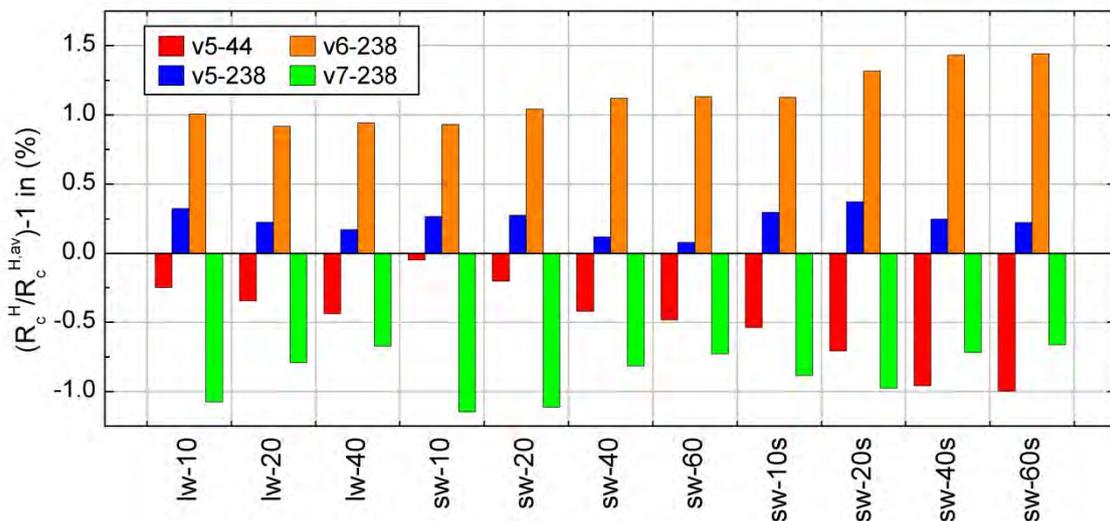


Abb. 6.7 Relative Abweichungen von berechneten R_c^{H} vom Mittelwert $R_s^{\text{H,av}}$ im Reflektorbereich für das unbestrahlte Brennelement und vier Bibliotheken

Tab. 6.7 Reaktionsraten für Streuung an ^{16}O (R_s^{O}) im Reflektorbereich für das unbestrahlte Brennelement

Fall	v5-44	v5-238	v6-238	v7-238	σ in %
lw10	2,870E+00	2,879E+00	2,865E+00	2,801E+00	1,08
lw20	3,866E+00	3,878E+00	3,861E+00	3,784E+00	0,96
lw40	4,051E+00	4,066E+00	4,050E+00	3,974E+00	0,89
sd10	2,160E+00	2,159E+00	2,133E+00	2,111E+00	0,95
sd20	5,140E+00	5,123E+00	5,070E+00	5,013E+00	0,98
sd40	1,298E+01	1,294E+01	1,284E+01	1,267E+01	0,93
sd60	2,208E+01	2,210E+01	2,200E+01	2,168E+01	0,77
sd90	3,416E+01	3,437E+01	3,438E+01	3,383E+01	0,65
sd120	4,188E+01	4,217E+01	4,233E+01	4,161E+01	0,66
sw10	3,922E+00	3,928E+00	3,903E+00	3,826E+00	1,05
sw20	7,516E+00	7,532E+00	7,503E+00	7,336E+00	1,06
sw40	9,357E+00	9,384E+00	9,369E+00	9,175E+00	0,91
sw60	9,509E+00	9,539E+00	9,528E+00	9,336E+00	0,87
sw10s	7,336E+00	7,397E+00	7,363E+00	7,218E+00	0,92
sw20s	1,361E+01	1,373E+01	1,370E+01	1,338E+01	1,01
sw40s	1,690E+01	1,706E+01	1,707E+01	1,668E+01	0,93
sw60s	1,716E+01	1,733E+01	1,734E+01	1,695E+01	0,92

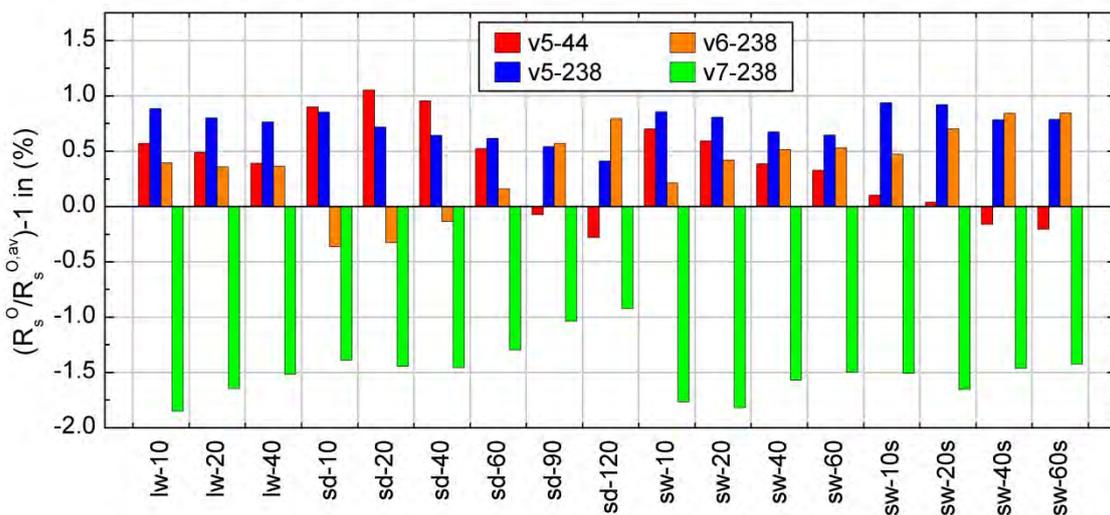


Abb. 6.8 Relative Abweichungen von R_s^{O} vom Mittelwert $R_s^{\text{O,av}}$ im Reflektorbereich für das unbestrahlte Brennelement und vier Bibliotheken

Für Wasserstoff sind die Reaktionsraten für Neutronenstreuung um zwei Größenordnungen größer als für Neutroneneinfang, was das Verhältnis der jeweiligen Wirkungsquerschnitte (s. Abb. 6.1) widerspiegelt. Der Vergleich der Reaktionsraten für ^1H für die vier betrachteten Querschnittsbibliotheken zeigt, dass die Standardabweichung der Ergebnisse für Neutronenstreuung (s. Abb. 6.6) bei etwa 1,7 % und für Neutroneneinfang (Abb. 6.7) unter 1 % liegen. Für das ^{16}O Isotop wurden nur die Reaktionsraten für Streuung ausgelesen deren 1σ Abweichungen bei maximal 1,1 % liegen.

Zusammenfassend lässt sich sagen, dass für die hier betrachteten Wechselwirkungen für ^1H , ^{16}O und $^{\text{nat}28}\text{Si}$ die 1σ Abweichungen der Reaktionsraten für die vier betrachteten Querschnittsbibliotheken unter 2 % liegen. Die stärkste Variation tritt für Neutronenstreuung an ^1H auf. Des Weiteren liefern die Berechnung mit den Bibliotheken v5-238 (blau) und v6-238 (orange) sowohl für Neutronenstreuung als auch für Neutroneneinfang überwiegend höhere Werte und mit der Bibliothek v7-238 (hellgrün) überwiegend niedrigere Werte relative zum Mittelwert der vier Bibliotheken. Für Berechnungen mit der Querschnittsbibliothek v5-44 (rot) lässt sich kein deutlicher Trend feststellen. Für keine der betrachteten Wechselwirkungen lässt sich eine signifikante Abhängigkeit bezüglich der Querschnitte vom Reflektormaterial oder dessen Schichtdicke feststellen.

6.1.3.1.3 Verhältnisse der Absorptions- zur Produktionsraten

Aus dem Verhältnis der Absorptionsrate (A) zur Produktionsrate (P) und unter Einbeziehung des effektiven Neutronenmultiplikationsfaktors lässt sich das Verhältnis der Neutronenleckage (L) zur Produktionsrate, L/P , bestimmen, welches eine signifikante Größe für die Untersuchung der Reflexionseigenschaften von Materialien ist. Die berechneten Verhältnisse A/P für die neunzehn Fälle des unbestrahlten Brennelements und die vier Querschnittsbibliotheken sind in Tab. 6.8 aufgelistet. Abb. 6.9 zeigt die Ergebnisse in Form von relativen Abweichungen von A/P vom Mittelwert über die vier Querschnittsbibliotheken $(A/P)^{\text{av}}$ für die neunzehn Fälle. Hier beträgt die 1σ Abweichung für die vier Querschnittsbibliotheken unter 0,5 %. Die Berechnungen mit den Bibliotheken v5-238 (blau) und v6-238 (orange) liefern tendenziell höhere Werte, während die Ergebnisse mit v7-238 (hellgrün) systematisch bei niedrigeren Werten liegen.

Tab. 6.8 Berechnete Verhältnisse A/P im Gesamtsystem für das unbestrahlte Brennelement und vier Bibliotheken

Fall	v5-44	v5-238	v6-238	v7-238	σ in %
zero	0,68738	0,68790	0,68752	0,68516	0,16
sd10	0,69403	0,69450	0,69417	0,69129	0,19
sd20	0,70090	0,70131	0,70100	0,69787	0,20
sd40	0,72209	0,72209	0,72168	0,71844	0,21
sd60	0,76020	0,75916	0,75853	0,75527	0,24
sd90	0,84170	0,84116	0,84075	0,83701	0,22
sd120	0,91424	0,91554	0,91630	0,91182	0,19
sw10	0,77195	0,77263	0,77313	0,76910	0,20
sw20	0,93046	0,93205	0,93395	0,92716	0,27
sw40	1,01995	1,02218	1,02555	1,01821	0,27
sw60	1,02742	1,02982	1,03343	1,02628	0,27
lw10	0,93379	0,93573	0,93739	0,92932	0,32
lw20	1,05779	1,06038	1,06297	1,05379	0,32
lw40	1,08065	1,08360	1,08664	1,07745	0,32
zeros	0,79890	0,80134	0,79998	0,79596	0,25
sw10s	0,88982	0,89248	0,89341	0,88774	0,25
sw20s	1,16808	1,17421	1,17806	1,16682	0,39
sw40s	1,32864	1,33739	1,34427	1,33116	0,45
sw60s	1,34163	1,35061	1,35789	1,34490	0,46

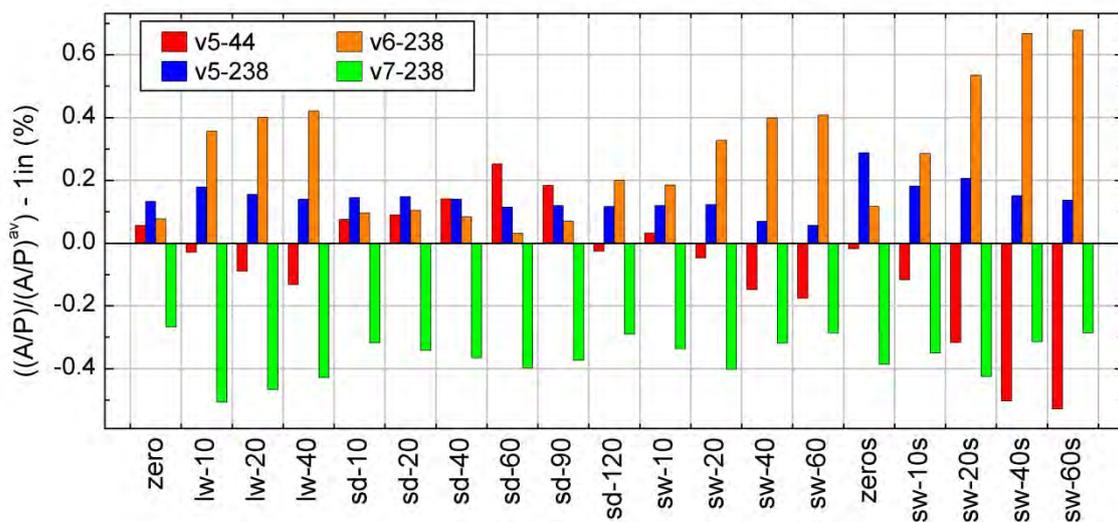


Abb. 6.9 Relative Abweichungen der berechneten Verhältnisse A/P vom Mittelwert $(A/P)^{av}$ für das unbestrahlte Brennelement und vier Bibliotheken

6.1.3.1.4 Thermische Spektralindizes

Der thermische Spektralindex SI_{th} entspricht dem Verhältnis des thermischen Flusses zum Gesamtfluss innerhalb des Brennelements. Größere Spektralindizes bedeuten ein weicherer Spektrum mit einem höheren Anteil an thermischen Neutronen, während kleinere Werte ein härteres Spektrum mit höherem Anteil an schnellen Neutronen bedeuten. Die Ergebnisse für die neunzehn Fälle des unbestrahlten Brennelements und die vier betrachteten Querschnittsbibliotheken sind in Tab. 6.9 zusammengefasst. Die Streuung des thermischen Spektralindex zeigt ein ähnliches Bild wie die des effektiven Neutronenmultiplikationsfaktors. Für den Fall *zeros* liegt der 1σ Wert mit 0,89% am höchsten, für alle andern Fälle ist er kleiner gleich 0,3%. Auch hier lässt sich eine signifikante Abhängigkeit vom Moderator material feststellen.

Tab. 6.9 Berechnete Werte von SI_{th} im Brennelementbereich für das unbestrahlte Brennelement und vier Bibliotheken

Fall	v5-44	v5-238	v6-238	v7-238	σ in %
zero	0,1170	0,1170	0,1165	0,1171	0,20
lw10	0,1613	0,1615	0,1608	0,1614	0,17
lw20	0,1618	0,1620	0,1613	0,1619	0,17
lw40	0,1618	0,1620	0,1613	0,1620	0,18
sd10	0,1274	0,1275	0,1269	0,1274	0,18
sd20	0,1333	0,1333	0,1326	0,1331	0,22
sd40	0,1407	0,1406	0,1399	0,1402	0,23
sd60	0,1450	0,1449	0,1442	0,1445	0,22
sd90	0,1474	0,1474	0,1467	0,1470	0,20
sd120	0,1479	0,1479	0,1472	0,1475	0,20
sw10	0,1549	0,1551	0,1545	0,1549	0,14
sw20	0,1598	0,1600	0,1593	0,1597	0,16
sw40	0,1601	0,1602	0,1596	0,1600	0,14
sw60	0,1601	0,1603	0,1596	0,1600	0,16
zeros	0,0359	0,0353	0,0351	0,0357	0,89
sw10s	0,0845	0,0841	0,0838	0,0841	0,30
sw20s	0,0913	0,0910	0,0906	0,0910	0,27
sw40s	0,0916	0,0913	0,0909	0,0914	0,28
sw60s	0,0917	0,0913	0,0910	0,0914	0,27

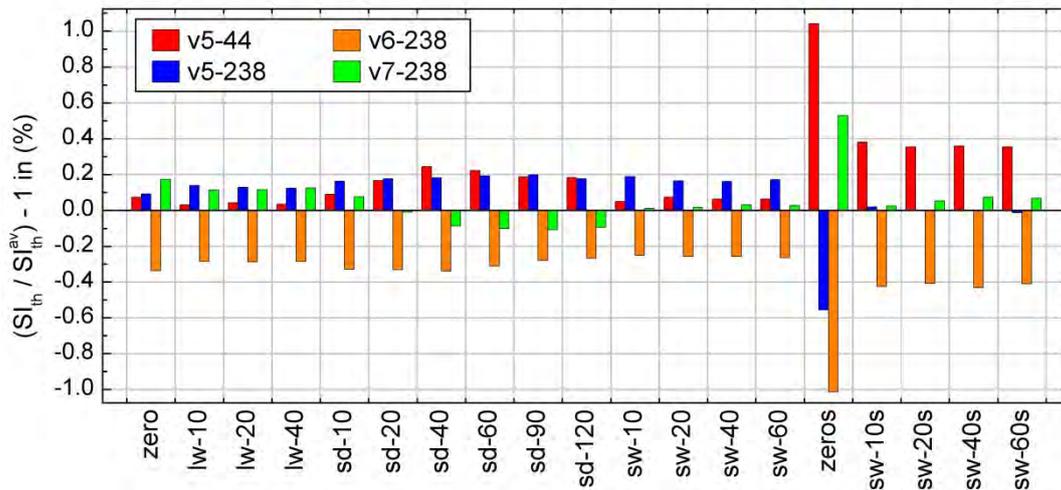


Abb. 6.10 Relative Abweichungen der berechneten Werte von SI_{th} vom Mittelwert SI_{th}^{av} für das unbestrahlte Brennelement und vier Bibliotheken

6.1.3.2 Bestrahltes Brennelement

Für das bestrahlte Brennelement wurden insgesamt 48 Fälle betrachtet. Als Model für die Berechnungen diente ein wassermodiertes Brennelement, unreflektiert oder mit einem SiO_2 (dry)-, SiO_2 (wet)- oder H_2O -Reflektor verschiedener Schichtstärken. Zur Berücksichtigung eines Abbrandes wurden zusätzliche Fallunterscheidungen nach Abbrand (30 GWd/tSM und 45 GWd/tSM) und Abklingzeit (0, 30 000 und 20 Mio. Jahre) getroffen. Die Nuklidauswahl sowie die exakten Kernzahldichten wurden durch die Spezifikation vorgegeben. Die Fallspezifikationen und die entsprechenden Bezeichnungen sind in Tab. 6.10 aufgelistet /YAM 14/. Im Fall des bestrahlten Brennelements wurden nur die effektiven Neutronenmultiplikationsfaktoren abgefragt. Die Ergebnisse sind in den Tabellen Tab. 6.11 und Tab. 6.12 zusammengefasst.

Tab. 6.10 Fallspezifikationen und -bezeichnungen des EGUNF Rechenbenchmarks für das bestrahlte Brennelement

Brennstoff ID	Abbrand (GWd/tSM)	Abklingzeit (Jahre)	Reflektormaterial und –Schichtstärke							
			0 cm	SiO ₂ (dry)			SiO ₂ (wet)		H ₂ O	
				10 cm	40 cm	120 cm	10 cm	40 cm	10 cm	40 cm
a	30	0	a-zero	sd10a	sd40a	sd120a	sw10a	sw40a	lw10a	lw40a
b		30.000	b-zero	sd10b	sd40b	sd120b	sw10b	sw40b	lw10b	lw40b
c		20 Mio.	c-zero	sd10c	sd40c	sd120c	sw10c	sw40c	lw10c	lw40c
d	45	0	d-zero	sd10d	sd40d	sd120d	sw10d	sw40d	lw10d	lw40d
e		30.000	e-zero	sd10e	sd40e	sd120e	sw10e	sw40e	lw10e	lw40e
f		20 Mio.	f-zero	sd10f	sd40f	sd120f	sw10f	sw40f	lw10f	lw40f

Tab. 6.11 Berechnete k_{eff} Werte für das bestrahlte Brennelement und vier Bibliotheken mit 30 GWd/tSM Abbrand

Fall	v5-44	v5-238	v6-238	v7-238	σ in %
30 GWd/tSM, 0 Jahre					
a-zero	0,669065	0,668351	0,666522	0,674207	0,43
sd10a	0,776802	0,776355	0,772701	0,779952	0,33
sd40a	0,882909	0,881114	0,876534	0,882950	0,30
sd120a	0,928694	0,926930	0,922914	0,928654	0,25
sw10a	0,888683	0,887550	0,883969	0,890999	0,29
sw40a	0,918122	0,916830	0,913138	0,920203	0,28
lw10a	0,877985	0,876826	0,873544	0,881913	0,34
lw40a	0,880687	0,879310	0,876002	0,884519	0,35
30 GWd/tSM, 30.000 Jahre					
b-zero	0,672649	0,672369	0,671016	0,678940	0,45
sd10b	0,782047	0,781901	0,778860	0,786405	0,34
sd40b	0,889545	0,888036	0,884213	0,891111	0,29
sd120b	0,935421	0,934136	0,930677	0,936993	0,25
sw10b	0,894254	0,893842	0,890649	0,898043	0,29
sw40b	0,923223	0,922447	0,919231	0,926912	0,30
lw10b	0,882893	0,882129	0,879547	0,888299	0,36
lw40b	0,885402	0,884627	0,881910	0,890814	0,36
30 GWd/tSM, 20 Mio. Jahre					
c-zero	0,679939	0,679770	0,678494	0,686421	0,45
sd10c	0,791687	0,791726	0,788599	0,796276	0,35
sd40c	0,901514	0,900159	0,896153	0,903096	0,29
sd120c	0,947628	0,946706	0,943207	0,949484	0,24
sw10c	0,905583	0,905132	0,901958	0,909530	0,30
sw40c	0,934642	0,934027	0,930898	0,938485	0,29
lw10c	0,893634	0,892925	0,890315	0,899141	0,36
lw40c	0,896174	0,895455	0,892740	0,901628	0,36

Tab. 6.12 Berechnete k_{eff} Werte für das bestrahltes Brennelement und vier Bibliotheken mit 45 GWd/tSM Abbrand

Fall	v5-44	v5-238	v6-238	v7-238	σ in %
45 GWd/tSM, 0 Jahre					
d-zero	0,643064	0,642496	0,640523	0,647836	0,42
sd10d	0,746410	0,746065	0,742304	0,749249	0,33
sd40d	0,848269	0,846318	0,841838	0,847823	0,30
sd120d	0,892251	0,890595	0,886582	0,891973	0,25
sw10d	0,855387	0,854374	0,850695	0,857310	0,28
sw40d	0,884055	0,882920	0,878996	0,885809	0,28
lw10d	0,845810	0,844652	0,841375	0,849295	0,33
lw40d	0,848460	0,847103	0,843938	0,851903	0,34
45 GWd/tSM, 30.000 Jahre					
e-zero	0,642353	0,642159	0,640775	0,648349	0,45
sd10e	0,746728	0,746661	0,743570	0,750935	0,35
sd40e	0,849299	0,848046	0,844002	0,850749	0,30
sd120e	0,893185	0,892055	0,888573	0,894742	0,25
sw10e	0,855438	0,854783	0,851791	0,859108	0,30
sw40e	0,883442	0,882613	0,879374	0,886876	0,30
lw10e	0,845199	0,844495	0,841763	0,850344	0,37
lw40e	0,847572	0,846768	0,844015	0,852791	0,37
45 GWd/tSM, 20 Mio. Jahre					
f-zero	0,654463	0,654331	0,652966	0,660629	0,45
sd10f	0,762307	0,762525	0,759299	0,766613	0,34
sd40f	0,868264	0,867108	0,863132	0,869792	0,28
sd120f	0,912901	0,912016	0,908353	0,914426	0,25
sw10f	0,873424	0,872948	0,869844	0,877062	0,29
sw40f	0,901552	0,900933	0,897653	0,905107	0,29
lw10f	0,862207	0,861623	0,858890	0,867401	0,36
lw40f	0,864647	0,864022	0,861264	0,869695	0,35

In Abb. 6.11 und Abb. 6.12 sind für die Abbrände von 30 GWd/tSM und 45 GWd/tSM jeweils die relativen Abweichungen der berechneten k_{eff} Werte von den Mittelwerten über die vier Bibliotheken dargestellt. In beiden Fällen liegen 1σ Abweichungen der berechneten k_{eff} Werte bei unter 0,5% wobei die Ergebnisse mit der Bibliothek v6-238 zu kleineren und mit v7-238 zu größeren Werten tendieren. Für das bestrahlte Brenn-

element lässt sich eine leichte Abhängigkeit vom Reflektormaterial und dessen Schichtstärke, insbesondere für die Querschnittsbibliothek v7-238 feststellen.

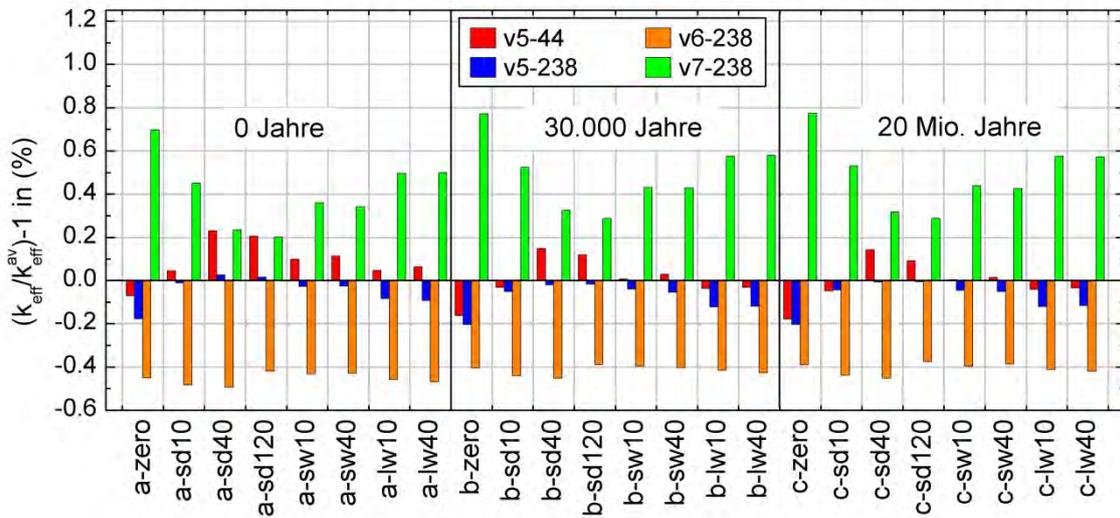


Abb. 6.11 Relative Abweichungen der berechneten k_{eff} Werte vom Mittelwert für das bestrahlte Brennelement mit 30 GWd/tSM und vier Bibliotheken

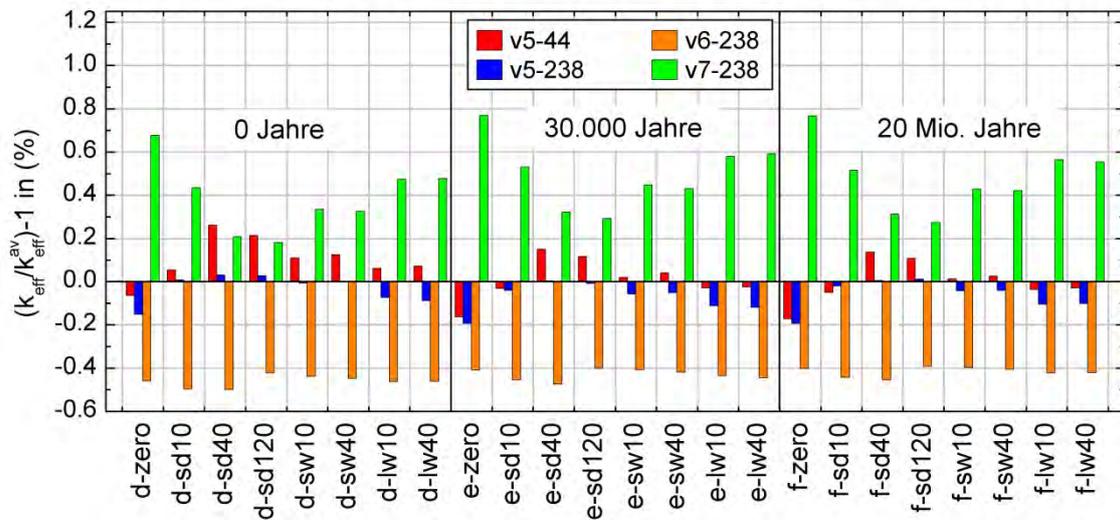


Abb. 6.12 Relative Abweichungen der berechneten k_{eff} Werte vom Mittelwert für das bestrahlte Brennelement mit 45 GWd/tSM und vier Bibliotheken

6.1.4 Zusammenfassung

Von der OECD-NEA „Expert Group on Used Nuclear Fuel“ (EGUNF) wurde ein Rechenbenchmark zur Untersuchung der Wirkungsquerschnitte zur elastischen Neutronenstreuung an Siliziumdioxid (SiO_2) hinsichtlich der Reflexionseigenschaften dieses

Materials initiiert. Die Ergebnisse lassen sich wie folgt zusammenfassen. An diesem Benchmark haben zehn Institutionen aus acht Ländern teilgenommen, darunter auch die Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH. Von der GRS wurden vier Ergebnissets eingereicht, wobei die Rechnungen mit dem SCALE Softwarepaket in der Version 6.1.2 durchgeführt wurden, unter Verwendung vier ENDF/B-basierten Querschnittsbibliotheken. Insgesamt wurden von den teilnehmenden Institutionen zwanzig Ergebnisse mit sechs verschiedenen Rechencodes in verschiedenen Versionen eingereicht. In dreizehn der zwanzig Rechnungen wurden ENDF/B-basierende Querschnittsbibliotheken eingesetzt, was sich auf die weite Verbreitung des SCALE Softwarepaketes zurückführen lässt. Neben den neueren Querschnittsbibliotheken kamen in der GRS auch ältere Bibliotheken wie v5-44 und v5-238 zum Einsatz. Die vorläufigen Ergebnisse des Benchmarks liegen den teilnehmenden Institutionen bereits vor /SUY 15/ und werden im laufenden Jahr publiziert.

Unter Berücksichtigung der Ergebnisse aller Institutionen lässt sich sagen, dass es nur vereinzelt deutliche Streuungen bei den Ergebnissen gibt. Bei den k_{eff} Werten sowie bei den Absorptions-zu-Produktionsraten A/P lassen sich bessere Übereinstimmungen feststellen als bei den Reaktionsraten oder den thermischen Spektralindizes. Im Allgemeinen liegen die 1σ Abweichungen bei den k_{eff} Werten und den Verhältnissen A/P unter 1%, während bei den Reaktionsraten und den thermischen Spektralindizes die 1σ Abweichungen bis zu 100% betragen. Werden die stark abweichenden Datensets nicht berücksichtigt, sind auch hier die Übereinstimmungen deutlich besser, die 1σ Abweichungen liegen dann nur noch bei einigen Prozent. Weiterhin lässt sich bei den Reaktionsraten ein etwas anderer Trend für ältere Bibliotheken als für die neueren feststellen.

Mit Hilfe eines Rechenbenchmarks könnte die Zuverlässigkeit von Rechenergebnissen verbessert werden, was für generische Untersuchungen, wie z. B. zur Endlagerkritikalität in unterschiedlichen Wirtsgesteinen /GMA04/ ausreicht, wobei nur bester Schätzwert-Rechnungen durchgeführt werden. Für Kritikalitätssicherheitsberechnungen im Hinblick auf Genehmigungsverfahren wäre jedoch eine Validierung anhand von Experimenten erforderlich.

6.2 Vorhabensrelevante Beiträge aus Fachkonferenzen

In den folgenden Unterabschnitten sind Beiträge zu internationalen Fachkonferenzen zusammengefasst, die sich mit der Entwicklung neuer oder aktualisierter Rechenverfahren oder Datenbanken beschäftigen. Diese werden zur Verfolgung des aktuellen Standes von Wissenschaft und Technik im Bereich numerischer Sicherheitsanalysen v. a. in Hinblick auf Kritikalität, Reaktivität und Inventarbestimmung als wichtig angesehen. Es wird jedoch kein Anspruch auf Vollständigkeit erhoben.

6.2.1 Neue Datenbank SFCOMPO (2014)

Im Jahr 2014 wird die neue OECD-NEA Datenbank SFCOMPO (2014) voraussichtlich veröffentlicht /SEN 14/ [Anm.: Zu Redaktionsschluss der vorliegenden Arbeit im März 2016 besitzt diese Datenbank nach wie vor Beta-Status und trägt mittlerweile die Bezeichnung SFCOMPO 2.0]. Sie enthält die Nuklidzusammensetzungen von abgebrannten Brennstoffen und relevante Betriebsdaten der entsprechenden Reaktoren. Sie erweitert die bisherige Datenbank SFCOMPO erheblich und umfasst jetzt doppelt so viele Proben (500) aus 40 verschiedenen Quellen von 30 unterschiedlichen Reaktoren unterschiedlichster Bauarten. Diese acht verschiedenen Typen beinhalten Druckwasserreaktor, Siedewasserreaktor, VVER 440, VVER 1000, RBMK, Magnox, AGR und CANDU.

Für die GRS von besonderem Interesse ist, dass zurzeit weitere 217 Proben aus insgesamt elf Siedewasserreaktoren aufgenommen und in die Datenbank integriert werden. Diese sollten in Kürze zur Verfügung stehen, und bei aktuellen Vorhaben eine verbesserte Validierung der Genauigkeit von Abbrand-Rechnungen erlauben.

Die auf einer eigenständigen JAVA-Anwendung basierende Datenbank enthält eine umfassende Suchfunktion, ausführliche Quellenangaben und diverse Anzeige und Ausgabeformate. Diese ermöglichen die direkte Ausgabe von Nuklidkonzentrationen bzw. die Ausgabe jeder erdenklichen Abhängigkeit innerhalb der Datenbank. Die Erweiterungen ermöglichen einen direkten und standardisierten Zugang zu Messungen von Nuklidzusammensetzungen, was die Validierung von Abbrandprogrammen stark vereinfachen soll.

6.2.2 Neue Methode der PSI zur Quantifikation von Herstellungs- und technologischen Unsicherheiten

Das Paul Scherrer Institute (PSI) aus der Schweiz hat das neue Verfahren MTUQ entwickelt, das es erlaubt den Einfluss von technologischen und Herstellungsunsicherheiten auf Kritikalitätsrechnungen mit Hilfe des Monte Carlo Verfahrens zu untersuchen. Dabei wird die – auch in der GRS eingesetzte – Software ROOT verwendet um die Zufallszahlen entsprechend vorgegebener Verteilungen zu erzeugen und die Programmiersprache R zur statistischen Auswertung der Ergebnisse. Die vorgestellte Methodologie erlaubt die Variation individueller Elemente von „repeated structures“ in MCNPX. Zusätzlich können für die Variablen Einschränkungen angegeben werden, z. B. dass der Hüllrohrinnendurchmesser größer sein muss als der Brennstoffaußenradius.

Für die GRS ist diese Neuerung von besonderem Interesse, da sie der Erweiterung der SUnCISTT Methodik auf individuell variierten Brennstabparametern ähnelt und so eine unabhängige Bestätigung der erzielten Ergebnisse erlaubt.

6.2.3 Neue Fähigkeiten und Daten in der DICE 2013 Datenbank

Um die Anwendbarkeit und Genauigkeit von Kritikalitätsrechnungen auf einen Anwendungsfall zu belegen, wird der verwendete Code mit Hilfe von Nachrechnungen von kritischen Experimenten validiert. Eine Zusammenfassung dieser evaluierten Experimente findet sich im International Handbook of Evaluated Criticality Safety Benchmark Experiments des International Criticality Safety Benchmark Evaluation Project (ICSBEPE) /NEA 13/. Mit diesem Handbuch wird die Datenbank DICE geliefert, die eine Kategorisierung und zielgerichtete Auswahl dieser Experimente erlaubt. DICE wurde in den letzten Jahren mit Sensitivitätsdaten der meisten Fälle signifikant erweitert und entsprechende Suchfunktionen wurden implementiert. Hierbei bezeichnet Sensitivität die relative Änderung von k_{eff} mit einer relativen Änderung der nuklearen Querschnitte.

Zusätzlich beinhaltet DICE nun die Möglichkeit von aufwendigen Trendanalysegraphiken, indem die Daten nach zahlreichen Parametern gruppiert und gefiltert werden können. Das Importieren von eigenen Daten, z. B. k_{eff} Berechnungen, kann für die Suche und Trendanalysegraphiken verwendet werden. DICE steht nun auch als Webapplikation zur Verfügung.

Diese Neuerungen erlauben eine deutlich schnellere und bessere Eingrenzung von kritischen Experimenten, die für den jeweiligen Anwendungsfall relevant sind. Gerade in Bezug auf die Integration von Korrelationen zwischen Experimente für die Validierung wird die Datenrecherche erheblich vereinfacht, indem man gewünschte Beziehungen gezielt vorauswählen und im folgenden Verlauf untersuchen kann.

6.2.4 Quantifizierung von Undersampling durch zu wenig Neutronen pro Generation bei Monte Carlo Simulationen

Vorgestellt wurden der Beitrag des Oak Ridge National Laboratory (ORNL) zum Benchmark der Organisation for Economic Cooperation and Development Nuclear Energy Agency (OECD-NEA) Working Party on Nuclear Criticality Safety's (WPNCS) Expert Group on Advanced Monte Carlo Techniques (AMCT) der das Ziel verfolgt die Stärke, Häufigkeit, und den Einfluss von Verzerrungen (Bias) bei Eigenwertberechnungen, Reaktionsratenmessungen, und Tally-Variationsschätzungen zu bestimmen. Außerdem sollen bewährte Verfahren gegeben werden um die Verlässlichkeit von Monte Carlo Simulationen zu maximieren, indem der Einfluss von Undersampling minimiert wird.

Mit extensiven Rechnungen wurde das Undersampling für verschiedene Systeme untersucht: 2D Viertelkern, 3D Kern mit reflektierenden Randbedingungen, 3D Viertelkern, 2D Lagerbehälter, 3D Lagerbehälter mit reflektierenden Randbedingungen und 3D Lagerbehälter. Die Rechnungen haben gezeigt, dass bei zu wenigen Neutronen pro Generation ($NPG < 4000$) ein signifikanter Bias auftreten kann, der bis zu 100 pcm für k_{eff} und bis zu 20% bei dem normalisierten lokalen Neutronenfluss für $NPG = 100$ erreichen kann. Je größer und komplexer das simulierte Modell ist, desto gravierender ist der Einfluss des Undersamplings, da unter Umständen nicht das gesamte Modell ausgeleuchtet wird.

Die Arbeit zeigt, dass es bei Kritikalitätsrechnungen nicht nur wichtig ist, den Monte Carlo Fehler entsprechend klein zu wählen, sondern auch auf eine ausreichende Neutronenstatistik zu achten. Vor allem für große, sehr heterogene Modelle mit starken Aktivitätsunterschieden sollte man vor den eigentlichen Rechnungen überprüfen, dass kein Undersampling auftritt.

6.2.5 ICSBEP Kritikalitätsrechnungen mit der ENDF/B-VII.1 Querschnittsbibliothek

Das kürzlich veröffentlichte Monte Carlo N-Teilchen-Transportprogramm MCNP6.1 /GOO 13/ enthält nun auch neue ACE Querschnittsdatendateien (.80c), die auf der ENDF/B-VII.1 Querschnittsbibliothek aufbauen /CON 13/. Dies ermöglicht neue, erweiterte und verbesserte Kritikalitätsrechnungen basierend auf dieser neuen, 2011 veröffentlichten Querschnittsbibliothek ENDF/B-VII.1 /CHA 11/, z.B. aus dem ICSBEP Handbook /NEA 13/. Dieses Handbuch beinhaltet Evaluationen von tausenden Kritikalitätsexperimenten mit unterschiedlichsten Konfigurationen. Darunter sind Brennstoffe aus hoch-, mittel- und niedrigangereichertem ^{235}U , ^{233}U , ^{239}Pu oder Mischungen davon. Der Brennstoff kann in flüssiger, metallischer oder Molekülform vorliegen. Das Spaltspektrum kann thermisch, mittel, schnell oder gemischt sein. Aus dieser großen Anzahl von Experimenten wurden in der Vergangenheit im Laufe der Zeit 1000 ausgewählt und in MCNP nachgebildet. Mit der neuen Querschnittsbibliothek konnten vor allem bei folgenden Experimentgruppen Verbesserungen beobachtet werden:

- Bei hochangereicherter flüssiger Uranlösung mit thermischem Spektrum konnte der früher beobachtete Trend in Abhängigkeit der Neutronenleckage und der daraus resultierende Bias vollständig entfernt werden.
- Bei der Berechnung von Plutonium Eigenwerten (k_{eff}) konnte der seit langem vorhandene Bias von 500 pcm etwa halbiert werden.
- Bei der Berechnung von wassermoderierten, niedrig angereicherten UO_2 Brennstäben konnte der systematische Bias von etwa -500 pcm eliminiert werden. Diese Experimente sind aus offensichtlichen Gründen von hohem Interesse für die Reaktorgemeinde.

All diese Verbesserungen stellen einen großen Fortschritt auf dem Gebiet der Querschnittsbibliotheken dar. Darüber hinaus zeigen z. B. Nachrechnungen von ^{233}U Experimenten, deren Reaktivität eine Streuung von 5% aufweist, dass weitere Arbeit für die Optimierung von Querschnittsbibliotheken notwendig ist /KAH 14/.

6.2.6 Reaktivierung der Kritikalitätssicherheitsforschung der japanischen Atomenergiebehörde

Nach der Havarie des Kernkraftwerks Fukushima Daiichi (1FNPS) 2011 mit anschließenden Kernschmelzen in drei Reaktorblöcken ist die Verteilung und der Zustand von

etwa 270 Tonnen Kernbruchstücken („debris“) ungeklärt. Daraufhin hat die japanische Atomenergiebehörde ihr Forschungsprogramm zur Kritikalitätssicherheit mit dem Namen STACY (Static Critical Experiment Facility) reaktiviert /TON 14/. Dieses war in den 1980er Jahren zur Untersuchung von Sicherheitsaspekten von Wiederaufbereitungsanlagen gestartet worden. Die neue Ausrichtung widmet sich der Untersuchung von Brennstoff Bruchstücken durch Kritikalitätsrechnungen der großen Vielzahl an möglichen Bruchstückkonfigurationen in den Reaktorblöcken, Validierung der Rechnungen durch Experimente und der Entwicklung von Kritikalitätsrisiko Analysemethoden. STACY wird zurzeit für die experimentellen Untersuchungen umgebaut und erhält einen heterogenen Kern aus wassermoderierten, 5 % angereicherten UO_2 Brennstäben, deren $V_{\text{Moderator}}/V_{\text{Brennstoff}}$ Verhältnis zwischen 0,9 und 11 variiert werden kann. Zusätzlich können verschiedenen Strukturmaterialien und pseudo-Brennstoff-Bruchstücke in die Konfiguration eingebracht werden um den reaktiven Wert letzterer messen zu können. Erste Experimente wurden für 2015 erwartet. Bei der Entwicklung der Kritikalitätsrisikoanalyse wird die Einbeziehung der enormen Unsicherheiten der Konfiguration der Brennstoff-Bruchstücke im Kern die größte Herausforderung sein.

6.2.7 Bemerkungen zur Validierung von Kritikalitätssicherheits- und Reaktorphysik-Rechnungen

Die heutzutage verwendeten Algorithmen für Kritikalitätsrechnungen weisen vernachlässigbare Unsicherheiten auf, sodass die Validierung von entsprechenden Rechnungen auf die Validierung von nuklearen Daten reduziert werden kann. Diese erzeugen teilweise bis zu 2% Unsicherheit von k_{eff} . Da die Unsicherheiten der Benchmark-Experimente meist kleiner sind, muss höchste Sorgfalt angewandt werden, dass diese richtig bestimmt werden, da es sonst sehr schnell zu falschen Bias-Werten kommen kann. Vor allem bei hohen experimentellen Genauigkeiten ist es essenziell, dass deren Werte korrekt sind. Korrelationen zwischen Unsicherheiten von ähnlichen Experimenten müssen ebenso berücksichtigt werden. Wird bei Reaktorsicherheitsbewertungen von Mockups auf reelle Reaktoren extrapoliert, müssen Unsicherheiten konsistent propagiert werden.

Ein bevorzugter Validierungsprozess selektiert die Benchmark Experimente aufgrund einer rigorosen Repräsentativitätsanalyse, bewertet Unsicherheiten aufgrund von nuklearen Daten und kombiniert nukleare und integrale Daten um eine beste Abschätzung des Bias und der Unsicherheit des Zielsystems zu geben /IVA 14/.

6.2.8 Untersuchungen von k_{eff} vs. Bruchteil der kritischen Masse

Bei kritischen Experimenten wird typischerweise Brennstoff schrittweise der kritischen Anordnung hinzugefügt um sich so langsam $k_{\text{eff}} = 1$ anzunähern. Dabei wird vor dem Hinzufügen die zu erwartende Änderung von k_{eff} berechnet, damit die Werte im sicheren und erstrebten Bereich bleiben. Dabei wurde folgende Gesetzmäßigkeit für metallische und Lösungssysteme mit hochangereichertem Uran und waffenfähigem Plutonium gefunden:

$k_{\text{eff}} = \left(\frac{m}{m_c}\right)^E$. m steht für die Masse nach dem Hinzufügen, m_c für die kritische Masse. Der Exponent E hat einen Wert von 0,3 für metallische Systeme und 0,25 für Lösungen. Für ein System aus hochangereichterten Uranfolien, die mit Lucite umgeben und dadurch moderiert werden, wurde untersucht, welcher Exponent das experimentelle Verhalten besser beschreibt. Dieses metallische System verhält sich neutronisch eher wie eine Lösung, da durch die hohe Moderation 93% der Spaltungen durch thermische Neutronen ausgelöst werden. Simulationen mit MCNP und Vergleiche mit dem Experimente haben gezeigt, dass der Wert 0,3 (metallische Systeme) zwar konservativ ist, dass aber die Verwendung von 0,25 (Lösungen) das System mit höherer Genauigkeit beschreibt. Nahe von $k_{\text{eff}} = 1$ ist dieser Ansatz einem Fit mit natürlichem Logarithmus gleichwertig:

$k_{\text{eff}} = A \ln\left(\frac{m}{m_c}\right)$, $A = 0,24$ /HUT 14/.

6.2.9 WPEC SG38: Design eines neuen Formats zur Speicherung nuklearer Daten

Das Datenformat ENDF (Evaluated Nuclear Data Format) wird seit fast 50 Jahren zur Speicherung von nuklearen Daten verwendet. Während es in der Vergangenheit von großem Nutzen war, zeigt es mittlerweile auch bedeutende Nachteile, da es auch durch die sich rasant entwickelnde Computertechnologie teilweise überholt ist. Die Nachteile sind vor allem die Begrenzung der speicherbaren Datentypen, die limitierte erreichbare numerische Präzision, die begrenzende Möglichkeit Text nur an den Anfang jeder Datei zu stellen und die schwierige direkte Lesbarkeit für den Benutzer. Aus diesen Gründen hat die Arbeitsgruppe für Auswertungszusammenarbeit der OECD-NEA die Unterabteilung (subgroup) SG38 gebildet, um einen modernen Ersatz für ENDF zu implementieren. Dieser muss flexibel, ausbaufähig, sowohl menschen- als auch computerlesbar sein und dem aktuellen Stand der Computertechnologie wieder spiegeln. Das neue Format muss folgende Voraussetzungen erfüllen: Die nuklearen

Daten müssen in einer hierarchischen Struktur gespeichert werden, die unserem Verständnis der nuklearen Reaktionen und Zerfälle entspricht. Alle Projektil/Ziel-Kombinationen müssen unterstützt werden. Die Rückwärtskompatibilität muss möglichst lange sichergestellt werden. Es sollten wiederverwendbare low-level Datencontainer verwendet werden, um sie auch für andere, ähnliche Datenstrukturen verwenden zu können, z. B. EXFOR, ENSDF, RIPL. Die Erstellung einer standardisierten Eingabe- und Ausgabeschnittstelle ist vorgesehen. Erweiterte Dokumentationsmöglichkeiten über die Art der Evaluation oder welche experimentellen Daten verwendet wurden. Beseitigung von Inkonsistenzen vor allem der nuklearen Massen. Dabei soll eine langfristige Regulierung durch eine OECD-NEA Unterabteilung durchgeführt werden. Zusätzlich sollte die neue Datenstruktur die explizite Speicherung von Einheiten, das Interpolieren der Daten, die mehrfache Speicherung derselben Daten (z. B. evaluiert und nicht evaluiert) erlauben und tolerante Zugriffsroutinen besitzen /MAT 14/.

6.2.10 Methoden zur Kapazitätserweiterung von Brennelement-Lagerbecken und Trockenbehältern

Der Unfall im Kernkraftwerk Fukushima Daiichi hat gezeigt, dass die Brennelement-Lagerbecken im Fall eines Ausfalls der aktiven Kühlung eine größere Sicherheitsspanne benötigen. Eine Möglichkeit ist der Austausch des Kühlmittels Wasser mit z. B. Hitec, einer Salzschnmelze, die über 142 °C flüssig ist und erst bei 538 °C siedet. Aufgrund dieser großen Differenz ergibt sich eine Vergrößerung der Zeitspanne, bis die Kühlwirkung des Lagerbeckens nicht mehr gewährleistet wird, um etwa eine Größenordnung.

Aufgrund fehlender Endlagerstätten werden sich Engpässe bei der Zwischenlagerung in Trockenbehältern ergeben. Um die Brennstoffdichte in den Behältern zu erhöhen ohne eine Rekritikalität auszulösen, könnten die Brennstäbe mit einem Neutronengift beschichtet werden. Eine Möglichkeit ist das Aufbringen einer 0,002 mm dicken $^{60}\text{Zn}^{40}\text{Cd}$ Schicht in einem 640 °C heißen Legierungsbad, nachdem die Brennstaboberfläche mit einer Säure angeätzt wurde. Rechnungen haben ergeben, dass der Wert von k_{eff} damit in Wasser um gut 30 % von 0,8469 auf 0,6037 sinkt. In Salzschnmelze, in Luft (keine Kühlung) und in Helium (Trockenlagerung) liegt k_{eff} damit unter 0,2. Um die Methode im großtechnischen Maßstab anzuwenden und zu belegen, dass die Temperaturbedingungen bei der Trockenlagerung nicht zu einem Versagen der Beschichtung führen, sind weitere Untersuchungen notwendig /GIT 14/.

6.2.11 Untersuchung der Folgen von Neukonfigurationen von Kernbrennstoff bei Trockenlagerung und Transportgebinden

Da es noch kein nukleares Endlager für hochradioaktive Abfälle in den USA gibt, werden abgebrannte Kernbrennstoffe länger in den Zwischenlagern verbleiben, als die ursprüngliche Zertifizierung der Trockenlagerbehälter dies zulässt. Zusätzlich sind heute Abbrände mit hohen Werten von >45 GWd/tSM üblich. Die spärliche Datenlage für Langzeitlagerung von hochabgebrannten Brennstoffen bezüglich mechanischer Eigenschaften und Alterungserscheinungen des Brennstoffs und der Hüllrohre wurde erweitert. Dabei wurden ein Behälter mit 32 17x17 Druckwasserreaktorbrennelementen und ein Behälter mit 68 10x10 Siedewasserbrennelementen betrachtet und hinsichtlich der Kritikalität, der Abschirmung, des Einschlusses und der thermischen Eigenschaften unter normalen, unnormalen und Unfall-Situationen bei der Lagerung, und normalen und Unfall Situationen beim Transport untersucht. Es wurden Hüllrohrbrüche, Brennstab- und Anordnungs-Deformationen und Änderungen der Axialen Ausrichtung, jeweils ohne Hüllrohrbruch, untersucht. Im Vergleich zum intakten Nominalfall zeigen die meisten der untersuchten Konfigurationen keinen gravierenden Einfluss auf die untersuchten Gebiete. Nichtsdestotrotz zeigen Fälle mit axialer Umordnung von Brennstoff signifikante negative Effekte auf Kritikalität und Dosisleistungen auf der Oberfläche der Behälter /SCA 14/.

6.2.12 Sensitivitätsstudien über die Integrität von abgebranntem Kernbrennstoff während normalen Transportbedingungen

Erste Simulationen über die mechanische Integrität der Hüllrohre von abgebranntem nuklearen Brennstoff während normalem Schienentransport über 3000 Meilen zeigen für die verwendeten Spezifikationen der Brennelemente und Transportbehälter keinen Verlust der strukturellen Integrität. Wegen den hohen Unsicherheiten der zahlreichen Parameter wurde auch eine Sensitivitätsanalyse durchgeführt, die zwischen hoher, mittlerer, geringer und keiner Sensitivität unterscheidet. Hohe Sensitivität zeigen die Elastizitätsmodule der Hüllrohre, die Steifigkeit der Haltegitter, die axiale Positionen der Haltegitter, und die Abstände zwischen den Brennelementen und der inneren Tragstruktur. Mittlere Sensitivität wurde für die Position des Brennelements im Haltegitter, für die Art der Kontrollkomponenten, den reaktorinternen Reibverschleiß und die Brennstoffpellet- zu Hüllrohrbindung gefunden. Geringe Sensitivität zeigten die Position des Brennstabes innerhalb eines Brennelements, die Temperaturverteilung, die Brenn-

stabdämpfung, und der Brennstabinnendruck. Diese Befunde können den Weg für zukünftige Forschung in diesem Bereich aufzeigen /SAN 14/.

6.2.13 Bestimmung experimenteller Korrelationen unter Benutzung der Sampler Sequenz von SCALE Version 6.2

Die neue Rechensequenz Sampler, die in der nächsten Programmversion von SCALE (6.2) zur Verfügung stehen wird, wurde vom Oak Ridge National Laboratory benutzt, um experimentelle Korrelationen der sieben Fälle der Experimentserie LEU-COMP-THERM-042 aus dem ICSBEP Handbook /NEA 13/ zu ermitteln. Sampler ermöglicht das Sampling mit Variationen quasi aller Werte für alle Sequenzen im SCALE Paket. Dem Benutzer stehen Gleichverteilung, Normalverteilung und Betafunktion zur Verfügung. Dabei können einzelne Parameter für mehrere Fälle gemeinsam variiert werden um Korrelationen der experimentellen Parameter zu berücksichtigen. Der dreistufige Sampler Prozess beinhaltet die Erstellung der Eingabedateien mit variierten Parametern, die Ausführung der eigentlichen SCALE Rechnungen und eine Nachbearbeitung. In dieser können z. B. die experimentellen Korrelationen zwischen Experimenten ermittelt werden. Die Serie LEU-COMP-THERM-042 zeigt Korrelationen von 0,784 bis 0,854 ohne erkennbaren Trend für einzelne Fälle. Die Bestimmung der Unsicherheiten und vor allem der Grad der Korrelation zwischen den Experimenten ist aufgrund von fehlenden Angaben in den Experimentbeschreibungen häufig äußerst schwierig. Dies wird dadurch erschwert, dass die kritischen Experimente vor mehreren Jahrzehnten durchgeführt wurden. Dadurch sind teilweise Unterlagen verloren gegangen und die Experimentatoren können nicht mehr ohne weiteres zu Details der Experimente befragt werden. Parameterstudien haben gezeigt, dass die Korrelation zwischen den Experimenten hauptsächlich durch die gemeinsame Variation des Brennstababstandes bedingt ist /MAR 14a/.

6.2.14 Auswertung von Spitzen-Reaktivitäts-Analysen von Reaktorbrennstoffen aus Siedewasserreaktoren in Transport- und Lagerbehälter

Das Oak Ridge National Laboratory hat die Möglichkeiten zu Abbrandkredit für Siedewasserreaktorbrennstoff in Transport- und Lagerbehältern und Abklingbecken untersucht. Die Rechenkette besteht aus Abbrand-Rechnungen mit TRITON (2D) und Reaktivitätsberechnungen mit KENO, beide aus dem SCALE Paket. Diese wurde auf das Brennelementdesign GE14 in dem generischen Siedewasserbrennelementbehälter

GBC-68 mit 68 Brennelementen angewendet. Von Rechnungen mit detaillierten und komplizierten Modellen wurde ein konservatives Baseline Szenario eines vereinfachten Modells gefunden, um mit diesen Sensitivitätsanalysen durchführen zu können. Es wurde untersucht, welchen Einfluss der Gadolinium-Gehalt pro Brennstab, die Anzahl der Gadolinium-Stäbe, die Anordnung der Gadolinium-Stäbe, der Dampfblasengehalt, die Einfahrtiefe der Regelplatten, und die Fahrweisen des Kerns auf die Reaktivität der Brennstoffanordnung haben unter einer Berücksichtigung von fünf Jahren Abklingzeit nach der Bestrahlung. Die Analyse hat gezeigt, dass die Anzahl der Gadoliniumstäbe die Reaktivität am Beginn der Lebensdauer beeinflusst, während ein höherer Gadolinium-Gehalt die Reaktivitätsspitze abschwächt und zeitlich nach hinten verschiebt. Der Gadoliniumgehalt hat außerdem den größten Einfluss auf die Spitzenreaktivität aller untersuchten Parameter. Bei der Betrachtung von Aktinoiden und Spaltprodukten zeigen die Anordnung der Gadolinium-Stäbe und der Dampfblasengehalt einen moderaten Einfluss. Die Variation der Brennstofftemperatur, der lokalen Leistungsdichte und Operation zwischen Volllast und halber Leistung zeigten sehr geringen bis gar keinen Einfluss /MAR 14b/.

6.2.15 Validierung von k_{eff} Rechnungen für Brennstoff aus Siedewasserreaktoren bei Spitzen-Reaktivität in Transport- und Lagerbehältern

Das Oak Ridge National Laboratory hat die Validierung von k_{eff} Rechnungen für Brennstoff aus Siedewasserreaktoren bei Spitzen-Reaktivität untersucht. Die Ermittlung von geeigneten kritischen Experimenten stellt sich als schwierig heraus, da der Brennstoff bei den geringen Abbränden bei Spitzen-Reaktivität schon eine merkbare Menge an Plutonium enthält, während die Anreicherung von Uran noch deutlich über dem Wert von natürlichem Uran liegt. Diese Bedingungen liegen bei kritischen Experimenten typischerweise nicht vor. Mithilfe von TSUNAMI /REA11/ aus dem SCALE Paket /SCA11/ wurde die Korrelationen zwischen Experimenten und dem Anwendungsfall des generischen GBC-68 Behälters aufgrund von Unsicherheiten der nuklearen Daten, c_k , ermittelt. Es wurden insgesamt 1643 kritische Experimente verglichen, gesammelt aus der VALID Datenbank des ORNL /SCA12/, Daten produziert von der NEA /MAR13/ und Sensitivitätsdaten, die im NUREG/CR-7109 benutzt wurden /HIL13/. Davon blieben nur gut 50 Experimente mit Korrelationen über 0,8 übrig, je nach Simulationsbedingungen, wobei die 44 Experimente mit den höchsten c_k Werten aus drei Serien mit demselben Brennstoff stammen. Eine vorläufige Biasanalyse ergibt Werte von $\Delta k \sim -0,003$. Allerdings beinhaltet keins der Experimente Plutonium, Gadolinium

oder andere Aktinoiden und Spaltprodukte. Diese Lücke zwischen Anwendungsfall und Experimenten kann durch eine Reaktivitätsstrafe beachtet werden die zwei Standardabweichungen der Sensitivität beträgt. Für Pu und Am ergeben sich 0,3%, für das Restgadolinium 0,05% und für die Hauptspaltungsprodukte 0,06% Abweichung. Zusammen sind die Effekte klein genug, dass der von NUREG/CR-7109 empfohlene Wert von 1,5% konservativ abdeckend ist. Neue kritische Experimente mit einer Uran-Plutonium Mischung, die für niedrig abgebrannten Brennstoff repräsentativ ist, könnten die Validierung von SWR Spitzen-Reaktivitäten deutlich verbessern. Die Validierung mit vorhandenen kritischen Experimenten stellt aber keine Beschränkung dar, die eine Berücksichtigung von Abbrandkredit für SWR Brennelemente verhindern würde /MAR 14c/.

Quellenverzeichnis

- /ASH 12/ Ashley et al., 2012:
<http://www.nature.com/nature/journal/v492/n7427/full/492031a.html>
- /AVS 13/ American Vacuum Society, 2013: <https://avs.org/AVS/files/06/0618ab89-b086-42eb-a966-7e5f6c2ed557.pdf>.
- /BAE 13/ Bae et al., 2013:
https://inis.iaea.org/search/search.aspx?orig_q=RN:45082131.
- /BAE 14/ Bae et al., 2014:
http://www.kns.org/kns_files/kns/file/177%B9%E8%B0%F8%C8%C6.pdf.
- /BEH 14/ Behler M., Bock M., Stuke M., Wagner M.: „Stochastische Methoden zur Quantifizierung von Sensitivitäten und Unsicherheiten in Kritikalitätsanalysen“, GRS-319, Garching, Juni 2014.
- /BHA 13/ Bhabha Atomic Research Centre, 2013:
<https://aris.iaea.org/sites/..%5CPDF%5CAHWR.pdf>.
- /CAM 12/ University of Cambridge, 2012:
<http://www.cam.ac.uk/research/news/proliferation-warnings-on-nuclear-wonder-fuel>.
- /CAM 98/ E.M. Campbell, “Laser Programs, the first 25 years, 1972-1997”, UCRL-TB-128043 (1998).
- /CAN 14/ Candu Energy Inc., 2014:
http://www.nuclear.ro/conference/nuclear%202014/prezentari_sesiuni_plenary/An_Overview_of_the_enhanced_CANDU-6_Capabilities_for_Plutonium_Stockpile_Disposition_and_Advanced_Fuel_Cycles.pdf.

- /CHA 11/ M.B. Chadwick et al: ENDF/B-VII.1 Nuclear Data for Science and Technology: Cross Sections, Covariances, Fission Product Yields and Decay Data, Nuclear Data Sheets, 112, 2887, 2011.
- /CON 13/ J.L. Conlin et al: Continuous Energy Neutron Cross Section Data Tables Based upon ENDF/B-VII.1, LA-UR-13-20137, February 2013.
- /DAV 77/ J.I. Davis, R.W. Davis (1977). Some Aspects of the Laser Isotope Separation Program at Lawrence Livermore Laboratory, AIChE Symposium Series, 73, n. 169, 69-75.
- /DIN 12/ Deutsches Institut für Normung (DIN) e.V., DIN 25403 „Kritikalitätssicherheit bei der Verarbeitung und Handhabung von Kernbrennstoffen“, Teile 1 bis 8, Beuth Verlag, Berlin, 2012.
- /DIN 14/ Deutsches Institut für Normung (DIN) e.V., „Zurückziehung von DIN 25403-7:1996-08 "Kritikalitätssicherheit bei der Verarbeitung und Handhabung von Kernbrennstoffen - Teil 7: Kritikalitätsdaten für niedrig angereicherte Urandioxid-Stabgitter in Wasser", Schreiben vom 04.06.2014, Dokument NA 062-07-45 AA N497, Berlin, 2014.
- /DPG 12/ Deutsche Physikalische Gesellschaft (DPG): Physik konkret Nr 11: "SILEX: Risiko Uran-Anreicherung", www.physikkonkret.de, März 2012.
- /EER 03/ J.W. Eerkens, W.H. Miller, "Laser Isotope Separation Employing Condensation Repression", 8th Workshop on Separation Phenomena in Liquids and Gases (SPLG 2003), Oak Ridge, TN, USA, 12-16 October 2003.
- /EER 10/ J.W. Eerkens, J. Kim, "Isotope Separation by Selective Laser-Assisted Repression of Condensation in Supersonic Free Jets," American Institute of Chemical Engineers (AIChE) Journal, September 2010, vol. 56, no. 9, pp. 2331-2337. doi: 10.1002/aic.12212.
- /EER 76/ J.W. Eerkens: *Spectral Considerations in the Laser Isotope Separation of Uranium Hexafluoride*. Applied Physics. 10, 1976, S. 15–31.

- /EER 98/ J.W. Eerkens, "Separation of isotopes by laser-assisted retardation of condensation (SILARC)", *Laser and particle beams*, 1998, vol. 16, no2, pp. 295-316; ISSN 0263-0346 (1998).
- /ENG 16/ <http://digitizer.sourceforge.net/> zuletzt besucht am 20.01.2016.
- /EPS 13/ Engineering and Physical Sciences Research Council, 2013:
<http://www.epsrc.ac.uk/newsevents/news/thoriumimprovednucleardesign/>.
- /FIE 03/ I.B.Fiero et al., „Implementation of Zirconium Diboride Burnable Absorber Coatings in CE Nuclear Power Fuel Assembly Designs“, WCAP-16072-NP Revision 00, April 2003.
- /FUS 13/ W. Fuß, „Laserisotopentrennung und Proliferation“, DPG-Frühjahrstagung, Dresden, 7. März 2013.
- /GIT 14/ D. Giltneane, D. Gotthold, S. Langford, M. Ratliff, J. Shewmaker, C. Wiggins: Method to Enhance Spent Fuel Pool and Dry Cask Storage, ANS Winter Meeting and Nuclear Technology Expo, Anaheim, NC, November 09–13, 2014.
- /GMA 04/ Gmal B. et. al. Untersuchungen zur Kritikalitätssicherheit in der Nachbetriebsphase eines Endlagers für ausgediente Kernbrennstoffe in unterschiedlichen Wirtsformationen, GRS-A-3240, Garching, Dezember 2004.
- /GOO 13/ Goorley J.T., et al., "Initial MCNP6 Release Overview - MCNP6 version 1.0", LA-UR-13-22934 (2013).
- /GOO 94/ Goossens M., Mittelbach F., Samarin A.: *The LATEX Companion*. Addison-Wesley, Reading, Massachusetts, 1994.
- /GRS 13/ Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS): Handbuch zur Kritikalität. GRS gGmbH, Arbeitsfassung, März 2013.
- /GRS 15/ Kilger R. (Ed.), GRS "Handbuch zur Kritikalität Band 1: Kritikalität und nukleare Sicherheit", GRS-379, Garching, Juli 2015.

- /HES 09/ K. W. Hesketh, „Burnable Poisons in Nuclear Fuels“, in Concise Encyclopedia of Materials for Energy Systems, Elsevier, ISBN : 9780080964966, (2009).
- /HIL 13/ I. Hill, J. Gulliford, J. B. Briggs, B. T. Rearden, and T. Ivanova: Generation of 1800 new sensitivity data files for ICSBEP using SCALE 6.0, Transactions of the American Nuclear Society, 109(1), 867-869, November 2013.
- /HUR 15/ C. Hurst, „Fuel for Thought: The Importance of Thorium to China“, Institute for the Analysis of Global Security (IAGS), 2015.
- /HUT 14/ J. Hutchinson, T. Cutler, R. Sanchez, M. Mitchell, D. Hayes: Investigation of k_{eff} Versus Fraction of Critical Mass, ANS and embedded topical meeting nuclear fuels and structural materials, Reno, NV, June 15-19.
- /IAE 14/ IAEA General Conference, “Nuclear Technology Review 2015”, Item 16 of the provisional agenda, (GC(58)/1, Add.1 and Add.2), p.16, (2014).
- /IAE 16/ IAEA Power Reactor Information System (PRIS), Beloyarsk-4, <https://www.iaea.org/PRIS/CountryStatistics/ReactorDetails.aspx?current=451>, Stand: 22. April 2016.
- /IPY 07/ Pérez F., Granger B. E., *IPython: A System for Interactive Scientific Computing, Computing in Science and Engineering*, vol. 9, no. 3, pp. 21-29, May/June 2007, doi:10.1109/MCSE.2007.53. URL: <http://ipython.org>.
- /ITU 14/ Joint Research Centre ITU, 2014: http://tu-dresden.de/die_tu_dresden/fakultaeten/fakultaet_maschinenwesen/iet/wket/lehre/lectures/46.ket_kern/06_Glatz.pdf.
- /IVA 14/ T. Ivanova: Notes on Validation of Criticality Safety and Reactor Physics Calculations, ANS and embedded topical meeting nuclear fuels and structural materials, Reno, NV, June 15-19.
- /JEN 82/ R.J. Jensen, O'D.P. Judd, A. Sullivan (1982). Separating isotopes with lasers. Los Alamos Science 3, 1, 2-33.

- /JEO 14/ Gwan Yoon Jeong, Yong Sik Yang, Je Keun Bang, Dong-Seong Sohn, "Influence of boron nitride addition on internal pressure of a high BU fuel rod", in Transactions Of The American Nuclear Society And Embedded Topical Meeting Nuclear Fuels And Structural Materials, Volume 110, TRANSAO 110 1– 1030, (2014), ISSN:0003-018X, (2014).
- /JEO 15/ Gwan Yoon Jeong, Yong Sik Yang, Dong-Seong Sohn, "Gas releases and rod internal pressure of BN-added UO₂ fuel", Journal of Nuclear Science and Technology, Vol. 52, Issue 10, 2015, Special Issue on 2nd Asian Nuclear Fuel Conference 2014, DOI:10.1080/00223131.2015.1009956, (2015).
- /JSC 16/ Joint Stock Company, St. Petersburg Research and Design Institute, BN-800 NPP, http://nuklearia.de/wp-content/uploads/2015/08/Atomenergoproekt_BN-800_NPP.pdf, aufgerufen am 15. April 2016.
- /JUL 07/ S. Jullian, "Nd150 Enrichment in France", Presentation for the ILIAS 4th Annual Meeting (Integrated Large Infrastructures for Astroparticle Science), Chambéry, France; February 27, 2007.
- /KAH 14/ A.C. Kahler, R.E. MacFarlane: ICSBEP Criticality Calculations with ENDF/B-VII.1 Cross Sections, ANS and embedded topical meeting nuclear fuels and structural materials, Reno, NV, June 15-19.
- /KAT 15/ Y. Katoh, K.A. Terrani, "Systematic Technology Evaluation Program for SiC/SiC Composite-based Accident-Tolerant LWR Fuel Cladding and Core Structures: Revision 2015", ORNL/TM-2015/454, (2015).
- /KIG 13/ Robert Kilger, Matthias Bock, Florian Rowold, Volker Hannstein, Matthias Behler, Eberhard-Franz Moser: "Bereitstellung von Daten und Methoden zur Beurteilung der Sicherheit bei nuklearen Ver- und Entsorgung sowie innovativer Kernbrennstoffkonzepte", GRS-A-3701, 2013.

- /KIL 09/ Kilger R., Moser F.E., Behler M., „Neuberechnung von kritischen Parametern und deren Validierung für das GRS "Handbuch zur Kritikalität", Ausgabe 2009“, Abschlussbericht zu Arbeitspaket 2 des Vorhabens 3606R02536“, Garching, GRS-A-3532, Oktober 2009.
- /KIL 13/ Kilger R., Bock M., Rowold F., Hannstein V., Behler M., Moser E.-F., „Bereitstellung von Daten und Methoden zur Beurteilung der Sicherheit bei der nuklearen Ver- und Entsorgung sowie innovativer Kernbrennstoffkonzepte – Abschlussbericht zum Vorhaben 3610R03350“, Garching, GRS-A-3701, März 2013.
- /KLO 08/ M. Kloos: “SUSA Version 3.6: User’s Guide and Tutorial”, GRS-P-5, Oktober 2008.
- /KLY 14/ <http://www.klydon.co.za/index.html>, Internetauftritt der Firma Klydon, zuletzt besucht am 03.02.2014. (Website derzeit [April 2016] nicht erreichbar; alternative Informationen <http://za.kompass.com/c/klydon-pty-ltd/za102104/>).
- /KOP 00/ Kopka, H.: LATEX, Addison-Wesley scientific computing, 3. Aufl., XXII, 521 S., ISBN 3-8273-1557-3, Addison-Wesley: Bonn [u.a.], 2000.
- /LAU 14/ Lau et al., 2014: <http://www.hindawi.com/journals/stni/2014/709415/>.
- /LAW 04/ C. George Lawson, Carolyn Krause: “Documenting history: Minutes of the New Piles Committee meetings”, Nuclear News, Nov.2004, pp. 36-38 (2004).
- /LEE 12/ Chungchan Lee, KyungHoon Lee, JinYoung Cho, SangYoon Park, YongSik Yang, “A Study on the boron depletion in 16x16 boron mixed fuel rods”, Transactions of the Korean Nuclear Society Autumn Meeting, Gyeongju, Korea, October 25-26, 2012.
- /LIY 10/ Y. Li, Y. Zhang, Y. Kuang, W. Liu, X. Zhang, Y. Qiu, Y. Xu, M. Chen, J. Liu, *Study of uranium isotope separation using CO₂ laser and CO laser*, Optics Communications 283 pp. 2575–2579 (2010).

- /LYM05/ J.L. Lyman, „Enrichment Separative Capacity for SILEX“, LA-UR-05-3786, Los Alamos NM, USA (2005).
- /MAR 13/ W. J. Marshall and B. T. Rearden: The SCALE verified, archived library of inputs and data - VALID, ANS Nuclear Criticality Safety Division Topical Meetings (NCSD2013), Wilmington, NC, September 29–October 3, 2013.
- /MAR 14a/ W.J. Marshall, B.T. Rearden: Determination of Experimental Correlations Using the Sampler Sequence Within SCALE 6.2, ANS Winter Meeting and Nuclear Technology Expo, Anaheim, NC, November 09–13, 2014.
- /MAR 14b/ W.J. Marshall, B.J. Ade, S.M. Bowman: Evaluation of Peak Reactivity Analysis of Boiling-Water Reactor Fuel in Transportation and Storage Casks, ANS Winter Meeting and Nuclear Technology Expo, Anaheim, NC, November 09–13, 2014.
- /MAR 14c/ W.J. Marshall, S.M. Bowman: Validation of keff Calculations for Boiling-Water Reactor Fuel at Peak Reactivity in Transportation and Storage Casks, ANS Winter Meeting and Nuclear Technology Expo, Anaheim, NC, November 09–13, 2014.
- /MAT 14/ C.M. Mattoon, B.R. Beck: WPEC SG38: Designing a New Format for Storing Nuclear Data, ANS and embedded topical meeting nuclear fuels and structural materials, Reno, NV, June 15-19.
- /MER 15/ B. Merk, D. Litskevich, „Transmutation of all German Transuranium under Nuclear Phase Out Conditions – Is this Feasible from Neutronic Point of View?“ PLoS ONE 10(12):e0145652, doi:10.1371/jo.
- /MES91/ Mester W., Siegmund K., „VIBS – Eine Datenbank für besondere Vorkommnisse in Anlagen des Kernbrennstoffkreislaufs“, GRS–A–1781, Köln, Mai 1991.
- /MIT 13/ MIT News Office, Juli 2013: <http://mitei.mit.edu/news/improved-nuclear-fuel-rod-cladding-might-prevent-future-fukushimas>.

- /MUE 10/ T. Müller: Dokumentation RooFiLab.
<http://ekpwww.physik.uni-karlsruhe.de/~quast/RooFiLab/RooFiLab.pdf>,
 Karlsruher Institut of Technology, Februar 2010.
- /NAT 12/ Nature, Thorium chemistry: Ways to obtain pure protactinium, 2012:
http://www.nature.com/nature/journal/v492/n7427/box/492031a_BX1.html.
- /NEA 13/ Organization for Economic Cooperation and Development-Nuclear Energy Agency (OECD-NEA): International Handbook of Evaluated Criticality Safety Benchmark Experiments. NEA No. 7166, NEA/NSC/DOC(95)03, NEA Nuclear Science Committee, September 2013.
- /NEA 13/ Nuclear Energy Agency (NEA): International Handbook of Evaluated Criticality Safety Benchmark Experiments. OECD-NEA, September 2013.
- /NEA 15/ OECD-NEA Nuclear Science: "Introduction of Thorium in the Nuclear Fuel Cycle", NEA No. 7224, 2015.
- /NRC 12/ U.S. Nuclear Regulatory Commission, License Number: SNM-2019, Docket No. 70-7016, (2012).
- /OKB 16/ Joint Stock Company "I.I. Afrikantov OKB Mechanical Engineering" (Nizhny Novgorod, "Rosatom" State Corporation enterprise),
<http://www.okbm.nnov.ru/npp#fast>, aufgerufen 13. April 2016.
- /OWE 63/ D.B. Owen: Factors for one-sided tolerance limits and for variables sampling plans. Sandia Corporation, Springfield: Clearinghouse for Federal Scientific and Technical Information, March 1963.
- /PAI 88/ J.A. Paisner, *Atomic vapor laser isotope separation*, Appl. Phys. B 46 (1988) 253.
- /PAR 04/ P. Parvin, B. Sajad, K. Silakhori, M. Hooshvar, Z. Zamanipour, "Molecular Laser Isotope Separation versus Atomic Vapor Isotope Separation", *Progress in Nuclear Energy*, Vol. 44, 4, pp. 331-345 (2004).
- /PET 13/ Petrovic, Georgia Institute of Tech, 2013:
<http://energy.gov/sites/prod/files/2013/09/f2/9-Petrovic.pdf>.

- /PLA 14/ Platts McGraw Hill Financial, Nuclear Fuel Volume 39 Number 5, March 3, 2014. New York NY, USA, (2014). www.platts.com.
- /REA 11/ B. T. Rearden, M. L. Williams, M. A. Jessee, D. E. Mueller, and D. A. Wiarda, "Sensitivity and Uncertainty Analysis Capabilities and Data in SCALE," *Nucl. Technol.* 174(2), 236-288, May 2011.
- /RHE 12/ Young Woo Rhee, Dong Joo Kim, Ik Hui Nam, Jong Hun Kim, Jang Soo Oh, Jae Ho Yang, Keon-Sik Kim, "Fabrication of Boron-containing Burnable Absorber Fuel Pellet", Transactions of the Korean Nuclear Society Spring Meeting, Jeju, Korea, May 17-18, 2012.
- /RIN91/ R. Rinard, "Neutron Interactions with Matter", Los Alamos Technical Report NUREGKR-5550 (1991) 357–377, URL: <http://www.fas.org/sgp/othergov/doe/lanl/lib-www/la-pubs/00326407.pdf>.
- /ROU 10/ D. Rousseau, J. Lepingwell, "Isotopic separation by laser based technologies: safeguards related aspects", Symposium on International Safeguards: Preparing for Future Verification Challenges, Paper Number: IAEA-CN-184/262, Vienna, Austria, 1-5 November 2010.
- /ROU 10/ D. Rousseau, J. Lepingwell: "Isotopic separation by laser based technologies: safeguards related aspects", Paper Number: IAEA-CN-184/262, (2010).
- /ROW 14/ F. Rowold et al.: SUnCISTT A Generic Code Interface for Uncertainty and Sensitivity Analysis. PSAM12, Honolulu, Hawaii, USA, June 2014.
- /SAN 14/ S.E. Sanborn, B.J. Koepfel, K.J. Geelhood, H.E. Adkins: Sensitivity Studies on UNF Cladding Structural Integrity Under NCT Loading, ANS Winter Meeting and Nuclear Technology Expo, Anaheim, NC, November 09–13, 2014.

- /SCA 11/ *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.
- /SCA 12/ J. M. Scaglione, D. E. Mueller, J. C. Wagner, and W. J. Marshall: An approach for validating actinide and fission product burnup credit criticality safety analyses – criticality (k_{eff}) predictions, NUREG/CR-7109 (ORNL/TM-2011/514), prepared for the NRC by Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, TN, April 2012.
- /SCA 14/ J.M. Scaglione, G. Radulescu, K. Robb, W. J. Marshall: Consequence Assessment of Fuel Reconfiguration for Dry Storage and Transportation Packages, ANS Winter Meeting and Nuclear Technology Expo, Anaheim, NC, November 09–13, 2014.
- /SCH 98/ C. Schwab, A.J. Damiao, C.A.B. Silveira, J.W. Neri, M.G. Destro, N.A.S. Rodrigues, R. Riva, “Laser Techniques Applied to Isotope Separation of Uranium,” *Progress in Nuclear Energy*, Vol. 33, No. 1-2, pp. 217-264, (1998).
- /SEN 14/ F. Michel-Sendis, M. Bossant, N. Soppera: “A new OECD-NEA Database of nuclide compositions of spent nuclear fuel”.
- /SER 10/ R.M. Serrato, “Laser Isotope Separation and the Future of Nuclear Proliferation”, Dissertation, Stanford University, Stanford, CA, USA; ISBN-10: 1-59942-363-4; ISBN-13: 978-1-59942-363-0 (2010).
- /SHE 13/ D. Shepard, “Technology Readiness Level (TRL) assessment of cladding alloys for advanced nuclear fuels”, NEA/NSC/WPFC/DOC(2015)9, pp 108-116, *Structural Materials for Innovative Nuclear Systems*, Idaho Falls, USA, October 2013.
- /SHE 14/ D. Shepherd, “TRLs for fuel and cladding”, *Nuclear Engineering International*, pp 32 – 33, Januar 2014.

- /SHE 15/ Daniel Shepherd, Glyn Rossiter, Glyn Marsh, Ian Palmer, Matthew Fountain: "Technology Readiness Level (TRL) Assessment of Advanced Nuclear Fuel and Cladding Material", Proc. TopFuel2015, ISBN 978-92-95064-23-2, 13. - 17. September 2015 Zurich, Switzerland (2015), siehe auch: <http://www.nnl.co.uk/media/1562/nnl-tech-conference-poster-ds-trl-apr-14.pdf> (2014).
- /SHU 86/ Shum E. et al., "Assessment of the public health impact from the accidental release of UF₆ at the Sequoyah Fuels Corporation Facility at Gore, Oklahoma", NUREG-1189 Vol. 1, Docket No. 40-8027, License No. SUB-1010, Main Report, Ad Hoc Interagency Public Health Assessment Task Force, March 1986.
- /SIP 15/ Sippel T., "Recent Events and a Comparison with Historical Accidents", OECD-NEA WGFCs ORACS Workshop, 19.-21. Mai 2015, Albuquerque NM, USA (2015).
- /SOL 13/ http://www.solvay.com/en/media/press_releases/20131219-Areva.html, abgerufen am 14.04.2016.
- /STE 13/ Stempien et al., Nuclear Technology Vol. 183/1, 2013: http://www.ans.org/pubs/journals/nt/a_16989.
- STE 85/ R.C. Stern, J.A. Paisner, „Atomic Vapor Laser Isotope Separation“, International Laser Science Conference, Dallas, TX (USA), November 18-22, 1985. UCRL-93584.
- /SUK 14/ Y. Sukjai, A. Mieloszyk, M.S. Kazimi, : „Effects of BeO Thermal Conductivity Degradation on LWR UO₂-BeO Fuel Performance“, in Transactions Of The American Nuclear Society And Embedded Topical Meeting Nuclear Fuels And Structural Materials, Volume 110, TRANSAO 110 1– 1030, (2014), ISSN:0003-018X, (2014).
- /SUT 95/ O. Suto, H. Yamaguchi, K. Tashiro, S. Kawakami, Y. Shimazaki, "Current Status Of Mlis Program In Pnc", Proc. 6th International Symposium on Advanced Nuclear Energy Research, JAERI-CONF 95-005.

- /SUY 15/ Suyama K., Kataoka M., and Yamamoto K., "Status of Benchmark Phase-I Reflector Effect of SiO₂ for Direct Disposal of Used Nuclear Fuel". Private Kommunikation, JAEA, September 2015.
- /TON 14/ K. Tonoike, K. Izawa, H. Sono, M. Umeda, Y. Yamane: Revival of Criticality Safety Research in Japan Atomic Energy Agency, ANS and embedded topical meeting nuclear fuels and structural materials, Reno, NV, June 15-19.
- /THO 12/ Thor Energy, 2012:
<http://www.thorenergy.no/no/Topmenu/Projects/~//media/ThorEnergy/PDF/longcycles.ashx>.
- /THO 16/ <http://thorenergy.no/second-round-of-thorium-test-irradiation-underway/>,
Meldung vom 12. Januar 2016, abgerufen am 14.04.2016.
- /THT 16/ <http://www.thtr.de/> zuletzt abgerufen am 27.04.2016.
- /TSU 99/ A. Tsunemi, N. Saito, K. Nagasaka, H. Tashiro, "Intracavity Raman conversion for 16- μ m Stokes pulse generation in para-hydrogen", Applied Physics B, August 1999, Volume 69, Issue 2, pp 103-106.
- /UPS 10/ S. Upson: "Laser Uranium Enrichment makes a Comeback", IEEE Spectrum, 30.09.2010. <http://spectrum.ieee.org/energy/nuclear/laser-uranium-enrichment-makes-a-comeback/0> zuletzt besucht am 06.02.2014.
- /URE 13/ URENCO Deutschland GmbH, Umwelterklärung Urananreicherungsanlage Gronau 2013. http://www.urencogroup.com/~/media/urencogroup/~/uploads/content-files/Environmental_Statement_UD_Gronau_2013correct_%282%29.pdf
zuletzt aufgerufen am 16.03.2016.
- /USN 08/ US NRC Technical Training Center 9/08: Uranium Enrichment Processes (Rev 3) Module 3.0: Laser Enrichment Methods (AVLIS and MLIS); 2008.
- /WET 13/ Wetzel L.L., "The Horizontal Band Saw Incident at Babcock & Wilcox, NOG-L", Proc. ANS NCS 2013 - Criticality Safety in the Modern Era: Raising the Bar, Wilmington, NC, September 29 –October 3, 2013.

/WNA 16/ <http://www.world-nuclear.org/information-library/country-profiles/countries-a-f/china-nuclear-fuel-cycle.aspx>, aufgerufen am 19.04.2016.

/YAM 14/ Yamamoto K., and Suyama K., „Problem Specification for Benchmark Study on the Reflector Effect of Silicon Dioxide (SiO₂) for the Criticality Safety of Direct Disposal of Used Nuclear Fuel”, JAEA, November 2014.

/YOU 15/ Jiao Yongjun, Ru Jun, Guo Xiaoming, Xiao Zhong, Li Hua; “CF3: An Advanced Fuel Assembly Design for PWR”, Proc. TopFuel2015, ISBN 978-92-95064-23-2, 13. - 17. September 2015, Zurich, Switzerland (2015).

Abbildungsverzeichnis

Abb. 3.1	Kritische Kugelmassen für homogene wässrige Plutoniumnitrat-Systeme	8
Abb. 3.2	Kritische Kugelvolumina für homogene wässrige Plutoniumnitrat-Systeme	9
Abb. 3.3	Kritische Kugelmassen für homogene wässrige ²³³ Uranyl Nitrat-Systeme	10
Abb. 3.4	Kritische Kugelvolumina für homogene wässrige ²³³ Uranyl Nitrat-Systeme	11
Abb. 3.5	Plutoniumdichte für alle untersuchten experimentellen Fälle.....	17
Abb. 3.6	²⁴⁰ Pu Gewichtsprozent für alle untersuchten experimentellen Fälle	17
Abb. 3.7	Bandbreite der berechneten effektiven Multiplikationsfaktoren der Plutoniumnitrat-Lösungsexperimente.....	19
Abb. 3.8	Variation der berechneten effektiven Multiplikationsfaktoren der Plutoniumnitrat-Lösungsexperimente ohne die mit Cadmium beschichteten Fälle.....	19
Abb. 3.9	Abhängigkeit von k_{eff} von der Plutoniumdichte	21
Abb. 3.10	Abhängigkeit von k_{eff} von dem prozentualen Gewichtsanteil von ²⁴⁰ Pu	22
Abb. 3.11	Abhängigkeit von k_{eff} von der Nitratdichte	22
Abb. 3.12	Abhängigkeit von k_{eff} von dem Parameter EALF	23
Abb. 3.13	Abhängigkeit von k_{eff} von dem Moderationsverhältnis.....	23
Abb. 3.14	Abhängigkeit von EALF von der Plutoniumdichte	24
Abb. 3.15	Abhängigkeit der Anzahl der im Mittel freigesetzten Neutronen von der Plutoniumdichte	25

Abb. 3.16	Variation der effektiven Kritikalität inklusive Cadmium beschichteter Fälle ohne Kugelmateriale	27
Abb. 3.17	Variation der mit CSAS1 berechneten effektiven Multiplikationsfaktoren ohne die mit Cadmium beschichteten Fälle.....	28
Abb. 3.18	Korrelationen von k_{eff} mit den experimentellen Eingangsgrößen für den Fall PST-020-11.....	35
Abb. 3.19	k_{eff} in Abhängigkeit von der Plutoniumdichte für PST-020-11	36
Abb. 3.20	Korrelationen von k_{eff} mit den experimentellen Eingangsgrößen für den Fall PST-020-04.....	38
Abb. 3.21	Korrelationsmatrix der Multiplikationsfaktoren aller betrachteten Benchmark-Experimente	40
Abb. 3.22	Berechnete Multiplikationsfaktoren k_{eff} der analysierten kritischen Benchmark-Experimente mit Mittelwert und 95%/95%-Toleranzintervall.....	43
Abb. 3.23	Berechnete Multiplikationsfaktoren der Experimente mit ^{233}U	44
Abb. 3.24	Berechnete Multiplikationsfaktoren der Experimente mit ^{233}U (Ausschnitt).....	45
Abb. 3.25	Urاندichten der Lösungen in den ausgewählten Experimenten mit ^{233}U	46
Abb. 3.26	Werte von EALF der ausgewählten Experimente mit ^{233}U	47
Abb. 3.27	Werte von EALF gegenüber den Urاندichten der betrachteten kritischen Benchmark-Experimente mit ^{233}U	48
Abb. 3.28	Trendanalyse des Neutronenmultiplikationsfaktors k_{eff} über dem EALF-Wert aller betrachteten kritischen Benchmark-Experimente	49
Abb. 3.29	TSUNAMI-IP Parameter c_k für den Vergleich der kritischen Benchmark-Experimente mit den Anwendungssystemen kleinste kritische Kugelmasse und kleinstes kritisches Kugelvolumen	52
Abb. 3.30	Sensitivitäten der berechneten Multiplikationsfaktoren der Experimentserie U233ST-001 auf unterschiedliche technische Parameter.....	53

Abb. 3.31	Sensitivitäten der berechneten Multiplikationsfaktoren der Experimentserie U233ST-016 auf unterschiedliche technische Parameter.....	54
Abb. 3.32	Sensitivität des berechneten Multiplikationsfaktors k_{eff} auf Variationen des exakten Uran-Isotopenvektors am Beispiel der Konfiguration U233-SOL-THERM-009-01.....	55
Abb. 3.33	Korrelationskoeffizient c_k zwischen den ausgewählten Experimenten mit ^{233}U und den Anwendungsfällen kleinster kritischer Masse und kleinstem kritischem Volumen.....	56
Abb. 3.34	Korrelationsmatrix ausgewählter Experimente mit ^{233}U auf Basis von Herstellungstoleranzen	57
Abb. 3.35	Korrelationsmatrix weiterer ausgewählter Experimente mit ^{233}U auf Basis von Herstellungstoleranzen.....	58
Abb. 3.36	Korrelationsparameter c_k zwischen allen Einzelrechnungen der Kurve kritischer Kugelmassen von ^{233}U -Nitrat-Lösungen unterschiedlicher Urandichte	59
Abb. 3.37	Korrelationsparameter c_k zwischen allen Einzelrechnungen der Kurve kritischer Kugelmassen von ^{233}U -Nitrat-Lösungen unterschiedlicher Urandichte (Skalierungsausschnitt).....	60
Abb. 3.38	Kritische Kugelmasse und EALF der kritischen Parameterkurve in Abhängigkeit von der Urankonzentration, in linearer Auftragung.....	61
Abb. 3.39	Parameter c_k aller Parameterkurvenwerte gegen einen ausgewählten Wert der Parameterkurve.....	62
Abb. 3.40	Kritische Kugelmassen für homogene Plutoniumdioxid-Wassersysteme in Abhängigkeit von der Plutoniumkonzentration. Vergleich von Altdaten mit neuen Berechnungen.....	66
Abb. 3.41	Relative Abweichungen zwischen neuen Berechnungen und Altdaten für kritische Kugelmassen von homogenen Plutoniumdioxid-Wassersystemen	67
Abb. 3.42	Kritische Kugelmassen für homogene Uran-Plutonium-Mischoxid-Wassersysteme in Abhängigkeit von der Schwermetallkonzentration. Vergleich von Altdaten mit neuen Berechnungen.....	69

Abb. 3.43	Relative Abweichungen zwischen neuen Berechnungen und Altdaten für kritische Kugelmassen von homogenen Plutoniumdioxid-Wassersystemen	70
Abb. 3.44	Plutoniumkonzentrationen für homogene Plutoniumnitrat-Wassersysteme mit unterschiedlichen Molaritäten als Funktion des Moderationsverhältnisses H/Pu für Altdaten und Neuberechnungen.....	72
Abb. 3.45	Relative Abweichungen der Plutoniumkonzentration als Funktion von Moderationsverhältnis und Molarität zwischen Altdaten und Neuberechnungen	73
Abb. 3.46	Kritische Kugelmassen für homogene ²³³ U-Nitrat-Wassersysteme in Abhängigkeit von der Urankonzentration. Vergleich von Altdaten mit neuen Berechnungen	74
Abb. 3.47	Relative Abweichungen zwischen neuen Berechnungen und Altdaten für die kritischen Kugelmassen homogener ²³³ U-Nitrat-Wassersysteme	75
Abb. 3.48	Kritische Kugelmassen für ein homogenes Plutonylnitrat-Wassersystem. Vergleich zwischen Altdaten und Neuberechnungen	77
Abb. 3.49	Relative Abweichungen zwischen neuen Berechnungen und Altdaten für kritische Kugelmassen für ein homogenes Plutonylnitrat-Wassersystem	78
Abb. 3.50	Relative Abweichungen zwischen neuen Berechnungen und Altdaten für kritische Kugelmassen für homogene Plutoniumnitrat-Wassersysteme	79
Abb. 4.1	Vereinfachtes Schema des AVLIS-Prozesses	94
Abb. 4.2	Versuchsaufbau zu einem AVLIS-Experiment am Lawrence Livermore National Laboratory	96
Abb. 4.3	Schematische Darstellung des französischen AVLIS-Verfahrens SILVA	97
Abb. 4.4	Beispiel für eine Isotopentrennung nach dem MLIS-Verfahren SILARC.....	101
Abb. 4.5	Mehrstufige MLIS Anreicherungskaskade (Schema)	101
Abb. 4.6	Schematische Darstellung einer gemutmaßten Möglichkeit des Separationsprozesses beim SILEX-Verfahren	104

Abb. 4.7	Phasen- und Dichtediagramm von Uranhexafluorid UF ₆ nach URENCO	107
Abb. 4.8	Nahaufnahme des Prüfstandes des zweiten Bestrahlungsexperiments von Thor Energy. Photo: T.Tandberg /THO 16/	114
Abb. 4.9	In /SHE 15/ vorgenommene Klassifizierung der technologischen Reife	117
Abb. 4.10	Ergebnis der TRL in /SHE 15/ für die untersuchten Brennstoffkategorien Die Referenzen beziehen sich auf die Referenzen in /SHE 15/	118
Abb. 4.11	In /SHE 15/ vorgenommene Einschätzung der technologischen Reife neuerer Hüllrohrmaterialien	119
Abb. 4.12	In /SHE 15/ vorgenommene Einschätzung der technologischen Reife neuerer Kernbrennstoff Materialien.....	120
Abb. 4.13	Schematische Skizze des BN-800 Reaktors nach /OKB 16/	122
Abb. 6.1	Energieabhängige Wirkungsquerschnitte für Streuung und Einfang von Neutronen für ¹ H, ¹⁶ O und ²⁸ Si	159
Abb. 6.2	Querschnitt der in dem EGUNF Phase 1 Benchmark betrachteten DWR Brennelement-Spezifikation.....	161
Abb. 6.3	Relative Abweichungen der k _{eff} Werte vom Mittelwert für das unbestrahlte Brennelement und vier Bibliotheken	164
Abb. 6.4	Relative Abweichungen der berechneten R _s ^{Si} vom Mittelwert R _s ^{Si-nat,av} im Reflektorbereich für das unbestrahlte Brennelement und vier Bibliotheken	165
Abb. 6.5	Relative Abweichungen der berechneten RcSi vom Mittelwert RcSi-nat,av im Reflektorbereich für das unbestrahlte Brennelement und vier Bibliotheken	166
Abb. 6.6	Relative Abweichungen der berechneten R _s ^H vom Mittelwert R _s ^{H,av} im Reflektorbereich für das unbestrahlte Brennelement und vier Bibliotheken	167

Abb. 6.7	Relative Abweichungen von berechneten R_c^H vom Mittelwert $R_s^{H,av}$ im Reflektorbereich für das unbestrahlte Brennelement und vier Bibliotheken	168
Abb. 6.8	Relative Abweichungen von R_s^O vom Mittelwert $R_s^{O,av}$ im Reflektorbereich für das unbestrahlte Brennelement und vier Bibliotheken	169
Abb. 6.9	Relative Abweichungen der berechneten Verhältnisse A/P vom Mittelwert $(A/P)^{av}$ für das unbestrahlte Brennelement und vier Bibliotheken	171
Abb. 6.10	Relative Abweichungen der berechneten Werte von SI_{th} vom Mittelwert SI_{th}^{av} für das unbestrahlte Brennelement und vier Bibliotheken	173
Abb. 6.11	Relative Abweichungen der berechneten k_{eff} Werte vom Mittelwert für das bestrahlte Brennelement mit 30 GWd/tSM und vier Bibliotheken.....	176
Abb. 6.12	Relative Abweichungen der berechneten k_{eff} Werte vom Mittelwert für das bestrahlte Brennelement mit 45 GWd/tSM und vier Bibliotheken.....	176

Tabellenverzeichnis

Tab. 3.1	Liste der untersuchten Plutonium-Lösungsexperimente.....	15
Tab. 3.2	Tabelle der Abhängigkeiten von k_{eff} von experimentellen Größen.....	23
Tab. 3.3	Liste der mit Unsicherheiten behafteten experimentellen Parameter	29
Tab. 3.4	Liste der aus den Experiment-Parametern abgeleiteten Größen.....	30
Tab. 3.5	Tabelle der Parameter-Unterschiede zwischen den betrachteten experimentellen Serien mit Plutoniumnitratlösungen.....	32
Tab. 3.6	Liste der k_{eff} -Werte aus der Sensitivitätsanalyse	33
Tab. 3.7	Liste der ermittelten Sensitivitäten und deren Fehler	37
Tab. 3.8	Tabelle der Korrelationen und Sensitivitäten und deren Fehler des Falls PST-004-04.....	39
Tab. 3.9	Fit von k_{eff} , ausgewertet bei einer Plutoniumkonzentration von $\rho_{\text{Pu}}=35 \text{ g/l}$	41
Tab. 3.10	Liste und Nomenklatur der in die c_K -Analyse eingegangenen kritischen Benchmark-Experimente mit ^{233}U anylinitrat.....	50
Tab. 3.11	Mit unterschiedlichen Rechenverfahren ermittelte Multiplikationsfaktoren des Systems der kleinsten kritischen Kugelmasse von $^{239}\text{PuNO}_3$	63
Tab. 3.12	Mit unterschiedlichen Rechenverfahren ermittelte Multiplikationsfaktoren des Systems der kleinsten kritischen Kugelmasse von $^{233}\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$	63
Tab. 3.13	Vergleich der kleinsten kritischen Kugelmassen und zugehörigen Pu-Konzentrationen für Altdaten und Neuberechnungen.....	68
Tab. 3.14	Vergleich der kleinsten kritischen Kugelmassen und zugehörigen Schwermetallkonzentrationen für Altdaten und Neuberechnungen.....	71

Tab. 3.15	Vergleich der kleinsten kritischen Kugelmassen und der zugehörigen ^{233}U -Konzentrationen für Altdaten und Neuberechnung	76
Tab. 3.16	Vergleich der kleinsten kritischen Kugelmassen und der zugehörigen Pu-Konzentrationen für Altdaten und Neuberechnung	79
Tab. 3.17	Vergleich der kleinsten kritischen Kugelmassen und zugehörigen Plutoniumkonzentrationen für Altdaten und Neuberechnungen.....	80
Tab. 3.18	Vergleich kritische Parameter für homogene U-235-Metall-Leichtwasser-Mischungen zwischen DIN 25403-2 und HK2013	83
Tab. 3.19	Vergleich kritischer Parameter für homogene ^{239}Pu - ^{240}Pu - H_2O -Mischungen zwischen DIN 25403-3 und HK2013	84
Tab. 3.20	Vergleich kritischer Parameter von homogenen $^{235}\text{UO}_2$ - $^{238}\text{UO}_2$ - H_2O -Mischungen mit 100 % und 20 % ^{235}U -Anreicherung zwischen DIN 25403-3 und HK2013.....	85
Tab. 3.21	Vergleich kritischer Parameter für eine homogene $^{235}\text{UO}_2$ - $^{238}\text{UO}_2$ - H_2O -Mischungen mit 5 % ^{235}U -Anreicherung zwischen DIN 25403-4 und HK2013 unter Verwendung zweier verschiedener Wirkungsquerschnittsbibliotheken.....	85
Tab. 3.22	Vergleich kritischer Parameter von homogenen $^{239}\text{PuO}_2$ - $^{240}\text{PuO}_2$ - H_2O -Mischungen mit ^{239}Pu -Anreicherung von 100 % und 95 % zwischen DIN 25403-5 und HK2013.....	86
Tab. 3.23	Vergleich kritischer Parameter von homogenen ^{239}Pu - ^{240}Pu -Nitrat-Mischungen mit ^{239}Pu -Anreicherung von 100 % und 95 % zwischen DIN 25403-6 und HK2013.....	87
Tab. 3.24	Vergleich kritische Parameter für homogene U-235-Nitrat-Leichtwasser-Mischungen zwischen DIN 25403-8 und HK2013	88
Tab. 3.25	Relative prozentuale Abweichungen zwischen den auf DIN 25403 und HK2013 basierenden Kritikalitätsparametern	88
Tab. 4.1	Vergleich einiger Eigenschaften von SiC mit Zircalloy nach /LEE 13/.....	110
Tab. 4.2	Szenarien für den Brennstoffkreislauf im BN-800.....	123

Tab. 5.1	Zusammenstellung der vergleichend betrachteten kritikalitätsrelevanten Vorkommnisse und Kritikalitätsunfälle.....	131
Tab. 5.2	Auslösende Faktoren für Ereignisse der Gruppe 1.....	135
Tab. 5.3	Auslösende Faktoren für Ereignisse der Gruppe 2.....	140
Tab. 5.4	Auslösende Faktoren für Ereignisse der Gruppe 3.....	148
Tab. 5.5	Gegenüberstellung der auslösenden Faktoren für alle „modernen“ und „historischen“ Vorkommnisse.....	153
Tab. 5.6	Gegenüberstellung der auslösenden Faktoren für alle „modernen“ und „historischen“ Vorkommnisse (modifiziert)	154
Tab. 6.1	Fallspezifikationen und –bezeichnungen des EGUNF Rechenbenchmarks für das unbestrahlte Brennelement.....	162
Tab. 6.2	Fallspezifische berechnete k_{eff} Werte für das unbestrahlte Brennelement und vier Bibliotheken.....	163
Tab. 6.3	Berechnete Reaktionsraten für Streuung an ^{28}Si (R_s^{Si}) im Reflektorbereich für das unbestrahlte Brennelement und vier Bibliotheken	165
Tab. 6.4	Berechnete Reaktionsraten für Neutroneneinfang von ^{28}Si (R_c^{Si}) im Reflektorbereich für das unbestrahlte Brennelement und vier Bibliotheken	166
Tab. 6.5	Berechnete Reaktionsraten für Streuung an ^1H (R_s^{H}) im Reflektorbereich für das unbestrahlte Brennelement und vier Bibliotheken	167
Tab. 6.6	Berechnete Reaktionsraten für Neutroneneinfang von ^1H (R_c^{H}) im Reflektorbereich für das unbestrahlte Brennelement und vier Bibliotheken	168
Tab. 6.7	Reaktionsraten für Streuung an ^{16}O (R_s^{O}) im Reflektorbereich für das unbestrahlte Brennelement.....	169
Tab. 6.8	Berechnete Verhältnisse A/P im Gesamtsystem für das unbestrahlte Brennelement und vier Bibliotheken.....	171

Tab. 6.9	Berechnete Werte von SI_{th} im Brennelementbereich für das unbestrahlte Brennelement und vier Bibliotheken	172
Tab. 6.10	Fallspezifikationen und -bezeichnungen des EGUNF Rechenbenchmarks für das bestrahlte Brennelement.....	173
Tab. 6.11	Berechnete k_{eff} Werte für das bestrahlte Brennelement und vier Bibliotheken mit 30 GWd/tSM Abbrand	174
Tab. 6.12	Berechnete k_{eff} Werte für das bestrahltes Brennelement und vier Bibliotheken mit 45 GWd/tSM Abbrand	175

**Gesellschaft für Anlagen-
und Reaktorsicherheit
(GRS) gGmbH**

Schwertnergasse 1
50667 Köln
Telefon +49 221 2068-0
Telefax +49 221 2068-888

Forschungszentrum
Boltzmannstraße 14
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