

Weiterentwicklung des Standes von Wissenschaft und Technik bei der Sicherheit der Behandlung bestrahlter Brennelemente, Wärme entwickelnder radioaktiver Abfälle und radioaktiver Abfälle mit vernachlässigbarer Wärmeentwicklung

Teilbericht zum AP 1.6

Methodenbewertung zerstörungsfreier Prüfmethoden

GRS

Gesellschaft für Anlagenund Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH

Weiterentwicklung des Standes von Wissenschaft und Technik bei der Sicherheit der Behandlung bestrahlter Brennelemente, Wärme entwickelnder radioaktiver Abfälle und radioaktiver Abfälle mit vernachlässigbarer Wärmeentwicklung

Teilbericht zum AP 1.6

Methodenbewertung zerstörungsfreier Prüfmethoden

Thomas Braunroth Florian Rowold

Januar 2024

Anmerkung:

Das diesem Bericht zugrunde liegende Forschungsvorhaben wurde mit Mitteln des Bundesministeriums für Umwelt, Naturschutz, nukleare Sicherheit und Verbraucherschutz (BMUV) unter dem Förderkennzeichen 4720E03366 durchgeführt.

Die Verantwortung für den Inhalt dieser Veröffentlichung liegt bei der GRS.

Der Bericht gibt die Auffassung und Meinung der GRS wieder und muss nicht mit der Meinung des BMUV übereinstimmen.

Kurzfassung

In Deutschland wie auch in vielen weiteren Nationen wird aufgrund derzeit und mittelfristig fehlender Endlagerkapazitäten für Wärme entwickelnde radioaktive Abfälle eine im Vergleich zu früheren Planungen verlängerte Zwischenlagerperiode nicht zu vermeiden sein. Sowohl die Zwischenlager für bestrahlte Brennelemente als auch die dort gelagerten bzw. noch zu lagernden Transport- und Lagerbehälter für bestrahlten Kernbrennstoff verfügen über eine auf 40 Jahre befristete Einlagerungsgenehmigung. Für Deutschland ist absehbar, dass diese Frist für einen signifikanten Anteil der Behälter unzureichend sein wird. Ein besonderes Augenmerk wird aus diesem Grunde in den kommenden Dekaden auf die Prüfung der Behälter und der in diesen eingelagerten radioaktiven Inventare zur Sicherstellung der Integrität und des sicheren Einschlusses gelegt werden. Von besonderer Bedeutung sind die zerstörungsfreien Prüfverfahren, da diese die Behälterintegrität nicht negativ beeinflussen und ein Öffnen der Behälter nicht notwendig ist.

Der vorliegende Bericht fasst die Ergebnisse des Arbeitspakets 1.6 des Forschungsvorhabens mit dem Förderkennzeichen 4720E03366 zusammen. Es werden zunächst relevante Alterungsprozesse an Behältern und Brennelementen diskutiert und im Anschluss ein kurzer Überblick zu zerstörungsfreien Prüfverfahren gegeben. Ein besonderer Fokus liegt auf der Bildgebung mit atmosphärischen Myonen, für die auf Basis von Monte-Carlo Simulationsstudien die Eignung zur Erkennung fehlender Brennelemente oder einzelner fehlender Brennstäbe evaluiert wurde.

Abstract

Due to the current and medium-term lack of final storage capacities for heat-generating wastes, an extended interim storage period compared to earlier plans will be unavoidable in Germany as well as in many other countries. The interim storage facilities for irradiated fuel assemblies as well as the dual-purpose casks for irradiated nuclear fuel have a storage licence limited to 40 years. For Germany, it is foreseeable that this period will be insufficient for a significant proportion of the casks. For this reason, special attention will be paid in the coming decades to testing the casks and the radioactive inventories stored in them to ensure their integrity and safe containment. Non-destructive testing methods are of particular importance, as they do not negatively affect the cask integrity and it is not necessary to open the casks.

This report summarises the results of work package 1.6 of the research project with the funding code 4720E03366. Relevant ageing processes on casks and fuel assemblies are first discussed, followed by a brief overview of non-destructive testing methods. A special focus is on imaging with atmospheric muons, for which the suitability for detecting missing fuel assemblies or individual missing fuel rods was evaluated on the basis of dedicated Monte-Carlo simulation studies.

Inhaltsverzeichnis

	KurzfassungI
	AbstractIII
	InhaltsverzeichnisV
1	Einleitung1
2	Alterungsprozesse an Transport- und Lagerbehältern sowie an eingelagerten Inventaren mit Relevanz für eine verlängerte
	Zwischenlagerung3
2.1	Behälter-spezifische Schädigungsprozesse am Beispiel eines
	Transport- und Lagerbehälters des Typen CASTOR® V/195
2.1.1	Beschreibung des Transport- und Lagerbehälters CASTOR® V/195
2.1.2	Betrachtung ausgewählter Schädigungsprozesse7
2.1.2.1	Strahlungsbedingte Alterungsprozesse und Sekundärschädigungen7
2.1.2.2	Temperaturbedingte Alterungsprozesse 9
2.1.2.3	Mechanischer Verschleiß9
2.1.2.4	Korrosion9
2.2	Schädigungen am eingeschlossenen radioaktiven Inventar am Beispiel eines DWR-Brennelementes10
2.2.1	Beschreibung des Brennelementes als radioaktives Inventar
2.2.2	Betrachtung ausgewählter Schädigungsprozesse11
2.2.2.1	Relevante Materialschädigungsprozesse in der Betriebsphase11
2.2.2.2	Relevante Materialschädigungsprozesse in der Lagerphase 12
2.2.2.3	Zustandsszenarien für Schäden an Brennelementen mit Relevanz für
	die Zwischenlagerung13
2.3	Zusammenfassung relevanter Materialschädigungsprozesse
2.4	Praktische Erfahrungen zu beobachteten Materialschäden im Rahmen
	der Zwischenlagerung14

3	Übersicht über geeignete bzw. potenziell geeignete			
	zerstörungsfreie Prüfverfahren zur Inspektion von Lagerbehältern			
	und eingelagerten Inventaren	15		
3.1	Optische Prüfungen/Sichtprüfungen	16		
3.2	Wirbelstromprüfung	16		
3.3	Schallemissionsprüfung	17		
3.4	Langstrecken-Ultraschalluntersuchung mit geführten Wellen	17		
3.5	Ultraschalluntersuchung	18		
3.6	Laser Ultraschallprüfung	18		
3.7	Thermographie	19		
3.8	Passive Radiographie mit Neutronen- und Gammastrahlung	19		
4	Detaillierte Betrachtung der Myonen-Radiographie zum Zweck	е		
	der Zerstörungsfreien Behälter- und Inventarinspektion	21		
4.1	Produktion und Eigenschaften Atmosphärischer Myonen	21		
4.2	Bildgebende Verfahren mit atmosphärischen Myonen			
4.3	Anwendungsbeispiele für die Myonen-gestützte Bildgebung	27		
4.3.1	Geowissenschaften			
4.3.2	Archäologie und Bauwerkuntersuchungen			
4.3.3	Nukleare Sicherheit			
4.3.4	Konventionelle Industrie			
4.4	Studien im Kontext der Myonen-gestützten Bildgebung zum Zweck	е		
	der zerstörungsfreien Behälter- und Inventarüberprüfung			
4.5	Dedizierte Simulationsstudien zur Evaluierung der Myonen-			
	Radiographie unter Verwendung eines generischen Transport- und			
	Lagerbehälters			
4.5.1	Entwicklung der Anwendung zur Durchführung von Monte-Carlo- Simulation	30		
4.5.1.1	Geometrie und Generisches Behältermodell			
4.5.1.2	Simulierte Primärteilchen	35		
4.5.1.3	Physikalische Prozesse			
4.5.1.4	Detektierte Eigenschaften			
4.5.2	Ausgewählte Validierungsaspekte			

4.5.2.1	Vergleich von simulierten mittleren Energieverlusten mit tabellierten		
	und berechneten Werten	. 40	
4.5.2.2	Vergleich von quadratischen Mitteln simulierter Streuwinkelverteilung		
	mit berechneten Werten	.43	
4.5.3	Analyse	. 45	
4.5.3.1	Longitudinale Bildgebung von Lagerbehältern zum Zwecke der		
	Erkennung eines fehlenden Brennelementes	. 45	
4.5.3.2	Longitudinale Bildgebung von Lagerbehältern zum Zwecke der		
	Erkennung einzelner fehlender Brennstäbe	. 49	
4.5.4	Ausblick	. 57	
5	Zusammenfassung	. 61	
	Literaturverzeichnis	. 63	
	Abbildungsverzeichnis	. 71	
	Tabellenverzeichnis	. 73	
	Abkürzungsverzeichnis	. 75	

1 Einleitung

In vielen Nationen ist es absehbar, dass die trockene Zwischenlagerung bestrahlter Brennelemente aufgrund fehlender bzw. noch nicht zur Verfügung stehender Endlagermöglichkeiten und -kapazitäten länger als angenommen durchgeführt werden muss. Ein wesentlicher Faktor hierfür sind Verzögerungen im Endlagerfindungsprozess. In vielen Fällen ist absehbar, dass dies zu zeitlichen Konflikten mit Befristungen relevanter Genehmigungen (z. B. befristete Lagerungsgenehmigung, aber auch Befristungen für die Einlagerungen in den verwendeten Transport- und Lagerbehältern (TLB)) führen wird. Mögliche Lösungsansätze sind bspw. eine Verlängerung der Genehmigungsdauer für die bestehenden Zwischenlager (ZL) als auch für die gelagerten Inventare oder die Errichtung und Nutzung dedizierter Langzeitzwischenlagern (LZZL) sowie der Verwendung neuer Lagerbehälter.

Bezogen auf die Bundesrepublik Deutschland verzögert sich das Auswahlverfahren für den Standort eines Endlagers für wärmeentwickelnde radioaktive Abfälle weit über das Jahr 2031 hinaus. Unter den neuesten Annahmen erstreckt sich das Verfahren mindestens bis in das Jahr 2046 und unter pessimistischen Annahmen bis in das Jahr 2068 /BGE 22, BAS 23/. Die Inbetriebnahme des Endlagers nimmt Abschätzungen zufolge zusätzlich ungefähr 20 Jahre in Anspruch, gefolgt von den Einlagerungskampagnen der Endlagerbehälter über einen Zeitraum von etwa 30 Jahren, so dass auf Basis dieser Annahmen Zwischenlagerkapazitäten bis zum Jahr 2100 und unter Umständen auch deutlich darüber hinaus benötigt werden. Die Genehmigung des zentralen ZL in Gorleben läuft bereits im Jahr 2034 aus, während die dezentralen ZL über Genehmigungen bis maximal zum Jahr 2047 verfügen. Eine verlängerte Zwischenlagerperiode wird also auch in Deutschland unumgänglich sein. In diesem Kontext kommt dem Alterungsmanagement eine übergeordnete Relevanz zu, so dass insbesondere qualifizierte Methoden zur Zustandserfassung der Lagerbehälter und der eingelagerten radioaktiven Inventare benötigt werden.

Da eine Vielzahl an Nationen vor vergleichbaren Herausforderungen steht, gibt es neben nationalen Projekten in der Forschung und Entwicklung (F&E) (z. B. DCS-Monitor /HSZG 23/ und DCS-Monitor II /HSZG 23a/) auch länderübergreifende Projekte (hervorzuheben ist hier das *Extended Storage Collaboration Program* (ESCP) /EPRI 22/, das durch das Electric Power Research Institute (EPRI) koordiniert wird), die sich mit Werkzeugen zur Erfassung und Bewertung des Ist-Zustands von Lagerbehältern und Inventaren auseinandersetzen. Um die dabei entwickelten Verfahren sachkundig einschätzen

1

zu können, ist zunächst ein Verständnis für die relevanten und materialspezifischen Schädigungsprozesse für Behälter und Inventar unabdingbar, weswegen diese in Abschnitt 2 kurz zusammengefasst werden. In einem nächsten Schritt kann dann geprüft werden, inwieweit diese Prozesse für einen bestimmten Behältertyp oder Inventartyp – z. B. aufgrund der verwendeten Materialien – tatsächlich relevant sind bzw. relevant sein können. Beispielhaft wird dies anhand eines TLBs des Typs CASTOR® V/19 und eines DWR-Brennelementes diskutiert.

In Abhängigkeit der Prozesse ergeben sich oft auch typische Merkmale wie die Strukturgröße, die die Eignung anzuwendender Verfahren zum Zwecke der Erkennung ganz wesentlich beeinflussen. Bei diesen können grundsätzlich Techniken der zerstörenden Prüfung oder der zerstörungsfreien Prüfung (ZfP) unterschieden werden. Zerstörende Verfahren setzen in vielen Fällen dem radiologischen Gefährdungspotential entsprechende Räumlichkeiten und angemessene Schutzmaßnahmen voraus, wie z. B. Heiße Zellen. Für Analysen, bei denen die abschirmenden Deckel des TLBs gelöst werden müssen, ist aus radiologischen Gründen zudem nur eine Fernhantierung unter Einsatz von Telemanipulatoren und Robotern möglich. Für den Einsatz zerstörungsfreier Prüfverfahren ist ggfs. eine (temporäre) Umlagerung des Behälters notwendig. Durch die eigentlichen Messungen entsteht in der Regel kein erhöhtes Gefährdungspotenzial. Informationen zu ausgewählten Prüfverfahren sind in Abschnitt 3 zusammengefasst.

Bei der Bildgebung mit Myonen handelt es sich um ein zerstörungsfreies Verfahren, dessen Einsatz im nuklearen Sektor – auch zur Behälterinspektion – derzeit intensiv diskutiert und evaluiert wird. Eine vertiefte Betrachtung dieses Verfahrens wird in Abschnitt 4 vorgenommen, in dem zur Untersuchung ausgewählter Fragestellungen auch auf Ergebnisse von Monte-Carlo-Studien zurückgegriffen wird.

Der Bericht endet mit einer Zusammenfassung in Abschnitt 5.

2 Alterungsprozesse an Transport- und Lagerbehältern sowie an eingelagerten Inventaren mit Relevanz für eine verlängerte Zwischenlagerung

Sowohl für den Behälter als auch für auch das radioaktive Inventar ergeben sich spezifische Materialschädigungen, die im Kontext einer verlängerten Zwischenlagerung relevant sein können /NRC 19/. Eine *Materialschädigung* liegt allgemein vor, wenn es zu einer negativen Beeinflussung der Funktion und Gebrauchsdauer eines Werkstoffs, eines Bauteils oder einer Konstruktion kommt. In der Schadenskunde wird eine Kategorisierung möglicher Materialschädigungen in Alterung, Bruch, Korrosion, Verschleiß oder biologische Materialschädigung vorgenommen.

Gemäß der DIN 50035 wird *Alterung* definiert als "die Gesamtheit von chemischen und physikalischen Änderungen im Laufe der Zeit, die zur Veränderung der mechanischen Eigenschaften derart führen, dass die Anwendbarkeit der Produkte zeitlich reduziert wird". Grundsätzlich kann zwischen *inneren Alterungsursachen* (Veränderung von chemischen Zusammensetzungen) und *äußeren Alterungsursachen* (z. B. durch Bestrahlung) unterschieden werden /DIN 12/. Diese Alterungsursachen bedingen *Alterungserscheinungen*, die je nach Werkstoffgruppe unterschiedlich ausfallen. So kann bei Metallen bspw. eine Wasserstoffversprödung oder eine Versprödung aufgrund von Neutronenbestrahlung beobachtet werden, während es bei anorganischen Stoffen zur Abscheidung bestimmter Phasen kommen kann.

Ein *Bruch* bezeichnet eine makroskopische Werkstofftrennung, die auf eine mechanische Beanspruchung zurückzuführen ist. Ein Bruch verläuft grundsätzlich in den drei Phasen Rissbildung, Risswachstum und Rissausbreitung. In der Werkstoffkunde wird in Abhängigkeit der Merkmale des Bruchs bzw. seiner zeitlichen Ausprägung eine detaillierte Kategorisierung vorgenommen.

Die DIN EN ISO 8044 definiert *Korrosion* als "Reaktion eines metallischen Werkstoffs mit seiner Umgebung, die eine messbare Veränderung des Werkstoffs bewirkt und zu einer Beeinträchtigung der Funktion eines mechanischen Bauteiles oder eines ganzen Systems führen kann. In den meisten Fällen ist diese Reaktion elektrochemischer Natur, in einigen Fällen kann sie jedoch auch chemischer oder metallphysikalischer Natur sein." /DIN 20/. Grundsätzlich wird zwischen Korrosion mit mechanischer Beanspruchung und Korrosion ohne mechanische Beanspruchung unterschieden.

3

Als *Verschleiß* wird der fortschreitende Materialverlust aus der Oberfläche eines festen Körpers im Zuge einer tribologischen Beanspruchung, d. h. durch Kontakt zu einem Gegenkörper in einer Relativbewegung, beschrieben. Grundsätzlich kann zwischen drei Verschleißmechanismen unterschieden werden:

- Oberflächenzerrüttung (Materialtrennung in Oberflächenbereichen durch tribologische Beanspruchung)
- Abrasion (Materialabtrag durch eine ritzende Beanspruchung)
- tribochemische Reaktionen (Entstehung von Reaktionsprodukten durch chemische Reaktion der tribologischen Körper miteinander).

Als *biologische Materialschädigung* werden unerwünschte Veränderungen von Stoffen durch Organismen bezeichnet. Diese Schädigungen entstehen meistens an organischen Materialien, wenn diese den Organismen als Nahrung dienen.

Die Schädigungsprozesse und deren Ausprägung sind in der Regel materialspezifisch und hängen zudem von der Betriebshistorie als auch diversen Umgebungsparametern (z. B. Temperatur und Feuchtigkeit) ab. In dem vorliegenden Kapitel werden ausgewählte Schädigungsprozesse mit potenzieller Relevanz für die verlängerte Zwischenlagerung sowohl für einen TLB als auch für in diesem TLB eingelagerte radioaktive Inventare zusammengestellt (siehe Abschnitt 2.1 und 2.2). Als Referenzbehälter dient ein TLB vom Typ CASTOR® V/19, wie er u. a. in Deutschland standardmäßig für DWR-Brennelemente genutzt wird. Analog wird zur Diskussion der Alterungsprozesse an Brennelementen ein typisches DWR-Brennelement betrachtet. Es werden zunächst die entscheidendsten Komponenten dieses TLBs bzw. dieses Brennelementes und entsprechende Materialzusammensetzung kurz erläutert. Im Anschluss werden mögliche Schädigungsprozesse vorgestellt, die ursächlich auf den Betrieb und die Lagerung zurückzuführen sind. Des Weiteren werden Aussagen zu typischen Signaturen für spezifische Schädigungsprozesse getroffen.

Eine gute und verhältnismäßig aktuelle Übersicht zu relevanten Alterungsprozessen findet sich im *Managing Aging Processes in Storage (MAPS) Report* der United States Nuclear Regulatory Commission (NRC) /NRC 19/.

Im Abschnitt 2.3 werden die als möglicherweise relevant erscheinenden Schädigungsprozesse kurz zusammengefasst. Der abschließende Abschnitt 2.4 setzt sich mit empirisch beobachteten Schädigungen an Behältern und eingelagerten Inventaren auseinander.

2.1 Behälter-spezifische Schädigungsprozesse am Beispiel eines Transport- und Lagerbehälters des Typen CASTOR® V/19

Der Transport- und Lagerbehälter bildet eine wesentliche, multifunktionale Schutzbarriere. Sie erfüllt u. a. die Aufgaben, radioaktive Strahlung abzuschirmen und die Wärmeabfuhr zu gewährleisten. Die wesentliche Funktion des TLBs betrifft den sicheren Einschluss der in ihm enthaltenden radioaktiven Stoffe. Die Entsorgungskommission (ESK) stellt in den "Leitlinien für die trockene Zwischenlagerung bestrahlter Brennelemente und Wärme entwickelnder radioaktiver Abfälle in Behältern" eine Reihe von Anforderungen zusammen, die der Behälter zur Gewährleistung der passiven Sicherheitsfunktionen erfüllen muss /ESK 13/.

Der CASTOR®, entwickelt und hergestellt durch die Essener GNS (Gesellschaft für Nuklear-Service mbH), ist mit seinen zahlreichen Konfigurationen und Auslegungen für unterschiedliche hochradioaktive Inventare (Brennelemente und Kokillen) ein oft genutzter Transport- und Lagerbehälter im In- und Ausland /WIM 15/. Das Modell CASTOR® V/19 wird in Deutschland standardmäßig für DWR-Brennelemente genutzt /GNS 19/, so dass dessen Verwendung als Beispiel zur Erläuterung von Schädigungsprozessen nahe liegt. Dieser Behälter wird in Abschnitt 2.1.1 zunächst kurz beschrieben, wobei sich die Diskussion auf die wesentlichen passiven Komponenten und deren materielle Zusammensetzung konzentriert. In einem nächsten Schritt werden in Abschnitt 2.1.2 ausgewählten Schädigungsprozesse mit möglicher Relevanz für den CASTOR® V/19 näher beschrieben.

2.1.1 Beschreibung des Transport- und Lagerbehälters CASTOR® V/19

Der CASTOR® V/19 dient als Transport- und Lagerbehälter für maximal 19 bestrahlte Brennelemente aus DWR und ist für eine Gesamtwärmeleistung von 39 kW und eine Gesamtaktivität von $1,9 \cdot 10^{18}$ Bq ausgelegt.

Der Behälter besteht aus mehreren Komponenten, von denen die wesentlichen passiven Komponenten im Folgenden näher beschrieben werden sollen. Auf Kleinstkomponenten wie Schrauben, Dichtungen oder Komponenten mit einer aktiven Funktion (z. B. Druckschalter) wird dabei nicht eingegangen. Die Grundkomponente des Behälters ist ein monolithischer Körper in Form eines einseitig geschlossenen Hohlzylinders aus Sphäroguss (Gusseisen mit Kugelgraphit), an dessen Außenseite zur verbesserten Wärmeabfuhr radiale Kühlrippen eingearbeitet sind. Die Außenwandstärke beträgt mehr als 40 cm. Im Mantel des Behälterkörpers befinden sich entlang zweier konzentrischer Ringe axiale Bohrungen, die zum Zwecke der Neutronenmoderation mit Stangen aus Polyethylen (8 cm im Durchmesser) gefüllt werden. Insgesamt befinden sich entlang des inneren bzw. äußeren Ringes 50 bzw. 87 Moderatorstangen. Die Behälterinnenseite ist mit einer galvanisch abgeschiedenen Nickelschicht beschichtet. Die Außenseite des Behälters ist zum Zwecke des Korrosionsschutzes mit einer mehrkomponentige Schutzlackierung versehen.

Im Inneren des Behälterkörpers befindet sich ein Tragkorb zur Fixierung der Brennelemente, der aus boriertem Edelstahl gefertigt ist. Diese Fixierung gewährleistet die Kritikalitätssicherheit. Zudem kommen für eine verbesserte Wärmeleitung und zur Stärkung der Geometrie Aluminiumprofile zum Einsatz.

Oberhalb des Tragkorbs befindet sich das Deckelsystem zur Gewährleistung des sicheren Einschlusses des radioaktiven Inventars. Sowohl Primär- als auch Sekundärdeckel sind aus geschmiedetem Edelstahl hergestellt. Auf der Unterseite des Sekundärdeckels befindet sich eine Platte aus Polyethylen, die ebenfalls der Neutronenmoderation dient. Zwischen den beiden Deckeln und dem Behälterkörper kommen unterschiedliche Dichtungen zum Einsatz: Sowohl zwischen Primärdeckel und Behälter als auch zwischen Sekundärdeckel und Behälter befinden sich Elastomerdichtungen. Zudem werden zum Zwecke des dichten Einschlusses Vollmetalldichtungen aus Aluminium (Sekundärdeckel) bzw. Silber (Primärdeckel) verwendet. Auf der Oberseite kann ggfs. noch eine weitere Schutzplatte installiert werden, die auf der Außenseite mit einer Schutzlackierung versehen ist.

Im Bodenbereich des Behälters befindet sich eine Platte aus Polyethylen zur Neutronenmoderation sowie ein abschließender Bodendeckel.

Auf der Außenseite des Behältermantels sind sowohl in Boden- als auch in Deckennähe jeweils zwei Tragzapfen aus Edelstahl installiert, die mit dem Behälter verschraubt werden und die zum Zwecke des Behältertransports genutzt werden können.

2.1.2 Betrachtung ausgewählter Schädigungsprozesse

Mögliche Materialschädigungen können auf unterschiedliche Parameter bzw. Prozesse zurückgeführt werden. Bezogen auf die vorgestellten Kategorien der Schadensursachen sind mit Ausnahme der biologischen Materialschädigungen, Materialschädigungen durch die weiteren vier genannten Prozesse denkbar. Die Korrosion nimmt hierbei eine gewisse Sonderstellung ein, da diese insbesondere als Sekundäreffekt auftreten kann.

2.1.2.1 Strahlungsbedingte Alterungsprozesse und Sekundärschädigungen

Bei CRUD¹-Partikeln handelt es sich um hochradioaktive (Korrosions-)Partikel oder abgeriebene Metallpartikel, die sich insbesondere im Verlauf der Betriebsphase auf den Außenseiten der Brennstäbe anlagern. Durch den Einlagerungs- und Transportprozess ist es im Kontext der Zwischenlagerung prinzipiell denkbar, dass sich diese Partikel lösen und sich auf der inneren Oberfläche des Behälters (insbesondere im Bodenbereich) oder an den Wänden des Tragkorbs anlagern. Das Strahlungsspektrum dieser CRUD-Partikel, die zu großen Teilen aus Metalloxiden bestehen, kann entsprechend breit sein und insbesondere auch Betastrahler einschließen. Die Anlagerung der CRUD-Partikel kann lokale Lochkorrosion am Behälterkörper begünstigen, was aber aufgrund des weitestgehend fehlenden Sauer- und Wasserstoffes und der korrosionsbeständigen Nickelbeschichtung verhältnismäßig unwahrscheinlich ist. Als tendenziell anfälliger für Korrosion erscheinen die Schweißnähte des Tragkorbs, insbesondere wenn diese bereits vorgeschädigt sind.

Abgesehen von diesen CRUD-Partikeln können im Kontext der strahlungsbedingten Schädigung nur Neutronen und Gammastrahlung relevant sein, da die sonstige Partikelstrahlung lokal abgeschirmt wird. Grundsätzlich sind aufgrund der hohen Reichweiten der Neutronen- und Gammastrahlung alle Behälterkomponenten betroffen.

In metallischen Materialien sind die Neutronenenergien grundsätzlich ausreichend, um Fehlstellen (z. B. Frenkel-Defekte) im Metallgitter zu erzeugen, was bspw. durch Härtung oder Versprödung zu einer Beeinträchtigung des Materials führen kann. Hierbei sind insbesondere schnelle Neutronen von Bedeutung, deren kinetische Energie die Bindungsenergien überschreitet. Praktisch ist eine Schädigung aufgrund des für eine signifikante

¹ Das Akronym steht für *Chalk River Unidentified Deposits* und beschreibt im Wesentlichen radioaktive Korrosionsprodukte.

Beschädigung zu geringen Neutronenflusses über die 40-jährige Zwischenlagerperiode unwahrscheinlich. Dies gilt insbesondere für die verwendeten Aluminiumlegierungen.

Neben den unmittelbaren Neutronenschäden kann auch eine Reduzierung des neutronen-absorbierenden Materials als Alterungsprozess interpretiert werden. Durch die Absorption der Neutronen werden einzelne Atome des einfangenden Materials umgewandelt bzw. das Isotop geändert werden, so dass sich gegebenenfalls die Einfangcharakteristik der Neutronen – ausgedrückt durch den energieabhängigen Neutroneneinfangswirkungsquerschnitts – signifikant verändert. Ein Beispiel liefern borierte Materialien: Bor hat einen Absorptions-Wirkungsquerschnitt, der sich nahezu proportional zur inversen Neutronengeschwindigkeit verhält, so dass insbesondere langsame (moderierte) Neutronen eingefangen werden. Eine stetige Reduktion des Bor-Inventars durch kontinuierlichen Neutroneneinfang würde so das Neutronenspektrum graduell hin zu geringeren Energien verschieben. Grundsätzlich kann diese Problematik durch eine ausreichende Dimensionierung des Reservoirs an neutronenabsorbierenden Isotopen nahezu vermieden werden.

Für die eingesetzten Metalle sind die emittierten Gammaenergien zu gering, um Schäden zu verursachen. Ein anderes Bild ergibt sich für die Polymere und somit insbesondere für die Polyethylen-haltigen Komponenten oder den elastischen Dichtmaterialien (wie sie z. B. auch zum Verschließen von Fugen an der Behälteraußenseite eingesetzt werden). Die Energien der Gammateilchen kann ausreichend sein, um die Kohlenstoffketten aufzubrechen, wodurch ggfs. auch neue Kreuzverbindungen entstehen können. Dies reduziert zum einen die Elastizität und erhöht zum anderen das Risiko von Versprödungen. Auch eine lokale Materialabspaltung ist dadurch denkbar, wobei durch Radiolyse auch Wasserstoff gebildet werden kann. Dieser Wasserstoff kann grundsätzlich in die benachbarten Metalle eindringen und dort die Versprödung fördern. Auch ein Druckaufbau und die Bildung gefährlicher Gase kann grundsätzlich nicht ausgeschlossen werden.

In einer Studie der Bundesanstalt für Materialforschung und -prüfung (BAM) wurden die Effekte von Gammastrahlung mit Dosen bis zu 600 kGy auf ultrahochmolekularem Polyethylen (sehr lange Molekülketten) untersucht /KÖM 18/. Die Studie kam zu dem Ergebnis, dass strukturelle Änderungen zwar beobachtet werden konnten, diese Änderungen sich aber nicht signifikant auf die Abschirmwirkung für Neutronen auswirken würden.

2.1.2.2 Temperaturbedingte Alterungsprozesse

Durch hohe Temperaturen kann es grundsätzlich zu plastischen Verformungen kommen. Für Gusseisen ist mit solchen z. B. ab einer Temperatur von etwa 400 °C zu rechnen, die in der Zwischenlagerung aber bei Einhaltung der Auslegung nicht erreicht wird.

Auch für den Tragkorb sind thermisch-bedingte plastische Verformungen denkbar. Bei dem Tragkorb handelt es sich um ein verschweißtes und aus mehreren Materialien (mit unterschiedlichen Ausdehnungskoeffizienten) zusammengesetztes Objekt, so dass insbesondere Rissbildungen in Schweißnahtnähe relevant sein können. Plastische Verformungen am Tragkorb könnten z. B. dazu führen, dass sich die Schachtdimensionen derart verändern, dass es zu einer Krafteinwirkung auf die Brennelemente kommen könnte. Durch ungleichmäßige Verformungen könnten auch Scherkräfte auf die Brennelemente ausgeübt werden. Ein Report der NRC stuft thermische Alterungsprozesse an boriertem Stahl allerdings als unwahrscheinlich ein /NRC 19/.

2.1.2.3 Mechanischer Verschleiß

Mechanischer Verschleiß kann insbesondere durch Krafteinwirkungen (außerhalb der Spezifikation) verursacht werden. Die Komponenten des Behälters unterliegen grundsätzlich keiner tribologischen Beanspruchung, allerdings sind mechanische Verschleißerscheinungen als Sekundäreffekt thermischer Prozesse denkbar, wie sie im Abschnitt 2.1.2.2 beschrieben wurden.

2.1.2.4 Korrosion

Korrosion kann durch unterschiedliche Faktoren wie Feuchtigkeit, Umweltgase, Materialunreinheiten, elektrochemische Effekte oder chemische Zersetzungsprozesse ausgelöst oder begünstigt werden. Auf der Mantelfläche des Behälters können Korrosionsprozesse leicht erkannt werden, auch wenn die strukturierte Oberfläche der Kühlrippen erschwerend hinzukommt. Zur Erkennung von Korrosion auf der Unterseite des Behälters ist ggfs. der Behälter als Ganzes anzuheben. Deutlich schwerer sind Korrosionen auf der Innenseite des Behälters zu erkennen. Durch die Beschichtung, die Verwendung von korrosions-beständigen Materialien, die sehr geringe Restfeuchte und die Füllung mit Helium als inertem Gas ist aber grundsätzlich nicht mit nennenswerten Korrosionen zu rechnen.

2.2 Schädigungen am eingeschlossenen radioaktiven Inventar am Beispiel eines DWR-Brennelementes

In Abhängigkeit des Reaktorkonzeptes liegt der Kernbrennstoff in unterschiedlichen, geeigneten Geometrien vor. Für den Einsatz in einem Kugelhaufenreaktor wird der Kernbrennstoff bspw. in Form kleiner Brennstoffkügelchen in eine Graphitkugel eingebracht. Deutlich geläufiger sind axiale Brennelemente für den Einsatz in Druck- und Siedewasserreaktoren, die aus einer Vielzahl einzelner Brennstäbe in einer bestimmten geometrischen Anordnung bestehen.

Auch für ein bestimmtes Reaktorkonzept können die Brennelemente unterschiedlich aufgebaut sein, z. B. hinsichtlich der aktiven Länge des gebundenen Kernbrennstoffs, der Anzahl der Brennstäbe und deren Anordnung in Verbindung mit den Führungsrohren für etwaige Steuerstäbe. Für die folgenden Unterabschnitte wird ein schematisches DWR-Brennelement zugrunde gelegt, ohne dieses näher zu spezifizieren. Dieses Brennelement wird in Abschnitt 2.2.1 beschrieben. Im Anschluss werden im Abschnitt 2.2.2 Schädigungsprozesse an einem solchen Brennelement mit Relevanz für die Zwischenlagerung näher beschrieben.

2.2.1 Beschreibung des Brennelementes als radioaktives Inventar

Der Kernbrennstoff liegt in Form keramischer UO₂-Tabletten (*Pellets*) vor. Hierbei handelt es sich um gesintertes, keramisches und hochreines Urandioxid mit einer mikroskopischen Korngröße von etwa 5 – 10 μ m und einer Porosität bis etwa 5 %. In Abhängigkeit des Reaktors und des Reaktorkonzepts haben die Pellets einen typischen Durchmesser und eine typische Höhe von je etwa 10 mm.

Diese Tabletten werden zu einer Brennstoffsäule angeordnet und in ein einseitig offenes Hüllrohr mit einer Wanddicke von unter 1 mm eingebracht. Im unteren Bereich befindet sich eine Stützhülse und eine Tablette zur Isolierung. Nach Befüllen des Hüllrohrs mit den UO₂-Tabletten, einer weiteren Isoliertablette und einer Druckfeder wird das Hüllrohr mit Helium gefüllt und gasdicht verschweißt. Für das Hüllrohr werden in Abhängigkeit des Reaktortyps meist bestimmte Zirkoniumlegierungen als Werkstoff verwendet – in DWR werden z. B. Zircalloy-4, ZIRLO (Westinghouse) oder M5 (AREVA) genutzt. Alternativ finden in DWR auch sogenannte Duplex-Hüllrohre Verwendung, bei denen Zircalloy-4 zunächst als Basiswerkstoff genutzt wird und die Außenseite des Hüllrohres zusätzlich mit einer korrosionsbeständigen Außenschicht (z. B. aus Niob oder Zinn) versehen wird. Zwischen Hüllrohr und der Brennstoffsäule befindet sich aus thermischen Gründen in radialer Richtung ein Dehnungsspalt. Das Hüllrohr dient auch als Freisetzungsbarriere, z. B. für Edelgase, die im Zuge des Betriebs entstehen und aus der (porösen) Brennstoffmatrix entweichen können. Ein typischer Brennstab hat eine Länge von etwa 4,4 m und eine aktive Länge von 3,9 m.

Anschließend wird aus mehreren Brennstäben und Führungsrohren ein Brennelement gebildet. Je nach Reaktortyp sind Brennstäbe und Hüllrohre in einer bestimmten Geometrie angeordnet: Ein DWR-Brennelement kann bspw. aus 300 Brennstäben und 24 Führungsrohren in einer 18x18 Anordnung bestehen ("18x18-24 Brennelement"). Zur Fixierung der Geometrie sind entlang der Längsachse mehrere Abstandhalter angebracht. Zudem werden die einzelnen Stäbe sowohl oben als auch unten durch ein entsprechendes Kopf- bzw. Fußelement fixiert. Mit diesen Komponenten beträgt die Länge des vollständigen DWR-Brennelements etwa 5 m.

2.2.2 Betrachtung ausgewählter Schädigungsprozesse

Im Gegensatz zu den verwendeten Transport- und Lagerbehältern sind für die Brennelemente auch Materialschädigungen relevant, die ursächlich auf die Betriebsphase zurückgehen bzw. in dieser initiiert wurden. Im Abschnitt 2.2.2.1 werden zunächst solche Alterungsprozesse betrachtet, die auf die Betriebsphase zurückzuführen sind. Anschließend werden in Abschnitt 2.2.2.2 Alterungsprozesse näher betrachtet, die in der Lagerphase relevant sind.

2.2.2.1 Relevante Materialschädigungsprozesse in der Betriebsphase

Im Leistungsbetrieb unterliegen die Brennstofftabletten einem starken, radialen Temperaturgradient: Die sehr hohen Temperaturen im Zentrum von etwa 800 – 1400 °C nehmen radial ab und betragen im Randbereich noch etwa 500 °C. Dieser Temperaturgradient bedingt eine Wärmespannung, die sich auf das Brennstoffgefüge wesentlich auswirken kann, z. B. durch Aufreißen der Pellets, wodurch Bruchfragmente entstehen können.

Im Zuge der Fragmentierung kommt es zu einer Vergrößerung der Brennstoffoberfläche und zur Ausbildung von Diffusionspfaden. Bei hohen Abbränden bildet sich zudem im Randbereich der Pellets ein etwa 100 µm breiter Saum, der durch einen deutlich höheren Abbrand charakterisiert ist. Dieser Saum ist poröser und erhöht die Wahrscheinlichkeit der Freisetzung gasförmiger Spaltprodukte.

Durch Freisetzung von Edelgasen wie Helium, Krypton oder Xenon kann es im Inneren des Hüllrohrs zu einem Druckanstieg kommen. Durch einen Anstieg des Innendrucks im Hüllrohr oder generell durch eine Veränderung der Hüllrohrstabilität kann die Barrierefunktion des Hüllrohrs beeinträchtigt werden. Untersuchungen haben ergeben, dass sich bei überhöhtem Innendruck am ehesten die Tangentialspannung negativ auf die Hüllrohrstabilität auswirkt, die ggfs. zu Längsrissen führen kann.

Eine Schwächung der Hüllrohrwand durch Korrosion ist grundsätzlich denkbar. In Verbindung mit Wasser reagiert die Zirkonlegierung zu ZrO₂. In Abhängigkeit der Betriebstemperaturen ergeben sich unterschiedliche Oxidablagerungen. In DWR, bei denen die Kühlmitteltemperatur etwa 300 bis 320 °C beträgt, bildet sich z. B. eine geschlossene Oxidschicht, die allerdings relativ korrosionsbeständig ist. Es wird davon ausgegangen, dass ab einer Schichtdicke von 150 µm die Integrität gefährdet wird, so dass aus Sicherheitsgründen und auf Basis von Berechnungen die Nutzungsdauer der Brennstäbe derart eingeschränkt wird, dass eine Oxidschichtdicke von 100 µm nicht überschritten wird.

Ein mechanischer Abrieb, durch den es zu einer Reduzierung der Hüllrohrwandstärke kommt (*fretting*), ist insbesondere in den Bereichen denkbar, in denen Brennstäbe und Abstandshalter in Kontakt kommen.

Im Betrieb kommt es durch strahlenbedingte Schwellvorgänge zu einer Vergrößerung der Pellets und relativ schnell nach Inbetriebnahme zum Spaltschluss zwischen Pellets und Hüllrohr, so dass mechanische und chemische Wechselwirkungen ermöglicht werden.

2.2.2.2 Relevante Materialschädigungsprozesse in der Lagerphase

Auch im Verlauf der (Zwischen-)Lagerung werden fortwährend weitere Edelgase erzeugt, die den Innendruck erhöhen können. Durch den für den Innendruck gegenläufigen Trend der kontinuierlichen Abkühlung wird diese Zunahme des Edelgas-Reservoirs aber als unkritisch erachtet.

Durch Korrosion metallischer Werkstoffe kann Wasserstoff freigesetzt werden, bei Anwesenheit von Wasser z. B. auch durch Radiolyse. Vorhandenes Wasser bzw. vorhandene (Rest-)Feuchte kann auch zu Rosten führen. Grundsätzlich erhöht sich durch den erzeugten Wasserstoff der Druck. Zudem können sich bei einem hohen Wasserstoff-Partialdruck auch Hydride in den metallischen Materialien bilden, was Versprödung fördern kann.

Während der Lagerung entstehen auch weitere Gase, die durch Diffusion aus der Brennstoffmatrix austreten können, was durch eine poröse Struktur gefördert wird. Die Diffusion hängt entscheidend von der Temperatur ab, so dass diese im Verlauf der Lagerung bei ansonsten konstanten Randbedingungen zunehmend unkritischer wird.

2.2.2.3 Zustandsszenarien für Schäden an Brennelementen mit Relevanz für die Zwischenlagerung

Grundsätzlich besteht in Folge dieser Alterungsprozesse die Möglichkeit für folgende Zustandszenarien:

- Rissbildung an den Hüllrohren
- Umverteilung von Brennstoff innerhalb des Brennstabs
- Umverteilung von Brennstoff in den Tragkorb hinein
- Umverteilung von Brennstoff in den Bodenbereich des Tragkorbs

2.3 Zusammenfassung relevanter Materialschädigungsprozesse

Die als am relevantesten eingestuften Materialschädigungsprozesse an TLB und Brennelementen sind, aufgeschlüsselt nach den etablierten Kategorien, in Abb. 2.1 und Abb. 2.2 dargestellt.

Für den TLB sind insbesondere strahlungs- und thermisch-bedingte Alterungsprozesse zu betrachten, die zu weiteren Sekundärschädigungen führen können. Für die Brennelemente sind Materialschädigungen denkbar, die ursächlich auf die hohen Temperaturen und die Anwesenheit von Wasser zurückzuführen sind.



Abb. 2.1 Relevante Materialschädigungsprozesse am TLB



Abb. 2.2 Relevante Materialschädigungsprozesse am Brennelement

2.4 Praktische Erfahrungen zu beobachteten Materialschäden im Rahmen der Zwischenlagerung

Praktische Informationen zu beobachteten Materialschäden liegen insbesondere für die Außenseite des Behälters vor, die überwiegend im Rahmen wiederkehrender Prüfungen gewonnen wurden. Informationen zu einer direkten Überprüfung des Behälterinneren für einen realistischen Behälter nach einer gewissen Zwischenlagerdauer sind hingegen nur spärlich vorhanden. Am Idaho National Laboratory (INL) wurde im Jahr 1999 ein CASTOR® V/21 Behälter geöffnet, der zuvor 14 Jahre für die Zwischenlagerung bestrahlter Brennelemente genutzt wurde /INL 01/. Bei dessen Überprüfung konnten keine signifikanten Schäden an der Nickelbeschichtung auf der Innenseite des Behälters beobachtet werden. Kleinere oberflächliche Schrammen wurden auf den Beladungsprozess zurückgeführt. Am Behälterboden befanden sich kleinere Partikel von nur geringer Radioaktivität. Es wurden keine Korrosionsschäden festgestellt. Der Abschlussbericht stellt fest, dass es keine Hinweise für Schäden am Behälter, an der Abschirmung oder an den Brennstäben gab, die die Behälterintegrität oder die Brennstoffintegrität negativ beeinflusst haben. Es ist allerdings hervorzuheben, dass sich auf Basis eines einzelnen Behälters und der verhältnismäßig kurzen Lagerzeit keine belastbaren Rückschlüsse auf andere Behälter, insbesondere im Kontext einer verlängerten Zwischenlagerung, ergeben.

3 Übersicht über geeignete bzw. potenziell geeignete zerstörungsfreie Prüfverfahren zur Inspektion von Lagerbehältern und eingelagerten Inventaren

Hinsichtlich des Einsatzes von Prüfverfahren muss zunächst unterschieden werden, ob der Behälter oder das eingelagerte Inventar auf Schäden überprüft werden soll. In Abhängigkeit der Zielsetzung können so unterschiedliche Verfahren als geeignet erscheinen.

Dieses Kapitel bietet einen kurzen Überblick über ausgewählte Prüfverfahren, die entweder bereits zur zerstörungsfreien Prüfung genutzt werden oder deren Eignung derzeit evaluiert wird. Um einzuschätzen, inwieweit die Verfahren sinnvoll eingesetzt werden können, ist zudem eine differenzierte Betrachtung der relevanten Alterungsprozesse sowie der zugehörigen Signaturen notwendig. Eine Übersicht über die berücksichtigten Verfahren und ihre Relevanz für die Behälter- und/oder Inventarprüfung ist in Tab. 3.1 dargestellt.

Verfahrensbezeichnung	Relevanz für die Anwendung zur zerstörungsfreien Prüfung des Behälters	Relevanz für die Anwendung zur zerstörungsfreien Prüfung des Inventars
Optische Prüfung (Sichtprüfungen)	Х	
Wirbelstromprüfung	Х	
Schallemissionsprüfung	Х	
Langstrecken-Ultraschall- untersuchung mit geführten Wellen	Х	
Laser Ultraschallprüfung	Х	
Thermographie		Х
(Passive) Radiographie mit Neutronenstrahlung		Х
(Passive) Radiographie mit Gammastrahlung		Х
Myonenradiographie		Х
Akustische Verfahren		X

Tab. 3.1Verfahrensübersicht

Der Begriff Relevanz ist hier weit gefasst und bezieht sich nicht nur auf die erfolgreiche Nutzung des Verfahrens, sondern schließt auch aktuelle F&E Tätigkeiten ein, so dass nicht zwingend von einem industriellen Nutzen ausgegangen werden kann.

Die Darstellung fokussiert sich in knapper Form auf ausgewählte Verfahren. Für eine vertiefte Betrachtung wird auf bereits existierende Literatur verwiesen, z. B. auf den Bericht von R. M. Meyer und Kollegen /MEY 16/.

3.1 Optische Prüfungen/Sichtprüfungen

Bei der Sichtprüfung wird der Behälter optisch untersucht, wofür gegebenenfalls, z. B. aus Gründen des Strahlenschutzes, Hilfsmittel wie Kameras, Linsen, Lichtfibern, u. ä. verwendet werden. In kerntechnischen Anlagen werden Sichtprüfungen zur Inspektion von Rohrleitungen oder Druckbehältern verwendet und erlauben u. a. die Erkennung von Rissen. Sichtprüfungen erlauben eine einfache, schnelle und kostengünstige Überprüfung der Außenseite der Behälter, wobei z. B. Schäden an der Versiegelung oder Korrosionserscheinungen erkannt werden können. Eine Überprüfung des Behälterinneren setzt eine Behälteröffnung zwingend voraus.

3.2 Wirbelstromprüfung

Die Wirbelstromprüfung (*Eddy Current Testing*, ECT) ist ein elektrisches Verfahren, dass zur zerstörungsfreien Prüfung von elektrisch leitenden Werkstoffen eingesetzt werden kann. Bei dem Verfahren wird mittels einer Spule (Erregerspule) ein wechselndes Magnetfeld erzeugt, in dessen Folge im zu untersuchenden Objekt Wirbelströme induziert werden. Diese Wirbelströme erzeugen ein weiteres Magnetfeld, was z. B. durch eine zweite Spule gemessen werden kann. Bei der Messung sind die Amplitude sowie die Phasenverschiebung zum Erregersignal zwei wesentliche Parameter, die für die Prüfzwecke analysiert werden können. Das resultierende Messsignal zeigt eine Abhängigkeit von der Leitfähigkeit, der Permeabilität und dem Abstand zwischen Detektor und Materialoberfläche.

Das Verfahren nutzt aus, dass Beschädigungen in einem elektrisch leitfähigen Material in der Regel zu einer veränderten elektrischen Leitfähigkeit bzw. Permeabilität führt. Es kann somit zur Rissprüfung, Schichtdickenmessung und Gefügeprüfung verwendet werden.

3.3 Schallemissionsprüfung

Bei der Schallemissionsprüfung (*Acoustic Emission Testing*, AET) handelt es sich um ein zerstörungsfreies Prüfverfahren bei dem ausgenutzt wird, dass plötzliche Veränderungen in einem Werkstoff zu einer Schallemission in Form einer transienten, elastischen Spannungswelle führen. Grundsätzlich setzen sich diese aus unterschiedlichen Wellentypen wie Longitudinalwellen, Transversalwellen und Rayleigh-Wellen zusammen. Die Schallwellen werden mit geeigneten Detektoren/Mikrophonen, die an der Behälteraußenseite befestigt werden, registriert. Entscheidend ist, dass die Schallwellen nicht extern induziert, sondern durch Materialveränderungen erzeugt werden. Damit handelt es sich bei der Schallemissionsprüfung um ein dynamisches Verfahren im Kontext der Überwachung und nicht um ein Verfahren zur Bestimmung des Ist-Zustands. Das Verfahren und dessen Anwendung werden in der DIN EN 13554 näher beschrieben /DIN 11/.

Im Rahmen des Projektes DCS-MONITOR wurde untersucht, ob das Reißen eines einzelnen Brennstabs mit dieser Methode zu detektieren wäre. Dazu wurde ein 60 cm langer Teststab (Innen- bzw. Außendurchmesser: 8,4 mm bzw. 10,0 mm), der ein Hüllrohr imitieren soll, mechanisch und thermisch zum Reißen gebracht und die Maximalamplitude der dabei entstandenen Druckwelle zu etwa 130 dB vermessen. Ausgehend von einer Abschwächung der Amplitude durch den Behälter von 80 dB kam die Untersuchung zu dem Schluss, dass ein solches Reißen praktisch wohl zu detektieren sei /HAM 18/.

3.4 Langstrecken-Ultraschalluntersuchung mit geführten Wellen

Bei der Langstrecken-Ultraschalluntersuchung mit geführten Wellen *(Guided Wave Testing,* GWT) werden in Abhängigkeit der Bauteildicke üblicherweise Ultraschallfrequenzen im Bereich von 20 kHz bis 100 kHz verwendet (zum Vergleich: Bei konventioneller Ultraschallprüfung werden Wellen im MHz-Bereich genutzt). Diese Wellen breiten sich im Bauteil aus und werden an den Oberflächen reflektiert, so dass sie im Bauteil geführt werden.

3.5 Ultraschalluntersuchung

Bei dem Verfahren wird unter Verwendung eines Koppelmediums ein Prüfkörper an das Objekt angelegt, der Ultraschallwellen mit Frequenzen im kHz- bis MHz-Bereich aussendet. Das Verfahren basiert darauf, das sich Schallwellen in unterschiedlichen Medien mit verschiedenen Ausbreitungsgeschwindigkeiten ausbreiten und insbesondere an Grenzflächen zu anderen Materialien (z. B. Lufteinschlüssen oder Rissen) partiell reflektiert werden bzw. die Ausbreitungsrichtung ändern. Bei dem Impuls-Echo-Verfahren werden die Reflexionen durch den Prüfkörper (Senden und Empfangen durch die gleiche Komponente) im gleichen Gehäuse detektiert und aus der Laufzeitdifferenz der Abstand zur Ungänze (Materialfehler) bestimmt. Die kleinsten abzubildenden Materialfehler sind abhängig von der verwendeten Ultraschallfrequenz und liegen typischerweise im mm Bereich. Oberflächennah gibt es eine verfahrensbedingte Totzone, da der Prüfkörper nicht gleichzeitig Senden und Empfangen kann. Das Verfahren eignet sich für Objekte mit einer Ausdehnung von typischerweise bis etwa 5 m. Beim Durchschallungsverfahren dient der Prüfkörper als Sender, ein zusätzlicher Empfänger wird genau an der gegenüberliegenden Seite angebracht. Durch die Trennung von Sender und Empfänger können mit diesem Verfahren auch oberflächennahe Zonen überprüft werden.

3.6 Laser Ultraschallprüfung

Bei diesem Verfahren erzeugt ein Laser einen auf den Behälter gerichteten, gepulsten Erzeugerstrahl, der durch thermoelastische Effekte auf der Oberfläche in Ultraschallwellen umgewandelt wird. Diese Wellen durchdringen senkrecht zur Oberfläche das Material und können an der Rückseite reflektiert werden. Das Signal erfährt materialspezifische Änderungen, z. B. hinsichtlich der Intensität. Ein zweiter Laserstrahl, der auf denselben Punkt ausgerichtet wird, sendet ein kontinuierliches Signal, das an der Oberfläche des Objektes zurückgeworfen wird. Dieses Signal wird mit dem Echosignal des eingedrungenen Ultraschallsignals moduliert. Auf der Oberfläche entsteht eine Ultraschallschwingung, die mit einem optischen Fabry-Perot Interferometer registriert wird.

Das Verfahren ist, verglichen zur konventionellen Ultraschallprüfung, aufwendig und kostenintensiv.

3.7 Thermographie

Für die thermographische Bildgebung wird die Zerfallswärme und deren Ausbreitung über den Behälter als bildgebendes Signal genutzt. Änderungen in der Verteilung der Wärmeerzeuger innerhalb des Behälters führen prinzipiell auch zu messbaren Änderungen auf der Außenseite des Behälters. Umgekehrt bedeutet dies, dass eine Vermessung der Oberflächentemperatur auch Rückschlüsse über das radioaktive Inventar und dessen Verteilung, insbesondere vor dem Hintergrund der Proliferation und einer (deutlichen) Umverteilung des Kernbrennstoffs im Behälter, erlaubt (inverses Problem). Somit ist das Verfahren primär für die Prüfung und Überwachung des Zustands des Kernbrennstoffs gedacht. Wie viele andere inverse Verfahren hängt die Rekonstruktion stark von der Präzision der gemessenen Randbedingungen ab, so dass insbesondere Messunsicherheiten oder Messfehler sich entsprechend stark auswirken. Zudem ist es durchaus denkbar, dass unterschiedliche Kernbrennstoffverteilungen zu (nahezu) identischen Messergebnissen führen könnten. Ein weiteres Problem des Verfahrens wird durch die kontinuierlich abfallende Zerfallswärme und der damit verbundenen Reduzierung der Oberflächentemperatur im Verlauf der Zwischenlagerung bedingt. Da Temperaturunterschiede bzw. Temperaturgradienten eine wesentliche Messgröße sind, nimmt die Präzision des Verfahrens mit voranschreitender Zwischenlagerzeit ab.

Eine Simulationsstudie im Rahmen des Projekts DCS-Monitor untersuchte die grundsätzliche Eignung des Verfahrens für unterschiedliche Zustandsszenarien (Kompaktierung aller Brennstäbe eines Brennelementes um 9 cm, Kompaktierung aller Brennstäbe aller Brennelemente um 9 cm sowie 50 % Kompaktierung aller Brennelemente) /WAG 20/. Die Studie kam zu der Schlussfolgerung, dass die Thermographie sich in dieser Form nicht sinnvoll zum Zwecke der Zustandsüberwachung im Rahmen der (verlängerten) Zwischenlagerung eignen würde.

3.8 Passive Radiographie mit Neutronen- und Gammastrahlung

Bei dieser Methode wird außerhalb des Behälters das Neutronen- und/oder Gammafeld vermessen, das im Zuge der Nachzerfälle (spontane Spaltung, (α, n) -Reaktionen, etc.) generiert wird. Diese Methode wird grundsätzlich durch die massive Behälterstruktur und der Abschirmwirkung des Behälters erschwert. Aufgrund der im Vergleich zu Neutronen geringeren Reichweite der Gammastrahlung in Materie, ist grundsätzlich zu erwarten, dass tendenziell eher eine Überprüfung der äußeren Brennelemente möglich sein könnte.

Im Rahmen des Projekts DCS-Monitor wurden Monte-Carlo-Studien mit MCNP durchgeführt, mit denen der Frage nachgegangen wurde, inwieweit sich detektierte Gammabzw. Neutronen-Flüsse eignen würden zur Erkennung (einzelner) defekter Brennelemente, bei denen die einzelnen Brennstäbe radial um 100 µm expandiert sind und sich Brennstoff im unteren Bereich angesammelt hat /RAC 20/. Die Studien zeigen, dass sich sowohl der Neutronen- als auch der Gammafluss für ein äußeres defektes Brennelement signifikant verändern. Für die inneren Brennelemente ist die Absorption der Gammastrahlung durch den Behälter bzw. durch die anderen Brennelemente zu hoch, so dass hier nur die Neutronen eine geeignete Signatur darstellen. Grundsätzlich hängt die Methode zudem stark von der Aktivität des Kernbrennstoffs ab, so dass mit steigender Lagerzeit eine reduzierte Sensitivität zu erwarten ist.

4 Detaillierte Betrachtung der Myonen-Radiographie zum Zwecke der Zerstörungsfreien Behälter- und Inventarinspektion

4.1 Produktion und Eigenschaften Atmosphärischer Myonen

Die Erde bzw. die Atmosphäre der Erde ist fortwährend (etwa 1000 Teilchen/(m²•s)) der aus allen Richtungen kommenden *primären kosmischen Strahlung* ausgesetzt. Diese besteht zum Großteil aus Protonen (89 %) und Heliumkernen (10 %) /CERN 23/. Deutlich geringere Beiträge zum Teilchenfluss gehen u. a. zurück auf schwerere Atomkerne oder Positronen. In Abhängigkeit des Ursprungs wird eine Unterteilung in *solare Strahlung, galaktische Strahlung* und *extragalaktische Strahlung* vorgenommen. Diese Unterteilung geht einher mit jeweils typischen Teilchen-, Energie- und Intensitätsverteilungen (siehe Abb. 4.1):

- Die solare Strahlung liefert den größten Beitrag zur primären kosmischen Strahlung und lässt sich im Wesentlichen auf den Sonnenwind und Sonnenflecken zurückführen. Sie besteht vorwiegend aus Protonen und Alphateilchen mit Energien um 1 GeV.
- Die galaktische kosmische Strahlung steuert einen geringen Beitrag zur primären kosmischen Strahlung bei. Sie ist charakterisiert durch Teilchen hoher Energie (> 1 GeV) und umfasst auch schwerere Ionen bis hin zu Eisen.
- Die extragalaktische kosmische Strahlung macht nur einen sehr geringen Anteil aus, ist aber durch extrem hohe Teilchenenergien bis zu einigen 1E20 eV geprägt. Wie die galaktische kosmische Strahlung umfasst sie Protonen und schwerere Ionen.

In der Erdatmosphäre werden durch Wechselwirkungen (z. B. Spallationsreaktionen) der primären kosmischen Strahlung mit Gasatomen oder -molekülen (z. B. N₂) *Teilchenschauer* mit einer großen Anzahl von Sekundärteilchen initiiert, die die *sekundäre kosmische Strahlung* bilden (siehe Abb. 4.2). Aufgrund des Energieverlustes und der eventuellen Kurzlebigkeit erreichen hierbei aber nicht alle Sekundärteilchen die Erde.



Abb. 4.1 Fluss der kosmischen Primärstrahlung als Funktion der Energie

Der Fluss im gelb hinterlegten Bereich ist zu wesentlichen Teilen solaren Ursprungs. Der Fluss im mittleren (hohen) Energiebereich repräsentiert überwiegend galaktische (extragalaktische) Primärstrahlung /LAF 19/.

In Abhängigkeit der bei der Wechselwirkung entstehenden Teilchenart werden die Bestandteile der sekundären kosmischen Strahlung wie folgt unterteilt:

• Hadronische Komponente

Diese Komponente besteht aus Hadronen² und umfasst insbesondere Protonen, Neutronen, Mesonen³ (z. B. Pionen und Kaonen) oder Kernfragmenten. Diese Teilchen sind zum Teil kurzlebig und durch entsprechende Zerfallsprozesse charakterisiert.

Elektromagnetische Komponente
Diese Komponente besteht aus Elektronen, Positronen oder auch Gammastrahlung.

² Bei Hadronen handelt es sich um subatomare Teilchen, die von der starken Wechselwirkung zusammengehalten werden. Hierzu gehören insbesondere Protonen und Neutronen.

³ Mesonen sind instabile Hadronen, die aus einem Quark-Antiquark-Paar bestehen. Mesonen haben zudem einen ganzzahligen Spin.

• Myonische Komponente

Diese besteht aus Myonen (μ^-), Anti-Myonen (μ^+) und entsprechenden Neutrinos. Diese Myonen entstehen dabei insbesondere im Zuge des Verfalls von Mesonen.

Myonen sind kurzlebige Elementarteilchen mit einer Lebensdauer von etwa 2,2E-6 s und ähneln in vielen Eigenschaften Elektronen. Aufgrund der im Vergleich zu Elektronen deutlich höheren Masse (105,7 MeV/c² im Vergleich zu 511 keV/c²), ist der bremsstrahlungsbedingte Energieverlust beim Durchtritt durch Materie deutlich geringer, was in einer höheren Reichweite resultiert.

In der sekundären kosmischen Strahlung bilden Myonen bzw. Anti-Myonen einen Hauptbestandteil und werden aufgrund ihres Entstehungsortes oft als atmosphärische Myonen bezeichnet. Im Vergleich zu den sonstigen massiven Teilchen wie Protonen, Neutronen, Elektronen oder Mesonen führen die atmosphärischen Myonen zum größten Beitrag der sekundären kosmischen Strahlung, die die Erdoberfläche erreicht.



Abb. 4.2 Schematische Darstellung kosmischer Schauer



Abb. 4.3 Differentielle Teilchenflüsse für ausgewählte Teilchen der kosmischen Sekundärstrahlung als Funktion der atmosphärischen Tiefe bzw. der Höhe oberhalb von Normalnull /BON 20/

Der differentielle Teilchenfluss beläuft sich für die atmosphärischen Myonen auf etwa 100 Teilchen/(m²•s•sr), was etwa dem 50-fachen des entsprechenden Wertes für Protonen und Neutronen entspricht.

Die Verteilung der atmosphärischen Myonen zeigt eine starke Impuls- und Richtungsbzw. Winkelabhängigkeit /SHU 18/. Der differentielle Teilchenfluss als Funktion des Winkels θ relativ zum Zenit folgt dabei einer annähernd mit cos²(θ) zu beschreibenden Verteilung. In Abhängigkeit des Absolutimpulses zeigt der differentielle Fluss ein Maximum bei etwa 1 GeV/c und einem Abfall mit steigendem Impuls.

Als massives geladenes Teilchen wird der Energieverlust von Myonen beim Durchgang von Materie über einen weiten Energiebereich gut durch die Bethe-Bloch-Theorie be-
schrieben⁴. Für atmosphärische Myonen mit kinetischen Energien oberhalb von 1 GeV ergeben sich so, selbst für massive Objekte wie etwa Gestein ($\rho = 2.65$ g/cm³ für Standardgestein), hohe Reichweiten. Für Myonen mit einer kinetischen Energie von 1 GeV sind es etwa 2 m. Bei kinetischen Energien von 100 GeV sind es bereits 150 m.

Neben dem Energieverlust ist eine weitere wichtige Eigenschaft des Wechselwirkungsverhaltens das Streuverhalten aufgrund der Coulomb-Streuung. Für ausreichende Materialdicken kommt es zu hinreichend vielen, multiplen Streuungen, so dass sich in guter Näherung eine Normalverteilung ergibt, deren Standardabweichung sich unter Berücksichtigung empirischer Korrekturen gut mit der folgenden Formel beschreiben lässt /BON 20/:

$$\sigma(\Delta \theta) = \frac{13.6 \, MeV}{\beta cp} \sqrt{\frac{x}{X_0}} \left[1 + 0,038 \frac{x}{X_0 \beta^2} \right]$$
(4.1)

In dieser Formel bezeichnet β die Geschwindigkeit relativ zur Lichtgeschwindigkeit, *c*, *p* ist der Absolutimpuls, *x* die Materialdicke und X_0 die Strahlungslänge. Die Strahlungslänge länge ist eine Materialeigenschaft und verhält sich wie folgt:

$$\frac{1}{X_0} \propto \frac{Z(Z+1)}{A} \ln\left(\frac{287}{\sqrt{Z}}\right) \tag{4.2}$$

Hierbei ist A die (effektive) Massenzahl und Z die (effektive) Kernladungszahl. Grundsätzlich ist der mittlere Ablenkungswinkel $\langle \Delta \theta \rangle$ gleich Null, wohingegen die Standardabweichung der Winkelverteilung eine materialspezifische Größe ist.

4.2 Bildgebende Verfahren mit atmosphärischen Myonen

Insbesondere die materialspezifischen Abbrems- und Streu-Eigenschaften in Verbindung mit den verhältnismäßig hohen Reichweiten der energiereichen Myonen in Materie können zum Zwecke der zerstörungsfreien Bildgebung auch von massiven, großvolumigen Objekten genutzt werden, um Rückschlüsse zu eingeschlossenen Strukturen ziehen zu können. Eine gute Übersicht hierzu findet sich im Übersichtsartikel von L. Bonechi und Kollegen /BON 20/.

⁴ Bei hohen kinetischen Energien oberhalb von ~ 20 GeV werden Strahlungsverluste zunehmend dominierend, so dass hier der Energieverlust durch die Bethe-Bloch-Theorie unterschätzt wird.

Im Vergleich zu anderen bildgebenden Verfahren hat die Bildgebung mit Myonen einige Vorzüge. So stehen die atmosphärischen Myonen jederzeit und ohne Erzeugungskosten zur Verfügung. Das Verfahren geht insbesondere mit keiner zusätzlichen Strahlungsbelastung für das involvierte Personal einher. Neben dem hohen Durchdringungsvermögen ist zudem aufgrund der Ladung der Nachweis von Myonen verhältnismäßig einfach und durch eine hohe Nachweiswahrscheinlichkeit charakterisiert.

Die ersten praktischen Anwendungen der Myonen-gestützten Bildgebung können bis in die 1950er zurückverfolgt werden /GEO 55/. Eine größere Aufmerksamkeit bekam die zerstörungsfreie Bildgebung mit atmosphärischen Myonen durch die Suche nach versteckten Kammern in der Chephren-Pyramide Ende der 1960er /ALV 70/.



Abb. 4.4Schematische Darstellung der der Absorptionsradiographie (*links*) bzw. derStreutomographie (*rechts*).

Der graue Bereich stellt einen äußeren Körper dar (z. B. ein Behälter), der das zu erkennende Objekt (in rot) vollständig umhüllt. In blau sind Detektionsflächen dargestellt. Die Abbildungsebene ist in grün hervorgehoben. Die schwarzen Trajektorien repräsentieren skizzenhaft mögliche Myonenpfade.

Grundsätzlich lassen sich zwei experimentelle Ansätze – die *Absorptionsradiographie* und die *Streutomographie* – unterscheiden, bei denen auf unterschiedliche bildgebende Informationen zurückgegriffen wird. Beide Ansätze sind in Abb. 4.4 schematisch dargestellt.

- Bei der (Absorptions-)Radiographie befindet sich zwischen Detektor und Myonenquelle das zu durchleuchtende Objekt, so dass nur ein bestimmter Raumwinkel berücksichtigt wird. Der Detektor kann hier ein- oder mehrlagig sein. Die Messgröße ist bei diesem Ansatz die Abschwächung des Myonenflusses. Unter der Annahme einer bestimmten Zusammensetzung des Objektes lässt sich so auf die effektive Materialdicke rückschließen: Je geringer die Abschwächung, desto geringer ist die effektive Dichte (Hohlräume). Bei der Absorptionsradiographie werden zweidimensionale Projektionsbilder erzeugt.
- Bei der (Streu-)Tomographie befindet sich das zu durchleuchtende Objekt zwischen zwei Detektoren, die in der Regel auf zwei gegenüberliegenden Seiten des Objektes installiert werden. Bestehen die Detektoren aus mehr als einer positionsauflösenden Detektionsfläche, kann die Richtung des Impulsvektors jeweils vor und hinter dem Objekt reproduziert werden, woraus sich der effektive Streuwinkel bestimmen lässt. Bei diesem Ansatz können vergleichbar zur Absorptionsradiographie zweidimensionale Projektionsbilder erzeugt werden, aber auch die Erstellung dreidimensionaler (tomographischer) Bilder ist durch Anwendung von Methoden zur Pfadrekonstruktion möglich.

Die Absorptionsradiograhie wird insbesondere bei großen Strukturen (z. B. in der Vulkanologie) genutzt, die Streutomographie vorwiegend bei kleinen Strukturen.

4.3 Anwendungsbeispiele für die Myonen-gestützte Bildgebung

Die Myonen-gestützte Bildgebung wurde und wird bereits für unterschiedliche Fragestellungen produktiv eingesetzt. Parallel hierzu werden zunehmend neue, weitere Anwendungsfälle erschlossen. Die prominentesten Anwendungsgebiete sollen in diesem Abschnitt kurz erläutert werden. Bezüglich des experimentellen Ansatzes – Radiographie oder Tomographie – ergeben sich aus den Dimensionen des zu untersuchenden Objektes, der anvisierten Messzeit und des anvisierten Auflösungsvermögens sowie des Platzbedarfes grundsätzliche Einschränkungen.

4.3.1 Geowissenschaften

In den Geowissenschaften wird die Bildgebung mit Myonen am häufigsten genutzt, um Einblicke in das Innere von Vulkanen zu gewinnen. Hierfür finden sich u. a. Anwendungsgebiete in Japan, Italien und Frankreich /TAN 18/, /DAL 18/, /LES 12/. Weitere Anwendungen finden sich in den Bereichen der Exploration oder allgemein der Bildgebung unterirdischer Strukturen /SCH 18/, /BON 18/. In der Regel sind die abzubildenden Strukturen in diesem Bereich verhältnismäßig groß, so dass das benötigte Auflösungsvermögen gering ist. Zudem sind die zu durchdringenden Schichten vergleichsweise mächtig, so dass in den Geowissenschaften häufig die Myonenradiographie angewendet wird.

4.3.2 Archäologie und Bauwerkuntersuchungen

Die Suche nach Hohlräumen in Pyramiden ist eine der ältesten und prominentesten Anwendungen der Bildgebung mit Myonen. Als Beispiel hierfür dient die bereits erwähnte Studie von L. Alvarez und Kollegen aus den 1960ern /ALV 70/. Ein aktuelleres Beispiel bietet das *ScanPyramids* Projekt, in dem u. a. auch nach Hohlräumen in den Cheops Pyramiden gesucht wurde /MOR 17/. Zudem wurde die Bildgebung mit atmosphärischen Myonen zur Untersuchung und Zustandsbewertung historischer Gebäude genutzt. Ein Beispiel hierfür ist eine Studie, in der seismische Bewertungen an der hinduistischen Tempelanlage Candi Prambanan vorgenommen wurden /HAN 21/.

4.3.3 Nukleare Sicherheit

In der Sicherung wird die Bildgebung mit Myonen bspw. im Bereich der Frachtkontrolle genutzt /BOR 03/. Weitere Anwendungen finden sich im Bereich der zerstörungsfreien Prüfung von Abfallbehältern für radioaktive Abfälle und die Qualitätssicherung im Kontext von Einrichtungen zur Bearbeitung radioaktiver Abfälle /MAH 18/, /CLA 15/. Zudem wurde die Radiographie eingesetzt, um den Zustand einer der havarierten Reaktoren der Anlage Fukushima Dai-ichi zu untersuchen /MIY 13/. Ein weiteres, sehr aktives Feld ist die Überwachung von Transport- und Lagerbehältern für die Trockenlagerung bestrahlter Brennelemente /POU 19/, /YAN 18/.

4.3.4 Konventionelle Industrie

Ziel der europäischen Projekte Mu-Blast und BLEMAB war bzw. ist die (kontinuierliche) Überwachung der kohäsiven Zone in industriellen Hochöfen bezüglich Geometrie und Dichte /CAL 18/, /BLE 21/. Ein weiterer Bereich, in dem die Bildgebung mit Myonen angewendet wurde, ist die Erkennung von radioaktiven Quellen in Altmetall /MAR 14/.

4.4 Studien im Kontext der Myonen-gestützten Bildgebung zum Zwecke der zerstörungsfreien Behälter- und Inventarüberprüfung

In den vergangenen Dekaden beschäftigte sich eine Reihe von Forschungsprojekten mit der Anwendung der Myonen-gestützten Bildgebung zur nicht-invasiven Prüfung beladener Transport- und Lagerbehälter für bestrahlte Brennelemente. Durch den in vielen Ländern aufgrund der Notwendigkeit einer verlängerten Zwischenlagerung absehbaren Bedarf an zerstörungsfreien Prüfverfahren zur Behälterinspektion und Integritätsprüfung, haben diese Forschungsaktivitäten ein zusätzliches Momentum erhalten. Grundsätzlich lassen sich hier experimentelle Arbeiten und Simulationsstudien unterscheiden, bei denen neben der grundsätzlichen Eignung auch methodische und zeitliche Kriterien untersucht werden. Simulationsstudien sind verhältnismäßig leicht und abhängig von der Prozessierung der simulierten Daten auch zügig durchzuführen. Der Aufwand für experimentelle Studien ist hingegen hoch, so dass die experimentelle Datenlage derzeit vergleichsweise spärlich ist.

In der experimentellen Studie von J. M. Durham und Kollegen wurde nachgewiesen, dass sich die Myonen-Radiographie grundsätzlich eignet um fehlende Brennelemente in einem TLB vom Typ Westinghouse MC-10-Behälter zu erkennen /DUR 18/.

In einer Reihe von Simulationsstudien wurden stehende TLBs und zwei an gegenüberliegenden Seiten des TLB platzierte Detektormodelle angenommen und unterschiedliche Fragestellungen untersucht. G. Jonkmans und Kollegen untersuchten, ob sich die Methode eignet, um eingeschlossene Materialien mit einem hohen effektiven Z-Wert zu erkennen /JON 13/. A. Clarkson et al. nutzten GEANT4 zur Simulation von Szintillationsfiber-Detektoren für tomographische Aufnahmen /CLA 14/. S. Chatzidakis und Kollegen nutzten Bayes-Methoden, um Machbarkeitsgrenzen zu evaluieren /CHA 14/. In der Studie von D. Poulsen und Kollegen wurden erstmals gefilterte Rückprojektionsalgorithmen für die Erstellung tomographischer Bilder von Behältermodellen eingesetzt und nachgewiesen, dass sich diese Methode zur Erkennung fehlender Brennelemente eignet /POU 17/. In einer vergleichsweise aktuellen Studie nutzte eine Gruppe die experimentellen Daten der Durham-Studie für eine numerische Untersuchung auf Basis von GEANT4 und ging der Frage nach, inwieweit unterschiedliche Beladungen unterschieden werden könnten. Die publizierte Studie kam zu dem Ergebnis, das eine einwöchige Messung ausreichen sollte, um fehlende Brennelemente bzw. Dummy-Brennelemente zu erkennen /POU 19/.

Hinsichtlich der Erkennung konzentrierten sich die meisten durchgeführten Studien auf Objekte mit der Dimension eines einzelnen Brennelementes. Zudem wurde in der Regel ein transversaler Aufbau genutzt, bei dem zwei radial ausgerichtete Detektoren für einen aufrechtstehenden TLB genutzt wurden.

4.5 Dedizierte Simulationsstudien zur Evaluierung der Myonen-Radiographie unter Verwendung eines generischen Transport- und Lagerbehälters

Dieser Abschnitt fasst Informationen zu simulationsgestützten Studien zusammen, die im Rahmen dieses Projektes durchgeführt wurden. Im Abschnitt 4.5.1 werden zunächst einige Aspekte des eingesetzten Monte-Carlo-Codes erläutert, bevor im darauffolgenden Abschnitt 4.5.2 ausgewählte Validierungsaspekte erläutert werden. Im Abschnitt 4.5.3 werden die Ergebnisse von Simulationsstudien vorgestellt, die sich mit der Erkennung fehlender Brennelemente bzw. fehlender Brennstäbe auseinandersetzen. Im abschließenden Abschnitt 4.5.4 wird auf Basis der gewonnenen Erkenntnisse ein Ausblick präsentiert.

4.5.1 Entwicklung der Anwendung zur Durchführung von Monte-Carlo-Simulation

Zur Durchführung von Simulationsstudien wurde im Rahmen dieses Vorhabens eine Anwendung auf Basis von GEANT4 entwickelt /AGO 03/, /ALL 06/, /ALL 16/.

GEANT4 ist eine Software-Plattform, die als Basis für Monte-Carlo basierte Simulationsrechnungen für den Transport von Teilchen in Materie genutzt werden kann. Zu diesem Zwecke stellt GEANT4 unterschiedliche Hilfsmittel zur Verfügung, die Entwickler bei ihrer Arbeit – bspw. im Bereich der Erzeugung von Geometrien, der Spurverfolgung, der Detektion und der Verwaltung von Ereignissen – unterstützen. GEANT4 wurde in den 1990er Jahren zu wesentlichen Teilen am CERN im Rahmen des CERN RD44 R&D entwickelt und wird seitdem durch die GEANT4 Collaboration gepflegt und regelmäßig aktualisiert.

Ein wesentlicher Bestandteil bei der Entwicklung von Monte-Carlo-Simulationen ist die Validierung anhand experimenteller Daten, wozu auf der Homepage der Plattform auf eine Vielzahl von Dokumenten verwiesen wird. GEANT4 wird in zahlreichen Bereichen eingesetzt, insbesondere in der Hochenergiephysik, der Weltraum- und Strahlungsforschung sowie im medizinischen Bereich. Für viele Fragestellungen können neben GEANT4 auch weitere Simulationsplattformen genutzt werden, bspw. MCNP. In der Literatur findet sich eine Vielzahl von Beiträgen, die entsprechende Simulationsergebnisse miteinander vergleichen.

Die folgenden wesentlichen Aspekte wurden bei der Entwicklung der Arbeit umgesetzt und werden in den folgenden Abschnitten näher beschrieben:

- Definition der Geometrie und Einbindung eines generischen Behältermodells
- Eigenschaften der simulierten Primärteilchen
- Simulierte physikalische Prozesse
- Teilchendetektion

4.5.1.1 Geometrie und Generisches Behältermodell

Das in der Simulation insgesamt berücksichtigte Volumen entspricht einem Quader mit einer Kantenlänge von 15 m. Wesentliche Komponenten in diesem Volumen sind zwei großflächige Detektionsebenen und ein generisches Behältermodell, das sich am CASTOR® V/19 orientiert. Für die Behältergeometrie wurden allgemein zugängliche Dokumente genutzt, bspw. /BFS 00/, /GNS 19/, aus denen sich geometrische Informationen direkt oder in guter Näherung ableiten lassen. Auf Basis dieser Quellen wurden als Materialien Sphäroguss GGG-40, Edelstahl 1.4313, Edelstahl 1.4696 und Polyethylen für die Komponenten des Behältermodells genutzt. Für das modellierte Brennelement werden zudem Urandioxid und ZircAlloy-4 als Materialen verwendet. Nähere Informationen zu den Materialienzusammensetzungen sind in Tab. 4.1 hinterlegt.

Der Behälter kann in der Simulation frei bewegt und gedreht werden. Für die hier diskutierten Studien wurde eine vertikale Konfiguration (Längsachse parallel zur *z*-Achse) genutzt. Ein Bild der Geometrie des generischen Behälters und die Orientierung des verwendeten Koordinatensystems ist in Abb. 4.5 dargestellt.



Abb. 4.5 Darstellung des generischen Behältermodells in GEANT4

Das generische Behältermodell setzt sich in der Simulation aus den folgenden getrennt voneinander gestalteten Komponenten zusammen:

- Monolithischer Behälterkörper
- Tragkorb
- Primärdeckel
- Moderatorplatten im Kopf- und Fußbereich
- Sekundärdeckel
- Schutzplatte
- Tragezapfen
- Moderatorstäbe im Mantel des Behälterkörpers mit zugehörigen Stopfen
- Bodenplatte

Eine Explosionszeichnung des Behälters, in der die einzelnen Komponenten zu sehen sind, ist in Abb. 4.6 abgebildet. Das gesamte simulierte Behältermodell hat eine Länge von 586,2 cm (ohne Schutzplatte) bzw. von 594,2 cm (mit Schutzplatte). Der Außendurchmesser beträgt 231,6 cm (ohne Kühlrippen) bzw. 244 cm (mit Kühlrippen). Informationen zu den Zusammensetzungen und den Maßen der Komponenten des generischen Behälters bzw. eines generischen Brennelementes sind in Tab. 4.2 und Tab. 4.3 hinterlegt.

Tab. 4.1Informationen zu den in der Simulation verwendeten Materialien und derenZusammensetzung

	Poly- ethylen	Uran- dioxid	Sphäroguss GGG40	Edelstahl 1.4313	Edelstahl 1.4696	Zirc Alloy-4
Dichte [g/cm ³]	0,94	10,96	7,00	7,70	7,90	6,56
H (Z=1)	14,37					
B (Z=5)					1,146	
C (Z=6)	85,63		3,47	0,05	0,0223	
N (Z=7)				0,02	0,0152	
O (Z=8)		11,85				
AI (Z=13)					0,0195	
Si (Z=14)			1,95	0,70	0,344	
P (Z=15)				0,04	0,0135	
S (Z=16)				0,015	0,0101	
Ti (Z=22)					0,0072	
V (Z=23)					0,0535	
Cr (Z=24)				14,00	18,37	0,26
Mn (Z=25)			0,60	1,50	0,897	
Fe (Z=26)			91,96	78,475	66,2324	0,37
Co (Z=27)			0,23		0,0413	
Ni (Z=28)			1,30	4,5	12,33	
Cu (Z=29)					0,204	
As (Z=33)					0,004	
Zr (Z=40)						97,92
Nb (Z=41)						
Mo (Z=42)			0,50	0,70	0,290	
Sn (Z=50)						1,45
U (Z=92)		88,15				

Die Anteile sind jeweils in Massen-% angegeben

Neben dem Behälter wurde für die Simulation auch ein generisches DWR-Brennelement 18x18-24 entwickelt (300 Brennstäbe und 24 Führungsrohre für Steuerstäbe). Wesentliche Komponenten hierbei sind der Kernbrennstoff mit einer aktiven Länge von 3,9 m und einem Radius von 4,03 mm (Zylindergeometrie), Hüllrohre und jeweils ein Kopf- und Fußelement. Die letztgenannten Komponenten weisen anstelle der komplexen realen Strukturen durch eine Kastenform eine signifikante Vereinfachung auf.



Abb. 4.6 Explosionszeichnung des generischen Behältermodells und eines generischen Brennelementes (12)

Das Behältermodell besteht aus den folgenden Komponenten: Monolithischer Behälterkörper (1), Tragkorb (2), Tragezapfen (3), Primärdeckel (4), Polyethylenplatten (5 und 10), Sekundärdeckel (6), Schutzplatte (7), Polyethylenstäbe und Abschlussstopfen im Mantelbereich (8 und 9) und Bodenplatte (11). Tab. 4.2Informationen zu Materialien und Massen der einzelnen Komponenten des
generischen Behältermodells

Komponente	Material	Masse [kg]
Monolithischer Behälterkörper	Sphäroguss GGG-40	86.381
Tragkorb	Borierter Edelstahl 1.4696 (Schächte) undEdelstahl 1.4313 (Zylindermantel)	7.459
Tragezapfen (vier Stück)	Edelstahl 1.4313	687
Primärdeckel	Edelstahl 1.4313	4.445
Absorberplatte (Deckelbereich)	Polyethylen	178
Sekundärdecke	Edelstahl 1.4313	2.185
Schutzplatte	Edelstahl 1.4313	2.320
Innere Absorberstangen und Stopfen	Polyethylen und Edelstahl 1.4313 (Stopfen)	1.687
Äußere Absorberstangen und Stopfen	Polyethylen	2.047
Absorberplatte (Bodenbereich)	Polyethylen	102
Bodenplatte	Edelstahl 1.4313	774
	Summe:	108.264

Tab. 4.3Informationen zu Materialien und Massen der einzelnen Komponenten eines
generischen Brennelementes

Komponente	Material	Masse [kg]
Kopfelement	Edelstahl 1.4313	13,8
Fußelement	Edelstahl 1.4313	13,8
Kernbrennstoff	Urandioxid	654,5
Führungen für Kontrollstäbe	ZircAlloy-4	8,0
Hüllrohr	ZircAlloy-4	154,4
	Summe:	844,5

4.5.1.2 Simulierte Primärteilchen

In der Simulation werden Myonen und Antimyonen mit einem Verhältnis μ^+/μ^- von 1,28 genutzt /KHA 10/. Für die Impulsverteilung wird auf folgende Parametrisierung zurückgegriffen /REY 06/:

$$I(p_{\mu}, \theta) = \cos^{3}(\theta) \cdot I_{V}(p_{\mu} \cdot \cos(\theta))$$
(4.3)

Hierbei ist p_µ der Linearimpuls und θ der Polarwinkel, d. h. der Winkel zwischen der *z*-Achse und der Myonen-Trajektorie. Die Funktion I_V I_V folgt der Bugaev Parametrisierung /BUG 98/:

$$I_{V}(p_{\mu}) = c_{1} \cdot p_{\mu}^{-(c_{2}+c_{3})\log_{10}(p_{\mu})+c_{4}\log_{10}^{2}(p_{\mu})+c_{5}\log_{10}^{3}(p_{\mu}))}$$
(4.4)

Die Koeffizienten c_1 bis c_5 wurden der Referenz /REY 06/ entnommen und nehmen folgende Werte an:

 $c_1 = 0,00253$ $c_2 = 0,2455$ $c_3 = 1,288$ $c_4 = -0,2555$ $c_5 = 0,0209$

Die Verteilung der Polarwinkel folgt einer cos²-Verteilung.

Die Wahrscheinlichkeitsverteilung des Impulses wurde nun in der Simulation in einem zweidimensionalen Gitter mit dem Linearimpuls und dem Polarwinkel als Koordinaten diskretisiert. Der Linearimpuls wurde aus praktischen Erwägungen auf den Bereich 1 GeV/c bis 1 TeV/c beschränkt. In der Simulation werden die Myonen oberhalb des Behälters erzeugt. Für die x- und y-Komponenten werden jeweils uniforme Verteilungen angenommen.



Abb. 4.7Vergleich der simulierten Polarwinkelverteilung (links) bzw. der simulierten
Linearimpulsverteilung (rechts) mit empirischen Verteilungen.

Die simulierten Häufigkeiten sind in schwarz, die empirischen Häufigkeiten (normalisiert) sind in rot dargestellt.

4.5.1.3 Physikalische Prozesse

Der entwickelte Code verwendet die in GEANT4 implementierte modulare Physikliste FTFP_BERT, die von den GEANT4-Entwicklern für den Bereich der Hochenergiephysik empfohlen wird. Dies erlaubt eine akkurate Beschreibung vieler physikalischer Prozesse im betrachteten Energiebereich, z. B. Streuprozesse, Emission von Bremsstrahlung, Zerfallsprozesse, etc. Um Rechenzeit einzusparen, werden nur die Trajektorien der Myonen berücksichtigt – effektiv werden durch Reaktionen entstehende neue Teilchen (wie z. B. Elektronen oder Gammastrahlung) kurz nach ihrer Entstehung in der Simulation vernichtet.

4.5.1.4 Detektierte Eigenschaften

Die Detektionsflächen i = 1,2 ober- bzw. unterhalb des Behälters erlauben prinzipiell die Erfassung vieler physikalischer Eigenschaften, bspw. die Teilchenart, die kinetische Energie E_i, die Impulsrichtung $\vec{d_i}$, die Position $\vec{r_i}$ oder auch Zeitinformationen in unterschiedlichen Bezugssystemen. Für die hier untersuchten Fragestellungen sind insbesondere die Positionen in der (x,y) Ebene und die Impulsrichtung relevant.

Auf Basis der simulierten Daten wurden Projektionsbilder generiert, für die die Transmissionswahrscheinlichkeit und der effektive Streuwinkel als bildgebende Information genutzt wurden. Für beide Ansätze wird zunächst die (x, y)-Ebene mit der gewünschten Granularität gerastet und die an der ersten Detektionsfläche bestimmten (x, y) Koordinaten für die Zuordnung der Position genutzt.

Projektionsbilder auf Basis der Transmissionswahrscheinlichkeit

Im Falle der Projektionsbilder auf Basis der Transmissionswahrscheinlichkeit wird im Anschluss an die Simulation für jeden einzelnen Pixel des erstellten Rasters der komplette Myonenfluss $n_{1_{x,y},tot}$ bestimmt. Anschließend wird geprüft, wie viele dieser Myonen auch die zweite Detektionsebene unterhalb des Behälters erreichen bzw. nicht erreichen. Hieraus kann dann für jeden Pixel die Transmissionswahrscheinlichkeit ermittelt werden.

Projektionsbilder auf Basis der effektiven Streuwinkelverteilung

Für ein Myon, das beide Detektionsflächen passiert, kann auf Basis der Positionskoordinaten \vec{r}_1 und \vec{r}_2 ein effektiver Streuwinkel θ_{eff} für jedes simulierte Ereignis wie folgt bestimmt werden:

$$\theta_{\rm eff} = \tan^{-1} \left(\frac{(x_2 - x_1)^2 + (y_2 - y_1)^2}{|z_2 - z_1|} \right)$$
(4.5)

Auf diese Weise erhält man für jeden Pixel des Rasters eine Winkelverteilung. Ein bestimmtes Moment dieser Winkelverteilung (bspw. der Mittelwert) oder der Median der Verteilung kann dann für ein Projektionsbild genutzt werden.

4.5.2 Ausgewählte Validierungsaspekte

Für die vorliegenden Fragestellungen sind zwei physikalische Größen von besonderer Relevanz. Zum einen bestimmt der Energieverlust der Myonen in unterschiedlichen Materialien direkt die Transmissionswahrscheinlichkeit. Dieser Energieverlust ist zudem abhängig von der kinetischen Energie der Projektile. Über einen weiten Energiebereich liefert die Bethe-Bloch-Theorie unter Berücksichtigung von (empirischen) Korrekturfaktoren für geladene Teilchen in einem Absorber eine sehr gute Beschreibung des differentiellen Energieverlustes -dE/dx:

$$-\frac{dE}{dx} = \frac{4\pi e^4 z^2}{m_0 v^2} NZ \left[ln \frac{2m_0 v^2}{l} - ln \left(1 - \frac{v^2}{c^2} \right) - \frac{v^2}{c^2} \right]$$
(4.6)

In dieser Formel beschreibt v die Projektilgeschwindigkeit, z die Ladungszahl der Projektile, N die Anzahldichte der Absorberatome, Z die Atomzahl des Absorbers, m_0 die Elektronenruhemasse und e die Elektronenladung. Bei dem Parameter I handelt es sich um das mittlere Ionisationspotenzial des Absorbers, der in der Regel elementspezifisch experimentell bestimmt wird.

Für zusammengesetzte Materialien kann der effektive Energieverlust mit der Bragg'schen Additionsregel bestimmt werden:

$$\frac{dE}{dx} = \sum_{j} w_{j} \cdot \frac{dE}{dx} \Big|_{j}$$

$$w_{j} = \frac{n_{j} \cdot A_{j}}{\sum_{k} n_{k} \cdot A_{k}}$$
(4.7)

In dieser Formel beschreibt w_j den Massenanteil des Materials j, $dE/dx|_j$ den differentiellen Energieverlust im Absorbermaterial j und dE/dx den mittleren differentiellen Energieverlust im zusammengesetzten Material.

Für eine Vielzahl von Materialien wurden zudem Energieverluste über weite Energiebereiche gemessen bzw. tabelliert (siehe /PDG 22/).

Eine weitere wichtige Größe ist das Streuverhalten von Projektilen in unterschiedlichen Materialien. Bei ausreichender Materialdicke folgen für einen zunächst in *z*-Richtung fokussierten Strahl die Streuwinkel in der (x, y)-Ebene nach Durchtritt durch Materie einer bestimmten Dicke einer Normalverteilung. Das quadratische Mittel dieser Verteilung kann in guter Näherung mit folgender Formel beschrieben werden /LYN 91/:

$$\sigma_{\theta_{\mathrm{p}_{\mathrm{x},\mathrm{y}}}^{\mathrm{S}}} = \frac{13.6 \,\mathrm{MeV}}{\beta \cdot \mathrm{p} \cdot \mathrm{c}} \sqrt{\frac{\Delta \mathrm{z}}{\mathrm{X}_{0}}} \cdot \left[1 + 0,038 \cdot \ln\left(\frac{\Delta \mathrm{z}}{\mathrm{X}_{0} \cdot \beta^{2}}\right) \right]$$
(4.8)

Material	$X_0 [g/cm^2]$	X ₀ [cm]	
Urandioxid	6,65	0,6068	
Polyethylen	44,77	50,31	
Gusseisen	14,297	2,014	
Edelstahl	13,921	1,808	
Zirc Alloy	10,223	1,558	

In dieser Formel beschreibt β die Geschwindigkeit relativ zur Lichtgeschwindigkeit c, Δz ist die Materialdicke und X_0 ist die Strahlungslänge. Die Strahlungslänge ist materialspezifisch und kann für zusammengesetzte Materialien wie folgt bestimmt werden:

$$\frac{1}{X_0} = \sum_j \frac{w_j}{X_{0,j}}$$
(4.9)

Hier beschreibt w_j den Massenanteil der Komponente *j* und $X_{0,j}$ deren Strahlungslänge. Beispielhafte Werte sind in Tab. 4.4 hinterlegt.

Aus den quadratischen Mittelwerten in den einzelnen Ebenen lässt sich das quadratische Mittel des Streuwinkels im Raum wie folgt bestimmen:

$$\sigma_{\theta^{S}} = \sqrt{2}\sigma_{\theta^{S}_{p_{x,y}}} \tag{4.10}$$

Zum Zwecke der Validierung wurden Simulationen für unterschiedliche Projektilenergien und Materialien durchgeführt und simulierte Signaturen mit empirischen/tabellierten Werten für den Energieverlust und das Streuverhalten verglichen. Die Materialauswahl orientiert sich hierbei gleichermaßen an der Realitätsnähe als auch an der Verfügbarkeit (semi-)empirischer Vergleichswerte. Die Vorgehensweisen und Ergebnisse werden in den Abschnitten 4.5.2.1 und 4.5.2.2 beschrieben.

4.5.2.1 Vergleich von simulierten mittleren Energieverlusten mit tabellierten und berechneten Werten

Es wurden Simulationsrechnungen durchgeführt, mit denen der Energieverlust von Myonen mit kinetischen Energien zwischen 40 MeV und 1 TeV in unterschiedlichen Materialien – Urandioxid, Polyethylen, Edelstahl, Gusseisen und Zircalloy – bestimmt wurde, um diese simulierten Werte anschließend im Kontext einer Validierung mit empirischen Daten zu vergleichen. In allen Simulationsrechnungen wurde die Materialdicke auf 1 mm festgesetzt. Die simulierten Werte (genauer: Die Mittelwerte der jeweiligen Verteilungen) für den Energieverlust (in MeV/mm) wurden anschließend mit differentiellen Energieverlusten verglichen, die entweder direkt den Referenzen /GRO 01/, /PDG 22/ entnommen wurden, bzw. unter Berücksichtigung der genannten Quellen und der Bragg'schen Additionsregel berechnet wurden⁵. Die Ergebnisse sind in Abb. 4.8 abgebildet.

Die Daten zeigen für die Materialien Edelstahl, Gusseisen und Zircalloy eine sehr gute Übereinstimmung für den betrachteten Energiebereich. Mit wenigen Ausnahmen betragen die relativen Abweichungen in der Regel weniger als 2 %. Die Abweichungen nehmen tendenziell bei hohen Energien im Bereich von 1 TeV zu. Hier ist zu beachten, dass sich aufgrund der breiten Energieverlustverteilung einzelne Ausreißer stark auf den Mittelwert auswirken können.

Die größten Abweichungen wurden für Polyethylen beobachtet. Hier ergeben sich für Energien bis etwa 400 GeV relative Abweichungen von etwa 7 %. Für Urandioxid ist die Übereinstimmung im Energiebereich von 80 MeV bis 10 GeV sehr gut. Für höhere Projektilenergien wird aber ein systematischer Trend zu steigenden relativen Abweichungen beobachtet, so dass bei einer kinetischen Energie von 1 TeV Abweichungen von etwa 6 % vorliegen.

⁵ Grundsätzlich unterscheiden sich die verglichenen Werte, da es sich bei simulierten Werten um einen tatsächlich ermittelten Wert nach Querung einer bestimmten Strecke (hier: ein mm) und bei den Referenzwerten um einen differentiellen Energieverlust handelt. Aufgrund der im Vergleich zur Projektilenergie geringen Energieverluste wird trotzdem ein aussagekräftiger Vergleich möglich.



Abb. 4.8 Vergleich simulierter Energieverluste ΔE pro Wegstrecke (in mm) (Symbole) mit tabellierten bzw. berechneten differentiellen Energieverlustwerten dE/dx (Linien) für unterschiedliche Materialien

Die unteren Abbildungen zeigen entsprechende relative Abweichungen in % für die einzelnen Materialien.

4.5.2.2 Vergleich von quadratischen Mitteln simulierter Streuwinkelverteilung mit berechneten Werten

Es wurden Simulationsrechnungen durchgeführt, um die Streuwinkelverteilung der Myonen nach Durchtritt von 1-mm dicken Materialschichten für unterschiedliche Materialien und unterschiedliche Projektilenergien zu bestimmen. Aus den entsprechenden Verteilungen wurden anschließend Werte für das quadratische Mittel des Streuwinkels im Raum bestimmt. Diese wurden anschließend mit semi-empirischen Werten verglichen, die materialspezifisch mit Hilfe der Gleichungen (1) und (2) bestimmt wurden. Die Ergebnisse sind in Abb. 4.9 abgebildet.

Grundsätzlich zeigen sich bei den relativen Abweichungen für alle betrachteten Materialien sehr stabile Verläufe. Abweichungen von dem konstanten Verhalten sind am ehesten bei vergleichsweise niedrigen kinetischen Energien unter 1 GeV zu erkennen. Mit Ausnahme von Urandioxid liegen die beobachteten relativen Abweichungen in der Regel unter 3 %. Für Urandioxid liegen die relativen Abweichungen bei etwa 7 %. Es ist kein klarer Trend hin zu einer Über- bzw. Unterschätzung der Referenzwerte zu erkennen. Grundsätzlich ergibt sich für einen weiten Energiebereich eine gute Übereinstimmung zwischen simulierten und berechneten Werten für einen großen Energiebereich.



Abb. 4.9 Vergleich von simulierten Werten für das quadratische Mittel der Streuwinkelverteilung (Symbole) mit semi-empirisch berechneten Werten (Linie) für unterschiedliche Materialien

Die unteren vier Abbildungen zeigen relative Abweichungen (in %).

4.5.3 Analyse

In diesem Abschnitt werden zwei Simulationsstudien vorgestellt, die sich mit der Erkennung eines fehlenden Brennelementes (siehe Abschnitt 4.5.3.1) bzw. mit der Erkennung einzelner fehlender Brennstäbe (siehe Abschnitt 4.5.2.2) auseinandersetzen.

4.5.3.1 Longitudinale Bildgebung von Lagerbehältern zum Zwecke der Erkennung eines fehlenden Brennelementes

In diesem Abschnitt werden die Simulationsrechnungen beschrieben und diskutiert, die sich eingehender mit der Erkennung eines fehlenden Brennelementes in einem ansonsten vollständig beladenen (generischen) Behälter beschäftigten. Für diesen Abschnitt wurden jeweils Simulationsrechnungen mit $5 \cdot 10^7$ Ereignissen berücksichtigt. Die Myonen wurden jeweils zu Beginn eines Ereignisses direkt oberhalb des Behälters auf einer Höhe von 6,1 m erzeugt. In der (x, y)-Ebene wurden für die initialen Positionen uniforme Verteilungen im Bereich $-1,25 \text{ m} \leq x, y \leq 1,25 \text{ m}$ angenommen. Diese Fläche ist ausreichend, um den vollständigen Behälterquerschnitt abzudecken. Für die Winkelverteilung der initialen Myonen wurden die folgenden unterschiedlichen Bedingungen angenommen:

- Myonen aus dem Zenit (0° relativ zum Zenit)
- Myonen im Winkelbereich 0° bis 1° relativ zum Zenit
- Myonen im Winkelbereich 0° bis 5° relativ zum Zenit
- Myonen im Winkelbereich 0° bis 25° relativ zum Zenit

Zudem wurden die folgenden zwei Szenarien für die bildgebenden Informationen je Pixel betrachtet:

- Transmissionswahrscheinlichkeit
- Median der effektiven Streuwinkelverteilung

Für die Simulationen wurden folgende zwei unterschiedliche Belegungen des Behältermodells angenommen:

- Leerer Behälter, d. h. es befinden sich keine Brennelemente im Behälter
- Nahezu vollständig belegter Behälter, bei dem nur das zentrale Brennelement fehlt

Anschließend wurde qualitativ überprüft, ob und unter welchen Bedingungen sich aus den generierten radiographischen Bildern, das fehlende Brennelement erkennen lässt. Zur visuellen Einschätzung dieser Fragestellungen wurden auch Differenzbilder aus den Bildern für die beiden Belegungen generiert. Die Bilder der Transmissionsradiographie bzw. der Streuwinkel-Radiographie sind in Abb. 4.10 und Abb. 4.11 hinterlegt.

Radiographische Bilder mit der Transmissionswahrscheinlichkeit als bildgebende Information

Die Bilder zeigen einen deutlichen Abfall der Bildqualität mit steigender Winkelakzeptanz. Hierfür sind die Moderatorstäbe im Mantel des Behälterkörpers ein guter Indikator: Diese können für die Akzeptanz 0° bis 1° noch gut erkannt werden – für die abgebildeten höheren Akzeptanz mit bis zu 5° ist dies auf Basis der hier betrachteten Anzahl simulierter Ereignisse nicht mehr möglich. Ein vergleichbares Bild ergibt sich auch für die Brennelemente: Eine Aussage über das Fehlen des Brennelementes im zentralen Schacht kann für die Winkelakzeptanz 0° bis 25° auf Basis des entsprechenden radiographischen Bildes bzw. auf Basis des Differenzbildes nur mit Einschränkung getroffen werden. Grundsätzlich ist aber ersichtlich, dass die Differenzbilder tendenziell kontrastreicher sind.

Radiographische Bilder mit dem Median der Streuwinkelverteilung als bildgebende Information

Die Bilder zeigen, ähnlich wie die Bilder auf Basis der Transmissionswahrscheinlichkeit, einen signifikanten Abfall der Bildqualität mitsteigender Winkelakzeptanz. Im direkten Vergleich zeigen die Bilder auf Basis der Streuwinkelverteilung aber eine bessere Qualität und erlauben die Auflösung kleinerer Strukturen. Zum Beispiel können die Wände der Brennelementschächte noch gut für eine Akzeptanz von 0° bis 1° und mit Einschränkung auch für die Winkelakzeptanz 0° bis 5° erkannt werden. Für die Akzeptanz 0° bis 25° ist auf Basis des Bildes für die nahezu vollständige Belegung nur mit geringer Signifikanz das fehlende zentrale Brennelement auszumachen. Wird hingegen das Differenzbild für eine Einschätzung zugrunde gelegt, ist das Fehlen des Brennelementes leicht ersichtlich.





Die obere Bildreihe gehört zu einem Behälter ohne Brennelemente. Die mittlere Reihe gehört zu einem Behälter, in dem bis auf den zentralen Schacht alle weiteren Schächte mit Brennelementen belegt wurden. Die untere Bildreihe geben Differenzbilder dieser beiden Geometrien wieder.



Radiographische Projektionsbilder auf Basis des Medians der effektiven Streuwinkelverteilung für unterschiedliche Winkelakzeptanzen (von links nach rechts) und zwei unterschiedliche Geometrien (obere und mittlere Reihe) Abb. 4.11

Die obere Bildreihe zeigt Aufnahmen eines Behälters ohne Brennelemente. Die mittlere Reihe zeigt Aufnahmen eines Behälters, in dem bis auf den zentralen Schacht alle weiteren Schächte mit Brennelementen belegt wurden. Die untere Bildreihe gibt Differenzbilder dieser beiden Geometrien wieder.

Allgemeine Aspekte

Die ansteigende Unschärfe mit steigender Winkelakzeptanz lässt sich auf die vergleichsweise große longitudinale Ausdehnung des generischen Behälters zurückführen. Anschaulich gesprochen: Ein schräg einfallendes Myon passiert verschiedene Komponenten mit unterschiedlichen Zusammensetzungen, während ein senkrecht einfallendes Myon selbst bei Berücksichtigung von Streuung in der Regel deutlich weniger Komponenten – und damit weniger unterschiedliche Materialien passiert.

Allgemein zeigen die Ergebnisse, dass für die betrachtete Statistik der Median der Winkelverteilung hinsichtlich der Bildqualität die bessere Signatur darstellt – das Auflösungsvermögen ist hier der offensichtlichste Indikator.

Die Simulationsrechnungen zeigen, dass für die longitudinale Konfiguration auch mit einfachen Mitteln – d. h. ohne den Einsatz von (anspruchsvollen) Rekonstruktionsverfahren – die Erkennung einzelner fehlender Brennelemente möglich ist. Die dafür benötigte Messzeit ist dabei überschaubar: Die Simulationsrechnungen für die Akzeptanz von 0° bis 5° (25°) spiegeln eine Messzeit von 190 Std. (40 Std.) wider.

4.5.3.2 Longitudinale Bildgebung von Lagerbehältern zum Zwecke der Erkennung einzelner fehlender Brennstäbe

In diesem Abschnitt liegt der Fokus der Untersuchung auf der Erkennung einzelner fehlender Brennstäbe. Zu diesem Zwecke werden die folgenden zwei geometrischen Konfigurationen betrachtet:

- Alle Brennelemente sind vollständig nach Vorgabe mit Brennstäben belegt (Geometrie A).
- Im Vergleich zur Geometrie A sind drei Brennstabpositionen entlang der Hauptdiagonalen des zentralen Brennelementes vakant. Bezogen auf diese Hauptdiagonalen fehlen die Brennstäbe an der ersten (I), fünften (II) und neunten (III) Position (Geometrie B).

Eine Anordnung der Brennstäbe und Führungsrohre für das zentrale Brennelement der Geometrien A und B ist in Abb. 4.12 dargestellt.





Im Vergleich zur Geometrie A fehlen bei der Geometrie B drei Brennstäbe entlang der Hauptdiagonalen bei den (x_{id} , y_{id}) Positionen (1,1), (5,5) und (9,9).

Simulationsrechnungen wurden mit bis zu 100 Mio. Ereignissen durchgeführt. Die Fragestellung fokussiert sich auf das zentrale Brennelement, so dass die Myonen bezogen auf die (*x*, *y*)-Ebene im Bereich $-0.35 \text{ m} \le x, y \le 0.35 \text{ m}$ erzeugt wurden. Des Weiteren wurde aufgrund der vorangegangenen Ergebnisse (vgl. Abschnitt 4.5.3.1) die Winkelverteilung (relativ zur *z*-Achse) auf den Bereich bis zu $0^{\circ} \le \theta_{in} \le 2^{\circ}$ beschränkt.

Die grundlegende Fragestellung lautet nun, ob diese beiden Geometrien sich auf Basis von Projektionsbildern, die sich auf die Winkelverteilung stützen, prinzipiell unterscheiden lassen und von welchen Faktoren eine solche Unterscheidung ggfs. abhängen kann. Zudem soll anstelle einer visuellen Beurteilung ein quantitatives Verfahren genutzt werden, um Unterschiede zwischen den beiden Geometrien zu bewerten.

Quantitative Methodik

Die Projektionsbilder bestehen aus Pixeln, deren Größe auf $6,36 \times 6,36 \text{ mm}^2$ festgelegt wurde. Zu jedem Pixel gehört eine Verteilung der effektiven Streuwinkel θ_{eff} . Solche Häufigkeitsverteilungen sind in Abb. 4.13 für zwei unterschiedliche Winkelakzeptanzen dargestellt.



Abb. 4.13 Häufigkeitsverteilungen für effektive Streuwinkel θ_{eff} für eine fixierte initiale Myonen-Ausbreitung (oben) und eine Winkelakzeptanz von 0° bis 2° (unten)

Die blaue Verteilung repräsentiert einen Pixel, der zwischen zwei benachbarten Brennelementen liegt (blau). Die schwarze bzw. rote Verteilung repräsentiert den Pixel, der zur Position des Brennstabs an der Sollposition (5,5) gehört, die mit einem Brennstab belegt (rot) bzw. vakant ist (schwarz).

Aus diesen Häufigkeitsverteilungen können anschließend für jeden Pixel Wahrscheinlichkeitsdichtefunktionen $\rho(\theta_{eff})$ und kumulierte Wahrscheinlichkeitsfunktionen $F_{\theta}(\theta_{eff})$ gebildet werden (siehe Abb. 4.14).



Abb. 4.14 Wahrscheinlichkeitsdichtefunktion (PDF) (oben) und kumulierte Wahrscheinlichkeitsfunktion (CDF) (unten) der effektiven Streuwinkelverteilung für den Pixel zur Position II

Die schwarzen Kurven gehören zur Geometrie, bei der die zugehörige Sollposition vakant ist. Die roten Kurven gehören zur Geometrie, bei der die zugehörige Sollposition mit einem Brennstab belegt ist.

Zur quantitativen Einschätzung der Unterschiede zwischen den beiden Geometrien wird nun für jeden Pixel (i, j) in der (x, y)-Ebene der Kolmogorov-Smirnov-Test angewendet und die Prüfgröße wie folgt ermittelt:

$$D^{i,i} = \sup_{\theta_{\rm eff}} \left| F_{\Theta_{i,j}}^{\rm Position \ belegt}(\theta_{\rm eff}) - F_{\Theta_{i,j}}^{\rm Position \ vakant}(\theta_{\rm eff}) \right|$$
(4.11)

Die Nullhypothese, d. h. $F_{\Theta_{i,j}}^{\text{Position belegt}}(\theta_{eff})$ und $F_{\Theta_{i,j}}^{\text{Position vakant}}(\theta_{eff})$ beschreiben identische Verteilungen, wird mit einem Signifikanzniveau α abgelehnt, wenn die Prüfgröße folgende Bedingung erfüllt:

$$D^{i,j} > c(\alpha) \sqrt{\frac{n_{i,j} + m_{i,j}}{n_{i,j} \cdot m_{i,j}}}$$

$$c(\alpha) = \sqrt{-0.5 \cdot \ln(\alpha/2)}$$
(4.12)

Hierbei beschreibt $n_{i,j}$ ($m_{i,j}$) die Anzahl an Ereignisse im Pixel (i,j) des Spektrums in dem die Sollposition vakant (mit einem Brennstab belegt) ist. Die Bedingung kann wie folgt umformuliert werden:

$$\widetilde{D}^{i,j} \equiv \frac{D^{i,j}}{c(\alpha)} \sqrt{\frac{n_{i,j} \cdot m_{i,j}}{n_{i,j} \cdot m_{i,j}}} > 1$$
(4.13)

Das Signifikanzniveau α wird im Folgenden auf 0,1 gesetzt. Die Abb. 4.15 zeigt beispielhaft ein Histogramm des Signifikanzverhältnisses \tilde{D} in der (x, y)-Ebene für den Bereich des zentralen Brennelementes.



Abb. 4.15 Histogramm des Signifikanzverhältnis \tilde{D} in der (x, y)-Ebene

Es sind eindeutig die drei Pixel zu identifizieren, für die die beiden Geometrien wesentlich voneinander abweichen. Das Spektrum repräsentiert Ergebnisse einer Simulation mit 10⁸-Ereignissen und strikt senkrecht einfallender Myonen. Das Signifikanzverhältnis ist für die drei relevanten Pixel als Funktion der Anzahl simulierter Ereignisse und der angenommenen Winkelakzeptanzen in Abb. 4.16 dargestellt. Die Ergebnisse zeigen grundsätzlich einen Abfall des Signifikanzverhältnisses bei steigender Winkelakzeptanz. Die einzigen Ausnahmen bilden Akzeptanzen von 0° bis 1,5° bzw. bis 2,0°, für die vergleichbare Werte beobachtet werden. In Abhängigkeit der Anzahl simulierter Ereignisse fällt auf, dass die Steigung des Verlaufs mit steigender Akzeptanz abnimmt.



Abb. 4.16 Signifikanzverhältnisse der drei relevanten Pixel in Abhängigkeit der Anzahl simulierter Ereignisse und der Winkelakzeptanz

Die Verhältnisse $\tilde{D}^{I,II,III}$ repräsentieren jeweils die Pixel der Sollpositionen (1,1), (5,5) und (9,9).

Für Simulationen mit bis maximal 10^8 -Ereignissen übersteigt das Signifikanzverhältnis für den Pixel *I* den Wert eins nur für Winkelakzeptanzen bis 0,5°. Für die Winkelakzeptanz 0° bis 0,5° werden mindestens $6 \cdot 10^7$ Ereignisse benötigt. Für den Pixel *II (III)* führen Winkelakzeptanzen bis 0,75° (1,00°) zu Ergebnissen, bei denen das Signifikanzverhältnis den Wert 1 überschreitet.

Für eine bestimmte Simulation mit bekannter Impulsverteilung und Winkelakzeptanz lässt sich in guter Näherung aus der Anzahl simulierter Ereignisse die entsprechende Messzeit bestimmen:

$$\Delta t [s] = \frac{\text{Anzahl simulierter Ereignisse}}{A [\text{cm}^2] \cdot I_{\mu} [\text{Myonen/cm}^2/s] \cdot I_{\theta_{in}} \cdot I_{p} \cdot \epsilon}$$
(4.14)

Hierbei beschreiben *A* die Größe der Fläche in der (*x*, *y*) Ebene für die Myonen gleichverteilt erzeugt werden, I_{μ} den Myonenfluss auf Meeresniveau (etwa 1 Myon/cm²/min), $I_{\theta_{in}}$ der Anteil der berücksichtigten Winkelakzeptanz an der gesamten Myonenverteilung, I_p den Anteil der betrachten Impulsverteilung und ε die Effizienz des Detektorsystems. Die Werte für $I_{\theta_{in}}$ und I_p lassen sich formal wie folgt bestimmen:

$$I_{\theta_{in}} = \frac{\int_{0}^{\theta_{in}} d\theta' \cos^{2} \theta'}{\int_{0}^{\pi/2} d\theta' \cos^{2} \theta'}$$

$$I_{p} = \frac{\int_{p(T=1GeV)}^{p(T=1TeV)} dp' I(p'_{\mu}, 0)}{\int_{0}^{\infty} dp' I(p'_{\mu}, 0)}$$
(4.15)

Das Signifikanzverhältnis der drei relevanten Pixel als Funktion der so bestimmten Messzeit und der zugrundeliegenden Winkelakzeptanz ist in Abb. 4.17 abgebildet. Im Falle einer Winkelakzeptanz von 0° bis 0,5° ist demnach für eine quantitative Bewertung des Pixels *II* eine Messzeit von 1,8 Jahren notwendig. Für die Pixel *I* und *III* sind mit jeweils 2,6 Jahren und 2,2 Jahren längere Messzeiten notwendig. Durch eine Reduzierung der Winkelakzeptanz auf 0,25° reduziert sich die abgeschätzte Messzeit auf 0,9 Jahre (*III*) bzw. 1,8 Jahre (*I* und *II*).



Abb. 4.17 Signifikanzverhältnis der relevanten Pixel als Funktion der Messzeit und der Winkelakzeptanz

4.5.4 Ausblick

Die hier präsentierten Ergebnisse wie auch vergleichbare publizierte Simulationsstudien zeigen die Eignung der Myonen-gestützten Bildgebung zur zerstörungsfreien Erkennung fehlender Brennelemente in einem Transport- und Lagerbehälter. Zudem deuten die hier dargestellten Ergebnisse auch erstmals darauf hin, dass das Verfahren über ein ausreichendes Auflösungsvermögen besitzt, so dass es grundsätzlich auch zur Erkennung

einzelner fehlender Brennstäbe geeignet ist. Auf dieser Basis ergeben sich einige Pfade für weitere Untersuchungen:

- Die durchgeführten Studien nutzten planare Detektoren in einer vertikalen ausgerichteten Behältergeometrie. Komplexere Detektorgeometrien sind grundsätzlich denkbar, so dass mit diesen auch die Mantelflächen des Behälterkörpers abgedeckt werden können. Dies könnte insbesondere im Zusammenspiel mit komplexeren Rekonstruktionsverfahren zu einer Steigerung der Bildqualität führen.
- Die durchgeführten Studien nutzten für die Analyse im Wesentlichen einen Vergleich zu einer vorgegebenen Sollgeometrie (Behältergeometrie als auch Detektorgeometrie). Grundsätzliche Abweichungen von dieser Sollgeometrie, z. B. in Form eines geringfügig verschobenen Tragekorbs (Behälter) oder nicht perfekt ausgerichteter Detektionsflächen (Detektorsystem), werden somit ausgeschlossen. Aus diesem Grunde erscheinen Sensitivitätsstudien, die geringfügige Abweichungen in der Geometrie evaluieren, als hilfreich und notwendig zur Einschätzung der Robustheit des Verfahrens.
- Für die Analyse der Simulationen (siehe Abschnitt 4.5.3) wurden einfache Verfahren zur Erzeugung von Schnittbildern eingesetzt. Durch den Einsatz komplexerer Rekonstruktionsverfahren sind Verbesserungen der Bildqualität und die Erzeugung tomographischer (dreidimensionaler) Bilder denkbar, wodurch sich für konkrete Fragestellungen auch die benötigte Messzeit reduzieren kann. Ein verhältnismäßig einfaches Verfahren, das bereits für die Auswertung der Fragestellung in Abschnitt 4.5.3.1 genutzt wurde, ist der *Point-of-Closest-Approach* (PoCA)-Algorithmus. Für diese konkrete Fragestellung konnte eine tendenzielle Verbesserung der Bildqualität gezeigt werden (siehe Abb. 4.18). Weitere Rekonstruktionsverfahren, wie z. B. das *Maximum Likelihood Scattering and Displacement* (MLSD)-Verfahren, wurden in der Fachliteratur bereits diskutiert und sind in der tatsächlichen Umsetzung deutlich anspruchsvoller dies schließt auch den Speicherbedarf der Algorithmen ein.
- Monte-Carlo-Studien eignen sich sehr gut f
 ür Machbarkeitsstudien im Bereich der Myonen-gest
 ützten Bildgebung. Dies l

 ässt sich insbesondere auf den verh

 ältnism

 äßig geringen Teilchenfluss zur

 ückf

 ühren, so dass auch mit geringen Hardware-Mitteln, die mit Monte-Carlo-Studien erzielte Statistik mit tats

 ächlichen Messungen konkurrieren kann bzw. diese in vielen F

 ällen

 übertrifft.





Die linken, oberen (unteren) Quadranten zeigen Projektionsbilder auf Basis der Transmissionswahrscheinlichkeit (unter Berücksichtigung des PoCA-Algorithmus). Die rechten, oberen (unteren) Quadranten zeigen Projektionsbilder auf Basis des Medians der Streuwinkelwahrscheinlichkeit (unter Berücksichtigung des PoCA-Algorithmus)
5 Zusammenfassung

Es ist absehbar, dass in Deutschland für Wärme-entwickelnde radioaktive Abfälle Zwischenlagerkapazitäten (mindestens) bis etwa zum Jahr 2080, und somit deutlich länger als ursprünglich geplant, benötigt werden. Die Sicherstellung der Behälter- und Inventarintegrität als auch des sicheren Einschlusses des bestrahlten Kernbrennstoffs stützt sich neben dem Behälterdichtheitsüberwachungssystem auf wiederkehrende Prüfungen. Für diesen Zweck sind insbesondere zerstörungsfreie Prüfverfahren wünschenswert, da sich diese nicht negativ auf die Integrität auswirken und zudem ein Öffnen des Behälters vermieden werden kann bzw. könnte.

In dem vorliegenden Bericht wurden im Abschnitt 2 zunächst relevante Alterungsprozesse an Transport- und Lagerbehälter zusammengefasst. Im darauffolgenden Abschnitt 3 wurden einige zerstörungsfreie Prüfverfahren, die zum Zwecke der Behälterbzw. Inventarprüfung vorgeschlagen bzw. genutzt werden, kurz beschrieben.

Der zentrale Bestandteil des Berichts ist eine Einschätzung der Eignung der Myonengestützten Bildgebung zur Erkennung fehlender Brennelemente und einzelner fehlender Brennstäbe auf Basis von Monte-Carlo-Simulationsstudien, um so Informationen über die potenziell erreichbare Auflösbarkeit zu erlangen (siehe Abschnitt 4). Die hierbei erzielten Ergebnisse sind grundsätzlich ermutigend, motivieren aber vertiefte Studien, die sich insbesondere an eine Reduzierung der Messzeit richten.

Zur Reduzierung der Messzeit könnten in Zukunft verbesserte Messsysteme (insb. solche, die eine näherungsweise Impulsrekonstruktion ermöglichen) als auch verbesserte Bildrekonstruktionsalgorithmen beitragen. Dies gilt es in zukünftigen Arbeiten zu evaluieren.

Eine wesentliche zu diskutierende Frage betrifft neben Sensitivitätsstudien zudem die Konkretisierung möglicher Schadensbilder, um deren Erkennbarkeit anschließend auf Basis von Modellstudien zu evaluieren. Hinsichtlich der Myonen-gestützten Bildgebung von TLBs ist zudem ein Vergleich simulierter Ergebnisse mit realen Messungen an CASTOR®-Behältern im höchsten Maße erstrebenswert.

Literaturverzeichnis

- /AGO 03/ Agostinelli, S., Allison, J., Amako, K., Apostolakis, J., Araujo, H., Arce, P., Asai, M., Axen, D., Banerjee, S., Barrand, G., Behner, F., Bellagamba, L., Boudreau, J., Broglia, L., et al.: Geant4—a simulation toolkit. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, Bd. 506, Nr. 3, S. 250–303, DOI 10.1016/S0168-9002(03)01368-8, 2003.
- /ALL 06/ Allison, J., Amako, K., Apostolakis, J., Araujo, H., Arce Dubois, P., Asai, M., Barrand, G., Capra, R., Chauvie, S., Chytracek, R., Cirrone, G., Cooperman, G., Cosmo, G., Cuttone, G., et al.: Geant4 developments and applications. IEEE Transactions on Nuclear Science, Bd. 53, Nr. 1, S. 270–278, DOI 10.1109/TNS.2006.869826, 2006.
- /ALL 16/ Allison, J., Amako, K., Apostolakis, J., Arce, P., Asai, M., Aso, T., Bagli, E., Bagulya, A., Banerjee, S., Barrand, G., Beck, B. R., Bogdanov, A. G., Brandt, D., Brown, J., et al.: Recent developments in Geant4. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, Bd. 835, Nr. 1, S. 186–225, DOI 10.1016/j.nima.2016.06.125, 2016.
- /ALV 70/ Alvarez, L. W., Anderson, J. A., Bedwei, F. E., Burkhard, J., Fakhry, A., Girgis, A., Goneid, A., Hassan, F., Iverson, D., Lynch, G., Miligy, Z., Moussa, A. H., Sharkawi, M., Yazolino, L.: Search for hidden chambers in the pyramids. Science (New York, N.Y.), Bd. 167, Nr. 3919, S. 832–839, DOI 10.1126/science.167.3919.832, 1970.
- /BAS 23/ Bundesamt für die Sicherheit der nuklearen Entsorgung (BASE): Ein Endlager für hochradioaktive Abfälle – generationenübergreifende Sicherheit, Stellungnahme zur ersten zeitlichen Betrachtung des Standortauswahlverfahrens der Bundesgesellschaft für Endlagerung mbH. Berlin, Februar 2023.
- /BFS 00/ Bundesamt für Strahlenschutz (BfS): Radioaktive Frachten unterwegs, Atomtransporte und Sicherheit. 24 S., 2000.

- /BGE 22/ Bundesgesellschaft für Endlagerung mbH (BGE): BGE tritt in die Diskussion über den Zeitplan bei der Endlagersuche ein, 11. November 2022: Die BGE hat erste zeitliche Abschätzungen zum weiteren Verfahren der Standortauswahl zusammengetragen und diskutiert diese jetzt mit dem BMUV und dem BASE. Stand vom 10. Juli 2023, erreichbar unter https:// www.bge.de/de/aktuelles/meldungen-und-pressemitteilungen/archiv/meldung/news/2022/11/bge-tritt-in-die-diskussion-ueber-den-zeitplan-bei-derendlagersuche-ein/, abgerufen am 10. Juli 2023.
- /BLE 21/ BLEMAB Collaboration, Bonechi, L., Ambrosino, F., Andreetto, P., Bonomi,
 G., Borselli, D., Bottai, S., Buhles, T., Calliari, I., Checchia, P., Chiarotti, U.,
 Cialdai, C., Ciaranfi, R., Cimmino, L., et al.: BLEMAB European project:
 muon imaging technique applied to blast furnaces. 2021.
- /BON 18/ Bonneville, A., Kouzes, R., Yamaoka, J., Lintereur, A., Flygare, J., Varner, G. S., Mostafanezhad, I., Guardincerri, E., Rowe, C., Mellors, R.: Borehole muography of subsurface reservoirs. Philosophical Transactions of the Royal Society A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences, Bd. 377, Nr. 2137, DOI 10.1098/rsta.2018.0060, 2018.
- /BON 20/ Bonechi, L., D'Alessandro, R., Giammanco, A.: Atmospheric muons as an imaging tool, lizensiert unter einer Creative Commons Lizenz: https://creativecommons.org/licenses/by-nc-nd/4.0/. Reviews in Physics, Bd. 5, S. 100038, DOI 10.1016/j.revip.2020.100038, 2020.
- /BOR 03/ Borozdin, K. N., Hogan, G. E., Morris, C., Priedhorsky, W. C., Saunders, A., Schultz, L. J., Teasdale, M. E.: Surveillance: Radiographic imaging with cosmic-ray muons. Nature, Bd. 422, Nr. 6929, S. 277, DOI 10.1038/422277a, 2003.
- /BUG 98/ Bugaev, E. V., Misaki, A., Naumov, V. A., Sinegovskaya, T. S., Sinegovsky, S. I., Takahashi, N.: Atmospheric muon flux at sea level, underground, and underwater. Physical Review D, Bd. 58, Nr. 5, DOI 10.1103/PhysRevD.58.054001, 1998.

- /CAL 18/ Calliari, I., Zumerle, G., Dabalá, M., Gasparini, U., Ronchese, P., Vanini, S., Zanuttigh, P., Checchia, P., Calvini, P., Gonella, F., Klinger, J., Rigoni, A., Faraci, E., Forsberg, F., et al.: Study of the capability of muon tomography to map the material composition inside a blast furnace (Mu-Blast) : final report. Hrsg.: Europäische Kommission, DOI 10.2777/24858, 2018.
- /CERN 23/ CERN: Cosmic rays: particles from outer space. Erreichbar unter https:// home.cern/science/physics/cosmic-rays-particles-outer-space, abgerufen am 9. März 2023.
- /CHA 14/ Chatzidakis, S., Alamaniotis, M., Tsoukalas, L. H.: A Bayesian Approach to Monitoring Spent Fuel Using Cosmic Ray Muons. Transactions of the American Nuclear Society, Bd. 111, 2014.
- /CLA 14/ Clarkson, A., Hamilton, D. J., Hoek, M., Ireland, D. G., Johnstone, J. R., Kaiser, R., Keri, T., Lumsden, S., Mahon, D. F., McKinnon, B., Murray, M., Nutbeam-Tuffs, S., Shearer, C., Staines, C., Yang, G., Zimmerman, C.: GEANT4 simulation of a scintillating-fibre tracker for the cosmic-ray muon tomography of legacy nuclear waste containers. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, Bd. 746, S. 64–73, DOI 10.1016/j.nima.2014.02.019, 2014.
- /CLA 15/ Clarkson, A., Hamilton, D. J., Hoek, M., Ireland, D. G., Johnstone, J. R., Kaiser, R., Keri, T., Lumsden, S., Mahon, D. F., McKinnon, B., Murray, M., Nutbeam-Tuffs, S., Shearer, C., Yang, G., Zimmerman, C.: Characterising encapsulated nuclear waste using cosmic-ray muon tomography. Journal of Instrumentation, Bd. 10, Nr. 03, S. P03020-P03020, DOI 10.1088/1748-0221/10/03/P03020, 2015.
- /DAL 18/ D'Alessandro, R., Ambrosino, F., Baccani, G., Bonechi, L., Bongi, M., Caputo, A., Ciaranfi, R., Cimmino, L., Ciulli, V., D'Errico, M., Giudicepietro, F., Gonzi, S., Macedonio, G., Masone, V., et al.: Volcanoes in Italy and the role of muon radiography. Philosophical Transactions of the Royal Society A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences, Bd. 377, Nr. 2137, DOI 10.1098/rsta.2018.0050, 2018.

- /DIN 11/ DIN: Zerstörungsfreie Prüfung Schallemissionsprüfung Allgemeine Grundsätze.2011-04, DOI 10.31030/1716463, Beuth Verlag GmbH: Berlin, 2011.
- /DIN 12/ DIN: DIN 50035, Begriffe auf dem Gebiet der Alterung von Materialien Polymere und Werkstoffe. 2012.
- /DIN 20/ DIN EN ISO: Korrosion von Metallen und Legierungen Grundbegriffe (ISO 8044:2020).2020, 2020.
- /DUR 18/ Durham, J. M., Poulson, D., Bacon, J., Chichester, D. L., Guardincerri, E., Morris, C. L., Plaud-Ramos, K., Schwendiman, W., Tolman, J. D., Winston, P.: Verification of Spent Nuclear Fuel in Sealed Dry Storage Casks via Measurements of Cosmic-Ray Muon Scattering. Physical Review Applied, Bd. 9, Nr. 4, DOI 10.1103/PhysRevApplied.9.044013, 2018.
- /EPRI 22/ EPRI: A Collective Approach to Safe Used Nuclear Fuel Storage. EPRI Journal, 2022.
- /ESK 13/ Entsorgungskommission: Leitlinien f
 ür die trockene Zwischenlagerung bestrahlter Brennelemente und W
 ärme entwickelnder radioaktiver Abf
 älle in Beh
 ältern. 10. Juni 2013.
- /GEO 55/ George, E. P.: E.P. George, Cosmic rays measure overburden of tunnel, Commonwealth Eng. July 1 (1955) 455. Commonwealth Engineer, Nr. 455, 1955.
- /GNS 19/ GNS Gesellschaft für Nuklear-Service mbH: CASTOR(R) V/19, Transportund Lagerbehälter für Brennelemente (DWR). 2 S., 2019.
- /GRO 01/ GROOM, D. E., MOKHOV, N. V., STRIGANOV, S. I.: MUON STOPPING POWER AND RANGE TABLES 10 MeV–100 TeV. Atomic Data and Nuclear Data Tables, Bd. 78, Nr. 2, S. 183–356, DOI 10.1006/adnd.2001.0861, 2001.

- /HAM 18/ Hampel, U., Kratzsch, A., Rachamin, R., Wagner, M., Schmidt, S., Fiß, D., Reinicke, S.: Investigations on potential methods for the long-term monitoring of the state of fuel elements in dry storage casks. Kerntechnik, Bd. 83, Nr. 6, S. 513–522, DOI 10.3139/124.110949, 2018.
- /HAN 21/ Hanazato, T., Tanaka, H., Uekita, Y., Subroto, Y.: Seismic Structural Evaluation of Candi Siva, Prambanan World Heritage Temple, by Introducing Muography. PROHITECH 2021: Protection of Historical Constructions, Bd. 209, DOI 10.1007/978-3-030-90788-4_109, 4. April 2021.
- /HSZG 23/ Hochschule Zittau/Görlitz: DCS-Monitor / Behälterüberwachung. Erreichbar unter https://fis.hszg.de/dcs-monitor-/-behaelterueberwachung.html, abgerufen am 22. März 2023.
- /HSZG 23a/Hochschule Zittau/Görlitz: DCS-Monitor II / Behälterüberwachung. Stand vom 22. März 2023, erreichbar unter https://fis.hszg.de/1054.html, 2023.
- /INL 01/ Idaho National Engineering and Environmental Laboratory: Dry Cask Storage Characterization Project - Phase 1: CASTOR V/21 Cask Opening an Examination. 2001.
- /JON 13/ Jonkmans, G., Anghel, V., Jewett, C., Thompson, M.: Nuclear waste imaging and spent fuel verification by muon tomography. Annals of Nuclear Energy, Bd. 53, S. 267–273, DOI 10.1016/j.anucene.2012.09.011, 2013.
- /KHA 10/ Khachatryan, V., Sirunyan, A. M., Tumasyan, A., Adam, W., Bergauer, T., Dragicevic, M., Erö, J., Fabjan, C., Friedl, M., Frühwirth, R., Ghete, V. M., Hammer, J., Hänsel, S., Hoch, M., et al.: Measurement of the charge ratio of atmospheric muons with the CMS detector. Physics Letters B, Bd. 692, Nr. 2, S. 83–104, DOI 10.1016/j.physletb.2010.07.033, 2010.
- /KÖM 18/ Kömmling, A., Ehe, K. von der, Wolff, D., Jaunich, M.: Effect of high-dose gamma irradiation on (U)HMWPE neutron shielding materials. Radiation Physics and Chemistry, Bd. 142, S. 29–33, DOI 10.1016/j.radphyschem.2017.02.014, 2018.

- /LAF 19/ Lafebre, S.: Graph of cosmic flux versus particle energy. lizensiert unter einer Creative Commons Lizenz: https://creativecommons.org/licenses/by/3.0/, erreichbar unter https://commons.wikimedia.org/wiki/File: Cosmic_ray_flux_versus_particle_energy.svg, abgerufen am 30. April 2023.
- /LES 12/ Lesparre, N., Gibert, D., Marteau, J., Komorowski, J.-C., Nicollin, F., Coutant, O.: Density muon radiography of La Soufrière of Guadeloupe volcano: comparison with geological, electrical resistivity and gravity data. Geophysical Journal International, Bd. 190, Nr. 2, S. 1008–1019, DOI 10.1111/j.1365-246X.2012.05546.x, 2012.
- /LYN 91/ Lynch, G. R., Dahl, O. I.: Approximations to multiple Coulomb scattering. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, Bd. 58, Nr. 1, S. 6–10, DOI 10.1016/0168-583X(91)95671-Y, 1991.
- /MAH 18/ Mahon, D., Clarkson, A., Gardner, S., Ireland, D., Jebali, R., Kaiser, R., Ryan, M., Shearer, C., Yang, G.: First-of-a-kind muography for nuclear waste characterization. Philosophical Transactions of the Royal Society A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences, Bd. 377, Nr. 2137, DOI 10.1098/rsta.2018.0048, 2018.
- /MAR 14/ Marton, E. (Hrsg.): Muons scanner to detect radioactive sources hidden in scrap metal containers (MU-STEEL), Final report. Europäische Kommission, EUR, Bd. 26680, EUR-26680-EN, 88 S., DOI 10.2777/75975, Publications Office of the European Union: Luxembourg, 2014.
- /MEY 16/ Meyer, R. M., Hirt, E. H., Lareau, J. P., Qiao, A., Ramuhalli, P., Suffield, S., Suter, J. D., Zhuge, J. W., Moran, T. L.: Nondestructive Examination Guidance for Dry Storage Casks. Pacific Northwest National Laboratory, 2016.
- /MIY 13/ Miyadera, H., Borozdin, K. N., Greene, S. J., Lukić, Z., Masuda, K., Milner, E. C., Morris, C. L., Perry, J. O.: Imaging Fukushima Daiichi reactors with muons. AIP Advances, Bd. 3, Nr. 5, S. 52133, DOI 10.1063/1.4808210, 2013.

- /MOR 17/ Morishima, K., Kuno, M., Nishio, A., Kitagawa, N., Manabe, Y., Moto, M., Takasaki, F., Fujii, H., Satoh, K., Kodama, H., Hayashi, K., Odaka, S., Procureur, S., Attié, D., et al.: Discovery of a big void in Khufu's Pyramid by observation of cosmic-ray muons. Nature, Bd. 552, Nr. 7685, S. 386–390, DOI 10.1038/nature24647, 2017.
- /NRC 19/ Nuclear Regulatory Commission: Managing Aging Processes in Storage (MAPS) Report, Final Report (NUREG-2214). Juli 2019.
- /PDG 22/ Particle Data Group: Atomic and Nuclear Properties of Materials for more than 350 materials. Erreichbar unter https://pdg.lbl.gov/2020/AtomicNuclearProperties/, abgerufen am 3. Mai 2022.
- /POU 17/ Poulson, D., Durham, J. M., Guardincerri, E., Morris, C. L., BACON, J. D., Plaud-Ramos, K., Morley, D., Hecht, A. A.: Cosmic ray muon computed tomography of spent nuclear fuel in dry storage casks. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, Bd. 842, S. 48–53, DOI 10.1016/j.nima.2016.10.040, 2017.
- /POU 19/ Poulson, D., Bacon, J., Durham, M., Guardincerri, E., Morris, C. L., Trellue, H. R.: Application of muon tomography to fuel cask monitoring. Philosophical Transactions of the Royal Society A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences, Bd. 377, Nr. 2137, S. 20180052, DOI 10.1098/rsta.2018.0052, 2019.
- /RAC 20/ Rachamin, R., Hampel, U.: Feasibility assessment of using external neutron and gamma radiation measurements for monitoring the state of fuel assemblies in dry storage casks. Annals of Nuclear Energy, Bd. 135,
 S. 106975, DOI 10.1016/j.anucene.2019.106975, 2020.
- /REY 06/ Reyna, D.: A Simple Parameterization of the Cosmic-Ray Muon Momentum Spectra at the Surface as a Function of Zenith Angle. DOI 10.48550/arXiv.hep-ph/0604145, 2006.

- /SCH 18/ Schouten, D.: Muon geotomography: selected case studies. Philosophical Transactions of the Royal Society A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences, Bd. 377, Nr. 2137, DOI 10.1098/rsta.2018.0061, 2018.
- /SHU 18/ Shukla, P., Sankrith, S.: Energy and angular distributions of atmospheric muons at the Earth. International Journal of Modern Physics A, Bd. 2018, Nr. 33, DOI 10.48550/arXiv.1606.06907, 2018.
- /TAN 18/ Tanaka, H. K. M.: Japanese volcanoes visualized with muography. Philosophical Transactions of the Royal Society A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences, Bd. 377, Nr. 2137, DOI 10.1098/rsta.2018.0142, 2018.
- /WAG 20/ Wagner, M., Reinicke, S., Kratzsch, A., Hampel, U.: An analysis for detecting potential relocation of the inventory of dry storage containers during prolonged interim storage via changes in the wall temperature fields. Nuclear Engineering and Design, Bd. 366, S. 110749, DOI 10.1016/j.nucengdes.2020.110749, 2020.
- /WIM 15/ Wimmer, H., Skrzyppek, J., Köbl, M.: CASTOR(R) and CONSTOR(R) A well established system for the dry storage of spent fuel and high level waste. VG Powertech, Nr. 95, S. 53–57, 2015.
- /YAN 18/ Yang, G., Clarkson, T., Gardner, S., Ireland, D., Kaiser, R., Mahon, D., Jebali, R. A., Shearer, C., Ryan, M.: Novel muon imaging techniques. Philosophical transactions. Series A, Mathematical, physical, and engineering sciences, Bd. 377, Nr. 2137, DOI 10.1098/rsta.2018.0062, 2018.

Abbildungsverzeichnis

Abb. 2.1	Relevante Materialschädigungsprozesse am TLB	14
Abb. 2.2	Relevante Materialschädigungsprozesse am Brennelement	14
Abb. 4.1	Fluss der kosmischen Primärstrahlung als Funktion der Energie	22
Abb. 4.2	Schematische Darstellung kosmischer Schauer	23
Abb. 4.3	Differentielle Teilchenflüsse für ausgewählte Teilchen der kosmischen Sekundärstrahlung als Funktion der atmosphärischen Tiefe bzw. der Höhe oberhalb von Normalnull /BON 20/	24
Abb. 4.4	Schematische Darstellung der der Absorptionsradiographie (<i>links</i>) bzw. der Streutomographie (<i>rechts</i>)	26
Abb. 4.5	Darstellung des generischen Behältermodells in GEANT4	32
Abb. 4.6	Explosionszeichnung des generischen Behältermodells und eines generischen Brennelementes (12)	34
Abb. 4.7	Vergleich der simulierten Polarwinkelverteilung (links) bzw. der simulierten Linearimpulsverteilung (rechts) mit empirischen Verteilungen.	37
Abb. 4.8	Vergleich simulierter Energieverluste ΔE pro Wegstrecke (in mm) (Symbole) mit tabellierten bzw. berechneten differentiellen Energieverlustwerten dE/dx (Linien) für unterschiedliche Materialien	42
Abb. 4.9	Vergleich von simulierten Werten für das quadratische Mittel der Streuwinkelverteilung (Symbole) mit semi-empirisch berechneten Werten (Linie) für unterschiedliche Materialien	44
Abb. 4.10	Radiographische Bilder auf Basis der Transmissionswahrscheinlichkeit für unterschiedliche Winkelakzeptanzen (von links nach rechts) und zwei unterschiedliche Geometrien (obere und mittlere Reihe)	47
Abb. 4.11	Radiographische Projektionsbilder auf Basis des Medians der effektiven Streuwinkelverteilung für unterschiedliche Winkelakzeptanzen (von links nach rechts) und zwei unterschiedliche Geometrien (obere und mittlere Reihe)	48
Abb. 4.12	Anordnung von Brennstäben und Führungsrohren im zentralen Brennelement gemäß Geometrie A (links) und Geometrie B (rechts)	50

Abb. 4.13	Häufigkeitsverteilungen für effektive Streuwinkel Øeff für eine fixierte initiale Myonen-Ausbreitung (oben) und eine Winkelakzeptanz von 0° bis 2° (unten)	51
Abb. 4.14	Wahrscheinlichkeitsdichtefunktion (PDF) (oben) und kumulierte Wahrscheinlichkeitsfunktion (CDF) (unten) der effektiven Streuwinkelverteilung für den Pixel zur Position II	52
Abb. 4.15	Histogramm des Signifikanzverhältnis D in der (x, y) -Ebene	53
Abb. 4.16	Signifikanzverhältnisse der drei relevanten Pixel in Abhängigkeit der Anzahl simulierter Ereignisse und der Winkelakzeptanz	55
Abb. 4.17	Signifikanzverhältnis der relevanten Pixel als Funktion der Messzeit und der Winkelakzeptanz	57
Abb. 4.18	Vergleich unterschiedlicher Verfahren zur Erzeugung von Projektionsbildern	59

Tabellenverzeichnis

Tab. 3.1	Verfahrensübersicht	15
Tab. 4.1	Informationen zu den in der Simulation verwendeten Materialien und deren Zusammensetzung	33
Tab. 4.2	Informationen zu Materialien und Massen der einzelnen Komponenten des generischen Behältermodells	35
Tab. 4.3	Informationen zu Materialien und Massen der einzelnen Komponenten eines generischen Brennelementes	35
Tab. 4.4	Strahlungslängen für ausgewählte Materialien	40

Abkürzungsverzeichnis

AET	Acoustic Emission Testing
BAM	Bundesanstalt für Materialforschung und -prüfung
BLEMAB	BLast furnace stack density Estimation through on-line Muons Absorption
	measurements
CRUD	Chalk River Unidentified Deposits
DWR	Druckwasserreaktor
ECT	Eddy Current Testing
EPRI	Electric Power Research Institute
ESCP	Extended Storage Collaboration Program
ESK	Entsorgungskommission
F&E	Forschung und Entwicklung
GNS	Gesellschaft für Nuklear-Service mbH
GWT	Guided Wave Testing
INL	Idaho National Laboratory
LZZL	Langzeitzwischenlager
MAPS	Managing Aging Processes in Storage
MCNP	Monte Carlo N-Particle®
MLSD	Maximum Likelihood Scattering and Displacement
NRC	United States Nuclear Regulatory Commission
PoCA	Point-of-Closest-Approach
TLB	Transport- und Lagerbehälter
ZfP	Zerstörungsfreie Prüfung
ZL	Zwischenlager

Gesellschaft für Anlagenund Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH

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

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