

Handbuch zur Kritikalität

Band 2 Zusammenstellung der Kritikalitätskenngrößen

Teil 2 Daten für Plutonium, ²³³Uran und höhere Aktinoide



Gesellschaft für Anlagenund Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH

Handbuch zur Kritikalität

Band 2 Zusammenstellung der Kritikalitätskenngrößen

Teil 2 Daten für Plutonium, ²³³Uran und höhere Aktinoide

Juli 2019 überarbeitete Auflage

Anmerkung:

Das diesem Bericht zugrunde liegende FE-Vorhaben wurde mit Mitteln des Bundesministeriums für Umwelt, Naturschutz und nukleare Sicherheit (BMU) unter dem Kennzeichen 4716E03350 durchgeführt.

Die Verantwortung für den Inhalt dieser Veröffentlichung liegt beim Auftragnehmer.

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

GRS - 381 ISBN 978-3-944161-62-4

Vorbemerkung

Die vorliegende Fassung wurde gegenüber der Ausgabe vom Dezember 1998 überarbeitet, ergänzt und modernisiert. Die Überarbeitung der zugrundeliegenden Ausgabe lag bei Robert Kilger, Franz-Eberhard Moser und Fabian Sommer. Robert Kilger und Fabian Sommer übernahmen die inhaltlich-redaktionellen Anpassungen.

Das Handbuch besteht aus zwei Bänden. Band 1 erläutert die Grundlagen der Kritikalitätsproblematik und Terminologie. Band 2 beinhaltet die systematische Zusammenstellung der Kritikalitätskenngrößen. Band 2 ist in zwei Teilbände unterteilt: Teil 1 (vormals Band II) enthält die Daten für Stoffsysteme mit dem Spaltstoff²³⁵U, Teil 2 (vormals Band III) behandelt die Daten für Stoffsysteme mit den Spaltstoffen ²³³U, Plutonium und höhere Aktinoide.

Haftungsausschluss

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

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

Deskriptoren

Kritikalität, Kritikalitätskenngrößen, kritische Parameter, nukleare Sicherheit, Spaltstoff

Vorwort

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

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

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

Der Band 2 (Teil 1 und 2) enthält Kritikalitätskenngrößen in Kurven- und Tabellenform. Die einzelnen Kurvenblätter sind jeweils mit einem eingangs aufgeschlüsselten Kennungssystem versehen, um ein rasches Auffinden der gerade interessierenden Information zu ermöglichen. Band 2, Teil 1 (vormals Band II) enthält Kritikalitätskenngrößen für Stoffsysteme mit ²³⁵U als Spaltstoff, während Band 2, Teil 2 (vormals Band III) Stoffsysteme mit den Spaltstoffen ²³³U und Plutonium sowie mit höheren Aktinoiden behandelt.

I

Preface

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

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

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

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

Ш

Inhaltsverzeichnis

	Plutonium-Wasser-Systeme	1
10.A	Homogene Plutonium-Wasser-Systeme	1
10.B	Homogene Plutoniumdioxid-Wasser-Systeme	9
10.D	Homogene Plutoniumkarbid (PuC)-Systeme	41
10.E	Homogene Plutoniumoxalat-Systeme	45
10.F	Homogene Plutoniumnitrat-Systeme	57
10.G	Homogene Ammoniumplutonylcarbonat (APuC)-Systeme	97
10.K	Homogene PlutonyInitrat-Systeme	107
	Uran-Plutonium-Wasser-Systeme	113
11.B	Homogene Uran-Plutonium-Mischoxid-Wasser-Systeme	113
11.D	Homogene Uran-Plutonium-Mischkarbid-Systeme	133
11.F	Homogene Uran-Plutonium-Nitrat-Systeme	137
11.G	Homogene AUPuC-Wasser-Systeme	143
12.B	Heterogene Urandioxid-Plutoniumdioxid-Wasser-Systeme	153
	Homogene ²³³ Uran-Wasser-Systeme	155
15.A	Homogene 233Uran-Wasser-Systeme	155
15.B	Homogene 233Uran-232Thorium-Oxid-Wasser-Systeme	157
15.F	Homogene 233Uran-232Thorium-Nitrat-Wasser-Systeme	171
	Homogene Aktinoiden-Wasser-Systeme	183
20.A	Homogene Systeme mit höheren Aktinoiden	183
	Literaturverzeichnis	185
	Abbildungsverzeichnis	195
	Tabellenverzeichnis	207

Erläuterung zum Inhaltsverzeichnis von Band 2

Die Daten und Kurvenblätter für die Kritikalitätsparameter in Band 2 des Handbuchs (Teil 1 und 2) sind nach Spaltstoffsystem, Spaltstoffverbindung und Art des Kritikalitätsparameters geordnet. Die Kurvenunter- und Tabellenüberschriften weisen dementsprechend eine aus drei Kenngrößen bestehende Bezeichnung auf. Aus abbildungstechnischen Gründen ist es teilweise nötig, die Darstellung eines Kritikalitätsparameters auf mehrere Blätter zu verteilen. Die Blätter werden in diesem Fall mit einem zusätzlichen, fortlaufenden Buchstaben identifiziert. Der Spaltstoff in der jeweiligen chemischen Verbindung wird zusätzlich durch eine Abkürzung in den Kurvenblättern rechts oben gezeigt.

Erläuterung der Kenngrößen

Die erste Kenngröße bezeichnet das Spaltstoff-Moderator-System. Als zweite Kenngröße wird ein Buchstabe zur Charakterisierung der Art der chemischen Verbindung des Spaltmaterials verwendet. Die dritte Kenngröße bezeichnet die Art des dargestellten Kritikalitätsparameters, z. B. Masse oder Volumen. Kurvenblätter zum gleichen Kritikalitätsparameter für Spaltstoffe mit unterschiedlicher Isotopenzusammensetzung verwenden als dritte Kenngröße eine zweistellige Zahl; hier steht die erste Ziffer für die laufende Nummerierung des Spaltstoffs, während die zweite Ziffer die Art des Kritikalitätsparameters kennzeichnet. Bei einigen Spaltstoffsystemen kommt eine vierte Kenngröße zum Einsatz, die verschiedene Unterscheidungsgrößen charakterisiert. Zum einen werden durch sie historische (Abb. #.#.#.a) und neuere (Abb. #.#.#.b) Berechnungen der gleichen Größen unterschieden (Kapitel 1.B, 1.C). Zum anderen weisen sie Rechenmodell-Aufrisse den jeweiligen Kurvenblättern zu (Kapitel 10.F), zeigen Datenblätter mit unterschiedlichen Neutronengiften (Kapitel 1.B, 5.B, 15.B), Geometrien (Kapitel 1.B, 10.F), verschiedenen Reflektoren (Kapitel 1.B), verschiedene Füllfaktoren (Kapitel 9.B) oder verschiedenen Restfeuchten (Kapitel 1.B).

Bei den Tabellen wird ein Buchstabe als dritte Kennung zur fortlaufenden Nummerierung verwendet. Den Tabellen und Kurvenblättern für ein Spaltstoffsystem ist jeweils ein kurzer Begleittext mit näheren Erläuterungen vorangestellt. Literaturangaben sind immer am Ende des Abschnitts für das Spaltstoffsystem angegeben. Die meisten Daten und Kurvenblätter gelten für Systeme mit voller Reflexion durch Wasser (30 cm H₂O). Bei anderen Reflektoren sind Material, Dichte und Dicke des Reflektors explizit angegeben.

Erste Kenngröße	Spaltstoffsystem		
1	²³⁵ U- ²³⁸ U-Wasser, homogen		
2	²³⁵ U- ²³⁸ U-Wasser, heterogen		
3	²³⁵ U-Thorium-Wasser, homogen		
4	²³⁵ U-Thorium-Wasser, heterogen		
5	²³⁵ U- ²³⁸ U-Graphit, homogen		
6	²³⁵ U- ²³⁸ U-Graphit, heterogen		
7	²³⁵ U-Thorium-Graphit, homogen		
8	²³⁵ U-Thorium-Graphit, heterogen		
9	²³⁵ U mit gemischter Graphit-Wasser-Moderation, homogen		
10	Plutonium-Wasser, homogen		
11	Uran-Plutonium-Wasser, homogen		
12	Uran-Plutonium-Wasser, heterogen		
13 Uran-Plutonium-Graphit, homogen			
14	Uran-Plutonium-Graphit, heterogen		
15	²³³ U-Thorium-Wasser, homogen		
16	²³³ U-Thorium-Wasser, heterogen		
17	²³³ U-Thorium-D ₂ O, heterogen		
18	²³³ U-Graphit, homogen		
19	Sonstige Mischsysteme		
20	Höhere Aktinoiden		
Zweite Kenngröße	Spaltstoff-Verbindung		
А	Metallischer Spaltstoff		
В	Oxid (UO ₂ , PuO ₂)		
С	Oxifluorid (UO ₂ F ₂)		
D	Karbid (UC, PuC)		

- E Oxalat (z. B. $Pu(C_2O_4)_2 \cdot 6H_2O)$ F Nitrat (z. B. $UO_2(NO_3)_2 \cdot 6H_2O)$
- G Ammoniumuranylkarbonat (AUC), APuC, AUPuC
- H Ammoniumdiuranat (ADU)
- I Uran(VI)oxid (UO₃)
- K Plutonylnitrat ($PuO_2(NO_3)_2 \cdot 6H_2O$)

Dritte Kenngröße	Kritikalitätsparameter
1	kritische Kugelmasse als Funktion der Spaltstoffkonzentration
2	kritisches Kugelvolumen als Funktion der Spaltstoffkonzentration
3	kritischer Zylinderdurchmesser (Höhe infinit) als Funktion der Spalt-
	stoffkonzentration
4	kritische Schichtdicke (Ausdehnung infinit) als Funktion der Spalt-
	stoffkonzentration
5	Moderationsverhältnis als Funktion der Spaltstoffkonzentration
6	infiniter Multiplikationsfaktor als Funktion der Spaltstoffkonzentration
7	kleinste kritische Konzentration als Funktion der Anreicherung
8	maximaler infiniter Multiplikationsfaktor als Funktion der Anreiche-
	rung
höhere Werte	Parameter für Spezialfälle
Vierte Kenngröße	u.U. zusätzliche Unterscheidung

	-
a,b,c,	Unterscheidung historische/neue Rechnungen
	Rechenmodell-Aufriss zum Kurvenblatt
	verschiedene Neutronengifte
	verschiedene Geometrien
	verschiedene Reflektoren
	verschiedene Restfeuchten

Plutonium-Wasser-Systeme

10.A Homogene Plutonium-Wasser-Systeme

Die Tabellen und Kurven in diesem Kapitel enthalten Kritikalitätsparameter für homogene ²³⁹Pu-²⁴⁰Pu-H₂O-Mischungen. Der Massenanteil des Isotops ²⁴⁰Pu ist als Kurvenparameter angegeben. Das restliche Plutonium ist stets reines ²³⁹Pu.

Sämtliche berechneten Werte gelten für voll wasserreflektierte Systeme. Die Berechnungen wurden in 16 Energiegruppen mit dem Spektralcode GAMTEC /CAR 65/ und dem S_N -Transportcode DTF-IV /LAT 65/ durchgeführt. Anisotrope Streuung wurde in P_1 -Approximation berücksichtigt, die Rechnungen wurden meist in S_8 -Ordnung ausgeführt. Wichtige experimentelle und rechnerische Daten finden sich in der angeführten Literatur, insbesondere in /CAR 65/, /LAT 65/, /THO 69/, /PAX 64/, /CHA 65a/, /HAN 66/, /LEC 65/, /GEE 68/, /CLA 67/, /HAN 68/, /BIE 68a/, /RIC 65/, /RIC 65/, /HAN 69/, /HAN 69/, /BIE 70/, /LLO 66/, /CAR 68/, /STR 64/ und /GMA 83/. Einige Vergleichsrechnungen wurden auch mit den Codes GGC-3 /ADI 67/ sowie mit Hansen-Roach-Wirkungsquerschnitten ausgeführt.

Die Berechnung von Plutonium-Systemen mit dem oben angegebenen Rechenverfahren wurde an verschiedenen Experimenten bei variablem ²⁴⁰Pu-Anteil von GRS und von anderen Autoren geprüft /RIC 68/, /CAR 68/. Die Übereinstimmung mit dem Experiment ist meist sehr gut. Bei Benutzung eines S_N -Transportcodes sind die k_{eff}-Werte gegenüber einem Diffusionscode meist leicht konservativ.

Bei Plutoniumdichten über 1 g Pu/cm³ ergeben sich bei der Berechnung kritischer Schichtstärken k_{eff}-Werte, die gegenüber den experimentell ermittelten Werten etwas zu klein und deshalb nicht konservativ sind /HAN 69/. Bei stark untermoderierten dünnen Platten mit Wasserreflektor tritt dieser Effekt wegen der Verschiebung der Energieverteilung der Neutronen und der infolgedessen bei geringer Energiegruppenzahl unkorrekten Mittelung der Wirkungsquerschnitte in der Spaltzone auf. Deswegen ist in Abb. 10.A.4 bei der Ableitung sicherer Werte ein größerer Sicherheitsfaktor als üblich (vgl. Band 1 Kap. 2.2) zu berücksichtigen.

Die den Rechnungen zu Grunde liegende Pu-Dichte beträgt 19,7 g/cm³. Das Handbuch ARH-600 /CAR 68/ gibt für homogene Pu_{Metall}-H₂O-Systeme als Zusammenhang von Moderator-Spaltstoffverhältnis und Plutoniumkonzentration die Näherung in Formel (10.1). Dieser Zusammenhang ist in Abb. 10.A.5 grafisch dargestellt .

$$H/Pu = \frac{26\,530}{c(Pu)\,[\text{g Pu/l}]} - 1,35 \tag{10.1}$$

Tab. 10.A.AKleinste kritische und sichere Kritikalitätsparameter für homogene
Plutonium-Wasser-Systeme, Pu-Konzentration \leq 400 g Pu/l

Kritikalitätsparameter	100 % ²³⁹ Pu		95 % ²³⁹ Pu + 5 % ²⁴⁰ Pu	
	kritisch	sicher ¹	kritisch	sicher
Kugelmasse [kg]	0,51	0,23	0,61	0,27
Kugelvolumen [Liter]	6,7	5,0	9,8	7,2
Zylinderdurchmesser [cm]	15,0	13,0	17,4	14,7
Schichtdicke [cm]	5,5	4,3	6,9	5,4
Pu-Konzentration [g/l]	7,2	3,6		—

 Tab. 10.A.B
 Kleinste kritische und sichere Kritikalitätsparameter für reines Plutonium-Metall

Kritikalitätsparameter	100 % ²³⁹ Pu		
	kritisch	sicher ¹	
Kugelmasse [kg]	5,42	2,5	
Kugelvolumen [Liter]	0,27	0,2	
Zylinderdurchmesser [cm]	4,5	3,8	
Schichtdicke [cm]	0,72	0,58	

¹ Sicherheitsfaktoren für beide Tabellen:

 \cong 45 % der kritischen Kugelmasse

 \cong 75 % des kritischen Kugelvolumens

Sicherer Zylinderdurchmesser \cong 85% des kritischen Zylinderdurchmessers

Sichere Schichtdicke $\cong 8$

Sichere Konzentration

Sicheres Kugelvolumen

Sichere Kugelmasse

 \cong 80 % der kritischen Schichtdicke

 \cong 50 % der kritischen Konzentration



Abb. 10.A.1 Kritische Kugelmasse von homogenen Plutonium-Wasser-Systemen



Abb. 10.A.2 Kritisches Kugelvolumen von homogenen Plutonium-Wasser-Systemen

22.05.1971

PU-MET-HOM



Abb. 10.A.3 Kritische Zylinderdicke von homogenen Plutonium-Wasser-Systemen



Abb. 10.A.4 Kritische Schichtdicke von homogenen Plutonium-Wasser-Systemen



Abb. 10.A.5 Moderationsverhältnis von homogenen Plutonium-Wasser-Systemen



Abb. 10.A.6 Infiniter Multiplikationsfaktor von homogenen Plutonium-Wasser-Systemen

10.B Homogene Plutoniumdioxid-Wasser-Systeme

In den nachstehenden Tabellen und Kurvenblättern sind Kritikalitätsdaten für homogene wassermoderierte Plutoniumdioxid-Systeme zusammengestellt. Die meisten Daten beziehen sich auf reines ²³⁹Pu als Spaltstoff. Sämtliche berechneten Werte gelten für Systeme mit voller Wasserreflexion (30 cm Wasser).

Die historischen Berechnungen erfolgten mit dem S_N -Code DTF /LAT 65/ unter Verwendung von 16-Gruppen-Wirkungsquerschnittsätzen, die mit dem Spektralcode GAMTEC generiert wurden. Die k_{eff}-Berechnungen wurden in S_8 -Näherung mit P_1 -anisotroper Streuung ausgeführt.

Die Abb. 10.B.41 bis 10.B.44 wurden aus /GMA 87/ entnommen und basieren auf Berechnungen mit dem S_N -Transportcode XSDRNPM /PET 76/. Zur Erzeugung der Wirkungsquerschnitte wurde dabei das Programmsystem SCALE mit einer auf ENDF/B-IV-Daten beruhenden 27-Gruppenbibliothek eingesetzt /BUC 80/. Wichtige Literaturquellen und Vergleichsmaterial finden sich in /THO 69/, /CHA 65a/, /HAN 66/,/LEC 65/, /CLA 67/, /HAN 68/, /BIE 68a/, /RIC 65/, /RIC 65/, /HAN 69/, /BIE 70/, /CAR 68/ und /BIE 71/.

Parameterkurven ab einschließlich 2013 wurden mit der Rechensequenz CSAS1 aus dem Codepaket SCALE 6.1.2 /ORN 11/ im "search"-Modus berechnet. Verwendet wurde die Wirkungsquerschnittsbibliothek v7-238 in Verbindung mit der Resonanzbehandlungsmethode CENTRM.

Plutoniumdioxid hat eine theoretische Dichte von $\rho = 11,46 \text{ g/cm}^3$. Die Kurvenblätter 10.B.1 bis 10.B.5 behandeln PuO₂-H₂O-Systeme in Abhängigkeit vom Moderationsgrad bzw. der Plutoniumkonzentration. Die Kurven 10.B.11 bis 10.B.14 beziehen sich auf stark untermoderierte PuO₂-Pulver bei verminderter Dichte.

Tab. 10.B.AKleinste kritische und sichere Kritikalitätsparameter für PuO2-Wasser-Systeme, 100 % 239 Pu, maximale Konzentration 1 g Pu/cm3; volle Wasserreflexion
(30 cm starker Wasserreflektor, historische Daten)

Kritikalitätsparameter	kritisch	sicher ¹
Masse [kg Pu]	0,51	0,23
Masse [kg PuO ₂]	0,58	0,26
Volumen [Liter]	5,5	4,1
Zylinderdurchmesser [cm]	13,9	11,8
Schichtdicke [cm]	4,7	3,75

Tab. 10.B.BKritische und sichere Kritikalitätsparameter für unmoderiertes PuO2; 100%239 Pu, PuO2-Dichte= 11,46 g/cm3; volle Wasserreflexion (30 cm starker Wasserreflektor, historische Daten)

Kritikalitätsparameter	kritisch	sicher ²
Masse [kg Pu]	10,8	4,8
Masse [kg PuO ₂]	12,2	5,5
Volumen [Liter]	1,07	0,8
Zylinderdurchmesser [cm]	7,4	6,2
Schichtdicke ¹ [cm]	1,75	1,4

¹ Vorläufig

² Sicherheitsfaktoren: Sichere Kugelmasse Sicheres Kugelvolumen Sicherer Zylinderdurchmess Sichere Schichtdicke

 \cong 45 % der kritischen Kugelmasse

 \cong 75 % des kritischen Kugelvolumens

Sicherer Zylinderdurchmesser $~~\cong$ 85 % des kritischen Zylinderdurchmessers

 \cong 80 % der kritischen Schichtdicke

20.09.2013

PU-OXID-HOM



Abb. 10.B.1 Kritische Kugelmasse von homogenen Plutoniumdioxid-Systemen, reines ²³⁹Pu

20.09.2013

PU-OXID-HOM



Abb. 10.B.2 Kritisches Kugelvolumen von homogenen Plutoniumdioxid-Systemen, reines ²³⁹Pu



Abb. 10.B.3 Kritische Zylinderdicke von homogenen Plutoniumdioxid-Systemen, reines ²³⁹Pu



Abb. 10.B.4 Kritische Schichtdicke von homogenen Plutoniumdioxid-Systemen, reines ²³⁹Pu



Abb. 10.B.5 Moderationsverhältnis von homogenen Plutoniumdioxid-Systemen



Abb. 10.B.11 Kritische Kugelmasse von homogenen, untermoderierten Plutoniumdioxid-Systemen, reines ²³⁹Pu



Abb. 10.B.12 Kritisches Kugelvolumen von homogenen, untermoderierten Plutoniumdioxid-Systemen, reines ²³⁹Pu



Abb. 10.B.13 Kritische Zylinderdicke von homogenen, untermoderierten Plutoniumdioxid-Systemen, reines ²³⁹Pu



Abb. 10.B.14 Kritische Schichtdicke von homogenen, untermoderierten Plutoniumdioxid-Systemen, reines ²³⁹Pu



Abb. 10.B.21 Kritische Kugelmasse von homogenen ²³⁹PuO₂-Tributylphosphat- bzw. Polyäthylen Mischungen



Abb. 10.B.22 Kritisches Kugelvolumen von homogenen ²³⁹PuO₂-Tributylphosphat- bzw. Polyäthylen Mischungen



Abb. 10.B.25Moderator-Spaltstoff-Verhältnis als Funktion der Plutoniumkonzentration von
homogenen ²³⁹PuO₂-Tributylphosphat- bzw. Polyäthylen Mischungen



Abb. 10.B.26Infiniter Multiplikationsfaktor von homogenen 239 PuO2-Tributylphosphat- bzw.Polyäthylen Mischungen


Abb. 10.B.31 Kritische Kugelmasse von homogenen PuO₂-Systemen mit H₂O-Restmoderation bei voller Wasserreflexion





Abb. 10.B.32 Kritisches Kugelvolumen von homogenen PuO₂-Systemen mit H₂O-Restmoderation bei voller Wasserreflexion



Abb. 10.B.33 Kritische Zylinderdicke von homogenen PuO₂-Systemen mit H₂O-Restmoderation bei voller Wasserreflexion



Abb. 10.B.34 Kritische Schichtdicke von homogenen PuO₂-Systemen mit H₂O-Restmoderation bei voller Wasserreflexion



Abb. 10.B.41 Kritische Kugelmasse von homogenen Plutoniumdioxid-Wasser Mischungen

26.09.2013



Abb. 10.B.42 Kritisches Kugelvolumen von homogenen Plutoniumdioxid-Wasser Mischungen



Abb. 10.B.43KritischeZylinderdickevonhomogenenPlutoniumdioxid-WasserMischungen

09.10.2013



Abb. 10.B.44 Kritische Schichtdicke von homogenen Plutoniumdioxid-Wasser Mischungen

09.10.2013



Abb. 10.B.51 Kritische Kugelmasse von homogenen Plutoniumdioxid-Wasser Mischungen

09.10.2013



Abb. 10.B.52 Kritisches Kugelvolumen von homogenen Plutoniumdioxid-Wasser Mischungen





Abb. 10.B.53 Kritische Zylinderdicke von homogenen Plutoniumdioxid-Wasser Mischungen







Abb. 10.B.54 Kritische Schichtdicke von homogenen Plutoniumdioxid-Wasser Mischungen



Abb. 10.B.61 Kritische Kugelmasse von homogenen Plutoniumdioxid-Wasser Mischungen

14.01.2014



Abb. 10.B.62 Kritisches Kugelvolumen von homogenen Plutoniumdioxid-Wasser Mischungen



Abb. 10.B.63 Kritische Zylinderdicke von homogenen Plutoniumdioxid-Wasser Mischungen



Abb. 10.B.64 Kritische Schichtdicke von homogenen Plutoniumdioxid-Wasser Mischungen

10.D Homogene Plutoniumkarbid (PuC)-Systeme

Die nachstehenden Kurvenblätter beziehen sich auf homogene Plutoniumkarbid-Systeme unterschiedlicher Karbiddichte ohne zusätzliches Wasser als Moderator.

Plutoniumkarbide treten in unterschiedlichen Verhältnissen von Pu zu C auf. Hier wird das nichtstöchiometrische Monokarbid PuC betrachtet, dessen Dichte 13,62 g/cm³ beträgt. Diese Dichte wurde für die Berechnung der folgenden Daten angesetzt. Das Moderationsverhältnis in der Spaltstoffzone beträgt C/Pu = 1,0.

Die Plutoniumzusammensetzung ist zu 100 % ²³⁹Pu bzw. 95 % ²³⁹Pu mit 5 % ²⁴⁰Pu angenommen. Als Reflektor der kugelförmigen Spaltstoffzone wird eine 30 cm dicke Wasserschicht angenommen.

Die Parameterkurven wurden mit der Rechensequenz CSAS1 aus dem umfangreichen Codepaket SCALE6.1.2 /ORN 11/ im "search"-Modus berechnet. Verwendet wurde die Wirkungsquerschnittsbibliothek v7-238 in Verbindung mit der Resonanzbehandlungsmethode CENTRM.

Wegen der höheren theoretischen Dichte des Plutoniumkarbids gegenüber Plutoniumdioxid und des höheren Plutoniumanteils in der Karbidverbindung können die in den Kurven angegebenen Kritikalitätsparameter konservativ auch für **trockenes** Plutoniumdioxid verwendet werden. Es wird jedoch darauf hingewiesen, dass Restfeuchte im Plutoniumdioxid zu kleineren kritischen Massen führt (vgl. Abb. 10.B.11).



PU-C-HOM



Abb. 10.D.1 Kritische Kugelmasse von homogenen, untermoderierten Plutoniumkarbid (PuC) Mischungen



Abb. 10.D.2 Kritisches Kugelvolumen von homogenen, untermoderierten Plutoniumkarbid (PuC) Mischungen

10.E Homogene Plutoniumoxalat-Systeme

Plutoniumoxalat ist ein Zwischenprodukt bei der nass-chemischen Konversion von Plutoniumnitrat zu Plutoniumdioxid. Die in den folgenden Kurven gezeigten Kritikalitätsparameter wurden für die Plutonium(IV)-Oxalate mit den Summenformeln $Pu(C_2O_4)_2.6H_2O$ und $Pu(C_2O_4)_2.2H_2O$ berechnet. Diese stellen die technisch wichtigsten Oxalate dar. Die theoretischen Dichten für diese Systeme sind in der Literatur nicht einheitlich angegeben. Nach Mitteilung der Firma ALKEM betragen die theoretischen Dichten 2,69 bzw. 3,05 g/cm³ für sechs bzw. zwei Kristallwasseranteile (vgl. Band 2, Teil 1 Tab. 12.B). Nach /CHA 65a/ und /HAN 66/ wird dem Plutoniumoxalat mit sechs Teilen Kristallwasser eine Dichte von 3 g/cm³ zugeordnet. Die Berechnungen gehen daher konservativ sowohl für zwei als auch für sechs Kristallwasseranteile von einer theoretischen Dichte von 3,05 g/cm³ aus. Entsprechende Abhängigkeiten der H/Pu-Moderator-Spaltstoffverhältnisse von der Plutoniumkonzentration sind in Abb. 10.E.5 dargestellt.

Die Berechnungen berücksichtigen einen 30 cm dicke Wasserreflektoren (Abb. 10.E.1 bis Abb. 10.E.6) oder 100 cm dicke Betonreflektoren (Abb. 10.E.11 bis Abb. 10.E.15. (In Ausgaben des Handbuch zur Kritikalität vor 2018 sind diese Daten in Abb. 10.E.12 bis Abb. 10.E.16 abgebildet)). die Plutoniumzusammensetzung ist 100 % ²³⁹Pu bzw. 95 % ²³⁹Pu mit 5 % ²⁴⁰Pu. Die Wirkungsquerschnitte für die anschließenden Rechnungen mit dem Transportcode ANISN /ENG 67/ in S_8 -Approximation wurden in 16 Energiegruppen mit dem Spektralprogramm GAMTEC /CAR 65/ erzeugt.

PU-OX-HOM



Abb. 10.E.1 Kritische Kugelmasse von homogenen Plutoniumoxalat-Wasser Mischungen





Abb. 10.E.2 Kritisches Kugelvolumen von homogenen Plutoniumoxalat-Wasser Mischungen



Abb. 10.E.3 Kritische Zylinderdicke von homogenen Plutoniumoxalat-Wasser Mischungen





Abb. 10.E.4 Kritische Schichtdicke von homogenen Plutoniumoxalat-Wasser Mischungen

PU-OX-HOM



Abb. 10.E.5Plutoniumkonzentration als Funktion des Moderator-Spaltstoff-Verhältnisses
von homogenen Plutoniumoxalat-Wasser Mischungen





Abb. 10.E.6 Infiniter Multiplikationsfaktor von homogenen Plutoniumoxalat-Wasser Mischungen

11.11.1977





Abb. 10.E.11 Kritische Kugelmasse von homogenen ²³⁹Pu-Oxalat-Wasser Mischungen mit Betonreflektor







Abb. 10.E.12 Kritisches Kugelvolumen von homogenen ²³⁹Pu-Oxalat-Wasser Mischungen mit Betonreflektor



Abb. 10.E.13 Kritische Zylinderdicke von homogenen ²³⁹Pu-Oxalat-Wasser Mischungen mit Betonreflektor



Abb. 10.E.14 Kritische Schichtdicke von homogenen ²³⁹Pu-Oxalat-Wasser Mischungen mit Betonreflektor



Abb. 10.E.15 Kritische Zylinderdicke von einer homogenen ²³⁹Pu-Oxalat-Wasser-Mischung in Abhängigkeit von der Dicke des Betonreflektors

10.F Homogene Plutoniumnitrat-Systeme

In den nachstehenden Tabellen und Kurvenblättern sind Kritikalitätsparameter für Plutoniumnitrat-Wasser-Systeme mit verschiedenen Anteilen von ²⁴⁰Pu und ²⁴¹Pu zusammengestellt. Die Massenanteile der Plutoniumisotope sind jeweils als Kurvenparameter angegeben.

Plutoniumnitrat, wie es den hier berechneten Daten zu Grunde liegt, hat die chemische Zusammensetzung $Pu(NO_3)_4 \cdot 5H_2O$ mit einer theoretischen Dichte von 2,90 g/cm³. Die berechneten Werte gelten für Systeme ohne zusätzliche Salpetersäure HNO₃, also freier H⁺ Molarität gleich Null. Das N/Pu-Verhältnis beträgt vier.

Die älteren Berechnungen v. a. der 1970er Jahre wurden mit den Codes GAMTEC /CAR 65/ und DTF-IV /LAT 65/ in 16 Energiegruppen durchgeführt. Die anisotrope Streuung wurde in P_1 -Näherung berücksichtigt, die Rechnungen zur Ermittlung der Multiplikationsfaktoren wurden in S_8 -Approximation ausgeführt. Die berechneten Werte gelten meist für voll wasserreflektierte Systeme; in einigen Fällen, z. B. in Abb. 10.F.42, wurde Reflexion mittels Beton angenommen. Die Parameterkurven ab einschließlich 2013 wurden mit der Rechensequenz CSAS1 aus dem Codepaket SCALE 6.1.2 /ORN 11/ im "search"-Modus berechnet. Verwendet wurde die Wirkungsquerschnittsbibliothek v7-238 in Verbindung mit der Resonanzbehandlungsmethode CENTRM.

Das in der Lösung enthaltene Nitrat wirkt auf zweierlei Weise: Es verursacht durch das Absorptionsvermögen des Stickstoffs ($\Sigma_{A,th} = 0,080$ b von ¹⁴N) eine Reaktivitätsverminderung, und es bewirkt durch Volumenverdrängung von H₂O zugunsten der Nitrationen NO₃⁻ eine leichte Verschiebung des Moderationsverhältnisses H/Pu bei gleichbleibendem Pu-Gehalt der Lösung, vgl. auch Abb. 10.F.5. Nach einer in Kap. III.A.2 von ARH-600 /CAR 68/ angegebenen Gleichung lässt sich diese Verschiebung in erster Näherung nach Formel (10.2) berechnen. Weitere Informationen dazu finden sich z. B. auch in "Plutonium Handbook Vol. II" /CLA 67/.

$$H/Pu = \frac{26539 - 638, 7 \times (\text{H}^{+} \text{ Molarität HNO}_{3})}{c(\text{Pu}) \text{ in g Pu/l}} - 9,606$$
(10.2)

Jüngere Arbeiten deuten darauf hin, dass die lineare Näherung nach Formel (10.2) nicht für alle Konzentrationsbereiche gut geeignet ist, und unter Umständen, v.a. im niedriger moderierten Bereich ab ca. 200 g/l und höher, zu nicht konservativen Werten von 3 bis 4 % in k_{eff} führen kann /LEC 03/. Deshalb sind größere Sicherheitsfaktoren zu verwenden, falls in diesem Konzentrationsbereich nach Formel (10.2) vorgegangen wird.

In den Berechnungen mit CSAS1 aus dem Codepaket SCALE 6.1.2 /ORN 11/ wurde nicht Formel (10.2) zur Berechnung der Lösungsdichte verwendet, sondern die in SCALE 6.1.2 implementierte Dichtefunktion für wässrige Plutoniumnitrat-Lösungen. Diese basiert auf einer speziell für Aktinoiden angepassten Pitzer-Methode, welche auch über den in /LEC 03/ vorgeschlagenen Ansatz des "isopiestic law" hinaus geht, vgl. /ORN 11/ Manual Kap. M7.A. Nachrechnungen kritischer Benchmark-Experimente /MAR 11/ zeigen eine systematische, geringfügige Überschätzung des experimentellen Werts von k_{eff} mit dem hier verwendeten Rechensystem, weshalb die Werte der Parameterkurven, zumindest im gut moderierten Bereich, als konservativ gelten können.

Die Werte in Tab. 10.F.A wurden mit Hilfe der Dichterelation nach Formel (10.2) und dem älteren Rechenverfahren ermittelt, weshalb sich geringfügige Differenzen gegenüber den neu berechneten Parameterkurven in den darauf folgenden Abbildungen ergeben.

Da sich durch zusätzliche Salpetersäure HNO₃, also H⁺ Molarität größer Null und erhöhte Stickstoffkonzentration, die Reaktivität des Systems bei festgehaltener Plutoniumkonzentration vermindert, können die in 10.F angegebenen Kritikalitätsparameter bei N/Pu-Verhältnissen über vier ebenfalls konservativ angewandt werden. Liegt N/Pu dagegen unterhalb vier, müssen die Kurven und Tabellen in den Kapiteln 10.A bis 10.E herangezogen werden.

In wässrigen Lösungen führt ein ²⁴⁰Pu-Anteil gegenüber 100 % ²³⁹Pu zu einer Reaktivitätserniedrigung. ²⁴¹Pu jedoch ist reaktiver als ²³⁹Pu. Als Beispiel für diese Effekte ergibt sich als kritisches Kugelvolumen V_K einer Plutoniumnitratlösung von 250 g Pu/l, freie H⁺-Molarität 0, mit einem 30 cm dicken Wasserreflektor:

 $100 \% ^{239}$ Pu $V_K = 8,8$ Liter $95 \% ^{239}$ Pu, $5 \% ^{240}$ Pu $V_K = 12,9$ Liter $90 \% ^{239}$ Pu, $5 \% ^{240}$ Pu, $5 \% ^{241}$ Pu $V_K = 11,9$ Liter

Bei höheren ²⁴¹Pu-Anteilen, insbesondere wenn der ²⁴⁰Pu-Anteil und der ²⁴¹Pu-Anteil annähernd gleich groß sind, muss ²⁴¹Pu bei der Berechnung eigens berücksichtigt werden. Andererseits ist bei Plutonium aus abgebranntem LWR- oder MAGNOX-Brennstoff der ²⁴⁰Pu-Gehalt meist mehr als doppelt so hoch wie der ²⁴¹Pu-Anteil. Die Näherung des ²⁴¹Pu als ²³⁹Pu führt in diesen Fällen zu nur geringen Abweichungen von den exakten Werten. Wichtige Veröffentlichungen für Kritikalitätskenngrößen von Plutoniumnitrat-Lösungen sind z. B. /THO 69/, /CHA 65a/, /CLA 67/, /HAN 69/, /LLO 66/, /BOU 67/, /RIC 68/, /LLO 64a/, /BIE 68b/, /LLO 68a/, /LLO 64b/, /LLO 69/, /CAR 68/, /BLY 70/ und /GMA 83/.

Kritikalitätsparameter	100 % ²³⁹ Pu		95% ²³⁹ Pu + 5% ²⁴⁰ Pu	
	kritisch	sicher ¹	kritisch	sicher ¹
Kugelmasse [kg]	0,54	0,24	0,63	0,28
Kugelvolumen [Liter]	8,3	6,2	11,2	8,0
Zylinderdurchmesser [cm]	16,2	14,0	18,1	15,4
Schichtdicke [cm]	6,2	5,0	7,5	6,0
Pu-Konzentration [g/l]	7,2	3,6		

Tab. 10.F.AKleinste kritische und sichere Kritikalitätsparameter für homogene Plutoni-
umnitratlösungen, N/Pu = 4, Volle Wasserreflexion, freie H+-Molarität 0

¹ Sicherheitsfaktoren:

Sichere Kugelmasse Sicheres Kugelvolumen Sicherer Zylinderdurchmesse Sichere Schichtdicke

Sichere Konzentration

 \cong 45 % der kritischen Kugelmasse

 \cong 75 % des kritischen Kugelvolumens

Sicherer Zylinderdurchmesser \cong 85 % des kritischen Zylinderdurchmessers

 \cong 80 % der kritischen Schichtdicke

 \cong 50 % der kritischen Konzentration




Abb. 10.F.1 Kritische Kugelmasse von homogenen Plutoniumnitrat-Wasser-Systemen



Abb. 10.F.2 Kritisches Kugelvolumen von homogenen Plutoniumnitrat-Wasser-Systemen



Abb. 10.F.3 Kritische Zylinderdicke von homogenen Plutoniumnitrat-Wasser-Systemen



Abb. 10.F.4 Kritische Schichtdicke von homogenen Plutoniumnitrat-Wasser-Systemen





Abb. 10.F.5 Moderationsverhältnis von homogenen Plutoniumnitrat-Wasser-Systemen



Abb. 10.F.6 Infiniter Multiplikationsfaktor von homogenen Plutoniumnitrat-Wasser-Systemen

20.01.2015

PU-NIT-HOM



Abb. 10.F.11 Kritische Kugelmasse von homogenen wässrigen Plutoniumnitrat-Lösungen



Abb. 10.F.12 Kritisches Kugelvolumen von homogenen wässrigen Plutoniumnitrat-Lösungen



Abb. 10.F.13 Kritische Zylinderdicke von homogenen wässrigen Plutoniumnitrat-Lösungen



Abb. 10.F.14 Kritische Schichtdicke von homogenen wässrigen Plutoniumnitrat-Lösungen



Abb. 10.F.16 Infiniter Multiplikationsfaktor von homogenen wässrigen Plutoniumnitrat-Lösungen



Abb. 10.F.18 Kritische Zylinderdicke von einer homogenen ²³⁹Pu-Nitrat-Wasser-Mischung in Abhängigkeit von der Dicke des Betonreflektors



Abb. 10.F.21 Kritische Kugelmasse von einer typischen Aufarbeitungs-Plutoniumnitratlösung

16.01.2014



Abb. 10.F.22 Kritisches Kugelvolumen von einer typischen Aufarbeitungs-Plutoniumnitratlösung

16.01.2014



Abb. 10.F.23 Kritische Zylinderdicke von einer typischen Aufarbeitungs-Plutoniumnitratlösung



Abb. 10.F.24 Kritische Schichtdicke von einer typischen Aufarbeitungs-Plutoniumnitratlösung



Abb. 10.F.26 Infiniter Multiplikationsfaktor von einer typischen Aufarbeitungs-Plutoniumnitratlösung



Abb. 10.F.30 Multiplikationsfaktor k_{eff}von Plutoniumnitrat-Lösungen in Schichtgeometrie



Abb. 10.F.31 Multiplikationsfaktor keffür Plutoniumnitrat-Lösungen in Schichtgeometrie



Abb. 10.F.32.a Multiplikationsfaktor k_{eff}für Plutoniumnitrat-Scheibenbehälter, Variation der Schichtdicke



Abstands zwischen Behälter und Betonwand



Abb. 10.F.33 Multiplikationsfaktor k_{eff}für Plutoniumnitrat-Lösungen in Zylindergeometrie



Abb. 10.F.34 Multiplikationsfaktor keffür Plutoniumnitrat-Lösungen in Schichtgeometrie







Abb. 10.F.36 Multiplikationsfaktor k_{eff}für Plutoniumnitrat-Flachbehälter, Variation der Schichtdicke



standes zwischen Flachbehälter und Betonwand







Abb. 10.F.40.a Rechenmodell-Aufriss zu Abb. 10.F.40.b



Abb. 10.F.40.b Multiplikationsfaktor k_{eff}für Plutoniumnitrat (PuNH)-Zylinderbehälter-Anordnungen mit dickem Beton-Reflektor, Rechenmodell vgl. Abb. 10.F.40.a



Abb. 10.F.41.a Rechenmodell-Aufriss zu Abb. 10.F.41.b



Abb. 10.F.41.b Multiplikationsfaktor k_{eff}für Anordnungen von Plutoniumnitrat (PuNH)-Zylinderbehältern mit dicken Beton-Reflektoren, Rechenmodell vgl. Abb. 10.F.41.a



Abb. 10.F.42 Kritische Schichtdicke von wässrigen Pu(85/BIE 79/5)-Nitratlösungen mit 30 cm Wasser- bzw. Betonreflektor



Abb. 10.F.43 Kritische Schichtdicke für wässrige Pu-Nitratlösungen mit beidseitig 6 mm Stahl und 30 cm Normalbeton





Abb. 10.F.51 Kritische Kugelmasse von homogenen Plutoniumnitrat-TBP/Kerosin-Systemen



Abb. 10.F.52 Kritisches Kugelvolumen von homogenen Plutoniumnitrat-TBP/Kerosin-Systemen


Abb. 10.F.56 Infiniter Multiplikationsfaktor von homogenen Plutoniumnitrat-TBP/Kerosin-Systemen

10.G Homogene Ammoniumplutonylcarbonat (APuC)-Systeme

Die folgenden Tabellen und Kurvenblätter enthalten Kritikalitätsparameter für homogene Ammoniumplutonylcarbonat-Wasser-Systeme (APuC). Der Plutoniumvektor wird variiert mit 2,0 bis 100 Gew%²⁴⁰Pu. Dieser Anteil ist jeweils als Parameter für die entsprechende Kurve angegeben. Sämtliche kritische Werte gelten für voll wasserreflektierte Systeme (30 cm Wasserreflektor der Dichte 1 g/cm³).

Bei der Herstellung von Mischoxidbrennstoff (MOX) nach dem in Deutschland entwickelten AUPuC-Verfahren (siehe Kapitel 11.G) fällt in der nass-chemischen Verarbeitung von Plutoniumdioxid als Zwischenprodukt Ammoniumplutonylcarbonat (APuC) an /SCH 79/, /ROE 87/. Die Verbindung hat die chemische Zusammensetzung (NH₄)₄PuO₂(CO₃)₃. Die maximalen Dichte des APuC-Kristalls wird mit 2,78 g/cm³ angenommen /SPR 18/. Daraus folgt eine maximale Plutoniumdichte von 1,27 gPu/cm³. Die kleinkristallinen APuC-Wasser-Systeme mit einer Korngröße von ~ 50 µm werden als homogenes System betrachtet.

Die Daten wurden mit dem Code XSDRN der Steuersequenz CSAS1 aus dem Programmsystem SCALE 6.2.2 /REA 17/ im "search"-Modus berechnet. Zur Berechnung wurden nukleare Querschnittsdaten aus der 252-Gruppen-Bibliothek v7-252 verwendet, die auf den ENDF/B-VII.1-Daten /CHA 11/ basieren. Diese neu berechneten Werte der Kritikalitätsparameter liegen für 5 Gew%²⁴⁰Pu leicht oberhalb der historischen Daten von 1987. Damals wurde nur der Plutoniumvektor aus 95 Gew%²³⁹Pu und 5 Gew%²⁴⁰Pu berechnet. Diese historischen Berechnungen erfolgten mit dem Transportcode XSDRNPM /PET 76/ unter Verwendung der 27-Gruppenbibliothek des Programmsystems SCALE /BUC 80/.

Für kritische Kugelmassen liegen die neuen Werte etwa 6 % überhalb der historschen Kurven, für kritische Kugelvolumina etwa 3 %. Für kritische Zylinderdurchmesser liegen die neuen Werte etwa 1 % über und für kritische Schichtdicken etwa 2 % unterhalb der Kurven aus dem Jahr 1974.

Da für die hier berechneten Spaltstoff-Systeme zum Zeitpunkt der Berechnung fast keine experimentell ermittelten Kritikalitätsparameter vorlagen, sind größere Sicherheitsabschläge als die in Band 1 Kap. 2.2 vorgeschlagenen anzusetzen.

97



Abb. 10.G.1 Kritische Kugelmasse von homogenen APuC-Wasser Mischungen



Abb. 10.G.2 Kritisches Kugelvolumen von homogenen APuC-Wasser Mischungen



Abb. 10.G.3 Kritische Zylinderdicke von homogenen APuC-Wasser Mischungen



Abb. 10.G.4 Kritische Schichtdicke von homogenen APuC-Wasser Mischungen



Abb. 10.G.5 Moderationsverhältnis von homogenen APuC-Wasser Mischungen



Abb. 10.G.6 Infiniter Multiplikationsfaktor von homogenen APuC-Wasser Mischungen



Abb. 10.G.7 Kleinste kritische Konzentration von homogenen APuC-Wasser Mischungen



Abb. 10.G.8 Maximaler infiniter Multiplikationsfaktor von homogenen APuC-Wasser Mischungen

10.K Homogene PlutonyInitrat-Systeme

Die folgenden Tabellen und Kurvenblätter enthalten Kritikalitätsparameter für homogene Plutonylnitrat-Wasser-Systeme (PuO₂-NIT). Zur Berechnung der Kernzahldichten wurde die chemische Formel PuO₂(NO₃)₂·6H₂O mit sechs Molekülen Kristallwasser zu Grunde gelegt. Für die nicht genau bekannte theoretische Dichte (einschließlich Kristallwasser) wurde der in der öffentlich zugänglichen Literatur beschriebene Wert von Pu(IV)-Nitrat (ρ = 2,90 g/cm³) herangezogen. Die chemisch analoge Verbindung des Urans, Uranylnitrat, hat eine theoretische Dichte von 2,81 g/cm³. Der für Plutonylnitrat angesetzte Wert ist somit konservativ.

Die nachstehenden Kurvenblätter enthalten Kritikalitätsdaten für homogene Plutonylnitrat-Wasser-Systeme mit 5% ²⁴⁰Pu-Anteil und voller Wasserreflexion (30 cm H₂O). Ein Nitrationenüberschuss in der Lösung wurde nicht betrachtet.

Die Parameterkurven wurden mit der Rechensequenz CSAS1 aus dem umfangreichen Codepaket SCALE6.1.2 /ORN 11/ im "search"-Modus berechnet. Verwendet wurde die Wirkungsquerschnittsbibliothek v7-238 in Verbindung mit der Resonanzbehandlungsmethode CENTRM.

Der Vergleich mit entsprechenden Kritikalitätsdaten von Pu(IV)-Nitrat (vgl. Kapitel 10.F) zeigt im gut moderierten Bereich (H/Pu \ge 260) im Wesentlichen eine Übereinstimmung der Kurvenverläufe, während sich im untermoderierten bis trockenen Bereich die Plutonylnitrat-Systeme als geringfügig reaktiver erweisen. Dies ist auf die Restmoderation durch das in der Rechnung berücksichtigte Kristallwasser und den niedrigeren Stickstoffanteil zurückzuführen (N/Pu = 2), der als mildes Neutronengift wirkt.



Abb. 10.K.1 Kritische Kugelmasse von homogenen Plutonylnitrat-Wasser Mischungen



Abb. 10.K.2 Kritisches Kugelvolumen von homogenen Plutonylnitrat-Wasser Mischungen



Abb. 10.K.3 Kritische Zylinderdicke von homogenen Plutonylnitrat-Wasser Mischungen



Abb. 10.K.4 Kritische Schichtdicke von homogenen Plutonylnitrat-Wasser Mischungen

Uran-Plutonium-Wasser-Systeme

11.B Homogene Uran-Plutonium-Mischoxid-Wasser-Systeme

Die nachstehenden Kurvenblätter enthalten Kritikalitätsdaten für homogene Urandioxid-Plutoniumdioxid-Wasser-Systeme mit voller Wasserreflexion (30 cm H₂O). Der PuO₂-Anteil am gesamten Oxid beträgt 15, 30, 35 und 45 Massenprozent. Die Isotopenzusammensetzung des Plutoniums und des Urans ist jeweils auf den Kurvenblättern angegeben. Die theoretische Dichte der Oxid-Mischung beträgt $\rho = 11,21$ g/cm³.

Die historischen Daten wurden in 16 Energiegruppen mit den Programmen GAMTEC und DTF-IV (vgl. Literaturverzeichnis zu 10.A–K /CHA 65b/, /CRI 69/) unter Berücksichtigung anisotroper Streuung errechnet. Parameterkurven ab einschließlich 2013 wurden mit der Rechensequenz CSAS1 aus dem Codepaket SCALE 6.1.2 /ORN 11/ im "search"-Modus berechnet. Verwendet wurde die Wirkungsquerschnittsbibliothek v7-238 in Verbindung mit der Resonanzbehandlungsmethode CENTRM.

Wichtige Literaturhinweise sind /CHA 65b/, /CRI 69/, /BIE 71/, /BIE 75/, /BIE 76/, /BIE 73/ und /LLO 74/.

Für die hier berechneten Spaltstoff-Systeme gibt es nur wenig direkt vergleichbare experimentell bestimmte Kritikalitätsparameter. Daher werden bei Anwendung der Daten größere Sicherheitsabschläge als die in Band 1 Kap. 2.2 vorgeschlagenen empfohlen.

U/Pu-OXID-HOM



Abb. 11.B.1 Kritische Kugelmasse von homogenen Uran-Plutoniumdioxid-Wasser Mischungen

U/Pu-OXID-HOM



Abb. 11.B.2 Kritisches Kugelvolumen von homogenen Uran-Plutoniumdioxid-Wasser Mischungen

U/Pu-OXID-HOM



Abb. 11.B.3 Kritische Zylinderdicke von homogenen Uran-Plutoniumdioxid-Wasser Mischungen



Abb. 11.B.4 Kritische Schichtdicke von homogenen Uran-Plutoniumdioxid-Wasser Mischungen



Abb. 11.B.5Moderationsverhältnis als Funktion der Oxidkonzentration von homogenen
Uran-Plutoniumdioxid-Wasser Mischungen



Abb. 11.B.6Infiniter Multiplikationsfaktor von homogenen Uran-Plutoniumdioxid-WasserMischungen



Abb. 11.B.11 Kritische Kugelmasse von homogenen UO₂-PuO₂-Systemen mit H₂O-Restmoderation bei voller Wasserreflexion



Abb. 11.B.12 Kritisches Kugelvolumen von homogenen UO₂-PuO₂-Systemen mit H₂O-Restmoderation bei voller Wasserreflexion



Abb. 11.B.13 Kritische Zylinderdicke von homogenen UO₂-PuO₂-Systemen mit H₂O-Restmoderation bei voller Wasserreflexion



Abb. 11.B.14 Kritische Schichtdicke von homogenen UO₂-PuO₂-Systemen mit H₂O-Restmoderation bei voller Wasserreflexion



Abb. 11.B.21 Kritische Kugelmasse von homogenen Uran-Plutonium-Mischoxid-Wasser Mischungen



Abb. 11.B.22 Kritisches Kugelvolumen von homogenen Uran-Plutonium-Mischoxid-Wasser Mischungen



Abb. 11.B.23 Kritische Zylinderdicke von homogenen Uran-Plutonium-Mischoxid-Wasser Mischungen





Abb. 11.B.24 Kritische Schichtdicke von homogenen Uran-Plutonium-Mischoxid-Wasser Mischungen



Abb. 11.B.26 Infiniter Multiplikationsfaktor von homogenen Uran-Plutonium-Mischoxid-Wasser Mischungen



Abb. 11.B.31 Kritische Kugelmasse von MOX(15) in Wasser mit Restmoderation



Abb. 11.B.32 Kritisches Kugelvolumen von MOX(15) in Wasser mit Restmoderation



Abb. 11.B.33 Kritische Zylinderdicke von MOX(15) in Wasser mit Restmoderation


Abb. 11.B.34 Kritische Schichtdicke von MOX(15) in Wasser mit Restmoderation

11.D Homogene Uran-Plutonium-Mischkarbid-Systeme

In diesem Abschnitt werden berechnete Kritikalitätsparameter für homogene Uran-Plutonium-Mischkarbide unterschiedlicher Karbiddichte dokumentiert. In diesen Systemen ist kein Wasser als Moderator vorhanden. Die maximale Dichte beträgt 13,62 g/cm³. Der Plutoniumanteil beträgt 35 Massenprozent und der Urananteil 65 Massenprozent; es handelt sich dabei um natürliches Uran. Das Plutonium besteht entweder aus 100 %²³⁹Pu oder aus 95 %²³⁹Pu und 5 %²⁴⁰Pu. Damit wird eine konservative Annäherung von Schnellbrüterbrennstoff den Berechnungen zu Grunde gelegt.

In einer zweiten Rechenserie wurden k_{∞} -Werte für eine Plutonium-Urankarbid-Mischung mit 4 Massenprozent Pu und 96 Massenprozent U_{nat} berechnet. Die Dichte beträgt 5,5 g/cm³ (unwesentlich für k_{∞}). Der Plutoniumvektor ist 100 % ²³⁹Pu oder 95 % ²³⁹Pu, 5 % ²⁴⁰Pu. Da dieses Spaltstoffsystem ohne Moderator unterkritisch bleibt, wurden k_{∞} -Werte in Abhängigkeit von einer Restfeuchte berechnet. Damit ist eine konservative Übertragung und Anwendung der Daten für entsprechende Oxid-Systeme möglich.

Die Rechenmethodik entsprach der in Kapitel 10.D angegebenen Vorgehensweise. Auch hier sind kaum direkt vergleichbare experimentelle Daten verfügbar. Daher werden größere Sicherheitsabschläge als die in Band 1 Kap. 2.2 vorgeschlagenen empfohlen.



U/Pu-C-HOM



Abb. 11.D.1 Kritische Kugelmasse von homogenen, unmoderierten Plutoniumkarbid-Urankarbid (PuC-UC) Mischungen



Abb. 11.D.2 Kritisches Kugelvolumen von homogenen, unmoderierten Plutoniumkarbid-Urankarbid (PuC-UC) Mischungen



Abb. 11.D.6 Infiniter Multiplikationsfaktor von homogenen Plutoniumkarbid-Urankarbid (PuC-UC) Mischungen

11.F Homogene Uran-Plutonium-Nitrat-Systeme

Für die folgende Nitratmischung wurden Kritikalitätsparameter berechnet:

30 Vol.% 239 Pu(NO₃)₄ - H₂O + 70 Vol.% U_{nat}O₂(NO₃)₂ - H₂O.

Die Berechnungsmethode mit den Programmen GAMTEC und DTF-IV in 16 Energiegruppen entspricht der in Kapitel 11.B dargestellten Weise. Vergleichswerte für Oxide finden sich in /CHA 65b/ und /CRI 69/, Experimente mit U-Pu-Nitrat-Systemen sind in /BIE 75/, /SMO 94a/, /SMO 94b/ und /LLO 76/ beschrieben.



Abb. 11.F.1Kritische Kugelmasse von homogenen Natururan-Plutoniumnitrat-H2OMischungen



Abb. 11.F.2 Kritisches Kugelvolumen von homogenen Natururan-Plutoniumnitrat-H₂O Mischungen



Abb. 11.F.3 Kritische Zylinderdicke von homogenen Natururan-Plutoniumnitrat-H₂O Mischungen



Abb. 11.F.4 Kritische Schichtdicke von homogenen Natururan-Plutoniumnitrat-H₂O Mischungen



Abb. 11.F.6Infiniter Multiplikationsfaktor von homogenen Natururan-Plutoniumnitrat-H2OMischungen

11.G Homogene AUPuC-Wasser-Systeme

Die folgenden Tabellen und Kurvenblätter enthalten Kritikalitätsparameter für homogene Ammoniumuranylplutonylcarbonat-Wasser-Systeme (AUPuC). Für die Rechnungen wird eine Mischung von 55 Gew% Natururan (0,72 Gew% ²³⁵U) und 45 Gew% Plutonium angenommen. Dabei wird der Plutoniumvektor variiert mit einem ²⁴⁰Pu-Anteil von 2,0 bis 100 Gew%. Dieser Anteil ist jeweils als Parameter für die entsprechende Kurve angegeben. Sämtliche kritische Werte gelten für voll wasserreflektierte Systeme (30 cm Wasserreflektor der Dichte 1 g/cm³).

Um bei der Herstellung von Mischoxidbrennstoff (MOX) ganz bestimmte Eigenschaften für das Endprodukt zu erreichen (z. B. gute Löslichkeit in HNO_3), ist in Deutschland ein spezielles Verfahren zur Herstellung von UO_2 -Pu O_2 -Mischkristallen entwickelt worden /SCH 79/, /ROE 87/. Dabei tritt als Zwischenprodukt Ammoniumuranylplutonylcarbonat (AUPuC) auf. Die Verbindung hat die chemische Zusammensetzung (NH₄)₄(U,Pu)O₂(CO₃)₃. Zur Beurteilung der Kritikalitätssicherheit der entsprechenden Prozessanlagen ist die Kenntnis von kritischen Dimensionen dieser Spaltstoffverbindung bei verschiedenen Verdünnungsgraden in Wasser erforderlich.

Als theoretische Dichte für AUPuC wird hier der gewichtete Mittelwert der Dichten von Ammoniumuranylcarbonat (AUC, Band 2, Teil 1, Kapitel 1.G) und Ammoniumplutonylcarbonat (APuC, Kapitel 10.G) von 2,80 g/cm³ herangezogen, was einer Schwermetalldichte (U+Pu) von 1,28 g/cm³ entspricht. Die kleinkristallinen AUC- und APuC-Wasser-Systeme mit einer Korngröße von ~ 50 µm werden als homogene Systeme betrachtet. Folglich werden auch die gemischten AUPuC-Wasser-Systeme als homogene Systeme betrachtet.

Die Daten wurden mit dem Code XSDRN der Steuersequenz CSAS1 aus dem Programmsystem SCALE 6.2.2 /REA 17/ im "search"-Modus erzeugt. Zur Berechnung wurden nukleare Querschnittsdaten aus der 252-Gruppen-Bibliothek v7-252 verwendet, die auf den ENDF/B-VII.1-Daten /CHA 11/ basieren. Diese neu berechneten Werte der Kritikalitätsparameter weichen für 5 Gew% ²⁴⁰Pu leicht von der historischen Daten von 1987 ab. Damals wurde dieselbe Mischung aus 55 Gew% Natururan (0,72 Gew% ²³⁵U) und 45 Gew% Plutonium mit einem Plutoniumvektor von 95 Gew% ²³⁹Pu und 5 Gew% ²⁴⁰Pu gerechnet. Diese historischen Berechnungen erfolgten mit dem Transportcode XSDRNPM /36/ unter Verwendung der 27-Gruppenbibliothek des Programmsystems SCALE /37/. Für kritische Kugelmassen liegen die neuen Werte etwa 3% überhalb der historschen Kurven. Für kritische Kugelvolumina und kritische Zylinderdurchmesser schwanken die neuen Rechnungn $\pm 3\%$ um die historischen Werte. Für kritische Schichtdicken liegen die neuen Kurven etwa zwischen 0% und 4% überhalb der Kurven aus dem Jahr 1974.

Da für die hier berechneten Spaltstoff-Systeme zum Zeitpunkt der Berechnung fast keine experimentell ermittelten Kritikalitätsparameter vorlagen, sind größere Sicherheitsabschläge als die in Band 1 Kap. 2.2 vorgeschlagenen anzusetzen.



Abb. 11.G.1 Kritische Kugelmasse von homogenen AUPuC-Wasser Mischungen



Abb. 11.G.2 Kritisches Kugelvolumen von homogenen AUPuC-Wasser Mischungen



Abb. 11.G.3 Kritische Zylinderdicke von homogenen AUPuC-Wasser Mischungen



Abb. 11.G.4 Kritische Schichtdicke von homogenen AUPuC-Wasser Mischungen



Abb. 11.G.5 Moderationsverhältnis von homogenen AUPuC-Wasser Mischungen



Abb. 11.G.6 Infiniter Multiplikationsfaktor von homogenen AUPuC-Wasser Mischungen



Abb. 11.G.7 Kleinste kritische Konzentration von homogenen AUPuC-Wasser Mischungen



Abb. 11.G.8 Maximaler infiniter Multiplikationsfaktor von homogenen AUPuC-Wasser Mischungen

12.B Heterogene Urandioxid-Plutoniumdioxid-Wasser-Systeme

Mit dem Programm HAMMER /SUI 67/ wurden Kritikalitätsdaten für Natururan-Plutoniumdioxid-Stabgitter in Wasser berechnet. Dabei wird das Moderator-Spaltstoff-Volumenverhältnis V(H₂O)/V(Oxid) von 0,5–6,0 variiert. Die Oxiddichte beträgt 10,54 g/cm³, der Pelletdurchmesser 9 mm. Die Wandstärke des Zirkalloy-Hüllrohrs beträgt 0,7 mm, der Stabaußendurchmesser 10,75 mm, die Länge der Stäbe wird als infinit angenommen.

Der Plutoniumdioxidanteil im Gesamtoxid beträgt 2,5 bzw. 4,0 Gew.%. Die betrachtete Isotopenzusammensetzung des Plutoniums ist 85 % ²³⁹Pu, 10 % ²⁴⁰Pu und 5 % ²⁴¹Pu. Bei allen Berechnungen wird ein 30 cm starker Wasserreflektor angenommen. Die verwendete Wasserdichte beträgt 1 g/cm³, die Temperatur 293 K. Alle in den Rechnungen verwendeten Wirkungsquerschnitte wurden einmal hinsichtlich des Bucklings iteriert, die Anzahl der Energiegruppen ist stets vier.

Wichtige Literatur zu diesem Gebiet findet sich in /SCH 64/, /TAY 65/, /LEA 67/, /BAT 66/, /BRO 69/, /UOT 72/, /LII 72/, /BRO 73/, /TSU 78/, /BIE 79/, /BIE 80/, /BUR 81/, /KEA 83/, /BOW 93/, /SMO 94a/, /SMP 94b/, /BOW 95/ und /SHI 96/.

Nachrechnungen von Experimenten aus /UOT 72/ und /LII 72/ erbrachten sehr gute Resultate. In Tab. 12.B.A und sind berechnete Multiplikationsfaktoren k_{eff} für experimentell kritische Anordnungen mit hexagonalen Gitteranordnungen angegeben. Im ersten Teil werden $U_{nat}O_2$ -Pu O_2 -Stäbe mit Zirkalloy-Hüllrohr in H₂O mit 2 Gew.% Pu O_2 im Gesamtoxid berechnet. Die Pu-Zusammensetzung beträgt: 91,62 % ²³⁹Pu; 7,65 % ²⁴⁰Pu; 0,70 % ²⁴¹Pu; 0,03 % ²⁴²Pu.

Im zweiten Teil beträgt der Anteil an PuO₂ im Gesamtoxid 4 Gew.%. Die Pu-Zusammensetzung beträgt: 0,28 % ²³⁸Pu; 75,38 % ²³⁹Pu; 18,10 % ²⁴⁰Pu; 5,08 % ²⁴¹Pu; 1,15 % ²⁴²Pu.

Gitterabstand [cm]	H/Pu	k _{eff}	
Teil 1: 2 Gew.% PuO ₂ im Gesamtoxid:			
2,032	238	0,990	
2,362	391	0,998	
2,667	554	0,996	
2,903	693	1,001	
3,353	991	1,001	
3,520	1131	0,997	
Teil 2: 4 Gew.% PuO ₂ im Gesamtoxid:			
2,159	152,8	0,986	
2,362	203,3	0,987	
2,667	288,7	1,000	
2,903	413,9	1,001	
3,520	578,1	1,003	
4,064	804,8	1,003	
4,318	922,0	1,004	

Tab. 12.B.AVergleich von experimentellen Daten mit HAMMER-Berechnungen an Natur-
urandioxid-Plutoniumdioxid-Stab-Wasser-Systemen /UOT 72/, /LII 72/

Homogene ²³³Uran-Wasser-Systeme

15.A Homogene ²³³Uran-Wasser-Systeme

Die folgende Tabelle enthält grundlegende Daten für homogene ²³³U-Wasser-Systeme bei voller Wasserreflexion. Die Daten stammen aus /CAR 68/, /WEB 67/ sowie aus /MAU 78/ und /PRU 96/. Die theoretische Dichte von Uran-Metall beträgt $\rho = 18,9 \text{ g/cm}^3$.

Tab. 15.A.A	Grundlegende Kritikalitätsdaten für homogene ²³³ U-Wasser-Systeme bei vol-
	ler Wasserreflektion

Parameter	Kleinster kritischer Wert
Masse [kg ²³³ U]	
Lösung (\leq 0,4 g U/cm 3)	0,57
Metall	7,3
Volumen [Liter]	
Lösung (\leq 0,4 g U/cm 3)	3,7
Metall	0,4
Durchmesser eines infiniten Zylinders [cm]	
Lösung (\leq 0,4 g U/cm 3)	11,9
Metall	5,1
Dicke einer infiniten Schicht [cm]	
Lösung (\leq 0,4 g U/cm 3)	3,2
Metall	0,625
Konzentration einer wässrigen Lösung [g/I ²³³ U]	11,2

15.B Homogene ²³³Uran-²³²Thorium-Oxid-Wasser-Systeme

Die nachstehend dargestellten Daten gelten für homogene (²³³U/²³²Th)O₂-Systeme mit Wasser als Moderator. Dabei sind folgende Fälle berechnet worden:

 $-^{233}$ UO₂-Wasser (ohne Thoriumanteil)

-233UO2 (10%)-232ThO2 (90%)-Wasser

- 235 UO2 (10%) - 232 ThO2 (90%) - Wasser (zu Vergleichszwecken)

Außerdem sind derartige Spaltstoffmischungen unter Zugabe von homogen verteilten Neutronenabsorbern (natürliches Bor, Cadmium) berechnet worden. Die den Rechnungen zu Grunde liegende Mischoxid-Dichte beträgt 10,96 g/cm³.

Parameterkurven ab einschließlich 2013 wurden mit der Rechensequenz CSAS1 aus dem Codepaket SCALE 6.1.2 /ORN 11/ im "search"-Modus berechnet. Verwendet wurde die Wirkungsquerschnittsbibliothek v7-238 in Verbindung mit der Resonanzbehandlungsmethode CENTRM.

Die vorhandene experimentelle Datenbasis hinsichtlich ²³³UO₂ ist recht gering, insbesondere in Verbindung mit ²³²Th. Jedoch zeigt die Nachrechnung kritischer Experimente mit Uranylnitrat ²³³UO₂(NO₃)₂ in wässriger Lösung eine gute Übereinstimmung der Ergebnisse dieses Rechensystems mit den gemessenen Werten, bei einer tendenziell leichten rechnerischen Überschätzung von k_{eff} im gut moderierten Konzentrationsbereich.





Abb. 15.B.1 Kritische Kugelmasse von homogenen ²³³U-Dioxid-H₂O-Systemen

U233-OXID-HOM



Abb. 15.B.2 Kritisches Kugelvolumen von homogenen ²³³U-Dioxid-H₂O-Systemen

U233-OXID-HOM



Abb. 15.B.3 Kritische Zylinderdicke von homogenen ²³³U-Dioxid-H₂O-Systemen





Abb. 15.B.4 Kritische Schichtdicke von homogenen ²³³U-Dioxid-H₂O-Systemen



Abb. 15.B.6.a Infiniter Multiplikationsfaktor von homogenen ²³³U-Dioxid-H₂O-Systemen mit homogener Borvergiftung



Abb. 15.B.6.b Infiniter Multiplikationsfaktor von homogenen ²³³U-Dioxid-H₂O Mischungen mit homogener Cadmiumvergiftung

U233-OXID-HOM



Abb. 15.B.11 Kritische Kugelmasse von homogenen ²³³U- und ²³⁵U-Thorium-Dioxid-H₂O-Systemen



Abb. 15.B.12 Kritisches Kugelvolumen von homogenen 233 U- und 235 U-Thorium-Dioxid-H₂O-Systemen



Abb. 15.B.13 Kritische Zylinderdicke von homogenen ²³³U- und ²³⁵U-Thorium-Dioxid-H₂O-Systemen



Abb. 15.B.14 Kritische Schichtdicke von homogenen ²³³U- und ²³⁵U-Thorium-Dioxid-H₂O-Systemen


Abb. 15.B.16.a Infiniter Multiplikationsfaktor von homogenen $^{\rm 233}\text{U-}$ und $^{\rm 235}\text{U-}$ Thorium-Dioxid-H_2O-Systemen



Abb. 15.B.16.b Infiniter Multiplikationsfaktor von homogenen ²³³U-²³²Th-Dioxid-H₂O-Systemen mit homogener Borvergiftung

15.F Homogene ²³³Uran-²³²Thorium-Nitrat-Wasser-Systeme

Die folgenden Kurvenblätter enthalten Kritikalitätsparameter für homogene Systeme aus Uran-Thoriumnitrat (233 U/ 232 Th)O₂(NO₃)₂ und Wasser H₂O. Auch Kurven für reine 233 U-Nitrat-Systeme ohne Thorium sind berechnet worden.

Die älteren Berechnungen vor 2013 wurden mit den Rechenprogrammen GAMTEC und FOG (eindimensionaler Diffusionscode) durchgeführt. Da es sich um gut moderierte Lösungen handelt, ist die Rechnung mit dem Diffusionsprogramm FOG ausreichend genau, wie Vergleichsrechnungen mit dem S_N -Transportcode DTF gezeigt haben.

Die Parameterkurven ab einschließlich 2013 wurden mit der Rechensequenz CSAS1 aus dem Codepaket SCALE 6.1.2 /ORN 11/ im "search"-Modus berechnet. Verwendet wurde die Wirkungsquerschnittsbibliothek v7-238 in Verbindung mit der Resonanzbehandlungsmethode CENTRM.

Die in den Kurvenblättern angegebenen Werte sind nur für Systeme mit $N/(U+Th) \ge 2$ anwendbar. Liegt dabei der NO_3 -Anteil höher, so sind die berechneten Daten konservativ.

Literatur zu ²³³U-Nitrat-Lösungen ist in /CAR 68/, /WEB 67/, /THO 67/, /PAX 64/, /FOX 59/, /GWI 62/, /BRU 65/, /LLO 68b/, /THO 68/, /JEN 78/, /MAU 78/, /ULL 80/, /PAX 87/, /SAN 94/, /HOL 94/, /DUN 95/, /PRU 96/ und /ANN 98/ zu finden.



Abb. 15.F.1 Kritische Kugelmasse von homogenen ²³³U-Nitrat-H₂O-Systemen



Abb. 15.F.2 Kritisches Kugelvolumen von homogenen ²³³U-Nitrat-H₂O-Systemen



Abb. 15.F.3 Kritische Zylinderdicke von homogenen ²³³U-Nitrat-H₂O-Systemen







Abb. 15.F.6 Infiniter Multiplikationsfaktor von homogenen ²³³U-Nitrat-H₂O-Systemen

27.02.1973



Abb. 15.F.11 Kritische Kugelmasse von homogenen ²³³U-²³²Th-Nitrat-H₂O-Systemen

27.02.1973



Abb. 15.F.12 Kritisches Kugelvolumen von homogenen ²³³U-²³²Th-Nitrat-H₂O-Systemen



Abb. 15.F.13 Kritische Zylinderdicke von homogenen ²³³U-²³²Th-Nitrat-H₂O-Systemen



Abb. 15.F.14 Kritische Schichtdicke von homogenen ²³³U-²³²Th-Nitrat-H₂O-Systemen



Abb. 15.F.15 Moderator/Schwermetallverhältnis von homogenen ²³³U-²³²Th-Nitrat-H₂O-Systemen



Abb. 15.F.16 Infiniter Multiplikationsfaktor von homogenen ²³³U-²³²Th-Nitrat-H₂O-Systemen

Homogene Aktinoiden-Wasser-Systeme

20.A Homogene Systeme mit höheren Aktinoiden

Über die in den vorangehenden Kapiteln behandelten Spaltstoff-Systeme mit ²³³U, ²³⁵U, ²³⁹Pu und ²⁴¹Pu hinaus gibt es weitere Aktinoide, deren Halbwertszeiten mehr als sechs Wochen betragen und von denen aufgrund ihres Kernaufbaus angenommen wird, dass mit ihnen eine selbsterhaltende Kettenreaktion möglich ist, sei es in einem thermischen oder einem schnellen Neutronenspektrum, oder sogar in beiden /LAV 03/.

Die nachstehende Tabelle enthält berechnete und gemessene kritische Kugelmassen für schnelle und thermische Systeme derartiger Nuklide. Die schnellen Systeme sind unmoderiert und bestehen aus dem jeweiligen Nuklid in metallischer Form. Die thermischen Systeme sind homogene Mischungen des jeweiligen Nuklids mit Wasser. Die Reflektoren sind in der Tabelle angegeben.

Die meisten Werte stammen aus /CLA 73/ und /MAU 78/. Weitere Daten finden sich in /CLA 71/, /WES 81/, /CLA 80/, /ANS 96/, /IAE 98/ und /LAV 03/; v. a. in /IAE 98/ und /LAV 03/ sind veröffentlichte Werte aus der Literatur und Ergebnisse neuerer Berechnungen zusammengestellt. /SAN 03/ beschreibt die experimentelle Ermittlung der kritischen Masse von ²³⁷Np.

Nuklid	Thermisches	Unmoderierte	Unmoderierte	Unmoderierte
	System,	Metallkugel,	Metallkugel,	Metallkugel,
	H ₂ O-Reflektor	ohne Reflektor	H ₂ O-Reflektor	Stahlreflektor
²³⁷ Np	_	≈ 60	64,9	43,1
²³⁸ Pu	_	7,2	5,6	4,5
²³⁹ Pu	0,510	10,0	5,42	4,45
²⁴⁰ Pu	_	158,7	148,4	96,4
²⁴¹ Pu	0,260	12,18	5,9	_
²⁴¹ Am	_	113,5	105,3	71,4
²⁴² Am	0,023	17,65	3,8	_
²⁴³ Cm	0,213	8,10	_	_
²⁴⁴ Cm	_	23,2	22,0	14,2
²⁴⁵ Cm	0,042	12,28	_	_
²⁴⁷ Cm	0,159	7,87	_	_
²⁴⁹ Cf	0,032	8,34	_	_
²⁵¹ Cf	0,010	7,78	_	_

 Tab. 20.A.A
 Kritische Kugelmasse f
 ür schnelle und thermische Systeme f
 ür h
 öhere Aktinoide [kg]

Literaturverzeichnis

- /ADI 67/ J. Adir, K.D. Lathrop et al.: GGC-3 Multigroup Cross Section Code for Diffusion and Transport Calculations, GA7156-7158, July 1967.
- /ANN 98/ J. Anno: Renouvellement du Standard de Criticité Francais, IPSN/DPEA/SEC, SEC/DI/96/16, SEC/DI/98/01, Juli 1996 und Februar 1998.
- /ANS 96/ ANSI/ANS: ANSI/ANS-8.15-1981; R1987; R1995; R2005: Nuclear Criticality Control of Special Actinide Elements, Trans. Am. Nucl. Soc., 75, 200, 1996.
- /BAT 66/ Battelle North-West-Laboratories: Plutonium Utilization Program. Technical Activities Quarterly Reports, BNWL-340 (1966), BNWL-472 (1967), BNWL-775 (1968), BNWL-828 (1968), BNWL-963 (1969), BNWL-1053 (1969), BNWL-1304 (1970).
- /BIE 71/ S.R. Bierman, E.D. Clayton: Critical Experiments with Unmoderated Plutonium Oxide, Nucl. Technology, 11, 185, June 1971.
- /BIE 68a/ S.R. Bierman, L.E. Hansen et al.: Critical Exerpiments with Homogeneous PuO₂-Polystyrene at H/Pu = 5, Trans. ANS. 11, 380/1, 1968.
- /BIE 68b/ S.R. Bierman, E.D. Clayton: Criticality Research at the Pacific Northwest Laboratory, BNWL-SA-2035S, 1968.
- /BIE 70/ S.R. Bierman, E.D. Clayton: Critical Experiments with Homogeneous PuO₂, Trans. ANS. 13,1, 379, June 1970.
- /BIE 71/ S.R. Bierman, E.D. Clayton: Critical Experiments with Mixed Oxides of Pu und U Containing 15 and 30 wt % Pu, Trans, ANS., 14, 1, p. 40, June 1971.

- /BIE 73/ S.R. Bierman, E.D. Clayton, L.E. Hansen: Critical Experiments with Homogeneous Mixtures of Plutonium and Uranium Oxides Containing 8, 15 and 30 wt % Plutonium, Nucl. Sci. Eng., 50, 115, 1973.
- /BIE 75/ S.R. Bierman: Critical Experiments-Benchmarks (Pu-U Systems), Nucl. Technology 26, 352, 1975.
- /BIE 76/ S.R. Bierman, E.D. Clayton: Critical Experiments with Low-Moderated Homogeneous Mixtures of Plutonium und Uranium Oxides Containing 8, 15 and 30 wt % Plutonium, Nucl. Sci. Eng. 61, 370, 1976
- /BIE 79/ S.R. Bierman, B.M Durst, E.D. Clayton, R.E. Scherpelz, H.T. Kerr: Critical Experiments with Fast Test Reactor Fuel Pins in Water, Nucl. Technology 44, p. 141, 1979.
- /BIE 80/ S.R. Bierman, B.M. Durst, E.D. Clayton, B.W. Howes: Critical Experiments with Concrete-reflected Fast Test Reactor Fuel Pins in Water, Nucl. Technology 49, p. 40, 1980.
- /BLY 70/ W.A. Blyckert: Weights of Critical Spherical Plutonium Solution Systems, ARH-1634, 1970.
- /BOU 67/ J.C. Bouly, R. Caizergues, E. Deilgat, M. Houelle, P. Lecorché: Experiences de Criticité Realisees avec une Solution Homogéne de Plutonium, CEA-R-3367, Dez. 1967.
- /BOW 93/ S.M. Bowman, H. Taniuchi: Burnup Credit Validation of SCALE-4 Using Mixed-Oxide Critical Experiments, Trans. ANS 68, 241, 1993.
- /BOW 95/ S.M. Bowman, M.D. DeHart, C.V. Parks: Validation of SCALE-4 for Burnup Credit Applications, Nucl. Technology, 110, 53, 1995.
- /BRO 69/ C.L. Brown, D.R. Oden: Critical Parameters for 0 bis 7% PuO₂-U(Nat)O₂-Rods in Water, Trans. ANS. 12,2, p. 873, 1969.

- /BRO 73/ C.L. Brown, L.C. Davenport, D.P. Oden: Plutonium Fuel Technology Part
 III: Nuclear Criticality Safety Considerations in LWR (Pu,U)O₂ Fuel Fabrication, Nucl. Technology 18, p. 109-114, 1973.
- /BRU 65/ J.G. Bruna et al.: Results of Homogeneous Critical Experiments Carried out with ²³⁹Pu, ²³⁵U and ²³³U (in French), Proc. of the Symposium Criticality Control of Fissile Materials, Stockholm, 1-5 November 1965, pp 235-248.
- /BUC 80/ J.A. Buchholz: SCALE, a Modular Code-System for Performing Standardized Computer Analyses for Licensing Evaluation, ORNL/NUREG/CSD-2, 1980.
- /BUR 81/ B.M. Durst, S.R. Bierman, E.D. Clayton: Summary of Experimental Data for Critical Arrays of Moderated Fast Test Reactor Fuel, PNL-3313, 1981.
- /CAR 68/ R.D. Carter, G.R. Kiel, K.R. Ridgway: Criticality Handbook, Vol. I, II, ARH-600, 1968.
- /CAR 65/ L.L. Carter, C.R. Richey, C.E. Hughey: GAMTEC-II: A Code for Generating Consistent Multigroup Constants Utilized in Diffusion and Transport Theory Calculations, BNWL-35, 1965.
- /CHA 65a/ J.H. Chalmers: Handbook of Criticality Data, UKAEA, 1965/7.
- /CHA 65b/ J.H. Chalmers: Criticality Parameters for Mixtures of Plutonium Oxide, Uranium Oxide and Water, SM70/9, Nov. 1965.
- /CHA 11/ M.B. Chadwick et al.: ENDF/B-VII.1 Nuclear Data for Science and Technology: Cross Sections, Covariances, Fission Product Yields and Decay Data, NuclearData Sheets, 112, pp. 2887-2996, 2011.
- /CLA 65/ E.D. Clayton, C.R. Richey et al.: Criticality Research on Plutonium, SM 70/32, 1965.
- /CLA 67/ E.D. Clayton, W.A. Reardon: Plutonium Handbook, Vol. II, p. 875, 1967.

- /CLA 71/ E.D. Clayton, S.R. Bierman: Criticality Problems of Actinide Elements, Actinides Rev., 1, 409, 1971.
- /CLA 73/ E.D. Clayton: Fissionability and Criticality: From Protactinium to Californium and Beyond, Nucl. Sci. Eng. 52, 417, 1973.
- /CLA 80/ H.K. Clark: Subcritical Limits for Special Fissile Actinides, Nucl. Technol., 48, 164, 1980.
- /CRI 69/ ANS: Criticality of PuO₂-UO₂-Aqueous Mixtures, Trans. ANS., 12, 2, p.
 869, Nov. 1969
- /DUN 95/ M.E. Dunn et al.: Validation of KENO Va with ENDF/B-V Cross Sections for ²³³U Systems, Trans. ANS 70, 181, 1994 und Nucl. Techn. 111, 183, 1995.
- /ENG 67/ W.W. Engle: K-1693, March 1967.
- /FOX 59/ J.K. Fox et al.: Critical Mass Studies, Part VIII, Aqueous Solutions of U-233, ORNL-2143, 1959.
- /GEE 68/ W. Geer, D.R. Smith: Measurement of the Critical Mass of a Water Reflected Pu-Sphere, Trans. ANS. 11, 378, 1968 and LA-DC-9370, 1968.
- /GMA 83/ B. Gmal, W. Heinicke: Kritikalitätsdaten für wässrige Lösungen von Plutoniumnitrat mit Wasser und Beton als Reflektormaterialien, GRS-A-921, Dezember 1983.
- /GMA 87/ B. Gmal: Kritikalitätsdaten für wässrige Plutonium-Systeme der AUPuC-Konversion, GRS-A-1338, April 1987.
- /GWI 62/ R. Gwin, D.W. Magnuson: The Measurement of Eta and other Nuclear Properties of U-233 and U-235 in Critical Aqueous Solutions, Nucl. Sci. Eng., 12, p. 364 - 380, 1962.

- /HAN 66/ L.E. Hansen, E.D. Clayton: Criticality of Plutonium Compounds in the Undermoderated Range, H:Pu ≤ 20, BNWL-SA-983, 1966.
- /HAN 68/ L.E. Hansen, E.D. Clayton: Critical Parameters of Plutonium Systems, Trans ANS. 11, 2, 671, 1968.
- /HAN 69/ L.E. Hansen, E.D. Clayton: Critical Parameters of Plutonium Systems, Part I, II. Nucl. Appl. 6, 371, April 1969.
- /HOL 94/ D.F. Hollenbach, C.M. Hopper: Criticality Safety Study of the MSRE Fuel Drain Tank Cell, Trans. ANS 70, 213, 1994.
- /HUN 69/ D.C. Hunt, M.R. Boss: Plutonium Metal Criticality Measurements, Trans. ANS. 12,2, 872, Nov. 1969.
- /IAE 98/ IAEA Division of Radiation and Waste Safety: Towards an Extension of the Definition of Fissile Materials and Their Mass Exemption Limits, 3rd Meeting of the Transport Safety Standards Advisory Committee (TRANSSAC III), IAEA Headquarters, Vienna, 4-8 May 1998.
- /JEN 78/ J.D. Jenkins, S.R. McNeany: Criticality Considerations for ²³³U Fuels in an HTGR Fuel Refabrication Facility, ORNL/TM-6136, 1978.
- /KEA 83/ R.T. Keay, S.R. Bierman, P.E. Broome, P.D. Clemson: Critical and Subcritical Experiments on Lattices of UO₂/PuO₂ Fuel in Water Paisoned with Gadolinium Nitrate Solution, PNL-SA-11751, 1983.
- /LAT 65/ K.D. Lathrop: DTF-IV, A FORTRAN-IV Program for Solving the Multigroup Transport Equation with Anisotropic Scattering. LA-3373, 1965.
- /LEA 67/ R.D. Leamer, W. Orr et al.: PuO₂-UO₂-Fueled Critical Experiments, WCAP-3726-1, 1967.

- /LAV 03/ C. Lavarenne, D. Mennerdahl, C. Dean, "Evaluation of nuclear criticality safety data and limits for actinides in transport", Final Report C4/TMR2001/200-1, IRSN Reference SEC/T/03.146, Fontenayaux-Roses Cedex, France (2003).
- /LEC 65/ J. Leclerc et al.: Guide de Criticité, I, II, III, 1965.
- /LEC 03/ N. Leclaire, J. Anno, G. Courtois, G. Poullot, V. Rouyer, "Isopiestic Density Law of Actinide Nitrates Applied to Criticality Calculations", ICNC 2003, Tokai-mura, Japan (2003).
- /LII 72/ R.C. Liikala, V.O. Uotinen, V.P. Jenquin: Lattices of Plutonium-Enriched Rods in Light Water - Part II, Theoretical Analysis of Plutonium-Fueled Systems, Nucl. Technology 15, p. 272-296, 1972.
- /LLO 64a/ R.C. Lloyd et al.: Criticality of Plutonium Nitrate Solutions in Spherical Geometry, HW-84369, 1964.
- /LLO 64b/ R.C. Lloyd, D.R. Skeen, S.R. Bierman: Criticality of Plutonium Nitrate Solutions in Spherical Geometry, HW-84369, 1964.
- /LLO 66/ R.C. Lloyd, C.R. Richey, et al.: Criticality Studies with Pu-Solutions, Nucl. Sci. Eng. 25, 165, 1966.
- /LLO 68a/ R.C. Lloyd, E.D. Clayton, L.E. Hansen: Criticality of Plutonium Nitrate Solutions in Slab Geometry, BNWL-685, 1968.
- /LLO 68b/ R.C. Lloyd, E.D. Clayton, J.H. Chalmers: Criticality of Arrays of ²³³U Solution, Nucl. Appl. 4, 136, 1968.
- /LLO 69/ R.C. Lloyd, E.D. Clayton, L.E. Hansen: Criticality of Pu)NO₃)₄-Solution
 Slabs Having High Pu-240 Content, Trans. ANS. 12,2, 870, 1969.
- /LLO 74/ R.C. Lloyd, S.R. Bierman, E.D. Clayton: Criticality of Plutonium-Uranium Mixtures Containing 5 to 8 wt % Plutonium, Nucl. Sci. Eng., 55, 51, 1974.

- /LLO 76/ R.C. Lloyd, E.D. Clayton: Criticality of Plutonium-Uranium Nitrate Solutions, Nucl. Sci. Eng., 60, 143, 1976.
- /MAR 11/ W.J. Marshall, B.T. Rearden, "Criticality Safety Validation of Scale 6.1", ORNL/TM-2011/450, November 2011.
- /MAU 78/ L. Maubert: Standard de Criticité Valeurs Minimales Critiques, CEA-N-2051, 1978.
- /ORN 11/ ORNL: SCALE: A Comprehensive Modeling and Simulation Suite for Nuclear Safety Analysis and Design, ORNL/TM-2005/39, Version 6.1, Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, Tennessee, June 2011, Available from RSICC at Oak Ridge National Laboratory as CCC-785.
- /PAX 64/ H.C. Paxton et al.: Critical Dimensions for Systems Containing U-235, Pu-239 and U-238, TID 7028, 1964.
- /PAX 87/ H.C. Paxton, N.L. Pruvost: Critical Dimensions of Systems Containing
 ²³⁵U, ²³⁹Pu and ²³³U, 1986 Revision, LA-10860-MS, July 1987.
- /PET 76/ L.M. Petrie, N.M. Greene: XSDRNPM, AMPX-Module with Onedimensional S_N Cabability for Spatial Weightening, ORNL/TM-3706, März 1976.
- /PRU 96/ N.L. Pruvost, H.C. Paxton: Nuclear Criticality Safety Guide, LA-12808, September 1996.
- /REA 17/ B.T. Rearden and M.A. Jessee, Editors: SCALE Code System, ORNL/TM-2005/39, Version 6.2, Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, TN, 2017.
- /RIC 65/ C.R. Richey, J. White: BNWL-95 and Nucl. Sc. And Eng. 23, 150, 1965.
- /RIC 68/ C.R. Richey: Theoretical Analysis of Homogeneous Plutonium Critical Experiments, Nucl. Sc. And Eng. 31, 32, 1968.

- /ROE 87/ H. Roepenack, F.U. Schlemmer, G.J. Schlosser: Development of Thermal Plutonium Recycling, Nucl. Technology, 77,175, 1987.
- /SAN 94/ R.G. Sanchez: Minimum Critical Mass Analytical Studies, Trans. ANS 70, 201, 1994.
- /SAN 03/ R.G. Sanchez et al: Criticality of a ²³⁷Np Sphere, Proceedings of the International Conference on Nuclear Criticality (ICNC), Tokai-mura, Japan (2003).
- /SCH 64/ L.C. Schmid, R.C. Liikala et al.: Critical Masses and Bucklings of PuO₂-UO₂-H₂O-Systems, HW-83187, 1964.
- /SCH 79/ V. Schneider, F. Herrmann, W.G. Druckenbrodt: The AUPuC-Process, a Coprecipitation Process with Good Product Homogenity to the Full Scale of Plutonium Concentration, Trans. ANS 31,176, 1979.
- /SHI 96/ Y. Shimizu et al.: The Nuclear Criticality Guidebook for MOX Fuel Fabrication Facilities, PNC TN 141096-074, Tokai-Works, November 1996.
- /SMO 94a/ G.R. Smolen, S.R. Bierman, N. Fukumura: Criticality Data and Validation Studies of Arrays of Mixed-Oxide Fuel Pins in Aqueous and Organic Solutions, Nucl. Technology, 107, 285, 1994.
- /SMP 94b/ G.R. Smolen, R.C. Lloyd, T. Matsumoto: Criticality Data and Validation Studies of Mixed-Oxide Fuel Pin Arrays in Pu + U + Gd Nitrate, Nucl. Technology 107, 340, 1994.
- /SUI 67/ J.E. Suich, H.C. Honeck: The HAMMER System, Heterogeneous Analysis by Multigroup Methods of Exponentials and Reactors, DP-1064, January 1967.
- /SMO 94a/ G.R. Smolen et al.: Criticality Data and Validation Studies of Plutonium-Uranium Nitrate Solutions in Cylindrical and Slab Geometry, Nucl. Techn. 107, 304, 1994.

- /SMO 94b/ G.R. Smolen et al.: Criticality Data and Validation Studies of Plutonium-Uranium Nitrate Solutions in Annular Geometry Nucl. Techn. 107, 326, 1994.
- /SPR 18/ Springer: Materialdatenbank, Ammoniumplutonylcarbonat, erreichbar unter http://materials.springer.com/isp/ crystallographic/docs/sd_1922654, Stand vom 23. Januar 2018.
- /STR 64/ W.R. Stratton: Criticality Data and Factors Affecting Criticality of Single, Homogeneous Units, LA-3612, July 1964.
- /TAY 65/ E.E.G. Taylor: Saxton Plutonium Program, WCAP-54/EURAEC-1493, 1965.
- /THO 67/ J.T. Thomas: Criticality of U-233 Aqueous Nitrate Solution in Reflected and Unreflected Arrays, Trans. ANS 10, p. 538, 1967.
- /THO 68/ J.T. Thomas: Critical Experiments with Aqueous Solutions of ²³³UO₂(NO₃)₂ in: Neutron Physics Division Annual Report for Period Ending May 31, 1968, ORNL-4280, 1968.
- /THO 69/ W. Thomas: Critical and Safe Parameters for Plutonium and Plutonium Compounds, MRR 56, April 1969.
- /TSU 78/ H. Tsuruta, I. Kobayashi: et al.: Critical Sizes of Light-Water Moderated
 UO₂ and PuO₂-UO₂ Lattices, JAERI-1254, 1978.
- /ULL 80/ J.J. Ullo, J.R. Hardy, N.M. Steene: Review of Thorium-Uranium-233 Cycle Thermal Reactor Benchmark Studies, WARD-TM-1456, 1980.
- /UOT 72/ V.O. Uotinen, J.H. Lauby, L.C. Schmid, W.P. Stinson: Lattices of Plutonium-Enriched Rods in Light Water - Part I; Experimental Results, Nucl. Technology 15, p. 257-271, 1972.

- /WEB 67/ J.W. Webster: The Nuclear Safety of Aqueous Solutions of U-233 and U-235, Trans. ANS. 10,2, p. 539, 1967 und ORNL-CDC-2,1967.
- /WES 81/ R.M. Westfall: Critical Masses for the Even-Neutron-Numbered Transuranium Actinides, Nucl. Sci. Eng. 79, 237, 1981.

Abbildungsverzeichnis

Abb. 10.A.1	Kritische Kugelmasse von homogenen Plutonium-Wasser-Systemen .	3
Abb. 10.A.2	Kritisches Kugelvolumen von homogenen Plutonium-Wasser-Systemen	4
Abb. 10.A.3	Kritische Zylinderdicke von homogenen Plutonium-Wasser-Systemen	5
Abb. 10.A.4	Kritische Schichtdicke von homogenen Plutonium-Wasser-Systemen .	6
Abb. 10.A.5	Moderationsverhältnis von homogenen Plutonium-Wasser-Systemen .	7
Abb. 10.A.6	Infiniter Multiplikationsfaktor von homogenen Plutonium-Wasser-Systemen	8
Abb. 10.B.1	Kritische Kugelmasse von homogenen Plutoniumdioxid-Systemen, reines ²³⁹ Pu	11
Abb. 10.B.2	Kritisches Kugelvolumen von homogenen Plutoniumdioxid-Systemen, reines ²³⁹ Pu	12
Abb. 10.B.3	Kritische Zylinderdicke von homogenen Plutoniumdioxid-Systemen, reines ²³⁹ Pu	13
Abb. 10.B.4	Kritische Schichtdicke von homogenen Plutoniumdioxid-Systemen, reines ²³⁹ Pu	14
Abb. 10.B.5	Moderationsverhältnis von homogenen Plutoniumdioxid-Systemen	15
Abb. 10.B.11	Kritische Kugelmasse von homogenen, untermoderierten Plutoniumdioxid-Systemen, reines ²³⁹ Pu	16
Abb. 10.B.12	Kritisches Kugelvolumen von homogenen, untermoderierten Plutoniumdioxid-Systemen, reines ²³⁹ Pu	17
Abb. 10.B.13	Kritische Zylinderdicke von homogenen, untermoderierten Plutoniumdioxid-Systemen, reines ²³⁹ Pu	18
Abb. 10.B.14	Kritische Schichtdicke von homogenen, untermoderierten Plutoniumdioxid-Systemen, reines ²³⁹ Pu	19
Abb. 10.B.21	Kritische Kugelmasse von homogenen ²³⁹ PuO ₂ -Tributylphosphat- bzw. Polyäthylen Mischungen	20

Abb. 10.B.22	Kritisches Kugelvolumen von homogenen ²³⁹ PuO ₂ -Tributylphosphat- bzw. Polyäthylen Mischungen	21
Abb. 10.B.25	Moderator-Spaltstoff-Verhältnis als Funktion der Plutoniumkonzentration von homogenen ²³⁹ PuO ₂ -Tributylphosphat- bzw. Polyäthylen Mischungen	22
Abb. 10.B.26	Infiniter Multiplikationsfaktor von homogenen ²³⁹ PuO ₂ -Tributylphosphat- bzw. Polyäthylen Mischungen	23
Abb. 10.B.31	Kritische Kugelmasse von homogenen PuO ₂ -Systemen mit H ₂ O-Rest- moderation bei voller Wasserreflexion	24
Abb. 10.B.32	Kritisches Kugelvolumen von homogenen PuO ₂ -Systemen mit H ₂ O-Rest- moderation bei voller Wasserreflexion	25
Abb. 10.B.33	Kritische Zylinderdicke von homogenen PuO ₂ -Systemen mit H ₂ O-Rest- moderation bei voller Wasserreflexion	26
Abb. 10.B.34	Kritische Schichtdicke von homogenen PuO ₂ -Systemen mit H ₂ O-Rest- moderation bei voller Wasserreflexion	27
Abb. 10.B.41	Kritische Kugelmasse von homogenen Plutoniumdioxid-Wasser Mischungen	28
Abb. 10.B.42	Kritisches Kugelvolumen von homogenen Plutoniumdioxid-Wasser Mischungen	29
Abb. 10.B.43	Kritische Zylinderdicke von homogenen Plutoniumdioxid-Wasser Mischungen	30
Abb. 10.B.44	Kritische Schichtdicke von homogenen Plutoniumdioxid-Wasser Mischungen	31
Abb. 10.B.51	Kritische Kugelmasse von homogenen Plutoniumdioxid-Wasser Mischungen	32
Abb. 10.B.52	Kritisches Kugelvolumen von homogenen Plutoniumdioxid-Wasser Mischungen	33
Abb. 10.B.53	Kritische Zylinderdicke von homogenen Plutoniumdioxid-Wasser Mischungen	34

Abb. 10.B.54	Kritische Schichtdicke von homogenen Plutoniumdioxid-Wasser Mischungen	35
Abb. 10.B.61	Kritische Kugelmasse von homogenen Plutoniumdioxid-Wasser Mischungen	36
Abb. 10.B.62	Kritisches Kugelvolumen von homogenen Plutoniumdioxid-Wasser Mischungen	37
Abb. 10.B.63	Kritische Zylinderdicke von homogenen Plutoniumdioxid-Wasser Mischungen	38
Abb. 10.B.64	Kritische Schichtdicke von homogenen Plutoniumdioxid-Wasser Mischungen	39
Abb. 10.D.1	Kritische Kugelmasse von homogenen, untermoderierten Plutoniumkarbid (PuC) Mischungen	42
Abb. 10.D.2	Kritisches Kugelvolumen von homogenen, untermoderierten Plutoniumkarbid (PuC) Mischungen	43
Abb. 10.E.1	Kritische Kugelmasse von homogenen Plutoniumoxalat-Wasser Mischungen	46
Abb. 10.E.2	Kritisches Kugelvolumen von homogenen Plutoniumoxalat-Wasser Mischungen	47
Abb. 10.E.3	Kritische Zylinderdicke von homogenen Plutoniumoxalat-Wasser Mischungen	48
Abb. 10.E.4	Kritische Schichtdicke von homogenen Plutoniumoxalat-Wasser Mischungen	49
Abb. 10.E.5	Plutoniumkonzentration als Funktion des Moderator-Spaltstoff-Verhältnisses von homogenen Plutoniumoxalat-Wasser Mischungen	50
Abb. 10.E.6	Infiniter Multiplikationsfaktor von homogenen Plutoniumoxalat-Wasser Mischungen	51
Abb. 10.E.11	Kritische Kugelmasse von homogenen ²³⁹ Pu-Oxalat-Wasser Mischungen mit Betonreflektor	52

Abb. 10.E.12	Kritisches Kugelvolumen von homogenen 239 Pu-Oxalat-Wasser Mischungen mit Betonreflektor	53
Abb. 10.E.13	Kritische Zylinderdicke von homogenen 239Pu-Oxalat-Wasser Mischungen mit Betonreflektor	54
Abb. 10.E.14	Kritische Schichtdicke von homogenen 239 Pu-Oxalat-Wasser Mischungen mit Betonreflektor	55
Abb. 10.E.15	Kritische Zylinderdicke von einer homogenen ²³⁹ Pu-Oxalat-Wasser-Mischung in Abhängigkeit von der Dicke des Betonreflektors	56
Abb. 10.F.1	Kritische Kugelmasse von homogenen Plutoniumnitrat-Wasser-Systemen	60
Abb. 10.F.2	Kritisches Kugelvolumen von homogenen Plutoniumnitrat-Wasser-Systemen	61
Abb. 10.F.3	Kritische Zylinderdicke von homogenen Plutoniumnitrat-Wasser-Systemen	62
Abb. 10.F.4	Kritische Schichtdicke von homogenen Plutoniumnitrat-Wasser-Systemen	63
Abb. 10.F.5	Moderationsverhältnis von homogenen Plutoniumnitrat-Wasser-Systemen	64
Abb. 10.F.6	Infiniter Multiplikationsfaktor von homogenen Plutoniumnitrat-Wasser- Systemen	65
Abb. 10.F.11	Kritische Kugelmasse von homogenen wässrigen Plutoniumnitrat-Lösungen	66
Abb. 10.F.12	Kritisches Kugelvolumen von homogenen wässrigen Plutoniumnitrat- Lösungen	67
Abb. 10.F.13	Kritische Zylinderdicke von homogenen wässrigen Plutoniumnitrat-Lösungen	68
Abb. 10.F.14	Kritische Schichtdicke von homogenen wässrigen Plutoniumnitrat-Lösungen	69

Abb. 10.F.16	Infiniter Multiplikationsfaktor von homogenen wässrigen Plutoniumnitrat- Lösungen	70
Abb. 10.F.18	Kritische Zylinderdicke von einer homogenen ²³⁹ Pu-Nitrat-Wasser-Mischung in Abhängigkeit von der Dicke des Betonreflektors	71
Abb. 10.F.21	Kritische Kugelmasse von einer typischen Aufarbeitungs-Plutonium-nitratlösung	72
Abb. 10.F.22	Kritisches Kugelvolumen von einer typischen Aufarbeitungs-Plutonium-nitratlösung	73
Abb. 10.F.23	Kritische Zylinderdicke von einer typischen Aufarbeitungs-Plutonium-nitratlösung	74
Abb. 10.F.24	Kritische Schichtdicke von einer typischen Aufarbeitungs-Plutonium-nitratlösung	75
Abb. 10.F.26	Infiniter Multiplikationsfaktor von einer typischen Aufarbeitungs-Plutonium-nitratlösung	76
Abb. 10.F.30	Multiplikationsfaktor k _{eff} von Plutoniumnitrat-Lösungen in Schichtgeometrie	77
Abb. 10.F.31	Multiplikationsfaktor k _{eff} für Plutoniumnitrat-Lösungen in Schichtgeometrie	78
Abb. 10.F.32.a	Multiplikationsfaktor k _{eff} für Plutoniumnitrat-Scheibenbehälter, Variation der Schichtdicke	79
Abb. 10.F.32.b	Multiplikationsfaktor k _{eff} für Plutoniumnitrat-Scheibenbehälter, Variation des Abstands zwischen Behälter und Betonwand	80
Abb. 10.F.33	Multiplikationsfaktor k _{erf} für Plutoniumnitrat-Lösungen in Zylindergeometrie	81
Abb. 10.F.34	Multiplikationsfaktor k _{eff} für Plutoniumnitrat-Lösungen in Schichtgeometrie	82
Abb. 10.F.35	Multiplikationsfaktor k _{eff} für Plutoniumnitrat-Lösungen in Schichtgeometrie	83

Abb. 10.F.36	Multiplikationsfaktor k _{eff} für Plutoniumnitrat-Flachbehälter, Variation der Schichtdicke	84
Abb. 10.F.37	Multiplikationsfaktor k _{eff} für Plutoniumnitrat-Flachbehälter, Variation des Abstandes zwischen Flachbehälter und Betonwand	85
Abb. 10.F.38	Separation von Plutoniumnitrat-Flachbehältern durch wasserstoffhaltige Absorber	86
Abb. 10.F.39	Separation von Plutoniumnitrat-Flachbehältern durch Beton	87
Abb. 10.F.40.a	Rechenmodell-Aufriss zu Abb. 10.F.40.b	88
Abb. 10.F.40.b	Multiplikationsfaktor k _{eff} für Plutoniumnitrat (PuNH)-Zylinderbehälter-Anordnungen mit dickem Beton-Reflektor, Rechenmodell vgl. Abb. 10.F.40.a	89
Abb. 10.F.41.a	Rechenmodell-Aufriss zu Abb. 10.F.41.b	90
Abb. 10.F.41.b	Multiplikationsfaktor k _{eff} für Anordnungen von Plutoniumnitrat (PuNH)-Zylinderbehältern mit dicken Beton-Reflektoren, Rechenmodell vgl. Abb. 10.F.41.a	91
Abb. 10.F.42	Kritische Schichtdicke von wässrigen Pu(85/BIE 79/5)-Nitratlösungen mit 30 cm Wasser- bzw. Betonreflektor	92
Abb. 10.F.43	Kritische Schichtdicke für wässrige Pu-Nitratlösungen mit beidseitig 6 mm Stahl und 30 cm Normalbeton	93
Abb. 10.F.51	Kritische Kugelmasse von homogenen Plutoniumnitrat-TBP/Kerosin-Systemen	94
Abb. 10.F.52	Kritisches Kugelvolumen von homogenen Plutoniumnitrat-TBP/Kerosin-Systemen	95
Abb. 10.F.56	Infiniter Multiplikationsfaktor von homogenen Plutoniumnitrat-TBP/Kerosin-Systemen	96
Abb. 10.G.1	Kritische Kugelmasse von homogenen APuC-Wasser Mischungen	98
Abb. 10.G.2	Kritisches Kugelvolumen von homogenen APuC-Wasser Mischungen	99
Abb. 10.G.3	Kritische Zylinderdicke von homogenen APuC-Wasser Mischungen	100

Abb. 10.G.4	Kritische Schichtdicke von homogenen APuC-Wasser Mischungen 101
Abb. 10.G.5	Moderationsverhältnis von homogenen APuC-Wasser Mischungen 102
Abb. 10.G.6	Infiniter Multiplikationsfaktor von homogenen APuC-Wasser Mischungen
Abb. 10.G.7	Kleinste kritische Konzentration von homogenen APuC-Wasser Mischungen
Abb. 10.G.8	Maximaler infiniter Multiplikationsfaktor von homogenenAPuC-WasserMischungen105
Abb. 10.K.1	Kritische Kugelmasse von homogenen Plutonylnitrat-Wasser Mischungen
Abb. 10.K.2	Kritisches Kugelvolumen von homogenen Plutonylnitrat-Wasser Mischungen
Abb. 10.K.3	Kritische Zylinderdicke von homogenen Plutonylnitrat-Wasser Mischungen
Abb. 10.K.4	Kritische Schichtdicke von homogenen Plutonylnitrat-Wasser Mischungen
Abb. 11.B.1	Kritische Kugelmasse von homogenen Uran-Plutoniumdioxid-Wasser Mischungen
Abb. 11.B.2	Kritisches Kugelvolumen von homogenen Uran-Plutoniumdioxid-Wasser Mischungen
Abb. 11.B.3	Kritische Zylinderdicke von homogenen Uran-Plutoniumdioxid-Wasser Mischungen
Abb. 11.B.4	Kritische Schichtdicke von homogenen Uran-Plutoniumdioxid-Wasser Mischungen
Abb. 11.B.5	Moderationsverhältnis als Funktion der Oxidkonzentration von homogenen Uran-Plutoniumdioxid-Wasser Mischungen
Abb. 11.B.6	Infiniter Multiplikationsfaktor von homogenen Uran-Plutoniumdioxid-Wasser Mischungen

Abb. 11.B.11	Kritische Kugelmasse von homogenen UO ₂ -PuO ₂ -Systemen mit H ₂ O-Restmoderation bei voller Wasserreflexion
Abb. 11.B.12	Kritisches Kugelvolumen von homogenen UO_2 -Pu O_2 -Systemen mit H_2O -Restmoderation bei voller Wasserreflexion
Abb. 11.B.13	Kritische Zylinderdicke von homogenen UO_2 -Pu O_2 -Systemen mit H_2O -Restmoderation bei voller Wasserreflexion
Abb. 11.B.14	Kritische Schichtdicke von homogenen UO_2 -Pu O_2 -Systemen mit H_2O -Restmoderation bei voller Wasserreflexion
Abb. 11.B.21	Kritische Kugelmasse von homogenen Uran-Plutonium-Mischoxid-Wasser Mischungen
Abb. 11.B.22	Kritisches Kugelvolumen von homogenen Uran-Plutonium-Mischoxid-Wasser Mischungen
Abb. 11.B.23	Kritische Zylinderdicke von homogenen Uran-Plutonium-Mischoxid-Wasser Mischungen
Abb. 11.B.24	Kritische Schichtdicke von homogenen Uran-Plutonium-Mischoxid-Wasser Mischungen
Abb. 11.B.26	Infiniter Multiplikationsfaktor von homogenen Uran-Plutonium-Mischoxid-Wasser Mischungen
Abb. 11.B.31	Kritische Kugelmasse von MOX(15) in Wasser mit Restmoderation 129
Abb. 11.B.32	Kritisches Kugelvolumen von MOX(15) in Wasser mit Restmoderation 130
Abb. 11.B.33	Kritische Zylinderdicke von MOX(15) in Wasser mit Restmoderation 131
Abb. 11.B.34	Kritische Schichtdicke von MOX(15) in Wasser mit Restmoderation 132
Abb. 11.D.1	Kritische Kugelmasse von homogenen, unmoderierten Plutoniumkarbid- Urankarbid (PuC-UC) Mischungen
Abb. 11.D.2	Kritisches Kugelvolumen von homogenen, unmoderierten Plutoniumkarbid-Urankarbid (PuC-UC) Mischungen
Abb. 11.D.6	Infiniter Multiplikationsfaktor von homogenen Plutoniumkarbid-Urankarbid (PuC-UC) Mischungen

Abb. 11.F.1	Kritische Kugelmasse von homogenen
	Natururan-Plutoniumnitrat-H ₂ O Mischungen
Abb. 11.F.2	Kritisches Kugelvolumen von homogenen
	Natururan-Plutoniumnitrat-H ₂ O Mischungen
Abb. 11.F.3	Kritische Zylinderdicke von homogenen
	Natururan-Plutoniumnitrat-H ₂ O Mischungen
Abb. 11.F.4	Kritische Schichtdicke von homogenen
	Natururan-Plutoniumnitrat-H ₂ O Mischungen
Abb. 11.F.6	Infiniter Multiplikationsfaktor von homogenen
	Natururan-Plutoniumnitrat-H ₂ O Mischungen 142
Abb. 11.G.1	Kritische Kugelmasse von homogenen AUPuC-Wasser Mischungen 145
Abb. 11.G.2	Kritisches Kugelvolumen von homogenen AUPuC-Wasser
	Mischungen 146
Abb. 11.G.3	Kritische Zylinderdicke von homogenen AUPuC-Wasser Mischungen . 147
Abb. 11.G.4	Kritische Schichtdicke von homogenen AUPuC-Wasser Mischungen 148
Abb. 11.G.5	Moderationsverhältnis von homogenen AUPuC-Wasser Mischungen 149
Abb. 11.G.6	Infiniter Multiplikationsfaktor von homogenen AUPuC-Wasser
	Mischungen 150
Abb. 11.G.7	Kleinste kritische Konzentration von homogenen AUPuC-Wasser
	Mischungen 151
Abb. 11.G.8	Maximaler infiniter Multiplikationsfaktor von homogenen
	AUPuC-Wasser Mischungen 152
Abb. 15.B.1	Kritische Kugelmasse von homogenen ²³³ U-Dioxid-H ₂ O-Systemen 158
Abb. 15.B.2	Kritisches Kugelvolumen von homogenen ²³³ U-Dioxid-H ₂ O-Systemen 159
Abb. 15.B.3	Kritische Zylinderdicke von homogenen ²³³ U-Dioxid-H ₂ O-Systemen 160
Abb. 15.B.4	Kritische Schichtdicke von homogenen ²³³ U-Dioxid-H ₂ O-Systemen 161
Abb. 15.B.6.a	Infiniter Multiplikationsfaktor von homogenen
	²³³ U-Dioxid-H ₂ O-Systemen mit homogener Borvergiftung
Abb. 15.B.6.b	Infiniter Multiplikationsfaktor von homogenen ²³³ U-Dioxid-H ₂ O Mischungen mit homogener Cadmiumvergiftung
----------------	---
Abb. 15.B.11	Kritische Kugelmasse von homogenen ²³³ U- und ²³⁵ U-Thorium-Dioxid-H ₂ O-Systemen
Abb. 15.B.12	Kritisches Kugelvolumen von homogenen ²³³ U- und ²³⁵ U-Thorium-Dioxid-H ₂ O-Systemen
Abb. 15.B.13	Kritische Zylinderdicke von homogenen ²³³ U- und ²³⁵ U-Thorium-Dioxid-H ₂ O-Systemen
Abb. 15.B.14	Kritische Schichtdicke von homogenen ²³³ U- und ²³⁵ U-Thorium-Dioxid-H ₂ O-Systemen
Abb. 15.B.16.a	Infiniter Multiplikationsfaktor von homogenen ²³³ U- und ²³⁵ U-Thorium-Dioxid-H ₂ O-Systemen
Abb. 15.B.16.b	Infiniter Multiplikationsfaktor von homogenen ²³³ U- ²³² Th-Dioxid-H ₂ O-Systemen mit homogener Borvergiftung
Abb. 15.F.1	Kritische Kugelmasse von homogenen ²³³ U-Nitrat-H ₂ O-Systemen 172
Abb. 15.F.2	Kritisches Kugelvolumen von homogenen ²³³ U-Nitrat-H ₂ O-Systemen 173
Abb. 15.F.3	Kritische Zylinderdicke von homogenen ²³³ U-Nitrat-H ₂ O-Systemen 174
Abb. 15.F.4	Kritische Schichtdicke von homogenen ²³³ U-Nitrat-H ₂ O-Systemen 175
Abb. 15.F.6	Infiniter Multiplikationsfaktor von homogenen ²³³ U-Nitrat-H ₂ O-Systemen
Abb. 15.F.11	Kritische Kugelmasse von homogenen ²³³ U- ²³² Th-Nitrat-H ₂ O-Systemen
Abb. 15.F.12	Kritisches Kugelvolumen von homogenen ²³³ U- ²³² Th-Nitrat-H ₂ O-Systemen
Abb. 15.F.13	Kritische Zylinderdicke von homogenen ²³³ U- ²³² Th-Nitrat-H ₂ O-Systemen
Abb. 15.F.14	Kritische Schichtdicke von homogenen ²³³ U- ²³² Th-Nitrat-H ₂ O-Systemen

Abb. 15.F.15	Moderator/Schwermetallverhältnis von homogenen	
	²³³ U- ²³² Th-Nitrat-H ₂ O-Systemen	1
Abb. 15.F.16	Infiniter Multiplikationsfaktor von homogenen	
	²³³ U- ²³² Th-Nitrat-H ₂ O-Systemen	2

Tabellenverzeichnis

Tab. 10.A.A	Kleinste kritische und sichere Kritikalitätsparameter für homogene	
	Plutonium-Wasser-Systeme, Pu-Konzentration \leq 400 g Pu/l	2
Tab. 10.A.B	Kleinste kritische und sichere Kritikalitätsparameter für reines	
	Plutonium-Metall	2
Tab. 10.B.A	Kleinste kritische und sichere Kritikalitätsparameter für	
	PuO ₂ -Wasser-Systeme	10
Tab. 10.B.B	Kritische und sichere Kritikalitätsparameter für unmoderiertes PuO_{2}	10
Tab. 10.F.A	Kleinste kritische und sichere Kritikalitätsparameter für homogene	
	Plutoniumnitratlösungen	59
Tab. 12.B.A	Vergleich von experimentellen Daten mit HAMMER-Berechnungen	
	an Natururandioxid-Plutoniumdioxid-Stab-Wasser-Systemen	
	/UOT 72/, /LII 72/	154
Tab. 15.A.A	Grundlegende Kritikalitätsdaten für homogene 233 U-Wasser-Systeme	
	bei voller Wasserreflektion	155
Tab. 20.A.A	Kritische Kugelmasse für schnelle und thermische Systeme für	
	höhere Aktinoide [kg]	184

Gesellschaft für Anlagenund Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH

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

Forschungszentrum **85748 Garching b. München** Telefon +49 89 32004-0 Telefax +49 89 32004-300

Kurfürstendamm 200 **10719 Berlin** Telefon +49 30 88589-0 Telefax +49 30 88589-111

Theodor-Heuss-Straße 4 **38122 Braunschweig** Telefon +49 531 8012-0 Telefax +49 531 8012-200

www.grs.de