

**Bereitstellung und
Weiterentwicklung von
Methoden, Daten und
Rechenmethoden
zu nuklearen
Sicherheitsanalysen**

Bereitstellung und Weiterentwicklung von Methoden, Daten und Rechenmethoden zu nuklearen Sicherheitsanalysen

Oliver Bartos
Matthias Behler
Volker Hannstein
Peter Kaufholz
Robert Kilger
Juliane Krüger
Florian Rowold
Fabian Sommer

Juli 2019

Anmerkung:

Das diesem Bericht zu Grunde liegende FE-Vorhaben 4716E03350 wurde mit Mitteln des Bundesministeriums für Umwelt, Naturschutz und nukleare Sicherheit 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.

Deskriptoren

aktuelle Rechenverfahren, Handbuch zur Kritikalität, Handbuch zur Störfallanalyse, Konversion, Kritikalitätssicherheit, Partitionierung, Störfallanalysen, Urangewinnung, Validierung

Kurzfassung

Der vorliegende Bericht beschreibt die im Rahmen des Vorhabens 4719E03320 durchgeführten Arbeiten an dem GRS „Handbuch zu Störfallanalysen für Anlagen der nuklearen Ver- und Entsorgung“, sowie im Detail die fortgeführten Arbeiten zur Revision und Aktualisierung des GRS „Handbuch zur Kritikalität“, die sich hier auf Spaltstoffsysteme neuer Reaktorkonzepte aus Uran und Plutonium fokussierten. Beschrieben wird auch die Überprüfung und Qualifikation eingesetzter Rechenverfahren durch Nachrechnung von Benchmark-Experimenten, die aktive Teilnahme an einem OECD/NEA Benchmark sowie einer Zusammenfassung der Ergebnisse der Verfolgung des Standes von Wissenschaft und Technik auf dem Gebiet der Rechenverfahren zur Kritikalitätssicherheitsanalyse. Die in früheren Vorhaben begonnene Literaturrecherche zu innovativen Brennstoffkonzepten wurde fortgeführt. Der Fokus lag zum einen auf modernen Methoden der Urangewinnung, zum anderen auf Partitionierung und Konversionsverfahren.

Abstract

This report describes briefly the activities carried out under the project 4719E03320 on the GRS "Handbook on Accident Analysis for Nuclear Front and Back End Facilities", and in detail the continuing work on the revision and updating of the GRS "Handbook on Criticality", which focused here on fissile systems with Uranium and Plutonium. Also described are the review and qualification of computational methods by computation of benchmark experiments, the active participation at an OECD/NEA benchmark as well as a summary of the results of tracking the state of science and technology in the field of computational methods for criticality safety analysis. The ongoing literature study on innovative fuel concepts started in previous projects, is continued. The focus was put on the one side on modern methods for Uranium mining, on the other side on partitioning and methods of conversion of nuclear material.

Inhaltsverzeichnis

	Kurzfassung.....	I
	Abstract.....	III
1	Zusammenfassung	1
2	Störfallanalysen	3
2.1	Selektion Störfallszenario	3
2.2	Beschreibung der Schleifmaschine	4
2.2.1	Aufstellungsort.....	5
2.2.2	Maschinenart und Aufbau	5
2.2.3	Aufbau und Ausführung der Einkapselung.....	8
2.2.4	Zusätzliche Einbauten	8
2.2.5	Typische Kennwerte	8
2.2.6	Sonstiges.....	9
2.3	Schadensszenario	9
2.3.1	Schadensauslöser	9
2.3.2	Ansprechen der Sicherheitseinrichtungen.....	10
2.3.3	Der Schleifetrieb im Schadensszenario	10
2.3.4	Zusammenfassender Überblick über den Ablauf Schadensszenario bezogen auf den schematischen Aufbau der Schleifmaschine.....	11
2.4	Analyseszenarien	12
2.4.1	Ausgangspunkt.....	12
2.4.2	Deterministische Störfall- und Ereignisbaumanalyse (DSA und ETA)	13
2.4.3	Fehlerbaum- (FTA) und probabilistische Sicherheitsanalyse (PSA)	17
2.4.4	Zuverlässigkeitskenngrößen	24
2.4.5	Rechnerische Betrachtung.....	25
2.4.6	Schlussfolgerung	26

2.5	Zusammenfassung	27
3	Nukleare Sicherheit: Handbuch zur Kritikalität, Ausgabe 2019.....	29
3.1	Einleitung.....	29
3.2	Revision und Aktualisierung von kritischen Parameterkurven	30
3.2.1	Uran(VI)-oxid	32
3.2.2	Ammoniumuranylcarbonat (AUC)	33
3.2.3	Ammoniumplutonylcarbonat (APuC).....	33
3.2.4	Ammoniumuranylplutonylcarbonat (AUPuC).....	33
3.2.5	Ammoniumdiuranat (ADU).....	34
3.2.6	Uranyl Nitrat (UNH)	34
3.2.7	Neurechnungen exemplarisch für Uranyl Nitrat-Systeme	34
3.3	Vergleich der Neurechnungen mit früheren Daten	38
3.4	Validierung der neugerechneten Parameterkurven mit Hilfe von kritischen Experimenten.....	41
3.4.1	Zielsetzung	41
3.4.2	Beschreibung der Experimente.....	41
3.4.3	Kritikalitätsrechnungen.....	47
3.4.4	Ergebnisse der Analysen	50
3.5	Vergleich der gerechneten Parameterkurven mit Daten anderer Handbücher und Veröffentlichungen.....	58
4	Implementierung und Validierung moderner Rechenverfahren	69
4.1	Nachrechnungen kritischer Experimente zur Validierung der SCALE- Sequenz CSAS5.....	69
4.2	Vergleich von Abschirmrechnungen mit Monaco/MAVRIC und MCNP	73
4.3	FISPACT-II	80
4.4	Temperaturabhängigkeit des Neutronenmultiplikationsfaktors unter 0 °C	83
5	Urangewinnung.....	91

5.1	Einleitung.....	91
5.2	Uranlagerstättentypen	91
5.2.1	Diskordanzgebundene Lagerstätten	94
5.2.2	Sandsteingebundene Lagerstätten	95
5.2.3	Quarzgeröll-Konglomerat Lagerstätten	96
5.2.4	Ganglagerstätten	96
5.2.5	Brekzien-Lagerstätten.....	96
5.2.6	Intrusive Lagerstätten	97
5.2.7	Phosphatlagerstätten.....	97
5.2.8	Kollaps-Schlotbrekzien Lagerstätten.....	97
5.2.9	Vulkanische Lagerstätten.....	98
5.2.10	Oberflächen-Lagerstätten	98
5.2.11	Metasomatische Lagerstätten.....	98
5.2.12	Metamorphe Lagerstätten.....	99
5.2.13	Kohle/Lignit.....	99
5.2.14	Schwarzschieferlagerstätten.....	99
5.2.15	Meerwasser	100
5.3	Einstufung der Uranvorkommen	100
5.4	Uranförderung	103
5.5	Fördermethoden und Uranerzverarbeitung	105
5.6	Herstellung von Uran(VI)-fluorid und Anreicherung.....	110
6	Innovative Krenbrennstoffkonzepte	113
6.1	Kernbrennstoffe	113
6.1.1	Einleitung Kernbrennstoffe.....	113
6.1.2	Brennstoffumschließung	114
6.1.3	Thorium basierte Kernbrennstoffe.....	115
6.1.4	Wiederaufarbeitung Thorium-basierter Kernbrennstoffe.....	116
6.2	Partitionierung	120
6.2.1	Einleitung.....	120

6.2.2	Chemische Aspekte der Partitionierung bestrahlter Kernbrennstoffe	122
6.2.3	Flüssig-Flüssig-Extraktion.....	123
6.2.4	Hydrometallurgische Partitionierungsprozesse	124
6.2.5	GANEX (homogene Rezyklierung)	126
6.2.6	Heterogene Rezyklierung	127
6.2.7	Einstufige Prozesse zur Abtrennung trivalenter Aktinoiden	135
6.2.8	Innovative-SANEX	136
6.2.9	Selektive Abtrennung von Americium	137
6.2.10	EXAm	138
6.2.11	Entwicklungen auf dem Feld der Am(III)-Abtrennung aus PUREX-Raffinat	139
6.2.12	Entwicklungsbedarf im Bereich Partitionierung	140
6.3	Konversionsverfahren.....	142
6.3.1	ADU-Verfahren	143
6.3.2	AUC/AUPuC-Verfahren	143
6.3.3	Trockenkonversion (Dry route) und Integral dry route	143
6.3.4	Sol-Gel Prozesse.....	144
6.3.5	PUREX Pu Konversion	144
6.3.6	Direkte Denitrierung.....	145
6.3.7	UO ₃ Konversion	147
6.4	Mischbrennstoffe	147
6.4.1	MOX-Brennstoffe	147
6.4.2	a-MIMAS	148
6.4.3	Short Binderless Route (SBR)	148
6.4.4	Brennstoffdoping zur Verbesserung der in-Core Eigenschaften.....	149
6.4.5	Infiltration	150
6.4.6	Forschungsreaktor-Brennstoffe.....	151
	Literaturverzeichnis.....	153
	Abbildungsverzeichnis.....	171

Tabellenverzeichnis.....	175
---------------------------------	------------

1 Zusammenfassung

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

In diesem Zusammenhang erstellt und pflegt die GRS seit geraumer Zeit das „Handbuch zur Kritikalität“, dessen Band II, bestehend aus zwei Teilen, im Rahmen dieses und früherer Vorhaben einer kompletten Revision unterzogen wurde. Weiterhin werden die ersten drei Teile des seit längerem im Entwurf vorliegenden „Handbuch zu Störfallanalysen für Anlagen der nuklearen Ver- und Entsorgung“ erstmalig als überarbeitete Fassung in drei GRS Berichten bereitgestellt.

Die Implementierung, Validierung und Bewertung aktueller numerischer Rechenverfahren erfolgte zum einen durch Überprüfung und Qualifikation neuer Versionen mehrerer eingesetzter Rechenverfahren durch Nachrechnung von Benchmark-Experimenten und dem Überprüfen der Anwendbarkeit neuer Rechenverfahren, zum anderen durch die aktive Teilnahme an dem Rechenbenchmark „The effect of temperature on the neutron multiplication factor for PWR fuel assemblies“ der OECD-NEA.

Der in früheren Vorhaben begonnene Literaturbericht zu innovativen Kernbrennstoffkonzepten wird fortgeschrieben. Neben einer Zusammenfassung der aktuellen Situation und jüngeren Entwicklung auf dem Gebiet der Urangewinnung wird ein Fokus in der vorliegenden Arbeit auf Partitionierung und Konversionsverfahren von Kernbrennstoffen gerichtet. In diesem Zusammenhang werden auch Thorium-basierte Kernbrennstoffe und Mischbrennstoffe behandelt.

2 Störfallanalysen

Zum Abschluss des Vorhabens 4719E03320 wurden die ersten drei Teile des „Handbuch zu Störfallanalysen für Anlagen der nuklearen Ver- und Entsorgung“ („Störfallhandbuch“) fertig gestellt. Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wurden die einzelnen Kapitel des Störfallhandbuchs einer fachlichen Qualitätssicherung durch unabhängige, d. h. an der ursprünglichen Erstellung der Kapitel nicht beteiligte Experten unterzogen. Dies führte, je nach Kapitel, zur Überarbeitung, Ergänzung, Umstrukturierung oder Kürzung der Entwurfstexte. Auch die redaktionelle Überarbeitung der drei Teile A, B und C wurde abgeschlossen. Aufgrund des Umfangs der einzelnen Überarbeitungsschritte wird hier auf diese nicht im Detail eingegangen, sondern auf die finalen Dokumente verwiesen:

- Teil A - Grundlagen der Störfallanalyse /SOM 19a/
- Teil B - Physikalisch-chemische Grundlagen der Störfallanalyse /SOM 19b/
- Teil C - Auswertung der Betriebserfahrung von Vorkommnissen /SOM 19c/

Im Zuge dieses Vorhabens wurden die Arbeiten zu dem bisher erstellten „Handbuch zur Störfallanalyse für Anlagen der nuklearen Ver- und Entsorgung“ weitergeführt und um ein zusätzliches Hauptkapitel „Teil D - Exemplarische Anwendung der Störfallanalyse auf Einrichtungen der nuklearen Ver- und Entsorgung“ erweitert. Dabei werden die verschiedenen Aspekte der Störfallanalyse exemplarisch auf einen Teilprozess der Brennelementfertigung angewendet.

2.1 Selektion Störfallszenario

Basierend auf einer Prozessrecherche wird ein zu analysierender generischer Teilprozess aus der Brennelementfertigung ausgewählt. Insgesamt besteht die Brennelementfertigung, basierend auf dem Ausgangsprodukt Uran-Hexafluorid, aus den folgenden Hauptprozessen:

- UF₆-Trockenkonversion
- Pulvervorbereitung
- Tablettenherstellung
- Brennstabfertigung inklusive vorgelagertem Strukturteileeingang
- Brennelementmontage

Unter Berücksichtigung von bisherigen zu diesen Themen durchgeführten Arbeiten der UF₆ Trockenkonversion sowie der Pulvervorbereitung, fiel der Fokus auf den Hauptprozess „Tablettenherstellung“ und hier die Konfektionierung der Tabletten auf ihr Sollmaß mittels eines Materialabtragenden Schleifprozesses. Bei der Systemtechnik der Tablettenherstellung wird unterstellt, dass für den Schleifprozess der Pellets eine zwar an Kerntechnikbelange adaptierte, aber dennoch konventionelle Maschinenteknik zum Einsatz kommt. Daher fiel die Wahl auf den Hauptprozess „Tablettenherstellung“ mit dem Fokus auf „Tablettenschleifprozess“.

Insbesondere dem Schleifprozess vorgelagerte Arbeitsschritte wie die Sinterpaletten-Auskippung, d. h. der reine Transport von Sinterofen zum Schleifprozess, genau wie der dem Schleifprozess folgende Arbeitsschritt der Pellet-Trocknung, sowie der wiederum darauffolgende Arbeitsschritt der Pellet-Inspektion besitzen ein deutlich geringeres Fehlerpotential als die direkte Bearbeitung der Pellets.

Bei den letzten beiden Hauptprozessen der Produktion geht es primär um das Handling des den Brennstoff umschließenden Hüllrohrs, bzw. im nächsten Schritt um die Assemblierung der Hüllrohre zu Brennelementen und nicht um das Handling von „ungeschützten“ Brennstoffmaterial an sich. Basierend auf diesen Umständen werden diese beiden Hauptprozesse für die hier gesetzte Zielsetzung als weniger signifikant eingestuft.

Da hier die Demonstration einer Methodik im Fokus liegt, wird bewusst kein für kerntechnische Anlagen mit Moderationskontrolle möglichst realitätsnaher, sondern vielmehr ein als mit prinzipiell bekannten (und typischerweise vermiedenen) Schwachstellen versehener Komponentenaufbau postuliert konstruiert.

2.2 Beschreibung der Schleifmaschine

Die in diesem Fallbeispiel postulierte Schleifmaschine wird sich im Wesentlichen an einen Aufbau orientiert, der bei typischer kostenoptimierter industrieller Massenware vorkommt. Hervorzuheben ist dabei, dass in realen Anlagen ein solches Modell wohl nicht realisiert werden würde, bedingt mit den dort herrschenden Auswahlkriterien für Komponenten für den Einsatz in der nuklearen Versorgung. Ein konkreter Bezug zu jeder den Autoren bekannten Anlage besteht nicht, bzw. wäre rein zufällig.

Die postulierte Schleifmaschine, bestehend aus den Komponenten Pelletzuförderung, Schleifeinheit, Antriebseinheit wiederum bestehend aus Motor, Getriebe inkl. Ölversorgung, Schleifschmier- und Kühlmittelversorgung, Pufferstation sowie Pelletabförderung ist im Kapitel 2.2.2 im Detail charakterisiert.

2.2.1 Aufstellungsort

Im Gesamtkontext der Brennelementfertigung befindet sich der Aufstellungsort der Schleifmaschine prozessbedingt zwischen Tablettensortierer und Tablettentrocknung.

2.2.2 Maschinenart und Aufbau

Abb. 2.1 zeigt den schematischen Aufbau der Schleifmaschine mit Kennzeichnung des Materialfluß.

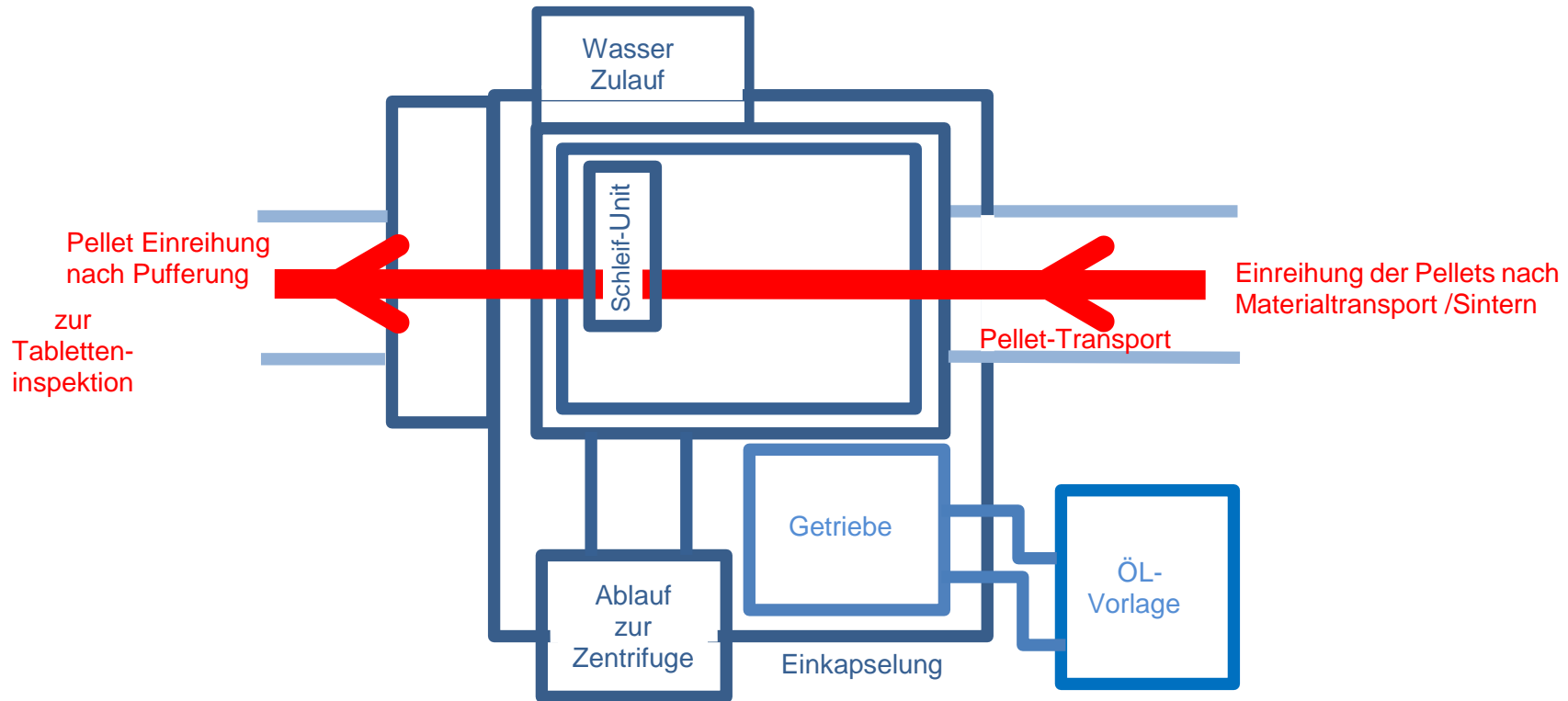


Abb. 2.1 Schematischer Aufbau der für das Störfallszenario postulierten Schleifmaschine

2.2.2.1 Das Schleifmodul

Die Schleifmaschine besteht typischerweise aus einem allgemein industriell verfügbaren Maschinensatz mit der Anforderung einer effektiven Handhabung der automatisch zugeführten Rohlinge, möglichst unter Vermeidung von manuellen Arbeitsschritten.

Die Anforderung eines einspannfreien Schleifens der radialen Stirnflächen der Pellets wird nach dem Prinzip des spitzenlosen Schleifens realisiert. Hierbei wird, basierend auf einer Kombination einer Schleifscheibe, einer Regulierringe, einem Auflage- Niederhaltesystem sowie verschiedenen Werkstückführungen die Bearbeitung der Pellets nach dem Nassschleifprinzip auf Wasserbasis durchgeführt. Das benötigte Wasser wird der Schleifscheibe so zugeführt, dass es den beim Schleifprozess anfallender Schleifabrieb aufnimmt. Zusätzlich sorgt der Wasserfilm für eine Kühlung der beschliffenen Oberflächen.

Die Wasserversorgung erfolgt über einen geschlossenen, mengenbegrenzten und pumpegetriebenen Kreislauf. Bestandteil des Kreislaufes ist die Wasserzuführung und die Schleifscheibenbenetzung, der Auffangtrichter für das Wasser-Schleifabrieb-Gemisch, eine Sieb- bzw. Rückhaltevorrichtung für größere Gegenstände, eine Rohr-Pumpe-Rohr-Kombination mittels der das Wasser zur Zentrifuge gepumpt wird. Von dort aus wird das vom Schleifabrieb getrennte Wasser wieder dem volumenkontrollierten Wasser-Vorlagebehälter der Schleifmaschine zugeführt.

2.2.2.2 Das Antriebsmodul

Der Antrieb der Schleifmaschine erfolgt über einen Elektromotor mit nachfolgender Getriebeeinheit sowie einem externen Schmierölversorgungsbehälter, der außerhalb der Einkapselung aufgestellt ist. Die Umwälzung / Kühlung des Schmieröls erfolgt mittels einer elektrisch betriebenen Pumpe über die Zulaufleitung.

2.2.2.3 Gekapselter Bereich

Die Schleifmaschine inkl. der zugehörigen Antriebseinheit, d. h. der Elektromotor und die Getriebeeinheit sind durch eine Einkapselung umschlossen. Der Getriebeölversorgungsbehälter, der durch Rohrleitungsanschlüsse mit dem Getriebe verbunden ist, ist

außerhalb der Einkapselung aufgestellt. Der Vorratsbehälter übernimmt auch die Kühlung des Getriebeöls.

2.2.3 Aufbau und Ausführung der Einkapselung

Der Aufbau der Einkapselung der Schleifmaschine ist als nicht permanente und partial offene Einkapselungen ausgeführt, d. h. zum einen können Türen bzw. Klappen geöffnet werden, zum anderen sind ständige Öffnungen zum Transfer der Pellets notwendig.

Durch das in der Gesamtanlage wie auch im Bereich der Schleifmaschine realisierte Prinzip der gestaffelten Unterdruckbereiche wird dadurch gewährleistet, dass an den temporären bzw. ständigen Öffnungen ein in die Einkapselung hinein gerichtete Luftströmung vorhanden ist. Dies soll der Vermeidung von sich ausbreitender Kontamination des Schleifabriebs aus dem Schleifbereich heraus dienen.

Die zur Erzeugung des Unterdrucks anfallende Abluft wird über Abluftkanäle, Brandschutzklappen und Filterboxen der Gebäudeabluft zugeführt.

Die verwendeten Materialien zur Einkapselung selbst bestehen vorwiegend aus Aluminium-Profilrahmen mit Edelstahlblech- sowie aus schwer entflammaren, selbstverlöschenden und transparenten Polycarbonat-Scheiben bzw. Wandteilen.

2.2.4 Zusätzliche Einbauten

Zusätzlich ist die Einkapselung der Schleifmaschine mit einer CO₂-Flutungseinrichtung zur Brandbekämpfung ausgestattet.

2.2.5 Typische Kennwerte

Als typischer Kennwert der Schleifmaschine ist dabei im Nennbetrieb ein Schleifabrieb von ca. 50 g/min bei einem korrespondierenden Wasserdurchsatz von ca. 5 l/min zu nennen. Im Rohrleitungs-Pumpsystem bis zur Zentrifuge kann sich ein Schleifabrieb-/ Uraninventar von bis zu 12 g ansammeln. (Bedingt durch das geodätische Gefälle von der Schleifmaschine zur Zentrifuge ist jedoch keine Rückströmung in diesen Bereich zu erwarten und somit nur für mögliche Kritikalitätsbetrachtungen von Relevanz.)

Das Ölinventar, d. h. die permanent im Getriebe vorhandene Ölmenge beträgt ca. 5 Liter. Der Behälter der Ölvorlage (welcher u.a. auch zur Kühlung dient) verfügt über ein Reservoir von ca. 15 Litern, die über eine Zu- und Ablaufleitung kontinuierlich „durch“ die Getriebeeinheit umgewälzt werden. Die fördernde Getriebeöl-Umwälzpumpe sitzt dabei in der Zuführungsleitung zum Getriebe.

2.2.6 Sonstiges

Neben der Filterung der Fortluft mit Schwebstofffiltern in den Räumen selbst existiert eine zweite zentrale Filterung direkt im Einströmbereich des Fortluftkamins. Die Filterbelegung dort wird über Differenzdruckwächter überwacht.

2.3 Schadensszenario

2.3.1 Schadensauslöser

Durch einen auftretenden Schaden am Hauptlager des Getriebeensembles kommt es dort zu einem starken Anstieg der Lagertemperatur, sowie durch die weitergehende Lagerschädigung zu starken und weiter zunehmenden Schwingungsamplituden. Die Hitzeentwicklung des am inneren Teil des Getriebegehäuses fixierten Lagers bewirkt ebenfalls eine vergleichbare Temperatur an der örtlich korrespondierenden Außenposition am Getriebegehäuse.

In der Folge des eskalierenden Lagerschadens kommt es durch die parallel dazu auftretenden massiven Schwingungsamplituden zu einem Abriss der externen Getriebeölleitung an einer Stelle, die bereits innerhalb der Einkapselung lag.

Durch die scharfkantige Leitungsbruchfläche und die weiterfördernde Ölpumpe (es erfolgt nur eine Überwachung innerhalb des Ölvorlagebehälters auf den Zustand „Getriebeölniveau niedrig“) ergibt sich eine diffuse Öl-Sprühung, die sich an dem äußeren Hotspot der Oberfläche des Getriebegehäuses (d. h. im Bereich des äußeren Fixierungspunkt des defekten Lagers) entzündet.

Das aus der Bruchfläche unter mittleren Druck austretende Getriebeöl verteilt sich diffus, auch in dem Schleifscheibenbereich.

Durch die Entzündung und die sich durch die breitflächige Verteilung des Öls ebenfalls breitflächig aufbauende Flammfront setzt eine starke Wärme- und Rauchentwicklung innerhalb der Einkapselung der Schleifmaschine ein.

2.3.2 Ansprechen der Sicherheitseinrichtungen

Die Maschine läuft ab dem Zeitpunkt der Öl-Selbstentzündung noch ca. 90 Sekunden, bevor die Sicherheitseinrichtungen (u. a. Schleifwasserfüllstand im Vorratsbehälter fallend sowie die Getriebeöl-Füllstandsüberwachung) die Maschine abschalten.

Zeitlich nur geringfügig voreilend schließt sich die lokale Brandschutzklappe des Abluftkanals, bevor die CO₂-Löschanlage der Schleifmaschinen-Einkapselung auslöst und die Flammfront final erstickt.

2.3.3 Der Schleifabrieb im Schadensszenario

Die Systemabschaltung erfolgt bei ca. 90 Sekunden vor der Abschaltung (t minus 90 s). Durch die Wärmezufuhr verdampft ein Großteil des Schleifschmierwassers, so dass von den noch in dieser Zeit von den insgesamt 75 Gramm anfallenden Schleifabrieb 25 Gramm abgesaugt und ca. 50 Gramm Schleifabrieb in Form von Staub, zunächst in die lokale Atmosphäre, freigesetzt werden.

Dabei wird im Verlauf des Brandes die Unterdruckabsaugleistung zunächst schwächer. Dies wird im gegebenen Szenario auf lokales Versagen der Polycarbonat-Fenster (maximale Gebrauchstemperatur Polycarbonat liegt kurzzeitig bei 135 °C, Schmelztemperatur bei ca. 220 °C) und somit auf eine „breitere Ansaugung“ bzw. zu einer geringeren lokalen Absaugleistung im Bereich der Schleifscheibe zurückgeführt.

Durch die thermischen Verwirbelungen sowie dem zunehmenden thermischen Auftrieb bei nachlassender Integrität der Polycarbonat-Einkapselung erfolgt eine weitere Unterstützung der Verteilung des Schleifabriebs im Raum. Durch das automatische Schließen der Brandschutzklappen wird die Unterdruckerzeugung gestoppt. In der Folge kommt auch die Absaugleistung völlig zum Erliegen.

Mittels der Einspeisung von CO₂ innerhalb der Einhausung durch die Löschdüse wird ebenfalls Schleifabrieb aufgewirbelt und durch den in die Einhausung eingebrachten Volumenstrom / Überdruck aus der Einhausung heraus in die Raumatmosphäre transportiert. Mit der CO₂-mäßigen Erstickung des Ölbrandes wird nach ca. 20 Sekunden auch die weitere CO₂ Gaszufuhr gestoppt.

Nachgängig und nach einer ersten Augenscheinnahme / Testmessungen durch Betriebspersonal und Feuerwehr wird mit einem kontrollierten Raumluf austausch über Filterstrecken begonnen.

2.3.4 Zusammenfassender Überblick über den Ablauf Schadensszenario bezogen auf den schematischen Aufbau der Schleifmaschine

Die folgende Abb. 2.2 zeigt den Ablauf des Schadensszenarios als Fließdiagramm, bezogen auf den Maschinensatz der Abb. 2.1 des Kapitel 2.2.2. Dort ist besonders der Ölvorlage-Behälter mit der Zu- und Ablaufleitung, die durch die eigentliche Einkapselung der Schleifmaschine hindurchgeführt werden zu sehen.

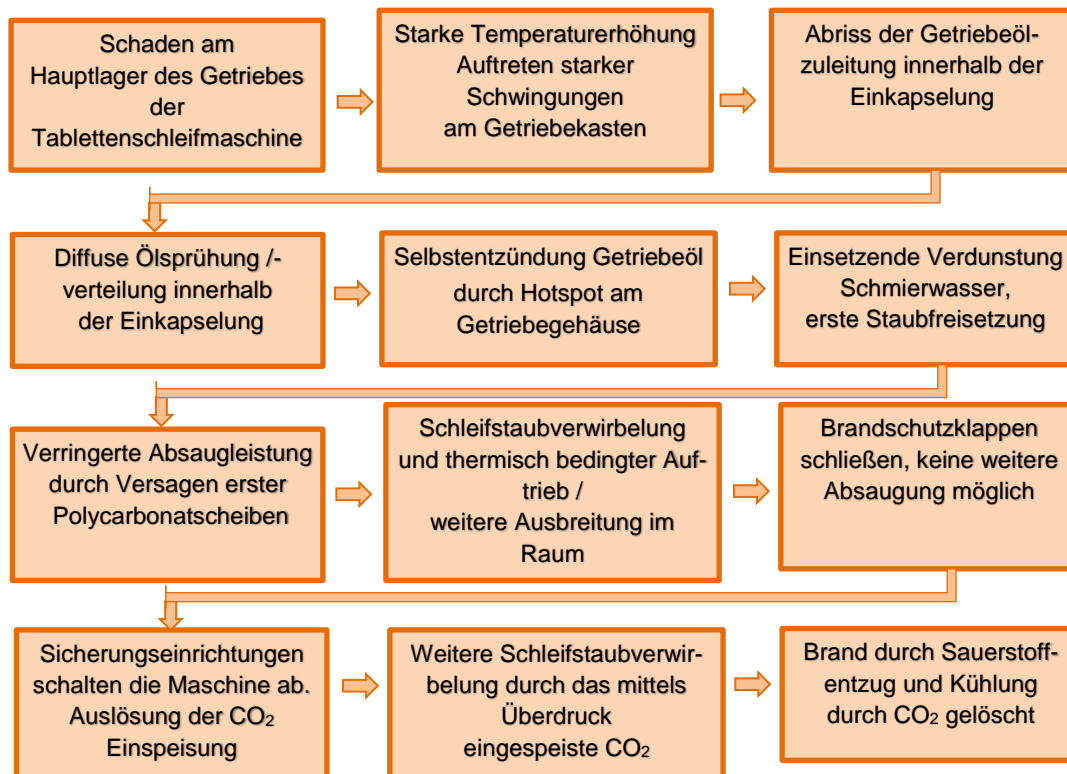


Abb. 2.2 Schematischer Ablauf des postulierten Schadensszenarios

2.4 Analyseszenarien

2.4.1 Ausgangspunkt

Generelle Zielsetzung ist, die u. a. in den Teilen A bis C beschriebenen Vorgehensweisen und Strategien anzuwenden und ein Gesamtmodell zu erstellen, in dem die Ereignisse sowie darauffolgende Systemantworten als untereinander dargestellte Verknüpfungen ausgeführt sind.

Dazu werden hier die Methoden der

- Deterministischen Störfall- und Ereignisbaumanalyse (Event Tree Analysis, ETA)
- Fehlerbaum- und probabilistische Sicherheitsanalyse (Fault Tree Analysis, FTA und PSA)

betrachtet /GEU 09/.

Zur Identifikation der auslösenden Ereignisse ist eine Unterteilung des Systems und Ereignisse hinsichtlich relevanter Einzelvorkommnisse erforderlich, die zu dem unerwünschten Finalereignis im betrachteten Prozess führen können.

Die Teilprozesse, bezogen auf die Schleifmaschine sind in drei Bereiche zu unterteilen:

- Zuführung der Tabletten
- Bearbeitung der Tabletten
- Abtransport der Tabletten

Für die Freisetzung von radioaktivem Material sind folgende Ursachen möglich:

- Verlust des Tabletten-Aggregatzustands „gesintert“ mit Zerfall von Tabletten
- Tablettenbruch mit Freisetzung von Material verschiedenster Größe an der Bruchfläche
- Freisetzung von Tabletten-Schleifabrieb

Generell gilt, dass der Zustand „integre Tablette“ dabei nicht als eine Freisetzung im Sinne eines schädlichen Zustandes / einer Kontamination klassiert wird.

2.4.2 Deterministische Störfall- und Ereignisbaumanalyse (DSA und ETA)

Bei der deterministischen Störfallanalyse geht man, wie bei der Ereignisbaumanalyse an sich nach der induktiven Methode vor, d. h. beginnend mit einem Start- / Basisszenario entwickelte man sich zu den weiteren Auswirkungen voran. Als Vorarbeit sind die Ereignisse bzw. das Basisereignis an sich zu nennen sowie in der Folge die sequentiellen Einzelelemente in einer Master-Logik aufzulisten. Bei der deterministischen Störfallanalyse wird, wie im gewählten Beispiel angenommen, ein Einzelfehler unterstellt. Im hier gewählten Beispiel handelt es sich um den mechanischen Integritätsverlust des Hauptlagers des Antriebsgetriebe der Schleifmaschine mit folgendem Verlauf:

- transienter Temperaturgang des Lagers sowie an dessen Fixierungskonstruktion
- hohe Schwingungsamplituden des Getriebes und Amplitudenübertragung an das Hilfssystem Ölversorgung
- Resonanzanfächung der Ölzuleitung bis hin zum Bruch
- weiter fördernde Ölpumpe
- diffus spritzende Ölaustrittsbruchfläche und Benetzung der umliegenden Oberflächen
- Selbstentzündung des auf den Hotspot des Getriebekasten spritzenden Öls
- allgemeiner Temperaturanstieg und einsetzende Verdampfung des Schmiermittels
- Integrität der Polycarbonat-Scheiben verringert sich
- Schließen der Brandschutzklappen
- Abschaltung der Maschine erfolgt
- die CO₂-Löschanlage aktiviert sich
- Brand wird durch Sauerstoffentzug und Kühlung gelöscht

Abfolge der Ereignisse

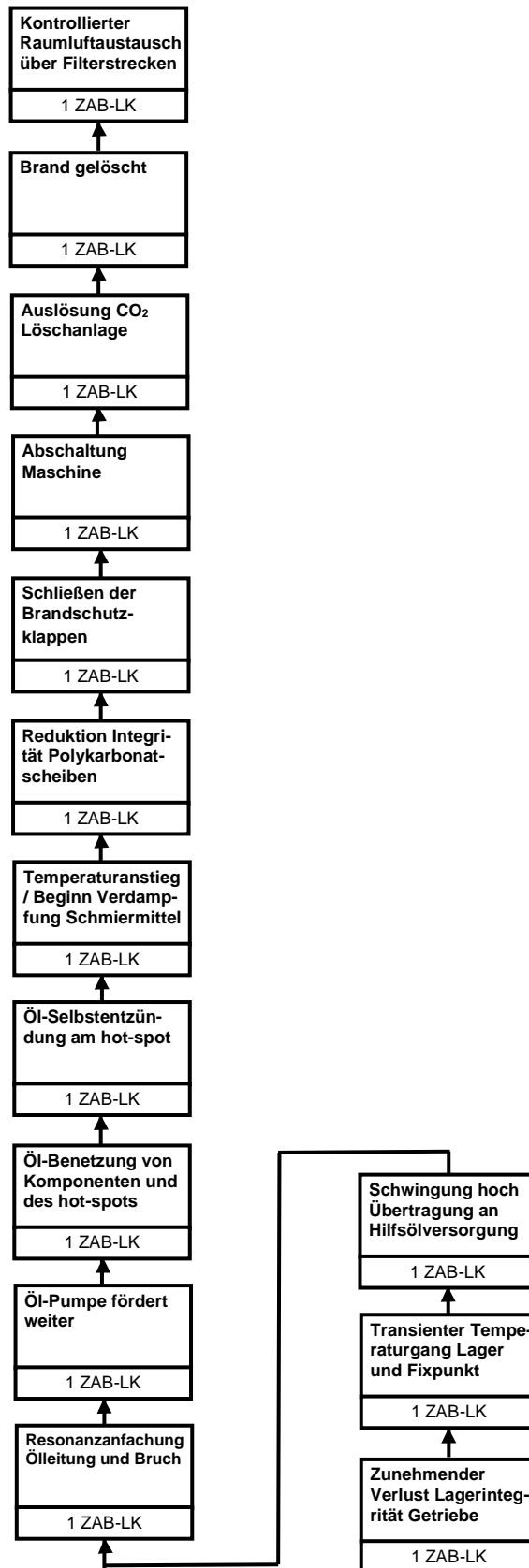


Abb. 2.3 Abfolge der Einzelereignisse

Bei der Vorwärtsentwicklung werden typischerweise die Elemente der binären Logik verwendet, d. h. als weitere Abfrage wird geprüft, was auf den aktuellen Schritt passiert. Insbesondere können dies Fragen nach einer weiteren Eskalation oder nach dem Eingriff von Sicherheitssystemen sein, die eine deeskalierende Wirkung bedingen.

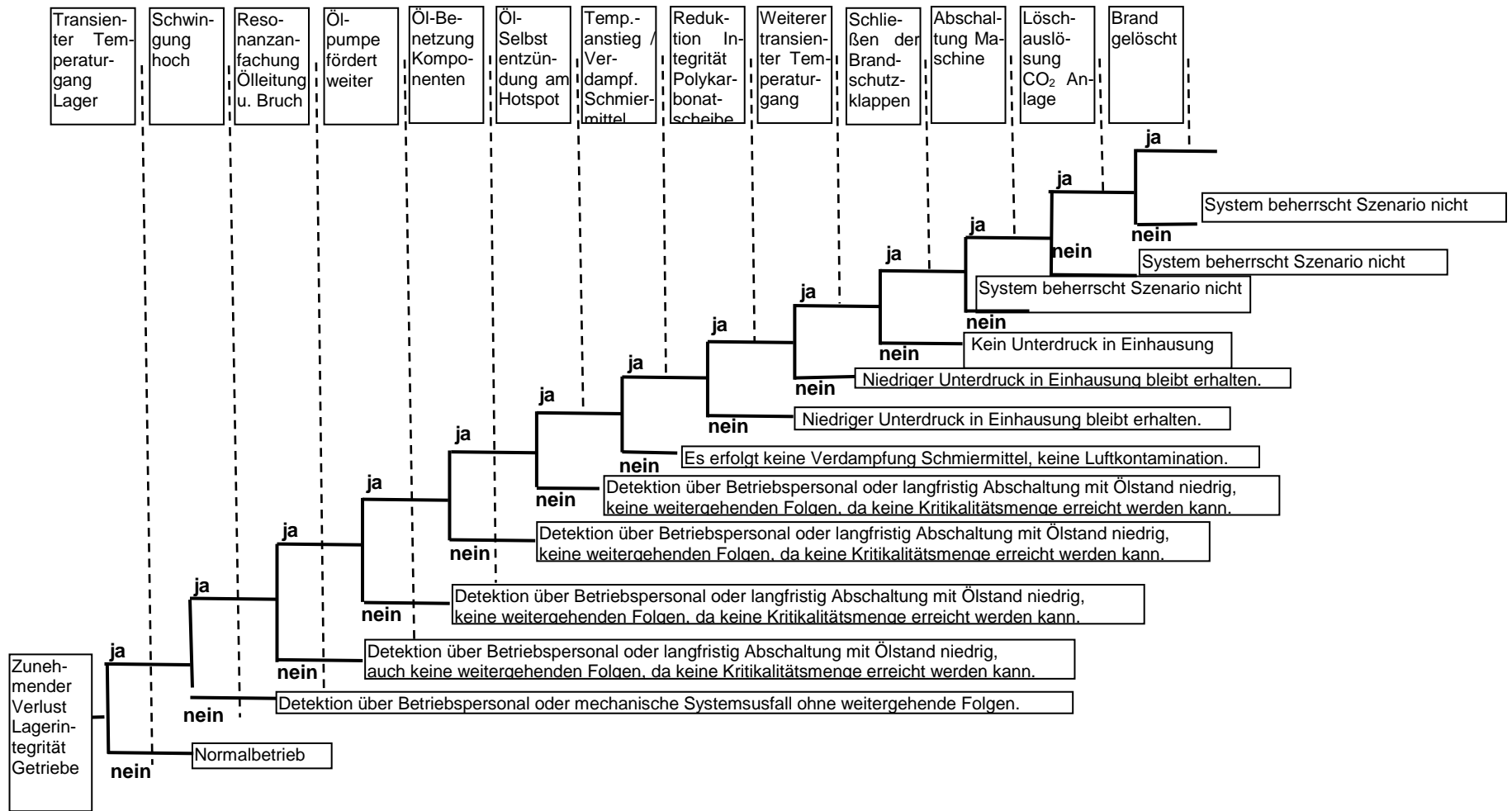


Abb. 2.4 Darstellung des postulierten Ereignisbaums

Ein Versagen des Systems bei den letzten drei Schritte, beginnend mit dem Entscheider „Abschalten der Maschine“, „Löschauslösung CO₂-Anlage“ und „Brand gelöscht“ (d. h. ausreichende Systemperformance der Löschanlage) wären als ernstzunehmende Systemschwächen einzustufen.

2.4.3 Fehlerbaum- (FTA) und probabilistische Sicherheitsanalyse (PSA)

Im Gegensatz zu dem Ereignisbaum stellt die Fehlerbaumanalyse (die als Teil einer PSA zu sehen ist /LIE 92/) eine deduktive Methode dar, d. h. von einem Schlusszenario ausgehend, entwickelt man sich hin zu der Ursachenseite.

Somit ist hier von dem unerwünschten Ereignis „Freisetzung radioaktiver Stoffe“ im Bereich der Schleifmaschine schrittweise rückwärts zu gehen.

Auch sei hier nochmals darauf hingewiesen, dass ein „normales“ Pellet im Zustand mechanischer Unversehrtheit, d. h. ohne Bruch- sowie Abriebstäube nicht als Freisetzung bewertet wird.

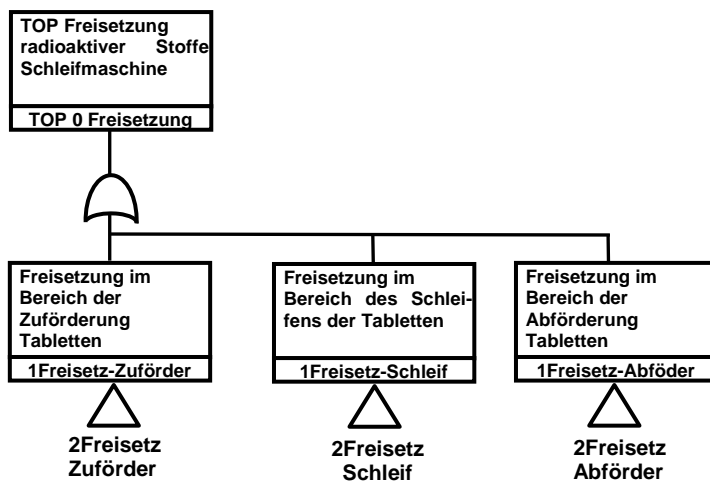


Abb. 2.5 Grobübersicht Ereignisse zur Freisetzung radioaktiver Stoffe in der Sektion Schleifmaschine

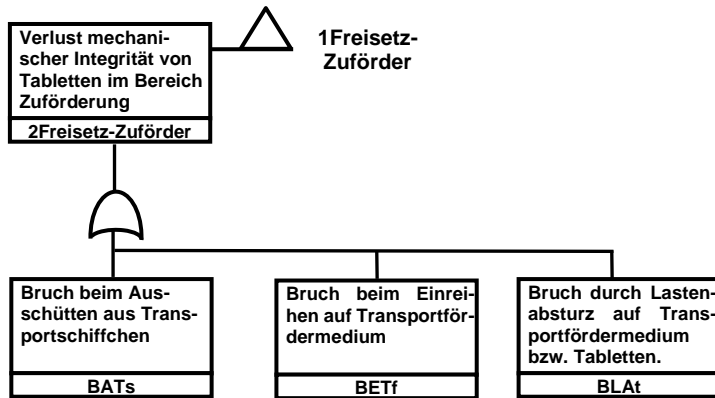


Abb. 2.6 Ereignisse im Bereich der Pellet-Zuförderung des Schleifprozesses

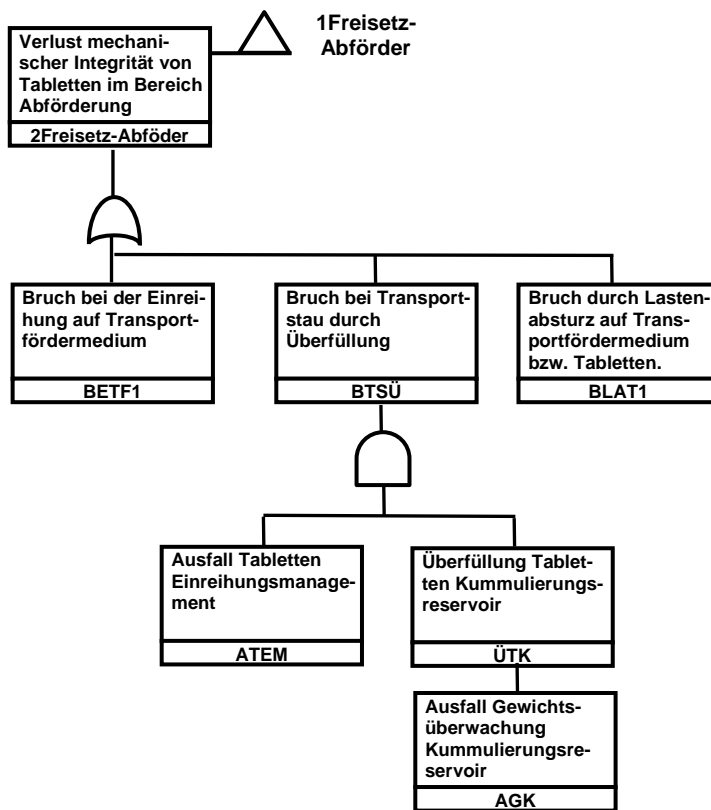


Abb. 2.7 Verlust mechanischer Integrität von Pellets im Bereich der Abförderung

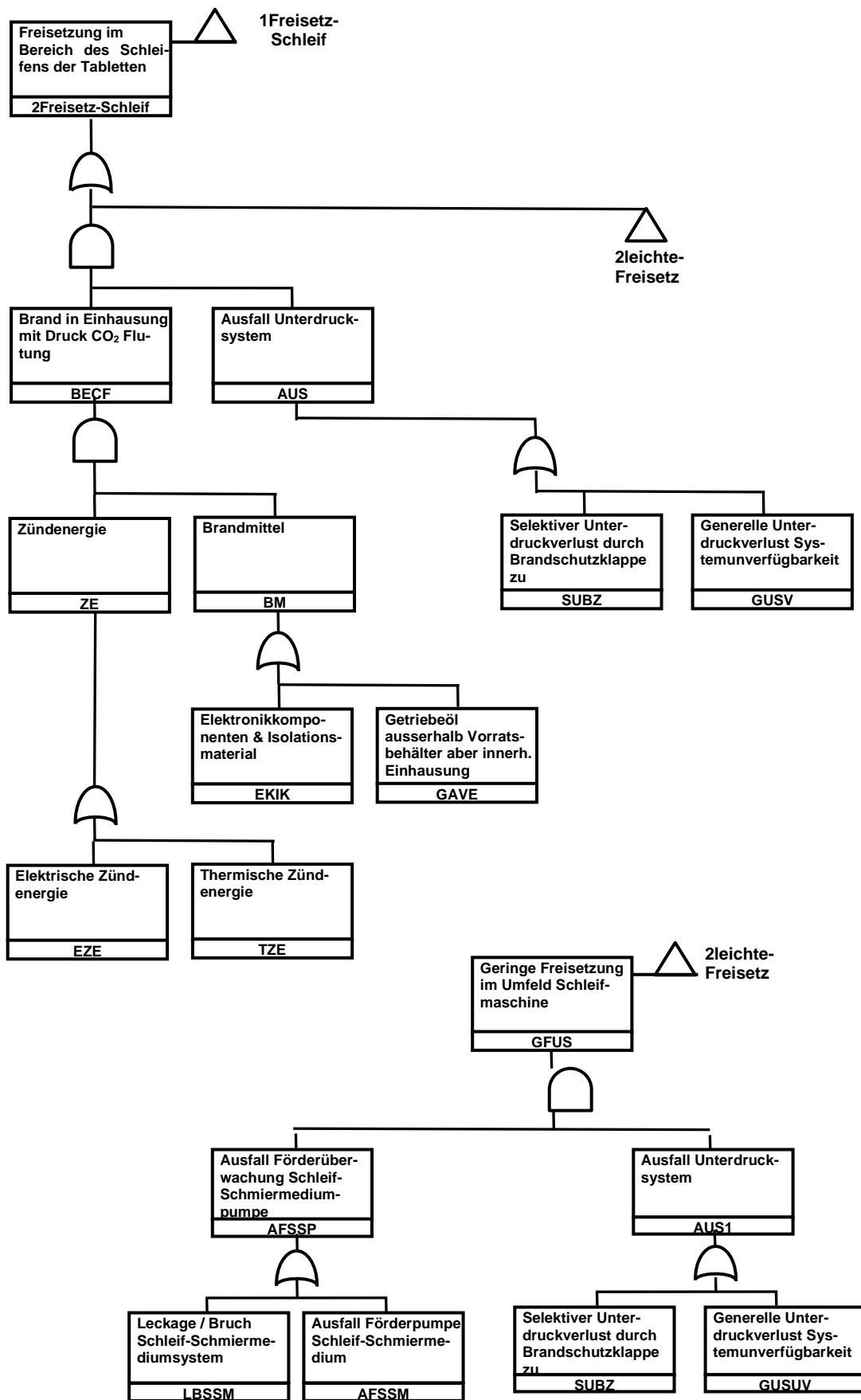


Abb. 2.8 Freisetzungen im Bereich des Pellet-Schleifens

Es sei noch darauf hingewiesen, dass eine als mögliche, aber als minderschwer zu sehende Freisetzung der Bruch von (einzelnen) Tabletten, mit dabei im Bereich der Bruchflächen sich herauslösenden Brennstoff-Kleinpartikeln, zu sehen ist.

Zu den einzelnen Prozessschritten soll nun folgendes konkretisiert werden:

Zweig „Verlust mechanischer Integrität von Tabletten im Bereich Zuförderung“

Als zugehörige Basisereignisse wurden die drei Ereignisse:

- Bruch beim Ausschütten aus Transportschiffchen
- Bruch beim Einreihen auf Transportfördermedium
- Bruch / Zerschmettern durch Lastenabsturz auf Transportfördermedium bzw. Tabletten

postuliert.

Das **Ausschütten der Tabletten aus den Transportschiffchen** erfolgt mit einer geringen kinetischen Energie, so dass den bei der Schleifstation ankommenden Pellets normaler Konsistenz die notwendigen Energien für einen gewaltsamen Tablettenbruch fehlt. Somit kann dieser Punkt in seiner Wahrscheinlichkeit auf „nicht relevant“ klassiert werden.

Das **Einreihen der Pellets auf das Transportfördermedium** erfolgt mit einem Förderband auf einer ansonsten passiven Vereinzelungsstrecke. Die Traktionsleistung des Förderbandes ist dabei so gewählt, dass bei einer ersten Verklemmung die Traktionsleistung für einen Gewaltbruch eines Pellets eine zu geringe Energie besitzt. Der für die Traktion zuständige Motor, genauso wie die ihn das versorgende Netzteil ist dabei kurzschlussfest ausgeführt, so dass auch eine länger anhaltende Blockade keinerlei Überhitzung oder mögliche Fehlfunktion auslösen kann.

Ein **Bruch oder ein Zerschmettern durch Lastenabsturz auf Transportfördermedium bzw. direkt auf Tabletten** wurde postuliert. In den räumlichen zuordenbaren Entfernungen sind jedoch keinerlei Lastthebeanlagen angebracht. Ein Absturz von Lampen oder Deckenelementen wird in diesem Betrachtungsszenario als „nicht relevant“ bzw.

durch andere Betrachtungsszenarien (wie z. B. Erdbeben) abgedeckt angesehen (wie z. B. Flugzeugabsturz, äußere Einwirkung, etc. /LIE 92/).

Zweig „Verlust mechanischer Integrität von Tabletten im Bereich Abförderung“

Als zugehörige Basisereignisse wurden die drei Ereignisse postuliert:

- Bruch bei Transportstau durch Überfüllung
- Bruch beim Einreihen auf Transportfördermedium
- Bruch / Zerschmettern durch Lastenabsturz auf Transportfördermedium bzw. Tabletten.

Bruch von Pellets bei Überfüllung des Kumulierungsreservoirs.

Die Tabletten sollen jeweils nach ihrer Bearbeitung, in einer sequentiellen positionierten Anordnung definierter Losgrößen per Förderband weitertransportiert werden. Bis zum Erreichen dieser vorgegebenen Losgröße werden die geschliffenen Pellets am Ausgang des Schleifprozesses temporär in einem Behältnis „gesammelt“. Dieses Behältnis ist zur Mengenerkennung mit einer auf korrekte Funktion überwachten Gewichtsmesseinheit ausgestattet. Bedingt durch die nahezu nur aus passiven oder messtechnischen Komponenten bestehende Anordnung, fehlt es an dieser Komponente an entsprechenden energiereichen Elementen, die einen Pelletbruch oder eine „Pulverisierung“ bewirken könnten.

Das **Einreihen der Pellets auf das Transportfördermedium** erfolgt mit einem Förderband auf einer ansonsten passiven Vereinzelungsstrecke. Die Traktionsleistung des Förderbandes ist dabei so gewählt, dass bei einer ersten Verklemmung die Traktionsleistung für einen Gewaltbruch eines Pellets eine zu geringe Leistung besitzt. Der für die Traktion zuständige Motor, ebenso wie das ihm versorgende Netzteil, ist dabei kurzschlussfest ausgeführt, so dass auch eine länger anhaltende Blockade keinerlei Überhitzung oder mögliche Fehlfunktion auslösen kann.

Ein **Bruch oder ein Zerschmettern durch Lastenabsturz auf Transportfördermedium bzw. Tabletten** wurde postuliert. In den räumlichen zuordenbaren Entfernungen sind jedoch keinerlei Lasthebeanlagen angebracht. Ein Absturz von Lampen oder

Deckenelementen wird hier als „nicht relevant“ bzw. durch andere Betrachtungsszenarien (wie z. B. Flugzeugabsturz, äußere Einwirkung, etc. /LIE 92/) abgedeckt angesehen.

Zweig „Freisetzung im Bereich des Schleifens der Tabletten“

Als beteiligte Szenarien wirken die (hypothetischen) und in engem zeitlichem Zusammenhang stehenden Ereignisse:

- Brand in Einhausung (mit CO₂-Einblasung)
- Ausfall Unterdrucksystem
- Ausfall Förderüberwachung Schleif-Schmiermedium

Das entscheidende Prinzip der gestaffelten Unterdruckbereiche wird im Wesentlichen durch die Einhausung der Schleifmaschine und der darin befindlichen Absaugung realisiert. Dadurch wird an den temporären bzw. ständigen Öffnungen ein in die Einkapselung hinein gerichtete Luft-Strömung generiert, welche der Vermeidung von sich ausbreitender Kontamination sicherstellt. Diese Eigenschaft ist besonders, bei wie auch immer bedingten trockenen Schleifetrieb, ein wichtiger Baustein zur Vermeidung von sich ausbreitender Kontamination.

Die CO₂ Löschanlage hat im Anforderungsfall die Aufgabe, durch entsprechendes Einblasen von CO₂, einem Brand durch Sauerstoffentzug zu ersticken. Hinsichtlich einer ausreichenden Effizienz muss das Fluten, besonders der Einkapselung mit CO₂ zügig erfolgen. Das Prinzip des gerichteten Unterdrucks muss, im Umkehrschluss beim Anforderungsfall CO₂ Einspeisung aufgegeben werden, damit die Feuer erstickende Wirkung des CO₂ nicht durch ein Absaugen zunichte gemacht wird. Durch die Einspeisung von CO₂ in die Einkapselung erfolgt jedoch dadurch eine Umkehr der Druckverhältnisse, d. h. es erfolgt ein Gaststrom von dem Inneren der Einkapselung nach außen. Somit ist, bei vorhandenen trockenen Schleifstäuben außerhalb der Einkapselung mit einer luftgetragenen Kontamination zu rechnen.

Das Ereignis „Brand in Einhausung“ (mit zeitnaher CO₂-Flutung) bedarf als Grundvoraussetzung gemäß dem Verbrennungsdreieck die Komponenten Sauerstoff, brennbarer Stoff, Wärme bzw. Zündenergie. Da beim Betrieb der Schleifanlage im gesamten Raum normale atmosphärische Bedingungen herrschen, sind entsprechend ca. 20 % Raumluftsauerstoff vorhanden, also für einen Verbrennungsvorgang ausreichende

Menge Sauerstoff. Somit kommen den beiden weiteren Größen Zündenergie und Brandmittel entsprechend erhöhte Bedeutung zu. Generell sind als Zündenergie im Ensemble der Schleifmaschine nur elektrische sowie thermische Zündenergie denkbar. Unter elektrischer Zündenergie soll hier ein zeitlich sehr begrenzter Energieeintrag, wie z. B. in Form von Zündfunken, verstanden werden. Bei solchen transient gehaltenen Zündpulsen bedürfte es jedoch zu einem mehr zu transients Zündung neigenden Brandmittel. Bei den hier vorliegenden Betriebsmitteln ist ein durch elektrische Zündfunken beginnender Brand nur schwer vorstellbar, so dass im Folgenden auf eine thermische Zündung, d. h. Selbstentzündung bedingt durch hohe Kontakttemperatur, fokussiert wird.

Als einzige mit ausreichend Energie für eine Temperaturerhöhung geeignete Komponente ist hier die Antriebseinheit der Schleifmaschine, respektive der Antrieb der Schleifscheibe, identifiziert. Der Antrieb der Schleifscheibe erfolgt im Wesentlichen durch eine Elektromotor-Getriebe-Kombination. Die Verbindung von Elektromotor, Getriebe und Schleifscheibe erfolgt über starre, kraftschlüssige Kupplungen. Das eingesetzte Getriebe hat als Aufgabe eine Drehzahl- respektive eine Drehmomentwandlung durchzuführen. Das Getriebe ist umlaufmäßig ölgeschmiert. Durch seine spezifischen Eigenschaften ist Schmieröl als entsprechendes Brandmittel in der Betrachtung zu klassieren. Die Ölversorgung sowie der Rückfluss erfolgen über einen separaten Ölvorratsbehälter, der auch die Funktion eines Ölkühlers übernimmt. Die Ölumlagerung erfolgt über eine Pumpe im Ablaufbereich des Vorratsbehälters, der Öl-Zulauf zum Vorratsbehälter wird durch den geodätischen Höhenunterschied bewirkt. Ebenfalls werden die beiden ölgeschmierten Hauptlager der Schleifscheibe aus dem Getriebeölsystem mitversorgt.

Als mögliches Szenario wird in Verbindung mit dem Antriebsstrang eine durch den Verlust der mechanischen Integrität bedingter Wärmeeintrag durch Reibung im Allgemeinen, bzw. durch einen Lagerschaden im speziellen Szenario gesehen. Neben dem latent vorhandenen Luftsauerstoff muss es zu einer Ölfreisetzung, sowie zu einem thermischen Hotspot als Voraussetzung für eine Entzündung kommen. Diese Ausführungen zu einzelnen Basisereignissen vorausgeschickt für die Betrachtung des Szenarios „Brand in Einhausung“.

Als zu beachtendes Unterscheidungsmerkmal hinsichtlich der Einbringung von Brandlast ist die Versorgung des Getriebes sowie der Hauptspindellager der Schleifscheibe mit Schmieröl im Gegensatz zum wasserbasierten Schleifschmiermittel zu sehen.

Ohne Zuführung von Schleifschmiermittel erfolgt das Schleifen der Pellets trocken mit entsprechender Schleifstaubbildung. Unter ansonsten normalen Betriebsumständen verursacht eine transiente Unterbrechung der Schmiermittelzuführung, bedingt durch das Unterdruckkonzept, keine relevante Kontamination der Raumluft (d. h. der Luft außerhalb der Maschineneinkapselung) an sich.

Beim Basisereignis „Genereller Unterdruckverlust, System Unterdruck Unverfügbarkeit“ ist von einem zeitnahen automatisierten / manuell ausgelösten Betriebsstop auszugehen. Beim Basisereignis „Selektiver Unterdruckverlust durch Brandschutzklappe“ ist nach der Ausführung bzw. des Vorhandenseins eines Monitoring-Systems zu unterscheiden. Ein unbemerkter Ausfall, d. h. ein nicht erwünschtes Schließen der Brandschutzklappe kann in der Konsequenz, durch das fehlende Unterdruckkonzept, zu einer wenn auch tendenziell begrenzten Kontamination der Raumluft führen. Als *worst case* Szenario wird hier von einer unerkannten, fehlerhaften Schließung der Brandschutzklappe ausgegangen.

Eine Verletzung der möglichen Überschreitung von Flüssigkeitsmengen im Hinblick auf Kritikalität, d. h. hier die Einhaltung der mengenmäßigen Sicherheitsparametern, wird basierend auf der integral nur begrenzt vorhandenen Flüssigkeitsmenge nicht verfolgt.

2.4.4 Zuverlässigkeitskenngrößen

Zur weiteren Bearbeitung ist eine Datenerhebung der Basiswahrscheinlichkeiten für die einzelnen Schadens- / Fehlerszenarien notwendig. Eine fundierte Rechnung der Wahrscheinlichkeit setzt jedoch das Vorhandensein von realen und belastbaren Wahrscheinlichkeitsgrößen voraus.

Als mögliche Datenquellen für Wahrscheinlichkeiten stehen hier nur die Analyse von meldepflichtigen, anlagenspezifischen Ereignissen zur Ableitung von Zuverlässigkeitskenngrößen zur Verfügung. Basierend auf dem hier „konstruierten Maschinensatz“ mit seinen erheblichen Abweichungen zu existierenden bzw. im Einsatz befindlichen Lösungen des betrachteten Szenarios, konnten keine realen und ausreichend belastbaren Werte ermittelt werden. Ebenso gibt es keine, zumindest öffentlich zugänglichen Datensätze zu den Zuverlässigkeitskenngrößen der Schleifmaschine bzw. deren Einzelkomponenten. Somit wurden parallel zu Internetrecherchen auch grobe Schätzwerte angesetzt.

Tab. 2.1 Angesetzte Werte der Komponenten bzw. Teilsystemverfügbarkeiten

Komponente bzw. Teilsysteme	Verfügbarkeit
Bruch beim Ausschütten aus Transportschiffchen	$1,000 \times 10^0$
Bruch beim Einreihen auf Transportmedium	$1,000 \times 10^0$
Bruch durch Lastenabsturz auf Transportfördermedium bzw. auf Tabletten	$1,000 \times 10^0$
Elektrische Zündenergie	$1,000 \times 10^0$
Thermische Zündenergie	$9,968 \times 10^{-1}$
Elektronikkomponente & Isolationsmaterial	$9,997 \times 10^{-1}$
Getriebeöl außerhalb Vorratsbehälter aber innerhalb Einhausung	$9,990 \times 10^{-1}$
Selektiver Unterdruckverlust durch Brandschutzklappe	$9,981 \times 10^{-1}$
Genereller Unterdruckverlust / Systemunverfügbarkeit	$9,942 \times 10^{-1}$
Leckage / Bruch Schleif- / Schmiermittelsystem	$9,987 \times 10^{-1}$
Ausfall Förderpumpe Schleif- / Schmiermittelsystem	$9,968 \times 10^{-1}$
Selektiver Unterdruckverlust durch Brandschutzklappe	$9,981 \times 10^{-1}$
Genereller Unterdruckverlust / Systemunverfügbarkeit	$9,942 \times 10^{-1}$
Ausfall Tabletten-Einreihungsmanagement	$9,998 \times 10^{-1}$
Ausfall Gewichtsüberwachung Kummulierungsreservoir	$9,962 \times 10^{-1}$

Als Zeitbasis wurde für die Komponenten ein Betrieb von zwölf Stunden am Tag, bei einer Fünftageweche und 52 Wochen pro Jahr angesetzt. Somit ergeben sich 3120 Stunden pro Jahr. Bei einer Nichtverfügbarkeitsdauer pro Jahr von weniger als ca. sechs Minuten wurde die Verfügbarkeit auf 1 gesetzt.

2.4.5 Rechnerische Betrachtung

Basierend auf den in Tab. 2.1 genannten Werte wurden für die einzelnen in den Abbildungen dargestellten Verknüpfungen sowie für das Gesamtsystem eine rechnerische Abschätzung der Fehlereintrittswahrscheinlichkeit gemäß den dargestellten Gatter-Verknüpfungen durchgeführt.

Für den Zweig in Abb. 2.6 „Ereignisse im Bereich der Pellet-Zuförderung des Schleifprozesses“ ergibt sich, bedingt durch die erwartete Fehlerfreiheit bei den Verarbeitungsschritten hinsichtlich potentieller Freisetzung durch Bruch d. h. „Bruch beim Ausschütten

aus Transportschiffchen“ (BATs), „Bruch beim Einreihen auf Transportfördermedium“ (BETf) und „Bruch durch Lastenabsturz auf Transportfördermedium“ (BLAt) eine uneingeschränkte Verfügbarkeit (basierend auf der oben genannten Verfügbarkeitswerten) bzw. keine Freisetzungswahrscheinlichkeit.

Für den Zweig in Abb. 2.7 oben, mit den Basisereignissen „Bruch bei der Einreihung auf Transportmedium“ (BETF1), „Ausfall Tabletten Einreihungsmanagement“ (ATEM), „Ausfall Gewichtsüberwachung Kummulierungsreservoir“ (AGK) und „Bruch durch Lastenabsturz auf Transportfördermedium bzw. Tabletten“ (BLAT1) ergibt sich für den „Verlust mechanischer Integrität von Tabletten im Bereich der Abförderung“ (2Freisetz-Abförder) eine Nichtverfügbarkeit bzw. Fehlerwahrscheinlichkeit von $7,027 \times 10^{-6}$.

Für den Zweig in Abb. 2.8 unten, mit den Basisereignissen „Leckage / Bruch Schmiermediumsystem“ (LBSSM), „Ausfall Förderpumpe Schleif-Schmiermedium“ (AFSSM), „Selektiver Unterdruck durch Brandschutzklappe zu“ (SUBZ) und „Genereller Unterdruckverlust Systemunverfügbarkeit“ (GUSUV) ergibt sich eine Nichtverfügbarkeit bzw. Fehlerwahrscheinlichkeit von $3,444 \times 10^{-5}$.

Für den Zweig in Abb. 2.8, oben mit den Basisereignissen „Elektrische Zündenergie“ (EZE), „Thermische Zündenergie“ (TZE), „Elektronikkomponenten & Isolationsmaterial“ (EKIK), „Getriebeöl außerhalb Vorratsbehälter aber innerhalb Einhausung“ (GAVE), „Selektiver Unterdruckverlust durch Brandschutzklappe zu“ (SUBZ) und „Genereller Unterdruckverlust Systemunverfügbarkeit“ (GUSV) ergibt sich eine Nichtverfügbarkeit bzw. Fehlerwahrscheinlichkeit von $3,447 \times 10^{-5}$.

Für den Zweig in Abb. 2.5, mit den Eingangseignissen „Freisetzung im Bereich der Zuförderung“ (1Freisetz-Zuförder), „Freisetzung im Bereich des Schleifens der Tabletten“ (1Freisetz-Schleif) und „Freisetzung im Bereich der Abförderung Tabletten“ (1Freisetz-Abförder) ergibt sich somit für den Gesamtprozess ein Eintreten einer Freisetzung mit einer Wahrscheinlichkeit von $4,150 \times 10^{-5}$.

2.4.6 Schlussfolgerung

Ungeachtet von vorhandenen bzw. nicht vorhandenen Ausfallwahrscheinlichkeiten zeigt das entsprechend gewählte generische Szenario, dass bedingt durch den Einsatz eines mit Öl geschmierten Getriebes alleine durch die eingebrachte potentielle Brandlast hier eine sicherheitstechnische Schwachstelle vorhanden ist. Dies betrifft ebenfalls die

postulierte Menge an Schmieröl und den Einsatz eines Vorlagebehälters, der zudem noch über Leitungen mit dem eigentlichen Getriebe verbunden ist. Jede dieser Komponenten erhöht die Ausfallgefährdung dieses hypothetischen Prozessschrittes essentiell.

Abhilfe wären potentiell in Form einer getriebelosen Maschine oder zumindest einer direkten fettgeschmierten und gekapselten Drehmomentwandlung zu sehen. Als weitere Konsequenz könnte der Einsatz einer Sauerstoffreduzieranlage, wie sie heutzutage bereits oft in IT und Serverräumen, Archiven aber auch Lagerhallen eingesetzt werden, zu sehen sein. Durch eine Reduktion des Sauerstoffanteils reduzierte sich die Entzündungsgefahr von brennbaren Materialien erheblich und trüge so zu einer höheren Sicherheit bei.

2.5 Zusammenfassung

Aus dem Bereich des Betriebes von Anlagen der nuklearen Ver- und Entsorgung wurde exemplarisch für den Bereich der Brennelementtablettenkonfektionierung ein hypothetisches, postuliertes Störfallszenario aus dem Bereich der Brennstofftabletten und hier bei der mechanischen Pellet-Konfektionierung (Schleifstation) aufgestellt, beschrieben und eine rechnerische Abschätzung der Wahrscheinlichkeit durchgeführt. Da hier die Demonstration einer Methodik im Fokus liegt, wurde bewusst kein für kerntechnische Anlagen mit Moderationskontrolle möglichst realitätsnaher, sondern vielmehr ein mit prinzipiell bekannten (und typischerweise in realen Anlagen vermiedenen) Schwachstellen versehener Komponentenaufbau konstruiert.

In einer prinzipiellen Art und Weise wurden anhand dieser postulierten Anordnung die beiden Methoden der Deterministischen Störfall- und Ereignisbaumanalyse (Event Tree Analysis, ETA) einerseits, sowie die der Fehlerbaum- und probabilistische Sicherheitsanalyse (Fault Tree Analysis, FTA und PSA) angesetzt und aufgezeigt. Bedingt durch den Charakter eines Postulats sowie einer generell mangelhaften Datenlage hinsichtlich belastbarer, dokumentierter Ausfallwahrscheinlichkeiten der einzelnen, am Prozess beteiligten Komponenten und Systeme, sind die verwendeten Wahrscheinlichkeit tendenziell als Platzhalter zu sehen. Um die generische Vorgehensweise zu zeigen, wurde der Vollständigkeit halber auch eine rechnerische Verknüpfung der einzelnen Wahrscheinlichkeiten durchgeführt. Die ermittelte Eintrittswahrscheinlichkeit bzw. das Ergebnis sind jedoch auf keine der bekannten und in Betrieb befindlichen Anlagen direkt übertragbar.

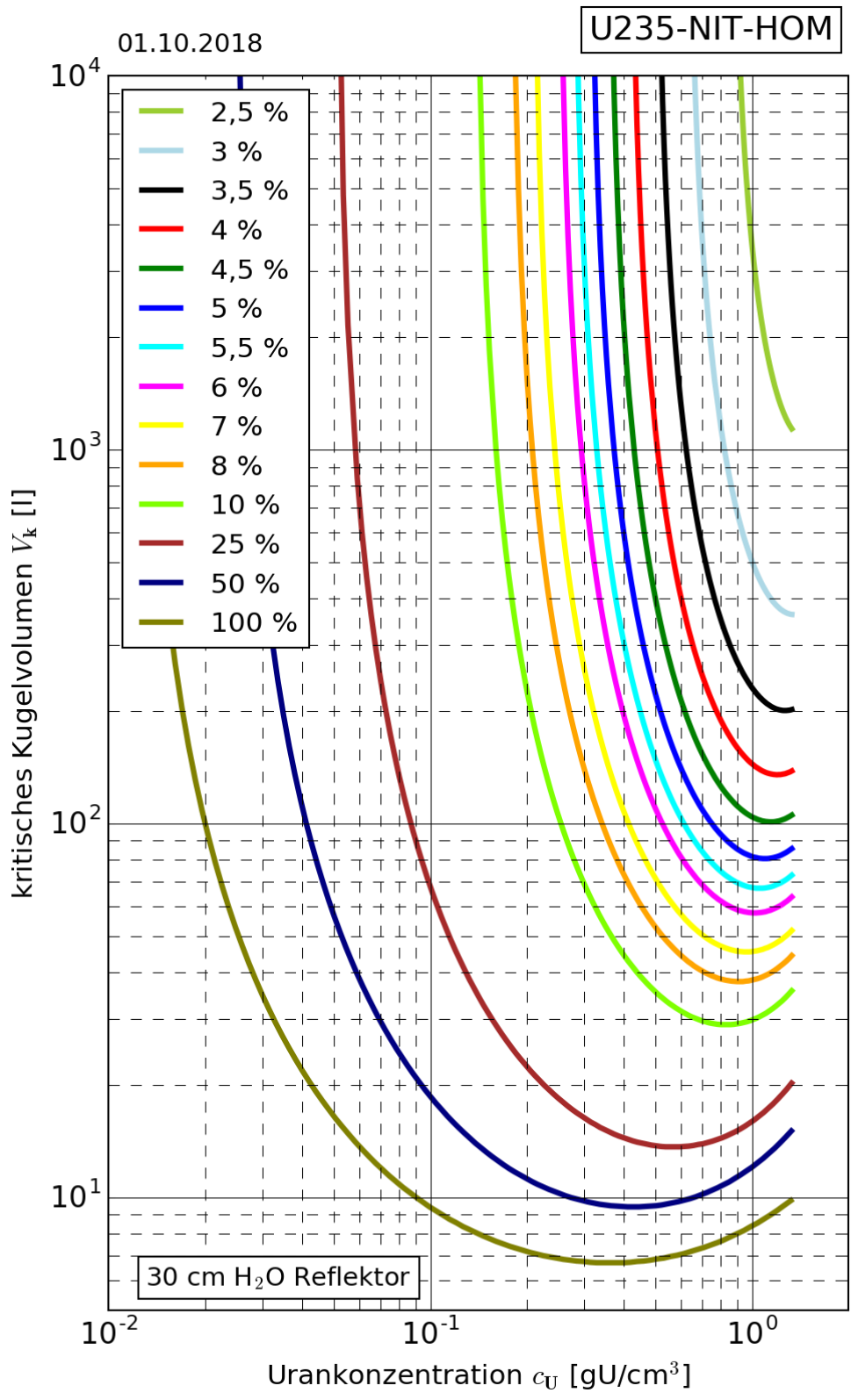


Abb. 3.2 Kritisches Kugelvolumen von homogenen Uranylinitrat-Wasser-Systemen

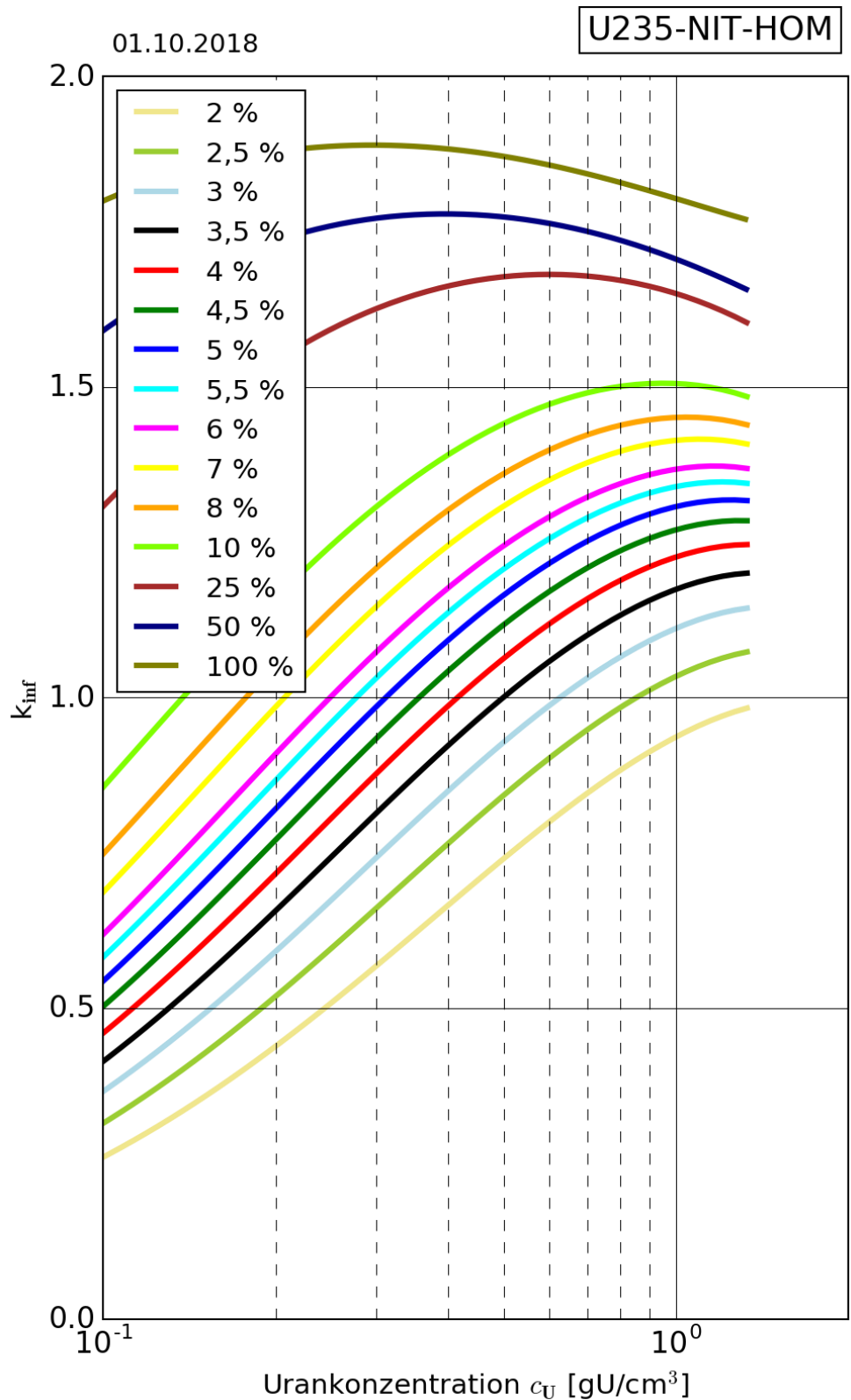


Abb. 3.3 Infiniten Multiplikationsfaktor von homogenen Uranylнитрат-Wasser-Systemen

3.3 Vergleich der Neurechnungen mit früheren Daten

Die neu berechneten Daten der kritischen Parameterkurven wurden mit den Daten aus der Ausgabe von 1998 verglichen, die z. T. bis auf 1970 zurückgehen („historische“ Daten). Dabei wurden für jedes Stoffsystem die Punkte der minimalen kritischen Kugelmasse ausgelesen. Da für alle Stoffsysteme außer AUC, ADU und UNH in den historischen Daten jeweils nur eine Anreicherung vorhanden ist, können nur für diese drei Systeme mehr als ein Wert verglichen werden. Die Werte sind in Tab. 3.2 gezeigt.

Tab. 3.2 Vergleich der Minima der kritischen Kugelmassen der Neurechnungen bei den verfügbaren Anreicherungen der historischen Kurven

			GRS 2019		GRS 1998		
Stoff		Anreicherung	$m_{\text{kit,min}}$	ρ_{HM}	$m_{\text{kit,min}}$	ρ_{HM}	Unterschied Masse
		[%]	[kg]	[g/cm ³]	[kg]	[g/cm ³]	[%]
UO ₃	1.I	5	12,76	1,88	13	2	-2%
AUC	1.G	4	33,92	1,29	36	1,26	-6%
		10	12,31	1,19	13	1,26	-5%
		100	4,846	0,947	5	0,7	-3%
APuC	10.G	5	6,15	1,27	6,5	1,26	-5%
AU-PuC	11.G	5	7,8	0,35	8	0,3	-3%
ADU	1.H	4	16	2,089	19	1,6	-13%
		10	9,61	1,611	11	1,4	-13%
		100	4,094	3,77	5	0,7	-18%
UNH	1.F	4	143	0,923	150	0,94	-5%
		5	74,81	0,793	77	0,8	-3%
		10	17,567	0,4402	18	0,43	-2%
		100	0,8224	0,0559	0,86	0,55	-4%

Die Werte der historischen Daten wurden aus alten, gedruckten Graphiken ausgelesen, die teilweise eine log-log Skala aufweisen. Aus diesem Grund ist die Genauigkeit dieser Werte auch durch die Ablesegenauigkeit begrenzt.

Ein Vergleich der Minima der kritischen Kugelmassen der historischen Daten des Handbuchs zur Kritikalität mit den neuen Berechnungen zeigt, dass die neuen Berechnungen für alle Systeme durchweg kleinere minimale kritische Kugelmassen liefern. Dies wurde vor allen Dingen im Bereich der Minima der kritischen Massen überprüft und für vereinzelte Kurven über den kompletten Bereich gezeigt. Für die meisten Systeme liegen die Unterschiede im unteren einstelligen Bereich. Bei ADU ergeben sich zum Teil größere Abweichungen, wobei die neuen Berechnungen um bis zu 18 % niedrigere Werte liefern.

Während viele der historischen Berechnungen auf 16-Gruppen-Rechnungen mit den Programmen GAMTEC und DTF /CAR 65/ basieren, wurden die neuen Rechnungen mit der Rechensequenz CSAS1 aus dem Programmsystem SCALE 6.2.2 unter Verwendung von 252 Energiegruppen durchgeführt. Folglich sind teilweise deutliche Abweichungen der kritischen Parameterkurven zu erwarten. Eine Analyse der genauen Ursachen dieser Abweichungen ist aufgrund der unterschiedlichen Computercodes bei extrem unterschiedlichen Rechenressourcen damals und heute kaum sinnvoll möglich.

Zusätzlich zu den punktuellen Vergleichen der minimalen kritischen Parameter wurden auch die kompletten Kurvenverläufe der neuen und historischen Rechnungen verglichen. In Abb. 3.4 ist dieser Vergleich exemplarisch für die kritische Kugelmasse und k_{inf} für Uranylnitrat bei Anreicherungen von 4, 5 und 10 Gew% ^{235}U gezeigt.

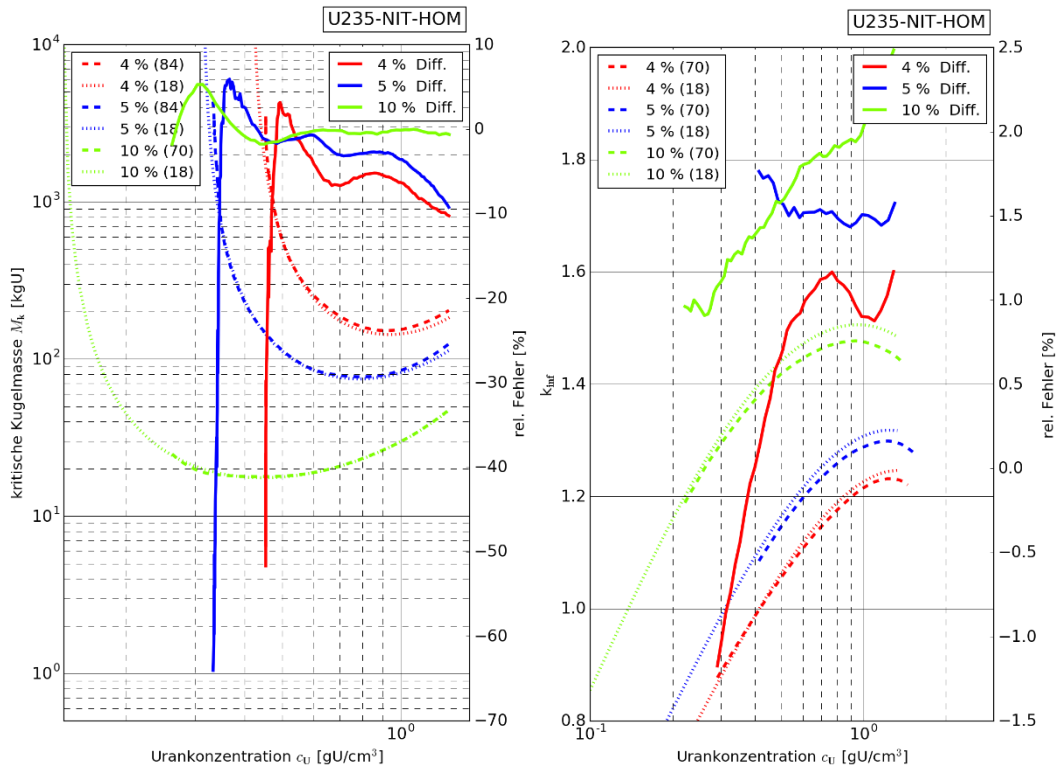


Abb. 3.4 Vergleich zwischen neuen (2018) und historischen Daten (1984) der kritischen Kugelmasse und k_{inf} von Uranylнитrat für Anreicherungen von 4, 5 und 10 %

Neben den beiden Kurven (neue Rechnungen: gestrichelt, historische Rechnungen: gepunktet) ist die prozentuale Differenz zwischen den Kurven gezeigt (durchgezogene Linien). Bei den kritischen Kugelmassen liegen die Abweichungen für die beiden niedrigen Anreicherungen zwischen 0 und -10 %, während sie für 10 Gew% weitgehend verschwindet. Für k_{inf} liegen die neuen Rechnungen im relevanten Bereich zwischen 0 und 2 % über den historischen.

Für die kritischen Kugelvolumina, die kritischen Zylinderdurchmesser und Schichtdicken und die anderen Spaltstoffsysteme zeigt sich ein sehr ähnliches Bild. Die neu berechneten minimalen kritischen Werte liegen durchweg leicht unterhalb der historischen Werte.

3.4 Validierung der neugerechneten Parameterkurven mit Hilfe von kritischen Experimenten

3.4.1 Zielsetzung

Ziel dieser Untersuchungen ist die Validierung der neu berechneten kritischen Parameterkurven (krit. Kugelmassen, Kugelvolumina, Zylinderdicken, Schichtdicken und infinite Multiplikationsfaktoren) für das GRS „Handbuch zur Kritikalität“. Dazu wurde in der Literatur nach kritischen Experimenten recherchiert, die die Spaltstoffzusammensetzungen enthalten, für die in diesem Projekt kritische Kurven nachgerechnet wurden. Während für Uranylнитrat-Lösungen zahlreiche reflektierte und unreflektierte Experimente in kugel- und zylinderförmiger Geometrie verfügbar sind, ergab die Literaturrecherche für die anderen neugerechneten Systeme keine Ergebnisse. Die im Folgenden behandelten Experimente wurden in Experimentserien durchgeführt und wurden dem Handbuch kritischer Experimente (ICSBEP) der OECD/NEA entnommen /NEA 12/.

Die Experimente wurden umfassen ausgewertet und einer Reihe von Analysen unterzogen. Diese schließen neben der nominalen Nachrechnung Sensitivitäts- und Unsicherheitsanalysen auf die fehlerbehafteten technischen Parameter der Experimente ein, mit deren Hilfe die führenden fehlerbehafteten Größen für die Unsicherheit von k_{eff} ermittelt werden können. Zusätzlich wurden TSUNAMI /REA 17/ Rechnungen durchgeführt, um den Einfluss von Unsicherheiten der nuklearen Daten auf die Berechnung des Multiplikationsfaktors zu bestimmen.

Diese statistischen Analysen der Multiplikationsfaktoren von Experimenten mit Uranylнитrat-Dichten nahe den Werten der minimalen kritischen Massen lassen Aussagen über die Unsicherheiten der gerechneten Parameterkurven zu.

3.4.2 Beschreibung der Experimente

Bei allen untersuchten Experimenten handelt es sich um Lösungen (SOL) aus Uranylнитrat in wässriger Lösung, beschrieben in dem „ICSBEP-Handbook“ /OECD 16/. Aufgrund des hohen Verhältnisses von Moderator zu Spaltstoff innerhalb der Lösung weisen alle Experimente ein thermisches Spektrum (THERM) auf. Für die Lösungen wurde teilweise hoch (HEU), teilweise niedrig (LEU) angereichertes Uran verwendet. Insgesamt wurden 69 experimentelle Konfigurationen in 7 Serien gerechnet, deren Uranylнитrat-

Konzentration und experimenteller Aufbau einen sinnvollen Vergleich mit den theoretischen Kurven erlauben. Tab. 3.3 zeigt eine Übersicht über die wichtigsten Details der behandelten Experimentserien. Dabei wird HEU-SOL-THERM mit HST und LEU-SOL-THERM mit LST abgekürzt.

Tab. 3.3 Details der behandelten Experimentserien

Serien Name	# Exp.	Reflektor	Geometrie	Anreicherung	Behälter Material	T [K]	k_{eff} BM
HST-001	10	Nein	Zylinder	93,172 %	SS-304, Al-6061 ¹	293,0	1,000
HST-003	19	Plexiglas	Zylinder	93,172 %	SS-304, Al-6061 ¹	296,15	0,9991 – 1,0021
LST-003	9	Nein	Kugel	10,19 %	SS-5632-72 ¹	300,0	1,0003 – 1,0009
LST-004	7	H ₂ O	Cylinder	9,97 %	SUS-304 ¹	298,15	0,9994 – 0,9999
LST-011	13	Teilweise H ₂ O	Cylinder	6,01 %	S.S.304L ¹	298,15	0,9967 – 1,0
LST-016	7	H ₂ O	Platte	9,97 %	S.S.304L ¹	298,15	0,9992 – 0,9999
LST-020	4	H ₂ O	Cylinder	9,97 %	S.S.304L ¹	298,15	0,9995 – 0,9998

Die explizite Modellierung des Einflusses von Zu- und Abläufen, Haltestrukturen und Messinstrumenten wird im Rechenmodell weggelassen. Deren Einfluss wird berücksichtigt, indem das Kugel- bzw. das Zylindervolumen in den Experimentbeschreibungen so modifiziert wird, dass die Vernachlässigung dieser Strukturen entsprechend kompensiert wird. In Abb. 3.5 sind die Urandichten ρ_U [g/cm³] für alle untersuchten Experimente gezeigt.

¹ SS-304: Edelstahl (7,927 g/cm³), Al-6061: Aluminium (2,737 g/cm³), SS-5632-72: Edelstahl (7,93 g/cm³), SUS-304: Edelstahl (7,93 g/cm³), S.S.304L: Edelstahl (7,93 g/cm³)

3.4.2.2 HEU-SOL-THERM-003

Bei der Experimentserie HEU-SOL-THERM-003 handelt es sich um plexiglasreflektierte Zylinder mit verschiedenen Durchmessern (SS-304: 13,965/13,96 cm, Al: 13,94 – 16,825 cm) und Höhen. Die Füllhöhe von hochangereicherter Uranylнитratlösung mit verschiedenen Urankonzentrationen (0,06032 – 0,34533 g/cm³) variiert von Experiment zu Experiment. Die Reflektorplatten wurden für alle Experimente in derselben Art und Weise würfelförmig angeordnet, der Zylinder an unterschiedlichen Stellen in dem entstehenden Hohlraum positioniert. Die Benchmark k_{eff} -Werte und die experimentellen Unsicherheiten aufgrund von unsicheren technischen Parametern sind in Tab. 3.5 wiedergegeben.

Tab. 3.5 Experimentelle Unsicherheiten aufgrund von unsicheren technischen Parametern

Experiment	001	002	003	004	005	006	007	008
k_{eff}	1,0016	1,0016	1,0014	1,0009	1,0021	1,0013	0,0006	1,0003
$\sigma_{\text{exp}} [\% k_{\text{eff}}]$	0,56	0,57	0,56	0,56	0,68	0,69	0,46	0,33
Experiment	009	010	011	012	013	014	015	016
k_{eff}	0,9996	1,0011	0,9997	1,0006	1,0004	1,0005	1,0000	1,0002
$\sigma_{\text{exp}} [\% k_{\text{eff}}]$	0,33	0,50	0,49	0,47	0,59	0,47	0,44	0,37
Experiment	017	018	019					
k_{eff}	0,9994	1,0009	0,9991					
$\sigma_{\text{exp}} [\% k_{\text{eff}}]$	0,38	0,49	0,52					

3.4.2.3 LEU-SOL-THERM-003

Bei der Experimentserie LEU-SOL-THERM-003 handelt es sich um unreflektierte volle und teilweise volle Stahlkugeln mit verschiedenen Radien (32,95 – 59,89 cm) gefüllt mit niedrigangereicherter Uranylнитratlösung mit verschiedenen Urankonzentrationen (0,1710 – 0,2960 g/cm³). Die Benchmark k_{eff} -Werte und die experimentellen Unsicherheiten aufgrund von unsicheren technischen Parametern sind in Tab. 3.6 gezeigt.

Tab. 3.6 Experimentelle Unsicherheiten aufgrund von unsicheren technischen Parametern

Experiment	001	002	003	004	005	006	007	008
k_{eff}	1,0007	1,0003	1,0005	1,0005	1,0007	1,0009	1,0004	1,0003
$\sigma_{\text{exp}} [\% k_{\text{eff}}]$	0,39	0,42	0,42	0,42	0,48	0,49	0,49	0,52
Experiment	009							
K_{eff}	1,0006							
$\sigma_{\text{exp}} [\% k_{\text{eff}}]$	0,52							

3.4.2.4 LEU-SOL-THERM-004

Bei der Experimentserie LEU-SOL-THERM-004 handelt es sich um wasserreflektierte Zylinder mit einem Radius von 29,5 cm mit unterschiedlichen Füllhöhen an niedrigangereicherter Uranylinitratlösung mit verschiedenen Urankonzentrationen (0,2253 – 0,3101 g/cm³). Die Benchmark k_{eff} -Werte und die experimentellen Unsicherheiten aufgrund von unsicheren technischen Parametern sind in Tab. 3.7 gezeigt.

Tab. 3.7 Experimentelle Unsicherheiten aufgrund von unsicheren technischen Parametern

Experiment	001	029	033	034	046	051	054
k_{eff}	0,9994	0,9999	0,9999	0,9999	0,9999	0,9994	0,9996
$\sigma_{\text{exp}} [\% k_{\text{eff}}]$	0,08	0,09	0,09	0,10	0,10	0,11	0,11

3.4.2.5 LEU-SOL-THERM-011

Bei der Experimentserie LEU-SOL-THERM-006 handelt es sich um unreflektierte (459, 462, 463, 469, 472, 484) und wasserreflektierte (460, 461, 464, 470, 471, 485, 486) Zylinder mit einem Radius von 39,505 cm mit unterschiedlichen Füllhöhen an niedrigangereicherter Uranylinitratlösung mit verschiedenen Urankonzentrationen (0,3524 – 0,4577 g/cm³). Die Benchmark k_{eff} -Werte und die experimentellen Unsicherheiten aufgrund von unsicheren technischen Parametern sind in Tab. 3.8 gezeigt.

Tab. 3.8 Experimentelle Unsicherheiten aufgrund von unsicheren technischen Parametern

Experiment	460	461	464	470	471	485	486
k_{eff}	0,9999	1,0000	1,0000	0,9998	0,9998	1,0000	0,9999
$\sigma_{\text{exp}} [\% k_{\text{eff}}]$	0,1	0,1	0,09	0,09	0,11	0,11	0,1
Experiment	459	462	463	469	472	484	
k_{eff}	0,9967	0,9974	0,9980	0,9984	0,9985	0,9987	
$\sigma_{\text{exp}} [\% k_{\text{eff}}]$	0,1	0,1	0,09	0,09	0,11	0,1	

3.4.2.6 LEU-SOL-THERM-016

Bei der Experimentserie LEU-SOL-THERM-016 handelt es sich um wasserreflektierte rechteckige Tanks mit einer Länge von 69,03 cm und einer Breite von 28,08 cm mit unterschiedlichen Füllhöhen an niedrigangereicherter UranylNitratlösung mit verschiedenen Urankonzentrationen (0,2996 – 0,4642 g/cm³). Die Benchmark k_{eff} -Werte und die experimentellen Unsicherheiten aufgrund von unsicheren technischen Parametern sind in Tab. 3.9 gezeigt.

Tab. 3.9 Experimentelle Unsicherheiten aufgrund von unsicheren technischen Parametern

Experiment	105	113	125	129	131	140	196
k_{eff}	0,9996	0,9999	0,9994	0,9996	0,9995	0,9992	0,9994
$\sigma_{\text{exp}} [\% k_{\text{eff}}]$	0,13	0,13	0,14	0,14	0,14	0,15	0,15

3.4.2.7 LEU-SOL-THERM-020

Bei der Experimentserie LEU-SOL-THERM-020 handelt es sich um wasserreflektierte Zylinder mit einem Durchmesser von 39,505 cm mit unterschiedlichen Füllhöhen an niedrigangereicherter UranylNitratlösung mit verschiedenen Urankonzentrationen (0,1937– 0,2431 g/cm³). Die Benchmark k_{eff} -Werte und die experimentellen Unsicherheiten aufgrund von unsicheren technischen Parametern sind in Tab. 3.10 gezeigt.

Tab. 3.10 Experimentelle Unsicherheiten aufgrund von unsicheren technischen Parametern

Experiment	216	217	220	226
k_{eff}	0,9995	0,9996	0,9997	0,9998
$\sigma_{\text{exp}} [\% k_{\text{eff}}]$	0,1	0,1	0,12	0,12

3.4.3 Kritikalitätsrechnungen

Für alle analysierten Experimentserien wurden jeweils dieselben Rechnungen durchgeführt. Zuerst wurden die Eingabedateien für die Monte Carlo Rechensequenz CSAS5 des amerikanischen Codepakets SCALE erzeugt und die nominalen Rechnungen durchgeführt. Durch Vergleich dieser gerechneten mit den experimentellen k_{eff} -Werten und durch Vergleich mit den in der Benchmarkbeschreibung gegebenen Werten von Beispielrechnungen kann die korrekte Implementierung der Benchmarkbeschreibung überprüft werden, siehe Kapitel 3.4.3.1.

In einem zweiten Schritt wurden die Eingabedateien für die samplingbasierten Analysen aus den Nominaldateien erzeugt, die unsicheren technischen Parameter aus der Benchmarkbeschreibung extrahiert und die entsprechenden Analysen durchgeführt, siehe Kapitel 3.4.3.2. Die korrekte Überführung der Eingabedateien kann mithilfe von Sampling der Nominalfälle teilweise überprüft werden, siehe Kapitel 3.4.3.3.

Für alle Experimente wurden auch Rechnungen mit der Sequenz TSUNAMI aus dem SCALE Codepaket durchgeführt. Zum einen um die spektrale Ähnlichkeit der Experimente untereinander zu bestimmen, zum anderen um die Anwendbarkeit der Benchmark Experimente auf die kritischen Kurven anhand der spektralen Eigenschaften einschätzen zu können.

3.4.3.1 Nominalrechnungen

In einem ersten Schritt wurden die Nominalfälle der Neutronenmultiplikationsfaktoren k_{eff} aller Experimente mit der Monte Carlo Rechensequenz CSAS5 des amerikanischen Codepakets SCALE Version 6.2.2 /REA 17/ nachgerechnet. Dabei wurde die Querschnittsbibliothek v7-252 in 252-Gruppenstruktur verwendet, und die Resonanzselbstabschirmung durch die Resonanzbehandlungsmethode CENTRM berücksichtigt. Als Abbruchkriterium der Rechnung wurde ein statistischer Fehler von k_{eff} von $\sigma_{k_{\text{eff}}} 1 \times 10^{-4}$ angesetzt. Pro Generation wurden 10.000 Neutronen gerechnet und die ersten 100

Generationen verworfen, da diese noch eine relativ hohe Varianz aufweisen. Das Abbruchkriterium wurde typischerweise nach 10.000 – 15.000 Neutronengenerationen erreicht.

Für die Nominalrechnungen wurden die in den Experimentbeschreibungen angegebenen Kernzahldichten direkt in den KENO-Va Eingabedateien für die Lösungsbestandteile Uran (^{234}U , ^{235}U , ^{236}U , ^{238}U , ^{242}Pu), Stickstoff (N), Wasserstoff (H) und Sauerstoff (O), und die Tankhüllenbestandteile Aluminium (Al) und Eisen (Fe) mit den teilweise vorhandenen Verunreinigungen Brom (Br), Cadmium (Cd), Chlor (Cl), Chrom (Cr), Kohlenstoff (C), Nickel (Ni), Mangan (Mn), Molybdän (Mo), Phosphor (P), Schwefel (S), Silicium (Si), Titan (Ti). Bis auf Uran werden die natürlichen Isotopenverhältnisse angenommen.

3.4.3.2 Samplingbasierte Sensitivitäts- und Unsicherheitsanalyse

Die kritischen Experimente wurden einer Sensitivitäts- und Unsicherheitsanalyse unterzogen, um zu ermitteln, in wie weit sich Unsicherheiten von experimentellen technischen Größen auf die Unsicherheit von k_{eff} auswirken. Für die Sensitivitäts- und Unsicherheitsanalyse wurden die Kernzahldichten in den Eingabedateien nicht direkt aus den Experimentbeschreibungen übernommen. Stattdessen wurden sie aus den experimentell gemessenen Dichten errechnet, für die in den Experimentbeschreibungen Unsicherheiten als Standardabweichung angegeben sind.

Für den gesamten Sampling-Workflow kommt das GRS eigene S/U-Tool SUnCISTT zur Verwendung /BEH 14a/. Dabei werden in einem ersten Schritt aus den Spezifikationen der Verteilungsfunktionen (e.g. Mittelwert und Standardabweichung) der unsicheren technischen Parameter je nach Samplinganzahl eine Stichprobe von Zufallszahlen erzeugt und in einer Liste gespeichert. In diesem Fall wurden 250 Samples erzeugt. Im zweiten Schritt werden diese Zufallszahlen kombiniert bzw. modifiziert zu den in der SCALE Eingabedatei benötigten Größen. So werden z. B. aus dem Brennstoffdurchmesser der Brennstoffradius berechnet, oder die Sauerstoffatome aus dem Lösungsbestandteil UO_3 mit den Sauerstoffatomen aus dem Lösungsmittel Wasser zu einer Kernzahldichte kombiniert. Diese Größen werden im nächsten Schritt in eine Template-Datei geschrieben, in der die Zahlenwerte dieser Größen durch Schlüsselwörter ersetzt wurden. Auf diese Weise werden alle Sampledateien erzeugt. Nach der erfolgreichen Berechnung aller individuellen Kritikalitätsrechnungen werden die interessanten Ergebnisgrößen (k_{eff} , EALF, ...) eingesammelt und statistisch ausgewertet.

Die gemessenen Größen, daraus abgeleitete Größen und deren experimentellen Unsicherheiten sind in Tab. 3.11 für die zwei Serien aufgelistet. Dabei sind in unterschiedlichen Serien unterschiedliche Parameter direkt gemessen und mit unterschiedlichen Unsicherheiten behaftet.

Tab. 3.11 Liste der mit Unsicherheiten behafteten experimentellen Parameter

Gemessene, fehlerbehaftete Größen	Variable	% Unsicherheit PST-004	% Unsicherheit PST-020	Verteilung
Gesamtdichte	ρ_{ges}	0,03 %	0,4 %	beta(4,4)
Plutoniumdichte	ρ_{Pu}	1,0 %	1,0 %	beta(4,4)
Eisendichte	ρ_{Fe}	1,4 %	-	beta(4,4)
Nitratdichte	ρ_{NO_3}	0,6 %	-	beta(4,4)
Säure Molarität	N^a	-	1,0 %	beta(4,4)
Gewichtsprozent ^{238}Pu	$W\% ^{238}\text{Pu}$	-	16,67 %	beta(4,4)
Gewichtsprozent ^{239}Pu	$W\% ^{239}\text{Pu}$	-	0,04 %	beta(4,4)
Gewichtsprozent ^{240}Pu	$W\% ^{240}\text{Pu}$	7 %	-	beta(4,4)
Gewichtsprozent ^{241}Pu	$W\% ^{241}\text{Pu}$	-	1,93 %	beta(4,4)
Gewichtsprozent ^{242}Pu	$W\% ^{242}\text{Pu}$	-	11,11 %	beta(4,4)
Volumen	V	0,3 %	0,25 %	beta(4,4)
Wanddicke	r_{wall}	10 %	-	beta(4,4)
Temperatur	T_{H_2O}	0,09 %	-	beta(4,4)

Die vertikalen Fehlerbalken beinhalten zum einen die statistische Unsicherheit von k_{eff} aufgrund von dem Abbruchkriterium der Monte Carlo-Rechnung (5×10^{-5}), zum anderen den messtechnischen Fehler aufgrund von experimentellen Unsicherheiten.

3.4.3.3 Sampling der Nominalfälle

Die Eingabedateien der Nominalrechnungen wurden nochmals dem Workflow der Samplingrechnungen folgend reproduziert, wobei die Unsicherheiten der variierten Parameter auf Null gesetzt werden und nur ein Sample je Experiment erzeugt wird. Dies lässt durch direkten Vergleich der resultierenden Eingabedateien für SCALE und durch Vergleich der berechneten k_{eff} -Werte die korrekte Übertragung der Nominal-

Eingabedateien in die für den Sampling-Workflow benötigten Dateien zu. Insbesondere kann so die die korrekte Berechnung der Kernzahldichten aus den Flüssigkeitsdichten überprüft werden.

3.4.3.4 TSUNAMI Rechnungen

Für die Analysen zum Einfluss der Unsicherheiten in den nuklearen Daten auf die Rechnungen wurde die Rechensequenz TSUNAMI aus dem Codepaket SCALE Version 6.2.2 verwendet /REA 17/. Dabei wird die Sequenz TSUNAMI-3D-k5 verwendet, um die Sensitivitäten von k_{eff} auf die beteiligten nuklearen Prozesse zu berechnen. Im Anschluss wird TSUNAMI-IP eingesetzt, um die Pearson Korrelationen zwischen den Experimenten zu berechnen, die sogenannten c_k -Werte. Mit Hilfe dieser Methode lässt sich die neutronische Ähnlichkeit der untersuchten experimentellen Konfigurationen auf Basis der zu Grunde liegenden problemspezifischen Wirkungsquerschnitte untereinander ermitteln.

3.4.4 Ergebnisse der Analysen

3.4.4.1 Multiplikationsfaktor mit Unsicherheiten

Abb. 3.6 bis Abb. 3.12 zeigen die effektiven Multiplikationsfaktoren k_{eff} für alle gerechneten Serien und durchgeführten Untersuchungen. Folgende Größen sind jeweils dargestellt:

- experimentelle k_{eff} -Werte mit experimentellen k_{eff} -Unsicherheiten: blaue Rauten
- k_{eff} -Werte von zwei im Handbuch angegebenen Nachrechnungen: rote und grüne Rauten
- gerechnete k_{eff} -Nominalwerte: rote X
- gerechnete k_{eff} -Nominalwerte mit der Sampling-Methode: orange X
- gerechnete k_{eff} -Nominalwerte mit TSUNAMI mit k_{eff} -Unsicherheiten aufgrund Unsicherheiten in den nuklearen Daten: blaue X
- gerechnete k_{eff} -Mittelwerte und deren Standardabweichung aufgrund der Sampling-Methode: grüne X

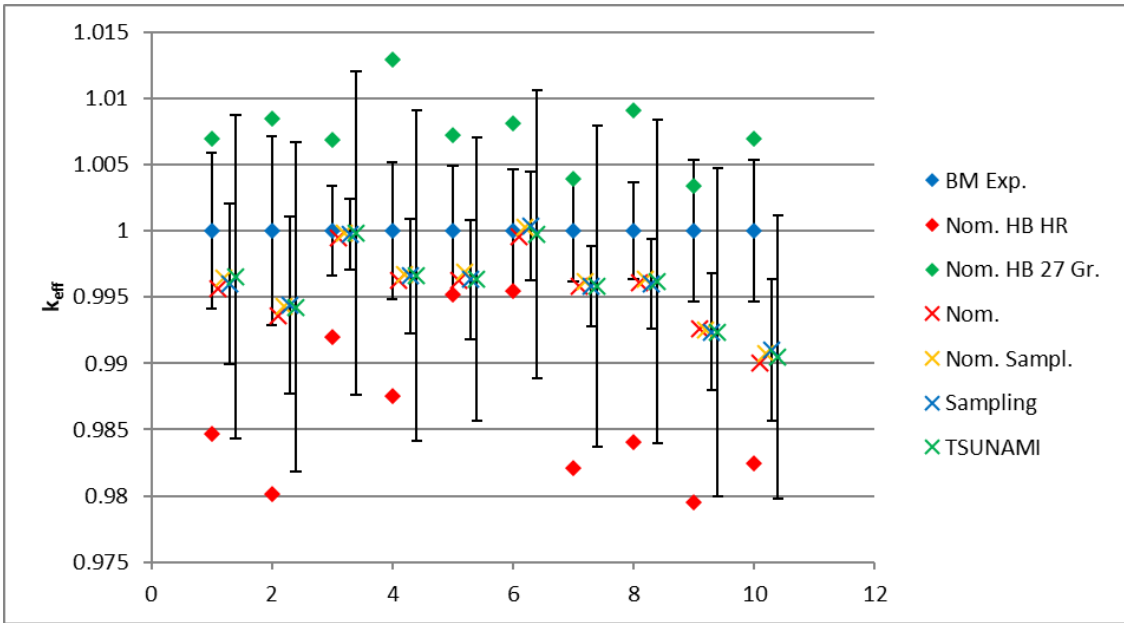


Abb. 3.6 Multiplikationsfaktoren k_{eff} der Serie HST-001

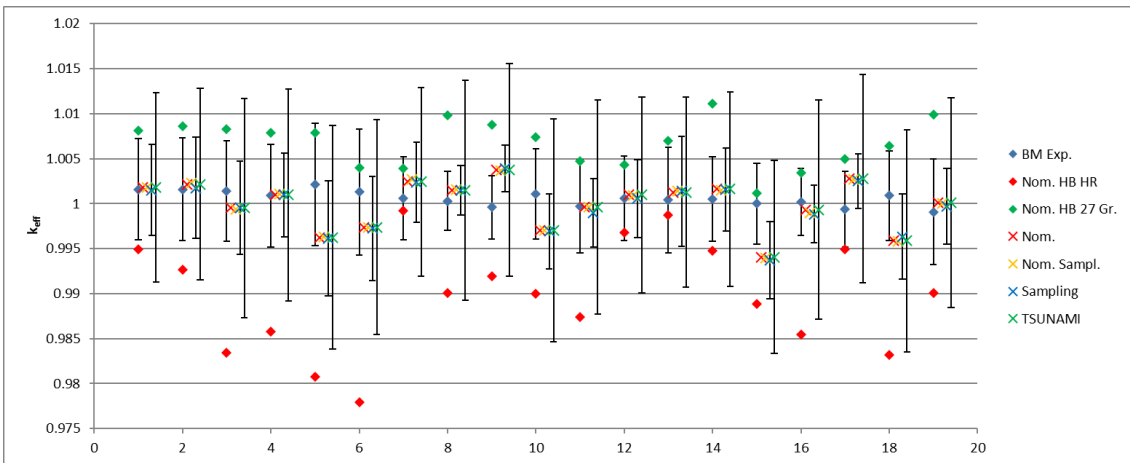


Abb. 3.7 Multiplikationsfaktoren k_{eff} der Serie HST-003

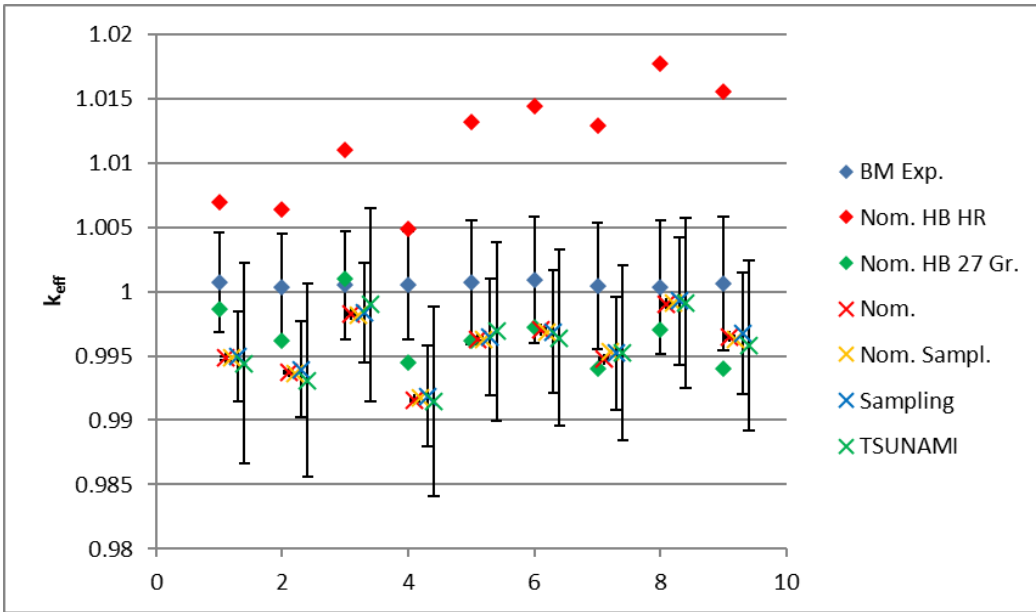


Abb. 3.8 Multiplikationsfaktoren k_{eff} der Serie LST-003

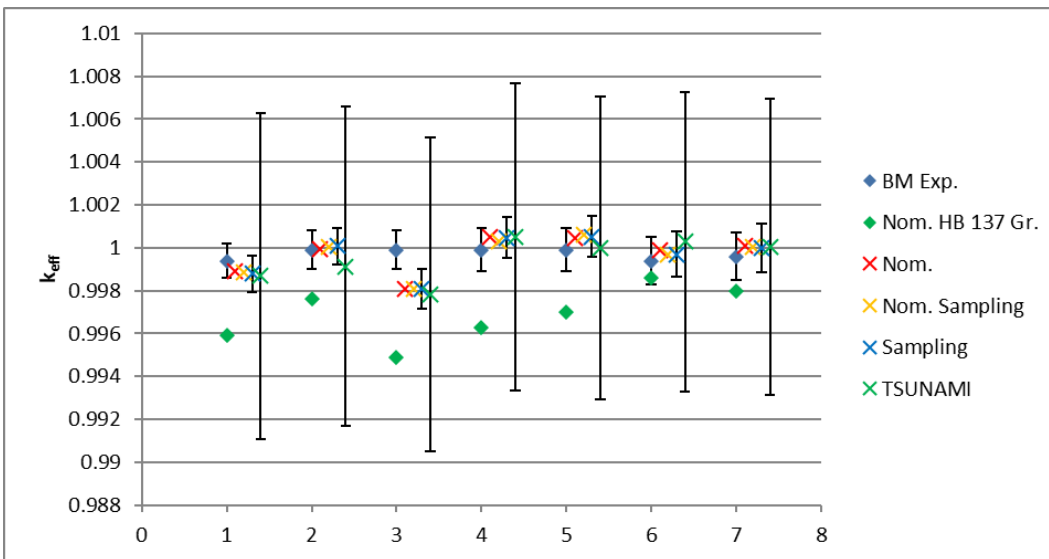


Abb. 3.9 Multiplikationsfaktoren k_{eff} der Serie LST-004

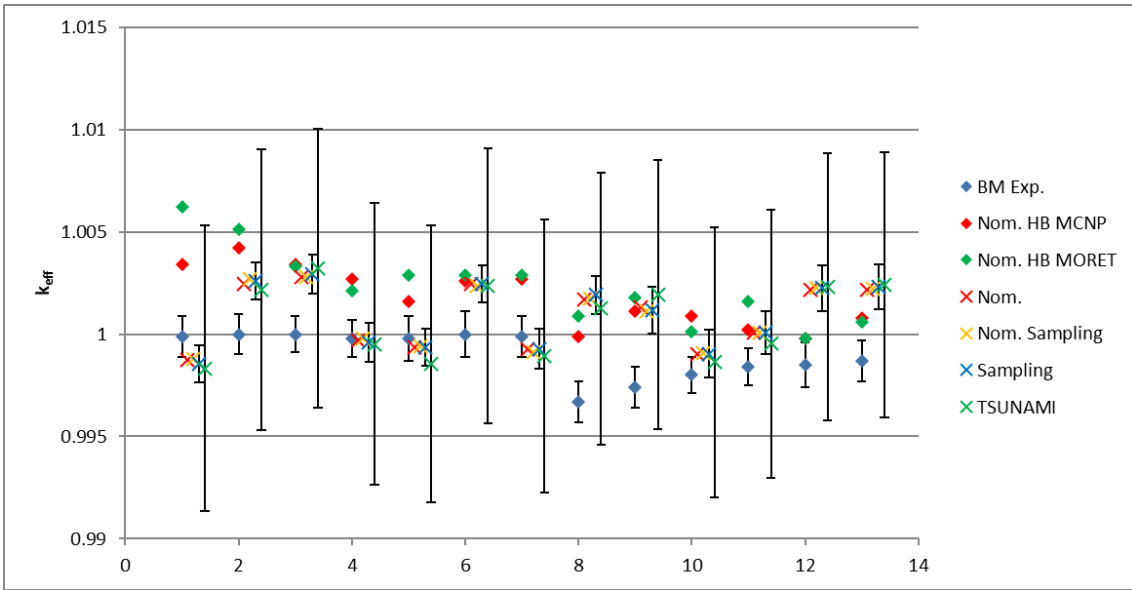


Abb. 3.10 Multiplikationsfaktoren k_{eff} der Serie LST-011

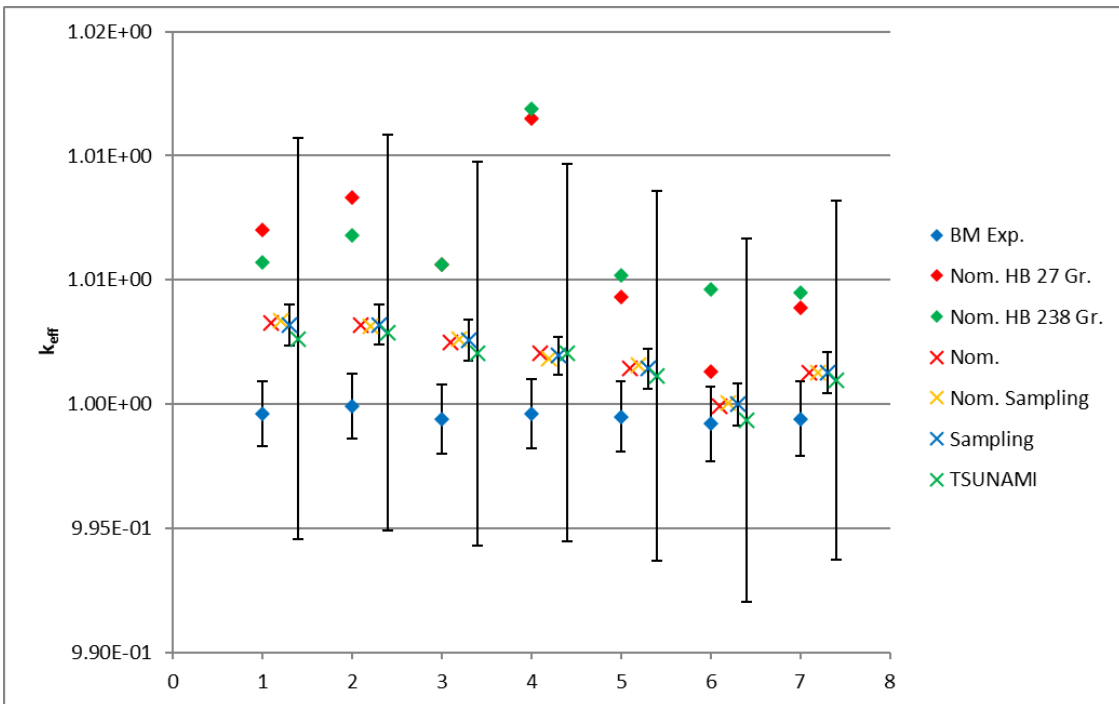


Abb. 3.11 Multiplikationsfaktoren k_{eff} der Serie LST-016

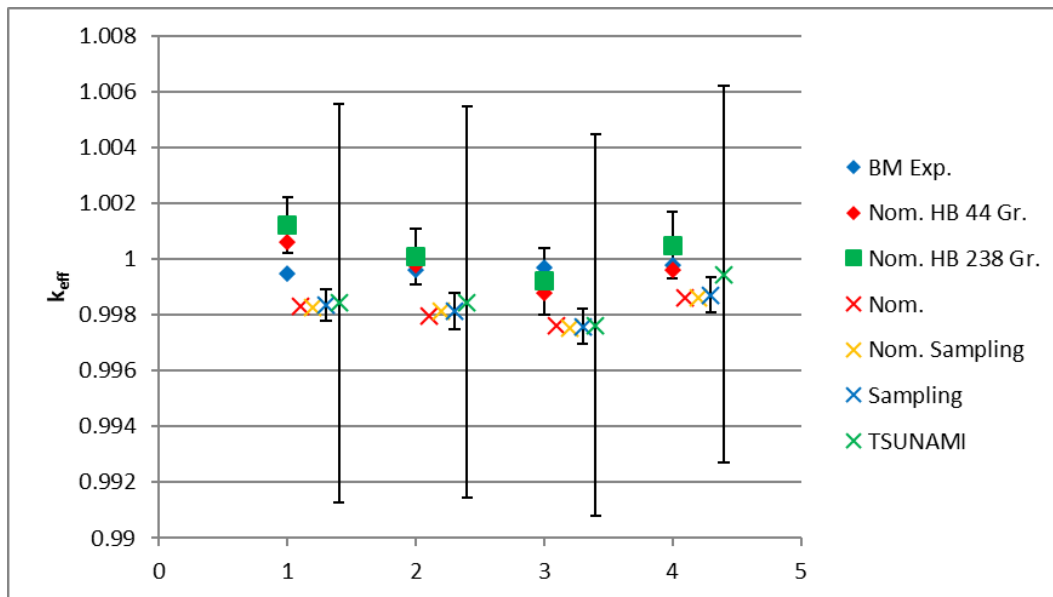


Abb. 3.12 Berechnete Multiplikationsfaktoren k_{eff} der Serie LST-020

Bei sämtlichen Abbildungen sieht man, dass die neuen Rechnungen (Nominalrechnung, gesampelte Nominalrechnung, Sampling-Mittelwert und TSUNAMI-Rechnung) innerhalb der gewählten Monte-Carlo Unsicherheit von $\sigma_{k_{\text{eff}},\text{MC}} = 1 \times 10^{-4}$ übereinstimmen.

Für alle gerechneten Experimente stimmen die mithilfe des Sampling-Prozesses ermittelten Unsicherheiten gut mit den im Handbuch gegebenen experimentellen Unsicherheiten überein.

Für alle gerechneten Experimente übersteigen die Unsicherheiten von k_{eff} aufgrund der unsicheren nuklearen Daten (TSUNAMI Rechnungen) die Unsicherheiten aufgrund von unsicheren technischen Parametern. Während die Unsicherheiten aufgrund von nuklearen Daten im Bereich von 0,6 – 1,2% (600 – 1200 pcm) liegen, weisen die Unsicherheiten auf Grund von technischen Parametern einen weiten Bereich von 0,06 – 0,7 auf. Damit werden die k_{eff} -Unsicherheiten teilweise komplett von den Unsicherheiten in den nuklearen Daten dominiert. So liegen diese z. B. bei Serie LST-020 eine Größenordnung über den Unsicherheiten aufgrund von unsicheren technischen Parametern.

Für die meisten Experimente der Serien HST-001, HST-003, LST-003 und LST-004 liegen die nachgerechneten k_{eff} -Werte innerhalb der experimentellen $1-\sigma$ Unsicherheit. Für alle Serien, bis auf LST-020, findet sich eine bessere Übereinstimmung der hier durchgeführten Rechnungen mit den experimentellen k_{eff} -Werten als die in den Benchmarkbeschreibungen gegebenen Beispielrechnungen.

3.4.4.2 Unsicherheitsanalyse auf unsichere technische Parameter und Bestimmung der Korrelationen zwischen Experimenten

Mithilfe der in Kapitel 3.4.3.2 beschriebenen Unsicherheitsanalyse auf unsichere technische Parameter können die Pearson Korrelationskoeffizienten zwischen Experimenten berechnet werden. Abb. 3.13 zeigt diesen für alle berechneten Experimente.

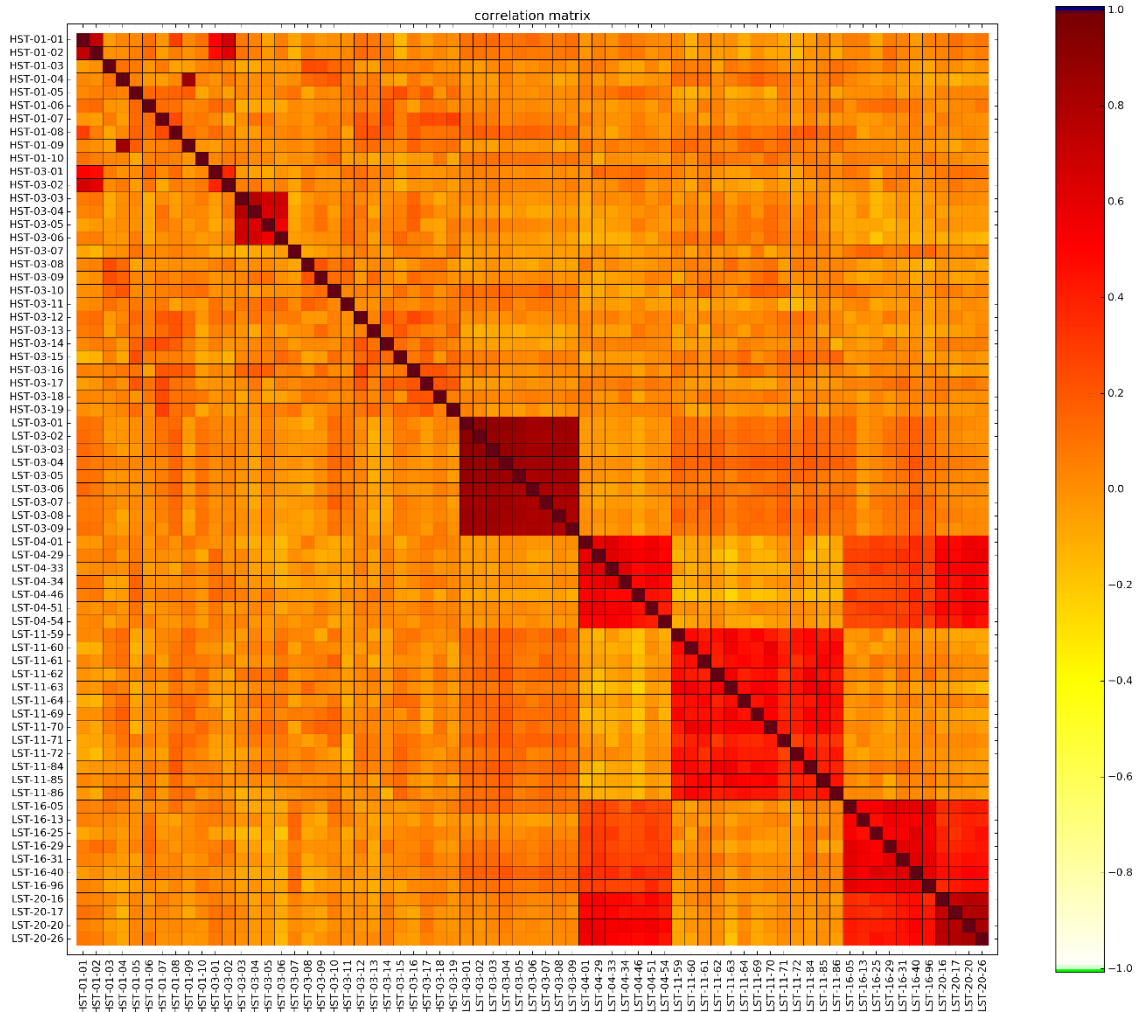


Abb. 3.13 Pearson Korrelationsfaktor zwischen allen berechneten Experimenten aufgrund von unsicheren technischen Parametern

Aus dieser Abbildung können mehrere Gruppen korrelierter Experimente identifiziert werden, die fast ausschließlich innerhalb einer Serie auftreten. Die Stärke der Korrelation hängt allerdings von der Serie ab. Beispielsweise sind die Serien LST-003 innerlich hochkorreliert ($c_{\text{korr}} > 0,8$), LST-004, LST-011 und 016 zeigen hauptsächlich mittlere Korrelation ($c_{\text{korr}} > 0,3 - 0,6$), während so gut wie alle analysierten HST Experimente keine signifikante Korrelation außerhalb der statistischen Unsicherheit zeigen.

Es existieren einige Serien-übergreifende Korrelationen, beispielsweise zwischen HST-001-001 und 002 und HST-003-001 und 002. Diese vier Experimente teilen sich denselben Tank, sodass sie über dessen Unsicherheiten korreliert sind. Da für alle anderen Experimente dieser Serien andere Tanks mit geringeren Unsicherheiten verwendet werden, sind sie nicht korreliert. Außerdem zeigt sich eine zwischen 0,2 und 0,5 variierende Korrelation zwischen LST-004 und LST-016 und LST-20 über die geteilte Anreicherung. Die Korrelationen sind mit LST-20 größer, da die sehr ähnlichen Urandichten, die zu einem ähnlichen Moderationsverhältnis führt.

3.4.4.3 Sensitivitätsanalyse auf unsichere technische Parameter

In einem zweiten Schritt wird der Pearson-Korrelationsfaktor zwischen k_{eff} und den variierten technischen Parametern berechnet. Dies gibt keine klassische Sensitivität, sondern ein Maß für den Einfluss der reellen Variation der Parameter auf k_{eff} . So kann analysiert werden, welche fehlerbehafteten Größen ausschlaggebend für die Unsicherheit von k_{eff} sind. In Abb. 3.14 sind diese Faktoren exemplarisch für die Experimenterserie HST-001 gezeigt.

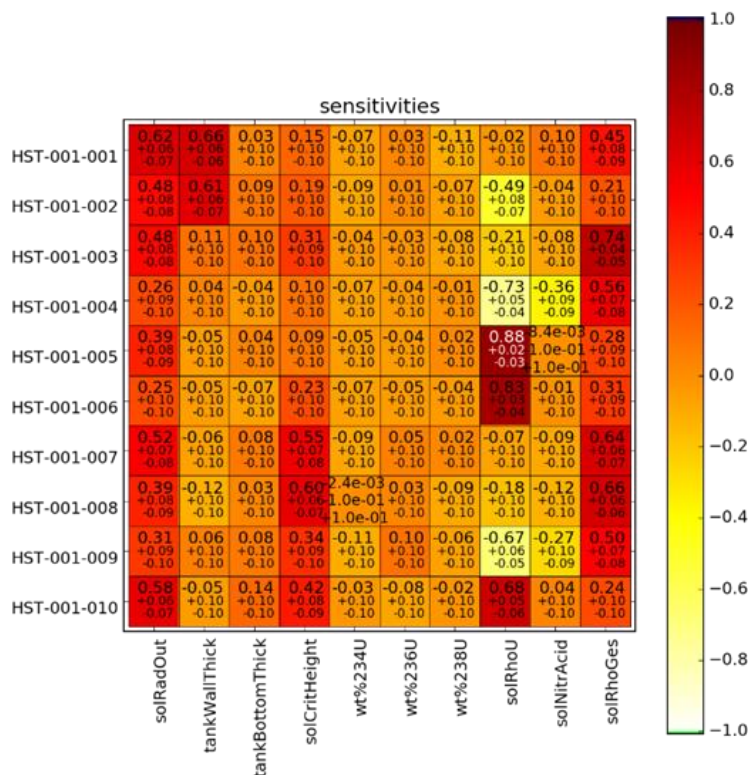


Abb. 3.14 Pearson Korrelationsfaktor zwischen k_{eff} und den variierten technischen Parametern für alle Experimente der Serie HST-001

Die Abbildung zeigt, dass die unsicheren technischen Parameter einen unterschiedlichen Einfluss auf k_{eff} haben, der auch von den Details des Experiments abhängt. Zum Beispiel reagiert k_{eff} unterschiedlich (korreliert, unkorreliert oder antikorreliert) auf die Dichte von Uran in der Lösung (solRhoU), je nachdem, ob das Experiment untermoderiert (002, 004, 009), nahe der optimalen Moderation (001, 003, 007, 008) oder übermoderiert ist (005, 006, 010). Diese Abgrenzung der Experimente zueinander zeigt sich auch in der „energy of average lethargy causing fission“ (EALF).

3.4.4.4 TSUNAMI Analyse

Abb. 3.15 zeigt die Korrelation c_k zwischen allen gerechneten Experimenten aufgrund Unsicherheiten in den nuklearen Daten, berechnet mit TSUNAMI.

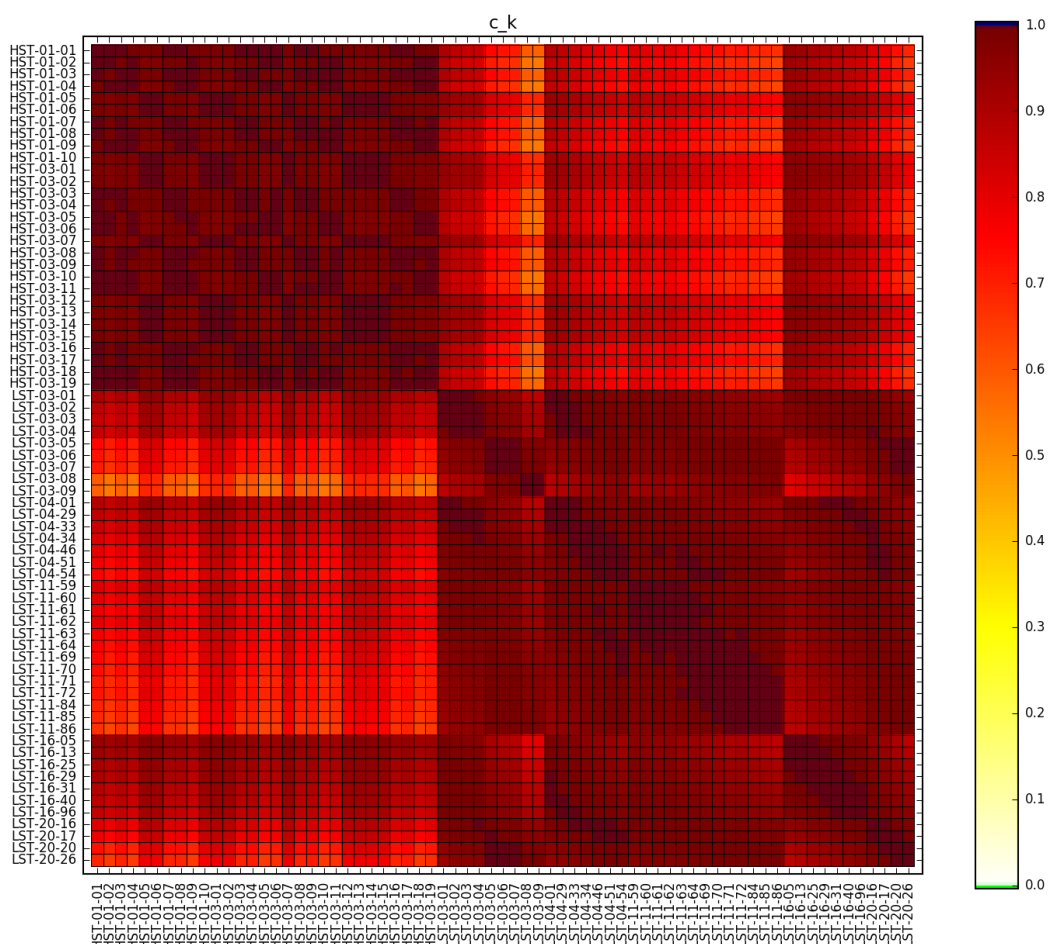


Abb. 3.15 Korrelation c_k zwischen den Experimenten aufgrund Unsicherheiten der nuklearen Daten, TSUNAMI Rechnungen

Dieser Korrelationsfaktor gibt an, wie ähnlich sich die Experimente hinsichtlich ihres Verhaltens auf spektrale Effekte sind. Man erkennt zwei große Blöcke, die in sich

weitgehend vollständig korreliert sind: $c_k(\text{HST-001, HST-003}) > 0,98$ und $c_k(\text{LST-003, 004, 011, 016 und 020}) > 0,79$, wobei c_k bis auf wenige Ausnahmen größer als 0,9 ist. Innerhalb jeder Serie ist $c_k > 0,87$.

3.5 Vergleich der gerechneten Parameterkurven mit Daten anderer Handbücher und Veröffentlichungen

International gibt es seit den 1960er Jahren eine Reihe von Handbüchern oder Zusammenstellungen kritischer Parameter, die äquivalent zum Handbuch zur Kritikalität der GRS sind oder zumindest in ähnlicher Form Datenkurven und Parameterwerte zu einfachen kritischen Systemen bereitstellen. Typischerweise enthalten alle diese Handbücher oder Datensammlungen Informationen zu kritischen Systemen mit metallischem Uran bzw. Plutonium sowie mit Uran- bzw. Plutoniumoxid (UO_2 bzw. PuO_2). Häufig sind auch Informationen zu kritischen Systemen mit Uranylнитrat bzw. Plutoniumnitrat enthalten. In einigen Handbüchern bzw. Datensammlungen werden darüber hinaus auch noch weitere Stoffverbindungen berücksichtigt; welche dies sind und in welchem Ausmaß sie behandelt werden, ist vom Herausgeber und dem primär vorgesehenen Zweck bzw. Nutzerkreis abhängig.

Für einen Vergleich mit den hier neugerechneten Parameterkurven wurden, soweit öffentlich verfügbar, aktuelle Versionen bekannter Handbücher und neuere Datensammlungen herangezogen. Im Einzelnen sind dies das „Nuclear Criticality Safety Handbook“ des Japan Atomic Energy Research Institute (JAERI) /JAE 01/ von 2001 sowie die dazu 2006 durch Okuno et al. /OKU 06/ veröffentlichten aktualisierten Parameterwerte. Des Weiteren wurden die in Teilen aktualisierte (vgl. /MEN 06/) und seit einigen Jahren auch in elektronischer Form unter dem Namen „CritView“ /FIN 11/, /FIN 09/ über das Lawrence Livermore National Laboratory (LLNL) /LAW 17/ verfügbare Version des „Criticality Handbook“ der Atlantic Richfield Hanford Company (auch als ARH600 bekannt) /CAR 68/ für den Vergleich verwendet, wie auch den „Nuclear Criticality Safety Guide“ des Los Alamos National Laboratory (LANL) /PRU 96/ und eine Zusammenstellungen kritischer Parameter des Oak Ridge National Laboratory (ORNL) /FOX 05/. Ebenfalls mit einbezogen wurde eine Zusammenstellung von kritischen Parametern der OECD-NEA Working Party on Nuclear Criticality Safety (WPNCS) Expert Group on Minimum Critical Values (EGMCV) /MEN 06/, welche in Form einer ausführlichen Studie zum Thema „kritische Parameter“ aus einer Reihe von entsprechenden Arbeiten verschiedener Expert Group-Teilnehmern erstellt wurde. Alle diese Handbücher oder Datensammlungen

enthalten in der Regel die charakteristischen Minima der enthaltenen Parameterkurven, also z. B. die kleinste kritische Spaltstoffmasse, das kleinste kritische Kugelvolumen, den kleinsten kritischen Zylinderdurchmesser oder die kleinste kritische Schichtdicke, bereits als Zahlenwerte, so dass im Weiteren diese Werte für den Vergleich mit den hier gerechneten Parameterkurven genutzt werden.

Außer den genannten Handbüchern und Datensammlungen gibt es noch eine Vielzahl weiterer, insbesondere älterer Veröffentlichungen, wie z. B. das „Handbook of criticality data“ der britischen Aufsichtsbehörde /CHA 65/. Auf die Berücksichtigung dieser weiteren Datensammlungen für den Vergleich mit den hier neugerechneten Parameterkurven wurde verzichtet. Zum einen enthalten diese, wie im Fall des genannten britischen Handbuchs, keine Informationen zu einem im vorliegenden Projekt nachgerechneten Stoffsystem, zum anderen sind durch Weiterentwicklungen der Wirkungsquerschnittsbibliotheken und Stoffdichteparametrisierungen vor allem Unterschiede zu älteren Arbeiten zu erwarten, so dass mit zunehmendem Alter aufgrund der weiterentwickelten Datenbasis die Aussagekraft eines Vergleichs deutlich abnimmt.

Wie bereits erwähnt beinhalten nicht alle hier betrachteten Veröffentlichungen Informationen zu den gleichen Stoffsystemen, auch sind beim Vergleich einige Besonderheiten in den Berechnungen der kritischen Parameterkurven bzw. -werte einzelner Veröffentlichungen zu berücksichtigen. So beinhaltet das „Nuclear Criticality Safety Handbook“ /JAE 01/ des JAERI lediglich zwei der sechs im vorliegenden Projekt nachgerechneten Stoffsysteme (vgl. Tab. 3.1). Diese sind UranylNitrat und Ammoniumdiuranat (ADU), wobei JAERI für ADU mit $(\text{UO}_3)_3\text{NH}_3 \times 5\text{H}_2\text{O}$ eine gegenüber der GRS leicht abweichende chemische Zusammensetzung verwendet. Gleiches gilt für die aktualisierten Nachrechnungen von Okuno et al. /OKU 06/. Zudem gibt Okuno et al. Zahlenwerten nur für sogenannte minimale Werte von angenommenen unteren Grenzwerten der kritischen Parameter („minimum values of estimated lower limit critical parameters“) an, d. h. die den kritischen Parametern entsprechenden Parameterwerte bei $k_{\text{eff}} = 0,98$ anstelle von $k_{\text{eff}} = 1,0$. Zwar werden in /OKU 06/ auch die kritischen Parameterkurven grafisch wiedergegeben, allerdings sind diese Grafiken zu klein, um daraus die jeweiligen Minima in hinreichender Genauigkeit für einen Vergleich ablesen zu können. Daher ist in diesem Fall nur ein Vergleich mit den unteren Grenzwerten („lower limits“) möglich. Für den Vergleich ist zudem zu beachten, dass Okuno et al. gegenüber dem Handbuch eine aktualisierte Dichteparametrisierung für UranylNitrat verwendete, was eine wesentliche Ursache für die zu beobachtenden Unterschiede in den Parameterwerten beider Arbeiten ist

/OKU 06/. Zusätzlich wurden unterschiedliche Berechnungssysteme genutzt. So wurde für die Berechnung der kritischen Parameterkurven im Handbuch der Neutronentransportcode KENO-IV mit Wirkungsquerschnittsdaten basierend auf ENDF/B-IV verwendet /JAE 01/, wohingegen Okuno et al. den japanischen Neutronentransportcode MVP mit der Wirkungsquerschnittsbibliothek JEFF-3.2 einsetzte /OKU 06/.

Für die digitale Version „CritView“ /FIN 11/ des LLNL wurde bislang nur einen Teil der im „Criticality Handbook“ /CAR 68/ der Atlantic Richfield Hanford Company (ARH) enthaltenen Parameterkurven digitalisiert. Darunter sind auch die für Uranyl Nitrat, welche hier für den Vergleich genutzt wurden. Zwar werden die jeweiligen kleinsten kritischen Parameterwerte hier nicht direkt angegeben, die digitalisierten Parameterkurven liegen aber in Form von Tabellenwerten in einer Textdatei vor, so dass die Minima daraus leicht extrahiert werden können. Dabei wurde in diesem Fall der jeweils kleinste Tabellenwert als Näherungswert für das jeweilige Minimum verwendet, womit die Minima mit einer Genauigkeit um 1 % gegeben sind, d. h. auf eine Interpolation zwischen Tabellenwerten für eine genauere Bestimmung der Minima wurde verzichtet. Zum verwendeten Rechen-code und Wirkungsquerschnittsbibliothek bzw. zur Handbuch-Version, aus welcher die Kurven für CritView entnommen wurden, enthält CritView keine Angaben, so dass die Aktualität der Daten zu Uranyl Nitrat an dieser Stelle nicht beurteilt werden kann. Die vorliegende gedruckte Version des Handbuchs enthält zwar auch Daten zu UO_3 , allerdings nur in Form von Grafiken /CAR 68/. Hier handelt es sich aber noch um ältere Parameterkurven aus dem ursprünglichen Veröffentlichungszeitraum des Handbuchs, so dass an dieser Stelle auf die digitale Aufbereitung dieser Kurven für ein hinreichend genaues Ablesen der Minima und damit auf den Vergleich mit den hier neugerechneten Kurven verzichtet wurde. Weitere hier nachgerechnete Stoffsysteme sind im „Criticality Handbook“ nicht enthalten.

Das Handbuch des LANL /PRU 96/ enthält von den hier nachgerechneten Stoffsystemen nur Informationen zu Uranyl Nitrat und UO_3 . Es werden allerdings nur die sogenannten unterkritischen Grenzwerte („subcritical limits“), also die Parameterwerte für $k_{eff} = 0,98$, und nicht die eigentlichen kritischen Parameterwerte angegeben. Für einen Vergleich sind zudem nur die Parameterwerte zu Uranyl Nitrat verwendbar, nicht aber zu UO_3 , da die vereinzelt Parameterwerte für letzteres nur für einen maximalen Wasseranteil von 1,5 Gew% (sehr schwach moderiert) ermittelt wurden, so dass sie nicht mit den im vorliegenden Projekt betrachteten UO_3 -Wasser-Gemischen vergleichbar sind. Auch ist zu berücksichtigen, dass nur Uranyl Nitrat-Konzentrationen bis zur gesättigten Lösung

betrachtet wurden. Das führt im Fall von geringen Anreicherungen dazu, dass die kleinsten kritischen Parameterwerte, die erst bei übersättigten Lösungen auftreten, nicht erreicht werden. Die Parameterwerte zum Uranylнитrat sind dem US-Standard ANSI/ANS-8.1-1983 „Nuclear Criticality Safety in Operations with Fissionable Materials Outside Reactors“ entnommen, die ihrerseits auf Arbeiten von H. K. Clark /CLA 82/ basieren. Abgeleitet wurden die Parameterwerte dort anhand von Rechnungen mit den eindimensionalen deterministischen Rechencodes TGAN und ANSIN mit Wirkungsquerschnittsbibliotheken basierend auf Hansen-Roach bzw. ENDF/B-IV (vgl. /CLA 82/). Diese Parameterwerte sind auch noch in der aktuellen Version dieses Standards ANSI/ANS 8.1 2014 /ANS 14/ gültig.

Ebenso enthält die Zusammenstellung kritischer Parameter des ORNL /FOX 05/ von den hier betrachteten Stoffsystemen nur Informationen zu Uranylнитrat. In diesem Fall werden aber wieder die eigentlichen kritischen Parameterwerte zu $k_{\text{eff}} = 1,0$ angegeben. Berechnet wurden die Parameterwerte mit der Sequenz CSAS1X des SCALE-Softwarepakets und der Wirkungsquerschnittsbibliothek ENDF/B-V (vgl. /FOX 05/)

Die Datensammlung der Working Party on Nuclear Criticality Safety /MEN 06/ enthält von den hier betrachteten Stoffsystemen nur Informationen zu Uranylнитrat. Die dort angegebenen Parameterwerte sind Mittelwerte, die sich aus entsprechenden Arbeiten der Teilnehmer ergaben. Von den Teilnehmern wurden dazu eine Vielzahl verschiedener Berechnungssysteme, u. a. SCALE und MCNP in verschiedenen Versionen, und Wirkungsquerschnittsbibliotheken, u. a. JEF-2.2, JEFF-3.2, ENDF/B-V und ENDF/B-VI.6, genutzt, so dass die in /MEN 06/ angegebenen Werte keinem einzelnen Berechnungssystem oder einer einzelnen Wirkungsquerschnittsbibliothek zugeordnet werden können. Für den Vergleich ist zu beachten, dass die Parameterwerte der Datensammlung des ORNL /FOX 05/ wie auch die damaligen Parameterwerte der GRS als je ein Teilnehmerbeitrag in die Studie der WPNCS eingegangen sind. Daher ist für den Vergleich dieser Datensammlungen mit den hier neu berechneten Werten zu beachten, dass vor allem die Werte aus /FOX 05/ und /MEN 06/ nicht vollständig unabhängig voneinander ermittelt sind.

Insgesamt sind somit Daten für Uranylнитrat und Ammoniumdiuranat für einen Vergleich verfügbar bzw. werden zu einem Vergleich herangezogen. Da mit Ausnahme des „Criticality Handbook“ der ARH /CAR 68/, /FIN 11/ alle anderen für den Vergleich berücksichtigten Handbücher und Datensammlungen diese Daten nur für vollreflektierte Systeme

mit Wasserreflektor angeben, beschränkt sich der Vergleich nur auf solche Systeme. Dabei ist zu beachten, dass vor allem in den US-amerikanischen Arbeiten bereits bei einem 25,6 cm (= 10 in) dicken Wasserreflektor, im französischen Datenwerk bei einem 20 cm dicken Wasserreflektor, anstelle des von der GRS verwendeten 30 cm dicken Wasserreflektor von einem vollreflektierten System gesprochen wird. Alle für den Vergleich genutzten Parameterwerte sind für Uranylinitrat in Tab. 3.12 und für Ammoniumdiuranat in Tab. 3.13 zusammengefasst. Der Vollständigkeit halber wurden auch Werte mit aufgenommen, zu denen die hier durchgeführten Neuberechnungen keine Entsprechung bieten.

Der Vergleich der recherchierten Parameterwerten mit den im vorliegenden Projekt neu berechneten Werten lässt für Uranylinitrat zwei wesentliche Tendenzen erkennen (Tab. 3.12). So stimmen zum einen die Parameterwerte der neueren hier betrachteten Arbeiten insgesamt – abgesehen von wenigen einzelnen Werten – gut mit denen der GRS überein; insbesondere ist die Übereinstimmung besser als mit den Werte der älteren betrachteten Arbeiten. Zum anderen zeigen sich bei kleinen ^{235}U -Anreicherungen in der Regel größere Diskrepanzen als bei größeren Anreicherungen. Konkret weichen die Parameterwerte von Okuno et al. /OKU 06/, des ORNL /FOX 05/ und der WPNCs /MEN 06/ in der Regel nicht mehr als etwa 6 % von den Werten der GRS ab, wobei Okuno et al. zumeist geringere Werte als die GRS und die anderen beiden Arbeiten zumeist größere Werte als die GRS angeben. Im Fall der Volumina, Zylinderradien, Schichtdicken und Konzentrationen liegen die Abweichungen vielfach sogar nur bei 1 % bis 3 %. Einzige regelmäßige Ausnahme bilden die Massen bei 3 Gew% ^{235}U -Anreicherung mit Diskrepanzen bis zu etwa 13 % gegenüber den GRS-Werten.

Die nächst größeren Diskrepanzen zu den GRS-Werten zeigt das Handbuch von JAERI /JAE 01/ und hier insbesondere im Fall der Massen mit zumeist Abweichungen zwischen 6 % und etwa 18 %. Für die übrigen Parameter (Volumina, Zylinderradien, Schichtdicken, Konzentrationen und Anreicherungen) sind in der Regel Abweichungen um 5 %, teils auch darunter, zu beobachten. Zudem liegen die Parameterwerte von JAERI zumeist höher als diejenigen der GRS.

Bei Vergleich mit dem Parameterwerten des Handbuchs des LANL /PRU 96/ ist, wie bereits erwähnt, zu berücksichtigen, dass dort nur Uranylinitrat-Konzentrationen bis zur Sättigung berücksichtigt wurden. Folglich weisen alle Parameterwerte für die ^{235}U -Anreicherungen von 4 Gew% und 5 Gew% deutliche Diskrepanzen von bis zu 140 %

gegenüber den GRS-Werten auf, da die kleinsten kritischen Parameterwerte erst bei übersättigten Lösungen, wie in den GRS-Rechnungen berücksichtigt, erreicht werden. Für die größeren ²³⁵U-Anreicherungen von 10 Gew% und 100 Gew% liegen dagegen nur Abweichungen von maximal 5 % vor, wie auch schon in den zuvor diskutierten Vergleichen. Dabei sind die Parameterwerte des LANL zumeist größer als diejenigen der GRS.

Die insgesamt größten Abweichungen zu den Parameterwerten der GRS (abgesehen vom Konzentrationseffekt im Fall des LANL) zeigen die Werte des Handbuchs der ARH /CAR 68/, /FIN 11/. Für die kleinste kritische Masse bzw. das kleinste kritische Volumen liegen Diskrepanzen zwischen 10 % und etwa 80 %, für die übrigen Parameter zwischen 10 % und 23 % vor. Dabei treten auch hier die größeren Abweichungen bei den kleinen ²³⁵U-Anreicherungen auf und nehmen mit ansteigender Anreicherung ab. Die im Handbuch der ARH angegebenen Parameterwerte sind zudem in allen Fällen größer als die im vorliegenden Projekt berechneten Werte.

Tab. 3.12 Vergleich der kritischen Parameter für Uranylinitrat ($\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2 \times 6\text{H}_2\text{O}$) in wässriger Lösung mit Wasser-Reflektor

Parameter	Anreicherung [Gew%]	Wert aus Referenz						
		GRS 2019	/JAE 01/	/OKU 06/	/CAR 68/, /FIN 09/	/PRU 96/	/FOX 05/	/MEN 06/
Kleinste kritische Masse [kgU]	2,5	1510	-	-	2430	-	-	-
	3,0	456	470	-	625	-	491	502,3
	4,0	143	164	-	174	-	149,1	151,3
	5,0	74,8	82,2	-	86,7	-	76,8	78,36
	6,0	48,0	-	-	53,7	-	-	-
	20,0	-	-	-	-	-	6,0	6,134
	93,5	-	-	-	0,914	-	-	-
	100,0	0,822	-	-	0,848	-	0,808	0,824
Unterer Grenzwert („Lower limit“) Masse [kgU]	3,0	347	369	305	-	-	-	-
	4,0	118	124	111	-	162,5 ^{2,3}	-	-
	5,0	63,8	70,0	61,5	-	66,0 ²	-	-
	6,0	41,6	-	40,2	-	-	-	-
	7,0	30,0	-	29,3	-	-	-	-

Parameter	Anreicherung [Gew%]	Wert aus Referenz						
		GRS 2019	/JAE 01/	/OKU 06/	/CAR 68/ /FIN 09/	/PRU 96/	/FOX 05/	/MEN 06/
	10,0	15,6	-	15,0	-	14,7 ²	-	-
	20,0	-	-	5,19	-	-	-	-
	100,0	0,751	-	-	-	0,78	-	-
Kleinstes kriti- sches Kugel- volumen [l]	2,5	1140	-	-	2043	-	-	-
	3,0	363	393	-	588	-	405	409,8
	4,0	135	160	-	195	-	146,3	142,0
	5,0	80,6	88,7	-	110	-	86,1	85,93
	6,0	57,7	-	-	75,7	-	-	-
	20,0	-	-	-	-	-	16,3	16,42
	93,5	-	-	-	7,60	-	-	-
	100,0	6,69	-	-	7,32	-	6,8	6,836
„Lower limit“ Kugelvolu- men [l]	3,0	280	329	243	-	-	-	-
	4,0	113	129	110	-	273,0 ³	-	-
	5,0	69,7	74,3	69,1	-	111,0 ³	-	-
	6,0	50,6	-	50,1	-	-	-	-
	7,0	40,1	-	40,0	-	-	-	-
	10,0	26,0	-	25,7	-	26,7	-	-
	20,0	-	-	14,3	-	-	-	-
	100,0	6,16	-	-	-	6,2	-	-
Kleinstes kriti- scher Zylind- erdurchmes- ser [cm]	2,5	95,8	-	-	117	-	-	-
	3,0	64,4	67,4	-	75,8	-	66,96	67,19
	4,0	45,4	47,9	-	51,7	-	46,89	46,81
	5,0	37,8	38,0	-	42,2	-	38,79	38,74
	6,0	33,5	-	-	36,9	-	-	-
	20,0	-	-	-	-	-	21,04	21,08
	93,5	-	-	-	15,7	-	-	-
	100,0	14,9	-	-	15,5	-	15,04	15,07
„lower limit“ Zylinder- durchmesser [cm]	3,0	58,8	61,5	55,7	-	-	-	-
	4,0	42,7	44,8	41,8	-	58,6 ³	-	-
	5,0	35,9	36,3	35,6	-	42,7 ³	-	-
	6,0	31,9	-	31,9	-	-	-	-

Parameter	Anreicherung [Gew%]	Wert aus Referenz						
		GRS 2019	/JAE 01/	/OKU 06/	/CAR 68/ /FIN 09/	/PRU 96/	/FOX 05/	/MEN 06/
	7,0	29,3	-	29,2	-	-	-	-
	10,0	25,0	-	25,0	-	25,2	-	-
	20,0	-	-	20,0	-	-	-	-
	100,0	14,4	-	-	-	14,4	-	-
Kleinste kritische Schichtdicke [cm]	2,5	57,6	-	-	70,9	-	-	-
	3,0	37,1	37,6	-	44,5	-	38,72	38,83
	4,0	24,8	25,9	-	28,7	-	25,77	25,69
	5,0	19,9	20,2	-	22,6	-	20,57	20,49
	6,0	17,1	-	-	19,3	-	-	-
	20,0	-	-	-	-	-	9,24	9,282
	93,5	-	-	-	5,81	-	-	-
	100,0	5,2	-	-	5,58	-	5,44	5,447
„lower limit“ Schichtdicke [cm]	3,0	33,4	34,1	31,8	-	-	-	-
	4,0	23,0	24,1	22,6	-	33,7 ³	-	-
	5,0	18,7	19,1	18,5	-	23,4 ³	-	-
	6,0	16,1	-	16,1	-	-	-	-
	7,0	14,4	-	14,5	-	-	-	-
	10,0	11,7	-	11,7	-	11,9	-	-
	20,0	-	-	8,58	-	-	-	-
	100,0	4,84	-	-	-	4,9	-	-
Kleinste kritische Konzentration [gU/l]	3,0	634,0	-	-	-	-	624,6	630,4
	4,0	427,0	-	-	-	-	415,5	417,9
	5,0	317,5	-	-	-	-	311,5	313,4
	20,0	-	-	-	-	-	65,0	65,02
	100,0	12,18	12,5	-	-	-	12,25	12,27
„lower limit“ Konzentration [gU/l]	100,0	-	11,8	-	-	11,6	-	-
Kleinste kritische Anreicherung [Gew%]	-	2,09 ⁴	1,95 ¹	-	-	-	-	-

Parameter	Anreicherung [Gew%]	Wert aus Referenz						
		GRS 2019	/JAE 01/	/OKU 06/	/CAR 68/ /FIN 09/	/PRU 96/	/FOX 05/	/MEN 06/
„lower limit“ Anreicherung [Gew%]	-	1,98 ⁴	1,90	-	-	-	-	-

¹ keff = 0,991

² Massenlimits für U aus angegebenen Massenlimits für ²³⁵U errechnet

³ Wert für gesättigte Lösung, bei Berücksichtigung höherer Konzentrationen ergeben sich kleinere Parameterwerte

⁴ Werte mit den Anreicherungen 2,0 Gew% ($k_{inf} = 0,9833$) und 2,5 Gew% ($k_{inf} = 1,0737$) inter- bzw. extrapoliert

Für Ammoniumdiuranat geben das Handbuch des JAERI und Okuno et al. ähnliche Parameterwerte an, so dass sie entsprechend ähnliche Abweichungen zu den hier neu berechneten Werten aufweisen. Im Fall der Massen und Volumina zeigen die Parameterwerte beider Arbeiten Abweichungen zu den Werten der GRS zwischen 10 % und 35 %. Dagegen weisen die entsprechenden Parameterwerte zu Zylinderdurchmesser und Schichtdicken nur etwa halb so große Abweichungen zwischen 4 % und 18 % auf. Auch hier treten die größeren Abweichungen typischerweise bei den kleinen ²³⁵U-Anreicherungen auf und nehmen mit ansteigender Anreicherung ab. Wie bereits erwähnt, werden in den beiden japanischen Arbeiten eine andere chemische Zusammensetzung für Ammoniumdiuranat als bei den hier durchgeführten Rechnungen verwendet. Daher ist der Vergleich der Parameterwerte mit entsprechender Vorsicht zu bewerten, da zu vermuten ist, dass zumindest ein Teil der Abweichungen in den unterschiedlichen chemischen Zusammensetzungen begründet ist.

Tab. 3.13 Vergleich der kritischen Parameter für Ammoniumdiuranat (ADU, $(\text{NH}_4)_2\text{U}_2\text{O}_7$) in wässriger Lösung mit Wasser-Reflektor

Parameter	Anreicherung [Gew%]	Wert aus Referenz		
		GRS 2019	/JAE 01/ ¹	/OKU 06/ ¹
Kleinste kritische Masse [kgU]	3,0	174	112	-
	4,0	79,5	63,0	-
	5,0	48,5	41,4	-
Unterer Grenzwert	3,0	143	102	95,9
	4,0	68,0	54,1	51,7
	5,0	42,2	37,7	33,8

Parameter	Anreicherung [Gew%]	Wert aus Referenz		
		GRS 2019	/JAE 01/ ¹	/OKU 06/ ¹
„Lower limit“ Masse [kgU]	6,0	29,8	-	25,0
	7,0	22,7	-	19,8
	10,0	12,9	-	11,5
	20,0	-	-	4,71
Kleinstes kriti- sches Kugelvolu- men [l]	3,0	96,4	62,2	-
	4,0	53,0	38,7	-
	5,0	37,4	30,1	-
„Lower limit“ Ku- gelvolumen [l]	3,0	80,6	55,1	54,5
	4,0	45,9	36,0	35,3
	5,0	32,9	27,9	26,4
	6,0	26,3	-	22,1
	7,0	22,3	-	19,1
	10,0	16,3	-	14,6
	20,0	-	-	9,86
Kleinstes kriti- scher Zylinder- durchmesser [cm]	3,0	40,3	35,1	-
	4,0	32,5	29,4	-
	5,0	28,6	26,7	-
„lower limit“ Zylin- derdurchmesser [cm]	3,0	37,8	32,8	32,9
	4,0	30,8	28,1	27,9
	5,0	27,3	25,8	25,4
	6,0	25,1	-	23,6
	7,0	23,6	-	22,3
	10,0	21,0	-	20,1
	20,0	-	-	17,3
Kleinste kritische Schichtdicke [cm]	3,0	21,5	17,5	-
	4,0	16,5	14,1	-
	5,0	14,0	12,7	-
„lower limit“ Schichtdicke [cm]	3,0	19,9	16,6	16,8
	4,0	15,4	13,8	13,7
	5,0	13,1	12,0	12,0

Parameter	Anreicherung [Gew%]	Wert aus Referenz		
		GRS 2019	/JAE 01/ ¹	/OKU 06/ ¹
	6,0	11,8	-	10,8
	7,0	10,7	-	10,1
	10,0	9,06	-	8,68
	20,0	-	-	6,84

¹ /JAE 01/ und /OKU 06/ verwenden für ADU die chemische Zusammensetzung:
 $(\text{UO}_3)_3\text{NH}_3 \times 5\text{H}_2\text{O}$

4 Implementierung und Validierung moderner Rechenverfahren

4.1 Nachrechnungen kritischer Experimente zur Validierung der SCALE-Sequenz CSAS5

Im Vorhaben 3611R03330 /BEH 14b/ wurde eine exemplarische Validierung der Sequenz CSAS5 des SCALE-Softwarepakets in der damaligen Version 6.1.2 /ORNL 11/ mithilfe von Nachrechnungen von mehr als 500 kritischen Experimentkonfigurationen aus den LEU-COMP-THERM-, LEU-SOL-THERM- und MIX-COMP-THERM-Serien des „International Handbook of Evaluated Criticality Safety Benchmark Experiments“ (ICSBEP) /NEA 12/ durchgeführt. Diese Experimente wurden erneut mit der aktuelleren SCALE-Version 6.2.1 /REA 16/ nachgerechnet, um mögliche Auswirkungen der Weiterentwicklung von SCALE auf die Übereinstimmung mit experimentellen Messungen und damit auf eine Validierung bzw. konkrete Bias-Bestimmungen zu evaluieren. Der Wechsel der SCALE-Versionen von 6.1 nach 6.2 ist dabei insofern besonders, da für die Version 6.2 umfangreiche Überarbeitungen und Neuimplementierungen stattgefunden haben (z. B. Integration der evaluierten ENDF/B-VII.1 Bibliothek inkl. Kovarianzdaten, veränderte interne Datenhandhabung, oder parallele Rechenmöglichkeit von KENO. Eine Übersicht findet sich in /OAK 16/). Daher wurde hier der Schwerpunkt bei der Analyse der Experimentnachrechnungen so gewählt, dass insbesondere mögliche Auswirkungen durch die Neuimplementierungen identifiziert werden konnten. Dies erforderte, dass die Eingabedaten für die einzelnen Nachrechnungen u. a. in möglichst unveränderter Form im Vergleich zum Vorhaben 3611R03330, insbesondere mit derselben Wirkungsquerschnittsbibliothek (hier ENDF/B-VII.0 in 238 Energiegruppen) genutzt werden, damit als möglichst einzige Änderungen nur die neue Codeversion zum Tragen kam.

Die Abb. 4.1 und Abb. 4.2 geben einige exemplarische Resultate der Experimentnachrechnungen mit der Sequenz CSAS5 aus SCALE 6.1.2 und SCALE 6.2.1 mit identischen Eingabedaten wieder. Insgesamt zeigen die Resultate, dass im Fall der nachgerechneten Experimente aus Brennstäben in Wasser die Version 6.2.1 gegenüber der früheren Version 6.1.2 typischerweise zu einem Anstieg im Neutronenmultiplikationsfaktor in der Größenordnung von etwa 60 pcm führt, z. B. LEU-COMP-THERM-001 oder LEU-COMP-THERM-006 (Abb. 4.1). Für einzelne Experimentserien sind mit bis zu 140 pcm auch größere Anstiege zu beobachten, z. B. LEU-COMP-THERM-014 (Abb. 4.2). Ebenfalls nachgerechnet wurde eine Anzahl an Experimenten aus Uranlösungen, welche in

der Regel deutlich geringere Differenzen in der Größenordnung von nur etwa 25 pcm zwischen den beiden SCALE-Versionen zeigen. Dabei führt in diesen Fällen die Version 6.2.1 aber typischerweise zu geringeren Neutronenmultiplikationsfaktoren, z. B. LEU - SOL-THERM-019 (Abb. 4.2). Die größten Differenzen für diesen Experimenttyp sind beim Experiment LEU-SOL-THERM-002-002 (Abb. 4.2) mit bis zu 60 pcm zu finden. Berücksichtigt man die statistischen Unsicherheiten von ± 2 pcm, mit der die errechneten Neutronenmultiplikationsfaktoren jeweils bestimmt wurden, so erweisen sich die Änderungen zwischen den SCALE-Versionen als statistisch signifikant.

Beim Vergleich mit den Experimenten fällt auf, dass die errechneten Neutronenmultiplikationsfaktoren die experimentellen Benchmark-Werte für die Experimente aus Brennstäben in Wasser in der Regel unterschätzen und für die Experimente mit Uranlösung in der Regel überschätzen. Die Änderungen in den errechneten Neutronenmultiplikationsfaktoren beim Wechsel der Version SCALE 6.1.2 zur Version SCALE 6.2.1 führt somit für die Mehrzahl der nachgerechneten Experimente zu einer Annäherung der errechneten Werten an die experimentellen Benchmark-Werte. Wird diese Annäherung aber in Relation zu den Abweichungen der errechneten Neutronenmultiplikationsfaktoren von ihren experimentellen Benchmark-Werten sowie in Relation zu den Unsicherheiten der Benchmark-Werte gesetzt, erweist sie sich als vergleichsweise klein. So betragen die Abweichungen der errechneten Neutronenmultiplikationsfaktoren von den jeweiligen experimentellen Werten in der Regel um 100 pcm bis einige 100 pcm. Ebenso liegen die Unsicherheiten der Benchmark-Werte typischerweise in der Größenordnung von mehreren 100 pcm. Zur Veranschaulichung sind diese Unsicherheiten in Abb. 4.1 und Abb. 4.2 mit dargestellt. Dementsprechend sind die Differenzen zwischen den beiden Sätzen an Nachrechnungen in der Regel deutlich kleiner als die Abweichungen zu den experimentellen Werten bzw. deren Unsicherheiten. Folglich ändert sich auch die qualitative Beurteilung der einzelnen Nachrechnungen bezüglich ihrer jeweiligen Übereinstimmung mit dem Experiment nicht nennenswert. Das bedeutet, dass Nachrechnungen, die mit SCALE 6.1.2 gut mit dem Experiment übereinstimmten, auch weiterhin mit SCALE 6.2.1 ähnlich gute Übereinstimmungen mit dem Experiment zeigen, und Nachrechnungen, die mit SCALE 6.1.2 signifikante Abweichungen zum Experiment aufwiesen, ebenso mit SCALE 6.2.1 ähnlich signifikante Diskrepanzen zum Experiment zeigen.

Insgesamt zeigt somit der Vergleich der Sequenzen CSAS5 aus den SCALE-Versionen 6.1.2 und 6.2.1 unter der Voraussetzung identischer Eingabedatensätze zwar signifikante, aber im Vergleich zur Übereinstimmung mit experimentellen Messungen nur

geringfügige Änderungen. Dementsprechend weisen für den hier betrachteten Anwendungsbereich beide Versionen der Sequenz CSAS5 eine vergleichbare Qualität in der Berechnung des Neutronenmultiplikationsfaktors auf.

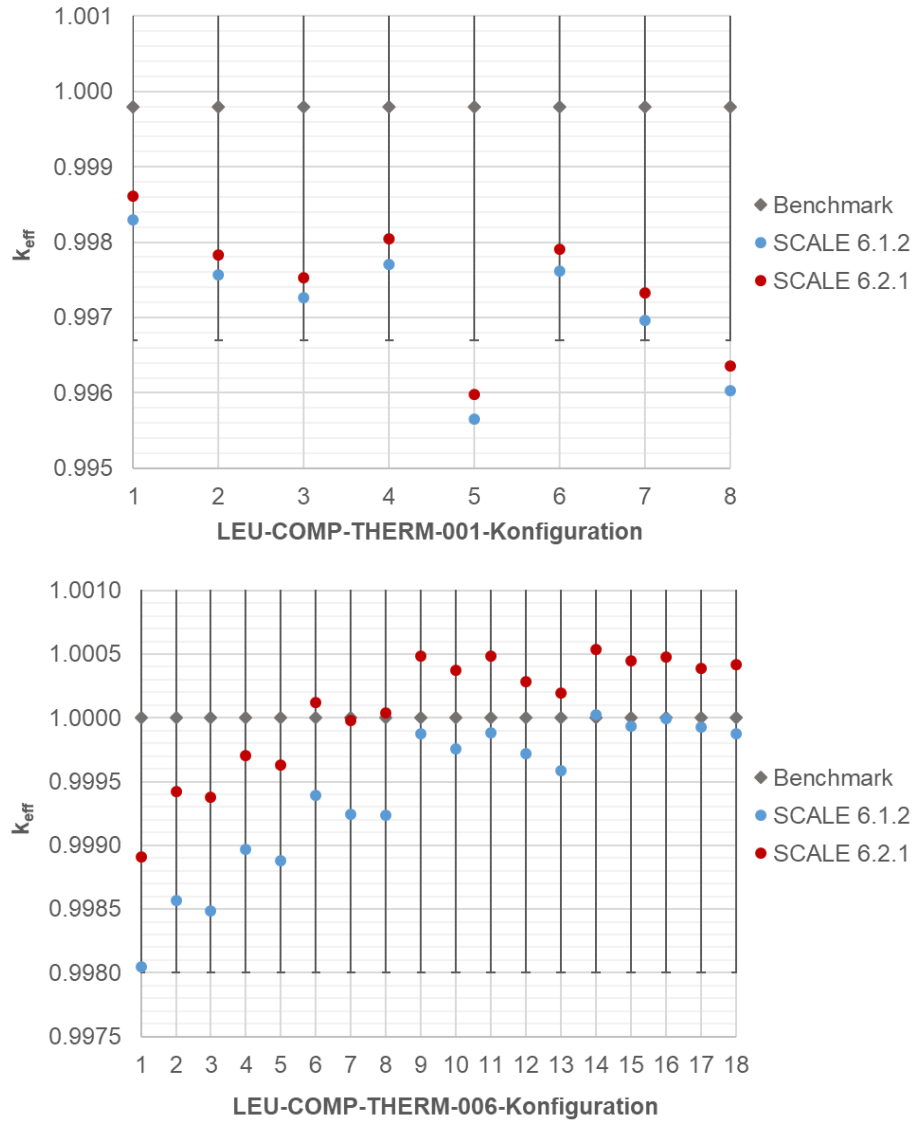


Abb. 4.1 Ausgewählte Vergleiche der Experimentnachrechnungen mit SCALE 6.1.2 und SCALE 6.2.1 (LCT-Serie 001 und 006)

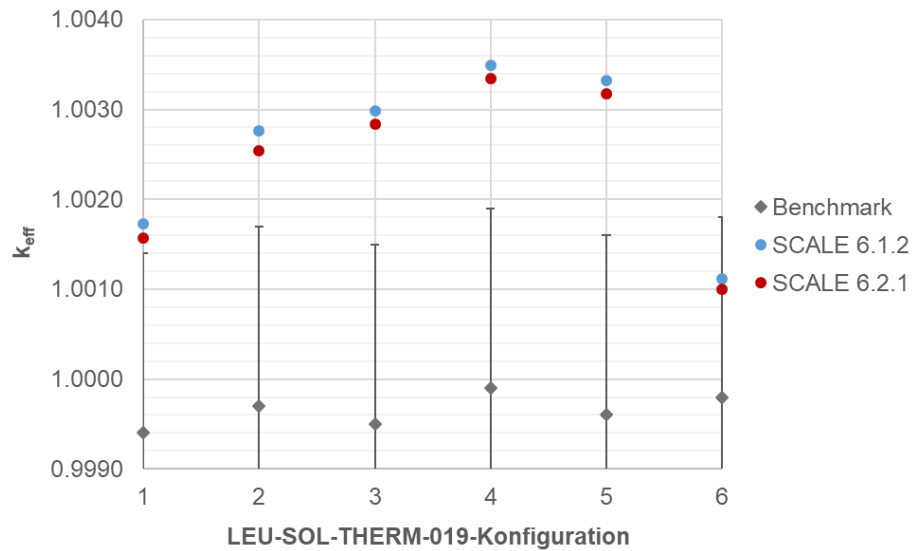
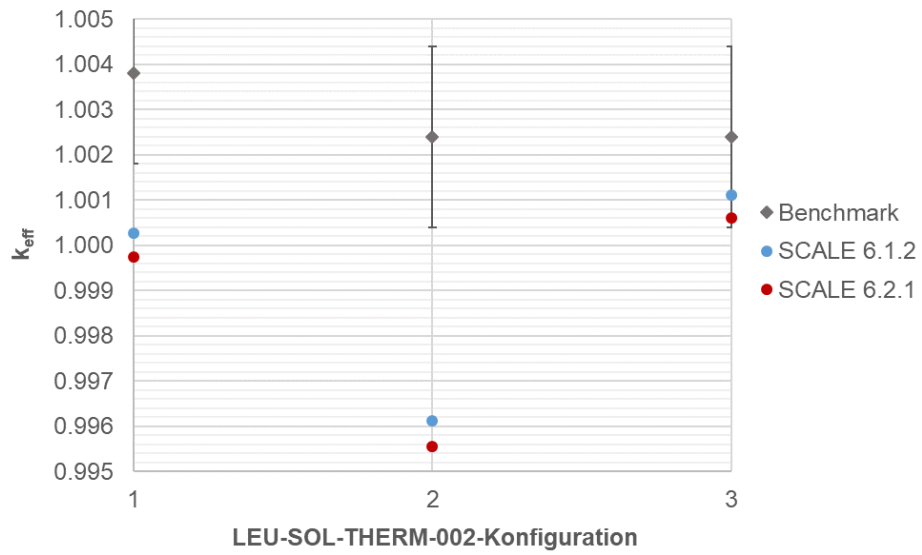
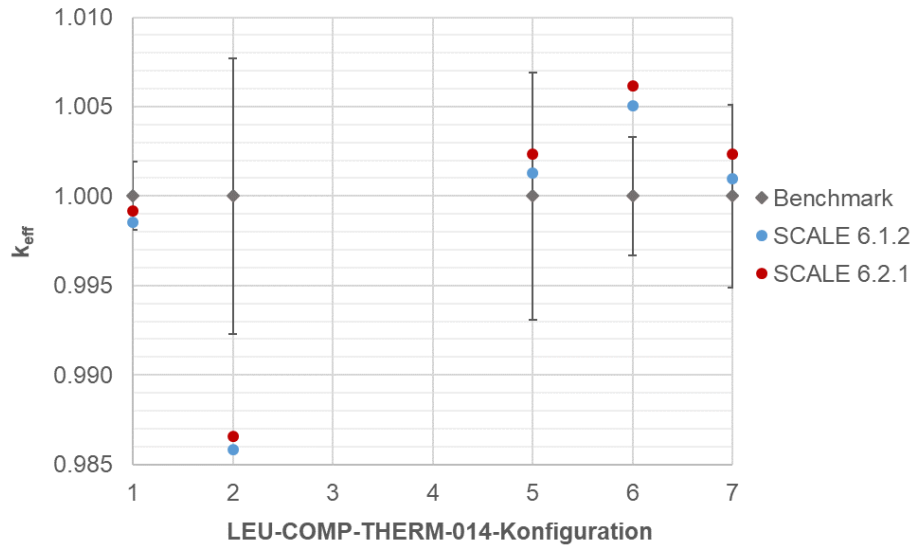


Abb. 4.2 Ausgewählte Vergleiche der Experimentnachrechnungen mit SCALE 6.1.2 und SCALE 6.2.1 (LCT-Serie 014 sowie LST-Serien 002 und 019)

4.2 Vergleich von Abschirmrechnungen mit Monaco/MAVRIC und MCNP

In dem vorangegangenen Vorhaben 3610R03350 /KIL 13/, /BOC 12/ wurden zwei Serien von Abschirmungsexperimenten mit dem Monte Carlo-Strahlungstransportcode Monaco bzw. dem Codesystem für Abschirmrechnungen MAVRIC des SCALE-Pakets /ORNL 11/ und MCNP 5 /X-5 08/ nachgerechnet. Eine dieser Serien wurde dem „International Handbook of Evaluated Criticality Safety Benchmark Experiments“ (ICSBEP) /NEA 12/ entnommen und wird dort unter der Bezeichnung ALARM-CF-FE-SHIELD-001 geführt. Der experimentelle Aufbau besteht aus einer in Eisenhohlkugeln mit verschiedenen Wandstärken eingebrachte ^{252}Cf -Quelle, für welche außerhalb der Eisenabschirmungen Neutronen- und Gammaspektren vermessen wurden (Abb. 4.3). Die zweite Serie beinhaltete eine Reihe von Messungen von Ueki et al. /UEK 87/, /UEK 96/, /SCA 10/, in denen die Abschirmwirkung unterschiedlich dicker Graphitblöcke auf die Neutronen einer ^{252}Cf -Quelle gemessen wurde (Abb. 4.4).

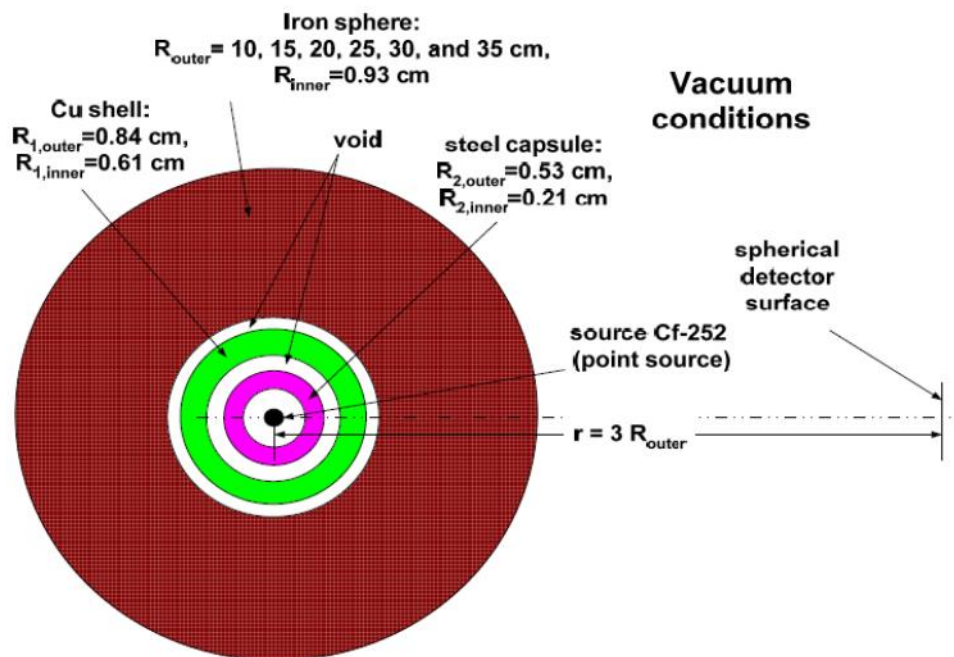


Abb. 4.3 Schematische Darstellung (nicht maßstabsgetreu) des Experiments ALARM-CF-FE-SHIELD-001 /NEA 12/

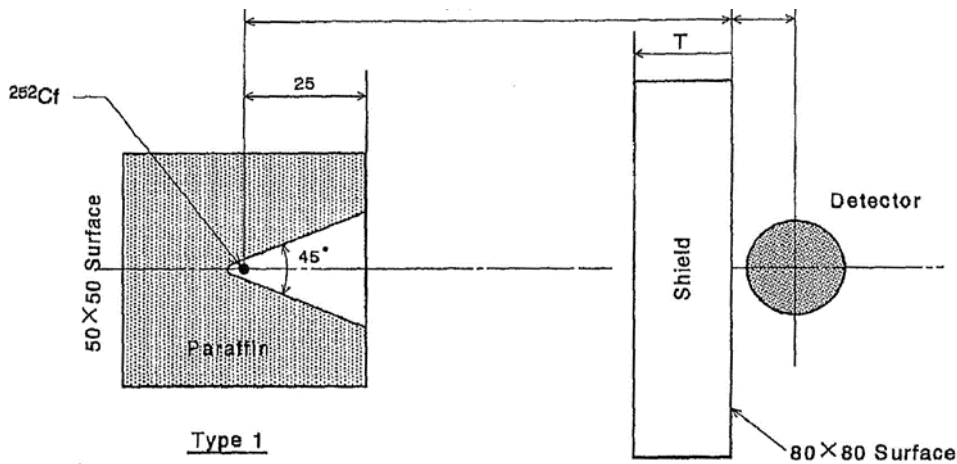


Abb. 4.4 Schematischer Skizze des experimentellen Aufbaus der Experimente von Ueki et al. /UEK 96/

In den damaligen Nachrechnungen des Vorhabens 3610R03350 zeigte sich in den mit Monaco/MAVRIC erzielten Ergebnissen für die Experimentserie von Ueki et al. eine auffällige und in dieser Ausprägung unerwartete Abhängigkeit von der Definition der Neutronenquelle in den Monaco-Eingabedaten, die zum damaligen Zeitpunkt keiner konkreten Ursache zuzuordnen werden konnte. Zudem führte die in den Monaco/MAVRIC-Nachrechnungen als Standardfall gewählte Punktquellendefinition zu erheblichen Unterschieden zu den experimentellen Werten sowie zu den MCNP-Resultaten. Es wurden bis zu 65 % Diskrepanz im Vergleich zu den experimentellen Neutronenflussabschwächungsfaktoren (Verhältnis aus Neutronenfluss mit und ohne Abschirmung), sowie bis zu einem Faktor 2 Diskrepanz in den errechneten Neutronenflussabschwächungsfaktoren und bis zu einem Faktor 4 in den errechneten Neutronenflussspektren im Vergleich zu den MCNP-Resultaten berechnet (vergl. /KIL 13/). Dagegen zeigten die MCNP-Resultate mit einer Abweichung von maximal 8% eine erheblich bessere Übereinstimmung mit den experimentellen Werten. Da insbesondere keine physikalische Erklärung für dieses Verhalten gefunden wurde, wäre ein nicht erkannter Fehler in den Eingabedaten oder ggf. auch ein Programmfehler in Monaco bzw. MAVRIC oder ein Fehler in der Gruppenstruktur der Bibliothek als Ursache denkbar. Tatsächlich wurden im Laufe der weiteren Entwicklung des SCALE-Pakets Fehler in der MAVRIC-Sequenz der damals verwendeten SCALE-Version 6.1 gefunden und in den neueren Versionen 6.1.1 bzw. 6.2 korrigiert /REA 12/. Aus diesem Grund wurden in dem vorliegenden Vorhaben die damaligen Rechnungen für die betrachtete Experimentserie von Ueki et al. mit der SCALE-Version 6.2.2 wiederholt, um der offenen Frage nach dem ungewöhnlichen Verhalten der Resultate weiter nachzugehen.

Ebenso ist in der Zwischenzeit durch die Veröffentlichung des Programms ADVANTG /MOS 15/ ein zur Sequenz MAVRIC analoges Konzept auch für MCNP 5 verfügbar². Bei diesem werden analog zu MAVRIC ebenfalls Varianzreduktionsparameter, sog. „Weight Windows“, mit dem deterministischen Transportcode DENOVO für das zu untersuchende System vorgerechnet, die anschließend in der Monte Carlo-Rechnung mit MCNP zur Varianzreduktion eingebunden werden können. Da die Berechnung der Varianzreduktionsparameter durch ADVANTG weitgehend automatisiert und deutlich weniger Rechenzeit-intensiv als die von MCNP direkt zur Verfügung gestellten Methoden ist, ist von ADVANTG eine deutliche Vereinfachung für den Anwender zu erwarten. Auch deuteten die damaligen Resultate des Vorhabens 3610R03350 bei der Verwendung der von MAVRIC berechneten Varianzreduktionsparameter in MCNP für die Experimentserie von Ueki et al. an, dass durch solche deterministisch vorgerechneten Weight Windows nochmals ein Gewinn in der Varianzreduktion gegenüber den von MCNP bereitgestellten Methoden möglich ist. Daher ist zu erwarten, dass eine solche Möglichkeit auch bei Verwendung von ADVANTG besteht. Dementsprechend wurden im vorliegenden Vorhaben die Experimentserie von Ueki et al. auch unter Verwendung von ADVANTG nachgerechnet und mit den damaligen Resultaten verglichen.

Im Detail sind diese Arbeiten in dem technischen Bericht /BEH 19a/ beschrieben. Das wesentliche Ergebnis der erneuten Nachrechnungen der Experimentserie von Ueki et al. mit Monaco/MAVRIC ist, dass entgegen der ersten Vermutung weniger ein Programmfehler in Monaco oder MAVRIC, sondern viel mehr ein nicht erkannter Fehler in den Eingabedaten der früheren Rechnungen die Ursache für die unerwartete Abhängigkeit der Resultate von der Definition der Neutronenquelle war. So wurde die in den Rechnungen standardmäßig verwendete Punktquelle versehentlich auf eine der Grenzflächen der Geometriebeschreibung positioniert, was zu fehlerhaften Resultaten führte. Diese Fehlerquelle ist allerdings im Programmcode nicht abgefangen, sondern es ist Aufgabe des Anwenders hierauf zu achten. Entsprechend wurde nun die Punktquelle um 0,1 mm in den Eingabedaten in Richtung der Kegelöffnung versetzt (vergl. Abb. 4.4), und damit die zuvor beobachtete erhebliche Abhängigkeit der Resultate von der Quellendefinition wie auch die großen Diskrepanzen zu den experimentellen Resultaten beseitigt.

² Entwickelt wurde ADVANTG für MCNP 5. Unterschiede von MCNP X/6 zu MCNP 5 können daher zur Inkompatibilität mit ADVANTG führen. Die von ADVANTG mit einem MCNP 5-kompatiblen Eingabedatensatz erstellten Varianzreduktionsparametern können aber auch von MCNP X/6 genutzt werden.

In Abb. 4.5 sind die hier mit Monaco der SCALE-Version 6.2.2 und korrigierten Eingabedaten erzielten Ergebnisse für die Abschwächungsfaktoren, also den Verhältnissen aus den errechneten Neutronenflüssen an der Detektorposition mit und ohne Abschirmung, für verschiedene Wirkungsquerschnittsbibliotheken (ENDF/B-VII.0 in 27 und 200 Energiegruppen-Darstellung sowie ENDF/B-VII.1 in 28 Energiegruppen-, 200 Energiegruppen- und continuous energy-Darstellung) wiedergegeben. Zusätzlich sind in Abb. 4.6 die relativen Abweichungen der errechneten Werte von den experimentellen Resultaten zusammengestellt $((C-E)/E)$. Zum Vergleich enthält Abb. 4.6 zudem ein Beispiel der in den früheren Arbeiten beobachteten Abweichungen (lila Punkte). Insgesamt führen die aktuellen Rechnungen gegenüber den früheren Rechnungen zu deutlich verbesserten Resultaten gemessen an den experimentellen Werten. Insbesondere mit der Bibliothek in ENDF/B-VII.1 in *continuous energy*-Darstellung beträgt die Diskrepanz zu den experimentellen Werten in allen Fällen weniger als 5 %, wobei die experimentellen Unsicherheiten mit etwa 2,5 % anzusetzen sind /UEK 96/. Ebenso stimmen die Resultate dieser Bibliothek innerhalb von 3 % mit den Resultaten der MCNP-Rechnungen überein. Die Verwendung der Bibliotheken in Energiegruppen-Darstellung führt allerdings zu teils deutlich größeren Diskrepanzen. Die dürfte im Wesentlichen aufgrund einer unterschiedlich guten Eignung der verschiedenen Energiegruppenstruktur zur Beschreibung der im Experiment vorliegenden Neutronenenergieverteilung bedingt sein.

Die übrigen im vorangegangenen Vorhaben 3610R03350 getroffenen Aussagen zu den Vorteilen der Sequenz MAVRIC sowie dem Nutzen und insbesondere dem Zeitgewinn für den Anwender bleiben von dem gefundenen Fehler in den Eingabedaten unberührt.

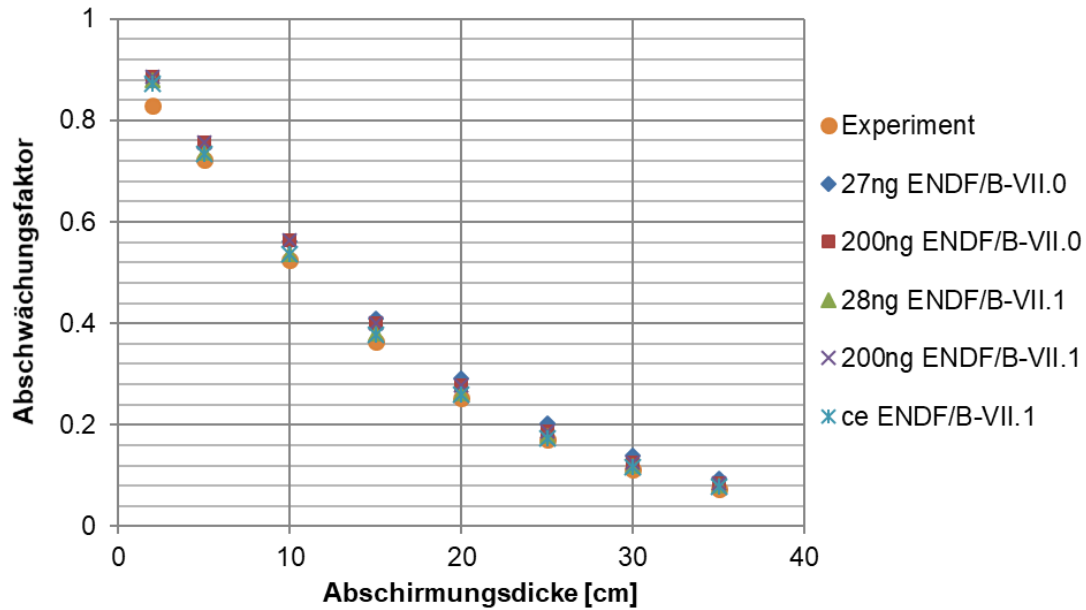


Abb. 4.5 Mit Monaco der SCALE Version 6.2.2 und verschiedenen Wirkungsquerschnittsbibliotheken errechnete Abschwächungsfaktoren für die Experimentserie von Ueki et al.

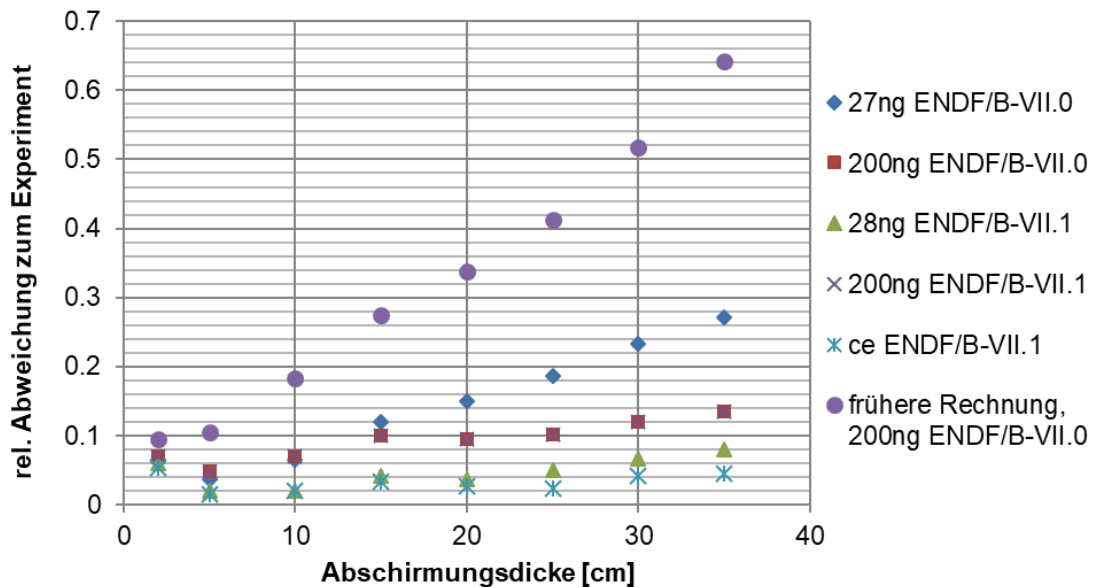


Abb. 4.6 Relative Abweichungen der errechnete Abschwächungsfaktoren von deren experimentellen Werten $((C-E)/E)$ der Experimentserie von Ueki et al.

Einige der wesentlichen Ergebnisse der Nachrechnung der Experimentserie von Ueki et al. mit ADVANTG sind exemplarisch in Abb. 4.7 bis Abb. 4.9 wiedergegeben. Da ADVANTG nur die Varianzreduktionsparameter für die MCNP-Rechnungen bereitstellt, sollten sich durch die Verwendung von ADVANTG die mit MCNP errechneten Neutronenflüsse nicht bzw. nur im Rahmen ihrer statistischen Unsicherheiten ändern. Dies wird

auch durch den Vergleich mit den früheren Resultaten bestätigt. Beeinflusst werden dagegen die statistischen Unsicherheiten und die notwendige Rechenzeiten. Im Fall der Unsicherheiten ergeben sich mit ADVANTG zumeist vergleichbare Unsicherheiten wie mit den übrigen getesteten Varianzreduktionsmethoden, d. h. hier wie mit dem Setzen von sog. „Importances“ durch den Anwender, der Verwendung des MCNP-Weight Windows Generator für ein vergleichsweises grobes Rechengitter und der Verwendung der durch MAVRIC für ein vergleichsweises feines Rechengitter erstellen Varianzreduktionsparameter (Abb. 4.7). Bei den benötigten Rechenzeiten für die eigentliche Bestimmung der gesuchten Neutronenflüsse und somit auch in der sog. *Figure of Merit* (FOM) zeigt die Verwendung von ADVANTG allerdings ein differenziertes Bild (Abb. 4.8 bzw. Abb. 4.9). Gegenüber dem MCNP-Weight Windows Generator führt ADVANTG in der Regel zu kürzeren Rechenzeiten, im Vergleich mit den durch MAVRIC bereitgestellten Parametern dagegen zu größeren Rechenzeiten für die abschließende MCNP-Rechnung. Konsequenterweise fällt somit die FOM gegenüber der Verwendung des MCNP-Weight Windows Generators größer, im Vergleich zu den durch MAVRIC bereitgestellten Parametern geringer aus. Dabei ist allerdings zum einen zu beachten, dass zusätzlich zu den in Abb. 4.8 gezeigten Rechenzeiten noch die Rechenzeiten für die jeweiligen Vorrechnungen zu beachten sind. Diese betragen hier für ADVANTG und MAVRIC zwischen einigen Sekunden und etwa 20 Minuten, wohingegen der MCNP-Weight Windows Generator eine eigene analoge Rechnung mit hinreichender Neutronenstatistik benötigt. Dies nimmt zwar hier je nach Fall nur einige 10 Minuten in Anspruch, kann aber bei stärker abgeschirmten Beispielen auch viele Stunden oder Tage benötigen. Zum anderen wurden MAVRIC und ADVANTG mit ihren jeweiligen Standardeinstellungen genutzt, die nicht zwingend übereinstimmen bzw. übereinstimmende Bedeutung haben, so dass der Vergleich je nach Einstellungen auch variieren kann. Dies wurde in den bisherigen Arbeiten nicht weiter analysiert.

Insgesamt zeigt der Einsatz von ADVANTG den für den Anwender erwarteten Nutzen. Wie im Fall von MAVRIC entfallen durch ADVANTG arbeits- bzw.- zeitintensive Vorbereitungen bzw. Vorrechnungen oder verringern sich zumindest. Diese beinhalten z. B. das Unterteilen der Problemgeometrie für das Setzen von Importances oder analoge Rechnungen zum Ermitteln der Weight Windows durch den Weight Windows Generator. Auch kann mithilfe von ADVANTG die FOM gegenüber den von MCNP direkt bereitgestellten Varianzreduktionsmethoden nochmals verbessert werden. In der Summe besteht somit mit ADVANTG nun ein zur SCALE-Sequenz MAVRIC ähnlich komfortables Rechensystem zur Durchführung von Abschirmrechnungen mit MCNP.

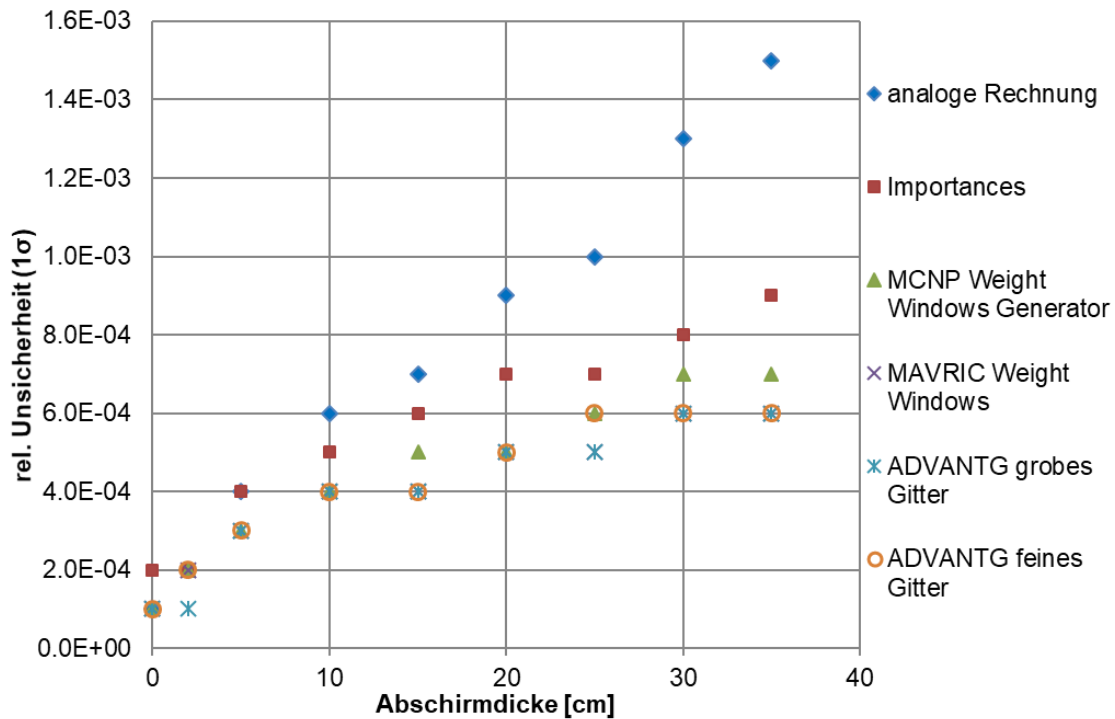


Abb. 4.7 Relative Unsicherheiten der errechneten Neutronenflüsse für die Experimentserie von Ueki et al. bei Einsatz verschiedener Varianzreduktionsparametersätze

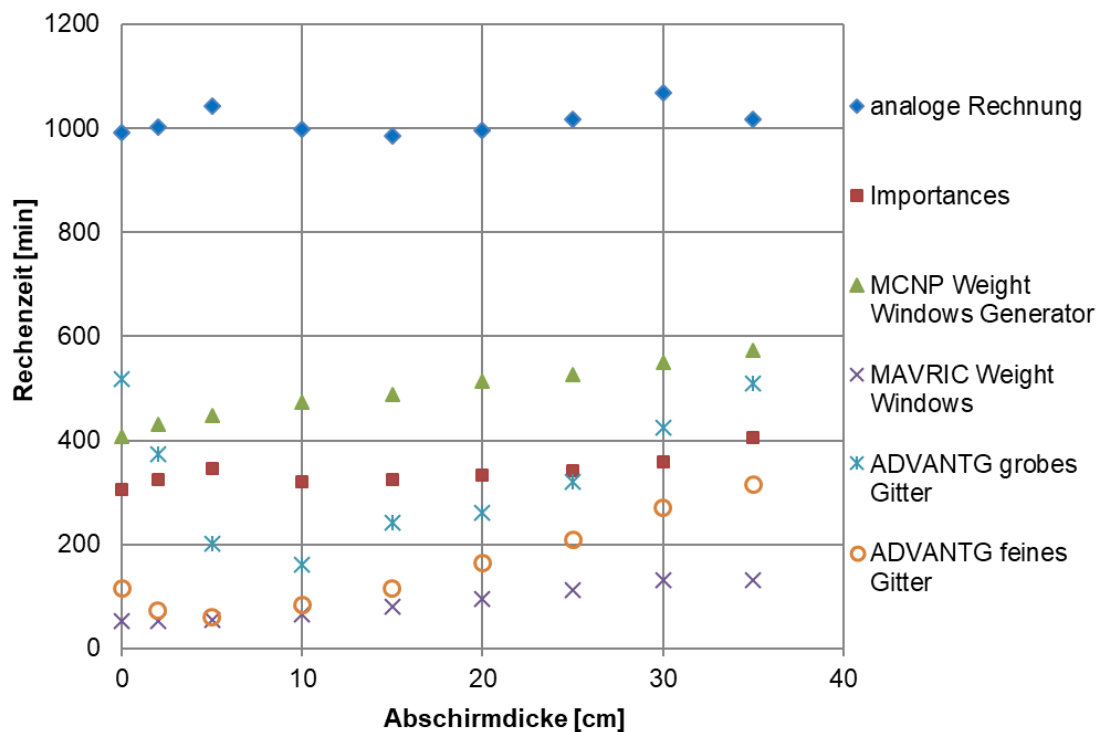


Abb. 4.8 Benötigte Rechenzeiten zur reinen Nachrechnung der Experimentserie von Ueki et al. bei Einsatz verschiedener Varianzreduktionsparametersätze

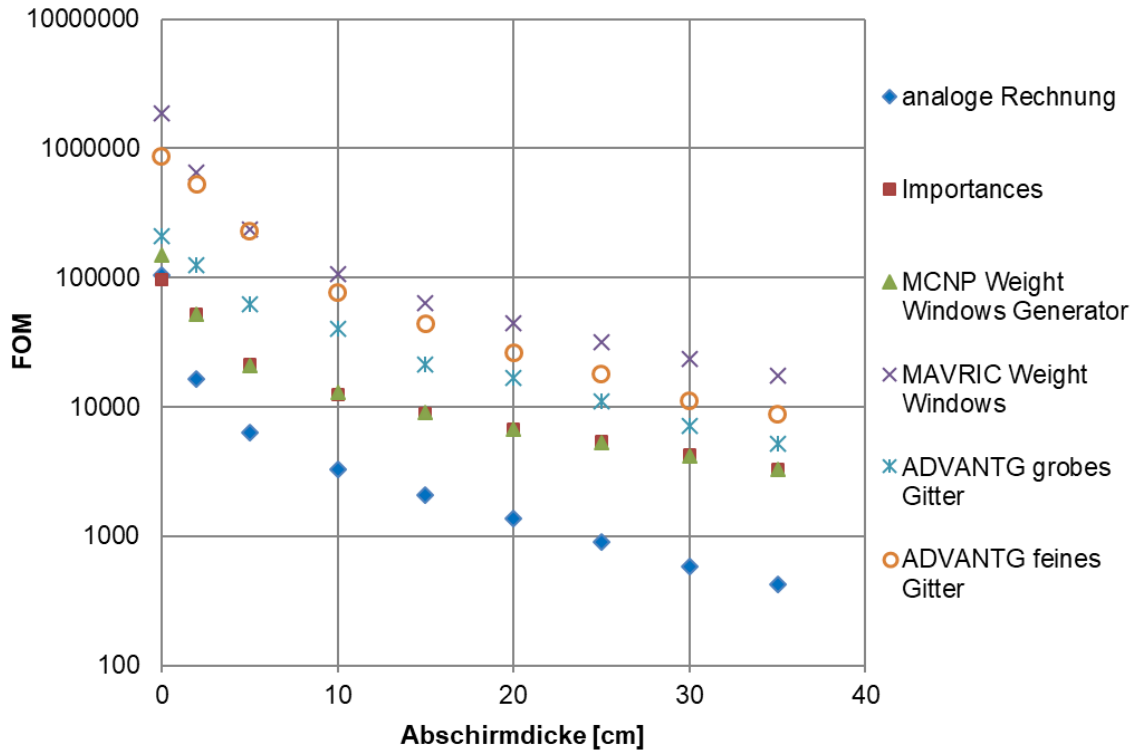


Abb. 4.9 Figure of Merit (FOM) der reinen Nachrechnung der Experimentserie von Ueki et al. bei Einsatz verschiedener Varianzreduktionsparametersätze

4.3 FISPACT-II

Das Programm FISPACT-II /SUB 17/ wird im Auftrag der UK Atomic Energy Authority (UKAEA) entwickelt und ist universell einsetzbares Inventarberechnungsprogramm. Es kann für Bereich der Aktivierungs- und der Abbrandanalyse und für Abklingrechnungen eingesetzt werden, und ist in der Lage Reaktionen und Reaktionsraten zu berechnen die durch Neutronen, Protonen, Alpha-Teilchen, Deuteronen oder Gamma-Quanten induziert werden. Das Programm ist der Nachfolger des bekannten Programms Fispact und ist von Grund auf neu in Fortran entwickelt worden. FISPACT-II wird mit TENDL-2015 als primärer Datenbibliothek ausgeliefert, stellt aber auch andere Bibliotheken wie JEFF-3.2, ENDF/B-VII.1 und JENDL-4.0 bereit. Das Programm wurde umfangreich bezüglich Nachzerfallsleistungsberechnung und bezüglich der zugrundeliegenden nuklearen Daten validiert /FLE 15a/, /SUB 15/, /FLE 15b/. In der GRS liegt das Programm in der Version 3.8 vor.

Zur Evaluierung des Programms wurden eine Reihe von Testrechnungen durchgeführt, sowie Vergleiche mit Ergebnissen des in der GRS standardmäßig für Aktivierungsrechnungen eingesetzten Programms GRSAKTIV-II /HES 01/ vorgenommen.

Grundsätzlich umfasst eine FISPACT-Rechnung vier Einzelschritte, die separat oder gemeinsam ausgeführt werden können. Der erste Schritt dient der Vorbereitung der Neutronenwirkungsquerschnitte und der Zerfallsdaten und Spaltproduktausbeuten. Die Wirkungsquerschnitte werden dabei unter Verwendung eines als Eingabegröße zu definierenden Multigruppenflusses auf Eingruppenwerte kollabiert. Standardmäßig verwendet FISPACT dabei eine 709-Gruppenstruktur. Im nächsten Schritt werden die Anfangsbedingungen wie zum Beispiel die Materialzusammensetzung definiert und es können Angaben über die benötigten Ausgabegrößen gemacht werden. Schließlich folgt der Inventarberechnungsschritt, zunächst mit der Entwicklung des Nuklidinventars unter Bestrahlung und anschließend ein oder mehrere Abklingschritte. Weiterhin ist es möglich automatisiert graphische Ausgaben der Ergebnisse unter Verwendung des Programms Gnuplot /GNU 19/ zu erzeugen.

Als Testfall für einen Vergleich mit GRSAKTIV-II wurde die Bestrahlung einer Betonprobe mit einem definierten Neutronenfluss berechnet. Ein Beispielergebnis für einige relevante Nuklide ist in Abb. 4.10 gezeigt. Die Ergebnisse zeigen für einige Nuklide gute Übereinstimmungen mit Abweichungen im Bereich weniger Prozent, wohingegen für andere Nuklide größere Abweichungen zu beobachten sind. Diese Abweichungen können auf Unterschiede in den verwendeten Datenbibliotheken und bei der Definition des Neutronenflusses zurückgeführt werden. FISPACT verwendet aktuelle Datenbibliotheken, wie etwa im gezeigten Beispiel TENDL-2015, während in GRSAKTIV-II eine auf JEF2.2 beruhende Bibliothek zum Einsatz kommt. Weiterhin werden in GRSAKTIV-II und FISPACT unterschiedliche Gruppenstrukturen für die Definition der Neutronenflüsse verwendet. Während in GRSAKTIV-II eine 84-Gruppen-Struktur zum Einsatz kommt, wird in FISPACT die erwähnte 709-Gruppen-Struktur verwendet. Obwohl eine feinere Gruppenstruktur grundsätzlich Vorteile hinsichtlich der Rechengenauigkeit bieten kann, ist diese in der Praxis häufig problematisch, da die Neutronenflüsse oftmals nur in einer gröberen Struktur bekannt sind. Beispielsweise kann bei Monte Carlo-basierten Neutronentransportprogrammen die Berechnung energetisch hochaufgelöster Neutronenflüsse an einer nicht hinreichenden Neutronenstatistik scheitern. In solchen Fällen muss der Fluss dann von der gröberen auf die feinere Struktur umkondensiert werden. FISPACT stellt hierzu zwar ein Werkzeug bereit, allerdings müssen hierzu immer Annahmen über

das Verhalten des Flusses innerhalb der Grobgruppen gemacht werden, die eventuell zu unphysikalischen Ergebnissen führen. Dies gilt insbesondere für den thermischen Energiebereich. Die Dokumentation von FISPACT empfiehlt hier ein Abschneidekriterium bei 10^{-2} eV.

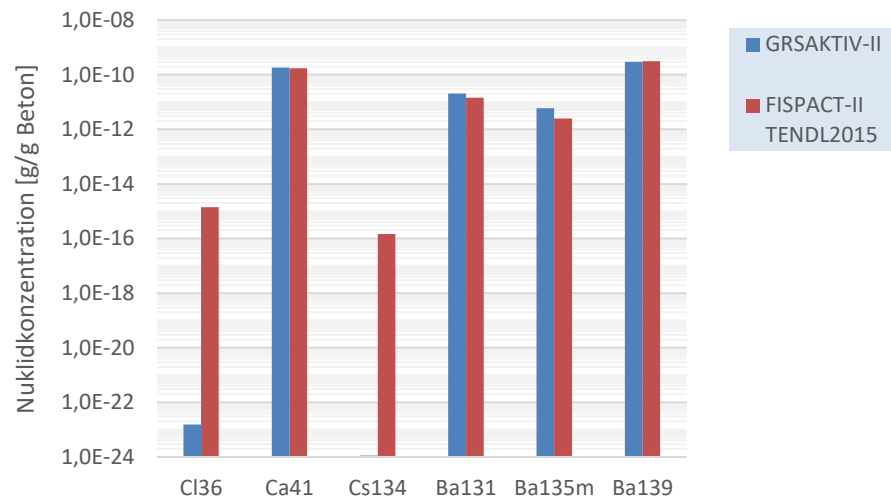


Abb. 4.10 Konzentration ausgewählter Nuklide für eine bestrahlte Betonprobe

Für einige Nuklide, wie in Abb. 4.10 für ^{36}Cl und ^{134}Cs , werden mit FISPACT um mehrere Größenordnungen größere Nuklidkonzentrationen als mit GRSAKTIV-II berechnet. Eine genauere Analyse zeigt, dass der Hintergrund hierfür das Fehlen relevanter Reaktionskanäle in GRSAKTIV-II ist. Für entsprechende Analysen bietet FISPACT die Möglichkeit für bestimmte (in der Eingabe definierte) Nuklide die Aufbaukanäle zu ermitteln. Für ^{36}Cl hat sich dabei insbesondere der Aufbau aus ^{40}Ca über eine $(n,p\alpha)$ Reaktion als wichtig erwiesen. Für ^{134}Cs sind vor allem die Kanäle über ^{135}Ba via (n,np) und (n,d) und über ^{136}Ba mittels (n,nd) Reaktion relevant, die in GRSAKTIV-II nicht berücksichtigt werden.

Insgesamt hat sich FISPACT-II als sinnvolle Ergänzung der in der GRS verwendeten Codes erwiesen. Das Programm bietet insbesondere die Möglichkeit aktuelle Bibliotheken mit einem umfassenden Satz an Reaktionskanälen für Aktivierungsrechnungen zu verwenden und kann in diesem Bereich als Referenz angesehen werden. Als nützlich haben sich die enthaltenen Zusatzfeatures wie die erwähnte Pfadanalyse erwiesen.

4.4 Temperaturabhängigkeit des Neutronenmultiplikationsfaktors unter 0 °C

In jüngster Vergangenheit wurden die nuklearen Streudaten für in Eis gebundenen Wasserstoff und Sauerstoff bestimmt und in Wirkungsquerschnittsbibliotheken integriert, z. B. /BRO 18/. Entsprechend ist es nun möglich, auch Temperaturbereiche unter 0 °C in Kritikalitätsanalysen geeignet zu berücksichtigen ohne solche Streudaten selbst bestimmen zu müssen, oder inkorrekterweise die Streudaten für diese Elemente in flüssigem Wasser zu benutzen. Relevanz hat dieser Temperaturbereich u. a. für den Transport oder die Lagerung von Spaltmaterial. Dazu gibt z. B. die IAEA-Transportvorschriften SSR-6 /IAEA 18/ die Berücksichtigung von Temperaturen zwischen -40 °C bis 38 °C vor, sofern nationale Bestimmungen oder Aufsichtsbehörden keine anderslautenden Vorgaben machen. In diesem Zusammenhang wurde durch eine dedizierte Sub Group der Working Party on Nuclear Criticality Safety (WPNCS) der OECD Nuclear Energy Agency (NEA) ein Code-zu-Code-Vergleich zur Temperaturabhängigkeit des Neutronenmultiplikationsfaktors k_{eff} von DWR-Brennelementen initiiert („The effect of temperature on the neutron multiplication factor for PWR fuel assemblies“ /GAN 18/), um das Verhalten des Neutronenmultiplikationsfaktors bei Temperaturen unter 0 °C näher zu untersuchen, an dem auch die GRS im Rahmen dieses Vorhabens teilnahm. Zusätzlich zu den Benchmark-Anforderungen wurden weitere Untersuchungen durchgeführt, um die separaten Einflüsse der Temperaturabhängigkeiten der Materialdichten, Wirkungsquerschnitte und nuklearen Streudaten auf k_{eff} als Einzeleffekte zu untersuchen, welche im Benchmark nur in der Summe, d. h. integral, betrachtet werden. Eine detaillierte Beschreibung der Arbeiten sowie der Diskussion der Ergebnisse sind in dem gesonderten Bericht /BEH 19b/ dokumentiert, hier ist nur die Zusammenfassung der Ergebnisse wiedergegeben.

Im Benchmark wurden zwei verschiedene geometrische Konfigurationen – ein einzelnes Brennelement mit Wasserreflektor („Single Unit“) sowie ein unendliches Brennelementgitter („Infinite Array“) – unter Verwendung eines typischen 17×17-DWR-Brennelements mit drei verschiedenen Abbränden (frischer Brennstoff, 30 GWd/t_{HM} und 45 GWd/t_{HM}) betrachtet und für alle Kombinationen k_{eff} in Abhängigkeit der Temperatur (bei 233 K, 252 K, 293 K, 333 K und 588 K) bestimmt. Zu berücksichtigen waren dabei die Temperaturabhängigkeiten der Moderatorichte, der nuklearen Streudaten und der Wirkungsquerschnitte. Seitens der GRS wurden zur Bearbeitung des Benchmarks mit SCALE 6.2.2 /REA 17/, MCNP 6 /PEL 13/ und OpenMC (Version 0.9.0) /ROM 15/ drei verschiedene Rechensysteme sowie mit ENDF/B-VIII.0 /BRO 18/ (alle Codes) und

ENDF/B-VII.1 /REA 17/ (nur SCALE) zwei verschiedene Wirkungsquerschnittsbibliotheken eingesetzt. Die nuklearen Streudaten für Wasserstoff und Sauerstoff in Eis sind allerdings nur in der Bibliothek ENDF/B-VIII.0 enthalten, so dass der Einsatz von ENDF/B-VII.1 in erster Linie zu Vergleichszwecken diene.

Die erzielten Ergebnisse zeigen insgesamt die zu erwartende Temperaturabhängigkeit des Neutronenmultiplikationsfaktors, bei der k_{eff} in erster Linie mit ansteigender Temperatur abnimmt (vergl. exemplarisch Abb. 4.11). Eine Ausnahme bildet der Übergang des Moderators von Eis ($T = 253 \text{ K}$) zu Wasser ($T = 293 \text{ K}$), bei dem ein deutlicher Anstieg in k_{eff} um bis zu 2800 pcm („Single Unit“) bzw. um bis zu 1000 pcm („Infinite Array“) zu beobachten ist. Da hier aber sowohl die nuklearen Streudaten wechseln wie auch die Moderator-dichte einen deutlichen Sprung macht, lässt sich allein aus den Benchmark-Ergebnissen keine eindeutige Schlussfolgerung zur Ursache dieses Anstiegs in k_{eff} ziehen.

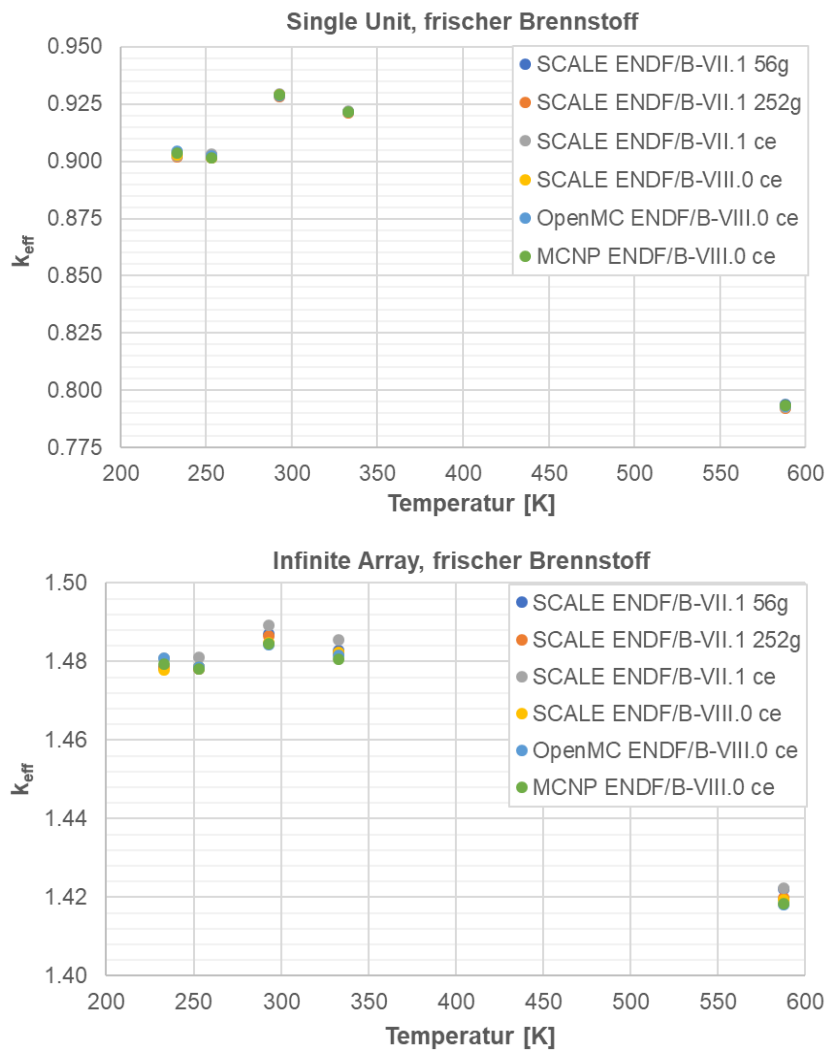


Abb. 4.11 Errechnete Neutronenmultiplikationsfaktoren k_{eff} für die Konfigurationen „Single Unit“ und „Infinite Array“ mit frischem Brennstoff

Der konkrete Vergleich der einzelnen errechneten Neutronenmultiplikationsfaktoren zeigt, dass bei Verwendung der Wirkungsquerschnittsbibliothek ENDF/B-VIII.0 alle drei verwendeten Transportcodes zumeist vergleichbare k_{eff} -Werte ermitteln, die in der Regel innerhalb der statistischen Unsicherheiten kompatibel sind (Abb. 4.12 und Abb. 4.13). Für das unendliche Brennelementgitter sind insgesamt etwas größere Differenzen im k_{eff} der verschiedenen Rechnungen als für das einzelne Brennelement zu beobachten, wobei auch dabei die Mehrheit der Differenzen mit den statistischen Unsicherheiten vereinbar sind. Die jeweiligen k_{eff} -Werte unterschieden sich um bis zu etwa 200 pcm („Single Unit“) bzw. etwa 300 pcm („Infinite Array“) und entsprechend damit etwa den Unterschieden, die auch in anderen Arbeiten beim Einsatz unterschiedlicher Rechencodes zu beobachten sind. Dementsprechend können zumindest wesentliche Diskrepanzen in den Simulationen der berücksichtigten Temperaturabhängigkeiten der einzelnen Rechen-

codes ausgeschlossen werden. Mögliche geringe Unterschiede in den Simulationen der Temperaturabhängigkeiten, die Auswirkungen auf k_{eff} in der Größenordnung von 100 pcm haben, lassen sich mit den vorliegenden Benchmark-Resultaten allerdings nicht ausschließen.

Vergleicht man dagegen die mit SCALE und ENDF/B-VII.1 errechneten Neutronenmultiplikationsfaktoren z. B. mit den mit MCNP und ENDF/B-VIII.0 errechneten Werten, so zeigen sich hierbei insgesamt größere Differenzen in k_{eff} als dieses bei den mit ENDF/B-VIII.0 errechneten Werten untereinander der Fall ist (Abb. 4.12 und Abb. 4.13). Insbesondere für das unendlich Brennelementgitter liegen mit bis zu etwa ± 550 pcm deutliche Differenzen vor, die dementsprechend mehrheitlich die statistischen Unsicherheiten erheblich übersteigen. Die Ursache hierfür ist augenscheinlich in Unterschieden zwischen den Wirkungsquerschnitten der Bibliotheken ENDF/B-VII.1 und ENDF/B-VIII.0 sowie in den unterschiedlichen Darstellungen der Energieabhängigkeit der Wirkungsquerschnittsbibliotheken begründet. Zudem deutet sich hier eine gewisse Temperaturabhängigkeit in den Differenzen zwischen den SCALE- und MCNP-Resultaten an, die zum Teil auch für die mit ENDF/B-VIII.0 errechneten SCALE-Resultate zu beobachten ist. Eine mögliche Erklärung ist, dass eine oder ggf. mehrere Temperaturabhängigkeiten der betrachteten Einflussgrößen in beiden Rechencodes unterschiedlich wiedergegeben wird. Eine konkrete Recherche oder Analyse wurde an dieser Stelle allerdings nicht durchgeführt, und die vorliegenden Benchmark-Resultaten lassen keine weiteren Schlussfolgerungen zu.

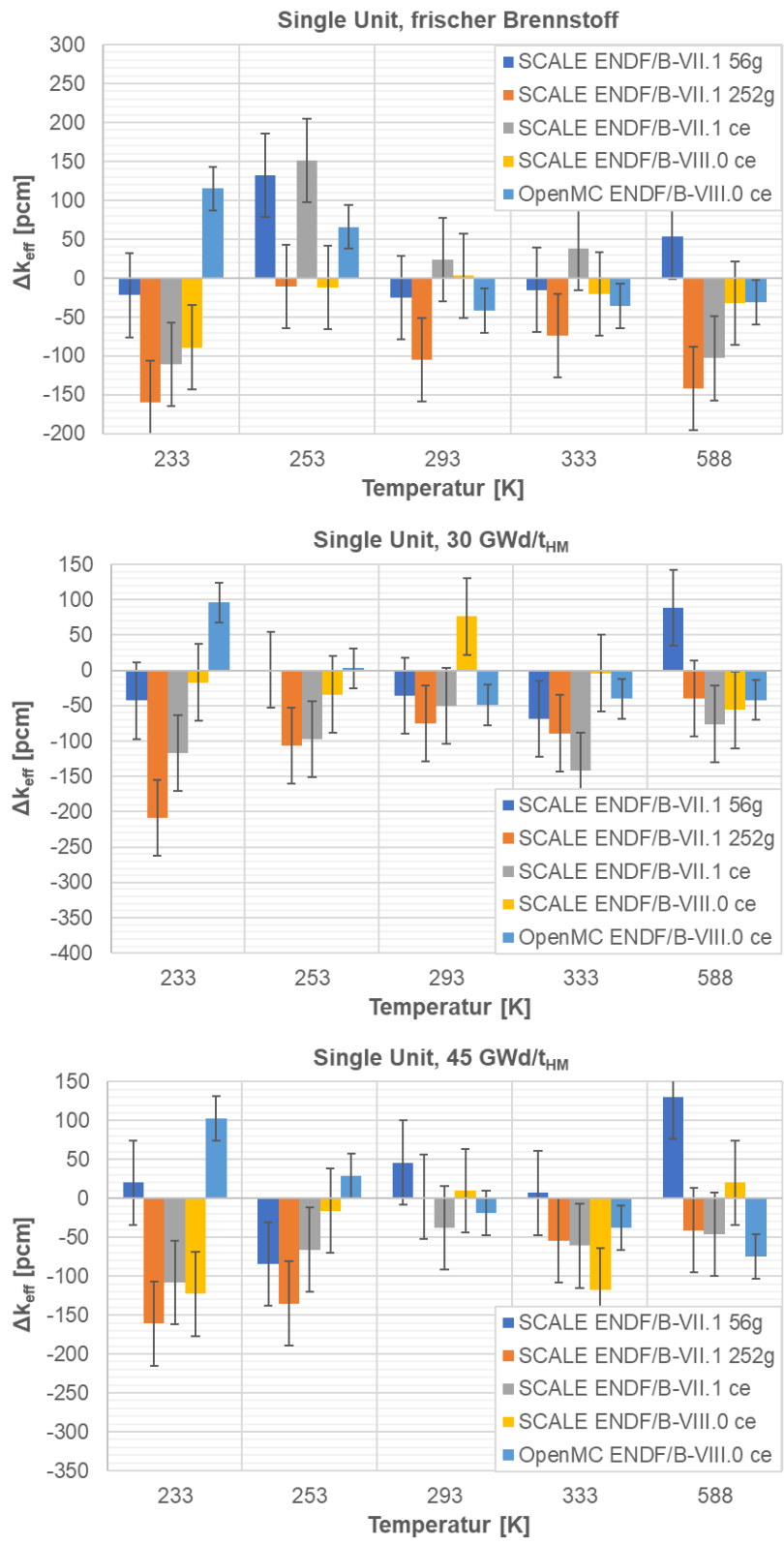


Abb. 4.12 Differenzen der errechneten Neutronenmultiplikationsfaktoren gegenüber den MCNP 6-Resultaten für die Konfiguration „Single Unit“

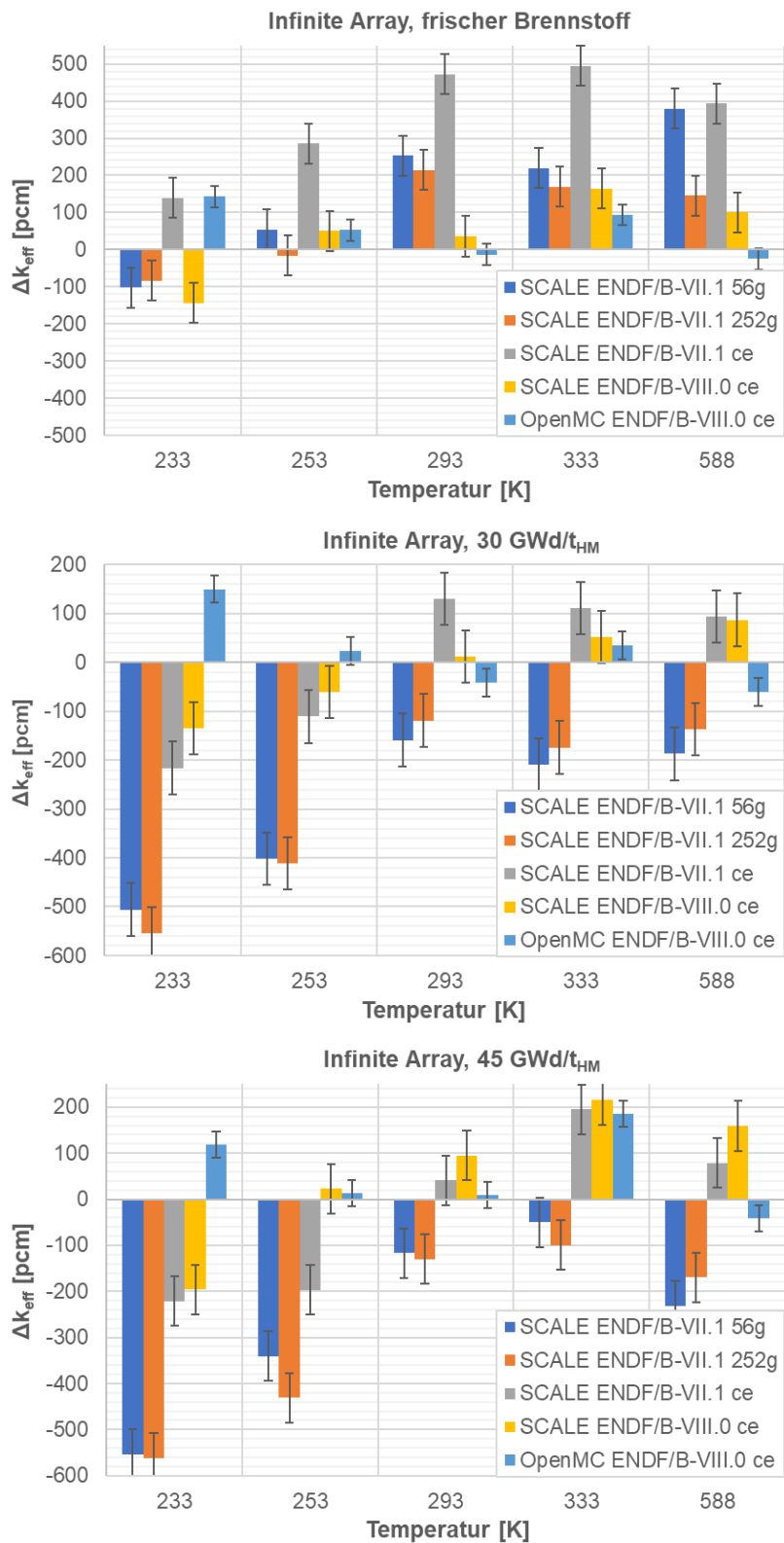


Abb. 4.13 Differenzen der errechneten Neutronenmultiplikationsfaktoren gegenüber den MCNP 6-Resultaten für die Konfiguration „Infinite Array“

Die zusätzlich zum Benchmark durchgeführten Arbeiten zeigen, dass die Temperaturabhängigkeit der Moderatorordichte der hier dominierende Einflussfaktor für die Temperaturabhängigkeit von k_{eff} ist (vergl. exemplarisch Abb. 4.14). Insbesondere der Sprung in k_{eff} beim Wechsel des Moderators von Eis zu Wasser ist zu mehr als 90 % durch die Dichteänderung des Moderators gegeben. Ebenso sind die Änderungen in k_{eff} mit zunehmender Temperatur ab 0°C hauptsächlich durch die Dichteänderungen des Moderators bedingt, wohingegen der Einfluss der Temperaturabhängigkeiten der Wirkungsquerschnitte des Brennstoffs und der nuklearen Wasserstoff-Streudaten auf k_{eff} dort deutlich geringer ist. Für Temperaturen unter 0°C führen dagegen die Temperaturabhängigkeiten aller drei Einflussfaktoren zu ähnlich großen temperaturabhängigen Änderungen in k_{eff} . Auch im Fall der Wirkungsquerschnitte des Brennstoffs und der nuklearen Wasserstoff-Streudaten führt eine zunehmende Temperatur zu einem geringeren k_{eff} . Auszunehmen ist dabei ebenfalls der Wechsel des Moderators von Eis zu Wasser, da hierbei der Wechsel der Wasserstoff-Streudaten ebenfalls zu einem sprunghaften, aber vergleichsweise kleinen Anstieg im k_{eff} führt. Die Temperaturabhängigkeiten der Wirkungsquerschnitte des Moderators zeigen dagegen keinen signifikanten Einfluss auf k_{eff} .

Für Kritikalitätssicherheitsanalysen bedeuten diese Resultate, dass die Temperaturabhängigkeit der Wirkungsquerschnitte des Brennstoffs und die Temperaturabhängigkeit der nuklearen Wasserstoff-Streudaten insbesondere bei Raumtemperatur und darunter zu berücksichtigen sind, um konservative Resultate und Aussagen zu erzielen. Auch die nuklearen Streudaten für in Eis gebundenen Wasserstoff zeigen einen temperaturabhängigen Einfluss auf k_{eff} , durch den k_{eff} mit abnehmender Temperatur weiter ansteigen kann. Somit sind auch mögliche Änderungen in den Aggregatzuständen der Materialien in Kritikalitätssicherheitsanalysen für das Erzielen von konservativen Resultaten und Aussagen zu berücksichtigen.

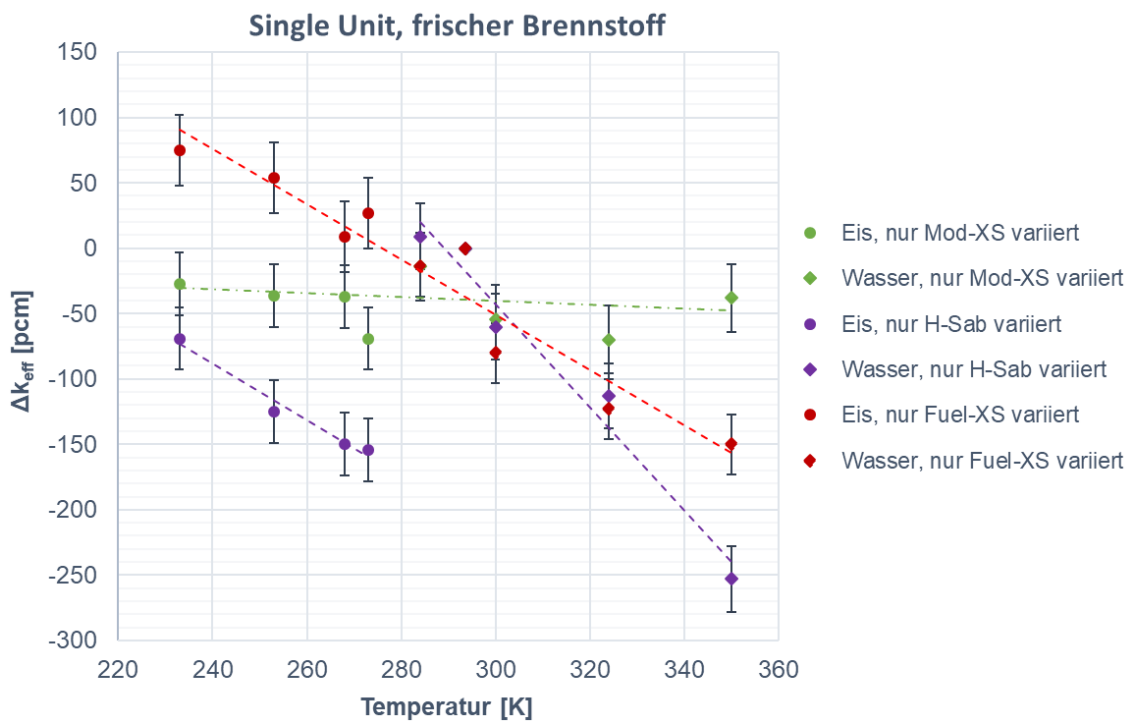
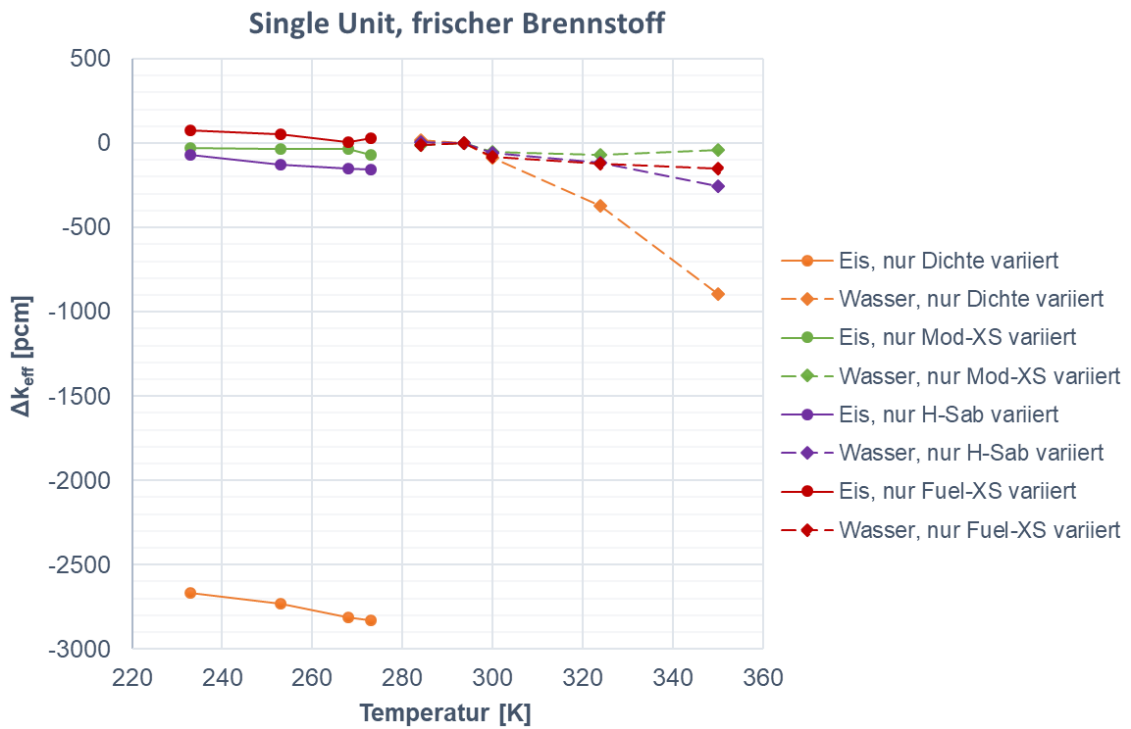


Abb. 4.14 Variation des Neutronenmultiplikationsfaktors aufgrund der Temperaturabhängigkeit einzelner variiertes Einflussgrößen

(Unten: vergrößerte Darstellung um Null, die Trendlinien dienen dabei nur zur Veranschaulichung des Datenpunkterlaufs und sind nicht als angepasste Geraden zu verstehen)

5 Urangewinnung

5.1 Einleitung

Uran ist das Element mit der höchsten Kernladungszahl und der höchsten Atommasse aller natürlich vorkommenden Elemente. Es kommt häufiger vor als beispielsweise Silber, Blei oder Gold – jedoch sind nur relativ wenige Lager wirtschaftlich nutzbar. Denn Uran kommt in der Natur nicht als Reinelement (gediegen) sondern ausschließlich in Form sauerstoffhaltiger Mineralien vor. Die Verteilung bzw. lokale Anreicherung von Uran sind maßgeblich auf zwei Faktoren zurückzuführen:

1. seinem lithophilen (Silikat-liebenden) Charakter und
2. dem Mobilitätsverhalten von Uran in Abhängigkeit seiner natürlich vorkommenden Oxidationsstufen (IV) und (VI).

Vierwertiges Uran ist in wässrigen Fluiden unlöslich und immobil, während sechswertiges Uran in wässrigen Fluiden eine sehr hohe Löslichkeit und Mobilität aufweist.

Wirtschaftlich bedeutende Uran-haltige Mineralien sind u. a.: Uraninit (UO_2), Pechblende ($(\text{U}^{+4}_{1-x}, \text{U}^{+6}_x)\text{O}_{2+x}$), Brannerit (UTi_2O_6), Coffinit ($\text{U}(\text{SiO}_4)_{n-x}(\text{OH})_{4x}$), Torbernit ($\text{Cu}(\text{UO}_2)_2(\text{PO}_4)_2 \times 10 \text{ H}_2\text{O}$) und Heinrichit ($\text{Ba}(\text{UO}_2)_2(\text{AsO}_4)_2 \times 10 \text{ H}_2\text{O}$). In Folge der genannten Eigenschaften gibt es diverse Typen von Uranlagerstätten, die sich hinsichtlich Konfiguration, Größe und Urangehalt voneinander unterscheiden. Die IAEA differenziert aktuell 15 verschiedene Typen unter zusätzlicher Berücksichtigung von Subkategorien /NEA 16/. Derzeit sind sandsteingebundene Lagerstätten, wie die kasachischen Minen Budenovskoye, Tortkuduk, Inkai und Mynkuduk, und diskordanzgebundene Lagerstätten, wie die Minen Ranger in Australien und MacArthur River in Kanada von größter wirtschaftlicher Bedeutung /NEA 16/.

5.2 Uranlagerstättentypen

Uran ist ein lithophiles Element, welches sich bevorzugt in SiO_2 -reichen Magmen anreichert. Im Laufe der Erdgeschichte wurde es durch magmatische Prozesse im oberen Erdmantel und in der unteren Erdkruste in diesen Magmen angereichert, welche anschließend granitoide Gesteine bilden. Die Granitoide – Granit-ähnliche Gesteine –

bilden größtenteils die kontinentale Erdkruste. Die obere kontinentale Erdkruste enthält im Durchschnitt ca. 3 ppm Uran /KYS 14/.

Weitere geologische Prozesse sind, abhängig vom Lagerstättentyp, für abbauwürdige Gehalte von Uran mit Anreicherungsgraden im Durchschnitt von 1.000 bis zu 200.000 ppm (0.01 – 20 Gew. %) in Lagerstätten verantwortlich /IAEA 09/.

Die Klassifizierung der Uranlagerstätten folgt der Typisierung der IAEA von 1996. Diese Klassifizierung umfasst 15 Kategorien und hat einen empirischen, keinen genetischen Charakter. Die Lagerstättentypen sind nach abnehmender wirtschaftlicher Bedeutung gelistet. Diese 15 Kategorien sind, wie folgt: Diskordanzgebundene, Sandsteingebundene, Quarzgeröll Konglomerat, Gang, Brekzien, Intrusive, Phosphat, Kollaps-Schlotbrekzien, Vulkanische, Oberflächen, Metasomatische, Metamorphe, Kohle/Lignit, Schwarzschiefer Lagerstätten und Meerwasser. Abb. 5.1 zeigt die prozentuale Verteilung der gesicherten Reserven (2015) bei einem Weltmarktpreis von <80 USD und <130 USD pro Kilogramm Uran, welche mit den derzeitigen technischen Möglichkeiten wirtschaftlich gewonnen werden können.

Die Gehalte von Uran und die gesamten abbaubaren Mengen an Wirtsgestein (Tonnage) einiger wichtiger Lagerstätten und deren förderbaren Uran sind in Abb. 5.2 dargestellt. Der Preis für ein Kilogramm Uran lag in den Jahren 2010 - 2015 zwischen 80 und 150 USD /NEA 16/.

In der Abb. 5.3 sind die typischen Lokalitäten sowie das geologische Umfeld der unterschiedlichen Uran-Lagerstättentypen in einem kontinentalen Querschnitt skizziert.

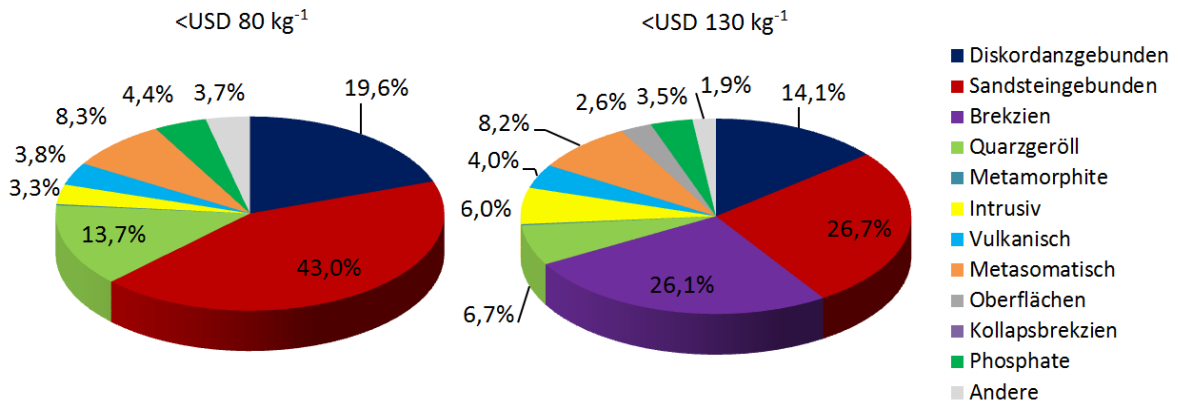


Abb. 5.1 Prozentangaben der weltweit gesicherten Reserven gegliedert nach Lagerstättentyp für einen Uran Weltmarktpreis von jeweils $<80</math> und $<130</math> USD pro Kilogramm (Stand 2015).$$

Daten aus /NEA 16/

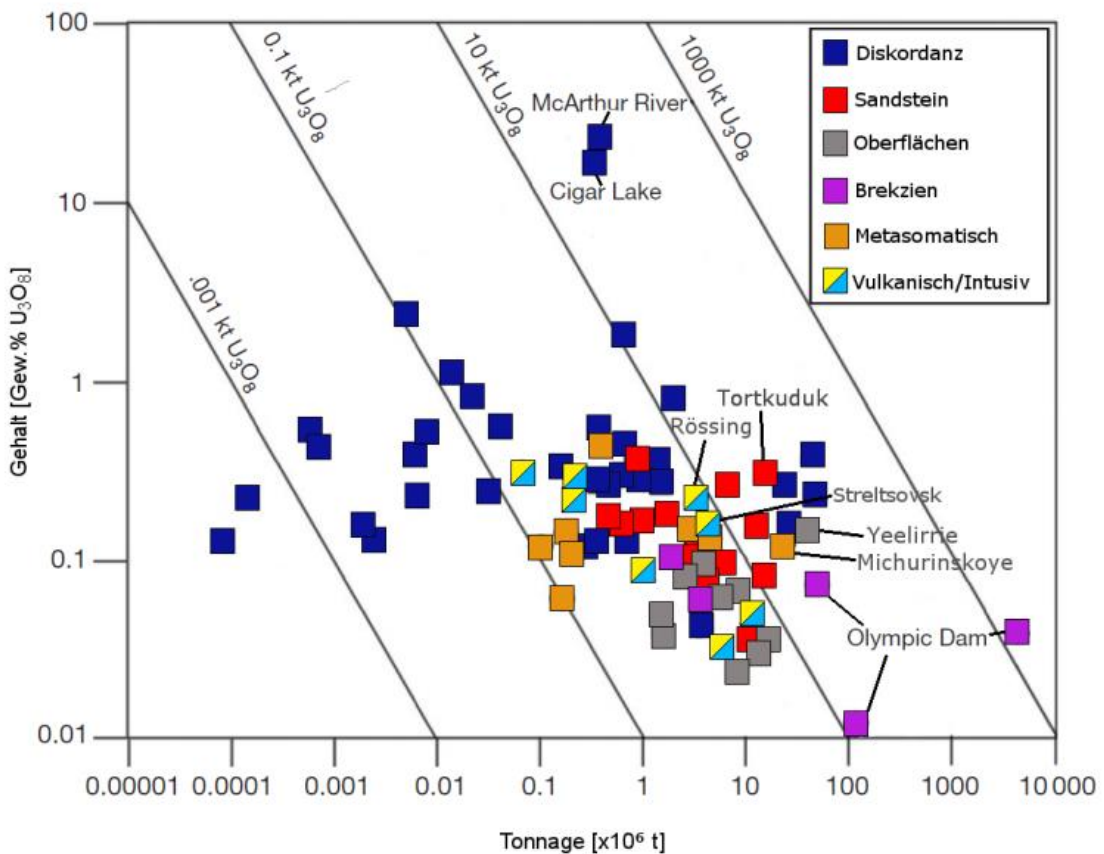


Abb. 5.2 Gehalt versus Tonnage Darstellung für einige Uranlagerstättentypen, farblich gegliedert nach Lagerstättentyp. Modifizierte Abbildung aus /KYS 14/

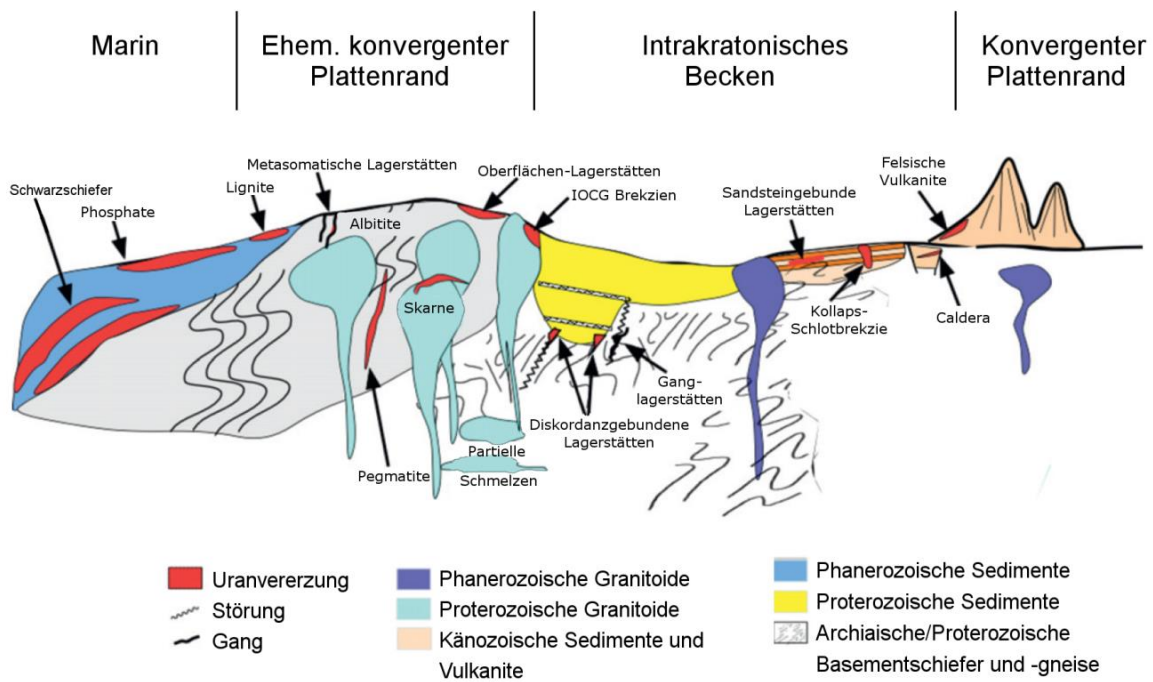


Abb. 5.3 Schematische Darstellung der Lokalisation und des geologischen Umfelds der unterschiedlichen Uranlagerstättentypen.

Modifizierte Abbildung aus /KYS 09/

5.2.1 Diskordanzgebundene Lagerstätten

Dieser Lagerstättentyp beinhaltet, wie in Abb. 5.2 dargestellt, die weltweit größten und reichhaltigsten Uranvorkommen mit bis zu 60 Gew.-% Uran. Die zwei weltgrößten Uranminen McArthur River und Cigar Lake befinden sich im Athabasca Becken (Kanada). Sie förderten 2016 je 6.945 und 6.666 t Uran, was ca. 22 % der Weltproduktion entspricht /WNA 17/. Die Vorkommen dieses Lagerstättentyps befinden sich, wie in Abb. 5.3 skizziert, in geologischen Becken im Randbereich oder innerhalb eines Kontinents (intrakratonisch) und sind gekennzeichnet durch das Auftreten einer Diskontinuität in der Schichtenfolge (Diskordanz) zwischen (archaischen bis paleoproterozoischen) Meta-sedimenten und den überlagernden (Paläo- bis Mesoproterozoischen) Sandsteinen. Die Uranvererzungen kommen häufig innerhalb von Störungen vor und werden mit Brekzien – verkittete Gesteinstrümmer – assoziiert. Diese treten, wie die Reduktionsfront, innerhalb weniger 100 m Entfernung zur Diskordanz auf. Die Vererzungen entstehen bei Temperaturen von 200 – 250 °C unter Beteiligung von Fluiden mit hoher Salzkonzentrationen (Solon) /KYS 00/ /KYS 09/ /KYS 14/. Die Fällung und Akkumulierung des Urans erfolgt

entweder an reduzierenden Schichten (z. B. vulkanische Lagen) oder aufgrund einer Mischung mit anderen reduzierenden Fluiden /HOL 03/ /HOE 78/ /FAY 97/ /CUN 03/.

5.2.2 Sandsteingebundene Lagerstätten

Sandsteingebundene Lagerstätten bilden etwa 27 % der weltweiten Uranressourcen die mit der 2015 verfügbaren Technik und Weltmarktpreisen von <130 USD pro Kilogramm Uran wirtschaftlich gefördert werden konnten. Dieser Lagerstättentyp hat typischerweise, wie in Abb. 5.2 dargestellt, niedrige bis mittlere Gehalte an Uran (0.05-0.4 Gew.% U), wie z. B. die Tortkuduk Mine in Kasachstan, eine der größten Sandsteingebundenen Lagerstätten (Abb. 5.3). Diese Urananreicherungen resultieren aus Imprägnierungs- oder Verdrängungslagerstätten in mittel- bis grobkörnigen Sandsteinen aus Fluss (fluviatil), See (limnisch) und Delta Ablagerungen /IAEA 85/. Die Ablagerung der Sandsteine erfolgte im Tertiär bis zum Paläozoikum, seltener im Proterozoikum. Die Urananreicherungen entstanden während der Verfestigung von Sedimenten zu Sedimentgesteinen (Diagenese). Zu den Subtypen der Sandsteingebundenen Lagerstätten gehören Basale, Tabulare, Roll-Front und Tektonisch-Lithologische Lagerstätten.

Die Reduktionsmittel, welche für die Fällung bzw. Bindung von Uran relevant sind, unterscheiden sich je nach Subtyp in: Kohlenstoff aus organischem Detritus (z. B. Pflanzen, Algen), Sulfide (z. B. Pyrit, H₂S), Kohlenwasserstoffe oder mafische Vulkanite.

Ein gemeinsames Merkmal der Subtypen ist, dass deren vererzte Sandsteinschichten von wasserundurchlässigen Tonsteinhorizonten über und/oder unterlagert werden /EVE 85/. Weitere geologische Charakteristika der Subtypen sind nach /KYS 14/:

- Das Auftreten des Basalen-Subtyps in schwach verfestigten, stark permeablen, fluviatilen bis limnischen kohlenstoffhaltigen Kiesen und Sanden. Diese Kiese und Sande wurden in Paläo-Tälern direkt auf typischerweise Basementgraniten abgelagert und sind von Plateaubasalten oder Sedimenten überlagert.
- Die Tabularen Subtypen sind irreguläre, linsenförmige längliche Vererzungen. Diese sind parallel zum Sedimentationshorizont ausgerichtet und stellen ins Sediment eingeschnittene Paläokanäle dar.
- Die Roll-Front Subtypen sind bogenförmig, Sandsteinschneidende in Grundwasserleitern auftretende Vererzungen.

- Tektono-Lithologische Subtypen treten in Störungszonen benachbarten Sandsteinen auf.

5.2.3 Quarzgeröll-Konglomerat Lagerstätten

Quarzgeröll-Konglomerat Lagerstätten sind definiert als parallel zur Schichtung ausgerichtete (stratiforme) Anreicherungen an Uranmineralen im Pyrit-reichen Quarz-Konglomerat Wirtsgestein. Die Pyrit-Gehalte betragen in der Regel 3 bis 15 Vol. %. Diese Konglomerate sind ehemalige Seifenablagerungen, welche unter den reduzierenden-atmosphärischen Bedingungen des Archaikums gebildet wurden.

Typische Urangehalte in reinen Uranminen liegen bei 0.15 Gew. % und bei primären Goldminen wie z. B. in Witwatersrand (Südafrika), in der Uran als Nebenprodukt gewonnen wird, von rund 0.01 Gew. % /KYS 14/.

5.2.4 Ganglagerstätten

Ganglagerstätten treten als Gänge meist in metamorphen Gesteinen auf und trugen im Jahr 2016 etwa zu 10 % der weltweiten Uranproduktion bei. Die größten Lagerstätten wie Beaverlogge (Kanada), Jáchymov (Tschechien) und Shinkolobwe (Kongo) sind bereits erschöpft. Dieser Lagerstättentyp ist von den geologischen Verhältnissen in den verschiedenen Vorkommen unterschiedlich und komplex aufgebaut. Das Lagerstättenmodell für diesen Typ basiert auf den größten und komplexesten Vorkommen in Beaverlogge, Kanada. Durch tektonische Aktivität entstandene Brekzien und Fluide aus metamorphen Dehydrationsreaktionen werden mit der Entstehung von Urananreicherungen in Ganglagerstätten assoziiert /DIE 11/ /KYS 14/.

5.2.5 Brekzien-Lagerstätten

Diese Uranvorkommen sind ausschließlich auf die mesoproterozoischen Iron-Oxide-Copper-Gold (IOCG) Olympic Dam Minen in Australien beschränkt. Die Uranvererzungen treten hier in Hämatit-reichen Granit-Brekzien auf. Diese Lagerstätte ist, trotz der niedrigsten Gehalte an Uran, das weltweit größte individuelle Vorkommen mit rund 2.200.000 t Uran (Abb. 5.3). Die IOCG Olympic Dam Lagerstätte beinhaltet etwa 26 % der weltweit gesicherten Uranreserven (<130 USD kg⁻¹ Uran) und trug im Jahr 2016 zu rund 5 % der

weltweiten Uranproduktion bei /NEA 16/. Dabei fällt das Uran als ein Nebenprodukt der Kupfer-, Gold-, Silber- und Seltenen Erden-Gewinnung an, welches für sich alleine bei Weltmarktpreisen von weniger als 80 USD pro Kilogramm Uran nicht wirtschaftlich gefördert werden kann. Aufgrund der nachrangigen Bedeutung des Urans für die Minenbetreiber dieser Lagerstätten sind die Entstehungsprozesse und Bedingungen der Urananreicherungen weitgehend unerforscht /DIR 07/ /KYS 14/.

5.2.6 Intrusive Lagerstätten

Urananreicherungen in intrusiven Lagerstätten werden durch magmatische Prozesse in Schmelzen von Alaskiten, Pegmatiten, Graniten, Monzoniten und Carbonatiten gebildet. Hierbei reichert sich Uran in spätauskristallisierenden Mineralen und spätmagmatischen Fluiden an. Die größten Lagerstätten dieser Art liegen in Rössing (Namibia), Ilíamaussaq (Grönland), Bokan Mountain (USA) und Palabora (Südafrika). In der Regel haben diese Vorkommen niedrige Gehalte an Uran und trugen (2016) etwa zu 4 % der weltweiten Uranproduktion bei /CUN 87/ /NEA 16/.

5.2.7 Phosphatlagerstätten

Phosphatlagerstätten bilden sich in flachen marinen Kontinentalschelf-Gebieten durch aufquellendes nährstoffreiches Wasser und der Fällung von Phosphatmineralen, welche Uranylkomplexe binden können. Die Urangehalte können in diesen Lagerstätten bis zu 650 ppm betragen. Diese Lagerstätten sind als reine Uranlagerstätten nicht wirtschaftlich, jedoch kann das Uran als Nebenprodukt bei der Düngemittelherstellung gewonnen werden /LAN 78/ /KYS 14/. Einige namhafte Phosphatlagerstätten liegen in New Wales Florida (USA), Gantour (Marokko) oder in Al-Abiad (Jordanien) /IAEA 09/.

5.2.8 Kollaps-Schlotbrekzien Lagerstätten

Die Wirtsstrukturen, in welchen die Urananreicherung erfolgte sind durch den Kollaps von Paläo-Höhlen in Sedimentgesteinen entstanden. Grundwasser löst und mobilisiert das Uran aus uranhaltigen, vulkanischen Gesteinen, welches anschließend in den reduzierenden Zonen der Schlotbrekzien ausgefällt und angereichert wird. Die größte bekannte Lagerstätte dieser Art befindet sich im Gebiet des Grand Canyons in Arizona (USA). Die zahlreichen Schlotbrekzien haben dort einen Durchmesser von 25 – 100 m

und eine Tiefe von bis zu 750 m. Die Uranvererzungen treten zusammen mit Calcit und Kupfersulfiden auf und befinden sich in 175 – 200 m Tiefe /KYS 14/.

5.2.9 Vulkanische Lagerstätten

Vulkanische Uranlagerstätten treten bei silikatreichen (felsischen) Vulkaniten (z. B. Rhyolite) in kontinentalen Grabenbrüchen (Riftzonen) und Calderen auf. Die Uranvererzungen werden mit Störungen sowie Scherzonen innerhalb der vulkanischen Einheiten assoziiert und haben ebenfalls abbauwürdige Anreicherungen von Molybdän, Fluor, Thorium und Seltenen Erden. Dieser Lagerstättentyp trug 2016 zu etwa 3 % der weltweiten Uranproduktion bei /LER 92/ /KYS 14/ /NEA 16/. Die Streltsovsk Mine (Russland) ist die bedeutendste Lagerstätte dieser Art.

5.2.10 Oberflächen-Lagerstätten

Diese Uranlagerstätten sind definiert als junge (tertiär bis rezent), oberflächennahe Urananreicherungen in Sedimenten oder Erden welche sich primär unter heißen klimatischen Bedingungen gebildet haben /OTT 84/. Die häufigsten Vorkommen sind in Calcreten – ein massiger, laminiertes durch Calcit verfestigter Oberflächenhorizont. Diese Art der Uranlagerstätte ist durch Verwitterung von uranhaltigen Muttergesteinen (i. d. R. Granite, Rhyolite) und dessen Auslaugung durch leicht alkalische und oxidische Grundwässer entstanden. Der Transport des Urans erfolgt bis zur Fixierung als Uranylkomplex. Fixierungsmechanismen, welche das Aufbrechen der Uranylkomplexe verursachen, können durch ein Ausgasen von im Fluid gelösten Kohlendioxid oder eine Erhöhung der Konzentration von gelösten Stoffe nahe der Oberfläche durch Evaporation ausgelöst werden. Ebenfalls kann eine Fixierung aufgrund einer Änderung des Redoxpotentials (z. B. Mischung von Grundwässern) oder Sorption durch organische Stoffe, Silikate, Eisen(-oxide/hydroxide) oder Tone hervorgerufen werden. Die zwei größten Vorkommen sind die Yeelirre Lagerstätte in Australien und die Langer Heinrich Lagerstätte in Namibia /IAEA 09/.

5.2.11 Metasomatische Lagerstätten

Das Auftreten von metasomatischen Uranlagerstätten ist an deformierte und mechanisch beanspruchte Gesteine gebunden. Die Uranvererzung wird gebildet durch

Stoffaustauschprozesse (Metasomatose) und der Zufuhr von Natrium-, Kalium- und Calciumreichen Fluiden. Diese Lagerstätten werden ebenfalls mit Hämatitbildung assoziiert /DAH 93/. Die Natrium-metasomatische Uranlagerstätten sind hauptsächlich auf zwei große Gebirgs- und Superkontinentbildungsereignissen im Paläo- und Mesoproterozoikum zurückzuführen. Diese zwei geologischen Ereignisse verursachten großflächige Metamorphose und vulkanische Aktivität an den konvergierenden Plattenrändern, welche zur Bildung dieses Lagerstättentyps führte /CUN 10/. Die Größten metasomatischen Uranlagerstätten sind die Michurinskoye Mine im Urandistrikt Kirovograd in der Ukraine oder die Lagoa Real Mine in Brasilien /IAEA 09/.

5.2.12 Metamorphe Lagerstätten

Metamorphe Lagerstätten entstehen durch Temperatur- und Druckänderung von uranreichen Ausgangsgesteinen sedimentären oder magmatischen Ursprungs. Die Temperatur- und Druckänderung bewirkt eine Umwandlung der mineralogischen Zusammensetzung (Metamorphose) was eine Uranvererzung begünstigen kann. Zwei bekannte metamorphe Uranlagerstätten sind in Forstau (Österreich) und Mary Kathleen (Australien) /IAEA 09/.

5.2.13 Kohle/Lignit

Kohle-Lagerstätten können Gehalte von bis zu 1.000 ppm Uran enthalten. Die Bindung, meist Adsorption, des Urans aus wässrigen Lösungen erfolgte im Zuge der Sedimentation (synsedimentär) und Diagenese des organischen Materials /DAH 93/. Bekannte Uranvorkommen in Kohle sind z. B. im Serres Becken (Griechenland) oder im Freital (Deutschland) /IAEA 09/.

5.2.14 Schwarzschieferlagerstätten

Uran ist in marinen Schwarzschiefern unter den anoxischen Sedimentationsbedingungen in Faulschlamm (Sapropel) durch Adsorption an organischen Materialien fixiert und angereichert worden. Die Gehalte von Uran in marinen Schwarzschiefern sind variabel, können aber Konzentrationen von 400 ppm erreichen. Zu den bekannten Lagerstätten gehört der Alaunschiefer in Schweden und Estland oder die Gera-Ronnenburg Lagerstätte in Deutschland /IAEA 09/ /KYS 14/.

5.2.15 Meerwasser

Die stetige Verwitterung von uranreichen Gesteinen der kontinentalen Erdkruste und der Eintrag der Verwitterungsprodukte durch Wind und Flüsse ins Meer liefert fortwährend Nachschub an Uran. Der Großteil des eingetragenen Urans wird in den Meeren direkt sedimentiert, während ein kleinerer Bruchteil des Urans im Meerwasser gelöst wird. Das im Meerwasser gelöste Uran hat eine mittlere Verweilzeit von ca. 5×10^5 Jahren bevor es dem System entzogen wird (z. B. durch Schwarzschiefer Bildung) /HEM 89/. Die mittlere Urankonzentration im Meerwasser beträgt ca. 3 ppb. Das entspricht etwa der Menge von 4×10^9 t gelösten Urans /KYS 14/. Eine 1990 in Japan zu Testzwecken entwickelte Fördertechnologie wird bei Weltmarktpreisen von rund 300 USD/kg Uran als eine wirtschaftliche Förderungsmethode gewertet /TAM 09/.

5.3 Einstufung der Uranvorkommen

Die Begriffe Reserve und Ressource werden im Folgenden gemäß Definition der „Energiestudie 2017“, veröffentlicht von der Bundesanstalt für Geowissenschaften und Rohstoffe (BGR), verwendet. Demnach sind Reserven nachgewiesene, zu heutigen Preisen und mit heutiger Technik wirtschaftlich gewinnbare Energierohstoffmengen. Als Ressourcen werden nachgewiesene, aber derzeit technisch-wirtschaftlich und/oder wirtschaftlich nicht gewinnbare sowie nicht nachgewiesene, aber geologisch mögliche, künftig gewinnbare Energierohstoffmengen bezeichnet /BGR 17/.

Im Unterschied zu anderen Energierohstoffen, werden Vorräte von Uran nach Gewinnungskosten unterteilt. Zur Einstufung der Uranressourcen existieren Förderland-spezifisch verschiedene Klassifizierungsmodelle, welche als Differenzierungsgrundlage den Grad der Kenntnis über die Gewinnbarkeit der Uranmengen gemein haben /NEA 16/. Die NEA (Nuclear Energy Agency) und IAEA (International Atomic Energy Agency) veröffentlichen im Turnus von zwei Jahren einen aktualisierten Bericht (Red Book) zu den weltweit existierenden Uranressourcen und den Fördermengen basierend auf offiziellen Angaben und Nationalen Berichten der Länder. Eine vergleichende Gegenüberstellung der verschiedenen Klassifizierungsmodelle der Uranressourcen mit der Einstufung der NEA und IAEA ist im aktuellen Bericht „Uranium 2018“ zu finden /NEA 18/.

Im Folgenden wird kurz auf die Einstufung der NEA/IAEA zu den weltweiten Uranressourcen (konventionell) eingegangen. Wie in Abb. 5.4 dargestellt sind die Uranressourcen nach Ressourcen- und Gewinnungskostenkategorie strukturiert.

Abnahme der wirtschaftlichen Attraktivität	Förderbar zu Kosten von	Identifizierte Ressourcen		Unentdeckte Ressourcen	
	< 40 USD/kg U	gesichert (RAR)	vermutet (IR)	prognostiziert (PR)	spekulativ (PR)
	40-80 USD/kg U	gesichert (RAR)	vermutet (IR)	prognostiziert (PR)	
	80-130 USD/kg U	gesichert (RAR)	vermutet (IR)	prognostiziert (PR)	
	130-260 USD/kg U	gesichert (RAR)	vermutet (IR)	prognostiziert (PR)	
Abnahme in der Sicherheit der Abschätzung					

Abb. 5.4 NEA/IAEA-Klassifikation des Uranvorrats nach Kosten- und Ressourcenkategorien /NEA 18/

Die NEA/IAEA stuft Uranressourcen mit abnehmender Sicherheit der Abschätzung in:

- gesicherte Ressourcen (Reasonably Assured Resources, RAR), Uranvorräte in erkundeten Lagerstätten mit bekannter Tonnage, bekanntem Urangehalt und bekannter Konfiguration,
- vermutete Ressourcen (Inferred Resources, IR), Uranvorkommen (zusätzlich zu den RAR) basierend auf direktem geologischem Kenntnisstand zu denen keine spezifischen Daten vorliegen,
- prognostizierte Ressourcen (Prognosticated Resources, PR), Uranvorkommen dessen Existenz indirekt aus Kenntnis geologischer Prospektivität abgeleitet wird und
- spekulative Ressourcen (Speculative Resources, SR), aufgrund von geologischer Gegebenheit und Extrapolation vermutete Uranvorkommen, ein.

Die wirtschaftliche Attraktivität der Uranressourcen eingeordnet nach Förderkostenklassen, welche die Kosten vor, während und nach der Uranerzförderung berücksichtigen, wird in USD pro Kilogramm Uran angegeben. Der Fortschritt von Wissenschaft und Technik, wirtschaftliche, infrastrukturelle und politische Gegebenheiten sowie die damit zusammenhängenden unterschiedlichen Erkundungsgrade und -bemühungen führen zu einer stetigen Neubewertung der Vorratsklassifizierung, wie beispielsweise bei der Gegenüberstellung der Daten der weltweit identifizierten Uranressourcen der Jahre 2000, 2006 und 2017 deutlich wird (Tab. 5.1). Ein direkter Vergleich innerhalb einer Ressourcen- und Kostenkategorie über die Jahre ist demnach nicht aussagekräftig.

Tab. 5.1 Angaben der NEA und IAEA zu den weltweiten Uranressourcen

(identifizierte Ressourcen) des Jahres 2000, 2006 und 2017 (in ktU) /NEA 01/ /NEA 07/
/NEA 16/

Kategorie	2000	2006	2017
<i>Gesicherte Ressourcen (RAR)</i>			
< 260 USD/kgU	-	-	4815
< 130 USD/kgU	2853	>3338	3865
< 80 USD/kgU	2242	2598	1280
< 40 USD/kgU	>1534	>1766	713
<i>Vermutete Ressourcen (IR)</i>			
< 260 USD/kgU	-	-	3713
< 130 USD/kgU	1080	>2130	2277
< 80 USD/kgU	865	>1858	800
< 40 USD/kgU	>552	1204	344
<i>Identifizierte Ressourcen (RAR + IR)</i>			
< 260 USD/kgU	-	-	7989
< 130 USD/kgU	3933	5469	6142
< 80 USD/kgU	3107	>4456	2080
< 40 USD/kgU	>2086	2970	1058

Seit 1990 liegt der Uranverbrauch deutlich über der Fördermenge; das Defizit wurde aus Vorräten der jahrzehntelangen Überproduktion der Minen (vor 1980) und aus Beständen der atomaren Abrüstung beglichen. Im aktuellen Bericht der NEA und IAEA werden 6142 ktU bis einschließlich der Kostenkategorie von < 130 USD/kgU für die identifizierten Ressourcen (Summe aus gesicherten und vermuteten Ressourcen) ausgegeben; diese Menge würde nach Angaben von NEA und IAEA für eine 130-jährige Versorgung der derzeit weltweit existierenden Kernkraftwerke ausreichen /NEA 18/.

5.4 Uranförderung

Die globale Uranfördermenge des Jahres 2017 ist im Vergleich zu 2007 um 37 % gestiegen und lag bei 59,5 ktU. Mehr als zwei Drittel dieser Menge wurde in Kasachstan, Kanada und Australien produziert (Abb 5.5) /WOR 18/.

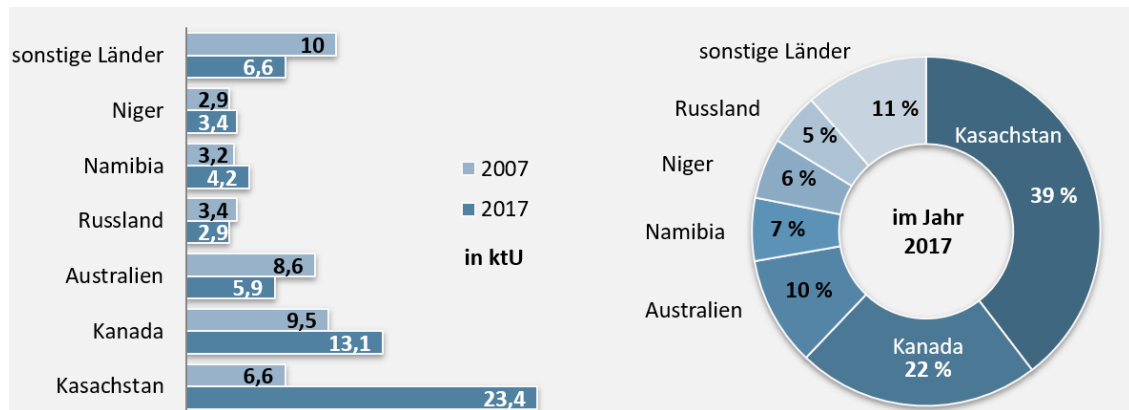


Abb 5.5 Vergleich der Uranfördermenge des Jahres 2007 und 2017 (links); die sechs Länder mit der höchsten Uranfördermenge des Jahres 2017 (rechts)

Die Produktionsmengen sind dem aktuellen Onlinebericht der WNA entnommen /WOR 18/

Ausschlaggebend für die Zunahme waren einerseits die deutliche Steigerung der kasachischen Produktion und andererseits der Start des kommerziellen Uranabbaus in der kanadischen Lagerstätte Cigar Lake, welche derzeit die zweitgrößte Produktionsstätte ist, nach McArthur River (Kanada) gefolgt von Tortkuduk & Myunkum (Kasachstan). In Tab 5.2 sind die zehn Uranminen mit der höchsten Uranfördermenge des Jahres 2017 aufgelistet /WOR 18/. Nur zwei Minen tragen zu den 22 % des kanadischen Anteils an der Welturanproduktion bei, wohingegen die Produktionsmenge der fünf gelisteten kasachischen Minen 20 % der Welturanproduktion ausmacht.

Tab 5.2 Die zehn Uranminen mit der höchsten Produktion 2017

Mine	Land	Prod. (tU)	An- teil (%)	Förderung	Besitzer
Cigar Lake	Kanada	6924	12	Untertagebau	Cameco (69,8 %)
McArthur River		6193	10		
Tortkuduk & Myunkum	Kasachstan	3519	6	In-situ-Laugung	Katco JV/Areva
Olympic Dam	Australien	2381	4	Nebenprodukt/ Untertagebau	BHP Billiton
Budenovskoye 2	Kasachstan	2352	4	In-situ-Laugung	Karatu JV/ Kazatomprom-Uranium One
Inkai	Kasachstan	2116	4	In-situ-Laugung	Inkai JV/Cameco
SOMAIR	Niger	2116	4	Tagebau	Areva (63,6 %)
South Inkai	Kasachstan	1982	3	In-situ-Laugung	Betpak Dala JV/ Uranium Ore
Ranger	Australien	1945	3	Tagebau	Rio Tinto (68 %)
Budenovskoye 1, 3 & 4	Kasachstan	1931	3	In-situ-Laugung	Akbastau JV/ Kazatom-prom-Uranium One
		Σ 31458	Σ 53		

In Abhängigkeit der geologischen Konformation, der Art der geologischen Umgebung und des Minerals (vgl. Kap. 2.1) werden verschiedene Fördermethoden angewendet. Die kasachischen sandsteingebundenen Uranvorkommen (Rollfront-Lagerstätten) werden mittels Lösungsbergbau (in-situ-Laugung) gewonnen. Der Abbau in den kanadischen diskordanzgebundenen Lagerstätten erfolgt, wie auch bei der australischen Mine Olympic Dam, untertage. In Olympic Dam wird Uran als Nebenprodukt zu Kupfer, Gold und Silber gewonnen. Die großen Förderländer Afrikas, Namibia und Niger, betreiben den Uranerzabbau im Tagebau.

Vor zwei Dekaden wurde Uran größtenteils (ca. 80 % der Welturanproduktion) im Tage- und Untertagebau gewonnen und nur in geringem Maße (ca. 13 % der Welturanproduktion) im Lösungsbergbau (Tab. 6.3). Im Jahr 2017 hingegen sank der Anteil des mittels Tage- und Untertagebaus geförderten Urans auf 47 %, und der des im Lösungsbergbau geförderten Urans stieg 2017 auf 48 %.

Tab. 5.3 Uranfördermenge nach Fördermethode anteilig an der Welturanproduktion des jeweiligen Jahres in %

(*erwarteter Anteil) /NEA 01/ /NEA 07/ /NEA 16/ /NEA 18/

Methode	1998	2000	2005	2010	2014	2016	2017*
Tagebau	39	28	28	23	14	13	14
Untertagebau	40	43	39	32	27	31	32
Lösungsbergbau	13	15	20	39	51	50	48
Nebenprodukt	-	-	-	6	7	6	6

5.5 Fördermethoden und Uranerzverarbeitung

Die Art des Erzes, die lokalen geologischen Gegebenheiten, sowie wirtschaftliche und politische Aspekte bestimmen die Verfahrensführung und das Anlagendesign zur Uranförderung und -gewinnung. Wie in Kapitel 6.4 kurz dargestellt sind der Tagebau, der Untertagebau und der Lösungsbergbau gängige Fördermethoden zur Urangewinnung. Das abgebaute Roherz wird in mehreren Stufen zerkleinert um anschließend durch Zusatz von Säure oder Lauge Uran aus dem Erz zu lösen. Im folgenden Verarbeitungsschritt wird das Uran-haltige Rohprodukt weiter behandelt, aufgereinigt und konzentriert.

Im zunehmend eingesetzten Lösungsbergbau entfallen die Schritte der Erzgewinnung und Zerkleinerung; die saure oder basische Lösung zum Immobilisieren von Uran wird direkt in den Erzkörper gepumpt.

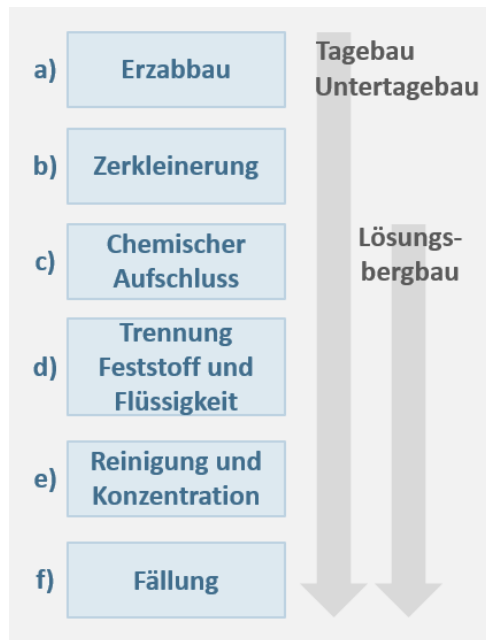


Abb. 5.6 Abfolge der Verarbeitungsschritte bei der Gewinnung von Uran

a) Erzabbau

Bei oberflächennahen Erzvorkommen oder sehr großen Erzkörpern erfolgt der Abbau des Erzes bevorzugt im Tagebau. Der Urangehalt des Erzes liegt meist unter 0,5 %. Die Größe des Abbaugebiets variiert und ist abhängig vom Erzkörper, so können Tagebaue von wenigen bis zu 1.000 Meter tief und einige Kilometer Durchmesser aufweisen. Große tagebaubetriebene Minen sind u. a. SOMAIR in Niger (0,3 %), Ranger in Australien (0,3 %) und Langer Heinrich in Namibia (0,05 %).

Uranerz mit einem höheren Urananteil lagert in Tiefen von 100 bis 2.000 Metern und wird im Untertagebau gewonnen. Die kanadischen Uranminen McArthur River und Cigar Lake sind derzeit die produktivsten untertagebetriebenen Abbaustätten.

Aufgrund des komplexeren Bewetterungssystems untertage und der Erschließung des Abbaugebiets untertage ist die Bewirtschaftung einer Mine im Tagebau kostengünstiger. Der Betrieb einer Mine im Tagebau sowie auch untertage geht mit einschneidenden Landschaftsveränderungen einher.

b) Zerkleinerung

Um Uran chemisch aus dem Erz lösen zu können, wird das Roherz zunächst sortiert, mehreren Zerkleinerungsschritten unterzogen und ausgehend vom groben Erzschnitt zu Erzpulver verarbeitet. Ursprünglich wurde das Roherz in Zerkleinerungsanlagen zerschlagen bzw. zerbrochen; aufgrund der schädlichen Staubentwicklung

werden heutzutage hauptsächlich SAG- oder AG-Mühlen (Semi-Autogenous/ Auto-genous Grinding) verwendet. Bei diesen Mühlen erfolgt die Zerkleinerung des Erzes entweder mittels Stahlkugeln (SAG) oder durch größeres Roherz (AG).

c) Chemischer Aufschluss (leaching)

Ob Uran über das saure oder basische Aufschlussverfahren aus dem Erz gelöst wird, hängt von verschiedenen Faktoren ab:

- der Art des Wirtsgesteins, gibt es beispielsweise ein hohes Carbonatvorkommen im Erzkörper erhöht dies den Säurebedarf zum Herauslösen des Urans enorm,
- das Lösen von Uran aus demselben Erztyp erfolgt mit Säure schneller als mit Lauge,
- eventuelle zusätzliche im Erz enthaltenen Elemente die entweder wertvolle Nebenprodukte darstellen können oder störende Nebenprodukte die schwer vom Uran abzutrennen sind,
- die Kosten der benötigten Chemikalien für das jeweilige Verfahren,
- die Wahl der Aufreinigungsmöglichkeiten ist bei einem sauren Aufschluss größer als beim alkalischen Aufschluss.

Zum Immobilisieren muss das im Erz enthaltene Uran unabhängig ob saurer oder basischer Aufschluss von Uran(IV) zu Uran(VI) oxidiert werden. In Abb. 5.7 ist jeweils ein allgemeines Extraktionsschema für einen sauren und basischen Aufschluss skizziert.

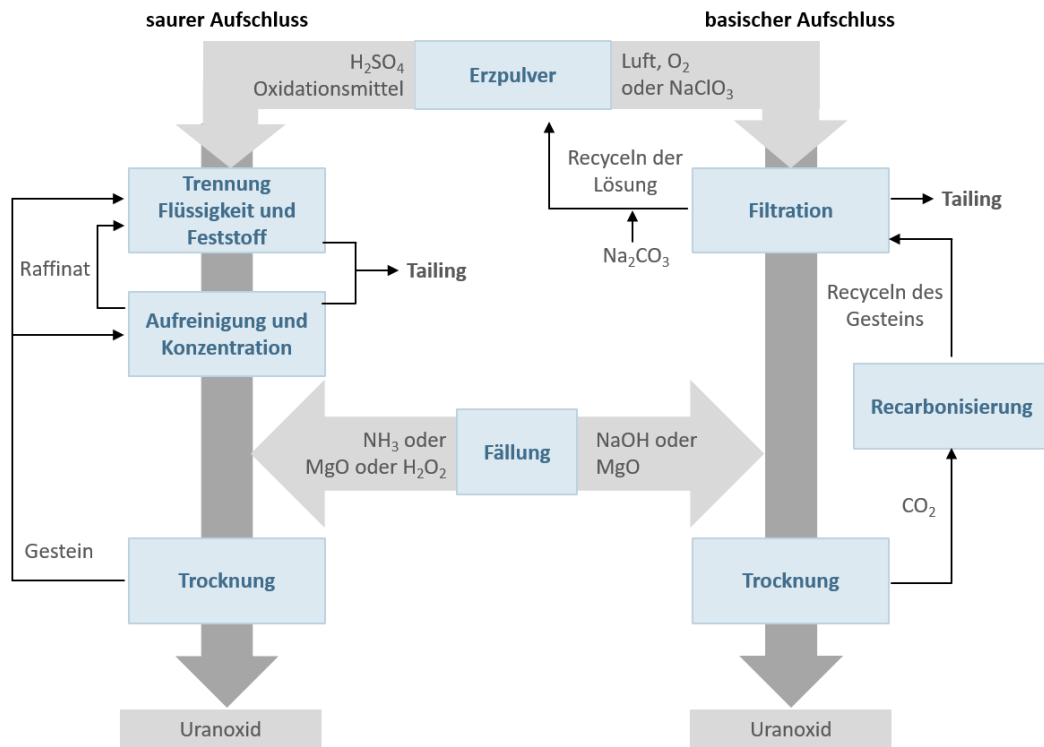


Abb. 5.7 Allgemeines Extraktionsschema zum sauren und basischen Aufschluss von Uran-haltigem Erz

Als Oxidationsmittel für den sauren Aufschluss wird Natriumperchlorat, Braunstein, Wasserstoffperoxid oder Caro's Säure eingesetzt. Durch das Oxidationsmittel wird das im Erz vorhandene Eisen – Eisen ist nach Sauerstoff, Silizium und Aluminium das vierthäufigste Element in der Erdkruste – von Eisen(II) zu Eisen(III) oxidiert, dieses wiederum oxidiert dann Uran IV zu Uran VI.



Der basische Aufschluss erfolgt unter Druck (z. B. im Autoklav), und als Oxidationsmittel wird Luft, Sauerstoff oder Natriumperchlorat verwendet.



Derzeit wird maßgeblich das saure Aufschlussverfahren mit Schwefelsäure zur Urangewinnung eingesetzt; Schwefelsäure ist kostengünstig und in großem Maßstab erhältlich.

Beim sogenannten Lösungsbergbau wird die Säure- bzw. Base-haltige Lösung direkt durch Bohrlöcher in den Erzkörper gepumpt (Abb. 6.8). Sandsteingebundene Uranvorkommen können durch den Lösungsbergbau, auch in-situ leaching (ISL) oder in-situ recovery (ISR) genannt, erschlossen werden.

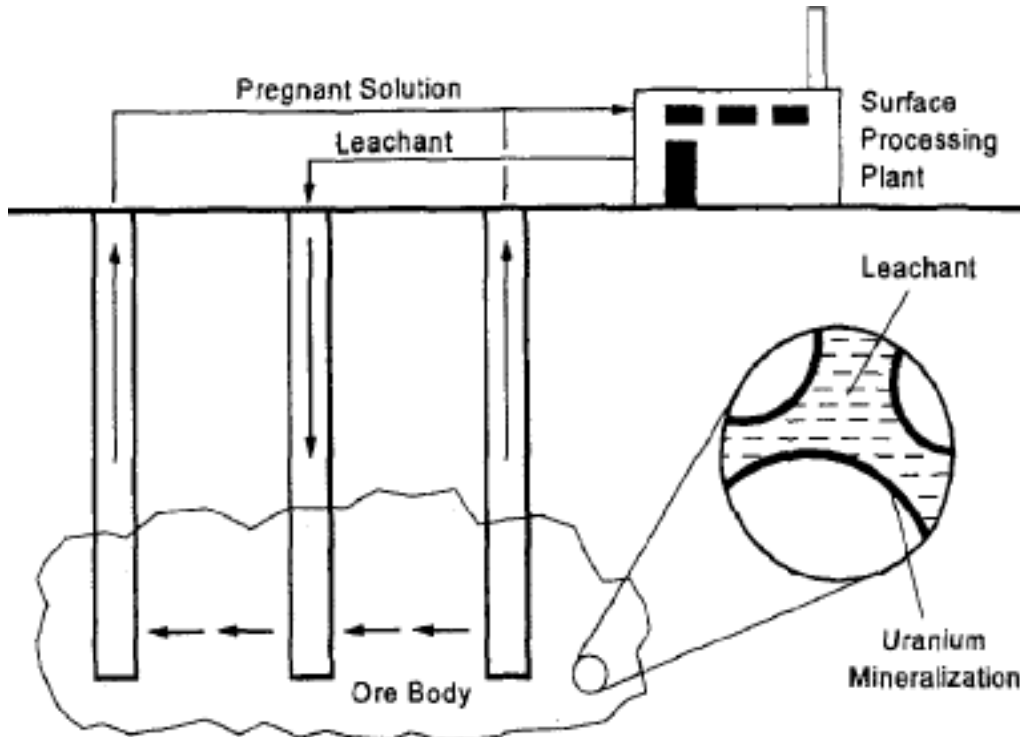


Abb. 5.8 Schematische Darstellung Lösungsbergbau /EDW 00/

Das Verfahren des Lösungsbergbaus wurde in den 1970er Jahren entwickelt um Uran aus den sandsteingebundenen Lagerstätten zu gewinnen, die häufigste Art der Lagerstätte für Uranvorkommen. Um die Methode des Lösungsbergbaus anzuwenden muss das uranhaltige Gestein eine gewisse Durchlässigkeit besitzen und sollte an seiner oberen und unteren Grenze durch undurchlässige Gesteine begrenzt sein (meist tonige Schichten). Die oxidierende Flüssigkeit (meist Schwefelsäure) wird über Rohre in den Erzkörper gepumpt. Anschließend wird die Flüssigkeit mit dem gelösten Uran wieder zur Oberfläche befördert.

d) Trennung Feststoff und Flüssigkeit

Beim Verarbeitungsschritt, bei dem Feststoff und Flüssigkeit separiert werden, sind i. d. R. bereits etwa 75 % der Produktionskosten der Extraktion angefallen /EDW 00/. Das nach dem chemischen Aufschluss erhaltene Rohprodukt, bestehend aus einer flüssigen Uran-haltigen Lösung und Gesteinspulver, wird bspw. durch Filtration abgetrennt und der abgetrennte Feststoff wird mehrmals gewaschen, um noch

anhaftendes Uran zu lösen und somit die Ausbeute zu erhöhen. Die Lösung wird weiterverarbeitet und der abgetrennte Feststoff entsorgt (Tailing).

e) Aufreinigung und Konzentration

Gängige Techniken zum Aufreinigen und Konzentrieren der Lösung sind die Ionenaustausch- (IX – ion exchange) und die Flüssig-Flüssig-Extraktion (SX – solvent extraction). Für beide Methoden werden Amine zum abstrahieren des Urans aus der wässrigen Lösung verwendet. Die Methode der Ionenaustausch-Extraktion ist vor allem bei gering konzentrierten Lösungen (weniger als 1 g/l), wie sie beim Lösungsbergbau anfallen, geeignet. Die Flüssig-Flüssig-Extraktion wird bei höher konzentrierten Lösungen angewendet /EDW 00/.

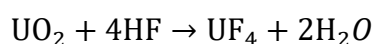
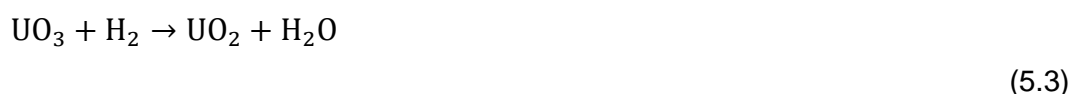
f) Fällung

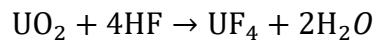
Die Wahl des Fällungsmittels ist abhängig von der vorherigen Prozessführung. Beim sauren Aufschluss wird Ammoniak, Magnesiumoxid oder Wasserstoffperoxid eingesetzt und beim basischen Aufschluss Natriumhydroxid oder Magnesiumoxid verwendet. Als Fällungsprodukt wird ein amorpher Feststoff in variabler chemischer Zusammensetzung erhalten (Uranate, Polyuranate, Hydrolyseprodukte, und Verunreinigungen).

5.6 Herstellung von Uran(VI)-fluorid und Anreicherung

Das aus dem Prozess der Erzaufarbeitung erhaltene Produkt variiert in seiner chemischen Zusammensetzung und muss vor der Umsetzung zu Uran(VI)-Fluorid (UF_6) in eine chemisch-einheitliche Verbindung überführt werden. Hierfür wird das Uran-haltige Rohprodukt mit Salpetersäure extrahiert und somit reines Uranyl(VI)-Nitrat ($UO_2(NO_3)_2$) erhalten. Im folgenden Schritt wird Uranyl(VI)-Nitrat pyrolysiert; dabei zersetzt sich die Verbindung unter Entstehung verschiedener Stickstoffoxide zu Uran(VI)-Oxid (UO_3).

In den folgenden chemischen Gleichungen ist die gängige Darstellungsmethode von Uran(VI)-Fluorid im industriellen Maßstab dargestellt.





Zunächst wird Uran(VI)-oxid mit Wasserstoff zu Uran(IV)-oxid reduziert und anschließend mit Fluorwasserstoff zum vierwertigen Uran(IV)-fluorid (UF_4) hydrofluoriert. Die Oxidation zu Uran(VI)-fluorid wird mit elementarem Fluor erreicht.

Aufgrund des hohen Preises und der schwierigen Handhabbarkeit von elementarem Fluor, wird bei der Synthese im industriellen Maßstab in einer ersten Synthesestufe auf Fluorwasserstoff zurückgegriffen und die Reaktion nicht direkt mit elementarem Fluor durchgeführt.

6 Innovative Kernbrennstoffkonzepte

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

6.1 Kernbrennstoffe

6.1.1 Einleitung Kernbrennstoffe

Kernbrennstoffe stellen die grundlegende Ressource der Energieerzeugung durch Spaltung von Atomkernen dar. Mit der sicheren Verwendung von Kernbrennstoffen sind mehrere naturwissenschaftliche und technische Bedingungen verbunden. So gilt zum Beispiel im Mehrbarrierenkonzept die Rückhaltefunktion der Brennstoffmatrix als die erste Barriere gegen die Freisetzung von Spaltprodukten. Kommerzielle Brennstoffe für die hier mehrheitlich betrachteten thermischen Leichtwasserreaktoren bestehen aus einem spaltbaren Isotop der Elemente Uran (^{235}U) oder Plutonium ($^{239/241}\text{Pu}$), die homogen in thermisch nicht spaltbares ^{238}U eingebettet sind. Die Brennstoffe liegen im Falle beider Elemente in der chemischen Oxidationsstufe +IV als Uran-(IV)-oxid (UO_2) sowie Plutonium-(IV)-oxid (PuO_2) in einer keramischen Matrix vor. Im Falle von Mischoxid-Kernbrennstoffen (MOX), wie sie nach der Wiederaufarbeitung bestrahlter Kernbrennstoffe eingesetzt werden, muss der Kernbrennstoff in Form einer „solid solution“ von Plutoniumdioxid in Urandioxid vorliegen. Die homogene Durchmischung von Plutonium in Uran auf molekularer Ebene wird im Produktionsprozess durch kombinierte Mahl- und Sinterschritte erreicht. Die Anreicherung der spaltbaren Isotope liegt für kommerzielle Leichtwasserreaktoren (LWR) zwischen 3 % und 5%. Eine erhöhte Anreicherung der Brennstoffe erhöht die Reaktivität und somit die potentiell erreichbare Energieausbeute während des Einsatzes des Kernbrennstoffs. Eine erhöhte Reaktivität stellt jedoch gleichzeitig erhöhte Anforderungen an die Regelungs- und Sicherheitssysteme der Anlage. Um der gesteigerten Reaktivität durch eine erhöhte Anreicherung gerecht zu werden, können den Brennstoffen Materialien mit hohen Neutroneneinfangquerschnitten als abbrennbare Neutronengifte zugesetzt werden. Die Zusammensetzung der Brennstoffe

wird somit primär durch die neutronischen Eigenschaften des Brennstoffs bestimmt. Als sicherheitsrelevante Randbedingungen sind hier die Wärmeleitfähigkeit sowie der aus der Mischung der Komponenten resultierende Mischschmelzpunkt der Brennstoffmatrix von Bedeutung. Für Kernbrennstoffe zur Verwendung in schnellen Reaktorsystemen ist die Anreicherung aufgrund der geringeren Wirkungsquerschnitte im schnellen Neutronenspektrum deutlich angehoben. Die Bedingungen, unter denen Brennstoffe in schnellen Reaktorsystemen eingesetzt werden, unterscheiden sich signifikant von den Bedingungen in LWR. Hier ist insbesondere die höhere Brennstofftemperatur zu nennen, welche zu einer raschen Strukturveränderung des Kernbrennstoffes führt.

Aus den oben genannten wissenschaftlich-technischen Bedingungen zum Einsatz von Kernbrennstoffen lassen sich Anforderungen an Kernbrennstoffe ableiten, die für einen sicheren Betrieb von Anlagen zur Energiegewinnung durch Spaltung von Atomkernen notwendig sind. Hierbei stehen vor allem die thermischen Eigenschaften der Brennstoffe im Vordergrund. Der ausgeprägte radiale Temperaturgradient vom Zentrum des Brennstoffpellets zu seinem Äußeren stellt für das Material eine hohe thermische Belastung dar, wodurch die eingesetzten Brennstoffpellets Risse bekommen. Im Falle der Kernbrennstoffe für schnelle Reaktorsysteme kann sogar eine Umstrukturierung der Brennstoffkeramik durch die hohen thermischen Belastungen stattfinden. Entwicklungen im Bereich der konventionellen Brennstoffe sind daher insbesondere im Bereich der Verbesserung der thermischen Leitfähigkeit und der neutronischen Eigenschaften der Brennstoffe angesiedelt. Ein weiteres Konzept stellt die Entwicklung dichterere Brennstoffsysteme dar. Mit erhöhter Brennstoffdichte steigt mit der Anzahl spaltbarer Atomkerne pro Volumeneinheit der makroskopische Wirkungsquerschnitt, was den Einsatz geringerer Anreicherungen ermöglicht. Dieser Effekt spielt besonders für die Anwendung von niedrig angereichertem Uran (<20 %) in Forschungsreaktoren eine wichtige Rolle, die die Bereitstellung eines möglichst hohen Neutronenflusses zum Ziel haben /INT 12/.

6.1.2 Brennstoffumschließung

Die zweite Barriere des Mehrbarrierenkonzepts stellt die Brennstoffumschließung dar. Diese wird durch Brennstabhüllrohre als allseitige Umschließung des Kernbrennstoffs gewährleistet. Die Brennstabhüllrohre müssen, neben dem sicheren Einschluss des Kernbrennstoffs und der entstehenden Spaltprodukte, den Anforderungen der Neutronik, des Wärmetransports und der kühlmittelseitigen sowie der brennstoffseitigen Korrosion (PCI) standhalten. Sie stellen somit ein System dar, welches einer komplexen

Aufgabenstellung gerecht werden muss. Während in Flüssigmetall-gekühlten Reaktorsystemen aufgrund des schnellen Neutronenspektrums Brennstabhüllrohre aus Edelstahl verwendet werden können, spielen in den Leichtwasserreaktoren die neutronischen Eigenschaften des Hüllrohrmaterials im thermischen Spektralbereich eine entscheidende Rolle. So werden hier seit geraumer Zeit Zirkonium-basierte Legierungen eingesetzt. Diese weisen eine herausragende Transmission für thermische Neutronen auf, bilden jedoch mit Wasser eine schützende Oxidschicht. Durch die Oxidationsreaktion kann Wasserstoff in der Wandung der Hüllrohre eingelagert werden. Die Zirkonium-basierten Legierungen wurden im Laufe ihrer Entwicklung mit Bezug auf ihre Legierungsbestandteile sowie auf die angewendeten Verfahren optimiert. Alternativ zu den Zirkoniumbasierten Legierungen wurden auch Hüllrohrmaterialien aus Verbundwerkstoffen entworfen und bis heute weiterentwickelt /INT 12/.

6.1.3 Thorium basierte Kernbrennstoffe

Kernbrennstoffe, die auf der Erbrütung von spaltbarem ^{233}U aus natürlichen ^{232}Th basieren, wurden bereits in der Vergangenheit vermehrt eingesetzt. Beispiele dieser Technologie in Deutschland sind der AVR Jülich sowie der THTR-300 Hamm-Uentrop. Als Grund hierfür können die deutlich größeren Vorkommen an Thorium im Vergleich mit Uran und die effizientere Umwandlung von ^{232}Th zu ^{233}U gegenüber der Herstellung von Plutonium aus ^{238}U genannt werden. Die Umwandlung von ^{232}Th zu ^{233}U läuft dabei nach der in Abb. 6.1 dargestellten Reaktion ab.

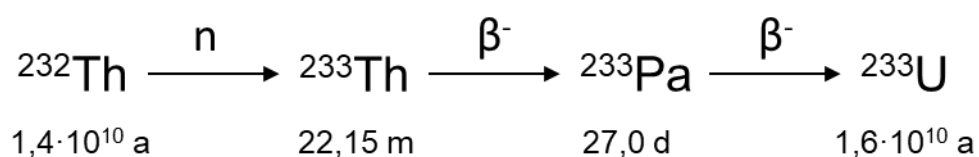


Abb. 6.1 Brutreaktion von ^{233}U aus ^{232}Th als Grundlage für den U-Th-Brennstoffkreislauf /PFE 98/

In der Vergangenheit ging man auf internationaler Ebene aufgrund dieser Gegebenheiten von einem langfristig günstigeren und effizienteren Kernbrennstoffkreislauf aus. Die Verwendung von Thorium-basierten Kernbrennstoffen ergibt hierbei jedoch nur in Verbindung mit der Wiederaufarbeitung der bestrahlten Brennstoffe und der Rezyklierung des ^{233}U einen sinnvollen Kernbrennstoffkreislauf. Hierbei spielen neben den grundlegenden Vorkehrungen mit Bezug auf Strahlenschutz und Proliferationsprävention die

Eigenschaften der eingesetzten Thorium-Verbindungen selbst eine wichtige Rolle. So besitzt das analog zum Uran-(IV)-oxid (UO_2) eingesetzte Thorium-(IV)-oxid einen vergleichbaren Schmelzpunkt sowie ähnliche keramische Eigenschaften, was den Einsatz eines homogenen Gemisches aus Thorium und Uran als Brenn/Brutstoff ermöglicht. In den oben genannten Hochtemperaturreaktoren AVR und THTR-300 konnte der Brennstoff Uran aufgrund der Brennelemente-Konstruktion separat vom Brutstoff eingesetzt werden, sodass die Materialien während der Bestrahlung jeweils sortenrein vorlagen.

6.1.4 Wiederaufarbeitung Thorium-basierter Kernbrennstoffe

Die Auflösung Thorium-haltiger Brennstoffe stellt ein Hindernis in der Vorbereitung der Wiederaufarbeitung dar. Thoriumdioxid ist in der zur Vorbereitung auf den PUREX-Prozess verwendeten siedenden Salpetersäure quasi unlöslich (siehe Kapitel 6.2.5.2). Zur vollständigen Auflösung Thorium-haltiger Brennstoffe ist der Zusatz von Fluorid-Ionen als Katalysator notwendig, der jedoch auch das Korrosionsverhalten der Strukturmaterialien signifikant ändert. Durch Zugabe eines Aluminium-basierten Korrosionsinhibitors könnten jedoch zufriedenstellende Auflöseraten in Verbindung mit minimierter Korrosion erzielt werden.

Das zur Aufarbeitung der Brennstoffe entwickelte THOREX-Verfahren basiert auf dem industriell angewandten PUREX-Verfahren zur Rezyklierung von Uran und Plutonium aus bestrahlten Leichtwasserreaktor-Brennelementen. Die Unterschiede des THOREX-Verfahrens gegenüber PUREX liegen hierbei in der Redox-Chemie. Während das Plutonium im PUREX-Verfahren durch Reduktion in eine nicht extrahierbare Form verbracht und somit vom Uran getrennt wird, muss die Trennung im THOREX-Verfahren aufgrund der Stabilität der Oxidationsstufe Th(IV) ohne einen Wechsel der Oxidationsstufe ausschließlich durch die verschiedenen Verteilungsverhältnisse von U(VI) und Th(IV) stattfinden. Zudem erschwert die geringe Löslichkeit des Th(IV)-TBP-Komplex im organischen Lösungsmittel die Optimierung der hydrodynamischen Prozesseigenschaften. Eine weitere Besonderheit des Einsatzes ^{232}Th basierter Brennstoffe ist das Aktinoid Protactinium (Pa), welches neben dem im Brutprozess auftretenden kurzlebigen Nuklid (^{233}Pa , Abb. 6.1) zusätzlich durch die $^{232}\text{Th}(n,2n)^{231}\text{Th}$ mit anschließendem β^- -Zerfall zum langlebigen ^{231}Pa gebildet wird und im Prozess der ^{233}U Rezyklierung betrachtet werden muss.

Für den Einsatz signifikant ^{238}U haltiger Brennstoffe müssen neben dem im Brutprozess erzeugten langlebigen Protactinium zusätzlich die Elemente Plutonium, Neptunium und Americium betrachtet werden. Die Abtrennung von Plutonium ist, durch die Ähnlichkeit zum PUREX-Prozess, nach erfolgreicher Co-Extraktion von U, Th und Pu durch Reduktion des Plutoniums zu Pu(III) denkbar. Der prozessbezogene Dekontaminationsfaktor von Neptunium im THOREX-Prozess ist mit 90% jedoch vergleichsweise niedrig, was zu einer Kontamination der Produkte führt /THO 74/. Americium(III) wird vom eingesetzten TBP nicht extrahiert, es trägt jedoch, ähnlich den Abfällen aus dem PUREX-Prozess, signifikant zur Langzeit-Radiotoxizität der radioaktiven Prozessabfälle bei. Die Abtrennung von Americium aus Kernbrennstoff- oder Spaltproduktlösungen stellt zurzeit eine der schwierigsten Aufgaben der nuklearchemischen Separationschemie dar und wurde bereits im Kapitel 6.2.8 detailliert behandelt. Die Implementierung einer Americium-Abtrennung in ein Verfahren zur Behandlung Thorium-haltiger Brennstoffe könnte entsprechend der Ansätze zur Entfernung von Americium(III) aus PUREX-Raffinaten erfolgen /KAU 17/, /KAU 16/, /BOL 12/, /VAN 16a/, /MAR 15/. Dem bei der Brutreaktion als Zwischenprodukt aus ^{232}Th entstehenden ^{233}Pa ($t_{1/2}=27$ d) kann durch ausreichende Abklingzeit der bestrahlten Elemente begegnet werden, was gleichzeitig die Ausbeute an ^{233}U erhöht. Das durch eine (n,2n) Reaktion aus dem ^{232}Th in signifikanten Mengen entstehende ^{231}Pa ($t_{1/2}=3,28 \cdot 10^4$ a) stellt im THOREX-Prozess eine Herausforderung an die Prozesschemie dar. Seit Beginn der THOREX-Entwicklung wurden verschiedene Ansätze verfolgt, das ^{231}Pa bereits vor dem THOREX-Prozess aus der Feed-Lösung zu entfernen. Hierzu wurde eine vorgeschaltete Extraktion mit Dibutyl-Carbitol durchgeführt. Moderne Ansätze verfolgen die selektive Absorption vorhandener Pa Isotope in VYCOR-Glas /TAY 15a/, /IAE 05/.

Aufgrund des hohen Relativgehalts an spaltbaren Nukliden ^{233}U und ^{235}U stellen Kritikalitätsaspekte bei der Wiederaufarbeitung von Uran/Thorium basierten Brennstoffen eine besondere Herausforderung dar und sind bei der Dimensionierung der Wiederaufarbeitungsanlage und der Komponenten speziell zu beachten /THO 74/, /THO 75/. Die Nacherzeugung von ^{233}U durch das langsam zerfallende ^{233}Pa ist hierbei zu berücksichtigen.

Abb. 6.2 zeigt ein vereinfachtes Fließbild der 1978 fertiggestellten und 1987 stillgelegten, mittlerweile vollständig rückgebauten /BMU 12/ „Juelicher Pilotanlage für Thorium Element Reprocessing“ (JUPITER) nach /TIS 81/. Das in dieser Anlage verwendete THOREX-verfahren ist unter dem Namen „Dual-cycle-THOREX“ bekannt /MER 84/.

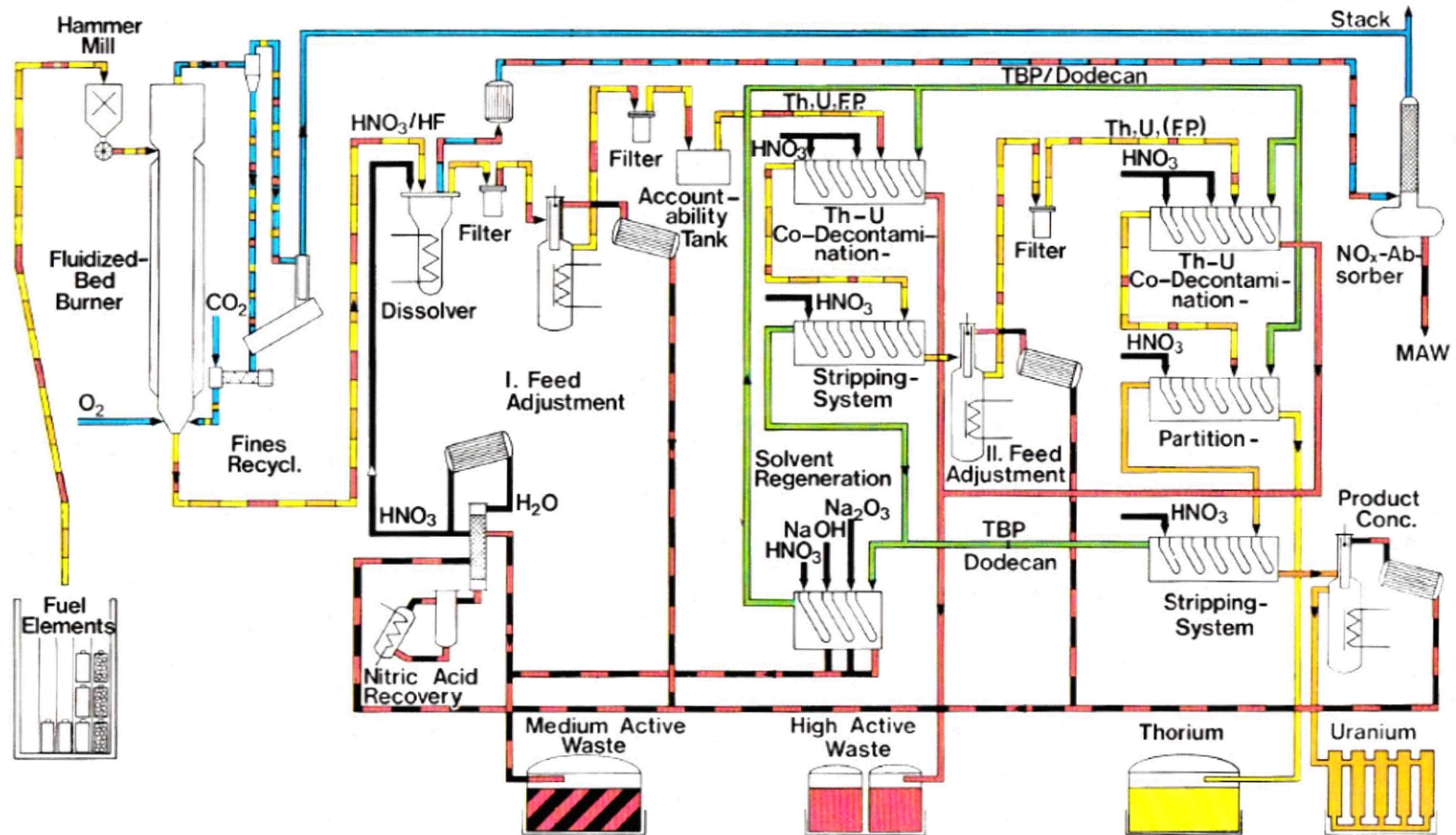


Abb. 6.2 Vereinfachtes Fließbild der Jülicher Pilotanlage für Thorium Element Reprocessing (JUPITER) nach /TIS 81/

Radiologisch stellt die Anwesenheit relativ hoher Konzentrationen an ^{232}U im durch Bestrahlung von ^{232}Th erzeugten ^{233}U Kernbrennstoff eine Besonderheit dar. In der Zerfallskette von ^{232}U (Halbwertszeit ca. 69 Jahre), welches unabdingbar in Spuren im bestrahlten Uran/Thorium-Gemisch vorliegt, kommt das Thallium-Isotop ^{208}Tl vor. Als starker γ Strahler mit einer intensiven Linie bei etwa 2,61 MeV ist ^{208}Tl neben weiteren Isotopen radiologisch von hoher Bedeutung /THO 74/. Das Uranisotop ^{232}U bleibt auch nach der Anwendung des THOREX-Prozesses chemisch in der Uran-Fraktion eingebunden. Es entsteht über die (n, 2n)-Reaktion aus ^{233}U und kommt für die oben genannten Reaktor-konzepte in Gehalten von 1500– 3000 ppm vor /THO 74/. Es wird zudem durch die (n, 2n)-Reaktion und anschließenden Betazerfall aus ^{233}Pa erzeugt. Das Nuklid ^{232}U ist durch seine chemische Identität mit anderen Uran-Isotopen in ^{233}U basierten Kernbrennstoffen unvermeidlich. Diese Eigenschaften erfordert den Einsatz adäquater Abschirmung bei Produktion, Transport und Lagerung ^{233}U -basierter Brennstoffe /GRA 75/. Die Zerfallskette von ^{232}U ist in Abb. 6.3 dargestellt /PFE 98/.

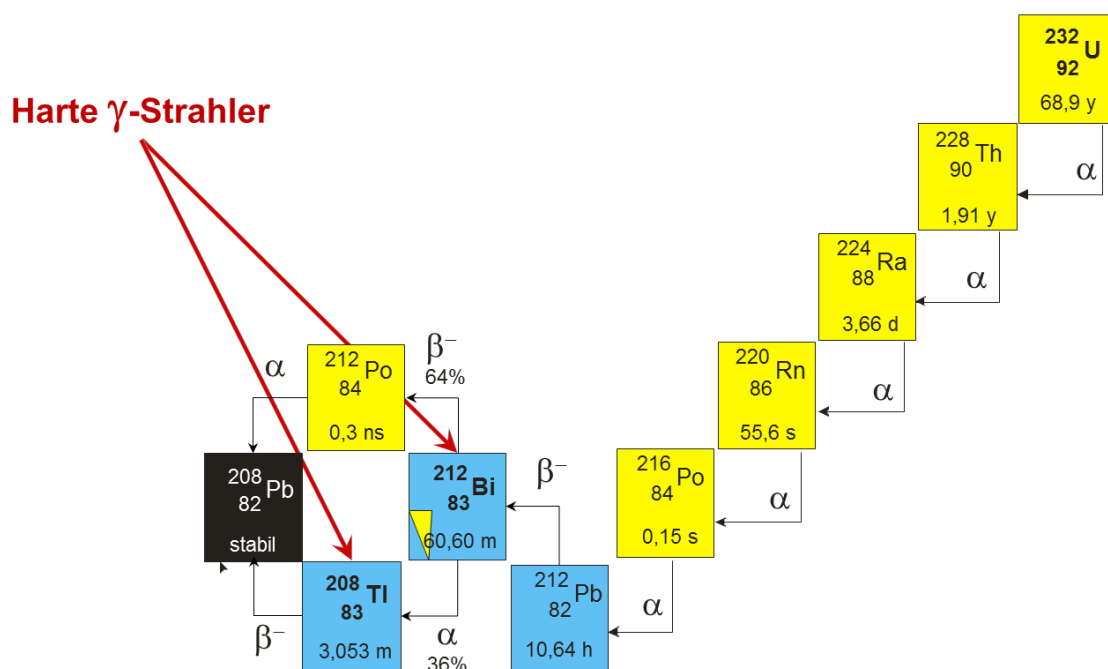


Abb. 6.3 Zerfallskette von ^{232}U bis hin zum stabilen ^{208}Pb /PFE 98/

Im Labormaßstab wurden verschiedene Varianten des THOREX-Prozesses in mehreren Ländern realisiert. Insbesondere in den USA (Savannah River, H-Canyon), in Deutschland (Jülich, JUPITER) und in Indien (Trombay, BARC), aber auch in Südafrika, Japan und China, sowie Großbritannien, Frankreich und Russland, konnten hierzu Erfahrungen gesammelt werden. Die in den vergangenen 35 Jahren erlangten Fortschritte in der selektiven Separation einzelner Bestandteile aus bestrahlten Brennstoffen ermöglichen

heute eine deutlich effizientere Prozessführung, die eine adäquate Adressierung der im THOREX-Prozess verbleibenden Probleme ermöglicht. Hier wären Ansätze ähnlich der für den Uran/Plutonium-Kernbrennstoffkreislauf entwickelten innovativen Prozesse (vgl. Kapitel 5.2) denkbar /TAY 15a/. Diese könnten neben der effizienteren Prozessführung auch einen Zugewinn bei der Proliferationsresistenz bieten. Auch die Behandlung radioaktiver Abfälle wurde in den vergangenen 35 Jahren signifikant weiterentwickelt, wodurch heute deutlich geringere Abfallvolumina und nach heutigem Stand von Wissenschaft und Technik minimierte Emissionen möglich sind. Die Anpassung der existierenden THOREX-Verfahren inklusive der „Head-End“-Prozesse an heutige Standards würde signifikante Forschungs- und Entwicklungsarbeit voraussetzen. Die Neuentwicklung eines Prozesses zur Abtrennung von Uran, Thorium und Plutonium auf Basis moderner Sauerstoff- und Stickstoff-Donor-Liganden ermöglichte eine proliferationsoptimierte und abfallminimierende Prozessführung nach dem Vorbild innovativer Rezyklierungsprozesse wie sie für U/Pu Brennstoffe mit dem GANEX-Konzept oder der konsekutiven Separation einzelner Elementgruppen in den neuen SANEX-Prozessen bereits entwickelt wurden /MIG 07/, /MOD 14/.

Trotz der Aufgabe des in Deutschland weit fortgeschrittenen Projekts zur Erweiterung des Kernbrennstoffkreislaufs um $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$ in Kugelhaufenreaktoren, wird der Uran-Thorium Brennstoffkreislauf im internationalen Umfeld als Alternative zum U-Pu Kernbrennstoffkreislauf angesehen und von einigen Staaten für die Erweiterung oder den Neueinstieg in ihr Nuklearprogramm in Betracht gezogen. Insbesondere sind hier Indien und die USA zu nennen /TAY 15a/.

6.2 Partitionierung

6.2.1 Einleitung

Das Konzept der Partitionierung verfolgt die chemische Auftrennung der Bestandteile bestrahlten Brennstoffs. Während dem Einsatz im Kernreaktor entstehen im Brennstoff Spalt- und Aktivierungsprodukte, die maßgeblich für die Radiotoxizität und Wärmeleistung der Abfälle verantwortlich sind. Die quantitative Zusammensetzung ausgedienter Brennelemente entspricht etwa 95 % Uran, 4 % Spaltprodukte, 1 % Plutonium sowie ein geringer Anteil minorer Aktinoide (MA). Die Spaltprodukte stellen eine große Bandbreite der Elemente des Periodensystems dar, was bestrahlten Brennstoff zu einer chemisch sehr komplexen Mischung macht. Für die Partitionierung ist mit Hinblick auf die

Rezyklierung bestrahlter Kernbrennstoffe besonders die Gruppe der Lanthanoide von gesteigertem Interesse. Einige der Lanthanoide besitzen erhebliche Wirkungsquerschnitte für den Neutroneneinfang und müssen somit möglichst vollständig aus den rückzuführenden Produkten entfernt werden. Die im Brennstoff enthaltenen Aktivierungsprodukte setzen sich aus den majoren Aktinoiden U und Pu, sowie den minoren Aktinoiden Np, Am und Cm zusammen. Nach dem Zerfall der Spaltprodukte (nach ~ 300 Jahren) kommt den transuranen Aktivierungsprodukten eine dominante Rolle in der Entwicklung der Radiotoxizität und Wärmeentwicklung über die Lagerzeit zu. Abb. 6.4 zeigt den Verlauf der Radiotoxizität verschiedener Bestandteile des bestrahlten Brennstoffs als Funktion der Lagerzeit. Die Wärmeleistung kann hier näherungsweise mit der Radiotoxizität gleichgesetzt werden.

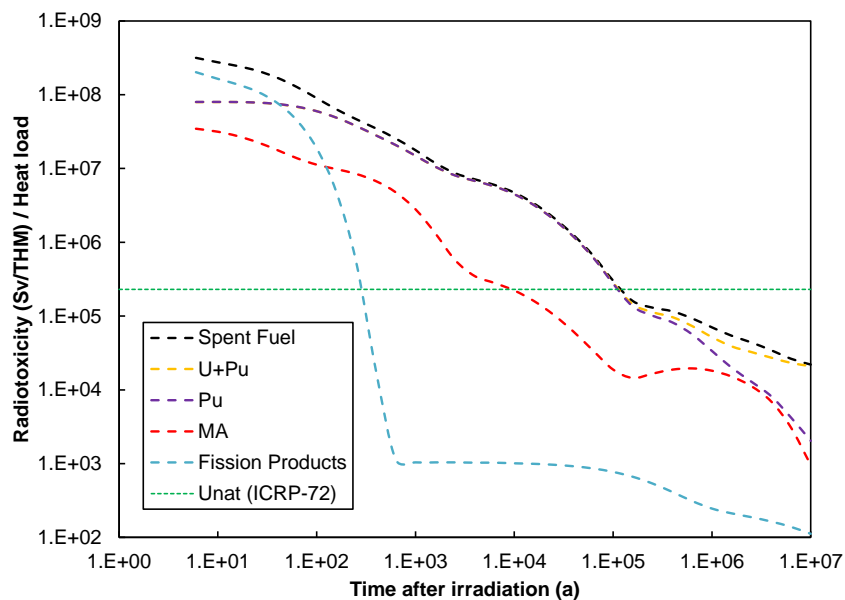


Abb. 6.4 Radiotoxizität verschiedener Bestandteile bestrahlten Brennstoffs als Funktion der Abklingzeit /MAG 03/

Die Radiotoxizität bestrahlter Brennstoffe für den in Deutschland verfolgten Ansatz der direkten Endlagerung ist in Abb. 6.4 als oberste schwarze Datenreihe dargestellt. Aufgrund der Natur der bestrahlten Brennstoffe stellt die direkte Endlagerung die Summe der Radiotoxizität aller im Brennstoff vorhandenen Bestandteile dar. Besondere Aufmerksamkeit kommt in diesem Zusammenhang den minoren Aktinoiden (MA, rot) und den Spaltprodukten (grau) zu. In einigen inner- sowie außereuropäischen Ländern wird dagegen die Rezyklierung von Kernbrennstoffen als sinnvolle Alternative zur direkten Endlagerung betrachtet und im Rahmen von Forschungs- und Entwicklungsprogrammen weiterentwickelt. Als besonders engagierte Staaten sind hier Frankreich, Groß-

britannien, Russland, Japan und die USA zu nennen, welche auf diesem Gebiet in umfassend organisierten internationalen Projekten zusammenarbeiten.

Ziel der Partitionierung ist es, alle weiter behandelbaren oder wiederverwendbaren Bestandteile bestrahlten Brennstoffs in der jeweils notwendigen Reinheit für folgende Verarbeitungsschritte zur Verfügung zu stellen. In einem daraus resultierenden geschlossenen Brennstoffkreislauf werden die verbliebenen majoren Aktinoiden und die entstandenen minoren Aktinoiden in Anlagen zur Kernspaltung zurückgeführt, wobei als einziger zu entsorgender Abfallstrom die Spaltprodukte übrigbleiben. Mehrere Länder aus dem EU- und nicht-EU-Ausland beteiligen sich an der Erforschung und Entwicklung der notwendigen Separationsprozesse /WAR 11/. Die Entwicklung der Prozesse wird hierbei zum Beispiel im Rahmen von Projekten der Europäischen Kommission oder durch nationale Zusammenschlüsse wie zum Beispiel dem US-amerikanischen Department of Energy (DoE) Sigma-Team oder der französischen CEA-DEN durchgeführt. Ziel dieser Strategie ist primär die Verringerung der Radiotoxizität und Wärmeleistung radioaktiver Abfälle, wobei auch die bessere Ausnutzung der vorhandenen nuklearen Ressourcen eine Rolle spielt. Als erster Prozessschritt zur Rezyklierung bestrahlten Brennstoffs ist der bereits heute industriell angewandte PUREX-Prozess (Rezyklierung von Uran und Plutonium aus bestrahlten Kernbrennstoffen) zu nennen, welcher die Grundlage für einige der weiterführenden Prozesse legt /BOU 11/ /BOU 15/ /GEI 16/ /TAY 15b/ /WAR 11/. Im folgenden Kapitel werden die grundlegenden Techniken zur chemischen Trennung radioaktiver Stoffgemische aus bestrahltem Kernbrennstoff erläutert und im Anschluss die Konzepte der homogenen und heterogenen Rezyklierung mit den jeweiligen relevanten Prozessen dargestellt.

Chemische Aspekte der Partitionierung bestrahlter Kernbrennstoffe

Aufgrund der chemischen Komplexität bestrahlter Kernbrennstoffe stellt die Separation einzelner Elemente hohe Ansprüche an die eingesetzten Verfahren und die Prozessführung. Eine Trennung der verschiedenen Stoffe muss aufgrund unterschiedlicher Eigenschaften geschehen. Hier sind im Bereich der Partitionierung die Oxidationsstufe eines Elements sowie das entsprechende Redox-Potential und der Ionenradius von Bedeutung. Uran und Plutonium lassen sich durch den PUREX-Prozess (Kapitel 6.2.5.2) abtrennen, was die verbleibende Mischung auf Spaltprodukte und minore Aktinoide reduziert. Die Spaltprodukte lassen sich nach ihrem chemischen Verhalten in die Gruppe der Lanthanoide (Ln(III)) und leichten Spaltprodukte unterteilen. Die zum großen Teil aus Übergangsmetallen bestehenden leichten Spaltprodukte lassen sich durch gezieltes

Einstellen der Prozessführung entfernen. Ein weitaus größeres Problem stellen dabei die Lanthanoide dar. Lanthanoide gehören, wie die Aktinoiden, zur Gruppe der f-Elemente. Diese zeichnen sich durch die Besetzung der abgeschirmten 4f- bzw. 5f-Orbitale aus, was in einer ausgeprägten chemischen Ähnlichkeit resultiert. Die fortlaufende Besetzung dieser abgeschirmten Elektronenschalen mit steigender Ordnungszahl führt dazu, dass die Ionenradien sich nur minimal verändern und die bevorzugte Oxidationsstufe +III auf alle Lanthanoide zutrifft, siehe Tab. 6.1. Die dreiwertigen 5f-Elemente (Aktinoiden) besitzen durch eine entsprechende Kombination der Effekte ähnliche Ionenradien im Vergleich zu einigen Ln(III), siehe Tab. 6.2.

Tab. 6.1 Übersicht über die Ionenradien der für bestrahlten Brennstoff relevanten Lanthaniden nach /MOR 80/

	La(III)	Ce(III)	Pr(III)	Nd(III)	Sm(III)	Eu(III)	Gd(III)
Ionenradius (pm)	106	103	101	100	96	95	94

Tab. 6.2 Übersicht über Ionenradius und Oxidationsstufen ausgewählter Aktinoiden. Die stabilste Oxidationsstufe in saurer wässriger Lösung ist fett gedruckt; der Ionenradius bezieht sich jeweils auf die stabilste Oxidationsstufe /CHO 02/

	U	Np	Pu	Am	Cm
Ionenradius (pm)			88,7	98,2	97,0
Oxidationsstufe	+III;+IV, +V, +VI	+III, +IV, +V , +VI, +VII	+III, +IV , +V, +VI	+III , +IV, +V, +VI	+III , +IV

6.2.2 Flüssig-Flüssig-Extraktion

Eine wichtige Methode zur chemischen Trennung von Stoffgemischen stellt die Flüssig-Flüssig-Extraktion dar. Hierbei wird die unterschiedliche Verteilung verschiedener Substanzen in zwei in Kontakt stehenden, nicht mischbaren Flüssigkeiten ausgenutzt. Das zu trennende Stoffgemisch wird in der Regel als wässrige Phase vorgelegt, wobei die Trennung durch Extraktion der gewünschten Substanzen in eine organische Phase stattfindet. Nachdem die Phasen getrennt wurden, kann die in der organischen Phase befindliche Substanz mit Hilfe einer geeigneten wässrigen Phase Rückextrahiert werden, um so die Produktfraktion zu bilden. Die zur Stofftrennung mittels Flüssig-Flüssig-Extraktion notwendigen Prozesse sind in Abb. 6.5 schematisch dargestellt. Basierend auf diesem Grundprinzip lassen sich durch die gezielte Kombination von Lösemitteln, Phasen-Modifikatoren, hydrophilen und lipophilen Liganden hochkomplexe Extraktionssysteme für den gezielten Einsatz erstellen. Neben den komplexen Anforderungen an die

chemische Trennung der Komponenten spielt die Radiolysestabilität der Extraktions- und Lösemittel eine entscheidende Rolle. Hierbei ist die spezifische Dosis, die auf das System wirkt, jedoch abhängig von der Prozessführung und nimmt generell vom PUREX Prozess zu den Folgeprozessen hin ab. Beispiele für den großtechnischen Einsatz der Flüssig-Flüssig-Extraktion ist die Aufbereitung von Metallerzen und der PUREX-Prozess.

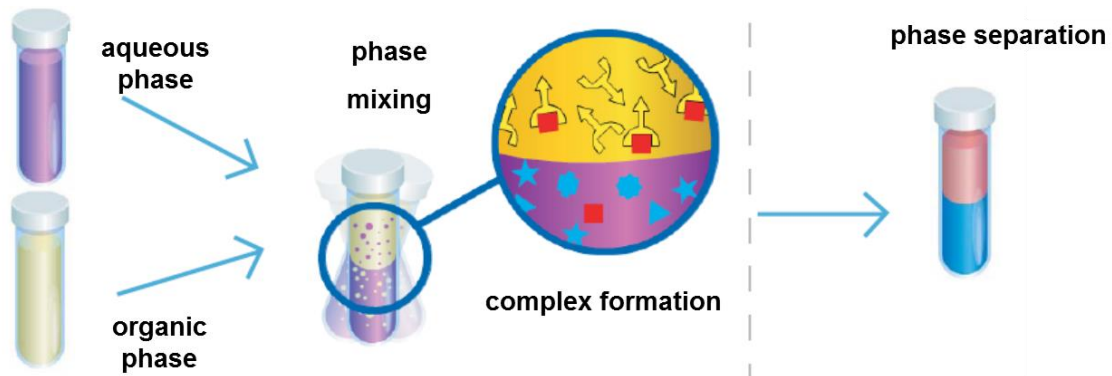


Abb. 6.5 Schematische Darstellung der bei der Flüssig-Flüssig-Extraktion ablaufenden Prozesse zur Stofftrennung /GER 14/

6.2.3 Hydrometallurgische Partitionierungsprozesse

Die gegenüber dem PUREX-Prozess fortschrittlicheren Prozesse befinden sich in unterschiedlich ausgeprägten Entwicklungsstadien, haben jedoch gemeinsam, dass sie bei Weitem nicht die technische Ausgereiftheit des PUREX-Prozesses heranreichen. Dies hängt primär mit der früheren militärischen, sowie der späteren zivilen Nutzung des PUREX-Prozesses zusammen. Durch die Möglichkeit reines Pu abtrennen zu können folgt ein großes Proliferationsrisiko. Wenn auch das in LWR entstandene Plutonium nicht die für militärische Zwecke notwendige Reinheit aufweist, bleibt das Proliferationsrisiko doch eines der primären Argumente gegen die Anwendung des PUREX-Prozesses. Aus dieser Argumentation heraus wurden alternative Prozesse mit deutlich verringertem Proliferationsrisiko, d. h. mit weniger reinen Plutoniumströmen, entwickelt. Abb. 6.6 zeigt eine Übersicht über relevante Partitionierungs-Prozesse. Die verschiedenen Ansätze und Prozesse werden im Folgenden detaillierter beschrieben und ergänzt /WAR 11/ /WAR 11/ /GEI 16/ /BOU 11/.

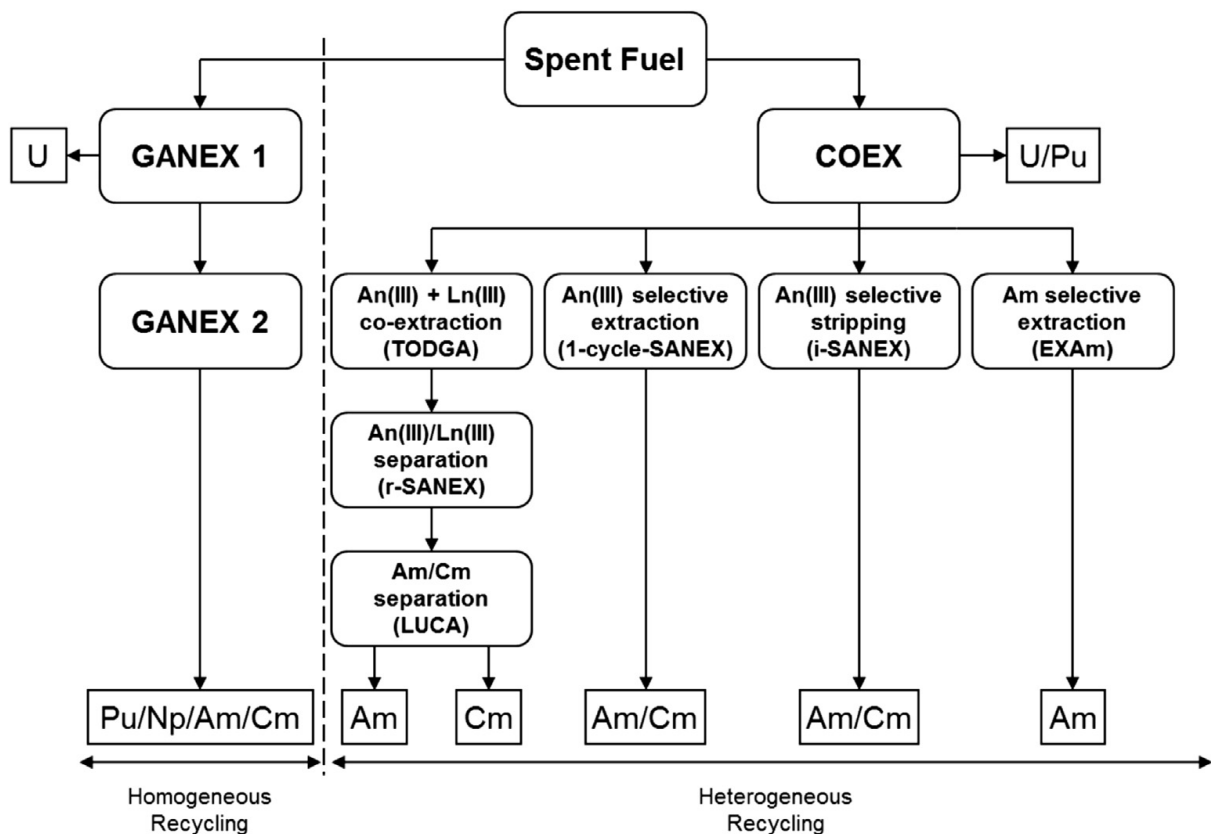


Abb. 6.6 Übersicht über relevante Prozesse der Partitionierung bestrahlter Kernbrennstoffe /MOD 14/

Die in Abb. 6.6 gezeigten Prozesse lassen sich in die homogene und die heterogene Rezyklierung unterteilen. Die Unterscheidung bezieht sich dabei auf die gemeinschaftliche (homogene) oder getrennte (heterogene) Behandlung von majoren und minoren Aktinoiden. Der hier gezeigte GANEX (Group ActiNide EXtraction) Prozess stellt dabei den wichtigsten Ansatz zur homogenen Rezyklierung dar. Er beruht auf den Grundlagen des PUREX-Prozesses, durchläuft jedoch aufgrund der großen chemischen Unterschiede zwischen einigen Aktinoiden sowie deren stark unterschiedlichen Mengenverhältnissen erheblich komplexere Separationsschritte.

Aufgrund der chemischen Diversität der verschiedenen Aktinoide sowie der Spaltprodukte wurden mit der heterogenen Rezyklierung verschiedene aufeinander aufbauende Prozesse zur Separation der Bestandteile bestrahlten Brennstoffs entwickelt. Als Ausgangsprodukt für diese Prozesse ist das PUREX-Raffinat, welches eine starksaure Lösung von Spalt- und Aktivierungsprodukten sowie den verbliebenen minoren Aktinoiden darstellt. Als fortschrittlicher Ansatz ist in Abb. 6.6 der COEX- Prozess als proliferationsoptimiertes PUREX-Analogon zur Abtrennung von U und Pu aus bestrahltem Kernbrennstoff dargestellt. Nach der Abtrennung von U und Pu lassen sich verschieden

Pfade der Prozessführung einschlagen, welche verschiedenartige Aktinoiden-Produkte anstreben und im Anschluss detaillierter beschrieben werden.

6.2.4 GANEX (homogene Rezyklierung)

Der EURO-GANEX Prozess stellt einen proliferationsresistenten Ansatz zur gemeinsamen Rezyklierung der transuranen Elemente (TRU) aus bestrahltem Brennstoff dar. Zur Vorbereitung auf den Prozess wird der Brennstoff zerkleinert und in siedender Salpetersäure aufgelöst. Die entstandene Lösung wird im Anschluss filtriert, wobei das Filtrat als Ausgangsstoff für den Flüssig-Flüssig-Extraktionsprozess dient. Abb. 6.7 zeigt ein stark vereinfachtes Fließbild des Euro-GANEX-Prozess mit den relevanten Prozessschritten und den entsprechenden Produkten wobei im Text auf die nummerierten Prozessschritte in der Grafik verwiesen wird. Aufgrund des vielfach höheren Anteils von Uran gegenüber den transuranen Elementen ist es nötig, der eigentlichen TRU-Gruppen-Separation einen Schritt zur Entfernung des Urans vorzuschalten (1). Dieser als GANEX-1 bezeichnete Schritt kann in Form einer Malonamid - basierten Extraktion, oder in Form einer Uran-Extraktion mit Hilfe des PUREX-Extraktionsmittels Tributylphosphat (TBP) ausgeführt werden. Das extrahierte Uran wird im Anschluss gereinigt und kalziniert. Die transuranen Elemente verbleiben zusammen mit den Spaltprodukten im wässrig-salpetersauren Raffinat. Im nun folgenden GANEX-2 Prozessschritt werden die transuranen Elemente, mittels einer Kombination der lipophilen Liganden TODGA (*N,N,N',N'*-Tetraoctyldiglycolamide; siehe Anhang) und DMDOHEMA (*N,N'*-dimethyl-*N,N'*-dioctyl-2-(2-hexyloxymethyl)-malonamide, siehe Anhang) gelöst in Kerosin, aus der salpetersauren Lösung extrahiert (2). Bei diesem Schritt folgen zudem die Lanthaniden (Ln(III)) den transuranen Elementen womit nur die leichten Spaltprodukte im wässrigen Raffinat verbleiben. Die Separation der Ln(III) und transuranen Elemente von den Spaltprodukten wird hierbei durch die Komplexierung einiger leichter Spaltprodukte durch das hydrophile CDTA (*trans*-1,2-Cyclohexandiaminotetraessigsäure) verbessert. Die extrahierten transuranen Elemente werden im Anschluss unter Verwendung einer Kombination aus Acetohydroxamsäure (AHA) und Sulphophenyl-bis-triazinyl-pyridin (SO₃Ph-BTP jeweils im Anhang) aus der organischen Liganden-Lösung entfernt (3). AHA bewirkt hierbei die Reduktion des Np(VI) sowie die Komplexierung des Pu, SO₃Ph-BTP komplexiert die trivalenten Aktinoide Am(III) und Cm(III). Der aus diesem Schritt hervorgehende TRU-Produktstrom wird aufgereinigt und kalziniert. Die in der organischen Phase verbleibenden Lanthanide werden mittels einer Pufferlösung aus der organischen Phase entfernt (4)./TAY 16/ /CAR 14/

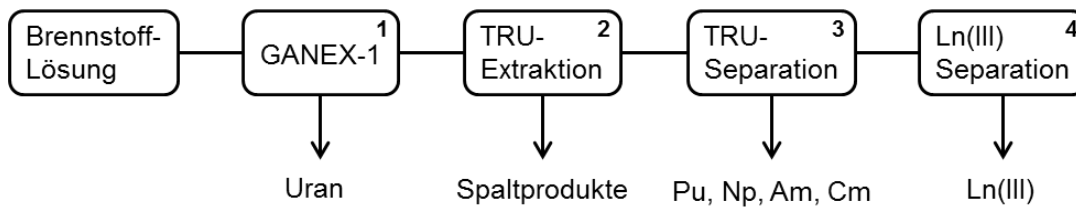


Abb. 6.7 Vereinfachtes Fließbild des Euro-GANEX-Prozess /TAY 16/

6.2.5 Heterogene Rezyklierung

Dieses Kapitel beschreibt die verschiedenen Methoden und Aspekte der heterogenen Rezyklierung.

6.2.5.1 Uran und Plutonium Abtrennung

Die Abtrennung spaltbarer Nuklide aus bestrahltem Kernbrennstoff geht bis in die ersten Anwendungen der Kernspaltung zurück. Wurden damals hauptsächlich Kernbrennstoffe mit niedrigem Abbrand behandelt um das darin erbrütete Plutonium für die Produktion von Kernwaffen zu nutzen, so werden heute Kernbrennstoffe mit hohen Abbränden aufgearbeitet, um die enthaltenen spaltbaren Nuklide des Plutoniums für einen weiteren Einsatz im Reaktor vorzubereiten. Die Methode der Plutonium-Rezyklierung wird seit geraumer Zeit in europäischen Nachbarländern durchgeführt und unterliegt auch heute noch einer fortschreitenden Entwicklung /TAY 15a/.

6.2.5.2 PUREX

Der PUREX-Prozess (Plutonium and Uranium Recovery by Extraction) stellt einen Flüssig-Flüssig-Extraktionsprozess dar, der über Jahrzehnte in industrieller Anwendung erprobt wurde. Die beiden industriehistorisch wichtigsten Anlagen zur Anwendung des PUREX-Prozesses sind die britische Wiederaufbereitungsanlage Sellafield in Cumbria, sowie die französische Wiederaufarbeitung La Hague in der Normandie. Auch die bis 2005 zur Wiederaufarbeitung abgegebenen deutschen Abfälle wurden in diesen Anlagen verarbeitet. Der PUREX-Prozess basiert auf mehreren Flüssig-Flüssig-Extraktionsschritten. Die Kernbrennstoffe werden hierzu zerkleinert und in siedender Salpetersäure aufgelöst. Schwerlösliches Zirkonium und andere schwerlöslichen Bestandteile werden abfiltriert. Das gelöste U(VI) und Pu(IV) wird gemeinsam in die organische Phase extrahiert. Dies geschieht durch Kontakt mit der Lösung bestehend aus TBP (Tributylphosphat) gelöst in gereinigtem Kerosin. Durch die Extraktion von U(VI) und Pu(IV) werden

diese von den in der wässrigen Lösung verbleibenden Spalt- und Aktivierungsprodukten getrennt. Neptunium und weitere Minore Aktinoide bleiben dabei mit den Spaltprodukten im wässrigen Raffinat zurück. Nach Zugabe eines Reduktionsmittels (früher Eisensulfamat, heute Hydroxylamin-Nitrat) wird das Plutonium in die durch TBP nicht- extrahierbare Oxidationsstufe Pu(III) überführt und mittels Salpetersäurelösung aus der organischen Phase herausgewaschen. Das in der organischen Phase verbleibende Uran wird in einem weiteren Schritt mittels verdünnter Salpetersäure aus der organischen Phase entfernt. Die beiden Produktströme bestehend aus Uran und Plutonium werden mittels Flüssig-Flüssig-Extraktion weiter gereinigt.

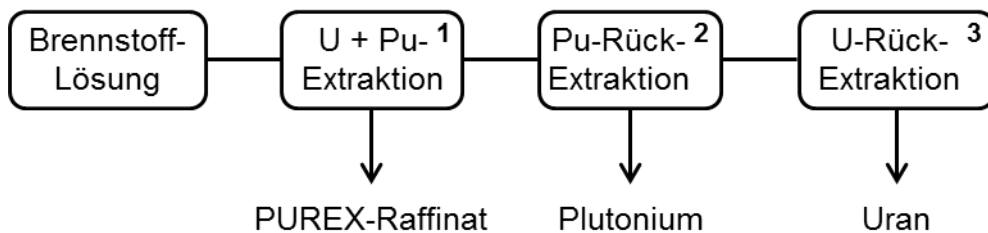


Abb. 6.8 Grundfließschema des PUREX-Prozesses /TAY 15a/

Der PUREX-Prozess umfasst eine große Variation an Prozessführungs-Varianten, die zwar alle nach dem zuvor beschriebenen Schema ablaufen, sich jedoch im Detail unterscheiden. So wurde beispielsweise die Zusammensetzung der organischen Phase mit Bezug auf die TBP-Konzentration, als auch auf die Art des Lösemittels hin variiert /TAY 15a/.

6.2.5.3 Advanced PUREX

Eine wichtige Weiterentwicklung des PUREX-Prozesses stellt die Optimierung des Neptunium-Managements dar. Neptunium verfügt über mehrere stabile Oxidationsstufen die, unter PUREX-Bedingungen, untereinander dis- oder komproportionieren können und somit ein sehr komplexes chemisches Verhalten bewirken. Im Advanced PUREX Prozess werden analog zum PUREX-Prozess die Aktinoide Uran und Plutonium mit Hilfe einer Lösung aus TBP in gereinigtem Kerosin aus der wässrigen Phase entfernt. Im regulären PUREX-Prozess wird in diesem Schritt ebenfalls Neptunium der Oxidationsstufe Np(VI) co-extrahiert, welches dann in den darauffolgenden Prozessen der U- und Pu-Produkt-Reinigung entfernt wird. Die co-extrahierten Np(VI) Stoffmengen liegen unter den Bedingungen des PUREX-Prozess in Sellafield und La Hague bei 70-75 %, womit eine vollständige Isolation des Neptuniums im PUREX-Prozess nicht möglich ist. Die Oxidationsstufe des Neptuniums ist hierbei stark von der Nitrit-Konzentration abhängig, die aus der

Salpetersäure in der wässrigen Phase hervorgeht und das Extraktionsverhalten empfindlich beeinflusst. Eine Möglichkeit zur quantitativen Extraktion (>99 %) bietet die Erhöhung der Nitrit-Konzentration während der Extraktion. Hierzu kann einerseits die Nitrat Konzentration erhöht werden, wodurch die Gleichgewichts-Nitrit-Konzentration angehoben wird, oder Nitrit zur Feed-Lösung zugesetzt werden. Im nachfolgenden Prozess wird dann eine Separation der Co-extrahierten Actiniden U, Pu und Np durchgeführt. Hierzu können, wie im regulären PUREX-Prozess, Reduktionsmittel eingesetzt werden. Als wichtige Reduktionsmittel sind hier Acetohydroxam-Säure (AHA) und Hydroxylamin-Nitrat zu nennen /TAY 15a/.

6.2.5.4 COEX

Der COEXTM-Prozess stellt eine proliferationsoptimierte Variante des PUREX-Prozesses dar. Der gelöste Brennstoff wird, wie beim PUREX-Prozess, mit einer organischen Phase bestehend aus TBP in Kerosin in Verbindung gebracht. Hierbei werden U(VI) und Pu(IV) in die organische Phase extrahiert. Durch Änderung der Prozessführung kann im Anschluss ein großer Teil des Urans aus der organischen Phase rückextrahiert werden, während Plutonium und Teile des Urans in der organischen Phase verbleiben. Das Plutonium wird im Anschluss durch Zugabe einer U(IV) Lösung zu Pu(III) reduziert. Durch Kontaktieren mit einer Oxalsäure-Lösung lassen sich nun Uran und Plutonium als gemischtes Oxalat ausfällen. Dieses wird nach weiteren Reinigungsschritten im Rahmen einer Co-Konversion oxidiert, um ein auf molekularer Ebene verbundenes (U,Pu)O₂ Mischoxid zu erhalten, welches als „Master Blend“ in den Prozess der Brennelementfertigung Einzug erhält /SEN 09/.

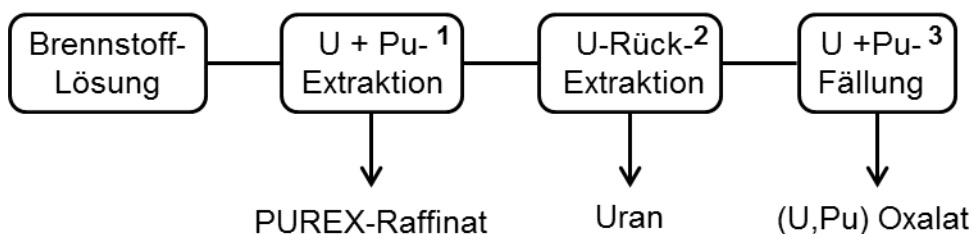


Abb. 6.9 Grundfließschema des COEXTM-Prozesses

6.2.5.5 Multi-Prozess-Ansatz

Die Abtrennung von Uran, Plutonium und gegebenenfalls Neptunium durch die Anwendung des PUREX-Prozesses, oder eines analogen Prozesses, reduziert die chemische Komplexität des verbleibenden hochradioaktiven Raffinats nur geringfügig. Die Raffinate

der oben beschriebenen Prozesse enthalten alle Spaltprodukte sowie die minoren Aktinoiden und stellen das Ausgangsprodukt für fortschrittliche Partitionierungsprozesse der heterogenen Rezyklierung dar. Bei der Verfolgung des Ziels der Separation der trivalenten minoren Aktinoiden Am(III) und Cm(III), stellt deren Trennung von den Ln(III) aufgrund des gemeinsamen trivalenten Zustandes sehr hohe Anforderungen an die Prozesschemie. Eine Möglichkeit der Isolation der minoren Aktinoiden stellt das Hintereinanderschalten verschiedener Prozesse dar, welche jeder für sich die Trennung einer Stoffgruppe von den verbleibenden Stoffgruppen ermöglicht /WAR 11/.

Das DIAMEX-SANEX Konzept beruht auf der sukzessiven Separation der verschiedenen Stoffgruppen der leichten Spaltprodukte, Lanthaniden sowie den Aktinoiden. Basierend auf dem DIAMEX-SANEX-Konzept wurden im Bereich des Multi-Prozess-Ansatzes zudem alternative Prozesse und Prozesserweiterungen entwickelt, die entweder der Vereinfachung der Prozessführung dienen, oder die Produktqualität verbessern. Als alternativer Ansatz zum DIAMEX-Prozess ist hier ein TODGA-Basierter Prozess zu nennen. Als Folgeprozess wurde zudem der LUCA-Prozess entwickelt, welcher die Trennung von Am(III) und Cm(III) voneinander ermöglicht. Die Prozesse werden im Folgenden detailliert vorgestellt /MOD 14/.

6.2.5.6 DIAMEX

Das DIAMEX DIAMide EXtraction Konzept beschreibt eine Gruppe an Prozessen, die auf einem Diamid-basierten Extraktionsmittel zur co-Extraktion von An(III) und Ln(III) beruhen. Dieses Konzept ermöglicht die Trennung der leichten Spaltprodukte von den Lanthaniden Ln(III) und Aktinoiden An(III). Im Folgenden wird der DIAMEX-Prozess mit dem aktuellsten Entwicklungsstand beschrieben. Zur Trennung der Ln(III) und An(III) von den leichten Spaltprodukten wird das PUREX-Raffinat mit einer organischen Phase bestehend aus DMDOHEMA und TPH in Kontakt gebracht.

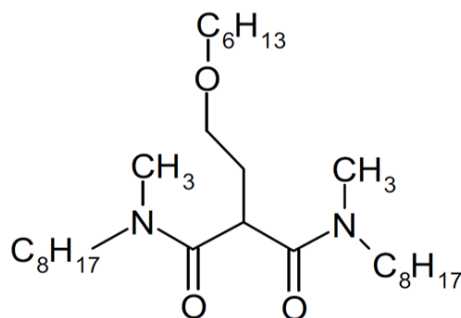


Abb. 6.10 Chemische Struktur des DMDOHEMA-Moleküls /MIG 07/

Die dreiwertigen Aktinoiden und Lanthaniden werden durch die organische Phase extrahiert wobei die leichten Spaltprodukte in der wässrigen Phase zurückbleiben. Die Trennung zwischen den dreiwertigen Ln und An wird zusätzlich durch die Zugabe der hydrophiler Komplexbildner Oxalsäure und HEDTA verbessert. Es folgen Wasch-Schritte, bei denen die beladene organische Phase noch einmal mit den hydrophilen Komplexbildnern Oxalsäure und HEDTA sowie mit Salpetersäure geringer Konzentration in Kontakt gebracht wird. Im Anschluss werden die An(III) und Ln(III) mittels verdünnter Salpetersäure gemeinsam aus der organischen Phase entfernt. Die An(III) und Ln(III) wurden mit Ausnahme von Np und Gd zu > 98 % im Produktstrom wiedergefunden. Als Verunreinigung des An+Ln Produkts ist lediglich Tc zu nennen. Die entstandenen Produkt- sowie Abfallströme stehen hierbei im Volumenverhältnis 1,4 für das Produkt und 2,0 für das DIAMEX-Raffinat im Vergleich zum PUREX-Ausgangsraffinat. Die Durchführbarkeit des DIAMEX-Prozesses unter den Bedingungen einer realen Anwendung wurde durch einen „heißen“ Prozesstest am Institut für Transuranelemente (JRC-ITU) mit einem PUREX-Raffinat aus der Wiederaufarbeitung kommerzieller bestrahlter MOX-Brennstoffe demonstriert /MAL 00/ /SER 05a/ /SER 05b/ /MAD 02/ /MOD 12/.

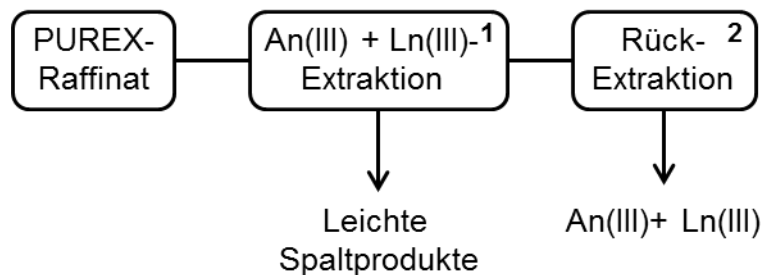
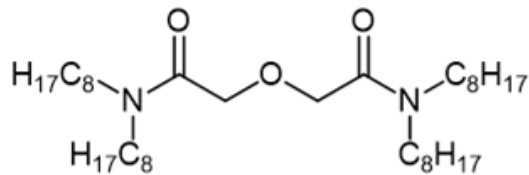


Abb. 6.11 Grundfließschema des DIAMEX- und TODGA-Prozess

6.2.5.7 TODGA-Prozess

Die Stoffklasse der Diglycolamide (DGA) fand in den späten 1990 Jahren Einzug in den Partitioningbereich /SAS 96/. Hierbei konnte festgestellt werden, dass das Derivat *N,N,N',N'*-Tetraoctyldiglycolamid (TODGA, siehe Abb. 6.12) eine hohe Selektivität für An(III) und Ln(III) gegenüber den leichten Spaltprodukten aufwies.



TODGA

Abb. 6.12 Chemische Struktur des TODGA-Moleküls /SAS 96/

Als Alternative zum DIAMEX-Prozess wurde ein TODGA basierter Prozess zur gemeinschaftlichen Trennung von An(III) und Ln(III) von den leichten Spaltprodukten entwickelt. Ein Grund für die Entwicklung des TODGA-Prozesses ist die deutlich effizientere Extraktion gegenüber den im DIAMEX verwendeten Diamiden. Das PUREX-Raffinat wird im TODGA-Prozess mit einer organischen Phase, bestehend aus TODGA und TBP gelöst in TPH, in Kontakt gebracht. Zur Vermeidung der Co-Extraktion einiger leichter Spaltprodukte müssen, wie im DIAMEX-Prozess, Oxalsäure und HEDTA als hydrophile Komplexbildner in die wässrige Phase eingebracht werden. Auf die Extraktion folgen zwei Waschschriffe der beladenen organischen Phase mit einer Lösung der hydrophilen Komplexbildner sowie einer gering konzentrierten Salpetersäure. Im Anschluss werden die trivalenten Aktinoiden und Lanthaniden mittels verdünnter Salpetersäure aus der organischen Phase entfernt. Im An(III)+Ln(III) Produkt konnten > 99 % der An(III) und Ln(III) wiedergefunden werden. Als einzige Verunreinigung des Produkts ist Ruthenium zu nennen, welches mit 1,8% des initialen Rutheniums im Produktstrom verbleibt. Die Bestandteile des PUREX-Raffinat werden in den An(III)+Ln(III) Produktstrom und einen Prozess-Raffinatstrom aufgeteilt, welche die Volumenverhältnisse 3,25 für das Raffinat und 1,0 für das Produkt gegenüber den zugeführten PUREX-Raffinat haben. Der TODGA-Prozess wurde im Labormaßstab mit simuliertem PUREX-Raffinat sowie auch in einer heißen Zelle mit PUREX-Raffinat erprobt. Als Vorteile gegenüber dem DIAMEX-Prozess sind die höhere Produktreinheit und die geringere Stufenzahl in der Demonstration im Labor-Maßstab zu nennen, die aus der effizienteren Extraktion hervorgeht /MOD 08/ /MOD 07/ /MAG 09a/.

6.2.5.8 SANEX

Das SANEX (Selective ActiNide Extraction) Konzept umfasst, analog zum DIAMEX-Konzept, eine Reihe von Prozessen, die die selektive Extraktion von trivalenten Aktinoiden aus einem Ln(III) und An(III) haltigen Prozessraffinat zum Ziel haben. Zur Trennung von Aktinoiden und Lanthanoiden sind, aufgrund der identischen Oxidationsstufe, sehr

selektive Extraktionsmittel notwendig. Während die in den vorherigen Prozessen eingesetzten Liganden TODGA und DMDOHEMA über die freien Elektronenpaare der Sauerstoffatome koordinieren, ist zur Trennung von Ln(III) und An(III) ein deutlich weicherer Elektronendonator wie Schwefel oder Stickstoff notwendig. Die beiden fundiertesten Ansätze des SANEX-Prozesses nutzen ein Triazinyl-substituiertes Bipyridin (CyMe₄BTBP) zur selektiven Extraktion der Aktinoiden.

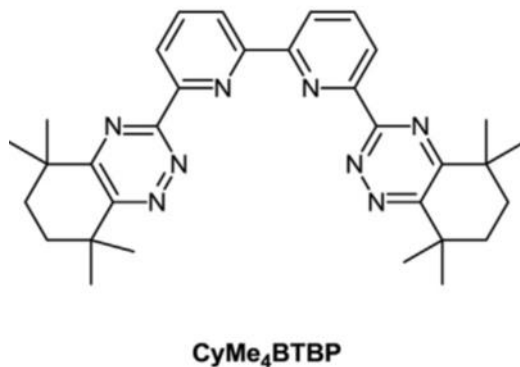


Abb. 6.13 Chemische Struktur des Moleküls CyMe₄BTBP wie es im SANEX Prozess verwendet wird /MAG 09b/

Hierbei werden die An(III) unter Verwendung eines Phasentransfer-Katalysators (PTK) vom BTBP- Liganden extrahiert, wobei die Ln(III) in der wässrigen Phase verbleiben. Im Anschluss wird die organische Phase jeweils gewaschen und die An(III) aus der beladenen organischen Phase zurückextrahiert. Die beiden Varianten des SANEX Prozess unterscheiden sich hierbei lediglich durch den Phasentransfer-Katalysator, der in der SANEX-DOHEMA Variante durch das Diamid DMDOHEMA bereitgestellt wird, und in der SANEX-TODGA Variante durch TODGA. Aus der Verwendung verschiedener PTK ergibt sich eine geringfügig unterschiedliche Prozessführung. So ergeben sich Unterschiede in der Salpetersäurekonzentration der einzelnen Stufen im Vergleich der beiden Prozesse und die benötigte Anzahl der Trennstufen variiert. Beide Prozesse konnten bei Tests im Labormaßstab zeigen, dass die An(III) zu > 99,5 % im Aktinoiden-Produkt wiedergefunden werden konnten. Lediglich geringfügige Verunreinigungen an Lanthaniden (< 1 %) waren im Aktinoiden-Produkt zu finden. Hierbei ist jedoch zu bemerken, dass der SANEX-TODGA Prozess als reiner Labortest mit einem simulierten DIAMEX-Raffinat durchgeführt wurde, während der SANEX-DMDOHEMA Prozess anhand von hochradioaktiven Raffinaten aus vorangegangenen DIAMEX Prozessevaluationen mit bestrahltem Brennstoff in einer heißen Zelle evaluiert wurde und somit den deutlich weiterentwickelten Prozess darstellt.

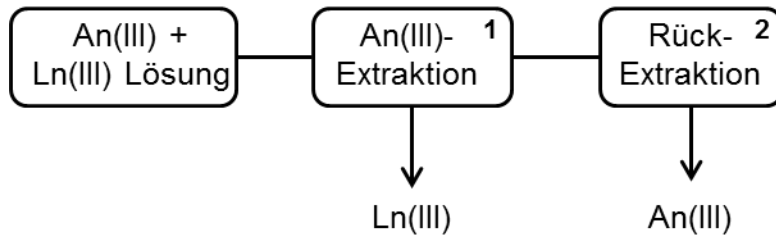


Abb. 6.14 Grundfließschema des SANEX-Prozesses

Der in beiden Prozessen verwendete Ligand CyMe₄BTBP weist trotz der verwendeten PTK eine langsame Kinetik auf, was seine Anwendung auf lange Kontaktzeiten und somit einen geringen Durchsatz der Anlage beschränkt. Aus diesem Grund bleibt der SANEX Prozess auch weiterhin Gegenstand aktueller Forschung. Hierbei liegt der Fokus auf kinetisch vorteilhafteren Liganden mit ähnlicher Selektivität wie CyMe₄BTBP, zum Beispiel C₅BPP oder CA-BTP /WIL 15/.

6.2.5.9 LUCA

Der LUCA (Lanthaniden Und Curium Americium Separation) Prozess wurde als SANEX-Folgeprozess entwickelt um dem Ansatz der Rezyklierung von ausschließlich Am(III) gerecht zu werden /MOD 10/. Die Trennung von Am(III) und Cm(III) unter Anwendung der Flüssig-Flüssig-Extraktion gilt als eine der schwierigsten Aufgaben auf diesem Feld. Um die Selektivität der Liganden auf die speziellen Eigenschaften der dreiwertigen 5f-Elemente Am(III) und Cm(III) anzupassen, werden deutlich weichere Elektronendonoren als bei der An(III)/Ln(III) Trennung benötigt. Ein solches System stellt die Schwefel-basierte Stoffgruppe der Dithiophosphinsäuren dar. Dieser Liganden-Typ verfügt über eine hohe Selektivität für Am(III) gegenüber Cm(III). Um eine effektive Extraktion zu gewährleisten, muss zudem ein zweiter Ligand in der Funktion eines Synergisten zugegeben werden. Im LUCA Prozess wurde eine Kombination aus Bis(4-Chlorphenyl)-Dithiophosphinsäure (BCDPT, Siehe Anhang) und Tris-(2-ethylhexyl)-Phosphat (TEHP, siehe Anhang) verwendet. Die synergistische organische Phase ermöglicht die selektive Extraktion von Am(III) aus einer Am(III) und Cm(III) haltigen Lösung, wie dem SANEX-An(III)-Produkt. Die mit Am(III) beladene organische Phase wird im Anschluss gewaschen und das Am(III) mittels niedrig-konzentrierter Salpetersäure aus der organischen Phase zurückextrahiert.

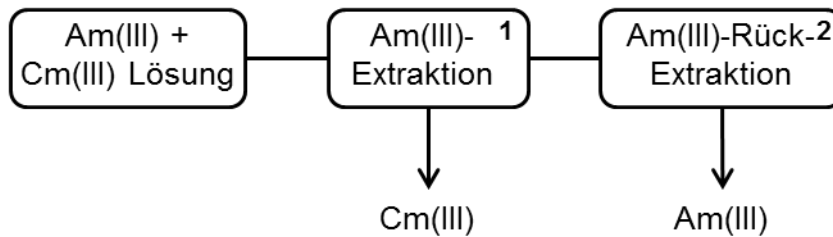


Abb. 6.15 Grundfließschema des LUCA-Prozesses /MOD 10/

Das Mitte der 2000er entwickelte System setzt auch heute noch Maßstäbe in der Selektivität für Am(III) über Cm(III). Die Anwendung des LUCA Systems birgt jedoch einige Probleme, die seine Anwendbarkeit als „heißen“ Test oder gar als Prozess im technischen Maßstab erschweren. Durch den Einsatz einer Säure als Ligand, ist diese stark, und in umgekehrter Proportionalität zu den vorher erwähnten Prozessen von der Säurekonzentration der wässrigen Phasen abhängig. Darüber hinaus weist BCDTP eine erhöhte Empfindlichkeit gegenüber hohen Säurestärke auf, was zur Zersetzung des Extraktionsmittels und zu einer Niederschlagbildung im Prozess führt. Hinzu kommt, dass der zur effektiven Extraktion bei geringen Säurestärken nötige Einsatz von Natriumnitrat (NaNO_3) das Aufkommen von Sekundärabfällen erhöht. Aufgrund der zuvor genannten Schwierigkeiten ist der LUCA-Prozess in seiner technischen Entwicklung deutlich unter dem DIAMEX- oder SANEX-Prozess einzustufen /MOD 10/.

6.2.6 Einstufige Prozesse zur Abtrennung trivalenter Aktinoiden

Mit der erfolgreichen Entwicklung und Erprobung der mehrstufigen DIAMEX-SANEX Strategie sowie der Entwicklung des LUCA-Prozesses wurden detaillierte Erfahrungen in der Entwicklung und Optimierung von Partitionierungsprozessen gesammelt. Dieser Wissensgewinn führte zu einer Weiterentwicklung hin zu einstufigen Prozessen, die die direkte Abtrennung von An(III) aus hochradioaktiven Raffinaten der Uran- und Plutoniumabtrennung ermöglichen sollen. Die Prozesse basieren entweder auf der selektiven Extraktion der An(III), bei der die Ln(III) und leichten Spaltprodukte durch eine komplexe Prozessführung entfernt werden, oder auf der Co-Extraktion der trivalenten Aktinoiden und Lanthaniden zusammen, gefolgt von einer selektiven Rückextraktion der An(III). Bei den einstufigen Prozessen ist zu bemerken, dass die Toleranzbereiche einer einwandfreien Funktion mit Bezug auf die Eingangsgrößen wie Volumenstrom oder Stoffkonzentrationen, durch die komplexere Prozessführung deutlich schmaler sind als dies für die Prozesse des mehrstufigen Ansatzes der Fall ist. Diese Anforderung an eine erhöhte Präzision wird jedoch durch die in der Entwicklung der einstufigen Prozesse ge-

wonnenen Erkenntnisse im Rahmen der derzeitigen technischen Entwicklung sicher beherrscht /KAU 17/.

6.2.6.1 1-cycle-SANEX

Basierend auf der organischen Phase des SANEX-TODGA Prozesses mit CyMe_4BTBP und TODGA wurde ein Prozess zur direkten selektiven Extraktion von trivalenten Aktinoiden aus PUREX-Raffinat entwickelt. Hierbei stellt die Vermeidung einer Co-Extraktion der im PUREX-Raffinat vorhandenen leichten Spaltprodukte die primäre Herausforderung. Die Co-Extraktion von Zr und Mo konnte bereits im DIAMEX-Prozess durch die Verwendung von Oxalsäure unterdrückt werden und erwies sich auch in Kombination mit der CyMe_4BTBP -basierten organischen Phase als effektiv. Das leichte Spaltprodukt Pd hingegen wird von der organischen Phase extrahiert und muss im Anschluss an die Wasch-Schritte durch eine selektive Rückextraktion mit Hilfe des hydrophilen Komplexbildners L-Cystein entfernt werden. Die daraus hervorgehende beladene organische Phase enthält neben kleinen Verunreinigungen ausschließlich die trivalenten Aktinoiden die im Anschluss mit Hilfe eines Glycolat-Puffers aus der organischen Phase entfernt werden. Bei der Prozessdemonstration mit synthetischem PUREX-Raffinat im Labormaßstab konnten die An(III) zu >99,4 % im An(III)-Produktstrom wiedergefunden werden. Als Nachteile des Prozesses sind die bereits im SANEX-Prozess erwähnte langsame Kinetik des CyMe_4BTBP -Systems, sowie die geringe Löslichkeit des CyMe_4BTBP im verwendeten Lösungsmittel zu nennen /WIL 13/.

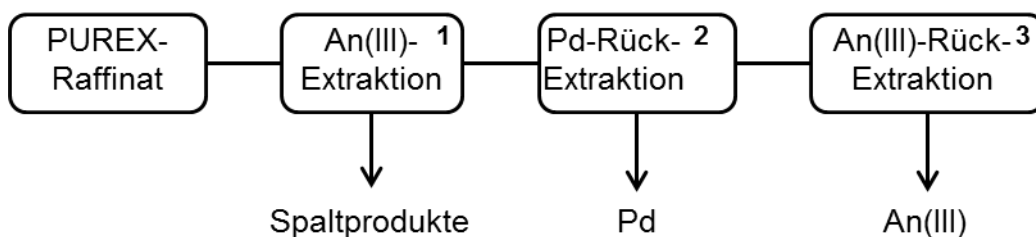


Abb. 6.16 Grundfließschema des 1-cycle-SANEX-Prozess /MOD 14/

6.2.7 Innovative-SANEX

Der Innovative-SANEX (i-SANEX) Prozess beruht auf den Erfahrungen des TODGA-Prozesses zur Abtrennung der Trivalenten Aktinoiden und Lanthaniden aus PUREX-Raffinat. Analog zum TODGA Prozess werden in einem ersten Schritt die An(III) zusammen mit den Ln(III) Co-Extrahiert. Die Zusammensetzung der organischen Phase konnte optimiert werden, indem der Pasen-Modifikator TBP durch 1-Oktanol ersetzt wurde. Auf

die Extraktion folgen zwei Wasch-Schritte der beladenen organischen Phase mit den hydrophilen Komplexbildungsmitteln CDTA und Oxalsäure im ersten Schritt, sowie geringkonzentrierter Salpetersäure im zweiten Schritt. Im Anschluss werden die An(III) selektiv mittels des hydrophilen $\text{SO}_3\text{-Ph-BTP}$ (2,6-bis(5,6-di(sulfophenyl)-1,2,4-triazin-3-yl)pyridine) aus der organischen Phase entfernt. Die verbleibenden Lanthaniden werden im Anschluss mittels Zitronensäure aus der organischen Phase entfernt. Die Prozessdemonstration wurde im Labormaßstab mittels synthetischem PUREX-Raffinat durchgeführt, wobei An(III) Wiederfindungsraten von $> 99,8\%$ für das An(III) Produkt festgestellt wurden. Als Nachteil des Prozesses ist die bereits beim TODGA-Prozess beobachtete Co-Extraktion von Ruthen zu betrachten, welches im i-SANEX nicht zur Verunreinigung des An(III) Produkts beiträgt, jedoch zu ca. 15 % der initialen Menge in der organischen Phase verbleibt /WIL 14/.

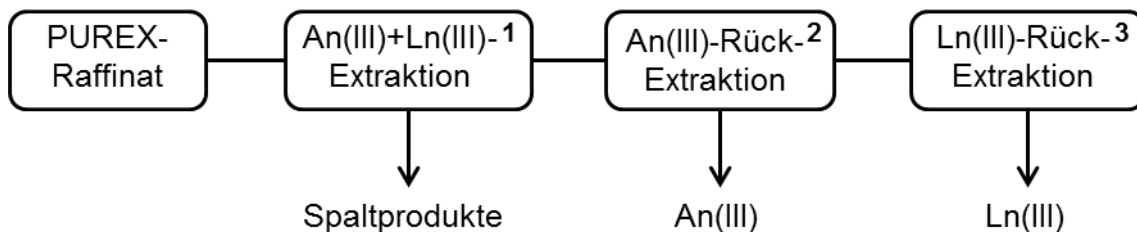


Abb. 6.17 Grundfließschema des innovativen-SANEX-Prozesses /MOD 14/

6.2.8 Selektive Abtrennung von Americium

Eine Vorgehensweise, die in den letzten Jahren zunehmend an Bedeutung gewann, ist die direkte selektive Abtrennung von Americium aus PUREX-Raffinat. Die Handhabung Curium-haltiger Materialien stellt durch den hohen Anteil an Spontanspaltung im Zerfallsschema des Curium-Hauptisotops ^{244}Cm und die dadurch freiwerdenden Neutronen hohe Ansprüche an den Strahlenschutz. Zudem besitzt ^{244}Cm mit 18,1 Jahren eine geringere Halbwertszeit als viele der für die mittelfristige Wärmeleistung radioaktiver Abfälle verantwortlichen Spaltprodukte. Eine Abtrennung von Americium mit dem Verbleib des Curiums in der Fraktion der Spaltprodukte hat daher große Vorteile für die Handhabung des abgetrennten Americium-Raffinats und beeinflusst die langfristige Radiotoxizität der endzulagernden Abfallprodukte nur unwesentlich. Um die Prozessführung mit Blick auf den technischen Aufwand, das Gefährdungspotential und den Strahlenschutz für Mitarbeiter und Bevölkerung zu optimieren, zeichnet sich auch hier ein Trend weg vom mehrstufigen DIAMEX-SANEX-LUCA-Konzept und hin zur direkten Abtrennung von Americium aus PUREX-Raffinaten ab. Die Anforderungen an die selektive Direkt-

abtrennung von Americium aus PUREX-Raffinat stellt hierbei jedoch sehr hohe Anforderungen an die Prozesschemie. Zu der Herausforderung, die chemisch nahezu identischen Elemente Am und Cm voneinander zu trennen, kommt bei der Direktabtrennung hinzu, dass simultan die im DIAMEX-SANEX Konzept und in den einstufigen Prozessen adressierte Separation der leichten Spaltprodukte stattfinden muss. Diese Anforderungen an die direkte Americium-Abtrennung aus PUREX-Raffinat machen die Entwicklung eines entsprechenden Prozesses zur derzeit komplexesten Herausforderung der Partitionierung bestrahlter Brennstoffe. Das Ziel der Americium-Direktabtrennung wurde von mehreren Organisationen als wichtiger Forschungsschwerpunkt identifiziert. So beschäftigen sich zum Beispiel die Europäische Kommission mit dem SACSESS-Projekt, das US-DOE mit dem Sigma-Team und der französische Staat mit Teilen der CEA-DEN mit der Entwicklung solcher Prozesse. Die Arbeiten auf diesem Gebiet sind zudem durch intensive Zusammenarbeit geprägt /KAU 17/.

6.2.9 EXAm

Als erster Prozess, der eine direkte Abtrennung von Americium aus starksaurem PUREX-Raffinat ermöglicht wurde der französische EXAm (EXtraction of Americium)-Prozess entwickelt und getestet. Das sehr komplexe System beruht auf der Co-Extraktion von Am(III), Mo, Pd, Ru und Fe sowie leichten Lanthaniden La, Ce, Pr und Nd mit einer Mischung aus HDEHP (*Bis*-(2-ethylhexyl)-Phosphat; siehe Anhang) und DMDOHEMA in TPH. Zur Komplexierung des Cm(III) in der wässrigen Lösung wird zusätzlich der hydrophile Ligand TEDGA Tetraethyl-Diglycolamid, ein wasserlösliches Derivat des TODGA, verwendet. Aus der Mischung, bestehend aus Am(III), leichten Spaltprodukten und Ln(III) in der organischen Phase, müssen zur selektiven Entfernung des Americiums zuerst die störenden Spaltprodukte Molybdän, Palladium und Ruthenium in einer zweiteiligen Rückextraktion bei pH = 3 sowie im Basischen entfernt werden. Bereits hier lässt sich neben dem atypischen Verhalten der Ln(III) und leichten Spaltprodukte, die Komplexität mit Bezug auf die pH-Abhängigkeit erkennen. Aus der mit Am(III) und den leichten Ln(III) beladenen organischen Phase lässt sich im Anschluss mit Hilfe von HEDTA das Americium entfernen. Die verbleibenden Lanthanide und Fe werden abschließend mit niedrig konzentrierter Salpetersäure aus der organischen Phase entfernt. Die Komplexität des Systems spiegelt sich auch in der niedrigen Effizienz der einzelnen Schritte wieder. So werden rein für den kombinierten Extraktions- und Waschteil so viele Trennstufen benötigt wie für den gesamten i-SANEX oder 1-c-SANEX Test nötig sind. Der EXAm-Prozess wurde unter enormem Aufwand entwickelt und in Form eines

„heißen“ Tests mit reellem PUREX-Raffinat getestet. Die Sensitivität der einzelnen Prozessschritte mit Bezug auf den pH-Wert in Verbindung mit dem häufigen Wechsel der Bedingungen führen zu einer sehr instabilen Prozessführung, die einer großtechnischen Anwendung des EXAm-Prozesses im Wege steht. Die treibende Kraft hinter dieser sehr schnellen und rein französischen Entwicklung des EXAm-Prozesses ist das französische Gesetz über die nachhaltige Handhabung bestrahlter Brennstoffe und radioaktiver Abfälle aus dem Jahre 2006. Trotz der oben genannten Komplikationen ist der EXAm-Prozess der einzige unter realen Bedingungen getestete Prozess zur selektiven Abtrennung von Americium aus PUREX-Raffinaten und könnte, wenn auch mit erheblichem personellen sowie technischen Aufwand, zur großtechnischen Prozessreife weiterentwickelt werden /ROS 12/ /VAN 16b/.

6.2.10 Entwicklungen auf dem Feld der Am(III)-Abtrennung aus PUREX-Raffinat

Im Rahmen des SACSESS-Projekts der Europäischen Kommission wurden in multinationaler Zusammenarbeit weitere Ansätze zur Entwicklung Americium-selektiver Prozesse geschaffen. Es handelt sich hierbei um Prozess-Konzepte die sich in der Entwicklung und teilweise in der Vorbereitung zu Prozessdemonstrationen mit synthetischen PUREX-Raffinaten im Labormaßstab befinden. Im Folgenden sind drei vielversprechende Ansätze kurz beschrieben. Es ist zu bemerken, dass die Ansätze alle auf einer Co-Extraktion der An(III) und Ln(III) mithilfe von TODGA gelöst in einer Mischung aus TPH und 1-Octanol basieren. Die Gründe hierfür liegen in der besonders effektiven und robusten Prozessführung, die im innovative-SANEX-Prozess demonstriert wurde. Die jeweiligen Systeme beschäftigen sich, abgesehen von Detaillösungen, grundlegend mit der selektiven Rückextraktion von Americium(III) aus der beladenen organischen Phase durch hydrophile Komplexbildner /KAU 17/.

6.2.10.1 AmSel

Das AmSel (Americium Selective Extraction)-Konzept basiert auf der Co-Extraktion von An(III) und Ln(III) gefolgt von einer selektiven Rückextraktion. Das Am(III) soll mit Hilfe des hydrophilen BTBP $\text{SO}_3\text{Ph-BTBP}$ (hydrophiles Analogon zum CyMe_4BTBP) aus der beladenen organischen Phase zurückextrahiert werden. Das grundlegende Funktionsprinzip konnte anhand von diskontinuierlich durchgeführten Extraktionen bestätigt werden. Die Effizienz des Systems in Bezug auf die Am(III) von Cm(III) Trennung stellte sich

hierbei als ähnlich des EXAm-Systems heraus. Das eingesetzte Extraktionsmittel ermöglicht jedoch eine deutlich einfachere Prozessführung im Bereich der Extraktion sowie in der selektiven Rückextraktion /WAG 16/ /WAG 14/.

6.2.10.2 TS-BTPPhen-Konzept

Ein auf dem Hydrophilen TS-BTPPhen fußendes Konzept basiert auf der Co-Extraktion von An(III) und Ln(III). Am(III) wird durch das hydrophile TS-BTPPhen selektiv aus der beladenen organischen Phase entfernt. Die Effizienz der Trennung konnte gegenüber dem EXAm-Prozess gesteigert werden. Das Prinzip konnte in Form von diskontinuierlich durchgeführten Extraktionsversuchen evaluiert werden /KAU 17/, /KAU 15/, /KAU 16/.

6.2.10.3 Euro-EXAm

Der EURO-EXAm- Prozess wurde in Kooperation verschiedener europäischer Staaten entwickelt. Auch hier erfolgt zuerst eine Co-Extraktion der Ln(III) zusammen mit den An(III) mittels TODGA, wonach das Am(III) selektiv aus der organischen Phase entfernt wird. Als selektives hydrophiles Komplexmierungsmittel wird die Polyaminocarboxylsäure H₄TPAEN (*N,N,N',N'*-tetrakis[(6-carboxypyridin-2-yl)methyl]-ethylendiamine; siehe Anhang) verwendet. Das System verbindet die effiziente Extraktion des i-SANEX Prozesses mit einer gesteigerten Effizienz bezogen auf die Trennung des Am(III) von Cm(III). Als problematisch stellt sich die Separation des Am(III) von den leichten Lanthaniden La(III) und Ce(III) dar. Trotzdem ist das Euro-EXAm System aufgrund seiner Effizienz das Referenzsystem der Europäischen Kommission für die selektive Separation von Am(III) aus PUREX-Raffinaten. Das System wurde in diskontinuierlich durchgeführten Extraktionsversuchen bereits mit hohen Am(III) Konzentrationen evaluiert und befindet sich in der Vorbereitung zur Prozessdemonstration mit synthetischen PUREX-Raffinaten /KAU 17/, /VAN 16a/ /MAR 15/.

6.2.11 Entwicklungsbedarf im Bereich Partitionierung

Neben der selektiven Abtrennung der minoren Aktinoiden beziehungsweise Americium in fortschrittlichen Partitionierungsprozessen spielen weitere Prozesscharakteristika eine entscheidende Rolle in Bezug auf die Anwendbarkeit der Prozesse. Zu diesen Nebenbedingungen gehören die Robustheit eines Prozesses in Bezug auf Schwankungen der

Prozessbedingungen, sowie die Menge und Art der entstehenden Abfallprodukte. Die Robustheit fortschrittlicher Partitionierungsprozesse wird, bei fortgeschrittenem Entwicklungsstand des Konzepts, in Expertengremien diskutiert um die Auswirkungen von Prozessschwankungen und Fehlfunktionen im Anschluss zu simulieren und sicherheitstechnisch zu beurteilen. Zur Minimierung der aus den Partitionierungsprozessen hervorgehenden Abfallmengen sollte der Einsatz von unterstützenden Salzen wie z. B. Natriumnitrat (NaNO_3) nach Möglichkeit vermieden werden. Zudem wurde das „CHON“-Prinzip zur Minimierung von Sekundärabfällen entwickelt. Ziel des Prinzips ist es eine vollkommene thermisch-pyrolytische Zersetzung der im Prozess verwendeten Materialien zu ermöglichen. Hierbei reduziert sich der Aufbau der hydrophilen und lipophilen Liganden auf die Elemente Kohlenstoff (C), Wasserstoff (H), Sauerstoff (O) und Stickstoff (N). Elemente wie Phosphor (HDEHP; TBP) und Schwefel (BCDTP; TS-BTPPhen; $\text{SO}_3\text{Ph-BTP}$ und $-\text{BTBP}$) bilden bei ihrer Pyrolyse feste oder flüssige Abfallprodukte, die das Volumen der vom Prozess ausgehenden Abfälle erhöhen. Neben der Neuentwicklung von Prozessen stellt die Weiterentwicklung zu robusteren, simpleren und dem CHON-Prinzip-entsprechenden Varianten der etablierten Prozesse eine wichtige Rolle. Beispiele für diese Entwicklung sind die Verwendung des CHON-kompatiblen Pytri-Diol im innovative-SANEX-Prozess /MOS 16/ /MOS 18/ und die Kombination aus TODGA und TPAEN im EURO-EXAM-Prozess /MAR 15/ /VAN 16a/ mit denen jeweils schwefel- oder phosphorhaltige Liganden ersetzt werden. Tab. 6.3 zeigt eine Übersicht der oben beschriebenen Prozesse mit der Zuordnung zum im Prozess adressierten Trennproblem.

Tab. 6.3 Zuordnung der Prozesse zu den jeweiligen Trenn-Problemen /TAY 15a/
/KAU 17/

U+Pu Abtrennung	F-Element Trennung	An - Ln Trennung	Am-Cm-Trennung
PUREX/COEX	DIAMEX	SANEX	LUCA
		TODGA	
	innovative SANEX		
	1-cycle-SANEX		
	EXAm/Euro-EXAm		
GANEX			

6.3 Konversionsverfahren

Die Anforderungen an die zur Herstellung von oxidischen Kernbrennstoffen verwendeten Uranoxid und Uran-Plutonium Mischoxid Pulver sind hoch. Hier spielen mit Bezug auf die Produktqualität die mittlere Korngröße sowie die Korngrößenverteilung, die Fließfähigkeit und die Porosität der oxidischen Pulver eine Rolle. Zudem stellen die Verfahren durch den Umgang mit feinen pulverförmigen radioaktiven Stoffen ein gewisses Gefährdungspotential für Mensch und Umwelt innerhalb und außerhalb der Anlage dar. Im Laufe der Entwicklung der zivilen Nutzung von Kernbrennstoffen wurden die zur Konversion verwendeten Prozesse kontinuierlich weiterentwickelt. Mit der industriellen Anwendung der Plutonium-Rezyklierung waren Konversionsprozesse für die separate Herstellung von Uran und Plutoniumoxiden sowie deren Verarbeitung zu Pellet-Pin MOX-Brennstoffen notwendig. Vor dem Hintergrund der Proliferationsgefahr wurden zur Vermeidung reiner Plutonium-Produkte, Prozesse zur Co-Konversion von Plutonium und Uran in einem gemeinsamen Produkt entwickelt. Der nächste Schritt in der Entwicklung eines geschlossenen Brennstoffkreislaufs ist die Konversion sowie die anschließende Verarbeitung von Uran, Plutonium und minoren Aktinoiden zu innovativen minor Kernbrennstoffen. Im Folgenden werden Konversionsverfahren und Verarbeitungsprozesse beschrieben, die entweder bereits im industriellen Rahmen angewandt wurden, oder deren Entwicklungsstand eine industrielle Anwendung innerhalb weniger Jahre ermöglicht. Hierzu gehören auch bereits Konversations- und Verarbeitungsprozesse, die die Einbringung von minoren Aktinoiden wie z. B. Americium in Kernbrennstoffe ermöglichen. Am Ende des Abschnitts wird abschließend eine grafische sowie tabellarische Übersicht über die komplexe Landschaft der Konversions- und Verarbeitungsprozesse gegeben /INT 12/ /TAY 15a/.

6.3.1 ADU-Verfahren

Das nasschemische Ammonium-Diuranat (ADU) Verfahren wird ausgehend von Uran-(VI)-dioxodinitrat angewendet, was es besonders für den Umgang mit Natururan interessant macht. Das Uranylinitrat wird unter Zugabe von Ammoniumhydroxidlösung (NH_4OH) aus wässriger Lösung gefällt und filtriert. Der entstandene Produkt-Niederschlag wird anschließend getrocknet, pyrolysiert und reduktiv in Wasserstoff-Atmosphäre kalziniert. Die aus dem ADU Prozess erhaltenen Urandioxid-Pulver sind sehr fein und weisen schlechte Fließeigenschaften auf. Zur Verarbeitung in der Pellet-Fabrikation müssen die Pulver daher durch Vorkompaktierung oder Rotationskompaktierung vorbehandelt werden /INT 12/.

6.3.2 AUC/AUPuC-Verfahren

Das nach dem Zwischenprodukt Ammoniumuranylcarbonat (AUC) benannte Verfahren kann als Ausgangsstoff mit Uranylinitrat, Uranhexafluorid oder Plutonylnitrat durchgeführt werden. Im Falle von UF_6 als Edukt wird dieses im Prozess hydrolysiert. Bei der nasschemischen Umsetzung der U- und Pu-Verbindungen mit Ammoniak (NH_3) und Kohlenstoffdioxid (CO_2) fällt das entstandene Zwischenprodukt AUC $(\text{NH}_4)_4\text{UO}_2(\text{CO}_3)_3$ bzw. AUPuC $(\text{NH}_4)_4\text{PuO}_2(\text{CO}_3)_3$ aus. Dieses wird durch Filtration von der Lösung getrennt, gereinigt und in einem Wirbelschichtofen in reduzierender Atmosphäre zu UO_2 beziehungsweise $(\text{U,Pu})\text{O}_2$ kalziniert. Als Produkt wird ein frei fließendes Pulver für die anschließende direkte Pellet-Herstellung erhalten, welches im Falle des $(\text{U,Pu})\text{O}_2$ Mischoxides eine hervorragende Homogenität der Plutoniumverteilung aufweist /INT 12/.

6.3.3 Trockenkonversion (Dry route) und Integral dry route

Bei der Trockenkonversion oder "Dry-route" wird vollständig auf die Verwendung von flüssigem Wasser verzichtet. Die Ausgangssubstanz UF_6 wird unter Verwendung von trockenem Wasserdampf zu UO_2F_2 hydrolysiert und der entstandene Feststoff in einem Wirbelschichtreaktor in reduktiver Atmosphäre weiterbehandelt. Der entstandene Feststoff wird im Anschluss in einem Drehrohrofen in reduzierender Atmosphäre vollständig zu UO_2 umgesetzt und verbliebenes Fluor ausgetrieben. In einem weiteren Drehrohrofen können zusätzliche Prozesse zur Optimierung der Pulvereigenschaften durchgeführt werden. Der Vorteil der Dry route liegt in der Minimierung der Sekundärabfälle, so fällt

als Nebenprodukt lediglich Fluorwasserstoff (HF) in hoher Reinheit an, was z. B. zur Herstellung von Uran-(VI)-fluorid (UF_6) wiederverwendet werden kann. Durch die gezielten Behandlungsmöglichkeiten werden Urandioxid-Pulver mit hervorragenden Fließeigenschaften erhalten. Die Reaktionsschritte der „Dry-route“ lassen sich zu einem einstufigen Prozess zusammenfassen, der unter dem Namen „Integral dry-route“ durchgeführt wird /INT 12/.

6.3.4 Sol-Gel Prozesse

Der Sol-Gel Prozess stellt einen alternativen Ansatz zur Herstellung frei fließender staubfreier Aktinoidenoxid-Pulver dar. Bei der Methode wird die Eigenschaft der Aktinoiden genutzt, in basischen Lösungen zum Aktinoid-Hydroxid zu hydrolysieren und im Anschluss ein polymeres Aktinoid-Hydroxid-Gel auszubilden. Die Gelierung lässt sich nach zwei verschiedenen Methoden durchführen: der externen und der internen Gelierung. Entsprechend der angestrebten Gelierungsmethode wird aus den Schwermetallnitraten unter Zugabe verschiedener Additive (z. B. Harnstoff, Hexamethyltetramin, Polyvinylalkohol) das sogenannte Sol hergestellt. Das Sol wird im Anschluss in feine Tröpfchen dispergiert und bei der externen Gelierung im Ammoniak (NH_3) Gasstrom und anschließend in einem Ammoniumhydroxid (NH_4OH) Bad (bei der internen Gelierung durch ein $90\text{ }^\circ\text{C}$ heißes Silikonöl-Bad) geliert. Die dabei entstehenden Gel-Mikrosphären werden mehrfach gewaschen und kalziniert um entsprechende Schwermetalloxid-partikel herzustellen. Die Größe der Gel-Mikrosphären lässt sich hierbei durch die Dispersionsmethode, meist eine vibrierende Düse, präzise einstellen. Die erfolgreiche Anwendung des Sol-Gel Prozesses erfordert eine präzise Einstellung der Zusammensetzung der verwendeten Sols. Die hergestellten Partikel lassen sich nach dem Kalzinieren sintern und direkt als Partikel-Brennstoffe einsetzen oder nach dem Kalzinieren der Pelletisierung zuführen. Weitere Vorteile der Methode sind der mögliche Einsatz von gemischten Aktinoiden-Nitraten, was einen direkten Einsatz der Methode nach einem homogenen Rezyklierungs-Prozess ermöglicht und somit das Proliferationsrisiko erheblich senkt /INT 12/, /TAY 15a/.

6.3.5 PUREX Pu Konversion

In dem aus dem PUREX-Prozess hervorgehenden Plutonium-Produktstrom liegt das Plutonium als Pu(IV)-Nitrat in wässriger, salpetersaurer Lösung vor. Zur Weiterverarbeitung in einer MOX-Brennelementefabrik muss das Plutonium zuerst in eine oxidische

Form überführt werden. Hierzu wird das Plutonium in einem kritikalitätssicher ausgelegten Aufbau durch Zugabe von Oxalsäure ($C_2O_4H_2$) kontinuierlich als Plutonium(IV)Oxalat Hexahydrat ($Pu(C_2O_2)_2 \times 6 H_2O$) gefällt und der entstandene Niederschlag durch Vakuumfiltration isoliert. Das entstandene Oxalat-salz wird in einem Drehrohrofen getrocknet und anschließend in einem weiteren Drehrohrofen bei $>400\text{ }^\circ\text{C}$ zu PuO_2 kalziniert. Die Methode ermöglicht eine Konversion im mehrfachen 10 kg/Tag Maßstab in einer kritikalitätssicheren Anordnung /TAY 15a/.

Eine proliferationsoptimierte Weiterentwicklung dieses Prozesses stellt die Konversion von gemischten (U+Pu) Oxalaten aus dem COEX™ Prozess dar. Hierbei müssen Uran(VI) und Plutonium(IV) jedoch zuvor in die Oxidationsstufen U(IV) und Pu(III) reduziert, um ein homogenes Mischoxalat kristallisieren zu können. Dies geschieht durch die Zugabe von U(IV) welches in einem separaten Prozess durch katalytische Reduktion von U(VI) mit Wasserstoff erreicht wird. Das U(IV) bewirkt eine Reduktion des Pu(VI) zu Pu(III) und ersetzt das U(VI). Einen Nachteil dieser Methode stellt das in der Eingangs-lösung befindliche U(VI) dar, welches zur Kristallisation des U(IV)-Pu(III)-Mischoxalats abgetrennt werden muss. Das entstandene (U,Pu)-Mischoxalat wird im Anschluss analog zur Konversion des Plutonium filtriert, getrocknet und im Drehrohrofen zu einem (U,Pu)-Mischoxid kalziniert. Mit der U(IV)/Pu(III)-Kristallisation lassen sich homogene (U,Pu) O_2 Mischoxide mit 7-70 % Pu-Gehalt herstellen, die in einem anschließenden Finishing-Prozess als Plutonium Master-Blend verwendet werden können /TAY 15a/.

6.3.6 Direkte Denitrierung

Eine direkte Denitrierung gemischter Uran- und Plutoniumnitrate aus den entsprechenden co-gefällten Verbindungen oder direkt aus salpetersaurer Lösung ermöglicht die Umsetzung zu den entsprechenden Oxiden ohne dabei separate Produktströme von Uran und Plutonium handhaben zu müssen. Dies vermindert einerseits das Proliferationsrisiko durch eine chemische Verunreinigung des Plutoniums durch Uran und erhöht andererseits, durch die bessere Vermischung von Plutonium und Uran, die Produktqualität. Die direkte thermische Denitrierung wurde lange Zeit in der Aufarbeitung von Uran aus Uranerzen zur Herstellung von Uranfluoriden (UF_6 , UF_4) angewandt. Da das Produkt im Rahmen der Denitrierung einen asphaltartigen Zustand durchläuft, waren seine Eigenschaften in Bezug auf die Herstellung von Uranoxid-Pulvern zur späteren Pellettierung jedoch unzureichend. Mit der Zumischung von Ammoniumnitrat konnte die Morphologie der resultierenden Pulver deutlich verbessert werden, womit das Verfahren unter

dem Namen „modified direct denitration“ (MDD) auch für die Konversion von Aktinoiden-Nitraten zu den entsprechenden Aktinoiden-Oxiden zur Verfügung steht. Zur direkten MOX-Co-Konversion werden die entsprechenden Plutonium- und Uranyl-Nitrate mit Ammoniumnitrat vermischt und die resultierende Ammonium-Schwermetall-Lösung im Drehrohrofen umgesetzt. Der Prozess der direkten thermischen Denitrierung lässt sich hierbei in drei Stufen einteilen:

1. Dehydrierung des Produkts
2. Entfernen eines Äquivalents Ammoniumnitrat
3. Konversion zum Uran-Plutonium Mischoxid

Hierbei werden Temperaturen von bis zu 650 °C erreicht. Die direkte U-Pu co-Denitrierung wurde bisher jedoch nur im Labormaßstab von einigen hundert Gramm pro Stunde durchgeführt. Die aus der Co-Konversion durch das MDD Verfahren hervorgehenden Produkte zeichnen sich durch hervorragende Produktqualitäten bezüglich Fließfähigkeit, Kompaktierbarkeit und Produkthomogenität aus /TAY 15a/.

In Japan wurde ein Verfahren zur direkten Denitrierung von gemischten wässrigen U-Pu-Nitrat-Lösungen mittels Mikrowellenheizung entwickelt. Der im Chargenbetrieb durchgeführte Prozess lässt sich in vier Prozessschritte unterscheiden.

1. Aufkonzentrieren der Lösung bei 120 °C (Azeotroper Punkt von Wasser und Salpetersäure)
2. Denitrierung der Nitratsalze unter Freisetzung von Stickoxiden (NO_x) bei 120-250°C
3. Verdampfen verbleibender Restfeuchte und Zersetzung verbleibender Uran-Verbindungen unter weiterer Abgabe von Stickoxiden (NO_x) bei 270 C
4. Vollständige Denitrierung bei 350 C; Abbruch des Verfahrens zur Vermeidung von U_3O_8 .

Die Prozessdauer pro Charge beträgt hierbei lediglich 30-40 Minuten. Die Kapazität der Pilot-Anlage zur mikrowellengestützten Denitrierung in Rokkasho-Mura beträgt 108 kg pro Tag. Das bei der mikrowellenbasierten direkten Denitrierung entstehende Produkt muss vor der Weiterverarbeitung gebrochen und gemahlen werden um eine zufriedenstellende Produktqualität zu erreichen. Mit der mikrowellenbasierte Denitrierung lassen sich UO_3 - PuO_2 Oxidgemische bis 50 % Pu-Gehalt ohne Zugabe von Additiven direkt aus ihren gelösten Nitraten herstellen /TAY 15a/.

6.3.7 **UO₃ Konversion**

Die im Rahmen der direkten Denitrierung dargestellten Produkte bestehen aus Uran(VI)-oxid (UO₃), was für eine direkte Verarbeitung zu Kernbrennstoffen die falsche Oxidationsstufe darstellt. Zur Herstellung eines homogenen (U,Pu)O₂ Mischoxides in Form einer Solid-Solution ist eine Umsetzung des Uran(VI)-oxid UO₃ zu Uran(IV)-oxid UO₂ notwendig. Dies geschieht in zwei Schritten: Im Drehrohrofen wird das Uran(VI)-oxid bei 700 °C zu Uran(V,VI)-oxid (U₃O₈) umgesetzt. Anschließend wird das Uran(V,VI)-oxid in einem Drehrohrofen unter reduktiven Bedingungen (N₂, 5 % H₂) zu Uran(IV)-oxid reduziert wobei es mit dem bisher unveränderten PuO₂ ein (U,Pu)O₂ Mischoxid eingeht /INT 12/.

6.4 **Mischbrennstoffe**

6.4.1 **MOX-Brennstoffe**

In der aktuellen konventionellen Fertigung von MOX-Brennstoffpellets liegen Plutonium und Uran als PuO₂ und UO₂ in separaten Fraktionen vor, welche vor der Pellet-Herstellung vereint und homogenisiert werden müssen. Die Anforderungen an das Produkt sind hoch; so muss das Pulver eine hervorragende Homogenität und Durchmischung aufweisen um während des Sinterprozesses die Herstellung einer (U,Pu)O₂ solid-solution zu gewährleisten. Zudem erschweren Plutoniumreiche „Inseln“ mit >40 % Pu-Gehalt im Produkt eine etwaige spätere Auflösung des Brennstoffs in Salpetersäure. Außerdem bilden sich durch solche Inseln Hotspots während des Reaktorbetriebs, die sich negativ auf das Brennelement auswirken können.

Im Laufe der industriellen Anwendung der MOX-Fertigung wurden mehrere Prozesse zur Darstellung von press- und sinterfähigen Uran-Plutonium Oxidgemischen entwickelt. Grundlegend basieren diese Prozesse auf dem intensiven, gemeinsamen Mahlen von Uran(IV)-oxid und Plutonium(IV)-oxid pulvern. Im französischen COCA-Prozess (Co-milling Caderache) wurden die beiden Schwermetalloxide unter Zugabe eines Schmiermittels gemeinsam in einer Kugelmühle gemahlen und anschließend durch ein Sieb gepresst um ein frei fließendes granulares MOX-Pulver zu erzeugen. Der COCA Prozess wurde zur Herstellung von MOX-Brennstoffen für die schnellen Reaktoren Phénix und Superphénix, sowie 1989-1994 für die Fabrikation von LWR-Brennstoffen genutzt. Gleichzeitig wurde in Deutschland der OCOM Prozess (Optimized Co-milling) entwickelt.

Hierbei wurde durch gemeinsames Mahlen von AUC- UO_2 und PuO_2 ein plutoniumreiches „Master Blend“ hergestellt, welches durch Selbstagglomeration in einer rotierenden Trommel zu einem fließfähigen Pulver wird. Im Anschluss wird dieser Master Blend zu <15 % mit AUC- UO_2 Pulver homogenisiert. Das Verfahren erlaubte eine direkte Weiterverarbeitung ohne Granulierung oder Zugabe von Schmierstoffen. Der OCOM-Prozess wurde ebenfalls für die Herstellung von MOX-Brennstoffen für schnelle natriumgekühlte Reaktoren (Sodium Fast Reactor; SFR) und LWR entwickelt. Der in Belgien entwickelte MIMAS-Prozess (Micronized Master Blend) basiert grundlegend auf dem OCOM-Prozess. Im MIMAS Prozess werden fehlerhafte MOX-Pellets beim Mahlen von AUC- UO_2 und PuO_2 rezykliert. Das Master-Blend hat eine Plutoniumkonzentration von 30 % und ist ein fließfähiges Pulver. Es wird im Anschluss mit AUC- UO_2 in einem Schraubemischer auf die gewünschte Plutoniumkonzentration und verdünnt und in einem zusätzlichen Mischer mit Schmiermittel und Sinterhilfsmittel versetzt /INT 12/.

6.4.2 a-MIMAS

Der MIMAS Prozess wurde für die französische MELOX Anlage zum a-MIMAS-Prozess weiterentwickelt. Die Unterschiede zwischen den beiden Prozessen belaufen sich hierbei auf die Uran(IV)-oxid Quelle wobei beim a-MIMAS Verfahren frei fließendes ADU- UO_2 verwendet wird, sowie auf die Granulation der Pulvermischung, die im a-MIMAS Prozess durch druckunterstütztes Sieben erfolgt und die Sinter sowie Pressqualität der Pulver erhöht. Alternativ findet zum ADU- UO_2 auch DC- UO_2 Verwendung. Der a-MIMAS ist mit seiner Anwendung in der MELOX-Anlage der meistgenutzte MOX-Fabrikationsprozess.

6.4.3 Short Binderless Route (SBR)

Die sog. „Short Binderless Route“ wurde für das Sellafield MOX Plant (SMP) in Großbritannien entwickelt. Sie basiert auf der Durchmischung und Zerkleinerung der UO_2 und PuO_2 Pulver durch einen Attritor mit nachgeschaltetem Kugelgranulierungssystem. Die Anlagenteile befinden sich übereinander, sodass der gesamte Prozess keinen aktiven Transport benötigt und allein durch Gravitation von UO_2 - und PuO_2 -feed bist zur Pelletisierung durchläuft.

6.4.4 Brennstoffdoping zur Verbesserung der in-Core Eigenschaften

Im Laufe der Entwicklung von Kernbrennstoffen wurden, neben der Hüllrohrintegrität, die Wärmeleitfähigkeit und Spaltproduktrückhaltefunktion der Brennstoffmatrix als limitierende Faktoren zum sicheren Betrieb von Kernkraftwerken identifiziert. Mit den Weiterentwicklungen in der Hüllrohrtechnik lassen sich durch die verlängerte mögliche Bestrahlungsdauer größere Mengen spaltbaren Materials in den Reaktorkern einbringen und mit minimiertem Risiko eines Hüllrohrbruchs über einen längeren Zeitraum nutzen. Die Erhöhung der Spaltstoffmenge im Kern wird hierbei durch eine Erhöhung des ^{235}U oder des Plutoniumgehalts erreicht. Neben den erhöhten erreichbaren Abbränden wird eine erhöhte Anreicherung jedoch auch durch eine erhöhte Reaktivität des Brennstoffs begleitet. Zum Ausgleich dieser Reaktivitätssteigerung werden dem Kernbrennstoff im industriellen Maßstab Materialien mit hohem thermischen Neutroneneinfangquerschnitt als ausbrennbare Neutronengifte zugesetzt. Hierbei spielt besonders das Lanthanoiden-Element Gadolinium eine Rolle.

Natürliches Gadolinium besteht zu 14,8 % und 15,7 % aus den Isotopen ^{155}Gd und ^{157}Gd , welche thermische Neutroneneinfangquerschnitte (σ) von 61 000 barn und 254 000 barn aufweisen (Zum Vergleich: $\sigma(n,f)$ ^{235}U : 586 barn, $\sigma(n,f)$ ^{239}Pu : 752 barn). Zusätzlich besitzen die jeweils durch Neutroneneinfang gebildeten Gadolinium-Isotope geringe Neutroneneinfangquerschnitte womit sich diese Gadolinium-Isotope hervorragend als ausbrennbarer Absorber eignen /PFE 98/. Aufgrund der geringen Isotopenhäufigkeit liegt der Gadolinium-Anteil in solchen Brennstoffen jedoch zwischen 5 % und 10 %. In Analogie zum Plutoniumoxid werden Gadolinium(III)-oxid (Gd_2O_3) und Uran(IV)-oxid durch gemeinsames intensives Mahlen zu einem Master-Blend verarbeitet. Dieses wird im Anschluss in einer Vibrationsmühle mit UO_2 und Zuschlagstoffen auf den gewünschten Gadolinium-Gehalt verdünnt. Als Zuschlagstoffe werden hier Aluminiumhydroxid, Aluminiumoxid und Aluminiumstearat verwendet, die als Sinterhilfsmittel und Schmierstoff wirken und die Rezyklierung fehlerhafter Gd-Brennstoffpellets in den Prozess erlauben. Das daraus hervorgehende Pulver ist fließfähig und kann im Anschluss zur direkten Pellet-Fabrikation verwendet werden. Gadoliniumoxid wirkt sich negativ auf die Wärmeleitfähigkeit und den Schmelzpunkt der Brennstoffmatrix aus. Um diese Effekte zu minimieren ermöglicht das oben beschriebene Blenderverfahren die Bildung einer vollständigen Solid-Solution des Gadolinium in der Brennstoffmatrix /INT 12/.

6.4.5 Infiltration

Die Methode der Infiltration beruht auf porösen Pellets oder Mikrosphären, die durch Infiltrieren mit einer Schwermetall-Nitrat-Lösung und anschließendem Trocknen und thermischer Konversion in ein gemischtes Oxid überführt werden. Die Methode wurde bisher nur im Labormaßstab angewandt. Durch wiederholte Anwendung des Infiltrations-Thermo-Konversions-Zyklus lässt sich der Anteil des infiltrierten Schwermetalls auf bis zu 25 % anheben. Die Methode bietet sich für die Herstellung von Brennstoffen an, die minore Aktinoide enthalten. Als poröses Grundmaterial können hierbei verschiedenste Materialien wie UO_2 , ThO_2 , PuO_2 oder neutronisch inerte Keramiken verwendet werden. Durch die feine Verteilung der minoren Aktinoiden bildet sich, sofern chemisch möglich, eine Solid-Solution der infiltrierten Aktinoide mit dem Matrixmaterial [INT 12]. Die große Variation an Kernbrennstoffen, angefangen von den UOX-Brennstoffen, über die Entwicklung der MOX-Brennstoffe bis hin zu den MA-Brennstoffen erfordern unterschiedliche Herstellungsprozesse. Zusätzlich wird die Entwicklung der Prozesse von weiteren Faktoren, wie den In-core Eigenschaften der Brennstoffe oder der Proliferationsresistenz des Produktionsprozesses beeinflusst. Dies führt dazu, dass eine Vielzahl unterschiedlicher Prozesse abhängig von den gewünschten Produkteigenschaften und den Ausgangsstoffen entwickelt wurden. Abb. 5.18 gibt einen Überblick über die wichtigsten Prozesse zur Herstellung von Brennelementpellets.

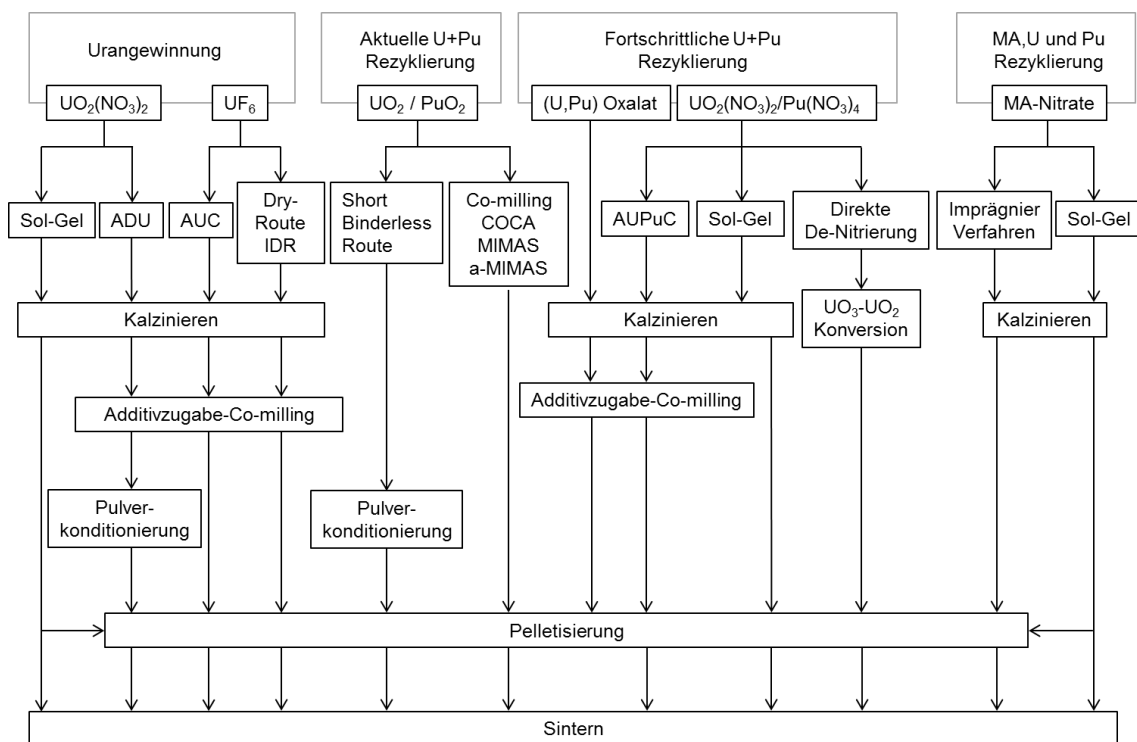


Abb. 6.18 Übersicht über mögliche Konversionsprozesse ausgehend von Urangewinnung und verschiedener Rezyklierungsstrategien

6.4.6 Forschungsreaktor-Brennstoffe

Um den zum Betrieb eines Forschungsreaktors als Neutronenquelle notwendigen Neutronenfluss aufrecht zu erhalten, bedarf es einer definierten Menge spaltbaren Materials in einem definierten Volumen. Eine Verminderung der ^{235}U -Anreicherung ist bei gleichbleibender Kerngeometrie lediglich durch eine Erhöhung der Materialdichte durchführbar. Hierbei muss jedoch zusätzlich der neutronenparasitäre Charakter des hinzugefügten ^{238}U kompensiert werden. Zur Erhöhung der Brennstoffdichte stehen unterschiedliche Materialien zur Verfügung. Metallisches Uran stellt mit einer Dichte von ca. 19 g/cm^3 ein hochdichtes Material mit hoher Wärmeleitfähigkeit und guten mechanischen Eigenschaften zur Verfügung. Uranmetall durchläuft jedoch beim Erhitzen auf die Brennstofftemperatur mehrere Modifikationsänderungen, die eine Anwendung des reinen Metalls verhindern. Durch Zugabe von 7-10 % des Elementes Molybdän lässt sich die unter Betriebstemperaturen stabile γ -Uran-Phase bis zur Raumtemperatur stabilisieren und ermöglicht den Einsatz entsprechender U-Mo Verbindungen als Brennstoff im Kernreaktor /INT 12/. Um einen aus radiologischer und technischer Sicht einwandfreien Reaktorbetrieb zu gewährleisten darf der Brennstoff keinen direkten Kontakt zum Kühlmittel haben, sondern muss allseitig von einer dichten und wärmeleitenden Umhüllung, dem Cladding, umschlossen sein. Die Umhüllung von UMo Brennstoffen mit Aluminium stellt derzeit die größte Herausforderung beim Einsatz solcher Brennelemente im Reaktor dar /INT 12/. Während des Betriebs bildet sich an der Grenze zwischen Brennstoff und Cladding eine Interdiffusionsschicht, die zu einer Ablösung der Aluminiumhülle vom Brennstoff und somit zu einem Verlust des notwendigen Wärmetransports in diesem Bereich führt. Verschiedene Brennstoffdesigns sind aktuell Gegenstand wissenschaftlicher und ingenieurstechnischer Untersuchungen um den Einsatz niedrig-angereicherter und hochdichter UMo Kernbrennstoffe zu ermöglichen.

Literaturverzeichnis

- /ANS 14/ American Nuclear Society (ANS): Nuclear Criticality Safety in Operations with Fissionable Materials Outside Reactors. ANSI/ANS 8.1:2014-04, 24 S., American Nuclear Society: La Grange Park, IL, USA, 2014.
- /BEH 14a/ Behler, M., Bock, M., Rowold, F., Stuke, M.: SUnCISTT - A Generic Code Interface for Uncertainty and Sensitivity Analysis. In: International Association for Probabilistic Safety Assessment and Management (IAPSAM): Probabilistic Safety Assessment and Management. PSAM 12, Honolulu, Hawaii, USA, 22. - 27. Juni 2014, 2014.
- /BEH 14b/ Behler, M., Hannstein, V., Kilger, R., Moser, F.-E., Pfeiffer, A., Stuke, M.: Quantifizierung der Rechengenauigkeit von Codesystemen zum Abbrandkredit durch Experimentnachrechnungen. Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH, GRS-336, 196 S., ISBN 978-3-944161-16-7: Köln, Juni 2014.
- /BEH 19a/ Behler, M.: Validierung und Vergleich von Abschirmrechnungen mit Monaco/MAVRIC und MCNP. Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH, GRS-546, ISBN 978-3-947685-31-8: Garching, Juli 2019.
- /BEH 19b/ Behler, M., Hannstein, V., Sommer, F.: Temperaturabhängigkeit des Neutronenmultiplikationsfaktors k_{eff} für DWR-Brennelemente, GRS-Beitrag zum OECD/NEA Rechenbenchmark und weiterführende Rechnungen. Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH, GRS-543, ISBN 978-3-947685-28-8: Garching, Juli 2019.
- /BGR 17/ ohne Autor: BGR Energiestudie 2017, Daten und Entwicklungen der deutschen und globalen Energieversorgung. 21. Aufl., 2017.
- /BMU 12/ Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit (BMU): Gemeinsames Übereinkommen über die Sicherheit der Behandlung abgebrannter Brennelemente und über die Sicherheit der Behandlung radioaktiver Abfälle, Bericht der Bundesrepublik Deutschland für die vierte Überprüfungskonferenz. 343 S.: Berlin, Mai 2012.

- /BOC 12/ Bock, M., Behler, M.: Validierung und Vergleich von Abschirmrechnungen mit Monaco/MAVRIC und MCNP, Technischer Bericht zum Vorhaben 3610R03350. Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) GmbH, 175 S.: Garching b. München, September 2012.
- /BOL 12/ Bollesteros, M.-J., Calor, J.-N., Costenoble, S., Montuir, M., Pacary, V., Sorrel, C., Burdet, F., Espinoux, D., Hérès, X., Eysseric, C.: Implementation of Americium Separation from a PUREX Raffinate. *Procedia Chemistry*, Bd. 7, S. 178–183, DOI 10.1016/j.proche.2012.10.030, 2012.
- /BOU 11/ Bourg, S., Hill, C., Caravaca, C., Rhodes, C., Ekberg, C., Taylor, R., Geist, A., Modolo, G., Cassayre, L., Malmbeck, R., Harrison, M., Angelis, G. de, Espartero, A., Bouvet, S., Ouvrier, N.: ACSEPT—Partitioning technologies and actinide science, Towards pilot facilities in Europe. *Nuclear Engineering and Design*, Bd. 241, Nr. 9, S. 3427–3435, DOI 10.1016/j.nuceng-des.2011.03.011, 2011.
- /BOU 15/ Bourg, S., Geist, A., Narbut, J.: SACSESS- The EURATOM FP7 project on actinide separation from spent nuclear fuels. *Nukleonika*, Bd. 60, Nr. 4, S. 809–814, DOI 10.1515/nuka-2015-0152, 2015.
- /BRO 18/ Brown, D. A., Chadwick, M. B., Capote, R., Kahler, A. C., Trkov, A., Herman, M. W., Sonzogni, A. A., Danon, Y., Carlson, A. D., Dunn, M., Smith, D. L., Hale, G. M., Arbanas, G., Arcilla, R., et al.: ENDF/B-VIII.0, The 8th Major Release of the Nuclear Reaction Data Library with CIELO-project Cross Sections, New Standards and Thermal Scattering Data. *Nuclear Data Sheets*, Bd. 148, S. 1–142, DOI 10.1016/j.nds.2018.02.001, 2018.
- /CAR 68/ Carter, R. D., Kiel, G. R., Ridgway, K. R.: *Criticality Handbook I-III*. Atlantic Richfield Hanford Company, ARH-600: Richland, WA, USA, 1968-71.
- /CAR 14/ Carrott, M., Bell, K., Brown, J., Geist, A., Gregson, C., Hères, X., Maher, C., Malmbeck, R., Mason, C., Modolo, G., Müllich, U., Sarsfield, M., Wilden, A., Taylor, R.: Development of a New Flowsheet for Co-Separating the Transuranic Actinides, The “EURO-GANEX” Process. *Solvent Extraction and Ion Exchange*, Bd. 32, Nr. 5, S. 447–467, DOI 10.1080/07366299.2014.896580, 2014.

- /CHA 65/ Chalmers, J. H., Walker, G., Pugh, J.: Handbook of criticality data, Vol. 1, Rev. 1. Authority Health and Safety Branch, United Kingdom Atomic Energy Authority, AHSB(S)HANDBOOK-1(1st.Rev.): Warrington, Cheshire, UK, 1965.
- /CHA 11/ Chadwick, M. e. a.: ENDF/B-VII.1 Nuclear Data for Science and Technology: Cross Sections, Covariances, Fission Product Yields and Decay Data. NuclearData Sheets, 2887-2996, S. 112, pp, 2011.
- /CLA 82/ Clark, H. K.: Subcritical Limits for Uranium-235 Systems. Nuclear Science and Engineering, Bd. 81, Nr. 3, S. 351–378, DOI 10.13182/NSE82-A20279, 1982.
- /CUN 87/ Cuney, M., Friedrich, M.: Physicochemical and crystal-chemical controls on accessory mineral paragenesis in granitoids, Implications for uranium metallogenesis. Bulletin de Mineralogie, Bd. 110, 1987.
- /CUN 03/ Cuney, M., Brouand, M., Cathelineau, M.: What parameters control the high grade -large tonnage of the Proterozoic unconformity related uranium deposits? In: Université Henri Poincaré: Uranium Geochemistry 2003, Proceedings of an International Conference. Nancy, France, 13. - 16. April 2003, S. 123–126, 2003.
- /CUN 10/ Cuney, M.: Evolution of Uranium Fractionation Processes through Time, Driving the Secular Variation of Uranium Deposit Types. Economic Geology, Bd. 105, Nr. 3, S. 553–569, DOI 10.2113/gsecongeo.105.3.553, 2010.
- /DAH 93/ Dahlkamp, F. J.: Uranium ore deposits. XI, 460 Seiten, ISBN 3-540-53264-1, Springer-Verl.: Berlin, 1993.
- /DIE 11/ DIENG, S., Kyser, K., Godin, L.: Tectonic setting, fluid history and genesis of uranium mineralization in the Beaverlodge area, Saskatchewan, Canada. 2011.

- /DIR 07/ Direen, N. G., Lyons, P.: Regional Crustal Setting of Iron Oxide Cu-Au Mineral Systems of the Olympic Dam Region, South Australia, Insights from Potential-Field Modeling. *Economic Geology*, Bd. 102, Nr. 8, S. 1397–1414, DOI 10.2113/gsecongeo.102.8.1397, 2007.
- /EDW 00/ Edwards, C.R. and Oliver, A.J.: Uranium Processing: A Review of Current Methods and Technology. *The Journal of The Minerals, Metals & Materials Society*, Bd. 52, S. 12–20, 2000.
- /ENG 18/ Mitchell, M.: Engauge Digitizer. Version 10.6, erreichbar unter <http://markummitchell.github.io/engauge-digitizer/>, abgerufen am 9. April 2018.
- /EVE 85/ Everhart, D. L.: Tectonic settings of the world's sandstone-type uranium deposits. In: IAEA (Hrsg.): *Geological Environments of Sandstone Type Uranium Deposits (Report of the Working Group on Uranium Geology)*. IAEA TECDOC Series, Bd. 328, S. 21–46, International Atomic Energy Agency: Vienna, 1985.
- /FAY 97/ Fayek, M., K. Kyser, T.: Characterization of multiple fluid-flow events and rare-earth-element mobility associated with formation of unconformity-type uranium deposits in the Athabasca Basin, Saskatchewan. *Canadian Mineralogist*, Bd. 35, 1997.
- /FIN 09/ Finfrock, S. H.: *CritView User's Guide*. CH2M HILL Plateau Remediation Company, 20 S.: Richland, WA, USA, September 2009.
- /FIN 11/ Finfrock, S. H.: *CritView. Windows*, CH2M HILL Plateau Remediation Company, Oktober 2011.
- /FLE 15a/ Fleming, M., Sublet, J.-C.: Validation of FISPACT-II Decay Heat and Inventory Predictions for Fission Events. Culham Centre for Fusion Energy, CCFE-R(15)28, 62 S., Juni 2015.
- /FLE 15b/ Fleming, M., Sublet, J.-C., Kopecky, J.: Integro-Differential Verification and Validation, FISPACT-II & TENDL-2014 nuclear data libraries. Culham Centre for Fusion Energy, CCFE-R(15)27, 539 S., March 2015.

- /FOX 05/ Fox, P. B., Petrie, L. M., Hopper, C. M.: Minimum Critical Values Study. Oak Ridge National Laboratory (ORNL), ORNL/TM-2003/211, 98 S.: Oak Ridge TN, USA, Juli 2005.
- /GAN 18/ Gan, S., Wilson, A. R.: Benchmark Specification: The effect of temperature on the neutron multiplication factor for PWR fuel assemblies. OECD/NEA Working Party on Nuclear Criticality Safety, Subgroup 3, September 2018.
- /GEI 16/ Geist, A., Taylor, R., Ekberg, C., Guilbaud, P., Modolo, G., Bourg, S.: The SACSESS Hydrometallurgy Domain- an Overview. In: Commissariat à l'Énergie Atomique et aux Énergies Alternatives (CEA): International Conference on Nuclear Chemistry for Sustainable Fuel Cycles. ATALANTE 2016, Montpellier, France, 5. - 10. Juni 2016, Procedia Chemistry, Nr. 21, S. 218–222, ISBN 978-1-5108-3632-7, Juni 2016.
- /GER 14/ Gervaise, Y.: Approche analytique de la detection des fraudes. SGS Multi-lab: Rennes, France, 2014.
- /GEU 09/ Geupel S., Ellinger A., Wehrfritz M., Haider C.: Grundlagen für Störfallanalysen in nuklearen Versorgungsanlagen. Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH, GRS-A-3530, Oktober 2009.
- /GNU 19/ Gnuplot: gnuplot homepage. erreichbar unter <http://www.gnuplot.info/>, Stand von 2019.
- /GOO 94/ Goossens, M., Mittelbach, F., Samarin, A.: The LATEX Companion. Addison-Wesley. Reading: Massachusetts, 1994.
- /GRA 75/ Grahmann, U., Tillessen, U., Zimmer, E.: Technisches Konzept der Refabrikation von Uran-233. In: Deutsches Atomforum e.V., Kerntechnische Gesellschaft e.V.: Reaktortagung. Nürnberg, 8. - 11. April 1975, S. 387–390: Bonn, 1975.
- /GRS 15/ GRS: Handbuch zur Kritikalität, Band 1 - Kritikalität und nukleare Sicherheit. Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH, GRS-379, ISBN 978-3-944161-60-0: Garching b. München, April 2015.

- /GRS 19a/ GRS: Handbuch zur Kritikalität, Band 2 - Zusammenstellung der Kritikalitätskenngrößen, Teil 1 - Daten für ²³⁵Uran. GRS - 380, ISBN 978-3-944161-61-7: Garching b. München, Juni 2019.
- /GRS 19b/ GRS: Handbuch zur Kritikalität, Band 2 - Zusammenstellung der Kritikalitätskenngrößen, Teil 2 - Daten für Plutonium, ²³³Uran und höhere Aktinide. GRS - 381, ISBN 978-3-944161-62-4: Garching b. München, Juli 2019.
- /HEM 89/ Hem, J. D., Geological, S.: Study and interpretation of the chemical characteristics of natural water. 1989.
- /HES 01/ Hesse, U., Hummelsheim, K.: GRS-AKTIV-II, Programmsystem zur Berechnung der Aktivierung von Brennelement- und Core-Bauteilen in Vielgruppendarstellung, Programmbeschreibung UNIX-Version 05/01. Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH, GRS-A-3002: Garching b. München, Dezember 2001.
- /HOE 78/ Hoeve, J., Sibbald, T. I. I.: On the genesis of Rabbit Lake and other unconformity-type uranium deposits in northern Saskatchewan, Canada. Economic Geology, Bd. 73, Nr. 8, S. 1450–1473, DOI 10.2113/gsecongeo.73.8.1450, 1978.
- /HOL 03/ Holk, G. J., Kyser, T.K., Chipley, D., Hiatt, E. E., Marlatt, J.: Mobile Pb-isotopes in Proterozoic sedimentary basins as guides for exploration of uranium deposits. Journal of Geochemical Exploration, Bd. 80, 2-3, S. 297–320, DOI 10.1016/S0375-6742(03)00196-1, 2003.
- /IAE 05/ International Atomic Energy Agency (IAEA): Thorium fuel cycle, Potential benefits and challenges. IAEA-TECDOC-1450, 105 S., ISBN 92-0-103405-9: Vienna, 2005.
- /IAEA 85/ IAEA (Hrsg.): Geological Environments of Sandstone Type Uranium Deposits (Report of the Working Group on Uranium Geology). IAEA TECDOC Series, Bd. 328, International Atomic Energy Agency: Vienna, 1985.

- /IAEA 09/ International Atomic Energy Agency (IAEA): World distribution of uranium deposits (UDEPO) with uranium deposit classification. IAEA-TECDOC, Bd. 1629, 2009. Aufl., 1 online resource (1 texte électronique (117, ISBN 9789201105097: Vienna, Austria, 2009.
- /IAEA 18/ International Atomic Energy Agency (IAEA): Regulations for the Safe Transport of Radioactive Material. SSR-6 (1. Rev):2018, 190 S., International Atomic Energy Agency (IAEA): Wien, 2018.
- /INS 18/ Institut für Arbeitsschutz der Deutsche Gesetzliche Unfallversicherung: Stoffdatenblatt UranylNitrat, GESTIS-Stoffdatenbank. erreichbar unter , Stand vom 23. Januar 2018.
- /INT 12/ International Atomic Energy Agency (IAEA): Experiences and Trends of Manufacturing Technology of Advanced Nuclear Fuels, IAEA-TECDOC-1686. IAEA-TECDOC, Bd. 1686, 125 S.: Wien, 2012.
- /JAE 01/ Japan Atomic Energy Research Institute: Nuclear Criticality Safety Handbook, Version 2, (English Translation). JAERI-Review 2001-028, 235 S.: Tokyo, Japan, August 2001.
- /JAN 72/ Janov, J., Alfredson, P.G., Vilkaitis, V.K.: The influence of precipitation conditions on the properties of ammonium diuranate and uranium dioxide powders. Journal of Nuclear Materials, Bd. 44, Nr. 2, S. 161–174, DOI 10.1016/0022-3115(72)90094-3, 1972.
- /KAU 15/ Kaufholz, P., Sadowski, F., Wilden, A., Modolo, G., Lewis, F. W., Smith, A. W., Harwood, L. M.: TS-BTPPhen as a promising hydrophilic complexing agent for selective Am(III) separation by solvent extraction. Nukleonika, Bd. 60, Nr. 4, DOI 10.1515/nuka-2015-0120, 2015.
- /KAU 16/ Kaufholz, P., Modolo, G., Wilden, A., Sadowski, F., Bosbach, D., Wagner, C., Geist, A., Panak, P. J., Lewis, F. W., Harwood, L. M.: Solvent Extraction and Fluorescence Spectroscopic Investigation of the Selective Am(III) Complexation with TS-BTPPhen. Solvent Extraction and Ion Exchange, Bd. 34, Nr. 2, S. 126–140, DOI 10.1080/07366299.2016.1151308, 2016.

- /KAU 17/ Kaufholz, P.: The Selective Separation of Am(III) from Highly Radioactive PUREX-Raffinate. Dissertation, Institut für Energie und Klimaforschung: IEK-6, RWTH Aachen: Aachen, 2017.
- /KIL 13/ Kilger, R., Bock, M., Rowold, F., Hannstein, V., Behler, M., Moser, F.-E.: Bereitstellung von Daten und Methoden zur Beurteilung der Sicherheit bei der nuklearen Ver- und Entsorgung sowie innovativer Kernbrennstoffkonzepte, Abschlussbericht zum Vorhaben 3610R03350. Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH, GRS-A-3701, 251 S.: Garching b. München, März 2013.
- /KIL 16/ Kilger, R., Peters, E., Sommer, F., Moser, F.-E., Keßen, S., Stuke, M.: Weiterentwicklung von Methoden und Datengrundlagen zu Sicherheits- und Störfallanalysen für Anlagen der nuklearen Ver- und Entsorgung sowie Aktualisierung und Überprüfung von Rechenmethoden zu nuklearen Sicherheitsanalysen, Abschlussbericht zum Vorhaben 3613R03350. GRS-420, ISBN 978-3-946607-02-1, Juli 2016.
- /KOP 00/ Kopka, H.: LATEX. Addison-Wesley scientific computing, 3. Aufl., XXII, 521 S., ISBN 3-8273-1557-3, Addison-Wesley: Bonn [u.a.], 2000.
- /KYS 00/ Kyser, K., Hiatt, E., Renac, C., Durocher, K., Holk, G., Deckart, K.: Diagenetic fluids in Paleo-and Meso-Proterozoic sedimentary basins and their implications for long protracted fluid histories. Mineralogical Association of Canada Short Course, Bd. 28, S. 225–262, 2000.
- /KYS 09/ Kyser, K., Cuney, M.: Unconformity-related uranium deposits. In: Cuney, M., Kyser, K. (Hrsg.): Recent and not-so-recent developments in uranium deposits and implications for exploration. 2009.
- /KYS 14/ Kyser, K.: Uranium Ore Deposits. In: Elsevier Ltd.: Treatise on Geochemistry. S. 489–513, ISBN 9780080983004, DOI 10.1016/B978-0-08-095975-7.01122-0, Elsevier Science, 2014.

- /LAN 78/ Langmuir, D.: Uranium solution-mineral equilibria at low temperatures with applications to sedimentary ore deposits. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, Bd. 42, Nr. 6, S. 547–569, DOI 10.1016/0016-7037(78)90001-7, 1978.
- /LAW 17/ Lawrence Livermore National Laboratory: Nuclear Criticality Safety Program, U.S. Department of Energy, CrtiView. Stand von 2017, erreichbar unter https://ncsp.llnl.gov/am_critview.php, abgerufen am 1. Juli 2019.
- /LER 92/ Leroy, J. L., George-Aniel, B.: Volcanism and uranium mineralizations, The concept of source rock and concentration mechanism. *Journal of Volcanology and Geothermal Research*, Bd. 50, Nr. 3, S. 247–272, DOI 10.1016/0377-0273(92)90096-V, 1992.
- /LIE 92/ Liemersdorf H., S. L., Thomas W.: Störfallanalyse und Restrisiko-Ereignisse bei kerntechnischen Anlagen des nuklearen Brennstoffkreislaufes. Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH, GRS-A-1943, August 1992.
- /MAD 02/ Madic, C., Hudson, M. J., Liljenzin, J.-O., Glatz, J.-P., Nannicini, R., Facchini, A., Kolarik, Z., Odoj, R.: Recent Achievements in the Development of Partitioning Processes of Minor Actinides from Nuclear Wastes Obtained in the Frame of the NEWPART European Programme. *Progress in Nuclear Energy*, Bd. 40, 3-4, S. 523–526, 2002.
- /MAG 03/ Magill, J., Berthou, V., Haas, D., Galy, J., Schenkel, R., Wiese, H.-W., Heusener, G., Tommasi, J., Youinou, G.: Impact limits of partitioning and transmutation scenarios on the radiotoxicity of actinides in radioactive waste. *Nuclear Energy*, Bd. 42, Nr. 5, S. 263–277, 2003.
- /MAG 09a/ Magnusson, D., Christiansen, B., Glatz, J.-P., Malmbeck, R., Modolo, G., Serrano-Purroy, D., Sorel, C.: Demonstration of a TODGA based Extraction Process for the Partitioning of Minor Actinides from a PUREX Raffinate. *Solvent Extraction and Ion Exchange*, Bd. 27, Nr. 1, S. 26–35, DOI 10.1080/07366290802544726, 2009.

- /MAG 09b/ Magnusson, D., Christiansen, B., Foreman, M. R. S., Geist, A., Glatz, J.-P., Malmbeck, R., Modolo, G., Serrano-Purroy, D., Sorel, C.: Demonstration of a SANEX Process in Centrifugal Contactors using the CyMe 4 -BTBP Molecule on a Genuine Fuel Solution. *Solvent Extraction and Ion Exchange*, Bd. 27, Nr. 2, S. 97–106, DOI 10.1080/07366290802672204, 2009.
- /MAL 00/ Malmbeck, R., Courson, O., Pagliosa, G., Römer, K., Sätmark, B., Glatz, J.-P., Baron, P.: Partitioning of minor actinides from HLLW using the DIAMEX process. Part 2 - "Hot" continuous counter-current experiment. *Radiochimica Acta*, Bd. 88, Nr. 12, S. 865–871, 2000.
- /MAR 15/ Marie, C., Duchesne, M.-T., Russello, E., Kaufholz, P., Wilden, A., Modolo, G., Casnati, A., Miguiditchian, M.: Development of a selective americium separation process using TPAEN as a water-soluble stripping agent. In: *Proceedings of Global. Global 2015, Paris, 20. - 2015*, S. 1670–1674, DOI 10.1002/9781119197249.ch1, 2015.
- /MEL 07/ Mellah, A., Chegrouche, C., Barkat, M.: The precipitation of ammonium uranyl carbonate (AUC): Thermodynamic and kinetic investigations. *Hydrometeorology*, Bd. 85, 2-4, S. 163–171, DOI 10.1016/j.hydromet.2006.08.011, 2007.
- /MEN 06/ Mennerdahl, D., Weber, W., Naito, Y., Anno, J.: Reference Values for Nuclear Criticality Safety, Homogeneous and Uniform UO₂, "UNH", PuO₂ and "PuNH", Moderated and Reflected by H₂O, A demonstration study by an Expert Group of the Working Party on Nuclear Criticality Safety for the OECD/NEA Nuclear Science Committee. OECD Nuclear Energy Agency, NEA No., Bd. 5433, ISBN 92-64-02333-X: Paris, 2006.
- /MER 84/ Merz, E., Zimmer, E.: Aqueous Chemical Reprocessing of HTR Fuel. Hrsg.: Kernforschungsanlage Jülich GmbH, Berichte des Forschungszentrums Jülich, Jül-1899, 46 S.: Jülich, Februar 1984.

- /MIG 07/ Miguirditchian, M., Chareyre, L., Hérès, X., Hill, C., Baron, P., Masson, M.: GANEX : Adaptation of the DIAMEX-SANEX Process for the Group Actinide Separation. In: American Nuclear Society (ANS): 7th International Conference on Advanced Nuclear Fuel Cycles and Systems. Global 2007, Boise, Idaho, US, 9. - 13. September 2007, S. 1–17, ISBN 978-0-89448-054-6, 2007.
- /MOD 07/ Modolo, G., Asp, H., Schreinemachers, C., Vijgen, H.: Development of a TODGA based Process for Partitioning of Actinides from a PUREX Raffinate Part I, Batch Extraction Optimization Studies and Stability Tests. Solvent Extraction and Ion Exchange, Bd. 25, Nr. 6, S. 703–721, DOI 10.1080/07366290701634578, 2007.
- /MOD 08/ Modolo, G., Asp, H., Vijgen, H., Malmbeck, R., Magnusson, D., Sorel, C.: Demonstration of a TODGA-Based Continuous Counter-Current Extraction Process for the Partitioning of Actinides from a Simulated PUREX Raffinate, Part II, Centrifugal Contactor Runs. Solvent Extraction and Ion Exchange, Bd. 26, Nr. 1, S. 62–76, DOI 10.1080/07366290701784175, 2008.
- /MOD 10/ Modolo, G., Kluxen, P., Geist, A.: Demonstration of the LUCA process for the separation of americium(III) from curium(III), californium(III), and lanthanides(III) in acidic solution using a synergistic mixture of bis(chlorophenyl)dithiophosphinic acid and tris(2-ethylhexyl)phosphate. Radiochimica Acta, Bd. 98, Nr. 4, S. 193–201, DOI 10.1524/ract.2010.1708, 2010.
- /MOD 12/ Modolo, G., Wilden, A., Geist, A., Magnusson, D., Malmbeck, R.: A review of the demonstration of innovative solvent extraction processes for the recovery of trivalent minor actinides from PUREX raffinate. Radiochimica Acta, Bd. 100, 8-9, S. 715–725, DOI 10.1524/ract.2012.1962, 2012.
- /MOD 14/ Modolo, G., Wilden, A., Kaufholz, P., Bosbach, D., Geist, A.: Development and demonstration of innovative partitioning processes (i-SANEX and 1-cycle SANEX) for actinide partitioning. Progress in Nuclear Energy, Bd. 72, S. 107–114, DOI 10.1016/j.pnucene.2013.07.021, 2014.
- /MOR 80/ Mortimer, C. E.: Chemie. 3. Aufl., Georg Thieme Verlag: Stuttgart, 1980.

- /MOS 15/ Mosher, S. W., Johnson, S. R., Bevill, A. M., Ibrahim, A. M., Daily, C. R., Evans, T. M., Wagner, J. C., Johnson, J. O., Grove, R. E.: ADVANTG An Automated Variance Reduction Parameter Generator, Rev. 1. Oak Ridge National Laboratory (ORNL), ORNL/TM-2013/416, Rev. 1, 109 S., DOI 10.2172/1210162, August 2015.
- /MOS 16/ Mossini, E., Kaufholz, P., Wilden, A., Modolo, G., Macerata, E., Mariani, M., Arduin, A., Iotti, N., Casnati, A.: i-SANEX single-stage centrifugal contactor experiment with a novel hydrophilic complexing agent, Poster. In: Commissariat à l'Énergie Atomique et aux Énergies Alternatives (CEA): International Conference on Nuclear Chemistry for Sustainable Fuel Cycles. ATALANTE 2016, Montpellier, France, 5. - 10. Juni 2016, Procedia Chemistry, Nr. 21, ISBN 978-1-5108-3632-7, Juni 2016.
- /MOS 18/ Mossini, E., Macerata, E., Wilden, A., Kaufholz, P., Modolo, G., Iotti, N., Casnati, A., Geist, A., Mariani, M.: Optimization and Single-Stage Centrifugal Contactor Experiments with the Novel Hydrophilic Complexant PyTri-Diol for the i-SANEX Process. Solvent Extraction and Ion Exchange, Bd. 36, Nr. 4, S. 373–386, DOI 10.1080/07366299.2018.1507134, 2018.
- /NEA 01/ NEA/IAEA: Uranium 2001: Resources, Production and Demand. 350 S., 2001.
- /NEA 07/ NEA/IAEA: Uranium 2007: Resources, Production and Demand. 424 S., 2007.
- /NEA 12/ OECD Nuclear Energy Agency: International Handbook of Evaluated Criticality Safety Benchmark Experiments. NEA/NSC/DOC(95)03, Dezember 2012.
- /NEA 16/ NEA/IAEA: Uranium 2016: Resources, Production and Demand. 550 S., 2016.
- /NEA 18/ NEA/IAEA: Uranium 2018: Resources, Production and Demand. 2018.
- /OAK 16/ Oak Ridge National Laboratory (ORNL): SCALE Newsletter - Spring 2016, SCALE 6.2 Special Edition. Number 48: Oak Ridge TN, USA, Spring 2016.

- /OECD 16/ OECD/NEA: International Handbook of Evaluated Criticality Safety Benchmark Experiments. NEA No. 7328, NEA/NSC/DOC(95)03, Dezember 2016.
- /OKU 06/ Okuno, H., Yoshiyama, H., Miyoshi, Y.: Calculation of Criticality Condition Data for Single-unit Homogeneous Uranium Materials in Six Chemical Forms. Journal of Nuclear Science and Technology, Bd. 43, Nr. 11, S. 1406–1413, DOI 10.1080/18811248.2006.9711234, 2006.
- /ORNL 11/ Oak Ridge National Laboratory (ORNL): SCALE -A Comprehensive Modeling and Simulation Suite for Nuclear Safety Analysis and Design. ORNL/TM-2005/39, Version 6.1, Juni 2011. Available from Radiation Safety Information Computational Center at Oak Ridge National Laboratory as CCC-785.
- /OTT 84/ Otton, J. K.: Surficial uranium deposits in the United States of America; Surficial uranium deposits. In: International Atomic Energy Agency (IAEA): Surficial Uranium Deposits: Report of the Working Group on Uranium Geology Organized by the International Atomic Energy Agency. IAEA-TECDOC-322,, S. 237–242, 1984.
- /PEL 13/ Pelowitz, D. B.: MCNP6 User's Manual, Version 1.0, Manual Rev. 0. Los Alamos National Laboratory, LA-CP-13-00634, Rev. 0, 765 S., Mai 2013.
- /PFE 98/ Pfenning, G., Klewe-Nebenius, H., Seelmann-Eggebert, W.: Karlsruher Nuklidkarte. Institut für Instrumentelle Analytik, Forschungszentrum Karlsruhe GmbH: Karlsruhe, Dezember 1998.
- /PRU 96/ Pruvost, N. L., Paxton, H. C.: Nuclear Criticality Safety Guide. Los Alamos National Laboratory, LA-12808, UC-714, 136 S.: Los Alamos, NM, USA, September 1996.
- /REA 12/ Reactor and Nuclear Systems Division: SCALE Newsletter. Oak Ridge National Laboratory (ORNL), Nr. 44, 12 S., 2012.

- /REA 16/ Rearden, B. T., Jessee, M. A. (Hrsg.): SCALE Code System. Oak Ridge National Laboratory (ORNL), ORNL/TM-2005/39, Version 6.2.1: Oak Ridge, Tennessee, August 2016. Available from Radiation Safety Information Computational Center as CCC-834.
- /REA 17/ Rearden, B. T., Jessee, M. A. (Hrsg.): SCALE Code System. Oak Ridge National Laboratory (ORNL), ORNL/TM-2005/39, Version 6.2.2, 2747 S.: Oak Ridge, Tennessee, Februar 2017. Available from Radiation Safety Information Computational Center as CCC-834.
- /ROM 15/ Romano, P. K., Horelik, N. E., Herman, B. R., Nelson, A. G., Forget, B., Smith, K.: OpenMC, A state-of-the-art Monte Carlo code for research and development. *Annals of Nuclear Energy*, Bd. 82, S. 90–97, DOI 10.1016/j.anucene.2014.07.048, 2015.
- /ROS 12/ Rostaing, C., Poinssot, C., Warin, D., Baron, P., Lorraina, B.: Development and Validation of the EXAm Separation Process for Single Am Recycling. *Procedia Chemistry*, Bd. 7, S. 367–373, DOI 10.1016/j.proche.2012.10.057, 2012.
- /SAS 96/ Sasaki, Y., Choppin, G. R.: Solvent Extraction of Eu, Th, U, Np and Am with N,N'-Dimethyl-N,N'-dihexyl-3-oxopentanediamide and Its Analogous Compounds. *Analytical Sciences*, Bd. 12, Nr. 2, S. 225–230, 1996.
- /SCA 10/ SCALE Team: Monaco/MAVRIC Training. Präsentation, Oak Ridge National Laboratory (ORNL): Paris, 2010.
- /SEN 09/ Senentz, G., Drain, F., Baganz, C.: COEX™ Recycling Plant: A New Standard For An Integrated Plant. In: Société Française d'Energie Nucléaire (SFEN): The Nuclear Fuel Cycle: Sustainable Options & Industrial Perspectives. Global 2009, Paris, France, 6. - 11. September 2009, S. 62–65, 2009.
- /SER 05a/ Serrano-Purroy, D., Baron, P., Christiansen, B., Malmbeck, R., Sorel, C., Glatz, J.-P.: Recovery of minor actinides from HLLW using the DIAMEX process. *Radiochimica Acta*, Bd. 93, Nr. 6, S. 351–355, 2005.

- /SER 05b/ Serrano-Purroy, D., Baron, P., Christiansen, B., Glatz, J.-P., Madic, C., Malmbeck, R., Modolo, G.: First demonstration of a centrifugal solvent extraction process for minor actinides from a concentrated spent fuel solution. Separation and Purification Technology, Bd. 45, Nr. 2, S. 157–162, DOI 10.1016/j.seppur.2005.03.001, 2005.
- /SOM 19a/ Sommer, F.: Handbuch zur Störfallanalyse von nuklearen Ver- und Entsorgungseinrichtungen, Teil A - Grundlagen der Störfallanalyse. Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH, GRS-507, ISBN 978-3-946607-92-2: Garching b. München, April 2019.
- /SOM 19b/ Sommer, F.: Handbuch zur Störfallanalyse von nuklearen Ver- und Entsorgungseinrichtungen, Teil B - Physikalisch-chemische Grundlagen der Störfallanalyse. Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH, GRS-508, ISBN 978-3-946607-93-9: Garching b. München, Juli 2019.
- /SOM 19c/ Sommer, F., Rowold, F.: Handbuch zur Störfallanalyse von nuklearen Ver- und Entsorgungseinrichtungen, Teil C - Auswertung der Betriebserfahrung von Vorkommnissen. Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH, GRS-509, ISBN 978-3-946607-94-6: Garching b. München, Juli 2019.
- /SPR 18a/ Springer: Materialdatenbank, Urantrioxid. erreichbar unter http://materials.springer.com/isp/crystallographic/docs/sd_1904511, Stand vom 23. Januar 2018.
- /SPR 18b/ Springer: Materialdatenbank, Ammoniumplutonylcarbonat. erreichbar unter http://materials.springer.com/isp/crystallographic/docs/sd_1922654, Stand vom 23. Januar 2018.
- /SUB 15/ Sublet, J.-C., Gilbert, M. R.: Decay heat validation, FISPACT-II & TENDL-2014, JEFF-3.2, ENDF/B-VII.1 and JENDL-4.0 nuclear data libraries. Culham Centre for Fusion Energy, CCFE-R(15)25, 315 S., January 2015.

- /SUB 17/ Sublet, J.-C., Eastwood, J. W., Morgan, J. G., Gilbert, M. R., Fleming, M., Arter, W.: FISPACT-II: An Advanced Simulation System for Activation, Transmutation and Material Modelling. Nuclear Data Sheets, Bd. 139, S. 77–137, DOI 10.1016/j.nds.2017.01.002, 2017.
- /TAM 09/ Tamada, M.: Collection of uranium from seawater. Japan Atomic Energy Agency (JAEA): IAEA Wien, erreichbar unter https://www.iaea.org/Our-Work/ST/NE/NEFW/documents/RawMaterials/TM_Vienna2009/presentations/22_Tamada_Japan.pdf, Stand von 2009.
- /TAY 15a/ Taylor, R. (Hrsg.): Reprocessing and Recycling of Spent Nuclear Fuel. ISBN 978-1-78242-212-9, Woodhead: Cambridge, 2015.
- /TAY 15b/ Taylor, R., Bourg, S., Glatz, J.-P., Modolo, G.: Development of actinide separation processes for future nuclear fuel cycles in Europe. Nuclear Future, Bd. 11, Nr. 4, S. 38–43, 2015.
- /TAY 16/ Taylor, R., Carrott, M., Galan, H., Geist, A., Hères, X., Maher, C., Mason, C., Malmbeck, R., Miguiditchian, M., Modolo, G., Rhodes, C., Sarsfield, M., Wilden, A.: The EURO-GANEX Process, Current Status of Flowsheet Development and Process Safety Studies. Procedia Chemistry, Bd. 21, S. 524–529, DOI 10.1016/j.proche.2016.10.073, 2016.
- /THO 74/ Thomas, W.: Problematik der Abtrennung und Verarbeitung von U 233 aus HTR-Brennelementen. An Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH, interne Mitteilung: Garching, 15. November 1974.
- /THO 75/ Thomas, W.: Kritikalitätsberechnungen zu speziellen Problemen der Neutronenwechselwirkung in Zelle 703 der halbtechnischen Versuchsanlage JUPITER. LRA Garching, TU München, Oktober 1975.
- /TIS 81/ Tischer, H.: Chemie und Verfahrenstechnik des HEAD-ENDs bei der Wiederaufarbeitung von HTR-Brennelementen. JUEL-Spez 130, ISSN 0343-7639: Jülich, Oktober 1981.

- /UEK 87/ Ueki, K.: Optimum Arrangement for the Neutron Dose Rate of an Iron-Polyethylene Shielding System. Nuclear Science and Engineering, Nr. 96, S. 30–38, 1987.
- /UEK 96/ Ueki, K., Ohashi, A., Nariyama, N., Nagayama, S., Fujita, T., Hattori, K., Anayama, Y.: Systematic Evaluation of Neutron Shielding Effects for Materials. Nuclear Science and Engineering, Nr. 124, S. 455–464, 1996.
- /VAN 16a/ Vanel, V., Marie, C., Kaufholz, P., Montuir, M., Boubals, N., Wilden, A., Modolo, G., Geist, A., Sorel, C.: Modeling and Flowsheet Design of an Am Separation Process Using TODGA and H4TPAEN. Procedia Chemistry, Bd. 21, S. 223–230, DOI 10.1016/j.proche.2016.10.032, 2016.
- /VAN 16b/ Vanel, V., Bollesteros, M.-J., Marie, C., Montuir, M., Pacary, V., Antégnard, F., Costenoble, S., Boyer-Deslys, V.: Consolidation of the EXAm Process: Towards the Reprocessing of a Concentrated PUREX Raffinate. In: Commissariat à l'Énergie Atomique et aux Énergies Alternatives (CEA): International Conference on Nuclear Chemistry for Sustainable Fuel Cycles. ATALANTE 2016, Montpellier, France, 5. - 10. Juni 2016, Procedia Chemistry, Nr. 21, S. 190–197, ISBN 978-1-5108-3632-7, DOI 10.1016/j.proche.2016.10.027, Juni 2016.
- /WAG 14/ Wagner, C., Müllich, U., Panak, P. J., Geist, A.: AmSel, a New System for Extracting Only Americium from PUREX Raffinate. In: SNEC - Sustainable Nuclear Energy Conference 2014, Proceedings. Sustainable Nuclear Energy Conference 2014, Manchester, 9. - 11. April 2014, 2014.
- /WAG 16/ Wagner, C., Müllich, U., Geist, A., Panak, P. J.: Selective Extraction of Am(III) from PUREX Raffinate, The AmSel System. Solvent Extraction and Ion Exchange, Bd. 34, Nr. 2, S. 103–113, DOI 10.1080/07366299.2015.1129192, 2016.
- /WAR 11/ Warin, D., Poinssot, C., Bourg, S.: Future Nuclear Fuel Cycles: Meeting Sustainability through Actinide Recycling. In: Proceedings of Global. Global 2011, Makuhari, Japan, 11. - 16. Dezember 2011, S. 1–14, DOI 10.1002/9781118170229.ch1, 2011.

- /WIL 13/ Wilden, A., Modolo, G., Schreinemachers, C., Sadowski, F., Lange, S., Sypula, M., Magnusson, D., Geist, A., Lewis, F. W., Harwood, L. M., Hudson, M. J.: Direct Selective Extraction of Actinides (III) from PUREX Raffinate using a Mixture of CyMe 4 BTBP and TODGA as 1-cycle SANEX Solvent Part III, Demonstration of a Laboratory-Scale Counter-Current Centrifugal Contactor Process. *Solvent Extraction and Ion Exchange*, Bd. 31, Nr. 5, S. 519–537, DOI 10.1080/07366299.2013.775890, 2013.
- /WIL 14/ Wilden, A., Modolo, G., Kaufholz, P., Sadowski, F., Lange, S., Sypula, M., Magnusson, D., Müllich, U., Geist, A., Bosbach, D.: Laboratory-Scale Counter-Current Centrifugal Contactor Demonstration of an Innovative-SANEX Process Using a Water Soluble BTP. *Solvent Extraction and Ion Exchange*, Bd. 33, Nr. 2, S. 91–108, DOI 10.1080/07366299.2014.952532, 2014.
- /WIL 15/ Wilden, A., Modolo, G., Kaufholz, P., Sadowski, F., Lange, S., Munzel, D., Geist, A.: Process Development and Laboratory-scale Demonstration of a regular-SANEX Process Using C5-BPP (2,6-Bis(5-(2,2-dimethylpropyl)-1 H-pyrazol-3-yl)pyridine). *Separation Science and Technology*, Bd. 50, S. 2467–2475, DOI 10.1080/01496395.2015.1061008, 2015.
- /WNA 17/ WNA: World Uranium Mining Production. 2017.
- /WOR 18/ World Nuclear Association (WNA) (Hrsg.): World Uranium Mining Production. Stand vom Juli 2018, erreichbar unter <http://www.world-nuclear.org/information-library/facts-and-figures/uranium-production-figures.aspx>, abgerufen am 20. Februar 2019.
- /X-5 08/ X-5 Monte Carlo Team: MCNP — A General Monte Carlo N-Particle Transport Code, Version 5, Volume I: Overview and Theory, Volume II: User's Guide. Los Alamos National Laboratory, LA-UR-03-1987, LA-CP-03-0245, 416 S., Februar 2008.

Abbildungsverzeichnis

Abb. 2.1	Schematischer Aufbau der für das Störfallszenario postulierten Schleifmaschine	6
Abb. 2.2	Schematischer Ablauf des postulierten Schadenszenarios	11
Abb. 2.3	Abfolge der Einzelereignisse	14
Abb. 2.4	Darstellung des postulierten Ereignisbaums	16
Abb. 2.5	Grobüberblick Ereignisse zur Freisetzung radioaktiver Stoffe in der Sektion Schleifmaschine.....	17
Abb. 2.6	Ereignisse im Bereich der Pellet-Zuförderung des Schleifprozesses.....	18
Abb. 2.7	Verlust mechanischer Integrität von Pellets im Bereich der Abförderung.....	18
Abb. 2.8	Freisetzungen im Bereich des Pellet-Schleifens	19
Abb. 3.1	Kritische Kugelmasse von homogenen Uranylinitrat-Wasser-Systemen	35
Abb. 3.2	Kritisches Kugelvolumen von homogenen Uranylinitrat-Wasser-Systemen	36
Abb. 3.3	Infiniter Multiplikationsfaktor von homogenen Uranylinitrat-Wasser-Systemen	37
Abb. 3.4	Vergleich zwischen neuen (2018) und historischen Daten (1984) der kritischen Kugelmasse und k_{inf} von Uranylinitrat für Anreicherungen von 4, 5 und 10 %.....	40
Abb. 3.5	Urاندichte aller untersuchten Experimente	43
Abb. 3.6	Multiplikationsfaktoren k_{eff} der Serie HST-001.....	51
Abb. 3.7	Multiplikationsfaktoren k_{eff} der Serie HST-003.....	51
Abb. 3.8	Multiplikationsfaktoren k_{eff} der Serie LST-003	52
Abb. 3.9	Multiplikationsfaktoren k_{eff} der Serie LST-004	52
Abb. 3.10	Multiplikationsfaktoren k_{eff} der Serie LST-011	53
Abb. 3.11	Multiplikationsfaktoren k_{eff} der Serie LST-016	53
Abb. 3.12	Berechnete Multiplikationsfaktoren k_{eff} der Serie LST-020	54
Abb. 3.13	Pearson Korrelationsfaktor zwischen allen berechneten Experimenten aufgrund von unsicheren technischen Parametern	55

Abb. 3.14	Pearson Korrelationsfaktor zwischen k_{eff} und den variierten technischen Parametern für alle Experimente der Serie HST-001	56
Abb. 3.15	Korrelation c_k zwischen den Experimenten aufgrund Unsicherheiten der nuklearen Daten, TSUNAMI Rechnungen	57
Abb. 4.1	Ausgewählte Vergleiche der Experimentnachrechnungen mit SCALE 6.1.2 und SCALE 6.2.1 (LCT-Serie 001 und 006).....	71
Abb. 4.2	Ausgewählte Vergleiche der Experimentnachrechnungen mit SCALE 6.1.2 und SCALE 6.2.1 (LCT-Serie 014 sowie LST-Serien 002 und 019)	72
Abb. 4.3	Schematische Darstellung (nicht maßstabsgetreu) des Experiments ALARM-CF-FE-SHIELD-001 /NEA 12/	73
Abb. 4.4	Schematischer Skizze des experimentellen Aufbaus der Experimente von Ueki et al. /UEK 96/.....	74
Abb. 4.5	Mit Monaco der SCALE Version 6.2.2 und verschiedenen Wirkungsquerschnittsbibliotheken errechnete Abschwächungsfaktoren für die Experimentserie von Ueki et al.....	77
Abb. 4.6	Relative Abweichungen der errechnete Abschwächungsfaktoren von deren experimentellen Werten $((C-E)/E)$ der Experimentserie von Ueki et al.	77
Abb. 4.7	Relative Unsicherheiten der errechneten Neutronenflüsse für die Experimentserie von Ueki et al. bei Einsatz verschiedener Varianzreduktionsparametersätze	79
Abb. 4.8	Benötigte Rechenzeiten zur reinen Nachrechnung der Experimentserie von Ueki et al. bei Einsatz verschiedener Varianzreduktionsparametersätze	79
Abb. 4.9	Figure of Merit (FOM) der reinen Nachrechnung der Experimentserie von Ueki et al. bei Einsatz verschiedener Varianzreduktionsparametersätze	80
Abb. 4.10	Konzentration ausgewählter Nuklide für eine bestrahlte Betonprobe	82
Abb. 4.11	Errechnete Neutronenmultiplikationsfaktoren k_{eff} für die Konfigurationen „Single Unit“ und „Infinite Array“ mit frischem Brennstoff	85
Abb. 4.12	Differenzen der errechneten Neutronenmultiplikationsfaktoren gegenüber den MCNP 6-Resultaten für die Konfiguration „Single Unit“	87

Abb. 4.13	Differenzen der errechneten Neutronenmultiplikationsfaktoren gegenüber den MCNP 6-Resultaten für die Konfiguration „Infinite Array“	88
Abb. 4.14	Variation des Neutronenmultiplikationsfaktors aufgrund der Temperaturabhängigkeit einzelner variiertes Einflussgrößen	90
Abb. 5.1	Prozentangaben der weltweit gesicherten Reserven gegliedert nach Lagerstättentyp für einen Uran Weltmarktpreis von jeweils <80 und <130 USD pro Kilogramm (Stand 2015).....	93
Abb. 5.2	Gehalt versus Tonnage Darstellung für einige Uranlagerstättentypen, farblich gegliedert nach Lagerstättentyp. Modifizierte Abbildung aus /KYS 14/	93
Abb. 5.3	Schematische Darstellung der Lokalitäten und des geologischen Umfelds der unterschiedlichen Uranlagerstättentypen.	94
Abb. 5.4	NEA/IAEA-Klassifikation des Uranvorrats nach Kosten- und Ressourcenkategorien /NEA 18/.....	101
Abb. 5.5	Vergleich der Uranfördermenge des Jahres 2007 und 2017 (links); die sechs Länder mit der höchsten Uranfördermenge des Jahres 2017 (rechts)	103
Abb. 5.6	Abfolge der Verarbeitungsschritte bei der Gewinnung von Uran	106
Abb. 5.7	Allgemeines Extraktionsschema zum sauren und basischen Aufschluss von Uran-haltigem Erz	108
Abb. 5.8	Schematische Darstellung Lösungsbergbau /EDW 00/.....	109
Abb. 6.1	Brutreaktion von ^{233}U aus ^{232}Th als Grundlage für den U-Th-Brennstoffkreislauf /PFE 98/	115
Abb. 6.2	Vereinfachtes Fließbild der Juelicher Pilotanlage für Thorium Element Reprocessing (JUPITER) nach /TIS 81/.....	118
Abb. 6.3	Zerfallskette von ^{232}U bis hin zum stabilen ^{208}Pb /PFE 98/	119
Abb. 6.4	Radiotoxizität verschiedener Bestandteile bestrahlten Brennstoffs als Funktion der Abklingzeit /MAG 03/.....	121
Abb. 6.5	Schematische Darstellung der bei der Flüssig-Flüssig-Extraktion ablaufenden Prozesse zur Stofftrennung /GER 14/.....	124
Abb. 6.6	Übersicht über relevante Prozesse der Partitionierung bestrahlter Kernbrennstoffe /MOD 14/.....	125
Abb. 6.7	Vereinfachtes Fließbild des Euro-GANEX-Prozess /TAY 16/	127

Abb. 6.8	Grundfließschema des PUREX-Prozesses /TAY 15a/	128
Abb. 6.9	Grundfließschema des COEX™-Prozesses	129
Abb. 6.10	Chemische Struktur des DMDOHEMA-Moleküls /MIG 07/	130
Abb. 6.11	Grundfließschema des DIAMEX- und TODGA-Prozess.....	131
Abb. 6.12	Chemische Struktur des TODGA-Moleküls /SAS 96/	132
Abb. 6.13	Chemische Struktur des Moleküls CyMe4BTBP wie es im SANEX Prozess verwendet wird /MAG 09b/	133
Abb. 6.14	Grundfließschema des SANEX-Prozesses	134
Abb. 6.15	Grundfließschema des LUCA-Prozesses /MOD 10/.....	135
Abb. 6.16	Grundfließschema des 1-cycle-SANEX-Prozess /MOD 14/	136
Abb. 6.17	Grundfließschema des innovative-SANEX-Prozess /MOD 14/	137
Abb. 6.18	Übersicht über mögliche Konversionsprozesse ausgehend von Urangewinnung und verschiedener Rezyklierungsstrategien	150

Tabellenverzeichnis

Tab. 2.1	Angesetzte Werte der Komponenten bzw. Teilsystemverfügbarkeiten.....	25
Tab. 3.1	Zusammenfassung der relevanten Daten der nachgerechneten Stoffsysteme.....	31
Tab. 3.2	Vergleich der Minima der kritischen Kugelmassen der Neurechnungen bei den verfügbaren Anreicherungen der historischen Kurven	38
Tab. 3.3	Details der behandelten Experimentserien.....	42
Tab. 3.4	Experimentelle Unsicherheiten aufgrund von unsicheren technischen Parametern.....	43
Tab. 3.5	Experimentelle Unsicherheiten aufgrund von unsicheren technischen Parametern	44
Tab. 3.6	Experimentelle Unsicherheiten aufgrund von unsicheren technischen Parametern.....	45
Tab. 3.7	Experimentelle Unsicherheiten aufgrund von unsicheren technischen Parametern.....	45
Tab. 3.8	Experimentelle Unsicherheiten aufgrund von unsicheren technischen Parametern	46
Tab. 3.9	Experimentelle Unsicherheiten aufgrund von unsicheren technischen Parametern	46
Tab. 3.10	Experimentelle Unsicherheiten aufgrund von unsicheren technischen Parametern.....	47
Tab. 3.11	Liste der mit Unsicherheiten behafteten experimentellen Parameter	49
Tab. 3.12	Vergleich der kritischen Parameter für Uranylinitrat ($\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2 \times 6\text{H}_2\text{O}$) in wässriger Lösung mit Wasser-Reflektor	63
Tab. 3.13	Vergleich der kritischen Parameter für Ammoniumdiuranat (ADU, $(\text{NH}_4)_2\text{U}_2\text{O}_7$) in wässriger Lösung mit Wasser-Reflektor	66
Tab. 5.1	Angaben der NEA und IAEA zu den weltweiten Uranressourcen.....	102
Tab. 5.2	Die zehn Uranminen mit der höchsten Produktion 2017	104
Tab. 5.3	Uranfördermenge nach Fördermethode anteilig an der Welturanproduktion des jeweiligen Jahres in %	105

Tab. 6.1	Übersicht über die Ionenradien der für bestrahlten Brennstoff relevanten Lanthaniden nach /MOR 80/.....	123
Tab. 6.2	Übersicht über Ionenradius und Oxidationsstufen ausgewählter Aktinoiden.....	123
Tab. 6.3	Zuordnung der Prozesse zu den jeweiligen Trenn-Problemen /TAY 15a/ /KAU 17/	142

**Gesellschaft für Anlagen-
und 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