

DECKBLATT


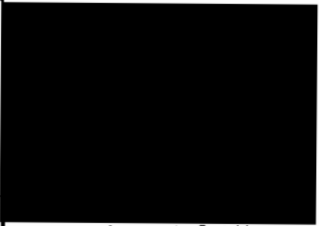
EU 160	Projekt	PSP-Element	Obj. Kenn.	Aufgabe	UA	Lfd. Nr.	Rev.
	N A A N	N N N N N N N N N N	N N N N N N N	X A A X X	A A	N N N N	N N
	9K	33219		EG	RB	0008	00

Titel der Unterlage: Systemanalyse Konrad Teil 3: Ergänzende Kritikalitätsrechnungen zur Massen- und Konzentrationsbegrenzung für spaltbare Radionuklide in Abfallgebinden (GRS-A-1379)	Seite:
	I.
	Stand:
	10/1987

Ersteller:	Textnummer:
GRS	

Stempelfeld:

PSP-Element TP... 9K/21274	zu Plan-Kapitel: 3.7
----------------------------	----------------------

	PL	PL
		
	Freigabe für Bundesamt	Freigabe im Projekt

Diese Unterlage unterliegt samt Inhalt dem Schutz des Urheberrechts sowie der Pflicht zur vertraulichen Behandlung auch bei Beförderung und Vernichtung und darf vom Empfänger nur auftragsbezogen genutzt, vervielfältigt und Dritten zugänglich gemacht werden. Eine andere Verwendung und Weitergabe bedarf der ausdrücklichen Zustimmung der PTB.

Revisionsblatt



	Projekt	PSP-Element	Obj. Kenn.	Aufgabe	UA	Lfd. Nr.	Rev
	N A A N	N N N N N N N N N N	N N N N N N	X A A X X	A A	N N N N	N N
EU 160	9K	33219		EG	RB	0008	00

Titel der Unterlage: Systemanalyse Teil 3: Ergänzende Kritikalitätsrechnungen zur Massen- und Konzentrationsbegrenzung für spaltbare Radionuklide in Abfallgebinden (GRS-A-1379)	Seite: <p style="text-align: center;">II.</p>
	Stand: <p style="text-align: center;">10/1987</p>

Rev.	Revisionsst. Datum	verant. Stelle	Gegenzeichn. Name	rev. Seite	Kat. *)	Erläuterung der Revision

*) Kategorie R = redaktionelle Korrektur
 Kategorie V = verdeutlichende Verbesserung
 Kategorie S = substantielle Änderung
 Mindestens bei der Kategorie S müssen Erläuterungen angegeben werden.



Gesellschaft für Reaktorsicherheit (GRS) mbH

SYSTEMANALYSE KONRAD, TEIL 3
ERGÄNZENDE KRITIKALITÄTSRECHNUNGEN
ZUR MASSEN- UND KONZENTRATIONSBE-
GRENZUNG FÜR SPALTBARE RADIONUKLIDE
IN ABFALLGEBINDEN

GRS-A- 1379

(Oktober 1987)

Auftragsnummer: 41373



Anmerkung:

Dieser Bericht ist von der GRS im Auftrag der Physikalisch-Technischen Bundesanstalt (PTB) erstellt worden. Der Eigentümer behält sich alle Rechte vor.

Insbesondere darf dieser Bericht nur mit Zustimmung des Auftraggebers zitiert, ganz oder teilweise vervielfältigt bzw. Dritten zugänglich gemacht werden.



INHALTSVERZEICHNIS

	Seite
Kurzfassung	3
1. Einführung	4
2. Ergebnisse	5
2.1 Kritikalitätssicherheit in der Nachbetriebsphase	5
2.2 Kritikalitätssicherheit in der Betriebsphase	11
3. Zusammenfassung	14
4. Unterlagenverzeichnis	15
Anhang	16
Verteiler	18

KURZFASSUNG

Ergänzend zu vorliegenden Daten sind Kritikalitätsrechnungen für spaltstoffhaltige Abfälle unter besonderer Berücksichtigung der Radionuklide Uran 233 und Plutonium 241 durchgeführt worden. Unter der hypothetischen Annahme einer selektiven Auslaugung der spaltbaren Radionuklide aus den endgelagerten Abfallgebinden in der Nachbetriebsphase sind kleinste kritische Massen berechnet worden. Unter den Randbedingungen einer oberirdischen Pufferlagerung und Handhabung von Abfallgebinden sind ebenfalls kleinste kritische Massen für verschiedene Radionuklidvektoren berechnet worden. Die Ergebnisse dienen als Grundlage zur Festsetzung von Grenzwerten für Spaltstoffreste in Abfallgebinden.

1. EINFÜHRUNG

In der Schachtanlage KONRAD wird ein Endlager für schwach radioaktive Abfälle errichtet. Da auch spaltstoffhaltige Abfallgebinde zur Einlagerung kommen sollen, ist eine Kritikalitätssicherheitsanalyse durchgeführt worden. Die dabei angewandte Sicherheitsphilosophie beruht darauf, daß weitgehend unabhängig vom unterstellten Störfallszenario die Möglichkeit einer Kritikalität physikalisch ausgeschlossen wird.

Hierzu hat die GRS im Auftrag der Physikalisch-Technischen Bundesanstalt (PTB) Kritikalitätsrechnungen unter vorgegebenen Randbedingungen durchgeführt /GMA 86/. Daraus sind maximal zulässige Werte (Masse und Konzentration) für die thermisch spaltbaren Radionuklide Uran 235 und Plutonium 239 abgeleitet worden. Aufbauend auf diesen Ergebnissen sind die maximal zulässigen Spaltstoffmengen in den Abfallgebinden festgelegt worden /BER 86/.

Die zuständige Genehmigungsbehörde hat nun zusätzlich die Festsetzung von Grenzwerten für die ebenfalls thermisch spaltbaren Radionuklide Uran 233 und Plutonium 241 gefordert. Die dazu durchgeführten Kritikalitätsrechnungen werden im vorliegenden Bericht zusammenfassend dargestellt. Die Vorgehensweise erfolgt in Anlehnung an die bereits durchgeführten Berechnungen, es ist mit derselben Rechenmethode gearbeitet worden /BUC 80/.

Außerdem sind auf Wunsch der PTB ergänzende Kritikalitätsrechnungen zur vorliegenden Sicherheitsanalyse der Nachbetriebsphase /GMA 86/ unter geänderten Randbedingungen durchgeführt worden. Die Ergebnisse hierzu sind im Anhang dokumentiert.

2. ERGEBNISSE

2.1 Kritikalitätssicherheit in der Nachbetriebsphase

Die Nachbetriebsphase beginnt unmittelbar nach Beendigung des Einlagerungsbetriebes und Verschließen des Endlagers. Um den Sicherheitsnachweis unter ungünstigsten Annahmen zu führen, wird von der PTB für diesen Zeitpunkt ein Wassereinbruch mit anschließendem selektiven Auslaugen der Abfallgebinde unterstellt. Ausgehend davon werden dann kleinste kritische Spaltstoffmassen (bei optimaler Moderation, in Kugelgeometrie mit Reflektor) berechnet und die Grenzwerte pro Einlagerungsquerschnitt so festgelegt, daß Kritikalität nicht mehr erreicht werden kann.

Ergänzend zu den bereits festgelegten Grenzwerten sind Kritikalitätsrechnungen für die spaltbaren Radionuklide U 233 und Pu 241 durchgeführt worden. Dabei sind dieselben Randbedingungen eingehalten worden wie bei den Rechnungen zu U 235 und Pu 239 /GMA 86/:

- Homogenes Gemisch aus Schwermetalloxid und Grubenwasser,
- Salzgehalt nach den Analysen der vor Ort genommenen Wasserproben ('Hils'-Wasser) /BRU 84/,
- Kugelgeometrie mit 30 cm dickem Reflektor aus Normalbeton.

Zur Ermittlung der kleinsten kritischen Spaltstoffmasse wird für jedes untersuchte Spaltstoffgemisch in einer Rechenserie das Moderationsverhältnis variiert. Die Rechenergebnisse sind in den nachfolgenden Tabellen wiedergegeben.

Spaltstoff Uran 233

Der Spaltstoff U 233 ist als Urandioxid für ein hochangereichertes (95 % U 233, 5 % U 238) und ein niedrig angereichertes (5 % U 233, 95 % U 238) Radionuklidgemisch untersucht worden. Die Ergebnisse sind in den Tabel-

len 1 und 2 zusammengestellt. Wie daraus ersichtlich ist, liegt der kritische Grenzwert für hochangereichertes U 233 bei 1,16 kg, für U 233 in niedriger Anreicherung bei 4,00 kg.

Tabelle 1:

Kritische Kugelmassen für hochangereichertes U 233 (95 %) ¹⁾ , Hilfs-Wasser, Reflektor 30 cm Normalbeton

Urاندichte in g/cm ³	Moderations- verhältnis H/U	krit. Kugel- volumen l	krit. Masse in kg	
			Uran	U 233
0,06	440	59,26	3,55	3,37
0,08	330	23,30	1,86	1,77
0,10	260	14,56	1,45	1,38
0,15	175	8,15	1,22	1,16
0,20	125	6,13	1,23	1,17
0,30	85	4,60	1,38	1,31
0,50	50	3,60	1,79	1,70
1,0	24	2,89	2,89	2,75
2,0	12	2,45	4,90	4,65
3,0	6	2,23	6,68	6,35
4,0	4	2,08	8,32	7,90

¹⁾ Die Auswahl dieses Anreicherungsgrades erfolgte in Anlehnung an die für U-235 durchgeführten Berechnungen.

Tabelle 2:

Kritische Kugelmassen für niedrig angereichertes U 233 (5 %) ¹⁾, Hilfs-Wasser, Reflektor 30 cm Normalbeton

Urandichte in g/cm ³	Moderations- verhältnis H/U	krit. Kugel- volumen l	krit. Masse in kg	
			Uran	U 233
1,0	24	2125,41	2125,41	106,27
1,5	15	85,38	128,07	6,40
2,0	12	42,78	85,56	4,27
2,25	9	36,22	81,50	4,08
2,50	8	32,01	80,03	4,00
2,75	7	29,97	82,41	4,12
3,0	6	28,20	84,61	4,23
3,5	5	26,97	94,40	4,72
4,	4	27,10	108,40	5,42
5,0	2,5	30,98	154,89	7,74
6,0	1,7	40,02	240,14	12,00

¹⁾ Die Auswahl dieses Anreicherungsgrades erfolgte in Anlehnung an die für U-235 durchgeführten Rechnungen.

Spaltstoff Plutonium 241

Im Rahmen des Genehmigungsverfahrens ist die PTB als Antragstellerin aufgefordert worden, auch für Pu 241 einen Grenzwert festzulegen. Reines Pu 241 weist als Spaltstoff im thermischen Bereich eine kleinere kritische Masse auf als Pu 239. Dies ist für den gegebenen Fall jedoch mehr von theoretischer als von praktischer Bedeutung, da Pu 241 nur durch Isotopentrennung gewonnen werden kann und mit einer Halbwertszeit von 14,4 Jahren wieder zerfällt. Es ist aber in Isotopengemischen in Abfällen der Pu-verarbeitenden Industrie enthalten. Deshalb ist den Kritikalitätsrechnungen neben reinem Pu 241 ein Pu-Vektor zugrundegelegt worden, der den Spezifikationen der Abfallverursacher entspricht /SCH 86/:

1,5 %	Pu 238
58,6 %	Pu 239
23,8 %	Pu 240
11,0 %	Pu 241
4,8 %	Pu 242
0,3 %	Am 241

In einer weiteren Rechenserie ist eine hinsichtlich des Pu 241-Anteils konservative Variante dieses Isotopenvektors gewählt worden:

60,0 %	Pu 239
24,0 %	Pu 240
16,0 %	Pu 241

Für sämtliche Spaltstoffgemische wurde unter den o.g. Randbedingungen die kleinste kritische Kugelmasse ermittelt (Tabellen 3, 4 und 5). Sie beträgt im Fall des ALKEM-Pu-Vektors (69,6 % Pu_{fiss}) 4,53 kg Pu entsprechend 0,50 kg Pu 241, für den konservativen Ansatz (76 % Pu_{fiss}) 3,28 kg Pu resp. 0,52 kg Pu 241 und für reines Pu 241 0,57 kg.

Tabelle 3:

Kritische Kugelmassen für PuO_2 mit 69,6 % Pu_{fiss} , 0,3 % Am 241, Hilfs-
Wasser, Reflektor 30 cm Normalbeton

Pu-Dichte in g/cm^3	Moderations- verhältnis H/Pu	krit. Kugel- volumen l	krit. Masse in kg	
			Pu	Pu 241
0,06	439	161,60	9,69	1,06
0,08	328	68,80	5,50	0,60
0,09	295	55,12	4,96	0,54
0,10	263	46,95	4,69	0,52
0,12	220	37,80	4,53	0,50
0,15	176	31,43	4,71	0,52
0,02	130	27,11	5,42	0,60
0,50	52	22,24	11,12	1,22

Tabelle 4: Kritische Kugelmassen für PuO_2 mit 76 % Pu_{fiss} ,
Hils-Wasser, Reflektor 30 cm Normalbeton

Pu-Dichte in g/cm^3	Moderations- verhältnis H/Pu	krit. Kugel- volumen l	krit. Masse in kg	
			Pu	Pu 241
0,05	540	167,97	8,39	1,34
0,08	328	45,02	3,60	0,57
0,10	263	32,93	3,29	0,53
0,12	220	27,38	3,28	0,52
0,15	176	23,32	3,49	0,55
0,20	130	20,26	4,05	0,64
0,50	52	15,84	7,92	1,26
0,80	31	13,12	10,49	1,68
2,0	11	6,58	13,17	2,10
5,0	3	3,84	14,22	2,27

Tabelle 5:

Kritische Kugelmassen für Pu 241 O₂, Hils-Wasser, Reflektor 30 cm
Normalbeton

Pu-Dichte in g/cm ³	Moderations- verhältnis H/Pu	kritisches Kugelvolumen in l	kritische Masse in kg Pu 241
0,05	540	12,18	0,61
0,06	443	9,77	0,59
0,075	354	7,68	0,57
0,10	263	6,02	0,60
0,15	176	4,64	0,70
0,20	130	4,02	0,80
0,50	52	2,85	1,42

2.2 Kritikalitätssicherheit in der Betriebsphase

Aus den in Abschnitt 2.1 genannten Rechenergebnissen werden Grenzwerte für die Einlagerung von Abfallgebinden bezogen auf den Kammerquerschnitt abgeleitet. Dies bedeutet, daß die zulässige Höchstmenge u.U. auch von einem einzelnen Abfallgebinde ausgeschöpft werden kann, wenn die es umgebenden Abfallgebinde frei von Spaltstoff sind /BER 86/. Da bei der Handhabung und Zwischenlagerung von Abfallgebinden z.T. andere Randbedingungen vorliegen als unter Tage, ist auch für die Betriebsphase des Endlagers Konrad eine Kritikalitätsanalyse durchgeführt worden /GMA 86/. Diese Analyse wird nun um die Radionuklide U 233 und Pu 241 erweitert.

Konzentrationsbegrenzung

Es ist eine generelle Konzentrationsbegrenzung auf 50 g Spaltstoff pro 100 l Abfallvolumen festgesetzt worden. Dieser Wert ist durch Kritikalitätsrechnungen an reinem Pu 239 Oxid abgesichert. Durch diese Rechnun-

gen ist sowohl der Spaltstoff U 233 als auch Plutonium der hier untersuchten Isotopenzusammensetzung (bis 16 % Pu 241) abgedeckt. Höhere Pu 241-Anteile sind nicht zu erwarten. Unterstellt man reines Pu 241 als Spaltstoff, so zeigen die Rechenergebnisse, daß selbst in diesem hypothetischen Fall Kritikalität nicht eintreten kann. Der berechnete Multiplikationsfaktor liegt bei allen untersuchten Verteilungen niedriger als 0,6 (Tabelle 6).

Massenbegrenzung

Als absolute Massenbegrenzung für Spaltstoff in Abfallgebinden ist ein Wert von 45 % der kleinsten kritischen Kugelmasse des jeweiligen Spaltstoffes festgelegt worden. Dieser Sicherheitsstandard wird gefordert, wenn geometrische Form und Moderationsgrad des Spaltstoffsystems nicht zuverlässig festzulegen sind.

Für den Fall, daß in einem Abfallgebäude verschiedene Radionuklide in relevanten Mengen vorliegen, hat die PTB eine Summenformel angegeben /BER 86/, die es z.B. ermöglicht, den aus den Analysen zur thermischen Beeinflussung des Wirtsgesteins abgeleiteten Grenzwert optimal auszuschöpfen. Auf die Kritikalitätssicherheit übertragen bedeutet das, daß die Massen der Einzelnuclide, normiert auf ihre jeweiligen Grenzwerte in der Summe den Wert 1 nicht überschreiten dürfen. Da es für eine derartige flexible Massenbegrenzung in der Kritikalitätssicherheit bisher keine praktischen Erfahrungen gibt, ist die Einhaltung entsprechend großer Sicherheitsabstände erforderlich. Dies wird gewährleistet, wenn die Anteile der Einzelnuclide, normiert auf ihre jeweiligen sicheren Massen (45 % der kleinsten kritischen Kugelmassen) das o.g. Summenkriterium erfüllen. Durch Kritikalitätsrechnungen an verschiedenen Nuklidgemischen ist dies demonstriert worden /GMA 86/.

Für die ergänzend zu untersuchenden spaltbaren Radionuklide bzw. Radionuklidgemische wurden die kleinsten kritischen Kugelmassen bei optimaler Moderation und Reflexion durch Wasser berechnet. Die Ergebnisse sind in der Tabelle 7 zusammengefaßt.

Tabelle 6: Rechenergebnisse zur Konzentrationsbegrenzung von Pu 241 in Abfallgebinden auf 50 g pro 100 l Abfallvolumen: Container Typ III mit 8,7 m³ Volumen, Wandstärke 3 mm Stahl, Wassermoderation

Rechenmodell	$k_{\text{eff}} \pm 1\sigma$
homogene Verteilung, H/Pu = 890 reflektive Randbedingung an drei Seiten	< 0,1
homogene Verteilung, H/Pu = 3700 reflektive Randbedingung an drei Seiten	0,477 ± 0,003
heterogene Verteilung in einzelnen Kugeln zu je 50 g Pu bei optimaler Moderation (H/Pu = 890), dazwischen Wasser der Dichte 1,0	0,578 ± 0,004

Tabelle 7: Kleinste kritische Kugelmassen bei optimaler Moderation und voller Reflexion durch Wasser

Spaltstoff Radionuklidvektor	Schwermetall Dichte in g/cm ³	H/SM	Masse in kg SM
UO ₂ , 100 % U 233	0,05	516	0,53
95 % U 233, 5 % U 238	0,06	440	0,53
5 % U 233, 95 % U 238	1,0	24	22,24
PuO ₂ , 69,6 % Pu _{fiss}	0,06	439	1,10
76,0 % Pu _{fiss}	0,03	884	1,07
100,0 % Pu 241	0,03	884	0,27

3. ZUSAMMENFASSUNG

In Sicherheitsanalysen für die Betriebs- und Nachbetriebsphase im Endlager KONRAD sind unter verschiedenen Randbedingungen Werte für die Spaltstoffmasse in Abfallgebinden berechnet worden, die unter den getroffenen Annahmen Grenzwerte zur Kritikalitätssicherheit darstellen. Ergänzend zu den vorliegenden Daten sind in analoger Weise Kritikalitätsgrenzwerte für die spaltbaren Radionuklide Uran 233 und Plutonium 241 berechnet worden. Als abdeckendes Störfallereignis der Nachbetriebsphase ist das selektive Auslaugen der spaltbaren Radionuklide aus Abfallgebinden und nachfolgend ein Aufkonzentrieren der Spaltstofflösung bis zum optimalen Moderationsverhältnis unterstellt worden. Die Grenzwerte sind so festgesetzt worden, daß für dieses konservative Störfallszenario das Eintreten einer Kritikalität in der Nachbetriebsphase des Endlagers Konrad praktisch nicht mehr möglich. Für Uran 233 sind zwei Anreicherungsgrade (5 % und 95 % U 233) untersucht worden, für Plutonium 241 ist als konservativer Ansatz neben dem reinen Isotop ein Pu-Isotopenvektor mit 16 % Pu 241 und insgesamt 76 % Pu_{fiss} zugrundegelegt worden.

In der Sicherheitsanalyse der Betriebsphase ist für eine Anordnung von 2 x 2 x 2 Containern der effektive Multiplikationsfaktor berechnet worden, wobei für die spaltbaren Radionuklide die maximal zulässige Konzentration von 50 g pro 100 l Abfallvolumen und optimale Moderationsverhältnisse angesetzt worden sind. Die Ergebnisse für k_{eff} liegen deutlich unter 1,0.

4. UNTERLAGENVERZEICHNIS

/BER 86/ H.P. Berg:

Ableitung von Spaltstoffbegrenzungen in Abfallgebinden aus den Analysen zur Kritikalitätssicherheit im Endlager KONRAD,
PTB-SE-IB-6, August 1986

/BRU 84/ H. Brühl:

Migrationsuntersuchungen im Bereich der Schachtanlage
KONRAD, nebst Probenahme,
Institut für angewandte Geologie der FU Berlin, 1. Halb-
jahresbericht 1985

/BUC 80/ J.A. Bucholz:

SCALE: A Modular Code-System for Performing Standardized
Computer Analyses for Licensing Evaluation,
ORNL/NUREG/CSD-2, 1980

/GMA 86/ B. Gmal:

Systemanalyse KONRAD, Teil 3 Kritikalitätsrechnungen zur
Massen- und Konzentrationsbegrenzung für Spaltstoffreste in
Abfallgebinden,
GRS-A-1302, November 1986

/SCH 86/ V.W. Schneider, F.W. Ledebrock:

Behandlung von Abfällen bei der MOX-Brennelemente-Fabri-
kation
in: PTB-SE-8, S.3-18, April 1986

ANHANG

Kritikalitätsrechnungen an einem Halbkugelmodell

Wie bereits dargelegt wurde, ist zur Ermittlung von Massenbegrenzungen für Spaltstoff in Abfallgebinden ein hypothetisches Störfallszenario in der Nachbetriebsphase unterstellt worden /GMA 86/.

Unter der Annahme eines selektiven Auslaugens der Spaltstoffe aus den Abfallgebinden durch eindringende Grubenwässer, sind für homogene Verteilungen von spaltbaren Radionukliden in Salzlösung die kleinsten kritischen Kugelmassen berechnet worden. In den hier dokumentierten Rechnungen ist das konservativ vereinfachende Kugelmodell durch eine Halbkugel ersetzt worden. Dies kommt der Modellvorstellung näher, daß sich während des Auslaugvorgangs entstehende Spaltstofflösung in einer Senke des Kammerbodens ansammelt und (unter Wärmeeinwirkung) aufkonzentriert.

Bezüglich Radionuklidkonzentration und chemischer Zusammensetzung sind dieselben Annahmen getroffen worden, wie in /GMA 86/. Es sind kleinste kritische Massen in Halbkugelgeometrie mit allseitigem Betonreflektor (30 cm dick) bei optimaler Moderation berechnet worden. Die Ergebnisse der Monte-Carlo-Rechnungen sind in der nachfolgenden Tabelle zusammengefaßt:

Radionuklidvektor	Dichte g Pu/l	Halbkugel- radius in cm	$k_{\text{eff}} \pm$	1σ
100 % Pu 239	80	19,0	0,978	0,004
	80	19,5	0,990	0,004
	80	19,8	1,003	0,004
	80	20,0	1,010	0,003
69,6 % Pu _{fiss} ¹⁾ 0,3 % Am 241	80	33,5	0,991	0,004
	80	33,8	0,995	0,002
	100	31,4	1,013	0,003
	100	30,5	1,016	0,004
	100	29,5	0,989	0,004
	120	28,5	1,008	0,004
	120	27,5	1,004	0,004
	120	26,5	0,984	0,004

Nach Interpolation des Halbkugelradius auf den Wert $k_{\text{eff}} = 1,000$ erhält man für die kleinste kritische Masse von reinem Pu 239 einen Wert von 1,28 kg und für das Isotopengemisch mit 69,6 % Pu_{fiss} den Wert 5,23 kg Pu. Der Vergleich mit den entsprechenden Werten, die für eine Vollkugel berechnet worden sind (1,12 kg Pu 239 bzw. 5,10 kg Pu), zeigt, daß sich aus der geänderten Randbedingung keine nennenswerte Erhöhung der Grenzwerte ableiten läßt.

¹⁾ siehe Seite 8