

DECKBLATT

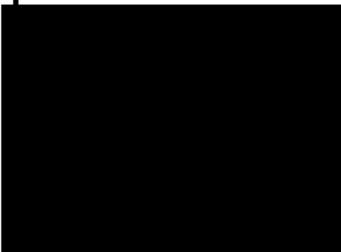
	Projekt	PSP-Element	Obj. Kenn.	Aufgabe	UA	Lfd. Nr.	Rev.
	EU 192	N A A N	N N N N N N N N N N	N N N N N N	X A A X X	A A	N N N N
	9K			EA	RB	0010	00

Titel der Unterlage: Zusätzliche Aspekte zum Nachweis der Kritikalitätssicherheit des geplanten Endlagers Konrad (PTB-SE-IB-39)	Seite: I.
	Stand: 08/1988

Ersteller: PTB	Textnummer:
--------------------------	--------------------

Stempelfeld:

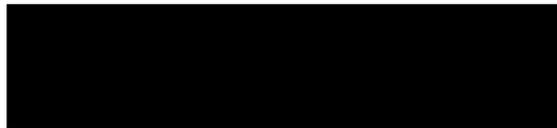
PSP-Element TP...9K/21274	zu Plan-Kapitel: 3.7
---------------------------	----------------------

	PL	PL
		

P H Y S I K A L I S C H - T E C H N I S C H E
B U N D E S A N S T A L T

Abteilung Sicherstellung und Endlagerung radioaktiver Abfälle

I N T E R N E R A R B E I T S B E R I C H T



Zusätzliche Aspekte zum Nachweis der Kritikalitätssicherheit
des geplanten Endlagers Konrad

Braunschweig, August 1988

PTB-SE-IB-39

Inhaltsverzeichnis

	Seite
Zusammenfassung	3
1. Einleitung	4
2. Betrachtung weiterer Radionuklide	5
3. Wahl des Moderators	8
4. Chemische Zusammensetzung der Grubenwässer	9
5. Chemische Zusammensetzung des Gesteins	12
6. Literaturverzeichnis	14

Zusammenfassung

Im vorliegenden Bericht werden zur Abrundung der Aussagen bezüglich der Kritikalitätssicherheit des geplanten Endlagers Konrad Fragen zur chemischen Zusammensetzung der Grubenwässer und des Gesteins sowie zur Wahl des Moderators in den Kritikalitätsrechnungen behandelt. Außerdem wird begründet, weshalb Grenzwerte nur für die im Atomgesetz genannten besonderen spaltbaren Stoffe (U 233, U 235, Pu 239 und Pu 241) abgeleitet worden sind.

1. Einleitung

Im Rahmen eines Fachgesprächs mit dem NMU und dem TÜV Hannover am 14. April 1988 sind noch ein paar Punkte identifiziert worden, die zur Abrundung der Aussagen bezüglich der Kritikalitätssicherheit des geplanten Endlagers Konrad behandelt werden sollen.

Auf der Basis von Kritikalitätsrechnungen /1 - 4/ sind Grenzwerte für die maximal zulässigen Massen an spaltbaren Stoffen pro Abfallgebinde und pro Stapelabschnitt in der Einlagerungskammer abgeleitet worden /5/. Dabei sind die Radionuklide U 233, U 235, Pu 239 und Pu 241 berücksichtigt worden. Über diese Radionuklide hinaus gibt es noch weitere Stoffe, die insbesondere durch schnelle Neutronen spaltbar sind. Auf diese Radionuklide und ihre Bedeutung im Endlager wird in Kap. 1 eingegangen.

Da bei der Ableitung der zulässigen Massen an spaltbaren Stoffen von der chemischen Zusammensetzung der Grubenwässer (Chloridgehalt) Kredit genommen wurde, werden die neuen Meßergebnisse berücksichtigt und bewertet.

Im Rahmen der Betrachtungen zur Kritikalitätssicherheit in der Nachbetriebsphase des geplanten Endlagers Konrad /6/ wird bei der Ermittlung der Konzentration an spaltbaren Stoffen und dem Vergleich mit der kritischen Konzentration von der chemischen Zusammensetzung des umgebenden Gesteins Kredit genommen. Da der Einlagerungshorizont nicht mehr nur der mittlere Korallenoolith ist, sondern auf den gesamten Korallenoolith ausgedehnt wurde, muß geprüft werden, ob sich daraus Änderungen für die getroffenen Aussagen ergeben.

Der vorliegende Bericht ist in Zusammenarbeit zwischen der Physikalisch-Technischen Bundesanstalt, Braunschweig, und der Gesellschaft für Reaktorsicherheit mbH, München, erstellt worden.

2. Betrachtung weiterer Radionuklide

Im geplanten Endlager Konrad können aufgrund der Ergebnisse der Sicherheitsanalysen auch Abfallgebinde eingelagert werden, die Restmengen an spaltbaren Stoffen in fester Form enthalten.

Zu den "besonderen spaltbaren Stoffen" zählen nach dem Atomgesetz /7/ die Radionuklide Pu 239, Pu 241, U 233 und U 235. Für diese Radionuklide sind zulässige Massen pro Abfallgebinde und pro Stapelabschnitt in der Einlagerungskammer abgeleitet worden /5/.

In den Transportbestimmungen für gefährliche Güter /8/ wird darüber hinaus noch das Radionuklid Pu 238 aufgeführt; daneben gibt es noch weitere Radionuklide, die durch thermische und schnelle Neutronen spaltbar sind wie z. B. einige Cm-Isotope /9 - 10/. Auf die Bedeutung dieser Radionuklide für die Kritikalitätssicherheit im geplanten Endlager Konrad wird im folgenden eingegangen.

Aufgrund der vorliegenden Daten über die einzulagernden Abfälle /11/ - die ermittelten Gesamtmassen im Endlager Konrad zu Beginn der Nachbetriebsphase sind in Tabelle 1 aufgeführt - ist nicht zu erwarten, daß einzelne Abfallgebinde höhere spaltbare Aktiniden (im o. g. Sinne) in Mengen und Konzentrationen enthalten werden, für die eine Anreicherung und chemische Abtrennung die Voraussetzung wäre. Nur dann könnten sie in bezug auf Kritikalitätssicherheit von Bedeutung sein.

Zur Festsetzung von Grenzwerten für diese Gruppe spaltbarer Radionuklide werden keine Kritikalitätsrechnungen unter speziellen Randbedingungen durchgeführt. Als Grenzwerte werden die sicheren Massen (die kleinsten kritischen Kugelmassen) der jeweiligen Radionuklide festgesetzt, wie sie in der Norm ANSI/ANS-8.15-1981 des American National Standards Institute /12/ angegeben sind (Tab. 1).

Dabei ist anzumerken, daß die in der ANSI-Norm aufgeführten Radionuklide Cf 249 und Cf 251 nicht in den für das Endlager Konrad vorgesehenen Abfällen vorhanden sind.

Der Vergleich der sicheren Massen pro Abfallgebinde mit den im

Endlager zu erwartenden Gesamtmassen zeigt, daß für alle Radionuklide bis auf Pu 238 die Gesamtmassen (z. T. um mehrere Größenordnungen) unterhalb der in der ANSI-Norm genannten Werte liegen.

Im Fall des Pu 238 beträgt die im Endlager zu erwartende Gesamtmasse rd. 20,5 kg, d.h. das siebenfache der pro Abfallgebinde zulässigen Masse. Berücksichtigt man die Anforderungen, die sich aufgrund der Ergebnisse anderer Teile der Sicherheitsanalysen ergeben, so beträgt die maximal zulässige Aktivität in einem Abfallgebinde $3,1 \cdot 10^{13}$ Bq /13/. Das führt bei einer spezifischen Aktivität von $6,33 \cdot 10^{11}$ Bq/g zu einer maximal zulässigen Masse an Pu 238 von 0,049 kg und liegt damit um einen Faktor 60 unter der in Tab. 1 genannten sicheren Masse.

Wenn keine Prüfung des Einzelfalles erfolgt, begrenzen die in Tabelle 1 aufgeführten Werte die einzulagernde Gesamtmasse des jeweiligen Radionuklides, sofern es in reiner angereicherter Form vorliegt.

Im Hinblick auf Spuren dieser Radionuklide (insbesondere Am 241), wie sie in Abfällen aus der plutoniumverarbeitenden Industrie enthalten sein können, wird auf die durchgeführten Kritikalitätsrechnungen verwiesen /4/.

Hier ist im Fall des ersten untersuchten Plutonium-Vektors in /4/ mit 69,6 % Pu_{fiss} ein Anteil von 0,3 % Am-241 in den Rechnungen berücksichtigt worden.

Radio- nuklid	Thermisches System H ₂ O-Reflektor	Metallkugel Stahlreflektor	Gesamtmasse im Endlager
Np 237	---	20	6,9
Pu 238	---	3	20,5
Am 241	---	16	9,5
Am 242m	0,013	---	$0,047 \cdot 10^{-5}$
Am 243	---	25	$0,13 \cdot 10^{-3}$
Cm 243	0,090	---	$0,037 \cdot 10^{-5}$
Cm 244	---	3	0,735
Cm 245	0,030	---	0,011
Cm 247	0,900	---	$0,032 \cdot 10^{-3}$
Cf 249	0,010	---	nicht vor-
Cf 251	0,005	---	handen

Tab. 1: Vergleich der Werte zur Massenbegrenzung (kleinste kritische Kugelmassen) höherer spaltbarer Aktiniden in isotopenreiner Form /12/ pro Abfallgebinde mit den im Endlager Konrad zu erwartenden Gesamtmassen.

Angaben in kg.

3. Wahl des Moderators

Bei den Rechnungen zur Kritikalitätssicherheit in der Betriebsphase des geplanten Endlagers Konrad ist als Moderator Wasser unterstellt worden. Mit Hilfe dieser Rechnungen ist nachgewiesen worden, daß die festgelegte Massenkonzentration von 50 g an spaltbaren Stoffen pro 100 l Abfallprodukt zu $k_{\infty} < 0,6$ führt. Außerdem beruhen die Anforderungen aus der Betriebsphase an die zulässige Masse spaltbarer Stoffe pro Abfallgebinde auf diesen Rechnungen.

Neben H_2O sind insbesondere D_2O , Beryllium, Berylliumoxid und reines Graphit wichtige Moderatoren.

Diese Stoffe können als Moderatoren und Reflektoren zu kleineren kritischen Konzentrationen bzw. Massen führen als Wasser, da sie niedrigere Absorptionsquerschnitte für thermische Neutronen besitzen.

Nach der gegenwärtigen Planung ist jedoch auszuschließen, daß diese Stoffe zum Entstehen einer kritischen Anordnung im Endlager beitragen können, da sie nicht in ausreichender Menge vorhanden sind. Sollten dennoch größere Mengen ($> 1 \text{ m}^3$ in einem Abfallgebinde) eines dieser Materialien zur Einlagerung kommen, so müßte dies im Einzelfall geprüft werden.

4. Chemische Zusammensetzung der Grubenwässer

Bei den Betrachtungen zur Kritikalitätssicherheit ist eine zu erwartende Vermischung des spaltbaren Materials mit Korrosionsprodukten aus den Abfallgebänden oder dem vor Ort vorhandenen Grubenerz konservativ vernachlässigt worden; lediglich der experimentell bestimmte Salzgehalt des Grubenwassers ist in die Berechnungen eingegangen.

Dazu sind aus den chemischen Analysen in /14/ die Grubenwässer mit einem Cl-Gehalt von 125 000 mg/l und 95 970 mg/l verwendet worden. Für die Ableitung von Anforderungen an die Abfallgebände ist das Hils-Wasser mit dem niedrigeren Chlorgehalt unterstellt worden.

Inzwischen sind weitere umfangreiche Analysen der chemischen Zusammensetzung der Grubenwässer erfolgt, die in einer Reihe von Arbeitsberichten /15 - 18/ dokumentiert und in /19/ zusammenfassend dargestellt sind. Die Tabelle 2 mit den mittleren Werten ist der Unterlage /19/ entnommen.

Der Chlorgehalt variiert dabei zwischen 98 500 mg/l und 205 057 mg/l in den für die Einlagerung relevanten Teilen des Grubengebäudes, der Chlorgehalt ist natürlich in Teufen von z. B. 200 m wesentlich geringer.

In /18/ ist bei einer Messung im Rahmen der Tiefbohrung Konrad 101 ein Chlorgehalt von 94 500 mg/l festgestellt worden, der sich aber im Vergleich mit dem o. g. Wert von 95 970 mg/l in den Berechnungen von k_{∞} nicht bemerkbar macht. Dazu wird in /18/ angemerkt, daß der Chemismus des Wassers aus dem Hils-Sandstein dem Chemismus der in der Schachanlage Konrad auftretenden Tiefgrundwässer relativ gut entspricht; die Tiefgrundwässer sind eher noch höher mineralisiert.

Auch die neuesten Messungen /20/ zeigen, daß der Chlorgehalt an verschiedenen Stellen im Grubengebäude sehr unterschiedlich ist und zwischen 98 000 mg/l und 230 000 mg/l schwankt.

	alle Proben		Ort 300		Ort 410 N		Ort 660 A	
Na	62,7	g/l \pm 8 %	59,0	g/l \pm 2 %	59,0	g/l \pm 1 %	63,5	g/l \pm 5 %
K	0,31	g/l \pm 39 %	0,24	g/l \pm 14 %	0,24	g/l \pm 13 %	0,34	g/l \pm 40 %
Li	0,004	g/l \pm 37 %	0,003	g/l \pm 17 %	0,003	g/l \pm 8 %	0,004	g/l \pm 31 %
Ca	12,3	g/l \pm 19 %	10,6	g/l \pm 5 %	9,93	g/l \pm 2 %	12,8	g/l \pm 11 %
Hg 2	2,48	g/l \pm 16 %	2,12	g/l \pm 5 %	2,08	g/l \pm 5 %	2,6	g/l \pm 6 %
Rb	0,004	g/l \pm 4 %	-		-		-	
Sr	0,381	g/l \pm 26 %	0,388	g/l \pm 28 %	0,536	g/l \pm 7 %	0,358	g/l \pm 18 %
Fe	0,056	g/l \pm 56 %	0,065	g/l \pm 38 %	0,030	g/l \pm 79 %	0,066	g/l \pm 39 %
Cl	128,0	g/l \pm 9 %	117,8	g/l \pm 1 %	118	g/l \pm 1 %	131	g/l \pm 3 %
SO ₄	0,747	g/l \pm 30 %	0,705	g/l \pm 18 %	0,488	g/l \pm 13 %	0,746	g/l \pm 28 %
HCO ₃	0,037	g/l \pm 37 %	0,057	g/l \pm 9 %	0,033	g/l \pm 57 %	0,030	g/l \pm 60 %
BO ₃	0,107	g/l \pm 26 %	0,090	g/l \pm 30 %	0,076	g/l \pm 44 %	0,112	g/l \pm 17 %
I	0,044	g/l \pm 44 %	0,054	g/l \pm 39 %	0,040	g/l \pm 73 %	0,042	g/l \pm 30 %
Br	0,807	g/l \pm 25 %	0,637	g/l \pm 3 %	0,512	g/l \pm 29 %	0,842	g/l \pm 15 %
pH	5,5	\pm 11 %	6,0	\pm 0,4 %	5,9	\pm 8,5 %	5,3	\pm 6,8 %
Eh	197	mV \pm 33 %	102	mV \pm 4,2 %	119	mV \pm 5,9 %	214	mV \pm 28,4 %
Temperatur	41	°C \pm 15 %	42,1	°C \pm 2,5 %	39,2	°C \pm 8,8 %	41,3	°C \pm 15,7 %
Dichte	1,143	kg/l \pm 5 %	1,120	kg/l \pm 0,3 %	1,123	kg/l \pm 8,8 %	1,147	kg/l \pm 6,0 %
Abdampfr.	228	g/l \pm 12 %	210	g/l \pm 1,6 %	211	g/l \pm 1,5 %	234	g/l \pm 2,4 %

Tab. 2: Mittlere Zusammensetzung der Tiefengrundwässer aus der Schachtanlage Konrad nach /19/

Bei den in /20/ ausgewerteten Messungen liefert nur eine chemische Analyse einen geringeren Chlor-Anteil (54 218,09 mg/l) in den Wässern als bei den Kritikalitätsberechnungen unterstellt wurde. Die Stelle, an der diese Wasserprobe entnommen wurde, ist bei der Erkundung des Außenbereichs des Grubengebäudes im Kimmeridge, also oberhalb des Einlagerungshorizontes Korallenoolith, angefahren worden. Diese Wässer sind für die Kritikalitätsrech-

nungen daher nicht zu berücksichtigen, zumal allein aus bergtechnischen Gesichtspunkten zwischen den Einlagerungskammern und der Erkundungsstrecke ein Sicherheitsabstand von mehr als 35 m eingehalten werden muß.

5. Chemische Zusammensetzung des Gesteins

Die Rechnungen in /1/ basieren auf einer bestimmten Materialzusammensetzung des Erzgesteins, die in /21/ aufgeführt ist. Im Rahmen der Betrachtungen zur Kritikalitätssicherheit in der Nachbetriebsphase des geplanten Endlagers Konrad /6/ wird bei der Ermittlung der Konzentration an spaltbaren Stoffen und dem Vergleich mit der kritischen Konzentration von der chemischen Zusammensetzung des umgebenden Gesteins Kredit genommen. Da der Einlagerungshorizont nicht mehr nur der mittlere Korallenoolith ist, sondern auf den gesamten Korallenoolith ausgedehnt wurde, muß geprüft werden, ob sich daraus Änderungen für die getroffenen Aussagen ergeben.

Mineralogische Untersuchungen liegen für ein größeres Spektrum von Gesteinsproben vor, chemische Untersuchungen im wesentlichen für den mittleren Korallenoolith. Die folgenden Betrachtungen stützen sich daher auf die Ergebnisse der Tiefbohrung Konrad 101 /22/, dabei wird der gesamte Korallenoolith in den Teufen zwischen 635,85 m bis 774,0 m zugrunde gelegt. Da die Erzgehalte im mittleren Korallenoolith im Grubengebäude der Schachanlage Konrad deutlich höher sind, als sie in den Tiefbohrungen angetroffen wurden, können im Sinne einer abdeckenden Bewertung die Daten aus der Tiefbohrung verwendet werden.

Die in /1/ angeführten Kritikalitätsrechnungen haben primär orientierenden Charakter. Grenzwerte für den Einlagerungsbetrieb sind unmittelbar daraus nicht abgeleitet worden. In den untersuchten homogen Gemischen sind drei verschiedene Betonsorten und Erzgestein mit 30 % Fe-Gehalt in zwei verschiedenen Dichten zugrunde gelegt worden (vgl. Tabelle 1 in /1/). In diesen Materialgemischen variiert der Massenanteil des Eisens, das hinsichtlich der Neutronenabsorption dominierend ist, zwischen 0 und ca. 50 %.

Damit ist in den Berechnungen der kritischen Pu 239-Konzentration (Abb. 1 und 2 in /1/) eine ausreichende Schwankungsbreite im Fe-Gehalt berücksichtigt, um auch Gemische von Spaltstoff und Erzgestein mit niedrigerem Fe-Gehalt abzudecken, wie er in der Probe 101 mit 8 % Fe₂O₃ gemessen wurde.

Die weiteren vorhandenen Elemente (Si, Ti, Al, Ca) unterscheiden sich hinsichtlich Neutronenabsorption nicht sehr stark, so daß eine Verschiebung der relativen Anteile kritikalitätsmäßig keinen wesentlichen Einfluß hat.

Somit behalten auch die in /6/ gemachten Ausführungen zur Kritikalitätssicherheit in der Nachbetriebsphase ihre Gültigkeit.

6. Literaturverzeichnis

- /1/ Systemanalyse Konrad, Teil 2, Zur Kritikalitätssicherheit im Endlager Konrad, GRS-A-1049, Dezember 1984
- /2/ Systemanalyse Konrad, Teil 2, Zur Kritikalitätssicherheit im Endlager Konrad bei inhomogener Spaltstoffverteilung, GRS-A-1148, Oktober 1985
- /3/ Systemanalyse Konrad, Teil 3, Kritikalitätsrechnungen zur Massen- und Konzentrationsbegrenzung für Spaltstoffreste in Abfallgebinden, GRS-A-1302, November 1986
- /4/ Systemanalyse Konrad, Teil 3, Ergänzende Kritikalitätsrechnungen zur Massen- und Konzentrationsbegrenzung für spaltbare Radionuklide in Abfallgebinden, GRS-A-1379, Oktober 1987
- /5/ H. P. Berg, Ableitung von Spaltstoffbegrenzungen in Abfallgebinden aus den Analysen zur Kritikalitätssicherheit im Endlager Konrad, PTB-SE-IB-6, Braunschweig, August 1986
- /6/ H. P. Berg, Kritikalitätssicherheit in der Nachbetriebsphase des geplanten Endlagers Konrad, PTB-SE-IB-25, Braunschweig, Januar 1988
- /7/ Gesetz über die friedliche Verwendung der Kernenergie und den Schutz gegen ihre Gefahren (Atomgesetz), in: Atomgesetz mit Verordnungen, 8. Auflage, Baden-Baden 1978
- /8/ Ridder, Gefahrgut-Handbuch, Anlage A zur GGVS/zum ADR, 22. Erg. Lfg. 8/85
- /9/ G. Kindleben, Kritikalitätssicherheit, KTG-Seminar Band 3, Köln 1986

- /10/ W. Heinicke, H. Krug, W. Thomas, W. Weber, B. Gmal, Handbuch zur Kritikalität, GRS Garching, Dezember 1985
- /11/ H. P. Berg, S. Fischer, P. Johnsen, Zeitliche Entwicklung der Radionuklidzusammensetzung und Aktivität im Endlager Konrad während der Betriebszeit und der Nachbetriebsphase, PTB-SE-IB-4, Braunschweig, November 1985
- /12/ American National Standard for Nuclear Criticality Control of Special Actinide Elements, ANSI/ANS-8.15-1981
- /13/ F. Piefke, Anforderungen an Abfallgebinde aufgrund der thermischen Beeinflussung des Wirtsgesteins der Schachanlage Konrad, PTB-SE-15, Braunschweig, September 1986
- /14/ H. Brühl, Migrationsuntersuchungen im Bereich der Schachanlage Konrad, nebst Probenahme, Institut für Angewandte Geologie der FU Berlin, I. Halbjahresbericht 1984
- /15/ Gesellschaft für Strahlen- und Umweltforschung, Chemismus tiefer Grundwässer, AP1 Hydrochemische Untersuchungen und Altersdatierungen an tiefen Grundwässern aus den Trüffelrinnen, Braunschweig, 12.02.1986
- /16/ Gesellschaft für Strahlen- und Umweltforschung, Chemismus tiefer Grundwässer, AP3 Hydrochemische Untersuchungen und Altersdatierungen an tiefen Grundwässern aus Pumpensämpfen und Tropfstellen im Grubengebäude, Braunschweig, 01.12.1985
- /17/ Gesellschaft für Strahlen- und Umweltforschung, Chemismus tiefer Grundwässer, AP4 Hydrochemische Untersuchungen und Altersdatierungen an tiefen Grundwässern aus Klüften, Braunschweig, 18.03.1986
- /18/ Gesellschaft für Strahlen- und Umweltforschung, Chemis-

mus tiefer Grundwässer, AP5 Hydrochemische Untersuchungen und Altersdatierungen an tiefen Grundwässern aus der Tiefbohrung Konrad 101, Braunschweig, 29.11.1985

- /19/ Gesellschaft für Strahlen- und Umweltforschung, Chemismus tiefer Grundwässer, AP7 Hydrochemische Untersuchungen und Altersdatierungen an tiefen Grundwässern aus dem Nahbereich der Schachtanlage Konrad, Braunschweig, 14.03.1986
- /20/ GSF, Chemische Analysen und Altersdatierungen tiefer Grundwässer, AP1, Zwischenbericht, Braunschweig, 02.12.1987
- /21/ GSF, Eignungsprüfung der Schachtanlage Konrad für die Endlagerung radioaktiver Abfälle, Bd. I, Braunschweig 1982
- /22/ BGR, Tiefbohrung Konrad 101, Laborbericht, Hannover, 02.08.1985