

MACHBARKEITSSTUDIE ZUR NUTZUNG DES
RADIOISOTOPES ARGON-37 IM RAHMEN DES
VERIFIKATIONSREGIMES DES UMFASSENDEN
KERNWAFFENTESTSTOPP-VERTRAGS

Dissertation

zur Erlangung des Doktorgrades
am Carl Friedrich von Weizsäcker Zentrum für Naturwissenschaft
und Friedensforschung, ZNF
Fachbereich Physik
der Universität Hamburg

vorgelegt von

Anna Christina Heise

aus Seevetal

Hamburg

2019

Gutachter/innen der Dissertation:	Prof. Dr. Gerald Kirchner Prof. Dr. Caren Hagner
Zusammensetzung der Prüfungskommission:	Prof. Dr. Gerald Kirchner Prof. Dr. Caren Hagner Prof. Dr. Daniela Pfannkuche Prof. Dr. Götz Neuneck Dr. Christopher Strobl
Vorsitzende der Prüfungskommission:	Prof. Dr. Daniela Pfannkuche
Datum der Disputation:	10.07.2019
Vorsitzender Fach-Promotionsausschusses Physik:	Prof. Dr. Wolfgang Hansen
Leiter des Fachbereichs Physik:	Prof. Dr. Michael Potthoff
Dekan der Fakultät MIN:	Prof. Dr. Heinrich Graener

Abstract

In order to distinguish emissions from nuclear tests from those of civilian sources, four isotopes of radionuclides are currently being monitored, to detect nuclear tests in violation of the Comprehensive Nuclear-Test-Ban Treaty (CTBT). To improve our capabilities for verifying nuclear tests, the isotope Argon-37 is considered a promising candidate for global measurements.

The aim of this work is to provide a reliable and consistent estimate of the amount of Argon-37 released from nuclear reactors. We discuss our results for a pressurized water reactor and the research reactor FRM II in detail.

Argon-37 can be produced via different mechanisms inside a reactor. Minor quantities of Calcium-40 in different materials can decay to Argon-37 after a neutron capture. Impurities of the fuel itself will lead to a continuous Argon-37 emission only in the case of a leakage from a damaged fuel rod whereas Calcium-40 in the concrete of the biological shielding outside the reactor produces Argon-37 in significant amounts.

Argon-37 can also be produced by the activation of dissolved Argon-36 in the moderator of both a pressurized water reactor and the FRM II. The degassing of the nuclear power plant coolant affects this process and the resulting emissions differ depending on the exact scenario.

The research reactor has a unique geometry where a single fuel element is moderated by heavy water which has constant contact to fresh air. For this reason, activation of Argon-36 in the air of the reactor hall is the main production mechanism. Without any gas retention systems, Argon-37 is directly emitted into the atmosphere at the FRM II.

We used the modeling and simulation code system SCALE to determine the activity concentrations expected inside nuclear reactors, and compare them with experimental data.

Emissions from nuclear facilities are diluted in the atmosphere, so their measurable contribution at global measurement stations is less than the values we estimate at the facility. We find activity concentrations far below the global Argon-37 background for standard operation mode of nuclear reactors but above the global background for short term emission peaks from high pressurized water reactors.

We have been able to evaluate emissions from civilian sources like pressurized water reactors and the FRM II for the first time in this work and give an upper limit of activity concentrations emitted from nuclear reactors. Our results show that Argon-37 emissions of nuclear reactors do not inhibit the detection of nuclear tests in violation of the Comprehensive Nuclear Test Ban Treaty.

Zusammenfassung

Um zweifelsfrei den nuklearen Charakter von unterirdischen Kernwaffentests zu belegen und so Verstöße gegen den Kernwaffenteststoppvertrag nachweisen zu können, werden radioaktive Gase und Partikel in der Atmosphäre gemessen. Bislang standen dafür vier Radioxenon-Isotope im Fokus. Um diese Verifikation zu verbessern, gibt es Überlegungen, auch das radioaktive Edelgasisotop Argon-37 zu überwachen. Entscheidend ist, zuverlässig zwischen Emissionen aus der Explosion eines unterirdischen Tests und Emissionen aus zivilen Anlagen unterscheiden zu können. In dieser Arbeit verfolgen wir das Ziel, zu bestimmen, mit welchen Beiträgen an Argon-37 aus einem Druckwasser- und einem Forschungsreaktor zu rechnen ist.

Argon-37 kann auf unterschiedliche Weise in einem Kernreaktor gebildet werden. Wir berechnen die Aktivitätskonzentrationen mit der Modellierungssoftware SCALE und konzentrieren uns auf die beiden Reaktionen, die innerhalb von Reaktoren in Betracht kommen.

Nach einem Neutroneneinfang von Calcium-40, welches an unterschiedlichen Orten als Materialverunreinigung vorkommen kann, bildet sich über einen Alphazerfall Argon-37. In einem Druckwasserreaktor befindet sich solches Calcium-40 im Beton des biologischen Schildes und in geringen Spuren als Verunreinigung im Brennstoff. Wird Argon-37 innerhalb des Brennstabes gebildet, bleibt es dort zunächst eingeschlossen. Nur bei einem Defekt tritt eine Leckage auf, über die das Gas ins Kühlmittel gelangt und von dort in geringen Konzentrationen abgegeben wird. Aktivierungsreaktionen im Beton außerhalb des Reaktordruckbehälters führen hingegen zu kontinuierlichen Emissionen in relevanten Mengen.

Argon-36 ist als Teil des natürlichen Isotopengemischs von Argon Bestandteil der Luft, die bei Kontakt mit Wasser in Lösung übergeht. Durch einen Neutroneneinfang entsteht Argon-37. Im Druckwasserreaktor wird der im Moderator gelöste Gehalt durch die Kühlmittelentgasung reduziert, und die an die Umwelt abgegebenen Emissionen unterscheiden sich für unterschiedliche Szenarien.

Im Kern des Forschungsreaktors FRM II befindet sich ein Brennelement, welches mit schwerem Wasser moderiert wird. Durch konstanten Kontakt zur Raumluft ist hier besonders die Aktivierung der stabilen Argonisotope in der Reaktorhalle relevant. Neutronen gelangen durch den Moderator in die Luft und das dort erzeugte Argon-37 wird über die Belüftung ohne weitere Verzögerungen an die Umwelt abgegeben.

Zur Überprüfung unserer theoretischen Berechnungen vergleichen wir diese mit Messungen nach einer Probennahme am FRM II. Wir finden die Argon-37 Konzentration in guter Übereinstimmung mit den berechneten Mengen.

Uns ist in dieser Arbeit erstmalig gelungen, die Emissionen für Argon-37 aus unterschiedlichen zivilen kerntechnischen Anlagen abzuschätzen. Durch atmosphärische Ausbreitungsrechnungen konnten wir zeigen, dass sich die Argon-37 Konzentrationen auf Werte unterhalb des globalen Hintergrundes verdünnen. Nur für kurze Emissionsspitzen überschreiten die Aktivitätskonzentrationen sowohl den natürlichen Untergrund als auch die Nachweisgrenze von mobilen Messeinheiten. Damit können wir zum ersten Mal eine Obergrenze für Emissionen aus zivilen Anlagen bestimmen, die bei künftigen Messungen zu Verifikationszwecken eine entscheidende Rolle spielt. Insbesondere zeigen unsere Ergebnisse, dass Argon-37 aus Kernreaktoren den Nachweis nuklearer Tests nicht behindert und somit ein nützliches Werkzeug zur Kontrolle des nuklearen Teststoppvertrags sein kann.

Dem Leser zum Geleit:

knowing – doing – sharing¹

Ich möchte meinem Leser einen Gedanken mit auf den Weg geben, bevor sie oder er sich auf den Weg durch die beschriebenen Seiten dieses Werkes macht. Für mich ist es das Ergebnis jahrelanger Arbeit und mir ist wichtig, die Ergebnisse nicht nur festzuhalten und darzustellen, sondern auch an andere weiterzugeben, damit es ihnen nützt. Was man gelernt hat, muss man teilen. Daher habe ich mich entschieden, dieses Werk so freundlich, verständlich und warm wie nur möglich zu schreiben. Denn mit Freude lernt es sich bekanntlich am besten.

Möge diese Arbeit für jemanden von Nutzen sein.

Ich widme dieses Werk meinem Leser.

¹Chinesische Weisheit aus dem kung-fu, frei nach Yè Wèn

Inhaltsverzeichnis

1. Verifikation von Kernwaffentests	9
1.1. Der Umfassende Test-Stopp Vertrag	10
1.2. Nachweismethoden	10
1.3. Xenon und seine Rolle im Verifikationsregime	11
1.4. Unterirdische Kernwaffentests bis 2018	12
1.5. Argon und seine Rolle im Verifikationsregime	13
1.6. Chancen und Limitierungen	13
2. Theoretische Grundlagen	15
2.1. Aufbau von Atomkernen	15
2.2. Neutronen im Kernreaktor	17
2.3. Wirkungsquerschnitte	21
2.4. Moderation der Neutronen	23
2.5. Neutronentransport	25
2.6. Das Simulationsprogramm SCALE	27
3. Argon	35
3.1. Entstehung von Argon-37	35
3.1.1. Globaler Hintergrund	39
3.2. Zerfall und Messung von Argon-37	39
4. Einordnung in den aktuellen Stand der Forschung	41
4.1. Argon aus Kernkraftwerken	42
4.2. Argon aus Forschungsreaktoren	43
5. Argon-37 im Druckwasserreaktor	47
5.1. Brennstoff	48
5.2. Reaktorkern	49
5.3. Betriebszustände	50
5.4. Modellerstellung	51
5.5. Argon-37 als Spaltprodukt	53
5.6. Argon-36 im Kühlmittel	54
5.6.1. Bestimmung der Löslichkeit	54
5.6.2. Ergebnisse der Modellrechnungen zur Aktivierung des Kühlmittels	56
5.7. Calcium im Brennstoff	58
5.8. Calcium im Hüllrohr	59
5.9. Variation der Eingabewerte	60

5.10. Zusammenfassender Überblick über die Ergebnisse zum Druckwasserreaktor	63
6. Argon-37 im FRM II	65
6.1. Brennstoff	65
6.2. Reaktorkern	67
6.3. Modellkonstruktion	68
6.4. Argon-37 aus einer Calcium-40 Verunreinigung	70
6.4.1. Calcium-40 im Brennstoff	70
6.4.2. Calcium-40 im Aluminium	71
6.5. Argon-36 im Moderator	72
6.6. Diffusion von Argon-37 im Moderator	73
6.6.1. Blasenbildung	74
6.7. Aktivierung der Raumluft	75
6.7.1. Das 3D-Modell	75
6.7.2. Neutronenflussdichte	77
6.7.3. Berechnung der durch Aktivierung erzeugten Menge Argon-37	78
6.8. Vergleich mit Messwerten	80
6.9. Zusammenfassender Überblick über die Ergebnisse zum FRM II	82
7. Tatsächliche Emissionen von Argon-37 in die Atmosphäre	83
7.1. Verzögerungsstrecken im Druckwasserreaktor	83
7.2. Kühlmittelentgasung im Druckwasserreaktor	86
7.2.1. Diskussion der Emissionen aus dem Kühlmittel	90
7.3. Emissionen aus Aktivierungsprozessen außerhalb des Reaktorkerns	92
7.4. Diskussion der Ergebnisse aus dem Druckwasserreaktor und Vergleich mit Messwerten	95
7.5. Emissionen aus dem FRM II	97
7.6. Atmosphärische Verdünnung der Emissionen aus zivilen Anlagen	100
7.7. Zusammenfassender Überblick über die Emissionen aus einem Druckwasser- und Forschungsreaktor	104
8. Abschließende Zusammenfassung und Ausblick	105
8.1. Ausblick	107
A. Anhang	113

1. Verifikation von Kernwaffentests

*Three-bladed missile
Piercing to the sky -
Vroom,
Bang Bang!
It leaves the ground.
It is the manifestation of hatred
For the whole earth,
Hatred for this whole solar system.*
Chögyam Trungpa, 17. Dezember 1969

Kernwaffen gehören zu den gefährlichsten Waffen, über die die Menschheit zur Zeit verfügt. Ihr Zerstörungspotential ist immens. Man muss sich dies immer neu vor Augen führen, denn auch, wenn die Technologie seit Jahrzehnten besteht, hat sie nichts von ihrem Zerstörungspotential eingebüßt. Aus diesem Grund ist es unabdingbar alles daranzusetzen, dass sich das Wissen über diese Waffen nicht weiter verbreitet. Darüber hinaus müssen Anstrengungen unternommen werden, nicht nur das Wissen über die Konstruktion einzudämmen, sondern auch den Test solcher Waffen zu ächten. Dafür ist es essentiell, genaue Kenntnisse davon zu erhalten, wenn ein Staat Kernwaffentests (im Geheimen) betreibt.

Die internationale Gemeinschaft hat zum Zweck der lückenlosen Überwachung von Kernwaffentests den *Umfassenden Test-Stopp Vertrag* aufgesetzt, in dessen Zuge ein globales Überwachungssystem geschaffen wurde.

Wir möchten in dieser Arbeit das Ziel, Kernwaffentests zweifelsfrei identifizieren zu können, weiter voran bringen. Im Mittelpunkt steht dabei das radioaktive Isotop Argon-37. Bei einem unterirdischen Kernwaffentest entsteht es durch die Reaktion von Spaltneutronen mit Calcium-Atomen in der Erde. Als Edelgas kann es bis an die Oberfläche und von dort in die Atmosphäre gelangen. Bislang wurden Übungen durchgeführt, bei denen im vermuteten Gelände um den Testort Gasproben genommen und auf den Gehalt an Argon-37 untersucht wurden.

Seit der Erfindung von Kernwaffen gab es Tausende von Tests. Auf internationaler Ebene wurden Anstrengungen unternommen, die Durchführung von Kernwaffentests und die dadurch entstehende Belastung für Mensch und Umwelt einzudämmen. Zu diesem Zweck wurde der teilweise Test Stopp-Vertrag geschaffen (1963), der Tests in der Atmosphäre, dem Weltraum und unter Wasser verbietet.

1.1. Der Umfassende Test-Stopp Vertrag

Der Umfassende Test-Stopp Vertrag (im Englischen „*Comprehensive Test Ban Treaty*“ CTBT) wurde am 15. September 1996 zur Unterschrift ausgelegt. Bis zur Fertigstellung dieser Arbeit haben 183 Staaten den Vertrag unterschrieben und 166 davon ihn auch ratifiziert. Insgesamt haben 13 Staaten den Vertrag weder unterschrieben noch ratifiziert. Um in Kraft zu treten, werden Unterschriften von 40 Staaten benötigt, die im Zusatz 2 des Vertrages spezifiziert sind. Drei dieser Staaten haben weder unterschrieben noch ratifiziert (Indien, Pakistan, Nordkorea). Bei fünf weitere Staaten steht die Ratifizierung noch aus (Israel, USA, China, Iran, Ägypten).

Der Vertrag wird von der Vorbereitenden Kommission (im Englischen „*Comprehensive Test Ban Treaty Preparatory Commission*“, CTBTO) verwaltet und untersagt alle Arten von Atomwaffentests. Diese sind Unterwassertests, atmosphärische Tests und unterirdische Kernwaffentests. Seit 1980 gab es keinen atmosphärischen Test (Eslinger u. a., 2015). In den letzten Jahrzehnten wurden ausschließlich unterirdische Kernwaffentests durchgeführt, die daher auch der Bezugspunkt dieser Arbeit sind.

1.2. Nachweismethoden

Bei einer nuklearen Explosion werden Teilchen und Energie frei gesetzt, die auf unterschiedliche Weise detektiert werden können. Die CTBTO hat ein globales Überwachungssystem eingesetzt, um mit unterschiedlichen Messstationen diese Explosion zu detektieren.

Seismik, Hydroakustik und Infraschall

Mit seismischen Arrays, die über den Globus verteilt sind, können die Erschütterungen im Erdreich, die als Folge der Explosion entstehen, nachgewiesen werden. Aus der Zeitdifferenz der Signale kann das Ereignis mit hoher Genauigkeit lokalisiert werden. Außerdem ist es möglich, durch die Natur der Wellen zwischen einer Explosion und einem natürlich auftretenden Erdbeben zu unterscheiden. Ebenso lassen sich die Wellen in Wasser (Hydroakustik) und Luft (Infraschall) nachweisen. Aufgrund der höheren Leitfähigkeit von Schallwellen in Wasser sind hier deutlich weniger Messstationen notwendig.

Radionuklide

Im Zuge der Explosion werden eine Vielzahl an radioaktiven Spalt- und Zerfallsprodukten erzeugt. Durch Risse im Erdreich können sie an die Oberfläche gelangen. Nur durch Messung dieser Radionuklide ist es möglich, *zweifelsfrei* den nuklearen Charakter der Explosion nachzuweisen. Während die Detektion der Schallwellen äußerst schnell geschieht, kann es Wochen dauern, bis eine Luftströmung mit radioaktiven Partikeln aus

der Quellregion an einer Messstation nachgewiesen wird. Das globale Überwachungssystem verfügt zu diesem Zweck über 80 Stationen, die auf der Welt verteilt sind, die Radionuklide nachweisen können. Davon sind 40 Stationen ausgerüstet, zusätzlich auch Edelgase detektieren zu können.

Edelgase

Edelgase, die bei einem Kernwaffentest erzeugt werden, können besonders leicht aus der unterirdischen Testeinrichtung entweichen, da sie chemisch inert sind. Luftströmungen transportieren sie weite Strecken, da die chemisch wenig reaktiven Edelgase deutlich seltener durch Kondensationsprozesse verloren gehen als andere Radionuklide, was ihre Detektion auch in größeren Entfernungen ermöglicht. Wichtig ist, dass es nicht nur möglich ist, die Gase zu detektieren, sondern zwischen Emissionen aus Kernwaffentests auf der einen und solchen aus zivilen Anlagen auf der anderen Seite zu unterscheiden. Aufgrund ihrer physikalischen Eigenschaften werden dafür im globalen Überwachungssystem vier Xenon-Isotope gemessen. Ihr Verhältnis zueinander erlaubt eine Unterscheidung von Kernwaffentest und zivilen Emittenten.

Ausbreitungsrechnungen

Das Verbindungsstück zwischen der Detektion des radioaktiven Isotops an der Messstation und ihrer Quellregion ist der Transport in der Atmosphäre. Ausbreitungsrechnungen liefern die theoretische Grundlage, auf der eine konkrete Zuordnung der Emissionen getroffen werden kann. Das Internationale Daten-Zentrum (im Englischen „*International Data Center*“, IDC) verwendet ein Lagrangsches Teilchen Dispersions Model mit dem Namen FLEXPART um aufgrund der vorliegenden meteorologischen Daten die Quellregion bestimmen zu können (Stohl u. a., 2005).

1.3. Xenon und seine Rolle im Verifikationsregime

Der natürlich vorkommende Beitrag an Xenon besteht aus sieben stabilen und zwei radioaktiven Isotopen mit langen Halbwertszeiten. In der Atmosphäre sind etwa 0,087 ppm stabiles Xenon enthalten. Darüber hinaus wurden bis heute 34 weitere Isotope mit Halbwertszeiten über 0,1 Sekunden gefunden. Etwa die Hälfte davon entstehen als Spaltprodukte aus der Spaltung schwerer Kerne wie zum Beispiel Uran-235 (Atwood, 2013). Der größte Teil an Radioxenon ist anthropogen erzeugt. Mögliche Quellen sind Kernkraftwerke, Forschungsreaktoren, medizinische Isotopenfabriken und Kernwaffentests. Der Isotopenvektor der genannten Einrichtungen unterscheidet sich in der Zusammensetzung, so dass es möglich wird, anhand der Verhältnisse der Xenon-Isotope zueinander eine Aussage über die Quelle zu treffen. Eine differenzierte Betrachtung für Xenon findet sich bei Kalinowski u. a. (2010).

1.4. Unterirdische Kernwaffentests bis 2018

In den Jahren 2006, 2009, 2013, 2016 und 2017 hat die Demokratische Volksrepublik Korea mehrere unterirdische Kernwaffentests durchgeführt. Alle Tests wurden angekündigt und konnten mit dem internationalen Überwachungssystem detektiert werden. Seismische Messungen konnten den Ort der Explosion mit einer Genauigkeit von einigen Kilometern auf die nordkoreanische Test-Einrichtung Punggye-ri eingrenzen. Die absolute Sprengkraft eines Tests abzuschätzen ist ohne genaue Kenntnisse der Bodenbeschaffenheit um die Testanlage schwierig. Allerdings war die Detonation im Zuge des letzten Tests so stark, dass diese nicht mehr durch eine chemische Explosion erreicht werden kann. Da eine Untersuchung vor Ort unmöglich ist, bleibt allein der Nachweis von radioaktiven Xenon-Isotopen durch das globale Überwachungssystem zur eindeutigen Verifikation.

Xenon-Emission nach nordkoreanischen Kernwaffentests

Oktober 2006: Strategisch wichtig gelegene Stationen waren zu dem Zeitpunkt nicht in Betrieb, weshalb erst 12 Tage nach der Explosion eine Konzentration von $0,7 \text{ mBq/m}^3$ für Xenon-133 an der Station CAX16 bei Yellowknife gemessen werden konnte. Die Untersuchung der lokalen Windverhältnisse ergab, dass die Emissionen nicht durch eine nahegelegene medizinische Isotopenfabrik verursacht sein können, obwohl die Konzentration in einer ähnlichen Größenordnung lag (Saey u. a., 2007). Analysen von zusätzlich genommenen Messungen vor der nordkoreanischen Grenze ergaben ein Isotopen-Verhältnis, das eindeutig nicht aus einem zivilen Kernreaktor stammte (Kalinowski u. a., 2010).

Mai 2009: Obwohl das Messsystem zu diesem Zeitpunkt deutlich besser ausgebaut und die meteorologischen Bedingungen gut waren, konnten keine radioaktiven Isotope nachgewiesen werden. Grund dafür ist wohl weniger ein Versagen der Überwachung als eine gelungene Rückhaltung am Testort (Pilger u. a., 2017).

Februar 2013: Einige Tage nach der Explosion wurden bei einer japanischen Messstation geringe Konzentrationen an Xenon-133 gemessen, die allerdings als Emissionen aus einer Isotopen-Fabrik identifiziert werden konnten. Erst beinahe zwei Monate später konnten an zwei Messstationen Werte für Xenon-133 und Xenon-131m festgestellt werden, die auf den Kernwaffentest zurückführbar waren (Pilger u. a., 2017).

Januar 2016, September 2016 und September 2017: Es konnten keine signifikanten Mengen an Radioxenon nachgewiesen werden. Nach dem letzten Test berichteten nordkoreanische Medien vom Test einer Wasserstoffbombe. Keine Messstation des Überwachungsnetzwerkes konnte Xenon-Emissionen nachweisen, obwohl es teilweise nach den Tests weitere Erschütterungen gab, die zu einer Freisetzung hätten führen können. Allerdings hätte man alleine anhand der Xenon-Isotope keine Aussage über den Typ der Kernwaffe machen können. In diesem Zusammenhang wurden Überlegungen angestellt, dass das Verhältnis von Argon-37 zu Xenon zur Unterscheidbarkeit zwischen

Spalt- und Fusions-Bomben herangezogen werden könne, da möglicherweise mehr Argon-37 in der Erde durch höheren Neutronenfluss bei einer Fusionsreaktion entsteht (Pilger u. a., 2017).

1.5. Argon und seine Rolle im Verifikationsregime

Die Verifikationsmethoden der CTBTO sehen neben der globalen Überwachung durch das internationale Messnetz auch eine mögliche Vor-Ort-Inspektion vor. In Hinblick auf die Messung von radioaktiven Gasproben steht dabei das Isotop Argon-37 im Fokus. Es entsteht nicht direkt als Spaltprodukt wie die Xenon-Isotope, sondern wird hauptsächlich über den Neutroneneinfang von Calcium-40 im Boden gebildet. Da Argon-37 mit etwa 35 Tagen eine längere Halbwertszeit hat als die kurzlebigen Xenon-Isotope, ist es gerade dann ein guter Indikator, wenn Messungen aufgrund von verzögerten Freisetzungen erst einige Zeit nach der Explosion erfolgen. Nach mehr als 50 Tagen sollte die Signatur von Argon-37 stärker als die der Xenon-Isotope sein (Aalseth u. a., 2011). Die Messung der radioaktiven Edelgase in Boden-Gas-Proben unterscheidet sich allerdings von den Messungen mit dem internationalen Überwachungsnetz, da in den Boden-Proben deutlich höhere Aktivitäten zu erwarten sind. Gerade für Argon-37 ist das entscheidend, da der Nachweis bei geringen Konzentrationen eine messtechnische Herausforderung ist (wie wir in Kapitel 3 diskutieren werden). Bislang wurde Argon-37 aus diesem Grund im Rahmen der Vor-Ort-Messung als Indikator favorisiert und nicht im globalen Überwachungsnetz.

1.6. Chancen und Limitierungen

Wir haben in den voran gegangenen Abschnitten gesehen, wie zur Zeit nukleare Explosionen detektiert und verifiziert werden können. Das etablierte Überwachungssystem stößt dabei bisweilen an seine Grenzen: Bislang werden global vier Xenon-Isotope überwacht, deren Verhältnis Aufschluss gibt, ob es sich um Emissionen aus einer zivilen Anlage oder einer nuklearen Explosion handelt. Bis heute ist nie eine Messung aller vier Isotope nach einem unterirdischen Kernwaffentest gelungen. Eine Vor-Ort-Inspektion rückt erst mit Ende des Moratoriums des Test Stopp Vertrages in den Handlungsrahmen. Vorher sind Bodenproben von radioaktivem Argon-37 keine Möglichkeit der Verifikation. In diesen Proben wäre die Aktivitätskonzentration ausreichend hoch, um mit mobilen Messeinheiten nachgewiesen zu werden. Aufgrund der geringen spezifischen Aktivität und den daraus resultierenden Herausforderungen bei Messungen von Argon-37 wird es bislang nicht im Kontext des globalen Überwachungssystems verwendet. (Vergleiche dazu auch Kapitel 3). Obwohl also ein globales Überwachungssystem etabliert wurde, hat die CTBTO weiterhin Interesse daran, die bestehenden Verifikations-Mechanismen zu erweitern und zu ergänzen. Wir werden in den nächsten Abschnitten dieser Arbeit untersuchen, ob es möglich ist, Argon-37 auch im Kontext des globalen Messnetzes zu detektieren. Zu diesem Zweck untersuchen wir, welche Beiträge an Argon-37

aus zivilen Quellen zu erwarten sind. Zunächst werden wir die physikalischen Grundlagen legen, die für die Entstehung von Argon-37 in zivilen kerntechnischen Anlagen relevant sind. Wir werden auch das Isotop selbst betrachten – wie es in der Umwelt entsteht und wie es gemessen werden kann. Anschließend werden wir die Ergebnisse dieser Arbeit diskutieren und sehen, welche Beiträge in einem Druckwasserreaktor und einem Forschungsreaktor über unterschiedliche Produktionspfade zu erwarten sind. Im abschließenden Kapitel geht es schließlich darum, mit welchen Emissionen aus zivilen Anlagen zu rechnen ist.

2. Theoretische Grundlagen

I...a universe of atoms, an atom in the universe
Richard P. Feynman

Ziel dieser Arbeit ist es, die Emissionen aus zivilen kerntechnischen Anlagen abzuschätzen. Dafür müssen wir verstehen, was physikalisch im Inneren von Kernreaktoren geschieht und welche Prozesse relevant sind. In diesem Kapitel wollen wir uns den physikalischen Grundlagen widmen, auf die die folgenden Kapitel aufbauen. Wir werden sehen, welche kernphysikalischen Mechanismen bestimmend sind, mit welchen Gleichungen sie dargestellt werden können und welches Vorgehen sich daraus ergibt.

Die Kernphysik spielt eine wesentliche Rolle, wenn wir verstehen wollen, warum sich Teilchen so verhalten, wie wir es im Reaktor beobachten. Wir werden mit dem Aufbau von Atomkernen beginnen und anschließend detaillierter diskutieren, wie Neutronen im Reaktor entstehen und reagieren. Im letzten Teil werden wir das Simulationsprogramm SCALE beschreiben, mit dem wir die zur Interpretation nötigen Modellrechnungen numerisch durchgeführt haben.

2.1. Aufbau von Atomkernen

Ein Atomkern besteht aus Nukleonen, die durch die Kernkräfte und ihre Austauschteilchen zusammengehalten werden. Für große Zahlen an Nukleonen wird es energetisch günstiger, mehr Neutronen im Kern einzubinden, da die starke Kraft eine geringe Reichweite hat und ab einer gewissen räumlichen Ausdehnung des Kerns die Abstoßung der Coulomb-Kraft zwischen den Protonen überwiegt. Für manche Konfigurationen ist es es auch energetisch günstiger, Nukleonen abzugeben oder umzuwandeln: Der Kern zerfällt.

Bindungsenergie

Um einen Atomkern in seine Nukleonen zu zerlegen, muss man die anziehenden Kernkräfte überwinden. Diese Energie wird als Bindungsenergie bezeichnet und oft pro Nukleon angegeben. Der gebundene Zustand ist dabei für die Nukleonen günstiger und gemäß der Masse-Energie-Äquivalenz entspricht der Unterschied der Bindungsenergie einer Massendifferenz zwischen der Kernmasse und der Summe der Nukleonenmassen, die als Massendefekt bezeichnet wird.

Die Bindungsenergie pro Nukleon unterscheidet sich für alle Elemente und Isotope. Für leichte Kerne steigt sie mit zunehmender Massenzahl tendenziell zunächst an, erreicht

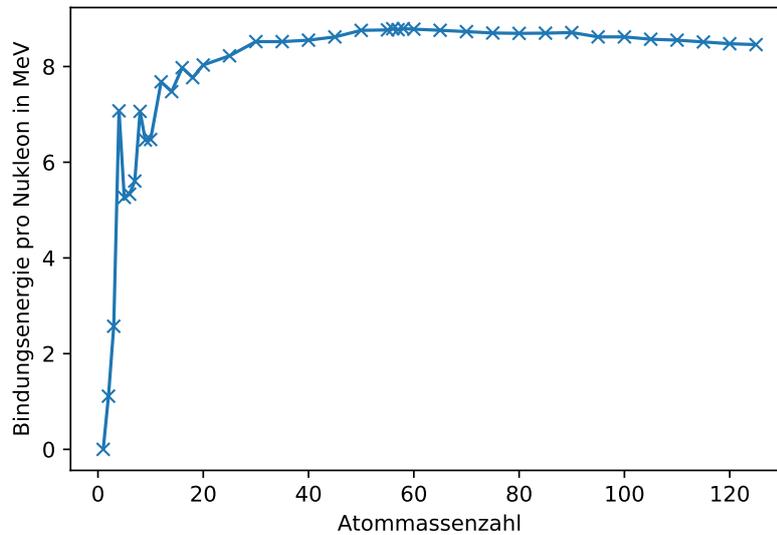


Abbildung 2.1.: Bindungsenergie pro Nukleon für unterschiedliche Elemente in Abhängigkeit von der Atommassenzahl. Die für den Verlauf der Darstellung relevanten Isotope wurden hervorgehoben (Kreuz). Es wurden experimentell bestimmte Werte verwendet (KAERI).

bei Nickel ein Maximum und fällt für schwerere Kerne langsam ab (Demtröder, 2014). Dieser Verlauf ist in Abbildung 2.1 dargestellt.

Dies lässt sich verstehen, wenn man den Atomkern entsprechend seiner homogenen Dichte analog zu einem Flüssigkeitstropfen mit der Bethe-Weizsäcker-Formel beschreibt. Bei diesem Modell wird die Wechselwirkung zwischen Nukleonen durch verschiedene Terme beschrieben, die eine unterschiedliche Abstandsabhängigkeit haben und daher mit zunehmender Nukleonenzahl verschieden starken Einfluss haben. Kerne sind dann besonders stabil, wenn sie abgeschlossene Schalen aufweisen (Pauli-Prinzip) und für große Nukleonenzahlen immer schwächer gebunden, da die elektromagnetische Abstoßung dominiert (Demtröder, 2014).

Radioaktiver Zerfall von Atomkernen

Nur wenige der heute bekannten Atomkerne befinden sich in einem stabilen Grundzustand. Für viele ist es energetisch günstiger unter Aussendung von ionisierender Strahlung ihre Nukleonenkonfiguration zu verändern. Die Änderung der Teilchendichte N mit der Zeit t entspricht der Aktivität A . Sie kann über die Halbwertszeit t_H , beziehungsweise die Zerfallskonstante λ beschrieben werden:

$$A = -\frac{dN}{dt} = \lambda \cdot N = \frac{\ln(2)}{t_H} \cdot N \quad (2.1)$$

Atomkerne, die insgesamt zu viele Nukleonen im Kern haben, zerfallen bevorzugt unter Aussenden eines Alphateilchens. Gibt es allerdings einen Überschuss an Neutronen oder Protonen, der abgebaut werden muss, wird der Kern ein solches Teilchen in ein Proton bzw. Neutron umwandeln und dabei ein Elektron oder Positron aussenden. Bei dieser Reaktion wird zusätzlich auch ein Neutrino (oder Antineutrino, gemäß den Erhaltungssätzen) frei, welches Energie erhält. Aus diesem Grund ist das Spektrum der β -Strahlung kontinuierlich und nicht diskret wie das der α -Strahlung. Ein Überschuss an Protonen kann auch über einen Elektroneneinfang ausgeglichen werden. Dabei wandeln sich ein Proton und ein Elektron aus der Atomhülle zu einem Neutron im Kern.

2.2. Neutronen im Kernreaktor

In den weiteren Kapiteln dieser Arbeit werden wir uns – gedanklich – meist im Inneren von Kernreaktoren aufhalten. Die Protagonisten der Reaktorphysik sind Neutronen. Uns beschäftigt ihre Entstehung, ihre Energien und vor allem die Wechselwirkungen, die sie mit der sie umgebenden Welt eingehen. Wir werden hier die physikalischen Prozesse besprechen, die das komplexe Zusammenspiel im Reaktorrinneren beschreiben.

Kernspaltung

Bei einer Kernspaltung teilt sich ein schwerer Ausgangskern in mehrere kleinere Spaltprodukte. Diese Spaltprodukte können ganz unterschiedliche Teilchen sein; zum einen sind es Spaltfragmente: kleinere Kerne, deren Bildungswahrscheinlichkeit von der Spaltausbeute beschrieben wird. Dazu kommen Neutronen, die in unterschiedlicher Zahl und kinetischer Energie emittiert werden.

Die im Reaktor entstehenden Tochterkerne haben eine höhere Bindungsenergie pro Nukleon als der größere Ausgangskern. Durch den Massendefekt wird die Energiedifferenz freigesetzt und die Gesamtmasse ist nach der Spaltung niedriger als zuvor. Dieses Prinzip ist nicht für alle Atomkerne gleich, erst ab einer Massenzahl von etwa 100 ist eine Spontanspaltung energetisch möglich. Um große Kerne zu spalten braucht es (oft) eine gewisse Aktivierungsenergie, die der Höhe des Coulombwalls entspricht, den die Protonen durch die elektromagnetische Kraft erfahren. (Um Neutronen aus dem Kern zu lösen muss lediglich die Bindungsenergie der am schwächsten Gebundenen aufgewendet werden). Je größer der Ausgangskern, desto niedriger ist der Wall, auf Grund der Abstandsabhängigkeit der Coulomb-Kraft.

Neutronen-induzierte Spaltung

Für die Spaltung von Kernen mit einer ungeraden Anzahl an Neutronen wie Uran-235 braucht das Neutron, das vom Kern eingefangen wird kaum kinetische Energie. Durch den Einfang wird ein Kern mit gerader Neutronen- und Protonenzahl gebildet, dessen Bindungsenergie höher ist, da abgeschlossene Kernniveaus kugelsymmetrisch sind, einen Gesamtdrehimpuls von Null haben und kein Quadrupolmoment besitzen und daher besonders stabil sind. Bei Kernen, deren Niveaus bereits vollständig besetzt sind wie

Uran-238 genügt die vergleichsweise geringe kinetische Energie thermischer Neutronen nicht um die Spaltung auszulösen. Diese Kerne lassen sich nur mit hochenergetischen Neutronen spalten.

Spaltprodukte

Welche Spaltprodukte tatsächlich als Ergebnis aus einer Kernspaltung im Leichtwasserreaktor hervorgehen, ist statistisch verteilt. In der Regel sind es zwei Tochterkerne, einer etwas schwerer, der andere etwas leichter. Seltener gibt es als drittes Produkt leichte Kerne wie Helium- oder Wasserstoffisotope. Die Häufigkeit, mit der bestimmte Tochterkerne bei einer Spaltung gebildet werden, ist symmetrisch um zwei deutliche Maxima bei Massenzahlen zwischen 90 und 100 beziehungsweise 135 und 145 verteilt. Die Konfiguration ist aufgrund der abgeschlossenen Schalen besonders stabil (weshalb die Maxima bei Edelgasisotopen liegen). Je höher die Energie der Neutronen, desto flacher verläuft die Spaltausbeute und desto weniger stark sind die beiden Hochpunkte ausgeprägt, da durch die zusätzliche Energie der Neutronen die Bildung von energetisch weniger günstigen Konstellationen möglich wird.

Neutronenausbeute

Für uns von besonderem Interesse sind die Neutronen. Im Mittel werden bei einer Kernspaltung mehrere Neutronen frei, die für weitere Reaktionen zur Verfügung stehen. Nur so bleibt die Kettenreaktion im Inneren des Reaktors bestehen. Die Neutronenausbeute – also die mittlere Zahl der Neutronen, die pro Spaltung frei werden – ist energieabhängig: Je größer die Energie des initialen Neutrons, desto mehr Neutronen werden frei. Bei der Spaltung von Uran-235 mit thermischen Neutronen liegt die Neutronenausbeute bei etwas weniger als 2,5 (Ziegler u. Allelein, 2013).

Verzögerte Neutronen

Neben den prompten Neutronen, die direkt bei der Spaltung innerhalb von etwa 10^{-14} s frei werden, sind im Kontext der Reaktorphysik auch die Neutronen wichtig, die verzögert abgegeben werden.

Die Spaltprodukte sind instabil und reduzieren einen Neutronenüberschuss im Kern durch Beta-Zerfälle. Dabei kann es sein, dass das Produkt einer solchen Zerfallskette in einem angeregten Zustand ist, dessen Energie über der Bindungsenergie eines Neutrons liegt. Dieses wird dann sofort emittiert. Für die thermische Spaltung von Uran-235 sind sechs wesentliche Halbwertszeiten relevant und die verzögerten Neutronen können in diese sechs Gruppen im Bereich von 55,90 s bis 0,230 s eingeteilt werden. Insgesamt haben verzögerte Spaltneutronen für diese Spaltung einen Anteil von weniger als 0,7 % an der Gesamtzahl der Neutronen. Für die Spaltung von Plutonium-239 ist der Anteil noch geringer.

Trotzdem sind sie für die Reaktordynamik von großer Bedeutung: Physikalisch ist die Lebensdauer der Neutronen relevant. Alle Neutronen, die innerhalb einer Lebensdauer

er entstehen, werden zu einer Neutronengeneration zusammengefasst. Das Verhältnis von zwei aufeinanderfolgenden Generationen gibt den Multiplikationsfaktor, der (durch Spaltung) erzeugte Neutronen mit solchen bilanziert, die durch Absorption und Leckagen verloren gehen. Die Lebensdauer der prompten Neutronen setzt sich aus der Bremszeit (in der die Neutronen zu thermischen Energien hin moderiert werden), der Diffusionszeit und der Reaktionszeit (einer neuen Kernspaltung) zusammen und wird durch die Dauer des Eindringens in den Atomkern dominiert. Für verzögerte Neutronen ist nicht nur die Lebensdauer des freien Neutrons – die natürlich für prompte und verzögerte Neutronen gleich groß ist – sondern auch die Spanne zwischen dem auslösenden Ereignis und dem Ende des ungebundenen Neutronenzustandes relevant. Durch die verzögerte Emission nach den an die Spaltung anschließenden Beta-Zerfällen liegt die mittlere Lebensdauer von verzögerten Neutronen bei etwa 13 s, im Gegensatz zu weniger als 10^{-5} s für prompte Neutronen (Ziegler u. Allelein, 2013).

Mit einer effektiven Lebensdauer für prompte und verzögerte Neutronen folgt innerhalb einer Zeiteinheit ein deutlich verringerter Leistungszuwachs. Zwar kann ein Reaktor auch ausschließlich mit prompten Neutronen kritisch und überkritisch werden, aber ein kontrollierter Betrieb ist auf den kurzen Zeitskalen, in denen sie frei werden, nicht möglich, da so schnell keine technischen Maßnahmen zur Regulierung des Neutronenflusses umsetzbar sind.

Energiefreisetzung

Den größten Anteil an der bei der Kernspaltung freiwerdenden Bindungsenergie geht in Form von kinetischer Energie auf die Spaltprodukte über. Sie können sich wenige Millimeter im Brennstoff bewegen, bevor sie zur Ruhe kommen. Bei der Spaltung von Uran-235 steht insgesamt eine Energie von 207 MeV zur Verfügung, von der 168 MeV durch die kinetische Energie der Spaltprodukte noch innerhalb des Brennstoffes in Wärme umgesetzt wird. Ebenfalls kinetische Energie erhalten die prompten Neutronen (5 MeV). Ein typisches Spektrum der Spaltneutronen für die thermische Spaltung von Uran-235 hat ein ausgeprägtes Maximum bei etwas weniger als 1 MeV und fällt zu höheren Energien ab (Stacey, 2018). Durchschnittlich 7 MeV wird in Form von elektromagnetischer Strahlung frei. Auch die Spaltprodukte selbst zerfallen weiter, wobei Elektronen und Neutrinos frei werden, die zusammen etwa 20 MeV erhalten. Da Neutrinos kaum mit Materie wechselwirken, ist ihr Anteil (12 MeV) für die nutzbare Wärmeenergie verloren. Insgesamt ergeben sich so etwa 200 MeV an Wärmeenergie pro gespaltenem Uran-235 Atom (Stacey, 2018).

Spektrum

Zunächst haben die prompten Neutronen Energien in einem breiten Bereich bis hin zu mehreren MeV. In einem thermischen Reaktor wird die Mehrzahl der Neutronen durch Stöße auf Energien unterhalb von 1 eV abgebremst. Langsame Neutronen (mit Energien von wenigen meV) können durch elastische Stöße mit leichten Nukliden zu höheren Energien hin beschleunigt werden, so dass genügend freie Neutronen über die zur Aus-

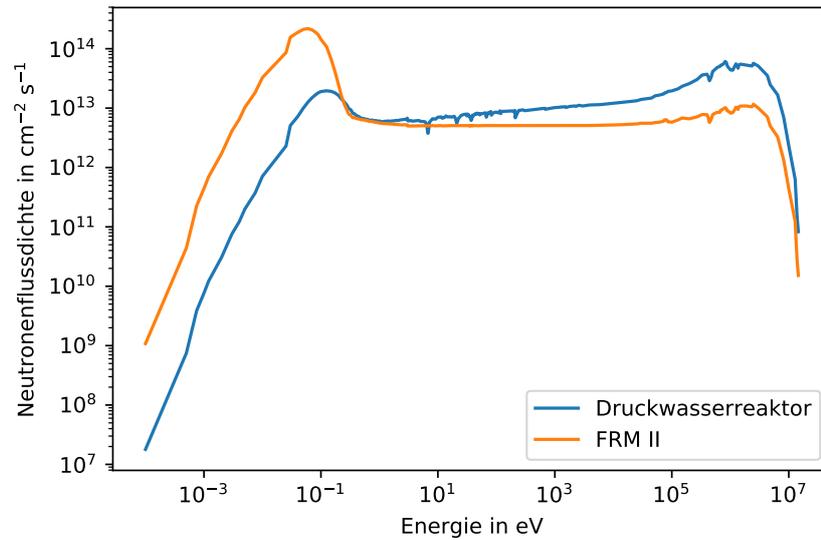


Abbildung 2.2.: Neutronenflussdichte zu Beginn der Bestrahlung für die unterschiedlichen Energiegruppen bei einem Druckwasserreaktor (in blau) und dem Forschungsreaktor München II (in orange). Erstellt mit dem Programm SCALE.

lösung einer Kernspaltung notwendige kinetische Energie verfügen. Dieser Wechsel aus Abbremsung und Beschleunigung führt zu einer mittleren Energieverteilung der Neutronen im Reaktor. Die genaue Form und Energieverteilung hängt maßgeblich von zwei Parametern ab: Der Temperatur sowie den Brems- und Absorptionseigenschaften des moderierenden Mediums. Drei Bereiche des Neutronenspektrums können unterschieden werden:

- schnelle Neutronen, die bei der Spaltung frei werden
- epithermische Neutronen
- langsame Neutronen (mit einem ausgeprägten Maximum im thermischen Bereich)

Thermische Neutronen sind freie, langsame Neutronen, deren Energie unter 1 eV liegt. Diese mittlere kinetische Energie entspricht einer Temperatur von etwa 300 Kelvin. Sie stehen für weitere Spaltreaktionen zur Verfügung und erhalten somit die Kettenreaktion. In Abbildung 2.2 erkennen wir die deutlichen Peaks für die thermischen und schnellen Neutronen in den beiden Reaktoren des Druckwasserreaktors und des Forschungsreaktor München II (FRM II), die wir in den folgenden Kapiteln 5 und 6 en détail diskutieren wollen. Deutlich wird, dass für das Modell unseres Druckwasserreaktors der Schwerpunkt leicht zugunsten der schnellen Spaltneutronen verschoben ist, wohingegen das Energiegruppenspektrum des FRM II den klassischen, geraden Verlauf hin zu niedrigeren Energien mit einem deutlichen Hochpunkt im thermischen Bereich

zeigt. Grund hierfür ist der Unterschied im Moderator: Schweres Wasser, welches im Forschungsreaktor verwendet wird, hat andere moderierende Eigenschaften als leichtes Wasser. Wir werden dies differenziert in Abschnitt 2.4 besprechen.

Lethargie

Da sich die Energie der Neutronen über viele Größenordnungen erstreckt, kann es günstiger sein, die Lethargie zu verwenden. Sie ist definiert als:

$$u = \ln \left(\frac{E_{\max}}{E} \right) \quad (2.2)$$

E_{\max} ist die maximale Energie, die ein Neutron im Reaktor haben kann. Aus Gleichung (2.2) folgt die differentielle Schreibweise:

$$du = \frac{du}{dE} dE = -\frac{dE}{E} \quad (2.3)$$

Durch das Minuszeichen wird deutlich, dass die Lethargie zunimmt, wenn die Energie des Neutrons abnimmt. In den Abschnitten über das Programm SCALE wird uns die Lethargie wieder begegnen, denn einige Module des Programms berechnen den Neutronenfluss pro Lethargie (siehe 2.6). Der energieabhängige Fluss ist über folgende Beziehung mit dem Fluss pro Lethargie verknüpft:

$$\phi(u) du = -\phi(E) dE \Rightarrow \phi(u) = E \phi(E) \quad (2.4)$$

2.3. Wirkungsquerschnitte

Nachdem wir uns im vorangegangenen Abschnitt mit der Entstehung von Neutronen im Reaktor beschäftigt haben, wollen wir nun diskutieren, wie sie mit Materie interagieren. Die Wahrscheinlichkeit, mit der zwei Teilchen miteinander wechselwirken, heißt Wirkungsquerschnitt. Sie hat die Dimension einer Fläche. Der Wirkungsquerschnitt unterscheidet sich je nach Isotop, Energie und Wechselwirkung. Für uns relevant sind die Einfangwirkungsquerschnitte, die angeben, mit welcher Wahrscheinlichkeit ein Isotop ein Neutron, abhängig von seiner Energie absorbiert. Weiterhin interessieren uns die Streuwirkungsquerschnitte, welche die Wahrscheinlichkeit für einen Streuprozess angeben und somit maßgeblich bestimmen, wie Neutronen moderiert werden (siehe Abschnitt 2.4).

Der Wirkungsquerschnitt bezieht sich zunächst auf ein einzelnes Teilchen. Betrachtet man allerdings alle auftretenden Wechselwirkungen, müssen wir die Gesamtheit der Teilchen in unserem System (also beispielsweise alle Wassermoleküle im Moderator) mit einbeziehen. Das Produkt aus mikroskopischem Wirkungsquerschnitt (σ) und Teilchenanzahldichte wird makroskopischer Wirkungsquerschnitt Σ genannt. Der Kehrwert des makroskopischen Wirkungsquerschnitts ist die mittlere freie Weglänge eines Neutrons und ein Maß dafür, wie weit es sich bewegen kann, bevor es zu einer Wechselwirkung kommt.

Isotope, die einen hohen Einfangswirkungsquerschnitt im Bereich niedriger Energien haben, werden auch Neutronengifte genannt. Ein Beispiel ist Xenon-135: Es kann als direktes Produkt bei der Spaltung von Uran entstehen, wird aber hauptsächlich durch den Zerfall von Iod-135 gebildet. Sein Einfangswirkungsquerschnitt ist um mehrere Größenordnungen größer als bei benachbarten Nukliden. Während des normalen Betriebes eines konventionellen Kernreaktors stellt sich ein Gleichgewicht zwischen Bildung und Zerfall von Xenon-135 ein. Nimmt die Leistung allerdings ab, wird es als Zerfallsprodukt nachproduziert und kann durch die hohe Absorptionsrate an Neutronen die Reaktivität des Reaktors so stark hemmen, dass dieser erst nach mehreren Tagen Ruhe wieder angefahren werden kann.

Bor hat ebenfalls einen hohen Neutroneneinfangswirkungsquerschnitt. Es ist in einem Druckwasserreaktor dem Moderator zugesetzt und wird während der Bestrahlung im Reaktor über die Zeit allmählich abgebaut. Durch den Verlust dieses Absorbers bei niedrigen Energien wird der Verlust der Reaktivität des Brennstoffes ausgeglichen.

Für einige Nuklide nimmt der Absorptionswirkungsquerschnitt im Bereich der thermischen Neutronen mit zunehmender kinetischer Energie des Neutrons ab. Je schneller sich die Neutronen bewegen, desto kürzer ist die Verweilzeit im Kernbereich und desto unwahrscheinlicher wird eine Absorption. Dieser Bereich wird daher auch $1/v$ -Bereich genannt. Hier gilt:

$$\sigma_A \propto \frac{1}{v} \propto \frac{1}{\sqrt{E}} \propto \frac{1}{\sqrt{T}} \quad (2.5)$$

Resonanzabsorption

Die Wirkungsquerschnitte mancher Nuklide weisen für höhere Energien (von einigen eV bis keV) ausgeprägte Resonanzen auf. Absorbiert ein Kern ein Neutron, wird seine Bindungsenergie um einen bestimmten Betrag gesenkt. Entspricht die Summe dieser Differenz gemeinsam mit der Neutronen-Energie im Schwerpunktsystem einem Energieniveau des Kerns ist die Absorption besonders wahrscheinlich. Überschüssige Energie des angeregten Zustandes des Produktes wird in Form von Gammastrahlung emittiert. Die Breit-Wigner Formel setzt den Neutroneneinfangswirkungsquerschnitt mit der Energie im Schwerpunktsystem E_{SP} in Zusammenhang. Für den Verlauf des Wirkungsquerschnitts der (n,γ) -Reaktion gilt nach Stacey (2018) in der Umgebung einer Resonanz:

$$\sigma_\gamma(E_{SP}) = \sigma_0 \frac{\Gamma_\gamma}{\Gamma} \sqrt{\frac{E_0}{E_{SP}}} \cdot \frac{1}{1+y^2}, \quad \text{mit } y = \frac{2}{\Gamma}(E_{SP} - E_0). \quad (2.6)$$

Hier ist E_0 die Energie, bei der die Resonanz auftritt, Γ die Halbwertsbreite der Resonanzlinie (des Gesamtwirkungsquerschnitts), σ_0 der Wirkungsquerschnitt bei der Energie E_0 und Γ_γ die Breite des Einfangs. Das Verhältnis von Γ_γ/Γ gibt die Wahrscheinlichkeit an, dass der entstandene angeregte Kern Gamma-Strahlung emittiert.

Um den Neutronenfluss und damit die möglichen Reaktionsraten für die Wechselwirkung von Neutronen mit Materie im Reaktor zu bestimmen, sind zwei Besonderheiten

zu berücksichtigen, die im Zusammenhang mit dem Resonanzbereich der Wirkungsquerschnitte auftreten.

Energetische Selbstabschirmung

Die Neutronenenergien reichen im Spektrum eines Leistungsreaktors über einen weiten Bereich, der auch die Region der Resonanzenergien einschließt. Durch die Absorptionen in diesem Bereich wird der Neutronenfluss reduziert. Die Absorptionsrate für den Prozess ist allerdings wiederum proportional zum Fluss, weshalb im Bereich der Resonanz die Rate verringert ist, im Vergleich zu Bereichen, in denen der Neutronenfluss (energetisch) ungestört ist.

Räumliche Selbstabschirmung

In einem heterogenen Reaktor, bei dem Brennstoff, Absorber und Moderator getrennt voneinander vorliegen, kommt es auch zu einem räumlichen Abschirmungseffekt: schnelle Neutronen können nicht tief in den Brennstoff eindringen, da genau in diesem Energiebereich die Resonanzen liegen. Thermischen Neutronen hingegen fehlt die entsprechende Energie und durch die Energieabhängigkeit des Wirkungsquerschnittes lösen sie bereits in den außen liegenden Schichten Kernspaltungen aus, sodass die inneren Bereiche von den äußeren abgeschirmt werden. Genauso brennen Absorber schichtweise von außen nach innen ab.

Datenbanken

Literaturwerte über unterschiedlichen Wirkungsquerschnitte werden in einigen großen Datenbanken gesammelt. Bevor solche Daten zweifelsfrei für physikalische Modellrechnungen, wie wir sie in den nächsten Kapitel betreiben wollen, verwendet werden können, werden sie auf Konsistenz, Übereinstimmung mit bisherigen Experimenten und statistische und systematische Fehler hin überprüft und bewertet. Weltweit werden mehrere dieser umfassenden Datenbanken betrieben. Wir verwenden in dieser Arbeit das United States Evaluated Nuclear Data File (ENDF/B). Auch das später in diesem Kapitel besprochene Simulationsprogramm SCALE verwendet Wirkungsquerschnitte aus dieser Datenbank.

2.4. Moderation der Neutronen

Spaltneutronen haben relativ hohe Energien bis zu 5 MeV und mehr, mit einem Maximum im Bereich von etwa 1 MeV (Stacey, 2018). Um weitere Kernspaltungen auszulösen, müssen sie auf thermische Energien moderiert werden, da für niedrige Energien die Absorptionswahrscheinlichkeit steigt.

Die Energie der Spaltneutronen verringert sich, wenn sie elastisch auf die Atome des Moderators treffen. Diese Kerne können in guter Näherung als ruhend angenommen werden. Von einem kinematischen Standpunkt aus betrachtet sind nur die Verhältnisse

der Massen relevant (so dass wir diese im Folgenden in Neutronenmassen angeben). Die Masse des Moderator-Kerns entspricht damit seinem Atomgewicht A . Im Koordinatensystem der bewegten Teilchen entfernen sich nach dem Stoß beide unter einem 180° Winkel voneinander mit modifizierten Geschwindigkeiten. Der Winkel zur neuen Geschwindigkeit nach dem Stoß sei im bewegten Koordinatensystem Θ . Für die Energie des Neutrons vor dem Stoß (E) und nach dem Stoß (E') im Laborsystem ergibt sich folgender Zusammenhang:

$$\frac{E'}{E} = \frac{(1 + \alpha) + (1 - \alpha) \cos \Theta}{2}, \text{ mit } \alpha = \frac{(A - 1)^2}{(A + 1)^2}. \quad (2.7)$$

Der Energieübertrag hängt also vom Stoßwinkel der beiden Teilchen ab. Der Winkel im bewegten Bezugssystem ist dabei mit dem Stoßwinkel im Laborsystem korreliert. Der größte Energieübertrag findet statt, wenn das Neutron im Schwerpunktsystem um den Winkel π zurück gestreut wird. Für Wasserstoff ($A=1$, $\alpha=0$) bedeutet das, dass die gesamte Energie in nur einem Stoß übertragen werden kann. Bei einem elastischen Stoß mit schwereren Nukliden geht dabei nur der Anteil $1 - \alpha$ verloren (siehe Gleichung 2.7).

Der mittlere logarithmische Energieverlust ϵ ergibt sich zu:

$$\epsilon = 1 + \frac{\alpha}{1 - \alpha} \cdot \ln(\alpha) = 1 - \frac{(A - 1)^2}{2A} \cdot \ln\left(\frac{A + 1}{A - 1}\right). \quad (2.8)$$

Wir können ϵ als ein Maß für die moderierenden Eigenschaften für ein Medium verstehen. Je größer die Masse der Nuklide des Mediums ist, desto kleiner wird der Energieverlust. Daraus können wir bestimmen, wie viele Stöße n im Mittel notwendig sind, um ein Neutron auf thermische Energien abzubremesen:

$$\langle n \rangle = \frac{\ln(E/E')}{\epsilon}. \quad (2.9)$$

Dabei ist E die Energie des Neutrons zu Beginn, von der es auf die neue (beispielsweise thermische Energie) E' abgebremst wird. Betrachten wir beispielhaft ein schnelles Spaltneutron, das von einer Energie von 2 MeV auf 1 eV moderiert wird: Geschieht dieser Prozess durch Wasserstoffatome, ergeben sich aus Gleichung (2.9) mit Gleichung (2.8) 14 Stöße. Für Deuterium sind es 20. Um die moderierenden Eigenschaften einer Verbindung zu bestimmen, wie zum Beispiel leichtes und schweres Wasser, werden die Parameter der einzelnen Komponenten mit der Konzentration gewichtet, mit der sie in der Verbindung vorkommen. Daraus ergibt sich für schweres Wasser ein beinahe doppelt so großer Wert für die Anzahl der Stöße. Trotzdem ist es der bessere Moderator, da zusätzlich zu den elastischen Stößen auch der Wirkungsquerschnitt für die Absorption des Neutrons mit einbezogen werden muss. Der mittlere logarithmische Energieverlust multipliziert mit dem Verhältnis von makroskopischem Wirkungsquerschnitt für Streuung Σ_s und Absorption Σ_a gibt das moderierende Verhältnis an, ein Wert, der für schweres Wasser deutlich höher ist als für leichtes Wasser. Schweres Wasser ist also der bessere Moderator, da deutlich weniger Neutronen absorbiert werden (obwohl mehr Stöße zur Abbremsung notwendig sind) (Stacey, 2018).

2.5. Neutronentransport

Die Neutronenkonzentration ist innerhalb des Reaktors nicht gleich, weshalb sich Neutronen entlang des Gradienten diffusiv durchmischen. Dieses Verhalten wird durch die Transporttheorie beschrieben. Mit der Lösung der Transportgleichung erhält man die Flussdichte in Abhängigkeit von Ort r , Energie E und Zeit t . Daraus lassen sich die Leistungsdichteverteilung des Reaktors, die Wahrscheinlichkeit für eine Neutronen-Leckage und weitere Einflüsse auf die Reaktivität bestimmen. Neben dem Ort berücksichtigt die Transportgleichung auch die Richtungsverteilung der Neutronen im Raumwinkel Ω , da diese bei Stößen ihre vektorielle Geschwindigkeit ändern und so ein random walk entsteht. Die durch die Stoßprozesse entstehende Bewegung heißt Diffusion. Für Neutronen sind allerdings nur Wechselwirkungen mit Atomen zu berücksichtigen, denn bei der Diffusion von Neutronen (im Gegensatz zu Gasen) sind Wechselwirkungen untereinander so unwahrscheinlich, dass sie nicht berücksichtigt werden müssen. Daher enthält die Transportgleichung keine Terme, die in der Neutronendichte quadratisch sind. Die Transportgleichung bilanziert die Gewinne an Neutronen in einem bestimmten Volumenelement gegen die Verluste aus diesem Bereich.

$$\frac{\partial N(r, E, \Omega, t)}{\partial t} dq = \frac{1}{v} \frac{\partial \phi(r, E, \Omega, t)}{\partial t} dq = \text{Gewinne} - \text{Verluste} \quad (2.10)$$

Der Ausdruck dq bezeichnet das Phasenraumvolumen, in dem wir uns befinden. In Gleichung (2.10) haben wir die Beziehung der Neutronenflussverteilung zur Teilchenzahldichte N und der mittleren Geschwindigkeit v ausgenutzt:

$$\phi(r, E, \Omega, t) = v \cdot N(r, E, \Omega, t) . \quad (2.11)$$

Neutronen strömen in ein Volumenelement hinein und werden mit der Wahrscheinlichkeit Σ_s aus einem anderen Raumwinkel Ω' kommend in Richtung Ω gestreut (wobei sich die Energie von E' nach E ändert). Zusätzlich können sie durch Spaltung im Phasenelement entstehen oder über eine andere Quelle S eingebracht werden.

Neutronen gehen verloren, wenn sie hinaus strömen oder aus der Bewegungsrichtung Ω nach Ω' gestreut werden. Die Verluste durch Stöße im Phasenelement werden mit $\Sigma \phi dq$ beschrieben. Dazu kommt die Differenz zwischen ein- und ausströmenden Neutronen, die durch die Divergenz des Neutronenstroms beschrieben wird. Mit diesen Termen erhalten wir die zeitabhängige Transportgleichung in der allgemeinsten Form:

$$\begin{aligned} \frac{1}{v} \frac{\partial \phi(\vec{r}, E, \Omega, t)}{\partial t} &= -\nabla(\Omega \phi(\vec{r}, E, \Omega, t)) - \Sigma(\vec{r}, E) \phi(\vec{r}, E, \Omega, t) \\ &+ \int E' \int \Omega' \phi(\vec{r}, E', \Omega', t) \Sigma_S(\vec{r}, E' \rightarrow E, \Omega' \rightarrow \Omega) d\Omega' dE' \\ &+ S(\vec{r}, E, \Omega, t) \end{aligned} \quad (2.12)$$

Gleichung (2.13) enthält Integrale über die Energie und den Raumwinkel und Differentiale nach Ort und Zeit. Allgemein ist sie nicht lösbar, allerdings gibt es unterschiedliche

Näherungsverfahren, die in Abbildung 2.3 dargestellt sind. Grundsätzlich können wir zwischen den Monte Carlo Methoden auf der einen Seite und Lösungsverfahren über Legendre-Polynome (P_N , Doppel- P_N , B_N) oder numerische Integration (S_N) auf der Anderen unterscheiden. Eine detailliertere Darstellung (insbesondere der Lösungsverfahren über Kugelfunktionen) findet sich in Stacey (2018), hier wollen wir nur das allgemeine Vorgehen skizzieren.

Monte Carlo

Im Gegensatz zu den analytischen Lösungsverfahren werden bei der Monte-Carlo-Methode einzelne Neutronenschicksale nach dem Zufallsprinzip durchgespielt. Im Rahmen der physikalischen Gesetzmäßigkeiten werden Werte für die unterschiedlichen Variablen variiert (beispielsweise die zurückgelegte Strecke eines Neutrons bis zu einem Stoß). Die anschließende Reaktion wird durch Zufallszahlen entschieden (Streuung, Absorption, Kernspaltung). Dieser Prozess wird mit allen zu berücksichtigenden Möglichkeiten durchgespielt und die sich ergebenden Größen (Ort, Alter, Geschwindigkeit) festgehalten. Man erhält daraus die Neutronenflussdichte, wenn man die statistische Verteilungsfunktion mit der Quelldichte, mit der Neutronen entstehen, multipliziert und über den gesamten Phasenraum integriert (Ziegler u. Allelein, 2013).

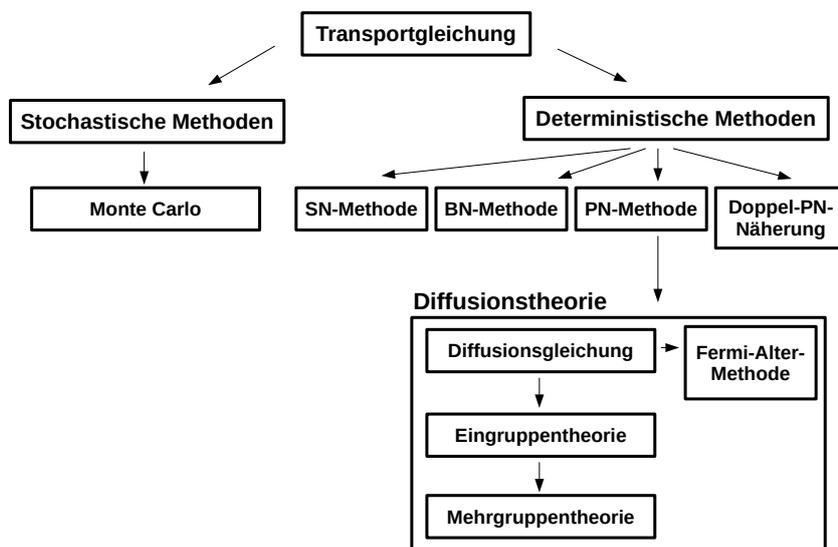


Abbildung 2.3.: Übersicht über die unterschiedlichen Lösungsansätze der Neutronen-transportgleichung in Anlehnung an Ziegler u. Allelein (2013).

Legendre Polynome (P_N -Näherung)

Die Transportgleichung enthält mehrere unabhängige Variablen. Bei einer Näherung über Kugelfunktionen werden der winkelabhängige Fluss und die differentiellen Wirkungsquerschnitte mit Legendre-Polynomen entwickelt. Die mathematischen Eigenschaften der Polynome (Orthogonalitätsrelation und Additionstheorem) führen dazu, dass wenn man die mit den Polynomen entwickelte Größen in die Transportgleichung einsetzt, und über alle Streuwinkel der Neutronen integriert, für alle Entwicklungskoeffizienten der Legendre-Momente eine lösbare Gleichung erhält. Neben der Änderung des Raumwinkels muss auch die Energieänderung bedacht werden: Dazu werden in einer Anzahl diskreter Energieintervalle die jeweils gemittelte Werte erfasst. Daraus ergibt sich ein System von Differentialgleichungen, deren Lösung die Momente der entwickelten Flussdichte liefert.

Bricht man die Entwicklung bereits nach dem ersten Legendre-Polynom ab, erhält man drei Gleichungen, von denen man eine vernachlässigen kann. Die andere ergibt das Fick'sche Gesetz für Neutronendiffusion und aus der Ersten folgt die Diffusionsgleichung.

2.6. Das Simulationsprogramm SCALE

Die Werte, die wir in dieser Arbeit abschätzen wollen, folgen aus Gleichungen, die durch die komplexen, zugrunde liegenden physikalischen Prozesse nicht mehr analytisch lösbar sind. Für die anspruchsvollen numerischen Lösungen verwenden wir den Programmcode SCALE (*Standardized Computer Analyses for Licensing Evaluation*). Für alle Modellrechnungen haben wir die Versionen 6.1.2 und 6.2.1 – die zum Zeitpunkt dieser Arbeit aktuellsten – verwendet. SCALE wird vom Oak Ridge National Laboratory (ORNL) entwickelt, getestet und gewartet.

Das Programm ist in der Programmiersprache FORTRAN geschrieben und umfasst unterschiedliche Codes, die für verschiedene Fragestellungen sowohl kombiniert als auch separat verwendet werden können. SCALE strukturiert sich in sogenannte Kontrollmodule, die die Eingabe des Benutzers verarbeiten, das Eingabedokument vorbereiten, weitere Folgemodule aufrufen und automatisiert Daten an die sogenannten Funktionalmodule weiterleiten, die die tatsächlichen Berechnungen ausführen. Wir werden nun zunächst die Module und anschließend die Unterschiede für Modellrechnungen mit den beiden SCALE-Versionen diskutieren.

Die zentralen Bereiche, die wir mit SCALE bearbeiten sind die Bestrahlung und der Zerfall von Nukliden. Bei der Darstellung der zugrunde liegenden Gleichungen folgen wir weitestgehend der Notation in Rearden u. Jessee (2016).

TRITON

Das Kontrollmodul TRITON (*Transport Rigor Implemented with Time-dependent Operation for Neutronic depletion*) erlaubt unterschiedliche Rechnungen im Bereich der Re-

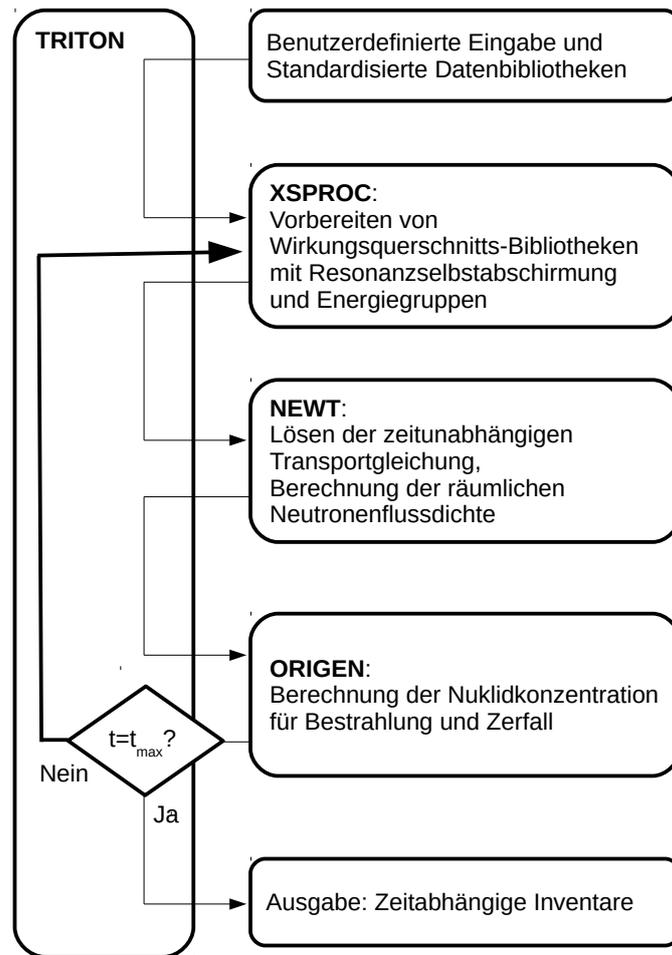


Abbildung 2.4.: Schematische Darstellung einer Bestrahlungsrechnung mit SCALE. Abbildung nach Rearden u. Jessee (2016).

Gebiet	Modul	Aufgabe
XSPROC	Wirkungsquerschnitte	Erstellen von korrigierten WQ-Bibliotheken
NEWT	Deterministischer Transport	2D Transportrechnung zur Neutronen-Analyse
ORIGEN	Aktivierung, Bestrahlung, Zerfall	Berechnung von Isotopen-Konzentration, Zerfallswärme, Strahlungsquelltermen
TSUNAMI	Sensitivitäts- und Unsicherheits-Analysen	3D Monte Carlo Eigenwert- und Sensitivitäts-Analyse
KENO V.a	Monte Carlo Transport	Monte Carlo Eigenwert-Codes für Mehrgruppen- und kontinuierliche Energie Analysen

Tabelle 2.1.: Die für diese Arbeit wichtigsten Module und ihre Aufgaben in SCALE

aktorphysik, in dem es sich verschiedener Funktionalmodule bedient, die in Tabelle 2.1 zur Übersicht aufgeführt sind.

Wir haben TRITON für zweidimensionale Bestrahlungsrechnungen verwendet. Die entsprechende Sequenz (T-DEPL) ruft mehrere Module auf, die die Eingabe des Benutzers verwerten und dann für einzelne Zeitschritte zunächst aus standardisierten Bibliotheken Wirkungsquerschnitte für das Problem berechnen. Anschließend wird über die Transportgleichung (numerisch) der Neutronenfluss und damit der Abbrand bestimmt. Der iterative Prozess über alle Zeitintervalle ist in Abbildung 2.4 dargestellt. Dabei wird der Neutronenfluss aus frei gewählten Anfangswerten bestimmt und anschließend als neuer Ausgangswert für die gleiche Rechnung verwandt, bis die Differenz zwischen Eingangswert und Ergebnis ausreichen klein ist und der Neutronenfluss damit konvergiert.

ORIGEN

Der große Programmabschnitt in SCALE, der für Abbrand, Bestrahlung und Zerfall zuständig ist, heißt ORIGEN (*Oak Ridge Isotope Generation code*). ORIGEN berechnet die zeitabhängige Nuklidkonzentration, Aktivität und den Quellterm für alle Isotope während Transmutation, Spaltung oder Zerfall. Es wird durch das Kontrollmodul TRITON aufgerufen, um die Berechnungen zur Bestrahlung durchzuführen.

Die zentrale Aufgabe ORIGENs ist es, die gewöhnlichen Differentialgleichungen zu lösen, die die Nuklidzusammensetzung in Abhängigkeit von Bestrahlung und Zerfall beschreiben:

$$\frac{dN_i}{dt} = \sum_{j \neq i} (y_{ij}\lambda_j + z_{ij}\sigma_j\phi)N_j(t) - (\lambda_i + \sigma_i\phi)N_i(t) + S_i(t) \quad (2.13)$$

mit

- N_i Menge an Nuklid i (in Atomen)
- λ_i Zerfallskonstante für Nuklid i
- y_{ij} anteilige Ausbeute an Nuklid i aus Zerfall von Nuklid j
- σ_i über das Spektrum gemittelter WQ für den Verlust von Nuklid j (in barn)
- z_{ij} anteilige Ausbeute an Nuklid i aus Neutronen-induziertem Verlust von Nuklid j
- ϕ zeitabhängiger Neutronenfluss (über Winkel und Energie integriert)
- S_i zeitabhängiger Quellterm (in Atomen pro Sekunde)

Gleichung (2.13) enthält keine Ortsabhängigkeit. Sie kann hier als über ein Volumen gemittelt interpretiert werden, da der Fluss räumlich gemittelt ist und Abhängigkeiten von der Energie nur in den mit dem Fluss gewichteten Wirkungsquerschnitten aus Reaktionsausbeuten liegen. Die Terme für alle Wechselwirkungen sowie der Term für den Zerfall lassen sich als eine Matrix zusammenfassen, die als Übergangsmatrix A bezeichnet wird. In der Matrix-Schreibweise wird Gleichung (2.13) zu:

$$\frac{dN}{dt} = A \cdot N(t) + S(t), \text{ mit } A = A_\sigma\phi + A_\lambda \quad (2.14)$$

Grundsätzlich verwendet ORIGIN eine standardisierte Übergangsmatrix. Da die Neutronen im thermischen Bereich durch Stöße in ein Energiegleichgewicht mit den Umgebungsatomen kommen, müssen die Wirkungsquerschnitte korrigiert werden. Sie gelten zunächst für die wahrscheinlichste Geschwindigkeitsverteilung, die allerdings von der thermischen Bewegung der Atome und Neutronen abweichen kann. Dafür bietet sich entweder das Modul COUPLE an (mit einem benutzerdefinierten Spektrum und Selbstabschirmungs-Wirkungsquerschnitten) oder das Modul ARP (das existierende ORIGIN-Bibliotheken interpoliert).

Wird die Übergangsmatrix problemspezifisch errechnet, werden die Matrixkoeffizienten zunächst für $\phi = 1$ bestimmt und gespeichert. Während des iterativen Lösungsprozesses werden sie dann innerhalb der Matrix für jedes Fluss-Intervall rekonstruiert.

Auch die relativen Ausbeuten müssen berechnet werden: Die Wirkungsquerschnitte der jeweiligen Nuklide werden bestimmt, aus denen sich die Ausbeute z_{ij} ergibt, in dem das Neutronenfluss-Spektrum mit der verwendeten Wirkungsquerschnitts-Bibliothek gefaltet wird. Dabei sind sowohl Spaltausbeuten als auch Nachproduktion entlang der Isomere eingeschlossen.

Um die beschriebene Bestrahlungs- und Zerfallsgleichung zu lösen verfügt ORIGIN über zwei verschiedene Lösungsansätze: eine Hybrid-Matrix Methode für exponentielle/lineare Ketten und eine Näherungsmethode nach Chebyshev.

Im Zuge der Neuerungen von SCALE 6.1.2 auf SCALE 6.2.1 wurde ORIGIN von FORTRAN 77 auf FORTRAN 90+ portiert.

NEWT

NEWT (New ESC-Based Weighting Transport) ist ein Modul, das für zweidimensionale Geometrien den Neutronenfluss berechnet. Der Berechnung liegt die zeitunabhängige Form der linearen Transportgleichung zu Grunde:

$$\Omega \cdot \vec{\nabla} \phi(\vec{r}, \Omega, E) + \Sigma_{\text{tot}}(\vec{r}, E) \phi(\vec{r}, \Omega, E) = Q_s(\vec{r}, \Omega, E) + Q_f(\vec{r}, \Omega, E) + Q_{\text{ext}}(\vec{r}, E) \quad (2.15)$$

mit

Ω	Raumwinkel
Σ_{tot}	totaler makroskopischer Wirkungsquerschnitt
ϕ	Winkelabhängiger Fluss pro Lethargie am Ort \vec{r} in den Kegelausschnitt Ω
Q_s	Quellterm durch Streuung
Q_f	Quellterm durch Spaltung
Q_{ext}	externe Quelle

Für die Quellterme, die aus Streuung und Spaltung resultieren gilt:

$$Q_s(\vec{r}, \Omega, E) = \int_{4\pi} d\Omega' \int_0^\infty dE' \Sigma_s(\vec{r}, \Omega' \rightarrow \Omega, E' \rightarrow E) \phi(\vec{r}, \Omega', E') \quad (2.16)$$

$$Q_f(\vec{r}, \Omega, E) = \chi(\vec{r}, E) \int_0^\infty dE' n(\vec{r}, E') \Sigma_f(\vec{r}, E') \phi(\vec{r}, \Omega, E') \quad (2.17)$$

mit

Σ_{Streuung}	makroskopischer Streu-Wirkungsquerschnitt
Σ_{Spaltung}	makroskopischer Spalt-Wirkungsquerschnitt
$\chi(\vec{r}, E)$	Anteil an Neutronen, die am Ort \vec{r} mit einer Energie E entstehen
n	Anzahl Neutronen, die aus einer Spaltung am Ort \vec{r} mit einer Energie E' entstehen

Die Lösung der Neutronentransportgleichung liefert eine Beschreibung von Position, Bewegungsrichtung und Energie der Neutronen. Als Lösungsverfahren wird in NEWT die Methode der diskreten Ordinaten verwendet. Dabei wird in einer kleinen Zelle der Fluss zu vier Seiten sowie ein gemittelter Fluss für die gesamte Zelle bestimmt und iteriert, bis das Ergebnis konvergiert. NEWT verwendet den ESC-Ansatz (für *Extended Step Characteristic*), der davon ausgeht, dass in jeder Zelle die physikalischen Größen wie beispielsweise Wirkungsquerschnitte einheitlich sind und die Zelle durch gerade Linien definiert ist. Wie bei anderen Differenzenverfahren auch ist es dabei wichtig, dass die Volumina der Zellen nicht zu groß werden. Die Zelle sollte so klein gewählt sein, dass der ortsabhängige Fluss sich innerhalb der Zelle nur geringfügig ändert.

TSUNAMI-3D

TSUNAMI-3D ist ein Kontrollmodul, das wir verwenden, um dreidimensionale Modelle zu erstellen. Die eigentliche Aufgabe dieses Kontrollmoduls ist die Berechnung der Sensitivitätsdaten über zwei unterschiedliche Monte Carlo Verfahren. Wir verwenden den

multi group Ansatz, der sich in der theoretischen Herangehensweise deutlich von dem anderen Verfahren (continuous energy) unterscheidet. Als Kontrollmodul benutzt TS-UNAMI-3D verschiedene Module, die Daten verarbeiten und Berechnungen ausführen: XSProc beginnt und berechnet Wirkungsquerschnitte und bereitet Geometrie-Daten für Selbstabschirmungs- und Flussgewichtungsrechnungen vor. Das Modul KENO berechnet unter anderem den Fluss in den unterschiedlichen Energiegruppen, der für uns besonders von Interesse sein wird. Anschließend liefert das Modul BONAMIST die Sensitivitätskoeffizienten, aus denen das Moduls SAMS die Ausgabe erstellt. Stochastische Monte Carlo Methoden sind für die Lösung der Transportgleichung besonders dann sinnvoll, wenn es um komplexe Geometrien geht, für die die Neutronenmultiplikation oder Dosisrate bestimmt werden soll. Geht es allerdings darum, die Neutronenflussdichte in Abhängigkeit von Ort und Energie zu bestimmen, kann die Methode fehleranfällig sein (Rearden u. Jessee, 2016). (Dies liegt daran, dass KENO die Flussdichte nicht für jedes Segment eines Arrays bestimmen kann (wie NEWT) sondern nur über die in der Geometrie spezifizierten Segmente mittelt).

Version 6.1.2 und 6.2.1 und ihre Unterschiede

Wie jede Doktorarbeit erstreckte sich auch dieses Projekt über mehrere Jahre. Während dieser Zeit gab es Änderungen und mehrere Updates an der verwendeten Software. Für früh durchgeführte Modellrechnungen haben wir den damals aktuellsten Programmcode SCALE 6.1.2 verwendet und für die letzten Projektabschnitte die aktuellste Version SCALE 6.2.1. Nun ist die Frage berechtigt, ob sich durch den Wechsel der verwendeten Versionen Unterschiede in den Ergebnissen ergeben.

In Abbildung 2.5 ist der mit zwei unterschiedlichen Programmversionen berechnete Fluss für ein Modell des FRM II dargestellt. Das Ergebnis unterscheidet sich erst in der dritten Stelle, so dass kein Unterschied erkennbar ist. Darunter ist die Differenz der beiden Flüsse dargestellt, die mehrere Größenordnungen niedriger ist als der jeweilige Fluss. Die Differenz zeigt selbst kaum Struktur, weshalb davon auszugehen ist, dass es sich um vernachlässigbares Rauschen handelt. So wird deutlich, dass die technischen Updates keinen Einfluss auf die physikalischen Modelle haben und die Ergebnisse dieser Arbeit verlässlich sind, unabhängig davon, mit welcher Programmversion sie durchgeführt wurden.

Das jüngste Update SCALE 6.2.1 unterscheidet sich zur Hauptversion SCALE 6.2 durch unwesentliche Verbesserungen und leicht gesteigerte Stabilität. In der Hauptversion SCALE 6.2 kommen zum ersten Mal die Wirkungsquerschnittsbibliotheken des ENDF/B-VII.1 zum Einsatz. Sie können für generelle Neutronen-, Gamma- und gekoppelte Neutronen-Gamma-Rechnungen verwendet werden und stehen sortiert in 252 Gruppen (beziehungsweise 56 Gruppen, je nach Anwendung) zur Verfügung. Die Spaltausbeuten, die von ORIGEN verwendet werden, wurden erneuert um nun bessere Übereinstimmungen mit Experimenten für Uran-235, Uran-238, Pu-239 und Pu-241 zu liefern. Darüber hinaus gibt es zahlreiche Änderungen und Erweiterungen in diversen

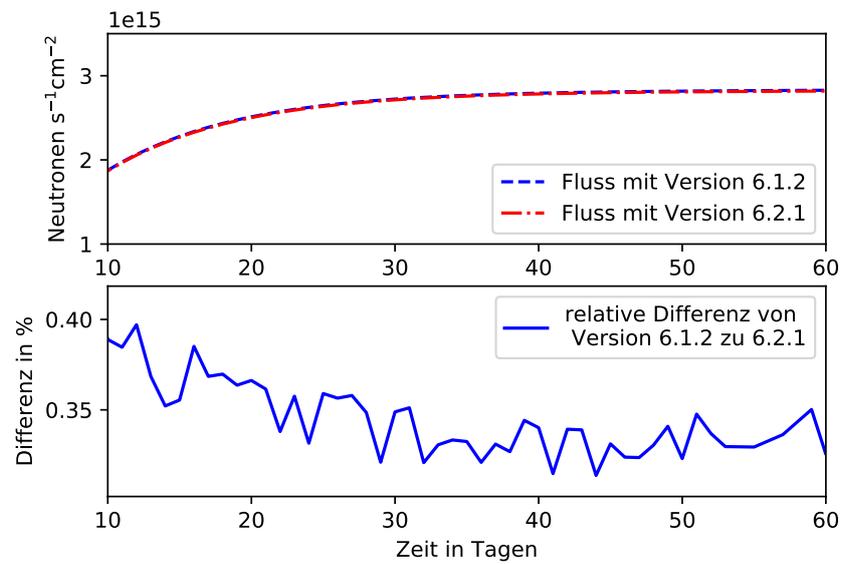


Abbildung 2.5.: Fluss für ein Modell des FRM II, berechnet mit zwei unterschiedlichen Programmversionen von SCALE (6.1.2 in blau und 6.2.1 in rot), sowie ihre Differenz (blau).

Modulen, die genau in Rearden u. Jessee (2016) beschrieben sind, aber für diese Arbeit keine Relevanz haben.

3. Argon

*That's the whole problem with science:
You've got a bunch of empiricists trying to describe things of unimaginable wonder.*
Calvin and Hobbes

In dieser Arbeit wollen wir die möglichen Emissionen an radioaktivem Argon-37 aus zivilen Anlagen abschätzen. Diese Beiträge sind essentiell für eine verbesserte Verifikation von unterirdischen Kernwaffentests. Bevor wir uns in den folgenden Kapiteln der Berechnung der Aktivitäten in Kernreaktoren widmen, wollen wir in diesem Kapitel die unterschiedlichen Entstehungsprozesse und das Verhalten von Argon-37 besprechen. Argon ist das dritt-häufigste Element in Luft und hat einen Volumenanteil von 0,93 % (Fay u. Biegalski, 2013). Es setzt sich aus mehreren stabilen Isotopen zusammen, darunter Argon-36 mit einer natürlichen Häufigkeit von 0,33 % und Argon-40 mit 99,60% (KAERI). Aus diesen stabilen Isotopen können über unterschiedliche Reaktionen radioaktive Argon-Isotope gebildet werden. Die hier relevanten Prozesse wollen wir in diesem Kapitel im Detail betrachten. Da bei unterirdischen Kernwaffentests Argon-37 entstehen kann, steht in den folgenden Kapiteln dieses Isotop im Fokus. Argon-37 hat eine Halbwertszeit von 35,04 Tagen und zerfällt über einen Elektroneneinfang. Da es eine niedrige spezifische Aktivität hat, benötigt man für Messungen von Argon-37 einen besonders niedrigen Hintergrund (Riedmann u. Purtschert, 2011).

3.1. Entstehung von Argon-37

Das in der Umwelt vorkommende Argon-37 kann über unterschiedliche Produktionspfade entstehen:

- in der Atmosphäre: Argon-40 ($n, 4n$) Argon-37
- in den oberen Erdschichten: Calcium-40 (n, α) Argon-37
- im Meer: Chlor-37 (p, n) Argon-37
- in Kernreaktoren: Argon-36 (n, γ) Argon-37 und Calcium-40 (n, α) Argon-37
- bei oberirdischen Kernwaffentests: Argon-36 (n, γ) Argon-37
- bei unterirdischen Kernwaffentests: Calcium-40 (n, α) Argon-37

Die verschiedenen Entstehungsprozesse werden wir nun besprechen um zum einen zu verstehen, wie Argon natürlich gebildet wird und zum anderen, welche Prozesse in Kernreaktoren relevant sind und uns daher auch in den folgenden Kapiteln begleiten.

Spallation

Ein möglicher Entstehungsprozess für Argon ist Spallation. Bei diesem Prozess wird ein Atomkern von einem hochenergetischen schweren Projektil getroffen. Grundsätzlich können das Neutronen, Protonen, andere Kerne oder Elementarteilchen sein, die eine Energie von mindestens 100 MeV haben (Böhmer, 2006). Dabei wird der ursprüngliche Atomkern in kleinere Bruchstücke sowie weitere Neutronen zersprengt. Dieser Prozess läuft in zwei Stufen ab: Zunächst wechselwirkt das Projektil nur mit einem einzelnen Nukleon, das nun wiederum mit benachbarten Nukleonen wechselwirkt, so dass innerhalb des Kerns eine Teilchenkaskade entsteht. Es ist möglich, dass einzelne Neutronen und Protonen dabei den Targetkern verlassen und selbst hohe Energien aufweisen, die mit der ursprünglichen Projektilenergie vergleichbar sind. Dieser Prozess dauert etwa 10^{-22} Sekunden, was etwa der Zeit entspricht, die das Projektil braucht, um einmal durch den Kern zu laufen. In der zweiten Stufe (etwa 10^{-16} Sekunden) der Spallationsreaktion gibt der angeregte Kern Energie ab, indem er Neutronen und Protonen abdampft. Diese Energien liegen etwa im Bereich von 50 MeV (Böhmer, 2006).

Entstehung von Argon-37 in der Atmosphäre

In der Atmosphäre entsteht Argon-37 durch Spallation von Argon-40 mit hochenergetischen Neutronen der kosmischen Höhenstrahlung, die auf die Erdatmosphäre treffen. Die atmosphärischen Neutronen wiederum entstehen, wenn primäre galaktische kosmische Strahlung auf Sauerstoff- oder Stickstoffatome der Luft treffen. Der Neutronenfluss (und damit gekoppelt auch die Rate, mit der Argon-37 produziert wird) hängt unter anderem, von der Position ab, also von der Höhe und dem Breitengrad. Weiterhin bestehen Abhängigkeiten zu zeitlichen Faktoren wie den Jahreszeiten, der Sonnenaktivität und dem atmosphärischen Druck (Riedmann u. Purtschert, 2011). Die Aktivitätskonzentrationen sind daher in der Stratosphäre in einer Höhe von etwa 30 km um etwa eine Größenordnung höher als in der Troposphäre bei etwa 15 km (Purtschert u. a., 2017). In der Lithosphäre kann Argon-37 über zwei mögliche Pfade entstehen: Durch den Neutroneneinfang von Calcium-40 über die Reaktion Calcium-40 (n, α) Argon-37 und von Kalium über die Reaktion Kalium-39 ($n, p2n$) Argon-37. Diese zweite Reaktion kann allerdings vernachlässigt werden, denn der relevante Wirkungsquerschnitt ist für Calcium um einen Faktor sechs höher. Außerdem kommt Calcium in der Lithosphäre etwas häufiger vor als Kalium. Die Reaktion über Calcium-40 dominiert andere mögliche Entstehungspfade in der Atmosphäre, wie z.B. die Spallation von Kalium, Eisen oder Titan aber auch Reaktionen mit kosmischen Myonen (Riedmann u. Purtschert, 2011).

Entstehung von Argon-37 bei unterirdischen Kernwaffentests

Argon-37 wird durch einen Kernwaffentest gebildet, indem Calcium-40-Atome in der Erde mit Neutronen aus der Spaltung reagieren. Das Calcium-40-Atom gerät durch

Einfang eines Neutrons aus der Explosion in einen angeregten Zustand und zerfällt anschließend unter Aussenden eines α -Teilchens zu Argon-37.

Egnatuk u. a. (2012) führen zusätzlich zur Aktivierung von Calcium als weiteren Entstehungspfad die Aktivierung von stabilen Argonisotopen in der Luft an, die im Hohlraum am Testort eingeschlossen sein kann. Wir machen eine einfache Abschätzung um die aus diesem Prozess resultierende Aktivität zu bestimmen: Mit dem Modul ORIGIN des Simulationsprogramms SCALE haben wir den Neutronenfluss nach der Explosion von 25 kg Uran-235 ($1,956 \cdot 10^{15}$ Neutronen \cdot cm $^{-2}$ \cdot s $^{-1}$) und 8 kg Plutonium-239 ($2,316 \cdot 10^{15}$ Neutronen \cdot cm $^{-2}$ \cdot s $^{-1}$) und die Aktivität der Xenonisotope bestimmt. Die Anfangsaktivität von Argon-37 wird über den Neutroneneinfang von Argon-36 gebildet, das mit einer natürlichen Häufigkeit von 0,318 % (KAERI) in Luft vorkommt und nach der Explosion exponentiell abnimmt. Unklar ist, welches Luftvolumen zur Aktivierung zur Verfügung steht und als Ausgangspunkt für unsere Abschätzung nehmen wir ein Volumen von 1000 m 3 Luft an, was einer Teilchenzahl von $N_{Ar36} = 8,5 \cdot 10^{23}$ entspricht. Mit einem mittleren Neutronenfluss von $\phi = 2 \cdot 10^{15}$ Neutronen \cdot cm $^{-2}$ \cdot s $^{-1}$ und einem mittleren Einfangwirkungsquerschnitt von $\sigma_{Ar36} = 1 \cdot 10^{-25}$ cm 2 erhalten wir für die eingeschlossene Aktivität:

$$A_{Ar37} = \phi \sigma N_{Ar36} \cdot \exp(-\lambda \cdot t) = 1,7 \cdot 10^{14} \cdot \exp(-2,3 \cdot 10^{-7} \cdot t). \quad (3.1)$$

Dieser Wert ist ein Anhaltspunkt für die Aktivität, die auf die Aktivierung der Luft zurückgeht und skaliert mit dem freigesetzten Neutronenfluss (also der Sprengkraft der Kernwaffe) und dem zur Aktivierung zur Verfügung stehenden Luftvolumen. Die anfängliche Aktivität von Xenon-133 liegt bei $2,5 \cdot 10^{12}$ Bq.

Edelgase können durch den Erdboden an die Oberfläche transportiert und dort gemessen werden. Herrscht in der Atmosphäre über dem Testort Unterdruck, bewegen sich die Edelgase gemäß dem Druckgradienten an die Oberfläche. Dieser Prozess wird als *barometrisches Pumpen* bezeichnet. Ist der Boden porös genug, dass die Gase durch Spalte im Erdreich gelangen können (beispielsweise nach Erschütterungen), gasen sie an der Oberfläche aus. Ein weiterer für den Gastransport relevanter Prozess könnte thermische Konvektion sein (Carrigan u. Sun, 2011). Die bei der Explosion freigesetzte Energie verursacht unterirdische thermische Konvektion, welche die Gase näher an die Oberfläche transportiert. In welchen Mengen das radioaktive Edelgas gebildet wird, hängt vom Calcium-40 Gehalt des Bodens und dem Neutronenfluss, der bei der Spaltreaktion frei wird ab. Problematisch ist, dass auch das atmosphärische Argon-37 in den Boden eindringt und in der Erde exponentiell mit der Tiefe abnimmt (Riedmann u. Purtschert, 2011). Daher ist es wichtig, zwischen Emissionen aus einem unterirdischen Test und Einträgen aus anderen Quellen auch in Boden-Gas-Proben zu unterscheiden.

Argon in Kernreaktoren

Bei der Kernspaltung wird Argon-37 nur in so äußerst geringen Mengen produziert, dass es vernachlässigt werden kann. Durch das niedrige Atomgewicht ist die Spaltaus-

beute verschwindend gering. In einem Kernreaktor entsteht es also im Gegensatz zu Radioxenon nicht als Spaltprodukt, sondern über andere Produktionspfade.

In dieser Arbeit legen wir unseren Fokus auf die ersten beiden der folgenden Reaktionen:

- Argon-36 (n, γ) Argon-37 beziehungsweise Argon-40 (n, γ) Argon-41
Die stabilen Isotope Argon-36 und Argon-40 sind Teil der natürlichen Zusammensetzung von Luft. Durch einen Neutroneneinfang wird das neue Isotop gebildet und die Anregungsenergie als Photon abgegeben. Im Inneren des Reaktors wird das Gas im Wasser des Kühlmittels gelöst und ist dem Neutronenfluss ausgesetzt. Außerhalb des Kerns kommt Luft in Spalten hinter dem Reaktordruckbehälter vor.
- Calcium-40 (n, α) Argon-37
Diese Reaktion ist analog zur Produktion von Argon-37 bei unterirdischen Atomtests (siehe oben). Allerdings kommt Calcium-40 in einem Kernreaktor eigentlich nicht vor, jedoch kann es winzige Verunreinigungen geben. Diese können an mehreren Stellen auftreten: in Kapitel 5 beschreiben wir, dass im Zuge des Herstellungsprozesses kleine Mengen Calcium-40 in den Uran-Brennstoff von konventionellen Druckwasserreaktoren gelangen können. Zusätzlich wäre auch denkbar, dass kleinste Verunreinigungen der Hüllrohre mit Calcium-40 vorkommen. Besonders aus kohlenstoffmoderierten Reaktoren wären für diese Reaktion ein Beitrag zu erwarten (Matuszek u. a., 1975). Grundsätzlich könnte Calcium-40 auch im Wasser vorkommen. Eine Probennahme ergab allerdings keinen Messwert über der Nachweisgrenze von 10 Mikrogramm pro Liter (Deller, 2018). Daher vernachlässigen wird diese Option. In größeren Mengen (zwischen 8,7 % und 37,5 %) ist Calcium-40 im Beton außerhalb des Reaktordruckbehälters enthalten. Diesen Produktionspfad diskutieren wir in Kapitel 7.
- Grundsätzlich kann Argon-37 auch indirekt über eine Reaktion von Kalium-39 entstehen: Über einen Neutroneneinfang wird Kalium-39 zum radioaktiven Kalium-40, das zu Calcium-40 oder Argon-40 zerfällt. In Flusswasser kommt Kalium-39 mit einer Konzentration von 2 bis 3 ppm vor, in calciumreichem Granit sogar mit 2,5 % (Lenntech). (Der Granit ist für die Modellrechnungen von Kernreaktoren irrelevant, könnte aber für unterirdische Kernwaffentests von Bedeutung sein). Allerdings hat Kalium-40 mit 1,248 Gigajahren (KAERI) eine so lange Halbwertszeit, dass diese Reaktionen für unsere Überlegungen nicht relevant sind.

Um den Beitrag an Argon-37 aus diesen Reaktionen zu berechnen, brauchen wir ein differenziertes Modell für die Diffusion von Gas in Wasser. Dafür benötigen wir Kenntnisse über viele Parameter, darunter:

- Reaktor-Geometrie
- ortsabhängiger Neutronenfluss
- Bestrahlungszeit
- Luftkonzentration im Moderator

3.1.1. Globaler Hintergrund

Möchte man mit dem Nachweis von radioaktiven Argon-Isotopen einen Kernwaffentest verifizieren, ist die Frage entscheidend, ob sich eine entsprechende Signatur gegen den globalen Hintergrund abhebt. Die globale Aktivität an Argon-37 setzt sich aus den oben diskutierten natürlichen und anthropogenen Beiträgen zusammen. Messungen der Hintergrundaktivität von Riedmann u. Purtschert (2011) zwischen 2003 und 2010 ergaben einen Wert von $1,2 \pm 0,5 \text{ mBq m}^{-3}$. Dieser Wert stimmt mit früheren Messungen gut überein (Loosli u. a., 1973) und (Gaeggeler, 1995) und gibt den Hintergrund in der oberen Stratosphäre an. In den untersten Luftschichten ist er deutlich niedriger und steigt mit zunehmender Höhe (Purtschert u. a., 2017).

3.2. Zerfall und Messung von Argon-37

Argon-37 ist ein radioaktives Edelgasisotop, das über Elektroneneinfang zu Chlor-37 zerfällt. Dabei nimmt der Atomkern ein Elektron aus einer der inneren Schalen des Elektronenregimes auf. Über die schwache Wechselwirkung wandeln sich ein Proton (im Kern) und das Elektron (aus der Hülle) wie in Abbildung 3.1 zu sehen in ein Neutron und ein Neutrino:



Die entstandene Vakanz in einer der inneren Elektronenschalen wird durch ein Elektron der weiter außen liegenden Niveaus gefüllt. Bei diesem Prozess wird Energie frei: Der Energieüberschuss kann entweder in Form von Gamma-Strahlung abgegeben oder auf ein anderes Elektron übertragen werden, was anschließend aus dem Atom emittiert wird. Die Energie dieses sogenannten Auger-Elektrons konnte bei 2,38 keV gemessen werden. Gleichzeitig werden durch die Neuordnung der Elektronen in der Hülle Photonen emittiert. Ihre Energie liegt bei 2,62 keV und ist spezifisch für den Zerfall des Argon-37.

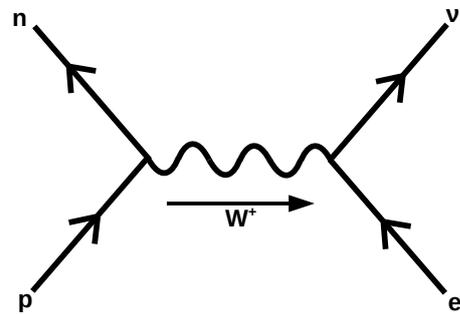


Abbildung 3.1.: Feynman-Diagramm für den Elektroneneinfang.

Argon-37 hat eine sehr geringe spezifische Aktivität (natürliches Argon-37/Ar $\approx 10^{-20}$). Eine Messung ist daher nur mit äußerst niedriger Hintergrundrate möglich, um andere Einflüsse wie kosmische Strahlung und ionisierender Strahlung aus anderen Materialien auszuschließen. Die dafür notwendigen Bedingungen lassen sich (am besten) in einem Untergrundlabor realisieren (Riedmann u. Purtschert, 2011). Gasproben, die eine deutlich höhere Aktivitätskonzentration aufweisen, könnten auch mit mobilen Messeinheiten

nachgewiesen werden. Hier liegt die minimale Nachweisgrenze bei 26 mBq m^{-3} (für eine Messzeit von 10 h) (Aalseth u. a., 2011) und (Li u. a., 2015).

Die erschwerte Messung unterscheidet Argon-37 von Radioxenon, wenn es um die Verifikation von Kernwaffentests geht. Messsysteme für Xenon wie das SPALAX sammeln, konzentrieren und messen Gasproben vor Ort. Für SPALAX liegt die Nachweisgrenze für Xenonisotope bei $0,2 \text{ mBq m}^{-3}$. Das vorhandene Messsystem lässt sich daher nicht direkt auf das Isotop Argon-37 übertragen. Trotzdem würde es das internationale Überwachungssystem sinnvoll erweitern: Wir haben gesehen, dass es abhängig vom Calciumgehalt des Bodens bei unterirdischen Kernwaffentests gebildet wird, der natürliche Hintergrund gering ist und nur wenige antropogene Quellen für das Isotop in Betracht kommen. In den nächsten Kapiteln gehen wir detailliert der Frage nach, welche Mengen in zivilen kerntechnischen Anlagen entstehen, um abzuschätzen, ob diese Emissionen bei möglichen Messungen durch das Überwachungsnetz von den Signalen eines unterirdischen Tests unterscheidbar sind.

4. Einordnung in den aktuellen Stand der Forschung

As an individual you had a very limited set of experiences and limitations on your experiences may have than set a limitation on your thinking.
Howard Zinn, „Die Lotterie des Lebens“

Bei einem unterirdischen Kernwaffentest können über unterschiedliche Prozesse unter anderem zwei radioaktive Edelgase produziert werden, die für die Verifikation von Interesse sind. Vier Xenon-Isotope entstehen als Spaltprodukte beziehungsweise Zerfallsprodukte aus Iod und bilden aufgrund ihrer Halbwertszeit den bisherigen Ansatzpunkt, um den nuklearen Charakter der Explosion nachzuweisen. Da dies in der Praxis immer wieder eine Herausforderung darstellt (siehe Kapitel 1), rückt nun das Isotop Argon-37 in den Fokus. Eine Messung des einzelnen Isotops erlaubt keine Unterscheidung der verschiedenen Quellen, die als Emittenten in Betracht kommen, weshalb es in Relation zu anderen Isotopen zu setzen ist.

Problematisch ist, dass nach unterirdischen Tests bislang kaum Xenon-Isotope nachgewiesen werden konnten. Dies mag weniger an Mängeln am Überwachungssystem selbst liegen als vielmehr daran, dass Edelgasemissionen für unterirdische Kernwaffenexplosionen oft nicht auftreten. In Abschnitt 1.4 haben wir bereits die Emissionen der angekündigten Tests der Demokratischen Volksrepublik Korea diskutiert. Dubasov (2010) untersuchte 340 unterirdische Kernwaffentests, die von der damaligen Sowjetunion in Semipalatinsk durchgeführt wurden und gibt an, dass Emissionen für 52,6 % der Tests vollständig zurückgehalten wurden und nur bei weniger als der Hälfte (42,6 %) schwache Emissionen für radioaktive Edelgase verzeichnet wurden.

Wie wir bereits dargelegt haben, entsteht Argon-37 bei einem unterirdischen Kernwaffentest durch die Aktivierung von Calcium-40 im Gestein. Die produzierte Menge des radioaktiven Edelgases hängt daher nicht nur vom Neutronenfluss aus der Explosion, sondern auch vom Calcium-Gehalt ab.

Haas u. a. (2010) haben in einem deterministischen Modell die Neutronen-Wechselwirkungen für acht verschiedene Gesteinstypen betrachtet. Dieser Ansatz wird ergänzt durch ein MCNPX-Modell, mit dem die Abstandsabhängigkeit des Neutronenflusses im Gestein näher untersucht wurde. Die Ergebnisse der beiden Ansätze liegen in der gleichen Größenordnung. Berücksichtigt wurde auch die Verdünnung, die auftritt, wenn Argon-37 durch die Erde an die Oberfläche wandert. Die höchste Aktivität ergibt sich für Karbonat, die geringste für Halit. Werte für Granit schwanken je nach angenommenem Calcium-Gehalt. Für eine Explosion mit einer Sprengkraft von 1 kT erwarten

Haas u. a. (2010) nach 80 Tagen eine Konzentration von etwa $1 \cdot 10^4$ bis $1 \cdot 10^5$ mBq m^{-3} an der Oberfläche.

Bei einem Gas-Transport-Versuch für in die Erde eingeleitetes Gas ergab sich, dass die Wanderung durch den Boden keinem Standardmodell für Diffusion folgt (Olsen u. a., 2016). Daher muss die Verdünnung von Argon-37 vom Ort der Explosion bis zur Oberfläche detaillierter modelliert werden. Diese Überlegungen können einen ersten Ausgangspunkt für tiefergehende Arbeiten bilden, die die komplexen Zusammenhänge differenzierter erfassen und abbilden als es in dieser ersten Abschätzung der Autoren möglich war.

Die Messung einer solchen Signatur wird durch den globalen Argon-37-Hintergrund erschwert. Da Edelgasisotope aus der Atmosphäre auch in den Boden eindringen, muss für dort genommene Gasproben (zum Beispiel im Zuge einer Vor-Ort-Inspektion) zwischen den Einträgen aus einer Kernwaffenexplosion und zivilen bzw. natürlichen Quellen unterschieden werden. Auch für eine globale Messung von Argon-37 sind Emissionen aus kerntechnischen Anlagen relevant, um die Signale klar von einander unterscheiden zu können.

4.1. Argon aus Kernkraftwerken

Argon-37 muss für kerntechnische Anlagen nicht überwacht werden. Daher liegen für dieses Isotop im Unterschied zu Argon-41 oder Xenon-133 keine publizierten Emissionsdaten vor.

Frühe Experimente konnten zeigen, dass Argon-37 über Aktivierungsprozesse in messbaren Mengen produziert wird (Michael u. a., 1984). Dabei wurden sowohl die Aktivierung von stabilen Argon-Isotopen in der Luft als auch die Aktivierung von Calcium-40 betrachtet. Es ging allerdings nicht darum, reale Bedingungen innerhalb eines Reaktors abzubilden, sondern Argon-37 in hoher Reinheit (zu Kallibrierungszwecken) mit Hilfe eines typischen Reaktor-Spektrums zu gewinnen.

Andere Untersuchungen befassten sich mit den Argon-37 Emissionen aus unterschiedlichen Reaktortypen (Matuszek u. a., 1975). Die Emissionsraten wurden für zwei unterschiedliche Druckwasserreaktoren mit verschiedenem Reaktordesign bestimmt, die sich um einen Faktor sechs unterscheiden. Die Autoren schlussfolgerten daraus, dass Argon-37 außerhalb der Brennelemente entsteht. Die angegebenen Emissionsraten für Leichtwasserreaktoren schwanken zwischen $3,7 \cdot 10^4$ Bq s^{-1} und $44,4 \cdot 10^4$ Bq s^{-1} .

Qaim u. a. (1977) untersuchten die Argon-37 Emissionen aus einem gasgekühlten Hochtemperaturreaktor, die sie auf Calcium-Verunreinigungen im Reaktorinneren zurückführen. Die Autoren diskutieren auch die Aktivierung von im Kühlmittel enthaltener Luft, allerdings ist das gemessene Verhältnis von Argon-41 zu Argon-37 zu gering, um allein auf diesen Entstehungsprozess zurückzugehen. Vernachlässigt man andere Produktionspfade, erhält man für eine Calcium-Verunreinigung von wenigen ppm in den

Brennstoffelementen und dem Graphit-Moderators eine Aktivitätskonzentration in der gemessenen Größenordnung. Die Prozesse, mit denen das Gas aus dem jeweiligen Entstehungsort entweicht, wurden nicht explizit diskutiert.

Diese Messung gilt nur für einen speziellen Reaktortyp, der weltweit eher selten vorkommt und daher nicht repräsentativ für Kernkraftwerke allgemein und keine wesentliche eigenständige Quelle für Argon-37 ist.

Diese frühen Arbeiten waren dadurch motiviert, Argon als atmosphärischen Tracer für Durchmischungsprozesse zu verwenden. In dem Zuge, mit dem sich die Ausbreitungsrechnung entwickelte, sank das Forschungsinteresse an Argon-Emissionen aus Reaktoren und gewann erst in den letzten Jahrzehnten im Kontext der internationalen Edelgasüberwachung zu Verifikationszwecken wieder an Bedeutung. Dabei standen allerdings bislang Xenon-Isotope im Fokus.

Insgesamt bleibt das Verständnis über Argon-37-Emissionen aus Leistungsreaktoren lückenhaft. Die wenigen Messungen sind nicht ausreichend mit theoretischen Überlegungen zu den unterschiedlichen Bildungspfaden untermauert, so dass weder der konkrete Beitrag der Reaktoren an Argon-37 in der Atmosphäre noch der zugrunde liegende Entstehungsprozess abgeschätzt werden könnte. Es ist notwendig, zu bestimmen, mit welchen Aktivitätskonzentrationen über die unterschiedlichen Aktivierungsreaktionen zu rechnen ist und dies mit Messwerten für moderne Leichtwasserreaktoren (die die Mehrzahl der Kernkraftwerke sind, die zur Zeit weltweit in Betrieb sind) in Beziehung zu setzen.

4.2. Argon aus Forschungsreaktoren

Genau wie für Kernkraftwerke gibt es auch für Forschungsreaktoren nur einzelne Untersuchungen über die Argon-37 Entstehungsprozesse und Emissionen.

Fay u. Biegalski (2013) verzichteten darauf, die absolute Argon-37 Produktionsrate zu berechnen, da zu viele unbekannte Parameter in die Betrachtung eingehen und modellieren die Aktivität stattdessen relativ zu anderen Isotopen wie Argon-41 und Xenon-133. Das Verhältnis Argon-37/Argon-41 wird in ihrer Arbeit theoretisch berechnet. Dabei werden Verluste durch Absorption und Zerfall und Produktion durch Einfangreaktionen und Zerfälle von metastabilen Zuständen miteinbezogen. Es bleibt unklar, wie der bei der Berechnung verwendete Neutronenfluss bestimmt wurde. Unter Verwendung der bekannten Emissionsdaten des Forschungsreaktors HFIR (High Flux Isotope Reactor) für Argon-41 kann anschließend aus dem Verhältnis die Aktivität von Argon-37 bestimmt werden.

Aus der Übereinstimmung von theoretisch abgeschätzten Werten und Messwerten (für Argon-41) folgern die Autoren, dass die Luftaktivierung der wesentliche Entstehungsprozess ist. Andere Entstehungspfade beziehungsweise Aktivierungsreaktionen an anderen Orten werden nicht betrachtet.

Anschließende atmosphärische Ausbreitungsrechnungen zeigen, dass die Aktivitätskonzentration nach der Emission aus der Anlage schnell verdünnt wird. Bereits nach wenigen Kilometern liegen Konzentrationswerte für Argon-37 unterhalb von $0,1 \cdot 10^{-3} \text{ Bq m}^{-3}$. In einer anderen Arbeit wird die Emissionsrate nur über Messwerte an verschiedenen Orten um den Reaktor herum bestimmt (Johnson u. a., 2017). Aus dem experimentell bestimmten Verhältnis von Argon-37 zu Argon-41 wird anhand von bekannten Emissionsdaten für Argon-41 die Emission von Argon-37 ermittelt. Verschiedene Produktionspfade werden nicht diskutiert.

Diese Überlegungen setzen voraus, dass Argon-37 und Argon-41 in einem festen Verhältnis zu einander stehen, was nur gegeben ist, wenn sie über den gleichen Aktivierungsprozess gebildet werden und es keine zusätzlichen Beiträge gibt. Da für einen Forschungsreaktor aber mehrere Bildungspfade für Argon-37 denkbar sind, über die teilweise kein Argon-41 entsteht, sind differenziertere Betrachtungen notwendig.

Fay (2014) hat sich mit Argon-37-Emissionen aus einem Forschungsreaktor beschäftigt, um deren Einfluss auf den Hintergrund im Kontext einer Vor-Ort-Inspektion zu charakterisieren. Dafür wurde ein Strahlungstransportmodell mit dem Programm MCNPX für den TRIGA Reaktor der Universität Texas (am Austin Nuclear Engineering Teaching Laboratory NETL) entwickelt, um damit den Neutronenfluss des Reaktors zu bestimmen. Anschließend wurde mit einem Programm für Aktivierung und Bestrahlung die Argon-37-Produktion für verschiedene Entstehungspfade innerhalb der Anlage berechnet. Das Transportmodell wurde durch einen Vergleich mit Messwerten für die Anlage validiert, für die anschließende Bestrahlungsrechnung wurden die Ergebnisse mit Modellrechnungen mit dem Programm ORIGEN verglichen. Die höchste Aktivität ergibt sich zwar aufgrund der im Beton des biologischen Schildes enthaltenen Calcium-40, allerdings bleibt das so produzierte Argon-37 größtenteils im Material eingeschlossen und diffundiert kaum heraus. Im Reaktorbecken entsteht der überwiegende Anteil Argon-37 in einem kleinen Volumen um den Kern herum, was beinahe vollständig aus dem Wasser in die Luft diffundiert. Die integrierte Abgabe liegt bei einer Bestrahlungszeit von acht Stunden und einer Leistung von 950 kW bei $1,05 \pm 0,8 \cdot 10^7 \text{ Bq}$.

Die Entstehungsrate für Argon-41 wird theoretisch bestimmt und mit realen Werten verglichen, und unterscheidet sich um eine Größenordnung. Daher ist es fraglich, wie verlässlich die bestimmten Konzentrationen für Argon-37 sind. Es bleibt offen, ob die Ergebnisse von Fay (2014) gültig sind und sich auf andere Forschungsreaktoren verallgemeinern lassen, da diese sich sowohl in Leistung und Bestrahlungszeit als auch Geometrie deutlich unterscheiden.

Für eine obere Abschätzung der Beiträge aus Forschungsreaktoren ist aus diesen Überlegungen heraus besonders ein Reaktor mit hoher Leistungsdichte und daher hoher Anreicherung von Interesse. Genau wie bei den Leistungsreaktoren müssen die unterschiedlichen Bildungspfade theoretisch modelliert und anschließend mit gemessenen Aktivitätskonzentrationen in Bezug gesetzt werden um genaue Kenntnis über die Bildungspfade und zu erwartenden Emissionen zu erlangen. Von Werten für Argon-41 auf

Argon-37 zurückzuschließen ist nicht ausreichend, da die Bildungspfade nicht gleich sein müssen. Daher werden wir uns in den nächsten Kapiteln differenziert der Entstehung von Argon-37 in Reaktoren widmen.

5. Argon-37 im Druckwasserreaktor

*I can't help but wonder what kind of
desperate straits would drive a man to invent this thing.*
Calvin and Hobbes

Ein möglicher Emittent von Argon-37 aus dem zivilen Bereich sind Kernkraftwerke. Andere kerntechnische Anlagen wie Forschungsreaktoren geben ebenfalls Argon-37 an die Umwelt ab, weshalb wir den Forschungsreaktor München II im anschließenden Kapitel detailliert diskutieren. Unser Ziel in diesem Kapitel ist es, der Frage auf den Grund zu gehen, über welche Produktionspfade das radioaktive Edelgas gebildet werden kann und mit welchen Beiträgen über die unterschiedlichen Pfade zu rechnen ist. Zur Zeit sind weltweit noch etwa dreihundert Kernkraftwerke in Betrieb, davon mehr als die Hälfte Druckwasserreaktoren (IAEO). Wir werden unser Augenmerk daher exemplarisch auf diesen Reaktortyp richten und uns an einem konkreten Reaktorblock einer deutschen Baureihe orientieren.

Wir wollen im Folgenden zunächst auf den Aufbau eines typischen Reaktorkerns eingehen und anschließend Modellrechnungen diskutieren, in denen wir unterschiedliche Entstehungsszenarien für Argon-37 betrachten.

Relevanz von Argon-41

Neben dem für uns hauptsächlich interessanten Argon-37 wollen wir auch einen Blick auf Argon-41 werfen. Als Isotop des Argons ist anzunehmen, dass es in ähnlicher Weise wie Argon-37 gebildet wird, nur dass es im Unterschied dazu in Überwachungsmessungen geführt wird und daher für Argon-41 – im Gegensatz zu Argon-37 – Messdaten für die Emission aus Kernkraftwerken vorliegen. Könnten wir im Folgenden eine klare und eindeutige Korrelation zwischen den beiden Isotopen feststellen, wäre es möglich, aus den gemessenen Argon-41 Werten auf Argon-37 zurückzuschließen. Wir werden später sehen, dass Argon-41 nur bei Aktivierungsreaktionen von stabilen Argonisotopen entsteht. Das Verhältnis der Aktivitäten von Argon-41 und Argon-37 kann daher ein Anhaltspunkt dafür sein, ob unterschiedliche Entstehungsprozesse relevant sind. Argon-41 unterscheidet sich von Argon-37 durch seine kürzere Halbwertszeit von 109 Minuten. Daher reagiert Argon-41 auch sensibler auf die Leistungsänderungen, die während des Reaktorbetriebes auftreten: Im Vergleich zu Argon-37 zerfällt es schneller, wenn die Leistung verringert wird und wird schneller gebildet, erhöht sich die Leistung. Die Aktivität von Argon-41 kann daher als Indikator für den Betrieb des Reaktors dienen, da sie (für Zeiten größer als die Halbwertszeit) direkt abhängig von der Leistung ist.

Druckwasserreaktoren allgemein

Zum Zeitpunkt der Fertigstellung dieser Arbeit sind laut der Internationale Atom-Energie Organisation (IAEO) 454 Kernkraftwerke in Betrieb. Etwa ein Viertel der Gesamtzahl befindet sich in Westeuropa, in Deutschland sind noch sieben Kernkraftwerke in Betrieb und 29 wurden dauerhaft stillgelegt.

Wir legen in dieser Arbeit unseren Fokus auf Druckwasserreaktoren, die weltweit mit 299 von 454 Kernkraftwerken der am häufigsten verwendete Reaktortyp sind (IAEO). Auch in Deutschland waren die meisten Kernkraftwerke Druckwasserreaktoren.

Im Gegensatz zu einem Siedewasserreaktor zeichnet sich der Druckwasserreaktor durch hohe Drücke im Reaktordruckbehälter von etwa 150 bar aus, damit das Wasser, welches gleichzeitig als Kühlmittel und Moderator dient, während des regulären Betriebes nicht siedet. Würde das Wasser verdampfen, käme auch die Moderation der Spaltneutronen und damit die gesamte Kettenreaktion zum Erliegen. Dabei kommt meist normales Wasser zum Einsatz, weshalb man auch von Leichtwasserreaktoren spricht. Allerdings wird auch ein geringer Teil der Druckwasserreaktoren weltweit mit schwerem Wasser betrieben (IAEO). Das Kühlmittel wird mit einem sogenannten Neutronengift - in diesem Fall Borsäure - versetzt, das als Neutronenabsorber langfristig die Reaktivität des Reaktors korrigiert.

5.1. Brennstoff

In modernen Kernkraftwerken kommen unterschiedliche Uranbrennstoffe mit Anreicherungen von bis zu 5% und mehr zum Einsatz. In dieser Arbeit konzentrieren wir uns auf einen konventionellen Druckwasserreaktor einer typischen deutschen Baureihe, die klassischen Uranbrennstoff mit einer maximalen Anreicherung von 3,2% verwendet. Andere Brennstoffe wie beispielsweise Mischoxide (MOX) werden in dieser Arbeit nicht betrachtet.

Herstellung und mögliche Verunreinigung des Uranbrennstoffs

Wir werden in den kommenden Abschnitten darauf eingehen, ob ein nennenswerter Beitrag von Argon-37 entsteht, wenn Calcium-40-Atome Neutronen einfangen. Calcium-40 kommt regulär nicht innerhalb eines Reaktors vor, jedoch ist es möglich, dass der Brennstoff selbst geringe Spuren des Isotops enthält. Um eine solche mögliche Verunreinigung zu diskutieren müssen wir unseren Blick zunächst auf das Herstellungsverfahren richten. Das in den Anreicherungsanlagen produzierte Uranhexafluorid (UF_6) wird vor der Weiterverarbeitung zu Urandioxid zwar kontrolliert, allerdings nicht der mögliche Gehalt an Calcium. Der von den Anreicherungsanlagen angegebene Grenzwert für Calcium liegt bei $300 \mu\text{g/g}$. Zur Herstellung des Urandioxids wird im Weiteren ein Prozessgas verwendet, das aus Wasserstoff, Stickstoff und Wasserdampf besteht. Über diesen Prozess tritt also kein Calcium in den Brennstoff ein und der Ablauf verhindert auch

einen möglichen unkontrollierten Eintrag. Die fertigen Urandioxidtabletten werden am Ende auf ihre Produktspezifikationen hin geprüft. Dabei darf der Wert für Calcium $100 \mu\text{g/g}$ nicht überschreiten. Die Jahresauswertung für das Jahr 2014 für das European Commission Joint Research Centre (JRC) in Karlsruhe ergab ein arithmetisches Mittel von $5 \mu\text{g/g}$ und einen maximal gemessenen Wert von $10 \mu\text{g/g}$. (Schnieders, 2018)

Uran-Verunreinigungen im Inneren des Reaktors

Außerhalb des Brennstoffes können ebenfalls Verunreinigungen mit Urandioxid auftreten (Qaim u. a., 1977). Spuren von Uranverbindungen konnten auf der Oberfläche des primären Kühlkreislaufes nachgewiesen werden (Lewis, 1987).

Bei einer Verunreinigung im Brennstoff muss ein Defekt am Hüllrohr vorliegen, damit Spaltgase frei gesetzt werden. Im Falle einer Verunreinigung im Inneren des Reaktors verhält es sich anders, da Spaltprodukte direkt in den Kühlmittelkreislauf übergehen. Für die Freisetzung von Spaltgasen wie Xenon-133 gilt dabei, dass sie im Verhältnis zur kumulativen Spaltausbeute konstant bleibt (Lewis, 1987). Entsteht das Spaltgas allerdings im Brennstoff und muss erst über den Spalt durch einen Riss im Hüllrohr nach außen wandern, wird die Freisetzung von der Zerfallskonstanten abhängen. Mit diesem Kriterium ist es möglich zwischen den beiden Verunreinigungen zu unterscheiden: Ist das Verhältnis von Freisetzung zu Spaltausbeute unabhängig von der Zerfallskonstante, handelt es sich um eine Kontamination mit Uran. Ergibt sich hingegen ein linearer Zusammenhang, dann liegt ein defekter Brennstab vor (Lewis, 1987).

In Kapitel 7 werden wir diese Prozesse und die resultierenden Emissionen detaillierter besprechen.

5.2. Reaktorkern

In dieser Arbeit beziehen wir uns beispielhaft für einen Druckwasserreaktor auf das Kernkraftwerk Biblis C. Die Blöcke A und B sind heute nicht mehr in Betrieb, die Blöcke C und D wurden nie gebaut. Zur Zeit des laufenden Betriebs war das Kraftwerk Biblis eines der leistungsstärksten in Deutschland. Block C war als Konvoi-Anlage (teilweise auch als Baulinie 80 bekannt) geplant. Der Reaktorkern befindet sich im Reaktordruckbehälter und besteht aus 193 Brennelementen, die jeweils 256 Positionen haben, von denen 236 mit Brennstäben und die übrigen 20 mit Steuerstäben besetzt sind.

Brennelement

Die 193 quadratischen Brennelemente befinden sich innerhalb des biologischen Schildes. Sie unterscheiden sich untereinander durch den Grad der Anreicherung des verwendeten Uranbrennstoffs. Für einen frischen Reaktorkern werden drei verschiedene Anreicherungen verwendet: 3,2%, 2,5% und 1,9% Uran-235, wobei sich die niedrigeren Anreicherungsgrade weiter außen befinden. Bei einem Brennelementwechsel werden daher immer nur ein Teil der Brennelemente getauscht und so angeordnet, dass meist ein

Frisches mit einem Bestehenden benachbart ist.

Ein Brennelement des Blocks Biblis C verfügt über 16 mal 16 Positionen, an denen sich entweder Brenn- oder Steuerstäbe befinden. Andere Druckwasserreaktoren verfügen pro Brennelement über 18 mal 18 Positionen.

Brennstab

Der Brennstab ist ein dünnes Rohr aus einer Zirkonlegierung, in dem sich die Brennstofftabletten aus Uranoxid befinden. Da wir kein dreidimensionales Modell erstellen, ist die genaue Abmessung der Tabletten für unsere Betrachtungen nicht relevant. Am Ende des Brennstabes befinden sich Gasräume, in denen die während des Betriebs entstehenden Spaltgase verbleiben. Dieser Bereich ist mit einem Endstopfen gasdicht und druckfest verschweißt, so dass Spaltgase nur entweichen können, wenn feine Risse die Hülle durchlässig machen. (Dieses Szenario wird uns im Kontext der Emissionen in Kapitel 7 beschäftigen).

Kühlmittel

In einem Druckwasserreaktor ist das Kühlmittel gleichzeitig der Moderator: Wasser bremst durch elastische Stöße hochenergetische Spaltneutronen auf thermische Energien ab, so dass sie weitere Spaltreaktionen auslösen können. Wird zu viel Energie frei, heizt sich das Wasser auf, verdampft und steht somit auch nicht weiter zur Moderation der Neutronen zur Verfügung, wodurch die Kernspaltung zum Erliegen kommt, da keine weiteren Neutronen die für Spaltung notwendige Energie aufweisen.

Üblicherweise ist das Wasser eines Druckwasserreaktors zusätzlich mit einem Neutronengift versetzt. In der Baureihe, zu der auch Biblis C gehört hätte, kommt Borsäure zum Einsatz.

Steuerstäbe

Die Steuerstäbe dienen der Leistungsregulierung im Reaktor. Sind sie gänzlich in den Reaktorkern eingelassen, kommt die Kettenreaktion zum Erliegen, denn die nötigen Neutronen werden durch das Absorbermaterial der Steuerstäbe eingefangen. Bei Biblis C ist das Absorbermaterial eine Legierung aus Silber, Indium und Cadmium.

5.3. Betriebszustände

Die Leistung eines konventionellen Kernkraftwerkes ist über die Zeit nicht konstant. Vielmehr kommt es zu Änderungen der Leistung mit der Zeit, welche die Entstehung der unterschiedlichen Nuklide beeinflussen. Daher wollen wir im Folgenden den Betriebszyklus eines Kernkraftwerkes und die dabei auftretenden Leistungsschwankungen betrachten. Anhaltspunkt waren uns konkrete Betriebsdiagramme unterschiedlicher Kernkraftwerke, aus denen wir die häufigsten und repräsentativsten Zustände ausgewählt

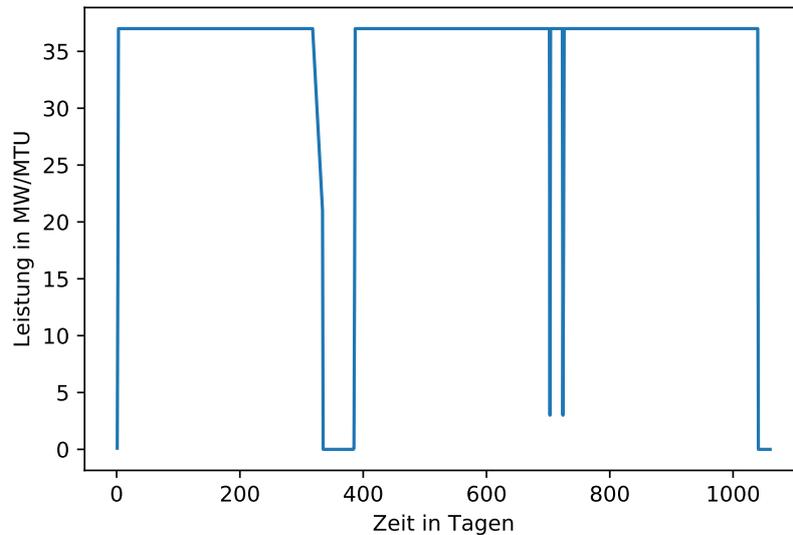


Abbildung 5.1.: Leistungsänderung eines Reaktors über die Zeit. Abgebildet sind von links nach rechts die folgenden Betriebszustände: Anfahren, Gleichgewichtsbetrieb, Streckbetrieb, Ruhezeit, Wiederanfahren und spontane Leistungsabfälle.

haben. Das Ergebnis (siehe Abbildung 5.1) fasst die gängigsten, denkbaren Betriebszustände zusammen (Fachausschuss für Austausch von Betriebserfahrungen, 1992).

Der Zyklus eines Kernkraftwerkes beginnt, wenn der Reaktor mit frischen Brennelementen bestückt ist und angefahren wird. Dabei wird die Leistung aus dem Stillstand über einen relativ kurzen Zeitraum bis zur Nennleistung gesteigert. Beispielhaft haben wir für diesen Prozess in den entsprechenden Modellen zwei Tage angenommen. Anschließend wird der Reaktor (idealerweise) für einen längeren Zeitraum im Gleichgewicht betrieben, hier exemplarisch 315 Tage. Anschließend wird die Leistung sukzessive gedrosselt, bevor der Reaktor komplett heruntergefahren wird. So wird der Brennstoff maximal verwertet, bevor die Brennelemente gewechselt werden. In unserem Beispiel wird die Leistung über einen Zeitraum von 16 Tagen linear auf etwa 60 % der Nennleistung gedrosselt. Für den anschließenden Brennelementwechsel bleibt der Reaktor für 20 Tage ausgeschaltet und wird danach innerhalb von zwei Tagen erneut angefahren. Da der Gleichgewichtsbetrieb bei Nennleistung nicht realistisch ist, haben wir im Weiteren auch abrupte Leistungsänderungen berücksichtigt. Dabei ändert sich die Leistung innerhalb eines Tages um etwa die Hälfte oder weniger.

5.4. Modellerstellung

Um den Abbrand eines solchen Reaktorkerns in Abhängigkeit von der Zeit für verschiedene Betriebszustände zu bestimmen, verwenden wir das in Abschnitt 2.6 beschriebene

Programm SCALE. Wir wollen hier zusätzlich darauf eingehen, wie ein Modell für einen solchen Druckwasserreaktor aussieht und was es dabei zu beachten gilt.

Beschreibung	Radius (außen) in cm	Material
Brennstab		
Brennstoff	0,4555	Urandioxid, 3,2%
Spalt	0,465	Vakuum
Hüllrohr	0,5375	Zirkon
Steuerstab		
Absorber	0,4435	Ag80In15Cd5
Spalt	0,448	Vakuum
Hüllrohr	0,51	rostfreier Stahl

Tabelle 5.1.: Radien der Zylinder von Brenn- und Steuerstab, sowie die enthaltenen Materialien.

Wir verwenden ein zweidimensionales Modell, dessen Geometrie sich exakt an den Daten des Blocks Biblis C orientiert, die in Tabelle 5.1 aufgeführt sind. Der Brennstoff ist in diesem Modell mit 3,2% Uran-235 angereichert. Dies ist der höchste der drei möglichen Anreicherungsgrade für Biblis C, der uns als konservative Abschätzung für den Abbrand dient. Grundsätzlich bezieht sich die Aktivität, die als Ergebnis aus den Modellen hervorgeht, auf die bei der Eingabe spezifizierte Leistung und Masse. In unserem Fall ergibt sich der Abbrand daher als Aktivität pro metrischer Tonne Uran. Zur besseren Vergleichbarkeit der absoluten Werte haben wir aber alle in dieser Arbeit genannten Aktivitäten auf die jeweilige Gesamtmasse des Kerns (103 Tonnen für Biblis C und 8,11 kg für den FRM II) bezogen. Das Ergebnis wird manchmal auch als integrierte Aktivität bezeichnet, wir verzichten allerdings auf diese Bezeichnung, da dies das allgemein übliche Vorgehen ist (siehe z.B. Fay (2014)).

Geometrie

Die Rechenzeit steigt dramatisch mit der räumlichen Größe bzw. dem gewählten Gitter des Modells. Daher ist es unmöglich, den gesamten Reaktor mit allen Brennelementen zu simulieren. Dies ist aber auch nicht nötig, da wir die Symmetrie der Anordnung ausnutzen können. Es genügt, ein Viertel eines einzigen Brennelementes zu betrachten, da dieses punktsymmetrisch zum Mittelpunkt ist. SCALE erlaubt unterschiedliche Randbedingungen, darunter auch eine Konfiguration, bei der Neutronen, die über den Rand hinaus laufen isotrop reflektiert werden. So entsteht neutronenphysikalisch der Eindruck einer kontinuierlichen Aneinanderreihung von Brennelementen.

Einfluss der Nachbarbrennelemente

Der Reaktorkern besteht aus einer gitterförmigen Anordnung vieler Brennelemente. Sie unterscheiden sich durch den Grad ihrer Anreicherung und ihr Alter. Auch ein Erstkern weist unterschiedliche Anreicherungsgrade der einzelnen Brennelemente auf, damit sich nach außen hin eine gleichmäßige Leistungsverteilung ergibt. Die Brennelemente niedriger Anreicherung sind zuerst abgebrannt und müssen demnach auch als erste gegen frische Elemente getauscht werden. Aus diesem Grund unterscheiden sich benachbarte Brennelemente und ihr Beitrag zum Neutronenfluss muss berücksichtigt werden.

Um den Einfluss der Nachbarbrennelemente zu simulieren haben wir betrachtet, welche Nuklide die höchsten Beiträge zum Neutronenfluss liefern und daraus ein Gemisch gebildet, das am äußeren Rand des Brennelementes anliegt. So wird den von außen hinzukommenden Beiträgen zum Neutronenfluss sowie der Absorption Rechnung getragen.

Zu diesem Zweck wurde für ein frisches Brennelement mit der für Biblis C höchsten Anreicherung von 3,2 % der Anteil an Neutronenabsorptionen in der Mitte des zweiten Bestrahlungszykluses für jedes Nuklid bestimmt. Es wurden ausschließlich Nuklide berücksichtigt, deren Anteil an den Neutronenabsorptionen größer als ein Prozent oder im Intervall zwischen 0,1% – 1% liegt. Die erste Gruppe hat dabei einen Anteil von fast 80 % an allen Neutronenabsorptionen, worunter wiederum Uran-235 (mit 25%) den größten Beitrag liefert. Nuklide mit einem Anteil unter 0,1 % können vernachlässigt werden. Für beide Gruppen haben wir eine mittlere Dichte der Nuklide bestimmt und insgesamt entsprechend des Gesamtanteils der jeweiligen Gruppe an den Absorptionen eine mittlere Dichte für die Summe aller Nuklide errechnet. In Programmcode SCLAE wurde aus allen Nukliden mit dieser gemittelten Gesamtdichte ein Gemisch erstellt, das den Einfluss der Nachbarbrennelemente repräsentiert. Eine genaue Liste aller Nuklide sowie ihres Massenanteils am Gemisch findet sich im Anhang A.

5.5. Argon-37 als Spaltprodukt

Bevor wir uns den unterschiedlichen Aktivierungsreaktionen widmen, diskutieren wir in diesem Abschnitt, welche Aktivitäten an Argon-37 und Argon-41 allein als Ergebnis der Kernspaltung zu erwarten sind. Abbildung 5.2 zeigt den zeitlichen Verlauf für unterschiedliche Betriebszustände beider Isotope. Da Argon-41 durch die zusätzlichen Neutronen die leicht höhere Masse hat, wird es als Spaltprodukt etwas häufiger gebildet. Außerdem hat es durch die geringere Halbwertszeit eine höhere Aktivität. Für beide Isotope ist die Aktivität so gering, dass sie vernachlässigbar ist. Argon-37 und Argon-41 als Spaltprodukte sind daher für uns nicht relevant, und wir werden im folgenden andere Entstehungsprozesse für die radioaktiven Isotope diskutieren.

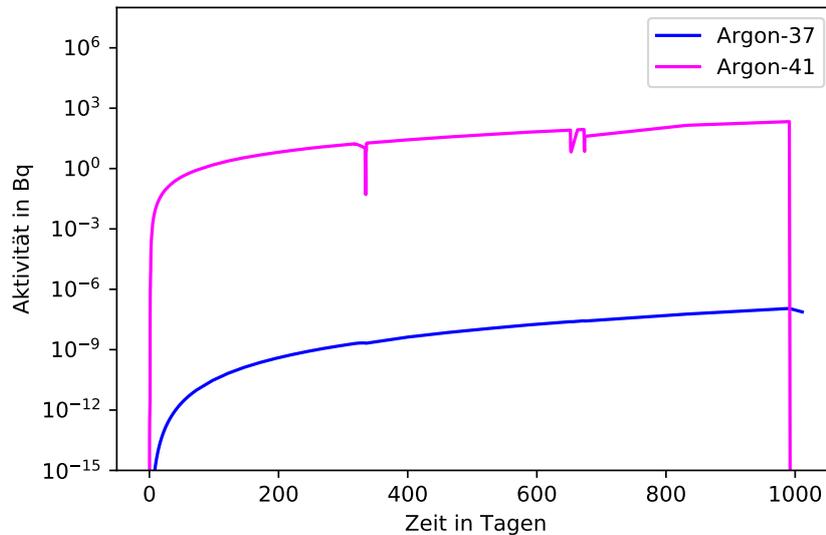


Abbildung 5.2.: Aktivitäten von Argon-37 und Argon-41 für unterschiedliche Betriebszustände, die ausschließlich auf die Produktion als Spaltprodukte und nicht auch Aktivierungsprozesse zurückgeht.

5.6. Argon-36 im Kühlmittel

Wird der Reaktordruckbehälter geöffnet, haben die Brennelemente im Wasser Kontakt zu Luft, die entsprechend der natürlichen Zusammensetzung auch Argonisotope enthält. Die zentrale Frage, der wir hier nachgehen ist, wie viel des im Kühlwasser gelösten Argon-36 durch Aktivierungsprozesse zu Argon-37 gewandelt wird und welche Beiträge aus diesem Produktionspfad für den Argon-37-Gehalt im Reaktor zu erwarten sind.

5.6.1. Bestimmung der Löslichkeit

Bevor wir uns in vollem Umfang dem Auswertungsteil dieses Kapitels widmen können, müssen wir einer entscheidenden Vorüberlegung nachgehen. Im nächsten Abschnitt beschäftigen wir uns mit der Frage, wie viel Argon-37 entsteht, wenn das im Kühlwasser gelöste Argon-36 durch den Neutronenfluss aktiviert wird.

Die Löslichkeit von Gasen in Flüssigkeiten hängt von mehreren Parametern ab. Argon ist als Edelgas chemisch inert und löst sich daher besser bei niedrigen Temperaturen. Mit höheren Temperaturen steigt die kinetische Energie der Teilchen, was der Löslichkeit der Edelgase entgegen wirkt.

Ändert sich der Druck, ändert sich entsprechend auch der Anteil der Atome, die in Lösung übergehen: Je höher der Druck, desto mehr Gasatome werden gelöst. Hier ist der Partialdruck zu betrachten, denn er beschreibt den relevanten Anteil an Argonatomen an der Gesamtheit. Grundsätzlich haben alle Gasatome isotrope Geschwindigkeitsvektoren. Erhöht sich der Partialdruck, gehen mehr Argonatome in Lösung, die allerdings

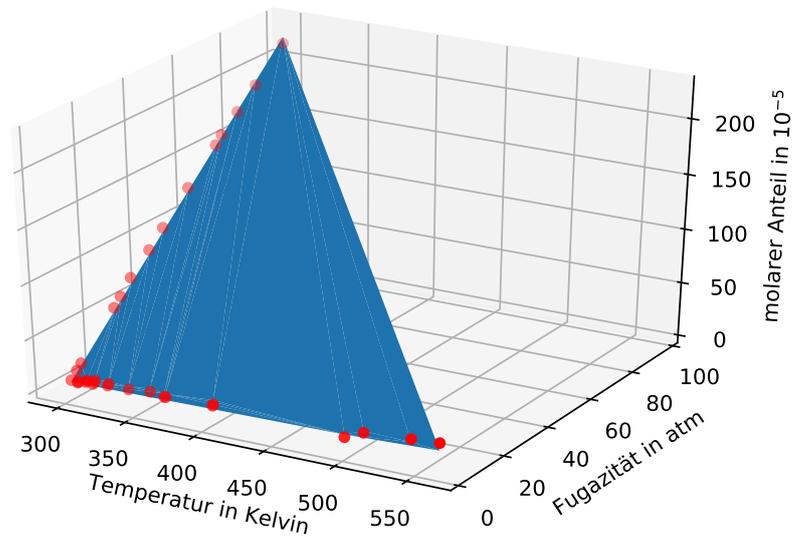


Abbildung 5.3.: Molarer Anteil an gelöstem Argon in Wasser in der Abhängigkeit von Druck und Temperatur. Dargestellt sind die experimentell von Kennan u. Pollack (1990) und Potter u. Clynne (1978) ermittelten Werte (rot) sowie die Ebene, die den Verlauf der Werte im Parameterraum wiedergibt (blau).

auch wieder entweichen können. Dieses Verhältnis wird durch die Konstante K_H beschrieben. Sie hängt ab von der Lösung, der gelösten Substanz und der Temperatur. Die Konzentration c wird also bestimmt aus dem Verhältnis des Partialdrucks p (eingehende Teilchen) sowie der Konstante K_H (entweichende Teilchen). Diese Beziehung ist das Henry-Gesetz. Streng genommen gilt es nur für ideale Gase, wir betrachten die Abweichungen von diesem Zustand aber als vernachlässigbar.

Temperatur und Druck haben also einen gegenteiligen Effekt auf die Löslichkeit. Für die weiteren Modellrechnungen ist es unser Ziel, einen Wert für den Anteil des gelösten Argon-36 zu finden. In der Literatur finden sich nur wenige Messungen der Löslichkeit bei hohen Drücken oder Temperaturen (Kennan u. Pollack, 1990; Potter u. Clynne, 1978). Tatsächlich entsprechen keine der experimentellen Bedingungen denen im Druckwasserreaktor. Wir haben daher die Werte aus Kennan u. Pollack (1990) und Potter u. Clynne (1978) kombiniert, um einen mehrdimensionalen Zusammenhang zwischen Druck, Temperatur und molarem Anteil zu ermitteln, der in Abbildung 5.3 dargestellt ist. Die Autoren betrachten jeweils die Fugazität, in der Näherung des idealen Gases entspricht diese Größe dem Partialdruck.

Für den Fit haben wir einen polynomialen Ansatz der Form gewählt:

$$\frac{z}{10^{-5}} = z_0 + a \cdot \frac{T}{K} + b \cdot \frac{p}{atm} \quad (5.1)$$

mit

z molarer Anteil (in 10^{-5})

T Temperatur in Kelvin

p Fugazität (bzw. den Partialdruck) in Atmosphären

Wir erhalten folgende Werte für die einzelnen Parameter:

$$z_0 = -6,8 \pm 2,8 \quad (5.2)$$

$$a = 0,021 \pm 0,008 \quad (5.3)$$

$$b = 2,324 \pm 0,021 \quad (5.4)$$

Bei einer Temperatur von 598,2 Kelvin und einem Druck von 153 atm ergibt sich aus Gleichung (5.1) ein molarer Anteil $z = (361,2 \pm 2,8) \cdot 10^{-5}$, der dem molaren Anteil von Argon an Wasser entspricht. Daraus lässt sich mit den molaren Massen M leicht der Massenanteil von Argon an Wasser (mit den jeweiligen Massen m) errechnen:

$$\frac{m_{\text{Ar}}}{m_{\text{H}_2\text{O}}} = z \cdot \frac{M_{\text{Ar}}}{M_{\text{H}_2\text{O}}} \quad (5.5)$$

Als Input für die Modellerstellung benötigen wir allerdings den Massenanteil von Argon-36 (beziehungsweise Argon-40) am Wasser, in dem es gelöst ist. In Luft hat das Isotop Argon-36 einen Anteil von 0,3336% am gesamten Gemisch der Argonisotope, Argon-40 macht 99,60 % aus (KAERI). Mit den molaren Massen für Argon-36, Argon-40 und Wasser erhalten wir die Massenanteile der gelösten Isotope, die wir im Weiteren als Eingabewerte für die Modellrechnung verwenden:

$$\frac{m_{\text{Ar36}}}{m_{\text{H}_2\text{O}}} = (2,164 \pm 0,017) \cdot 10^{-5} \quad (5.6)$$

$$\frac{m_{\text{Ar40}}}{m_{\text{H}_2\text{O}}} = (8,01 \pm 0,06) \cdot 10^{-3} \quad (5.7)$$

Damit ist der Anteil an gelösten Argon-Isotopen im Kühlmittel bei Betriebsbedingungen deutlich höher als bei Normalbedingungen (für 20° C und 1 bar $\frac{m_{\text{Ar}}}{m_{\text{H}_2\text{O}}} = 6,2 \cdot 10^{-5}$). Hierzu ist abschließend anzumerken, dass der Deckel des Reaktordruckbehälters nach einem Brennelementwechsel verschlossen bleibt, und das Kühlmittel daher vermutlich zu keinem Zeitpunkt mit Argon luftgesättigt ist. Aus diesem Grund verwenden wir bei den entsprechenden Szenarien Standardbedingungen für die Löslichkeit (siehe dazu auch Kapitel 7).

5.6.2. Ergebnisse der Modellrechnungen zur Aktivierung des Kühlmittels

Betrachten wir nun die Aktivitäten, die sich aus den Modellrechnungen ergeben. Abbildung 5.4 liegen die zuvor beschriebenen Betriebszustände (siehe Abschnitt 5.3 und Abbildung 5.1) zugrunde, daher ergeben sich verschiedene Leistungsänderungen. Aufgrund ihrer unterschiedlichen Halbwertszeiten reagieren die Isotope unterschiedlich sensibel. Obwohl bei einem Betrieb mit konstanter Leistung das gleiche Verhalten zu erkennen

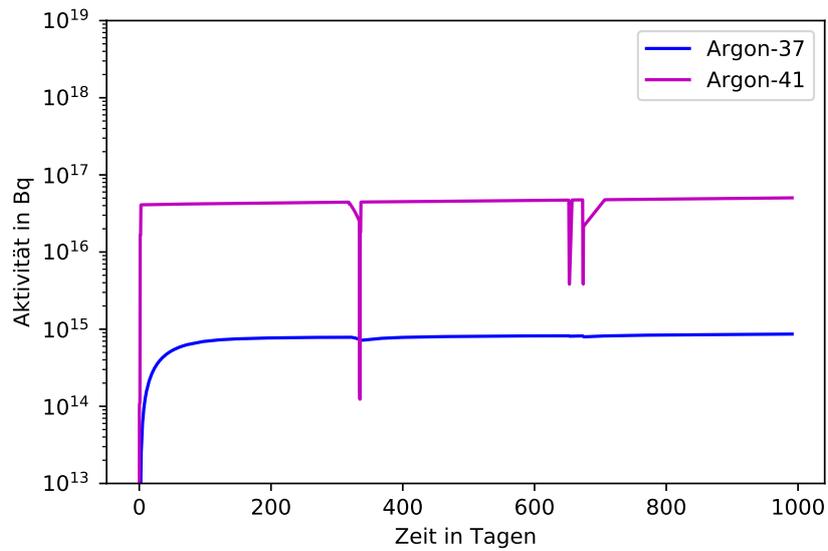


Abbildung 5.4.: Aktivität der Argonisotope Argon-37 in blau und Argon-41 in magenta über die Zeit für verschiedene Betriebszustände. Zugrunde liegt die Aktivierung von stabilem Argon-36 und Argon-40, das aus der Raumluft in Lösung ins Kühlmittel übergeht.

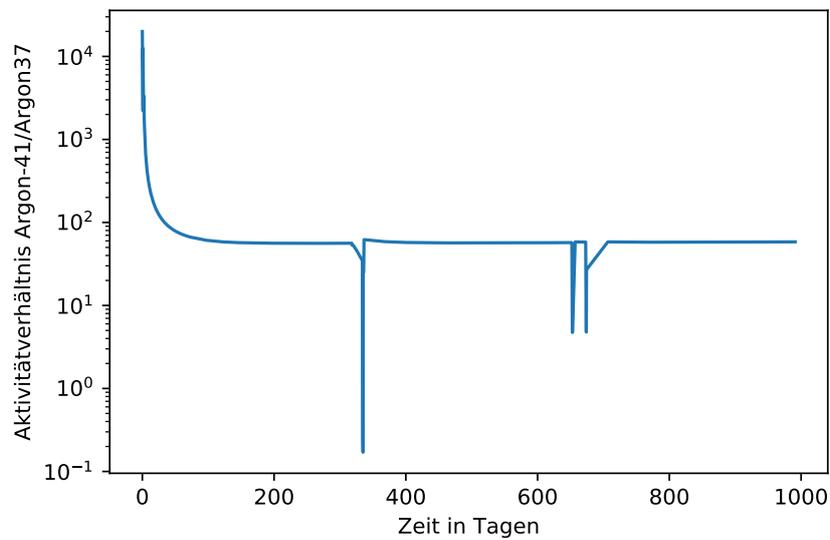


Abbildung 5.5.: Das Verhältnis der Aktivität von Argon-41 zu Argon-37 über die Zeit für Aktivitäten, die aus dem Aktivierungsprozess im Wasser resultieren für verschiedene Betriebszustände.

ist, ist die Aktivität von Argon-41 – wie wir erwartet haben – direkter mit der Leistung verknüpft, während die Aktivität von Argon-37 eine gewisse Verzögerung zeigt. In den Bereichen der Leistungsänderung ist das Verhältnis daher nicht verlässlich, wenn es darum geht, von einem Isotop auf das andere oder auf den Produktionspfad zu schließen. Insgesamt erhalten wir als Ergebnis der Berechnung der Aktivität von Argon-37, die auf die Aktivierung des im Kühlmittel gelösten Argon-36 zurückgeht, etwa $7 \cdot 10^{14}$ Bq (im Gleichgewicht). Analog ergibt sich für Argon-41 eine Aktivität von etwa $4 \cdot 10^{16}$ Bq.

Abbildung 5.5 zeigt das Verhältnis der Aktivitäten von Argon-41 und Argon-37. Durch die niedrigere Halbwertszeit erreicht Argon-41 bereits nach kurzer Zeit einen Gleichgewichtszustand, wodurch sich der hohe Anfangswert erklärt. Diese Dynamik dominiert in allen Fällen von Leistungsänderungen, weshalb das Verhältnis der beiden Isotope keine verlässlichen Aussagen zulässt.

5.7. Calcium im Brennstoff

Ein weiterer wichtiger und möglicher Produktionspfad für Argon-37 ist der Alpha-Zerfall von Calcium-40-Atomen, nachdem diese ein Neutron eingefangen haben. Eine Calcium-Verunreinigung ist an unterschiedlichen Stellen denkbar, hier diskutieren wir zunächst die bereits in Abschnitt 5.1 angesprochene mögliche Verunreinigung innerhalb des Brennstoffs. Ein realistischer Messwert des deutschen Brennstoffherstellers Framatome liegt bei 5 ppm Calcium-40 (Schnieders, 2018).

Im Unterschied zu den zuvor betrachteten Rechnungen zur Aktivierung der stabilen Argonisotope der Luft entsteht über die spezifische Reaktion Calcium-40 (n, α) Argon-37 kein Argon-41. Daher ist für uns in diesem Abschnitt ausschließlich das Isotop Argon-37 interessant. Abbildung 5.6 zeigt den zeitlichen Verlauf der Aktivität, die aus einer Verunreinigung des Urandioxides mit 5 ppm Calcium-40 folgt. Die kleineren Schwankungen ergeben sich in Folge der Leistungsänderungen, die in Abschnitt 5.3 besprochen wurden. Während des Streckbetriebs über mehrere Tage, auf den ein Stillstand des Reaktors folgt, sinkt die Argon-37 Aktivität zwar ein wenig, die Größenordnung ändert sich allerdings aufgrund der langen Halbwertszeit nicht. Bleibt die Leistung während des Betriebs im Gleichgewichtszustand konstant, erhalten wir eine Aktivität von etwa $2 \cdot 10^{13}$ Bq für diesen Produktionspfad.

Um diese Aktivität in Beziehung zu anderen Isotopen zu setzen – was besonders in Hinblick auf eine Messung von Interesse ist – bietet sich in diesem Kontext ein Xenonisotop an, da keine weiteren Argonisotope gebildet werden. Wir haben uns für das Isotop Xenon-133 entschieden, da es im Kontext von globalen Edelgasmessungen zur Verifikation öfter und eindeutiger nachweisbar war als die übrigen Xenonisotope. Xenon entsteht als Produkt der Kernspaltung beziehungsweise anschließender Zerfallsketten und nicht durch den Neutroneneinfang des Calcium-40 und ist daher vom Wert der Verunreinigung unabhängig. Insgesamt ergibt sich eine Aktivität von etwa $5 \cdot 10^{18}$ Bq, die sensitiv auf Leistungsänderungen reagiert, da Xenon eine geringere Halbwertszeit von 5,2475 Tagen hat (KAERI).

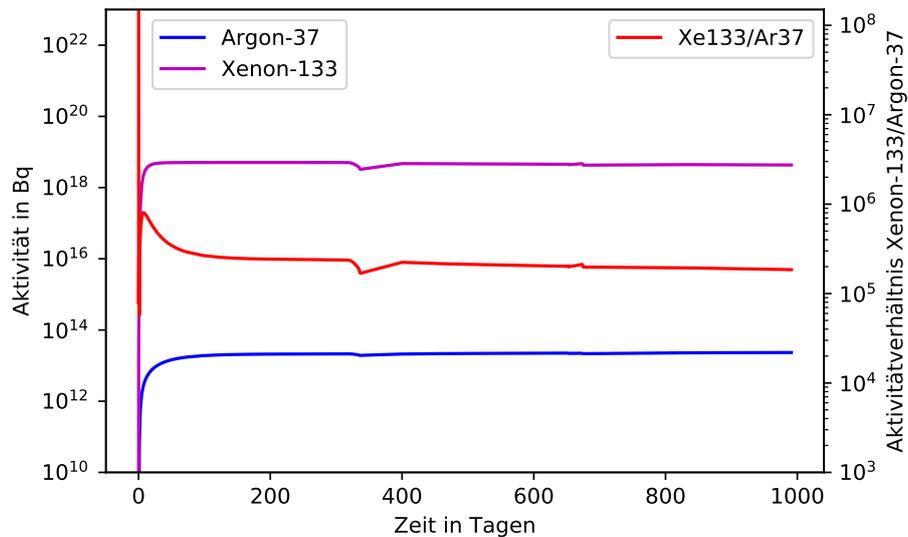


Abbildung 5.6.: Aktivität von Argon-37 für verschiedene Betriebszustände in blau und für Xenon-133 in magenta. Das Verhältnis der beiden Aktivitäten ist in rot dargestellt. Zugrunde liegt eine Verunreinigung des Brennstoffes mit 5 ppm Calcium.

Für beide Isotope ist anzumerken, dass sie zunächst im Brennstoff, in dem sie entstehen, eingeschlossen bleiben. Die weiteren Prozesse, über die sie in geringen Konzentrationen entweichen können, werden uns in Kapitel 7 beschäftigen.

Abbildung 5.6 zeigt das Verhältnis von Xenon-133 zu Argon-37 für den eben betrachteten Fall einer Verunreinigung mit 5 ppm Calcium-40. Gerade beim Anfahren des Reaktors dominiert das Xenon-133 gegenüber dem Argon-37, da die Aufbaurrate höher ist. Ändert sich während des Betriebes die Leistung, dominiert Xenon-133 aufgrund der niedrigeren Halbwertszeit, ansonsten ist das Verhältnis zeitlich konstant.

5.8. Calcium im Hüllrohr

Der Brennstoff des Reaktors ist von einem Hüllrohr aus Zirkon umgeben. Bei dessen Herstellung kann es passieren, dass es ebenfalls mit geringen Spuren von Calcium-40 verunreinigt wird. Dieser Prozess ist auch deshalb interessant, weil das Hüllrohr in direktem Kontakt zum Kühlmittel steht und so eine entsprechende Kontamination auch außen zur Produktion von Argon-37 führen würde. Ein entsprechender Beitrag wäre zunächst kontinuierlich und nicht wie im Falle des im Brennstoff eingeschlossenen Gases nur im Falle von defekten Brennstäben messbar.

Wir verwenden als Ausgangspunkt analog zu den vorangegangenen Überlegungen einen Wert von 5 ppm Calcium-40, daraus resultiert eine Aktivität im Gleichgewichtsbetrieb von etwa $3 \cdot 10^{12}$ Bq.

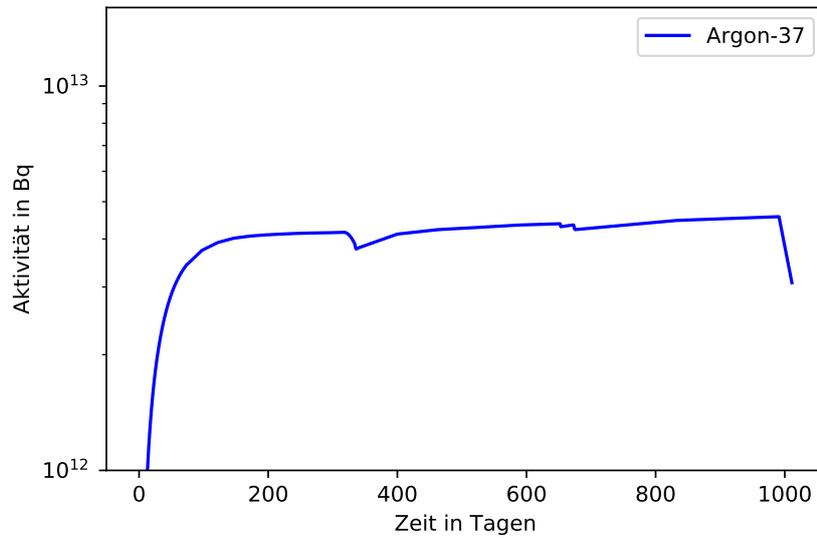


Abbildung 5.7.: Aktivität von Argon-37 über die Zeit für unterschiedliche Betriebszustände. Zugrunde liegt eine Verunreinigung des Hüllrohrs mit Calcium-40.

Wie bereits beschrieben entsteht bei dieser Reaktion mit Calcium kein Argon-41. Da Argon-37 nur aus den äußersten Bereichen des Hüllrohrs austreten kann ist die effektive Aktivität, die tatsächlich ins Kühlmittel gelangt geringer.

5.9. Variation der Eingabewerte

Die größte Unsicherheit der Ergebnisse kommt durch die Abschätzung der zugrunde liegenden physikalischen Größen zustande, die in ein Modell eingehen. Aus der Modellrechnung selbst resultiert kein Fehler. Allerdings sind die Werte, die eingangs dafür verwendet wurden, entweder nur Abschätzungen (beispielsweise der Gasgehalt im Kühlmittel) oder genau bekannt, aber dann nur für einen speziellen Fall gültig (Geometrie des Reaktorkerns Biblis C). Aus diesem Grund wollen wir in diesem Abschnitt genauer auf die Variation all dieser Größen eingehen. Für ein besseres Verständnis der unterschiedlichen Einflüsse haben wir ein Gitter aus unterschiedlichen Input-Werten erstellt und werden deren Auswirkung auf Argon-37-Produktion beziehungsweise Neutronenspektrum und Leistungsverteilung untersuchen. Die folgenden Größen wurden variiert: Leistung, Anreicherung, Geometrie und Argon-36 Gehalt im Kühlmittel. Als Referenzmodell betrachten wir stets das bereits diskutierte Modell zur Aktivierung von Argon-36 im Kühlmittel, mit den in Gleichung (5.7) bestimmten Massenanteilen, da dies ein wahrscheinlicher Produktionspfad mit hoher Aktivität ist. Unser Ziel ist es hier, neben der Variabilität der verwendeten Größen auch den Einflussbereich von

Druckwasserreaktoren jenseits der Spezifika von Biblis C zu quantifizieren und so zu bestimmen, was sich aus einem weiteren Horizont der Möglichkeiten ergibt.

Variation der Anreicherung

Der Reaktor setzt sich aus Brennelementen in unterschiedlichen Abbrandgraden und (für den Erstkern) Anreicherungen zusammen. Wir haben diese Inhomogenität durch den Einfluss der Nachbarbrennelemente Rechnung getragen. Das simulierte Brennelement hat eine Anreicherung von 3,2%, größere und modernere Anlagen haben aber teils höhere Anreicherungsgrade. Aus diesem Grund haben wir den Einfluss von vier unterschiedlichen Anreicherungsgraden auf die Kenngrößen der Argon-37 Produktion untersucht.

Für eine niedrige Anreicherung (hier 2%) erkennt man in Abbildung 5.8 deutlich einen relativ konstanten Verlauf der Aktivität entgegen dem leichten linearen Anstieg für höhere Anreicherungen. Dieser Anstieg ist auf bei der Spaltung entstandene Plutoniumisotope zurückzuführen, die das Spektrum härten und zu höheren Energien verschieben. Für ein tieferes Verständnis werfen wir einen Blick auf die Neutronenflussdichte: Aus Abbildung 5.9 wird deutlich, dass die thermische Neutronenflussdichte im Moderator um so niedriger ist, je höher der Anreicherungsgrad ist. Dies erklärt sich dadurch, dass aus Uran-235 als thermisch spaltbares Material hochenergetische Spaltneutronen im Spektrum folgen. Je größer der Anteil an Uran-235, desto mehr verschiebt sich das Spektrum zu Gunsten der Spaltneutronen bei hohen Energien. Stehen weniger thermische Neutronen zur Verfügung, entsteht auch entsprechend weniger Argon-37.

Variation der Leistung

Biblis C ist für eine thermische Nennleistung von 3765 Mega Watt ausgelegt. Je nach Größe und Auslegung des Kerns haben andere Anlagen höhere oder niedrigere Leistungen, die das Neutronenspektrum und damit auch die Argon-37 Produktion bestimmen. Wir haben die Leistung in einem für Druckwasserreaktoren typischen Bereich variiert (IAEO), um quantitativ den linearen Zusammenhang zwischen Leistung und Argon-37 Aktivität darzustellen (siehe Abbildung 5.8). Dies begründet sich damit, dass die Neutronenflussdichte linear von der Leistung abhängt und dieser Zusammenhang so im Simulationsprogramm implementiert ist.

Variation des Argon-36 im Kühlmittel

Wir haben den im Kühlwasser gelösten Massenanteil an Argon-36 in Abschnitt 5.6 zu $(2,164 \pm 0,017) \cdot 10^{-5}$ bestimmt (siehe Gleichung (5.7)). Aus der Berechnung durch den Fit resultiert bereits ein Fehler, aber auch externe Einflüsse wie die Kühlmittelreinigung und -entgasung oder Luftwechselzahlen können den Gasgehalt im Wasser maßgeblich verändern. (Siehe dazu auch Kapitel 7). Wir haben daher den ermittelten Wert über mehrere Größenordnungen geändert, um eine weitreichende Abschätzung

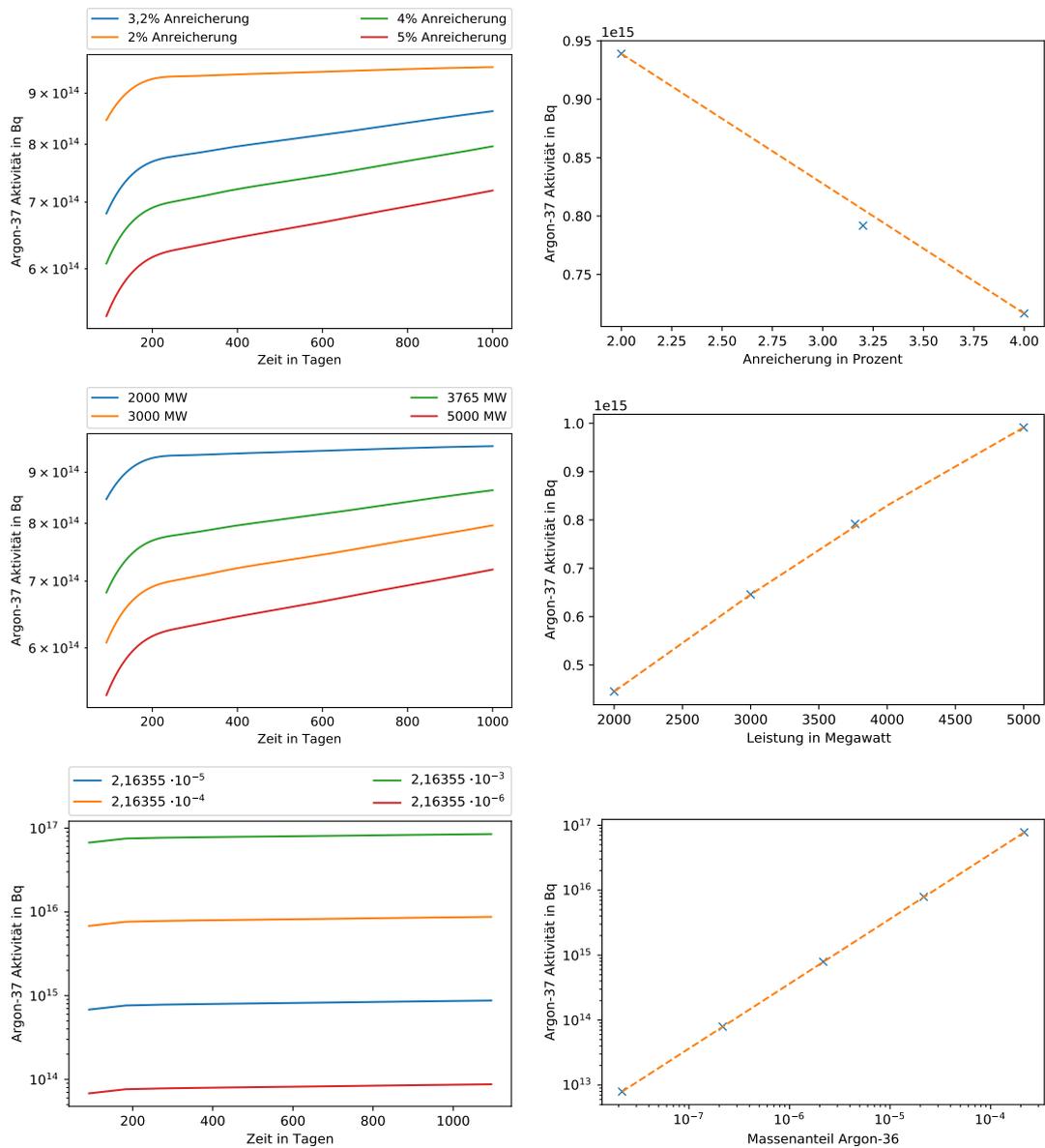


Abbildung 5.8.: Argon-37 Aktivität in Abhängigkeit der drei Parameter Anreicherung (oben), Leistung (Mitte) und Massenanteil Argon-36 (unten). Links ist die zeitliche Abhängigkeit dargestellt, rechts die Unterschiede der Aktivität für unterschiedliche Werte des jeweiligen Parameters zu einem festen Zeitpunkt (136 Tage, Gleichgewichtsbetrieb).

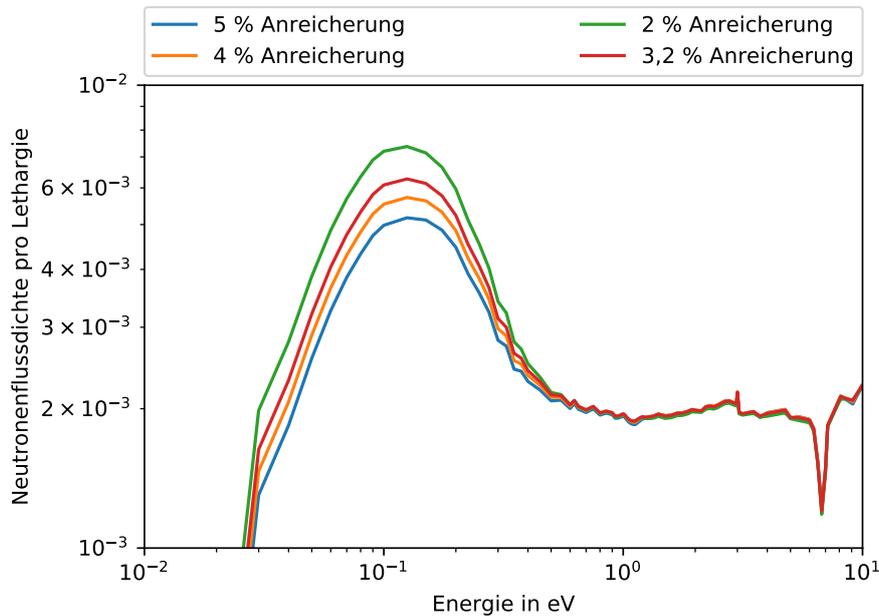


Abbildung 5.9.: Ausschnitt aus dem Energiegruppenspektrum für vier unterschiedliche Anreicherungsgrade.

über eine mögliche Schwankung zu erhalten. Da wir hier die Aktivierungsreaktion von Argon-36 im Wasser betrachten, wird der Gasgehalt direkten Einfluss auf die entstehende Menge Argon-37 haben. In Abbildung 5.8 sehen wir diesen linearen Zusammenhang, der direkt aus Gleichung (2.13) folgt, bestätigt und haben ihn im relevanten Bereich quantifiziert.

Für eine veränderte Geometrie von einem 18 x 18 Brennelement finden wir keine signifikanten Unterschiede zu einem 16 x 16 Brennelement. Wir haben in diesem Fall das gleiche Absorbermaterial verwendet, um nur eine Größe zu variieren und konsistent zu bleiben. Allerdings haben vorangegangene Modellrechnungen gezeigt, dass es keine nennenswerten Unterschiede gibt, wenn stattdessen Gadoliniumoxid – eines der verbreitetsten Absorbermaterialien in Druckwasserreaktoren – zum Einsatz kommt. Daher sind unsere Ergebnisse gut auf andere Druckwasserreaktoren übertragbar.

5.10. Zusammenfassender Überblick über die Ergebnisse zum Druckwasserreaktor

In diesem Kapitel haben wir untersucht, welche Aktivitäten für Argon-37 für verschiedene Produktionspfade in einem Druckwasserreaktor beispielhaft nach dem Vorbild des Kernkraftwerks Biblis Block C zu erwarten sind.

Die beiden wesentlichen Produktionspfade für Argon-37 in einem Druckwasserreaktor sind die Aktivierung des im Kühlmittel gelösten Argon-36 und die Produktion über eine

Verunreinigung des Brennstoffes mit Calcium-40. Die Ergebnisse zu den Aktivitäten über die unterschiedlichen Entstehungspfade sind in Tabelle 5.2 zusammengefasst.

Produktionspfad	Massenanteil	Aktivität in Bq
Aktivierung Argon-36	$2,16355 \cdot 10^{-5}$	$7 \cdot 10^{14}$
Calcium-40 im Brennstoff	$5 \cdot 10^{-6}$	$2 \cdot 10^{13}$
Calcium-40 im Hüllrohr	$5 \cdot 10^{-6}$	$3 \cdot 10^{12}$

Tabelle 5.2.: Aktivität von Argon-37 für unterschiedliche Entstehungsprozesse in einem Druckwasserreaktor bei Betrieb im Gleichgewichtszustand.

Alle genannten Ergebnisse stellen die Aktivitäten innerhalb des Reaktors da. Für die Aktivierung des Kühlmittels ist das Argon-37 weiterhin im Kühlmittel gelöst. Nimmt man hingegen eine Verunreinigung des Brennstoffes an, verbleibt das Gas zunächst im Brennstab. Nur im seltenen Fall eines Hüllendefekts des Brennstabes gelangt es in entsprechend geringen Mengen kontinuierlich in den umgebenden Moderator. Die Quelle für Argon-37 kann anhand der Beziehung zu anderen Isotopen abgeschätzt werden: Im Falle der Aktivierung der stabilen Argon-Isotope im Wasser erwarten wir ein Verhältnis von Argon-41 / Argon-37 von etwa 100. Entsteht es allerdings über die Aktivierung von Calcium-40, wird kein Argon-41 gebildet. Aus einem defekten Brennstab würde ebenfalls Xenon-133 entweichen, dafür erwarten wir ein Verhältnis Xe-133 / Argon-37 von etwa $1 \cdot 10^5$.

Das weitere Schicksal der radioaktiven Gase wird uns in Kapitel 7 beschäftigen, dort werden wir im Detail der Frage nachgehen, welche Aktivitäten tatsächlich an die Umwelt abgegeben werden.

6. Argon-37 im FRM II

Die Aufgabe, die wir uns stellen sollten, ist nicht, uns sicher zu fühlen, sondern in der Lage zu sein, Unsicherheiten zu tolerieren.

Erich Fromm

Der Forschungsreaktor München II (FRM II) ist an der technischen Universität München am Standort Garching angesiedelt. Er dient sowohl industriellen als auch wissenschaftlichen Experimenten, Untersuchungen und Anwendungen. Der Nachfolger des Forschungsreaktor München ist insbesondere auf die Bestrahlung von Proben in Strahlrohren mit thermischen Neutronen ausgerichtet. Aus diesem Grund wurde der Reaktor so konzipiert, dass ein hoher thermischer Neutronenfluss in einem großen Volumen außerhalb des Reaktorkerns zur Verfügung steht (Axmann u. a., 1997; Englert, 2010).

Ungewöhnlich im Hinblick auf den internationalen Durchschnitt ist die nach wie vor hohe Anreicherung des Brennstoffes im Brennelement: Zur Zeit wird ein Brennelement aus 8,11 kg Uran mit einer Anreicherung von 93% verwendet, obwohl seit mehreren Jahrzehnten eine Umrüstung des Kerns hin zu niedrig angereichertem Uran diskutiert wird (Englert, 2010). Die Herausforderung bei dieser Umrüstung besteht darin, einen neuartigen Brennstoff zu entwickeln, der weiterhin hohe Neutronenflüsse bei einer kompakten Größe des Kerns zur Verfügung stellen kann.

Wir haben im vorangegangenen Kapitel bestimmt, wie Argon im Reaktor eines konventionellen Kernkraftwerkes entsteht. In diesem Kapitel wollen wir diskutieren, welche Produktionspfade für einen Forschungsreaktor mit hoher Anreicherung und damit hohem Fluss relevant sind und welche Mengen Argon-37 dabei entstehen.

Wir werden damit beginnen, den Reaktor und den verwendeten Brennstoff zu beschreiben und zukünftige Entwicklungen ansprechen. Anschließend werden wir anhand von Modellrechnungen abschätzen, wie viel Argon-37 über unterschiedliche Produktionspfade entstehen kann. Ein Vergleich mit Messwerten erlaubt uns die Prozesse im Forschungsreaktor präzise zu verstehen.

6.1. Brennstoff

Eine umfassende Darstellung der (möglichen) Brennstoffe und des Aufbaus des FRM II findet sich bei Englert (2010), der wir auch hier weitestgehend folgen werden. Abhängig von der Geometrie und der Anreicherung des Brennstoffes ergibt sich der Neutronenfluss und der entsprechende Abbrand. Der Uranbrennstoff hat uns bereits im Zusammenhang mit Druckwasserreaktoren beschäftigt (siehe Kapitel 5) und wir haben in

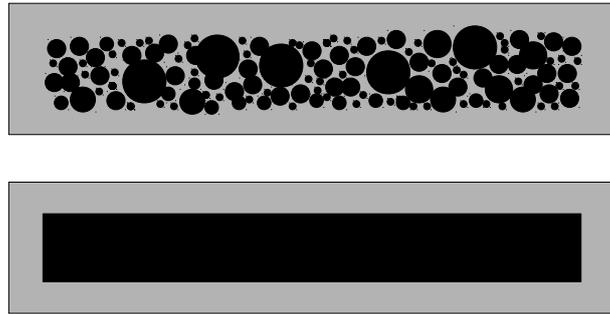


Abbildung 6.1.: Schematische Darstellung eines Dispersionsbrennstoffs (oben) mit einzelnen Uranteilchen (schwarz) in Aluminium (grau) und eines monolithischen Brennstoffs (unten), der aus einer durchgehenden Brennstoffolie besteht.

Abschnitt 5.7 diskutiert, dass ein möglicher Produktionspfad für Argon-37 die Verunreinigung mit Calcium-40 sein kann. Um zu sehen, ob diese Reaktion auch für den FRM II relevant ist, müssen wir die genaue Beschaffenheit des Brennstoffes im Forschungsreaktor betrachten, der sich von den Brennstofftabletten eines Druckwasserreaktors unterscheidet.

Zur Zeit kommt im FRM II disperses Uransilizid als Brennstoff zum Einsatz, das von Aluminium umhüllt ist. Das Uran ist also in pulverisierter Form in das umhüllende Material eingebracht. Abbildung 6.1 zeigt schematisch den Unterschied zwischen dispersen und monolithischen Brennstoffen, der für die zukünftige Verwendung im FRM II relevant ist. Im Gegensatz zu früheren Uran-Aluminium-Brennstoffen kann so eine höhere Uranpackungsdichte erlangt werden (Krieger, 2013). Insgesamt enthält der Kern 8,11 kg Uransilizid mit einer Anreicherung von 93% (Englert, 2010).

In Zukunft wird angestrebt, den Reaktor mit einer niedrigeren Anreicherung zu betreiben. Damit trotz geringerem Uran-235 Gehalt der hohe Neutronenfluss erhalten bleibt, wird an neuartigen Brennstoffen geforscht. Bislang zeigen Ergebnisse zu dispersen Brennstoffen allerdings ein sonderbares Schwellverhalten an der Interaktionsschicht zwischen Uran und Aluminium (Ripert u. a., 2008), (Petry u. a., 2008). Gase wären dann nicht mehr von Brennstoff und Ummantelung umschlossen und könnten entweichen.

Eine genauere Darstellung über die unterschiedlichen Brennstoffe, die Pläne zur Umrüstung und einer möglichen Abreicherung, bei der auch Gase freigesetzt werden könnten, findet sich in Anhang A.

6.2. Reaktorkern

Der Aufbau des Reaktorkerns des FRM II unterscheidet sich fundamental von dem eines Leistungsreaktors. Im Forschungsreaktor wird lediglich ein einzelnes, zylindrisches Brennelement verwendet, das sich in einem Becken mit schwerem Wasser als Moderator befindet. Als Brennstoff kommt Uransilizid (U_3Si_2) mit einer Anreicherung von 93% zum Einsatz, das in eine Aluminiummatrix verbracht ist. Insgesamt gibt es 113 Platten mit Brennstoff, die sich evolutenformig zwischen zwei Hüllrohren befinden und mit Wasser gekühlt werden. Die Brennstoffplatte selbst hat eine Sandwich-Struktur: Das 1,36 mm starke Uransilizid ist auf beiden Seiten von einer 0,36 mm starken Schicht Aluminium umgeben. Um das Leistungsspektrum nach außen zu glätten wird im äußeren Teil der Brennstoffplatten hochangereichertes Uran mit einer niedrigeren Dichte verwendet. Der Reaktor wird mit einer Nennleistung von 20 MW betrieben und nach 1200 MWd (60 Tage zu je 20 MW) kontrolliert abgeschaltet (Röhrmoser u. Petry, 2009). Während dieser Zeit wird der Absorberstab im Zentrum des Brennelements langsam heraus gezogen, um eine kontinuierliche Leistungsverteilung zu erhalten.

Moderator

Das Brennelement befindet sich in einem Moderatortank, der mit schwerem Wasser gefüllt ist. Etwa die Hälfte der schnellen Spaltneutronen verlassen das Brennelement und werden im Tank durch das Deuteriumoxid moderiert (Krieger, 2013). Schwerwasser wird verwendet, da so weniger Neutronenabsorptionen stattfinden und die Abbremsleistung für Neutronen geringer ist. Dadurch verschiebt sich das Maximum des Flusses weiter nach außen, weg vom Brennelement, so dass andere Aufbauten, die im Tank installiert werden, dem hohen Fluss ausgesetzt sind. Der Kern selbst ist untermoderiert, es gibt nur einen Kühlpalt mit Wasser zwischen den einzelnen Brennstoffplatten, die Neutronen werden erst im umgebenden Schwerwasser auf thermische Energien abgebremst.

Das Deuteriumoxid ist mit einigen Prozent Wasser verunreinigt. Modellrechnungen nahmen 2 bis 5 Gewichtsprozent Verunreinigung an (Englert, 2010; Röhrmoser, 2010).

Ungestört erreicht der thermische Fluss ein Maximum von $8 \cdot 10^{14}$ Neutronen $\text{cm}^{-2} \text{s}^{-1}$, dieses liegt einige Zentimeter außerhalb des Brennelements. Das Verhältnis von thermischem Fluss zu Leistung ist damit eines der höchsten auf der Welt (Axmann u. a., 1997).

Zusätzliche Einbauten im Moderatortank

Um das Brennelement herum gibt es weitere Installationen für unterschiedliche Anwendungen:

- Strahlrohre: Zehn unterschiedliche vertikale Strahlrohre durchziehen den Beton des Reaktorbeckens um Neutronen in die angrenzenden Aufbauten zu führen. Dazu kommen zwei geneigte und ein horizontales Strahlrohr.

- Kalte Quelle: Flüssiges Deuterium dient als Kalte Quelle, die Neutronen zusätzlich auf niedrigere Energien abbremst.
- Heiße Quelle: Graphit dient als Heiße Quelle um besonders hochenergetische Neutronen zur Verfügung zu stellen.
- Uran-Konvertierer: Dieser stellt Spaltneutronen für ein Strahlrohr zu Verfügung.

Für unsere Betrachtungen sind diese zusätzlichen Einbauten nicht von Bedeutung, da wir annehmen, dass der Neutronenfluss nicht wesentlich geändert wird.

Kenndaten

Der Querschnitt durch das Brennelement unterscheidet sich in der Materialzusammensetzung je nach Höhe, in der er betrachtet wird. Hier haben wir den Querschnitt in der Kernmittelebene gewählt, der auch in früheren Arbeiten beschrieben wurde (Englert, 2010; Gaubatz, 1999).

Das Brennelement befindet sich in der Mitte des Moderatortanks und besteht aus mehreren konzentrischen Ringen unterschiedlicher Materialien: Im Zentrum befindet sich der Regelstab aus Hafnium, mit dem die Leistung kontrolliert wird. In dem Abschnitt, der für die hier erstellten Modelle relevant ist – also die Kernmittelebene – ist das Absorbiermaterial allerdings Beryllium. Zusätzlich gibt es im Reaktor fünf Hafnium-Kontrollstäbe, die aber während des normalen Betriebes vollständig aus dem Becken entfernt und daher auch nicht im weiteren Modell berücksichtigt werden. Im Brennelement folgt weiter außen die Aktive Zone, in der sich 113 gebogene Brennstoffplatten befinden, die durch Kühlwasserkanäle getrennt sind. Für das Modell sind in diesem Abschnitt besonders der Regelstab, die aktive Zone (mit Brennstoff) und die Aluminiummatrix zu berücksichtigen. Die genauen Abmessungen aller berücksichtigten Komponenten findet sich in Tabelle 6.1.

6.3. Modellkonstruktion

Für den FRM II wurden alle Simulationen mit dem Programm SCALE 6.2.1 ausgeführt. Da die Geometrie des Brennelementes des FRM II deutlich komplexer und unkonventioneller als die der klassischen Leistungsreaktoren ist, waren einige Näherungen notwendig, um den Aufbau des Brennelementes geometrisch zu beschreiben und den Neutronenfluss realistisch abzubilden.

Betrachten wir zunächst die geometrischen Eigenschaften des Brennstoffs: Wir verwenden mehrere konzentrische Zylinder für Brennstoff, Ummantlung und Kühlpalt, die die komplexe Geometrie der Evolventen nachbilden. Insgesamt wurden fünf innere konzentrische Hohlzylinder mit einer hoher Brennstoffdichte und weiter außen drei Hohlzylinder mit niedriger Brennstoffdichte modelliert. Die genauen Abmessungen der Brennstoffplatten, so wie sie zur Zeit im Kern des FRMII verwendet werden, finden sich in Tabelle 6.2. Diese Maße wurden bei der Modellerstellung verwendet.

Beschreibung	Radius	Material
Zentrale Bohrung	0,75 cm	Wasser
Regelstab (Innenreflektor)	4,3 cm	Beryllium
Wasserspalt	4,6 cm	Wasser
Aluminiumring	5,6 cm	Aluminium
Wasserspalt	5,9 cm	Wasser
Aluminiumspalt	6,5 cm	Aluminium
Aluminiumspalt	6,75 cm	Aluminium
Beginn der aktiven Zone	10,56 cm	Uransilizid, $\rho = 3,0 \text{ g m}^{-3}$
Übergang der Urandichten	11,2 cm	Uransilizid, $\rho = 1,5 \text{ g m}^{-3}$
Aluminiumspalt	11,45 cm	Aluminium
Kernrohr	12,15 cm	Aluminium
Wasserspalt	12,3 cm	Wasser
Zentralkanalrohr	13,1 cm	Aluminium
Reaktorbecken	ab 13,1 cm	Schweres Wasser mit 3 gew% Wasser

Tabelle 6.1.: Geometrische Daten des HEU-Brennelements des FRM II (TUM Design) (Glaser u. a., 2000). Die Abmessungen der detaillierten Geometrie innerhalb der aktiven Zone findet sich in Tabelle 6.2.

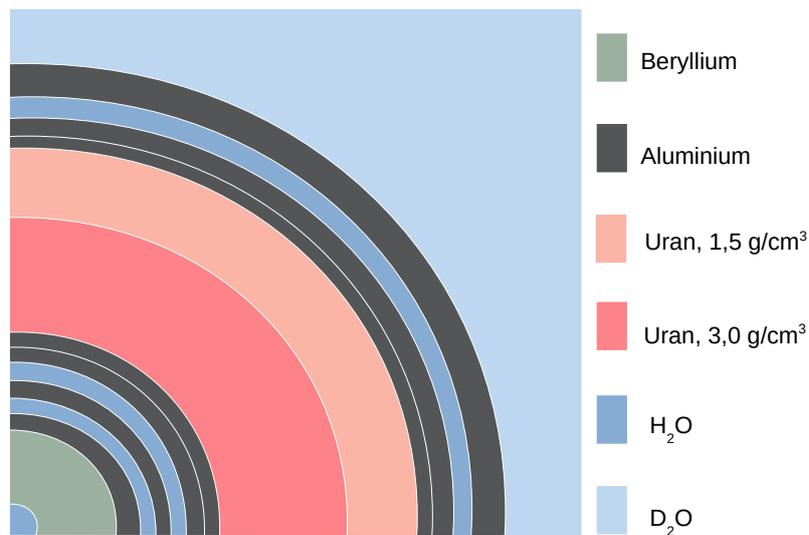


Abbildung 6.2.: Schematische Darstellung der Abfolge der modellierten Materialien. Die Abbildung ist nicht maßstabsgetreu, sondern soll einen Eindruck des Aufbaus vermitteln. Für das Modell wurden konzentrische Ringe verwendet.

Genau wie bereits für den Druckwasserreaktor berechnen wir das 2D Modell mit dem Programm SCALE. In den folgenden Abschnitten diskutieren wir den Einfluss unterschiedlicher Parameter auf die Bildung von Argon-37. So können wir ermitteln, welche Entstehungsprozesse des Gases im FRM II relevant sind und ob die Aktivität für die Verifikation von Kernwaffentests problematisch ist.

Bevor wir uns den Ergebnissen widmen merken wir auch hier an, dass für das Modell die Leistung des Reaktors pro metrischer Tonne Uran spezifiziert ist. Um absolute Werte für die Aktivitäten in Verbindung setzen zu können, haben wir wie bereits in Kapitel 5 die gesamte Uranmasse von 8,11 kg einbezogen, weshalb wir die Aktivität nicht pro Masse angeben.

Brennstoffdicke:	0,060 cm
Ummantelung:	0,038 cm
Kühlspaltdicke:	0,220 cm

Tabelle 6.2.: Geometrische Daten der Brennstoffplatten in der aktiven Zone.

6.4. Argon-37 aus einer Calcium-40 Verunreinigung

Wie bereits beim Druckwasserreaktor wollen wir hier verschiedene Möglichkeiten diskutieren, wie Argon-37 über eine Verunreinigung mit Calcium-40 entstehen kann. Zuerst nehmen wir an, dass der Brennstoff Spuren des Isotops enthält und gehen anschließend darauf ein, welche Aktivitäten zu erwarten sind, wenn das Aluminium der Ummantelung und der Hüllrohre leicht verunreinigt ist.

6.4.1. Calcium-40 im Brennstoff

Zu Beginn dieses Kapitels haben wir uns ausführlich mit Brennstoffen für den Forschungsreaktor befasst. Da der zur Zeit verwendete keramische Brennstoff von Aluminium umschlossen ist, ist es nicht möglich, dass Gase, die während der Bestrahlung im Inneren entstehen, nach außen dringen können. Daher gibt es zunächst keine Analogie zu der Reaktion im Druckwasserreaktor (siehe Abschnitt 5.7). Wir haben aber ebenfalls angesprochen, dass Forschungsarbeiten zu neuen Brennstoffen ein Schwellverhalten zeigen, das Diffusion von Gasen aus dem Inneren des Brennstoffs nach außen ermöglicht. Es gibt außerdem Überlegungen den abgebrannten Brennstoff fachgerecht aufzubereiten. Bei diesem Prozess könnten Gase, die im Brennstoff entstanden sind, freigesetzt werden, sofern sie zum Zeitpunkt der Wiederaufarbeitung noch nicht zerfallen sind (was für Argon-37 allerdings unwahrscheinlich ist). Aus diesen Gründen wollen wir diesen Produktionspfad kurz diskutieren, um auch zukünftigen Entwicklungen in diesem Bereich Rechnung zu tragen. Messwerte für eine mögliche Verunreinigung des Uransilizids sind im Gegensatz zum Urandioxid für Leichtwasserreaktoren nicht bekannt. Wir werden daher eine Spannbreite von unterschiedlichen Werten diskutieren, um den linearen Zusammenhang aus Gleichung (2.13) zu quantifizieren und zu sehen, welche Argon-37 Aktivitäten daraus resultieren.

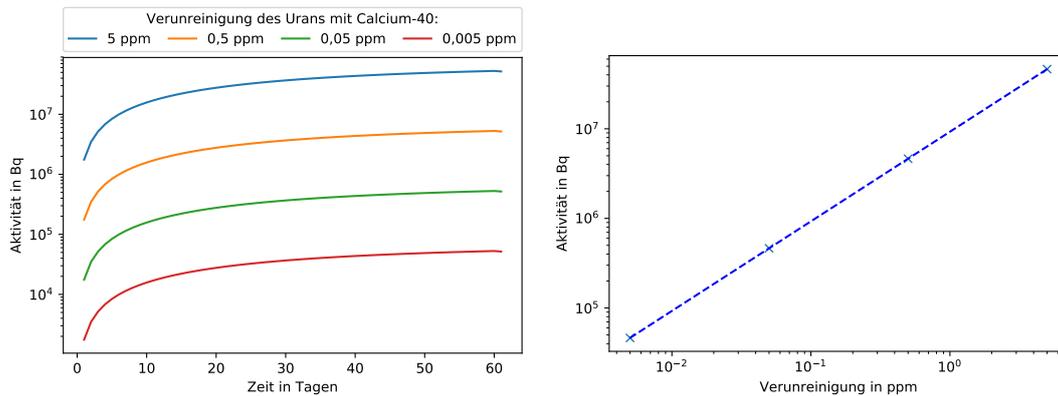


Abbildung 6.3.: Verschiedene Verunreinigungsgrade für Calcium-40 im Brennstoff. Die Aktivität hängt linear vom angenommenen Calcium-40-Gehalt ab. Rechts dargestellt ist der Zusammenhang für vier berechnete Aktivitäten nach 45 Tagen Bestrahlungszeit.

In Abbildung 6.3 (links) sind die Aktivitäten für vier unterschiedliche Verunreinigungsgrade des Uransilizid mit Calcium-40 dargestellt, die sich jeweils um eine Größenordnung unterscheiden. Während eines Betriebszyklus steigt die Aktivität kontinuierlich. Zu einem festen Zeitpunkt hängt sie linear von der angenommenen Verunreinigung ab, wie aus Abbildung 6.3 (rechts) deutlich wird.

6.4.2. Calcium-40 im Aluminium

Wären das Aluminium, in dem sich der Brennstoff befindet, oder die Ummantlungen, die ebenfalls aus Aluminium bestehen, zu geringen Graden mit Calcium verunreinigt, könnte auch hier Argon-37 erzeugt werden. Es sind keine genauen Werte für eine solche Kontaminierung bekannt, allerdings weiß man, dass das verwendete Aluminium grundsätzlich mit anderen Komponenten verunreinigt ist (Röhrmoser, 2010). Daher wollen wir auch für diesen Fall unterschiedliche Grade an Verunreinigung betrachten und evaluieren, mit welchen Beiträgen daraus zu rechnen ist. Im Unterschied zur Verunreinigung im Brennstoff befände sich in diesem Fall das Calcium außen im Kontakt zum Moderator. Argon-37 könnte dann direkt ins Wasser und von dort in die Abluft gelangen.

Im direkten Vergleich der in Abbildung 6.4 dargestellten Aktivitäten zu den Aktivitäten durch eine Verunreinigung des Brennstoffes fällt auf, dass die Werte höher sind, was allein auf die geringere Dichte von Aluminium zurückgeht.

Abschließend ist anzumerken, dass für realistische Verunreinigungsgrade die Aktivität von Argon-37, die tatsächlich in den Moderator gelangt, geringer ist. Für den Standardbetrieb des FRM II (mit dem momentan verwendeten Brennstoff) spielen beide Prozesse keine wesentliche Rolle.

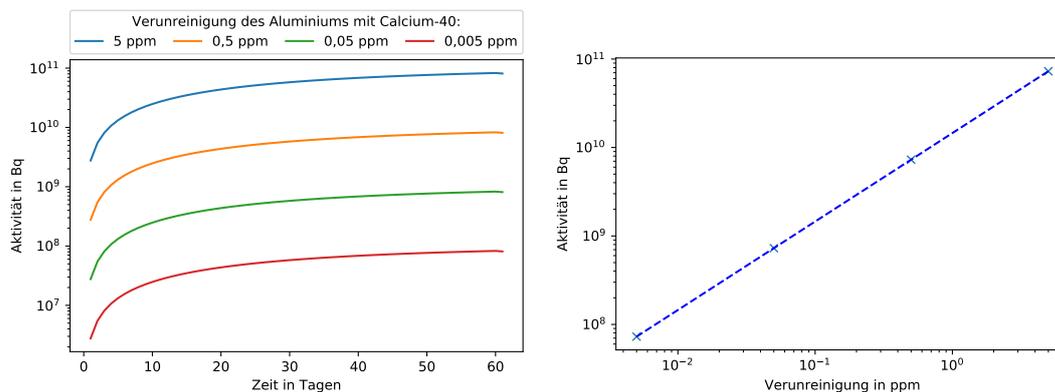


Abbildung 6.4.: Verschiedene Verunreinigungsgrade für Calcium-40 in Aluminium-Umfassungen. Rechts dargestellt ist der lineare Zusammenhang von Aktivität und Calcium-40 Gehalt für vier berechnete Aktivitäten nach 45 Tagen Bestrahlungszeit.

6.5. Argon-36 im Moderator

Das in der Luft enthaltene Argon-36 geht im Wasser in Lösung über und könnte dort durch den Neutronenfluss aktiviert werden. Um die dabei entstehende Aktivität von Argon-37 zu bestimmen, müssen wir die Konzentration von Argon-36 im Wasser abschätzen. Der FRM II wird mit schwerem Wasser moderiert. Das Deuteriumoxid hat Kontakt mit der Raumluft in der Reaktorhalle, die etwas mehr als einmal die Stunde ausgetauscht wird und daher gut durchmischt ist (Wolff, 2018). Wir können daher davon ausgehen, dass Argon mit der bei Normalbedingung geltenden Löslichkeit von $L = 0,03475$ im Wasser gelöst ist (Lenntech). Gemäß der natürlichen Häufigkeiten der einzelnen Isotope ergeben sich daraus die folgenden Massenanteile am Deuteriumoxid:

$$\frac{m_{\text{Ar36}}}{m_{\text{D}_2\text{O}}} = 1,863 \cdot 10^{-7} \quad (6.1)$$

$$\frac{m_{\text{Ar40}}}{m_{\text{D}_2\text{O}}} = 5,563 \cdot 10^{-5} \quad (6.2)$$

Zur Bestimmung der Aktivität haben wir ein 2D-Modell verwendet und über den ganzen Betriebszyklus eine konstante Leistung angenommen. Abbildung 6.5 zeigt die sich daraus ergebenden Aktivitäten von Argon-37 und Argon-41 über den gesamten Bestrahlungszyklus von 60 Tagen. Aufgrund der vergleichsweise langen Halbwertszeit von Argon-37 stellt sich während der gesamten Bestrahlungszeit kein Gleichgewicht ein. Die Aktivität von Argon-37 erreicht gegen Ende des Zyklus Werte im Bereich von $5 \cdot 10^{13}$ Bq. Argon-41 hat aufgrund seiner natürlichen Häufigkeit eine höhere Aktivität von etwa $1 \cdot 10^{16}$ Bq.

Die durch Aktivierung erzeugten Isotope befinden sich gelöst im Moderatorbecken. Ihre Bewegung und Durchmischung besprechen wir im folgenden Abschnitt.

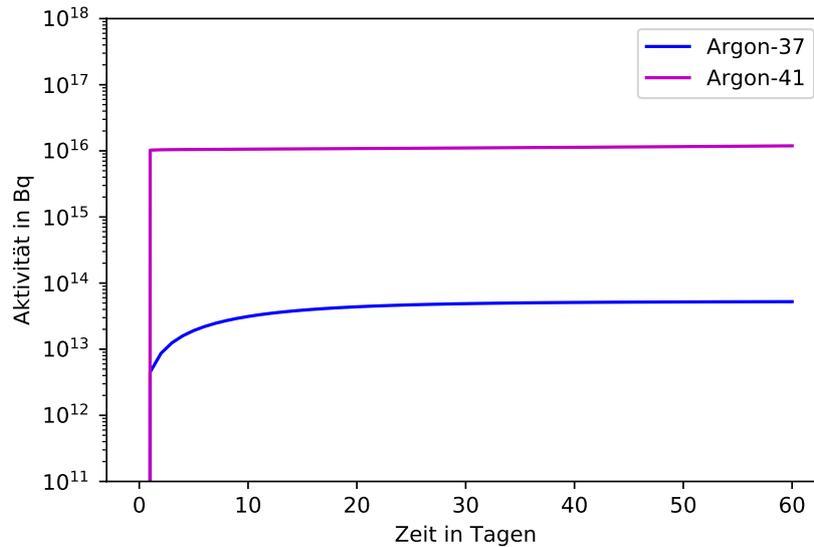


Abbildung 6.5.: Aktivität von Argon-37 (in blau) und Argon-41 (in magenta) über den Betriebszyklus von 60 Tagen.

6.6. Diffusion von Argon-37 im Moderator

Wir haben bislang bestimmt, welche Aktivitäten für Argon-37 und Argon-41 durch Aktivierung der im Wasser gelösten stabilen Isotope gebildet werden. Interessant ist nun, wie lange es dauert, bis das Gas aus dem Wasser in die Raumluft übergeht, um von dort weiter an die Umwelt abgegeben zu werden. Die Verzögerung, die entsteht, wenn die Isotope durch das Wasser diffundieren, beeinflusst die Aktivität, die in der Raumluft (beziehungsweise Abluft) gemessen werden kann.

Wichtig ist, ob das Gas tatsächlich gelöst durch das Wasser diffundiert, oder ob sich Gasblasen bilden. Je nach Dauer des Transportes unterscheiden sich die Aktivitäten, die in Luft übergehen.

Die Diffusion selbst ist ein langwieriger Prozess, dessen Dauer sich als erste Näherung über folgende Relation für das mittlere Entfernungsquadrat $\langle x^2 \rangle$ abschätzen lässt:

$$\langle x^2 \rangle = 2 D t \quad (6.3)$$

Daraus folgen für eine Strecke von 9 m über dem Brennelement mit dem Diffusionskoeffizienten $D = 2,53 \cdot 10^{-5} \text{cm}^2 \text{s}^{-1}$ (Colt, 2012) eine Diffusionsdauer von $1,79 \cdot 10^7 \text{s}$. In Bezug zur Halbwertszeit von Argon-37 wird deutlich, dass nur durch den diffusiven Prozess kein Argon-37 aus dem Moderatorbecken in die Luft gelangen kann.

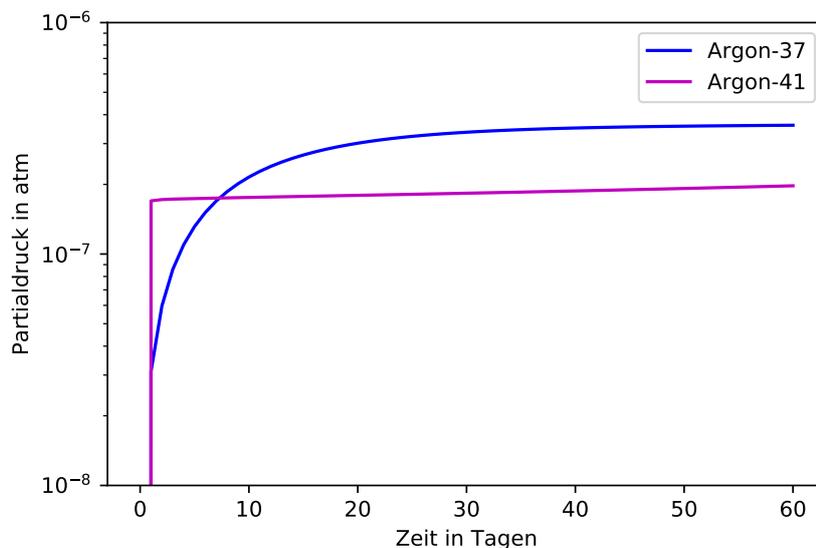


Abbildung 6.6.: Partialdruck von Argon-37 (in blau) und Argon-41 (in magenta) im gesamten Moderator.

6.6.1. Blasenbildung

Befindet sich das Wasser im Lösungsgleichgewicht mit der Luft spricht man von Luft-sättigung. In diesem Gleichgewichtszustand befindet sich der gesättigte Teil des Wasser allerdings nur nahe der Grenzfläche, denn mit zunehmender Tiefe steigt der hydrostatische Druck und damit die Sättigungskonzentration. Man kann annehmen, dass der Druck des Wassers etwa um 1 atm pro 10 m Wassertiefe steigt (Hertig Aeschbach). Ist die Summe der Partialdrücke aller im Wasser gelösten Gase größer als die Summe aus atmosphärischem und hydrostatischem Druck des Wassers, bilden sich Gasblasen. Wir wollen hier untersuchen, ob dies für Argon-37 der Fall ist.

Die Partialdrücke der Isotope berechnen sich aus der Konzentration c des jeweiligen Isotops und dem Löslichkeitskoeffizienten l für das entsprechende Gas:

$$p_i = \frac{c_i}{l_i}. \quad (6.4)$$

Für Argon ist die Gleichgewichtskonzentration bei $p_{\text{Ar}37} \approx 1 \text{ atm}$ und $T \approx 25^\circ\text{C}$ $c_{\text{Ar,GG}} \approx 0,0557 \text{ g} \cdot \text{L}^{-1}$ (Hertig Aeschbach). Die Konzentration des jeweiligen Isotops ergibt sich aus der Masse (im gesamten Kern) pro Moderatorvolumen (700 m^3).

Da die Partialdrücke in der Größenordnung von 10^{-7} liegen (vergleiche Abbildung 6.6), liefern sie keinen wesentlichen Beitrag da der gesamte Gasdruck durch die Sättigungskonzentration bestimmt bleibt. Daher kommt es durch den Mehreintrag der radioaktiven Argonisotope nicht zu einer Blasenbildung.

Grundsätzlich ist es auch denkbar, dass sich Blasen durch Bewegung des Moderators bilden. Eine turbulente Strömung, bei der es zu Kavitation kommt, tritt auf, wenn das

Verhältnis von Inertialkräften zur Kraft der Viskosität der Flüssigkeit klein ist. Da diese Bedingung, die durch die Reynolds Zahl beschrieben wird, nicht erfüllt ist, bilden sich auch durch die Strömung keine Blasen.

Ein weiterer Durchmischungsprozess, den wir diskutieren wollen, ist Konvektion. Ein Temperaturgradient dT/dz kann Ursache für diesen Transportprozess sein. Im Moderatorbecken des FRM II ist die oberste Schicht des Wassers einige Grad wärmer, weshalb in diesem Fall ein Gradient vorliegt, der Konvektion entgegen wirkt.

Eine Bedingung für das Fehlen von Konvektion ist, dass sich ein stabiles mechanisches Gleichgewicht ausbildet. Diese Stabilitätsbedingung lautet:

$$-\frac{dT}{dz} < \frac{g}{c_p}, \quad (6.5)$$

mit

T Temperatur in K

z Höhe in m

g Gravitationskonstante, $9,81 \text{ m s}^{-1}$

c_p spezifische Wärme bei konstantem Druck, $4,182 \text{ kJ kg}^{-1} \text{ K}^{-1}$

Da der Temperaturgradient positiv ist, ist Gleichung (6.5) erfüllt, weshalb es nicht zu Konvektion kommt.

Ergänzend ist anzumerken, dass im Moderatorbecken immer wieder kleine Gasblasen aufsteigen. Durch dieses Phänomen und die damit verbundene Durchmischung der Flüssigkeit könnte auch Argon-37 zur Grenzschicht zwischen Wasser und Luft gelangen. Aufgrund der Komplexität können diese Effekte hier allerdings nicht diskutiert werden.

6.7. Aktivierung der Raumlufte

Das oben offene Reaktorbecken des FRM II steht in direktem Kontakt mit der Raumlufte. Hier sind gemäß den natürlichen Häufigkeiten stabile Argonisotope vorhanden, die durch Neutronen, die aus dem Reaktorbecken entweichen, aktiviert werden können. Wir wollen in diesem Abschnitt bestimmen, welche Menge Argon-37 (und Argon-41) über diesen Produktionspfad zu erwarten sind. Dafür gehen wir zuerst der Frage nach, wie groß der Neutronenfluss an der Grenzschicht zur Luft ist, der dort zu Aktivierungsreaktionen führt.

6.7.1. Das 3D-Modell

Das Brennelement befindet sich in einer Tiefe von 9,2 m im Moderatortank (die Wasserhöhe entspricht dem Abstand Oberkante Brennelement - Oberkante Beckenwasser) (Wolff, 2018). Für unsere Überlegungen ist nun nicht mehr wie bisher der Neutronenfluss auf Höhe des Brennelementes wichtig, sondern der Fluss im räumlichen Bereich darüber. Diese Fragestellung kann daher nicht wie in den voran gegangenen Abschnitten mit den bisher verwendeten Bestrahlungsmodulen von SCALE behandelt werden. Hier ist ein 3D-Modell erforderlich.

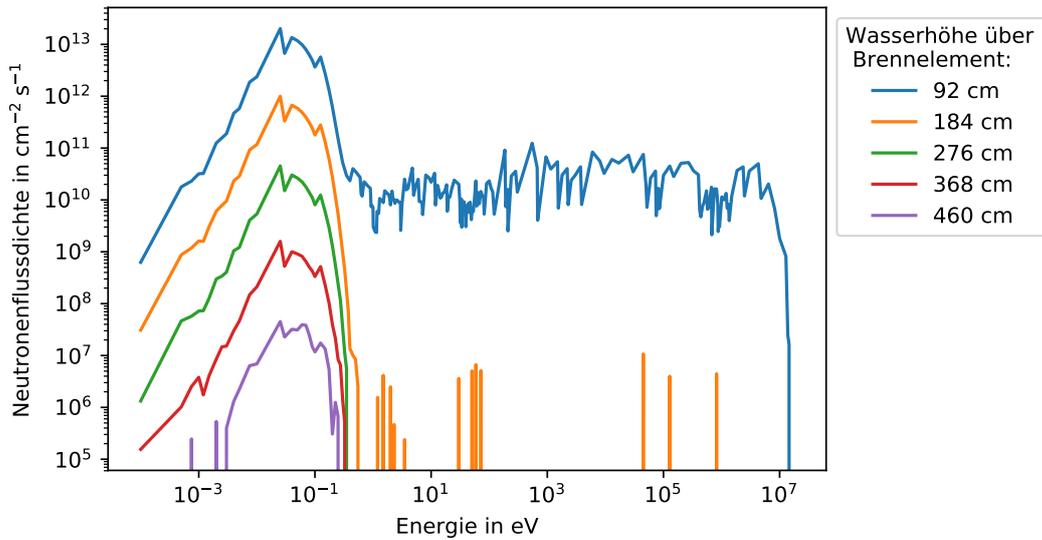


Abbildung 6.7.: Neutronenflussdichte in verschiedenen Schichten über dem Brennelement. Mit zunehmender Entfernung verschiebt sich das Spektrum in den thermischen Bereich.

Zur Berechnung verwenden wir das SCALE Modul TSUNAMI-3D, das in Abschnitt 2.6 beschrieben wurde. Für unsere Fragestellung besonders relevant ist das Modul KENO, welches den gleichen Geometrie-Input verwendet wie die bisherigen 2D-Modelle. Die Rechenzeit ist für das 3D-Modell im Vergleich zum 2D-Modell deutlich niedriger, da kein Abbrand berechnet wird. Allerdings steigt die Rechenzeit (analog zu den bisherigen Modellen) mit der Komplexität der Geometrie.

TSUNAMI gibt die Neutronenflussdichte in Neutronen pro Quadratcentimeter und Quellneutron an. Das ist anders im Vergleich zu bisherigen Modellen, in denen die Flussdichte direkt pro Zeiteinheit statt Quellneutron ausgegeben wird. Um die Flussdichte anzupassen, müssen wir zunächst die Anzahl der Quellneutronen pro Sekunde bestimmen. Die Anzahl der Spaltungen pro Sekunde n_{Spaltung} ergibt sich aus dem Verhältnis der Leistung des Reaktors P_{Reaktor} zu der Energie E_{Spaltung} , die im Durchschnitt pro Spaltung frei wird (hier für Uran-235, siehe Abschnitt 2.2).

$$n_{\text{Spaltung}} = \frac{P_{\text{Reaktor}}}{E_{\text{Spaltung}}} = \frac{20 \text{ MW}}{207 \text{ MeV}} = 6,030 \cdot 10^{17} \text{ s}^{-1} \quad (6.6)$$

Nehmen wir an, dass bei jeder Spaltung ein Neutron frei wird, welches wiederum eine Kernspaltung auslöst, haben wir damit den Umrechnungsfaktor für die Neutronenflussdichte (diese Annahme ist hier gerechtfertigt, siehe Rearden u. Jessee (2016)).

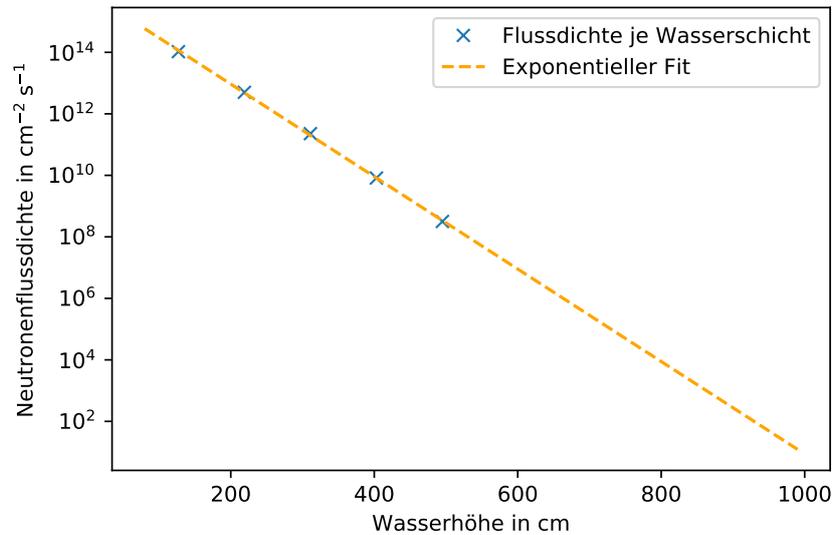


Abbildung 6.8.: Der über die Energie integrierte Neutronenfluss in unterschiedlichen Höhen über dem Brennelement ist in blau dargestellt. Zu beachten ist, dass der Nullpunkt der Höhe z in der Mitte des Brennelementes liegt und damit die maximale Wasserhöhe bei 9,55 m. Die Werte wurden mit einer exponentiellen Gleichung gefittet (orange).

6.7.2. Neutronenflussdichte

Abbildung 6.7 zeigt die so bestimmte Neutronenflussdichte in unterschiedlichen Wasserschichten. Im Verlauf des Energiespektrums ist deutlich das Maximum der thermischen Neutronen bei 0,1 eV zu erkennen. Besonders im Bereich der epithermischen und schnellen Neutronen ($E > 1$ eV) schwankt der Fluss stärker als in den bisher betrachteten 2D-Modellen. Dies geht auf das verwendete Lösungsverfahren der Transportgleichung zurück. Wie in Abschnitt 2.6 diskutiert, sind Monte Carlo-Verfahren weniger gut zur Bestimmung der Flussdichte geeignet.

Die Neutronenflussdichte nimmt mit zunehmender Höhe des Wassers über dem Brennelement schnell ab. Bereits nach wenigen Dezimetern fehlen ganze Teile des Spektrums. Durch die Stöße im Wasser werden die Neutronen auf geringe Energien abgebremst, so dass in diesen Schichten nur noch thermische Neutronen anzutreffen sind.

Das Modul berechnet die Neutronenflussdichte nur bis zu einer gewissen Größenordnung. Für noch kleinere Flussdichten wird das Ergebnis als Null ausgegeben. Diese numerische Grenze ist bereits für Wasserschichten erreicht, die nicht der gesamten Höhe des Moderators entsprechen. Wir haben daher die Flussdichte innerhalb der betrachteten Schichten berechnet und bis zur Grenzschicht zu Luft bei 9,2 m extrapoliert, um zu bestimmen, wie viele Neutronen pro Fläche und Zeit an der Grenzschicht von Wasser zu Luft noch zu erwarten sind. Für diese Extrapolation wurde bereits über die Energie integriert.

Zusätzlich haben wir ein Modell mit weniger Wasserschichten bis zu einer geringeren Höhe erstellt und dabei auch zwei zusätzliche Luftschichten berücksichtigt, die an das Wasser grenzen. So konnten wir die Stetigkeit der Neutronenflussdichte an der Grenzschicht betrachten und zeigen, dass der Übergang zwischen den Medien physikalisch korrekt modelliert wird.

Um die Neutronenflussdichte in einer Höhe von 9,2 m über dem Brennelement zu bestimmen, haben wir einen exponentiellen Fit angesetzt, der die Abnahme der Flussdichte mit der Höhe des Wassers z beschreibt:

$$\frac{\phi(z)}{\text{Neutronen} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}} = 9,405 \cdot 10^{15} \cdot \exp\left(-0,03462 \cdot \frac{z}{\text{cm}}\right) \quad (6.7)$$

In Abbildung 6.8 ist die (energieunabhängige) Flussdichte für unterschiedliche Schichten über die Wasserhöhe aufgetragen. In der logarithmischen Darstellung erkennt man klar die lineare Abnahme mit zunehmender Höhe. An der Grenze zwischen Wasser und Luft (bei 955 cm in Abbildung 6.8) erwarten wir noch etwa 41 ± 1 Neutronen pro Sekunde und Quadratzentimeter.

6.7.3. Berechnung der durch Aktivierung erzeugten Menge Argon-37

Durch Aktivierung von Argon-36 in der Raumluft entsteht Argon-37. Die relevanten Größen zur Berechnung der so entstehenden Aktivität sind die Neutronenflussdichte, der aus dem Wasser in Luft übergeht und dort auf Gasteilchen trifft, sowie der Wirkungsquerschnitt für diese Reaktion. Beide Größen hängen von der Energie der Neutronen ab, die Flussdichte ist zusätzlich auch eine Funktion der Höhe z .

Grundsätzlich hängt die Neutronenflussdichte auch radial (in der x-y-Ebene) von der Entfernung ab. Allerdings ist das verwendete Modell punktsymmetrisch und wir betrachten die gemittelte Flussdichte in verschiedenen Raumbereichen. Winkelabhängige Verluste durch Streuung über dem Brennelement sind miteinbezogen. Aus diesen Gründen betrachten wir die Flussdichte im Wasser als nur von der Höhe z abhängig. Für die Neutronenflussdichte setzen wir an:

$$\phi(E, z) = \phi(E) \cdot \exp(-\lambda \cdot z) = \phi(E) \cdot \exp(-z \cdot n_{\text{Luft}} \cdot \sigma_{\text{Luft}}). \quad (6.8)$$

Hier bezieht sich die Teilchendichte n_{Luft} und der Wirkungsquerschnitt σ_{Luft} jeweils auf Luft, also die Gesamtheit der Atome, die für eine Wechselwirkung in der Höhe z zur Verfügung stehen. Die Produktionsrate berechnet sich wie folgt:

$$P_{\text{Ar37}} = \int_{x_1}^{x_2} \int_{y_1}^{y_2} \int_0^\infty \int_E \phi(E, z) \cdot n_{\text{Ar36}} \cdot \sigma_{\text{Ar36}}(E) \, dx \, dy \, dz \, dE \quad (6.9)$$

Die Integration über die Raumrichtungen x und y ergibt die Austrittsfläche M des Neutronenflusses von Wasser in Luft. Als nächstes führen wir die Integration über die Höhe aus und erhalten mit Gleichung (6.8) die freie Weglänge der Neutronen in Luft als Faktor. Damit folgt für Gleichung (6.9):

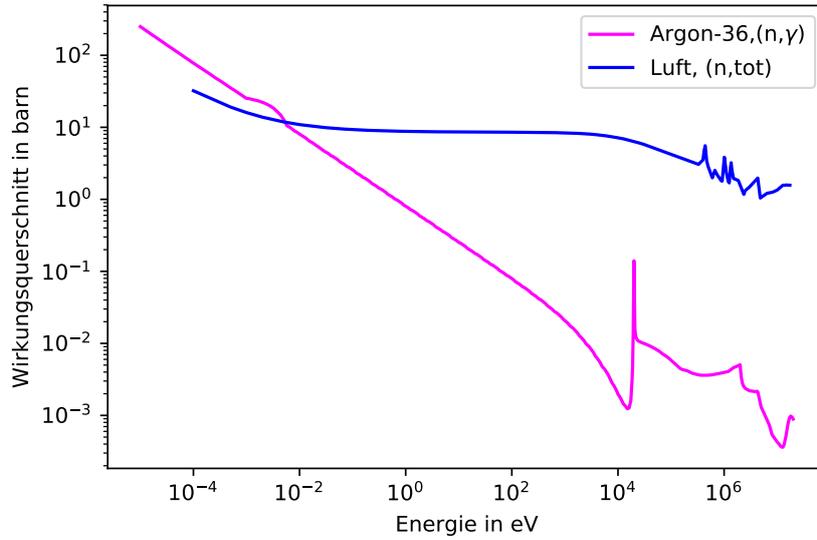


Abbildung 6.9.: Der Neutroneneinfangwirkungsquerschnitt für die Aktivierung von Argon-36 (magenta) und der gesamte Einfangwirkungsquerschnitt für Luft (blau) (Daten der Bibliothek ENDF/B-VII.1, abgerufen über KAERI).

$$P_{\text{Ar37}} = M \cdot \frac{n_{\text{Ar36}}}{n_{\text{Luft}}} \int_E \phi(E) \cdot \frac{\sigma_{\text{Ar36}}(E)}{\sigma_{\text{Luft}}(E)} dE \quad (6.10)$$

Das Verhältnis der Teilchenzahldichten $\frac{n_{\text{Ar36}}}{n_{\text{Luft}}}$ entspricht der natürlichen Häufigkeit von Argon-36 in der Luft. Aus Gleichung (6.7) erwarten wir über dem Beckenwasser einen Fluss von etwa $41 \text{ Neutronen cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$. Streng nach Gleichung (6.10) müssten wir natürlich erst das Produkt aus Fluss und energieabhängigen Wirkungsquerschnitt berechnen. In Anbetracht der Größenordnungen ist an dieser Stelle die Näherung legitim, da mit zunehmender Höhe ganze Teile des Neutronenspektrums wegfallen und sich die Neutronenflussdichte nur noch über einen kleinen, abgegrenzten Energiebereich im thermischen Teil des Spektrums erstreckt. Aufgrund dieser starken Begrenzung der Neutronenflussdichte können wir auch den Wirkungsquerschnitt nur in diesem Bereich betrachten, da keine anderen Neutronenenergien für eine Aktivierung zur Verfügung stehen.

Für ein genaueres Verständnis werfen wir in Abbildung 6.9 einen Blick auf die energieabhängigen Wirkungsquerschnitte: Der totale Einfangquerschnitt σ_{tot} der unterschiedlichen Elemente zeigt ein Plateau für thermische Neutronenenergien und erst zu höheren Energien hin unterschiedliche Resonanzen. In diesem Bereich ist der Neutronenfluss vernachlässigbar (vergleiche Abbildung 6.7). Aus den bestehenden Datenpunkten wurde durch einen linearen Fit gemäß der natürlichen Zusammensetzung von Sauerstoff und Stickstoff der Wirkungsquerschnitt für Luft ermittelt. Im thermischen

Energiebereich ergibt sich für das Verhältnis der beiden Wirkungsquerschnitte ein Wert von 0,2. Zusammen mit der Fläche M des Moderatorbeckens von $860\,000\text{ cm}^2$ (Wolff, 2018) ergibt sich aus Gleichung (6.10) eine Produktionsrate für Argon-37 von $P_{\text{Ar37}} = 219$ Teilchen pro Sekunde. Da die Leistung des Reaktors während eines Bestrahlungszukluses annähernd konstant ist, nehmen wir auch die Produktionsrate als konstant und zeitunabhängig an. Die Änderung der Teilchenanzahl N für die Argon-Isotope wird durch die Produktionsrate, vermindert um den radioaktiven Zerfall beschrieben:

$$\frac{dN_{\text{Halle}}}{dt} = P - \lambda_Z \cdot N_{\text{Halle}} . \quad (6.11)$$

Aus Gleichung (6.11) ergibt sich die zeitabhängige Teilchenanzahl für Argon-37 (beziehungsweise Argon-41):

$$N(t) = \frac{P}{\lambda_Z} \left(1 - \exp(-\lambda_Z t) \right) . \quad (6.12)$$

Zusammen mit der Luftwechselzahl von $15000\text{ m}^3\text{ h}^{-1}$ ergibt sich nach 45 Tagen daraus eine Aktivitätskonzentration für Argon-37 von $A_{\text{Ar37}} = 31\text{ Bq m}^{-3}$.

Mithilfe von Gleichung (6.10) lässt sich auch die Produktionsrate für Argon-41 bestimmen. Da Argon-40 das häufigste Isotop im Isotopen-Gemisch ist, entspricht das Verhältnis der Teilchenzahlen dem natürlichen Anteil von Argon an Luft von 0,93 %. Das Verhältnis der Wirkungsquerschnitte von Argon-40 zu Luft beträgt im thermischen Bereich etwa 0,001. Daraus folgt eine Produktionsrate von 3279 Teilchen pro Sekunde. Mit Gleichung (6.12) ergibt sich unter Berücksichtigung der Luftwechselzahl eine Aktivitätskonzentration für Argon-41 von $A_{\text{Ar41}} = 787\text{ Bq m}^{-3}$.

6.8. Vergleich mit Messwerten

Die bisherigen Betrachtungen fußen auf theoretischen Überlegungen. Wir wollen hier sehen, in wie weit die bisherigen theoretischen Ergebnisse in Übereinstimmung mit den Verhältnissen sind, die vor Ort herrschen. Zu diesem Zweck wurden am 13. Juni 2018 an unterschiedlichen Orten auf dem Gelände des FRM II Gasproben genommen.

Insgesamt wurden sechs Druckgasflaschen mit Luft befüllt, die bereits vor Ort und anschließend vom Bundesamt für Strahlenschutz in Freiburg auf ihren Gehalt an Argon-41 vermessen wurden. Außerdem wurden an vier unterschiedlichen Orten Proben genommen, die im Untergrundlabor der Universität Bern auf den Gehalt an Argon-37 und Argon-41 untersucht wurden. Die Ergebnisse sind in Tabelle 6.4 zusammengefasst. Die Messkampagne war eine Kooperation mit dem Bundesamt für Strahlenschutz und der Universität Bern, die für diese Arbeit durchgeführt wurde.

Um die Aktivität von Argon-37 an unterschiedlichen Orten zu bestimmen, wurden Gasproben aus der Kaminfortluft sowie im Halleninneren, auf der Brücke über dem Reaktorbecken und in einer abgeschatteten Ecke der Halle genommen.

Die Reaktorhalle wird konstant mit einer Rate von $15000 \text{ m}^3 \text{ h}^{-1}$ belüftet, sodass das gesamte Luftvolumen in weniger als einer Stunde getauscht wird (Wolff, 2018). Die drei in der Reaktorhalle genommenen Proben zeigen einen Gradienten: Der auf der Brücke über dem Reaktorbecken gemessene Wert ist deutlich höher als die Aktivität im abgeschatteten Bereich.

Ort der Probennahme	Argon-37 Konzentration in $\text{Bq} \cdot \text{m}^{-3}$	Unsicherheit in $\text{Bq} \cdot \text{m}^{-3}$
Außenbereich	$13 \cdot 10^{-3}$	$\pm 3,8 \cdot 10^{-3}$
Ecke in der Reaktorhalle	28,5	$\pm 0,1$
Kamin	34,5	$\pm 0,6$
Brücke über dem Reaktorbecken	88,7	$\pm 0,8$
Reaktorhalle	72,5	$\pm 2,38$

Tabelle 6.3.: Gemessene Argon-37 Aktivitäten pro Kubikmeter an drei unterschiedlichen Orten in der Reaktorhalle, im Schornstein sowie für eine Messung im Freien.

Die Ergebnisse unserer Überlegungen zur Aktivierung von Argon-36 in der Raumluft der Reaktorhalle sind in guter Übereinstimmung mit den Messergebnissen. Wir haben die Konzentration in der Raumluft aufgrund des schnellen Luftaustauschs als durchmischt angenommen. Die Messwerte legen allerdings nahe, dass sich über dem Becken ein Konzentrationsgradient bildet, der durch die Belüftung (trotz hoher Rate) wohl nicht ausgeglichen wird. Wir werden im anschließenden Kapitel in Abschnitt 7.5 diskutieren, welche Aktivitäten aus dem FRM II emittiert werden. Die Berechnete Aktivi-

Name	Argon-41 Konzentration in $\text{Bq} \cdot \text{m}^{-3}$	Unsicherheit in $\text{Bq} \cdot \text{m}^{-3}$	Ort der Entnahme
0	2932	± 141	Reaktorhalle
1	3664	± 160	Kamin
3	3643	± 161	Kamin
5	2951	± 143	Reaktorhalle
7	3517	± 156	Kamin
8	2820	± 139	Reaktorhalle

Tabelle 6.4.: Gemessene Aktivitätskonzentration von Argon-41 in der Kaminfortluft und der Reaktorhalle des FRM II aus sechs verschiedenen Druckflaschen.

tätskonzentration für Argon-41 ist deutlich niedriger als die gemessene Konzentration. Ein möglicher Grund könnten zusätzliche Transportprozesse (durch Gasblasenbildung anderer Gase) im Wasser sein. Diese würden für Argon-41 aufgrund der höheren natürlichen Häufigkeit von Argon-40 gegenüber Argon-36 einen größeren Beitrag liefern als Argon-37.

6.9. Zusammenfassender Überblick über die Ergebnisse zum FRM II

In diesem Kapitel haben wir uns systematisch mit unterschiedlichen Entstehungsprozessen zur Bildung von Argon-37 im Forschungsreaktor FRM II beschäftigt. Für die Produktionspfade über eine Verunreinigung mit Calcium-40 erwarten wir zunächst keine signifikanten Beiträge.

Da der Neutronenfluss durch das Deuteriumoxid schnell moderiert wird, gehen nur wenige Neutronen von Wasser in Luft über. Das natürlich enthaltene Argon-36 wird aktiviert und entsprechend der Luftwechselrate an die Umwelt abgegeben. In der Reaktorhalle ergibt sich über diesen Prozess eine Aktivitätskonzentration von etwa 31 Bq, die in guter Übereinstimmung mit den Messwerten für die Reaktorhalle ist (siehe Tabelle 6.5) .

	theoretischer Wert	experimenteller Wert
Argon-37 in $\text{Bq} \cdot \text{m}^{-3}$	31	73
Argon-41 in $\text{Bq} \cdot \text{m}^{-3}$	787	2932

Tabelle 6.5.: Vergleich der Aktivitätskonzentrationen der Modellrechnung mit denen der Messkampagne in der Reaktorhalle des FRM II.

Aufgrund der langen Dauer der Diffusion des im Kühlmittel erzeugten Argon-37 erwarten wir durch diesen Prozess keine Beiträge in der Luft der Reaktorhalle.

7. Tatsächliche Emissionen von Argon-37 in die Atmosphäre

Things can change in a day.
Arundhati Roy, „The God of Small Things“

In den vorangegangenen Kapiteln haben wir uns mit Abbrandrechnungen für zwei unterschiedliche Reaktorkonfigurationen beschäftigt. Wir haben für unterschiedlichste Szenarien die jeweilige Aktivität von Argon-37 ermittelt. Als nächsten Schritt werden wir nun bestimmen, welche Mengen tatsächlich aus den jeweiligen Einrichtungen an die Umwelt abgegeben werden. Dies ist der Wert, der mit den möglichen Emissionen aus einem Kernwaffentest verglichen werden muss. Wir werden uns zuerst mit den Emissionen aus einem Druckwasserreaktor beschäftigen. Auch außerhalb des Reaktorkerns sind weitere Produktionspfade für Argon-37 möglich. Die entstehenden Gase werden aus dem Kühlmittel extrahiert und in Filteranlagen zurückgehalten, bevor sie in die Umwelt abgegeben werden. Anschließend werden wir auch die Emissionen aus dem FRM II betrachten.

7.1. Verzögerungsstrecken im Druckwasserreaktor

Unmittelbar vor dem Kamin befindet sich eine Verzögerungsstrecke, die Teil des Abgassystems des Kernkraftwerkes ist. Radioaktive Gase werden hier so lange zurückgehalten, bis sie weitgehend zerfallen sind. Für Xenon sind das mindestens 60 Tage, für Krypton 60 Stunden (Kraftwerk Union AG, oD). Das gesamte Abgassystem wird mit Stickstoff gespült, der Gasstrom durch die Verzögerungsstrecke geleitet und anschließend kontrolliert mit der Fortluft an die Umwelt abgegeben.

Um die Verzögerungszeit für Argon in der Filteranlage zu bestimmen, haben wir die Verzögerungszeiten der drei Edelgase Argon, Xenon und Krypton im Labor untersucht. Wir haben eine Luftprobe mit geringen Teilen Xenon und Krypton angereichert und über einen Aktivkohlefilter von 2 Meter Länge und 4 mm Durchmesser geschickt. Die Filteranlage ist Teil der von Simon Hebel entwickelten Kryptonabtrennungsanlage (KAA), die detailliert in Hebel (2018) beschrieben wird. Der Gasstrom wird hinter der Aktivkohlesäule von einem Massenspektrometer erfasst. Da das Gerät vor der Messung nicht kalibriert wurde, werden eigentlich Ampere ausgegeben, für unsere Überlegungen können wir aber von willkürliche Einheiten ausgehen.

Die Elemente haben verschiedene Adsorptionseigenschaften, weshalb sie unterschiedlich lange in der Aktivkohle zurückgehalten werden. Die Eigenschaft eines Filters, Gase zurückzuhalten, kann durch das theoretische Plattenmodell beschrieben werden. Dabei

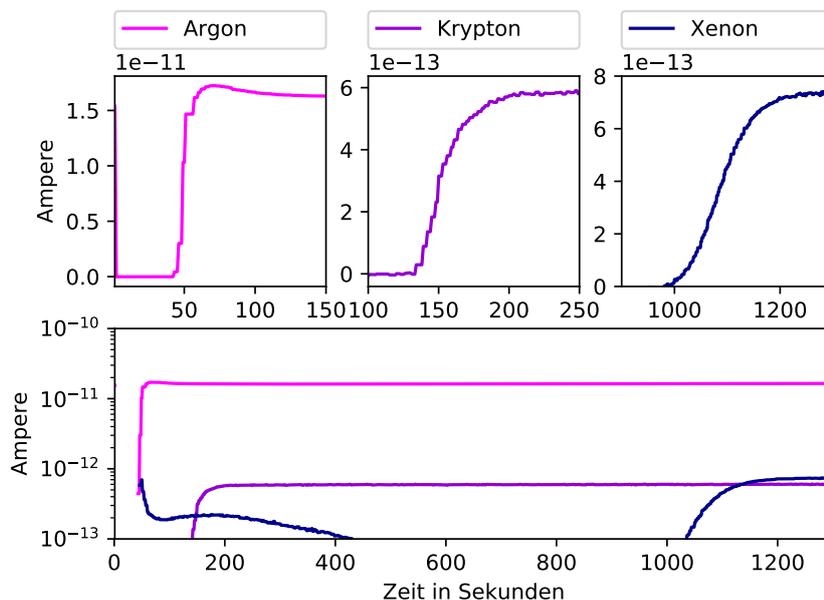


Abbildung 7.1.: Durchbrüche der Edelgase Argon (in magenta), Krypton (in lila) und Xenon (in Blau). Während der Messung hatte die Aktivkohlesäule eine Temperatur von etwa 80°C .

nimmt man an, dass die Aktivkohlesäule aus einer Reihe an Platten mit einer bestimmten Höhe aufgebaut ist. Diese theoretische Höhe ist ein Maß für die Trennungseffizienz der Säule. Leider ist es uns nicht möglich, den im Druckwasserreaktor verwendeten Filter näher zu spezifizieren, weshalb wir das Verhältnis der Verzögerungszeiten als Referenzwert verwenden.

Eine erste Messung wurde bei 80°C durchgeführt. Bereits zu Beginn erkennt man in Abbildung 7.1 Xenon. Dabei handelt es sich nicht um den gesuchten Durchbruch, der erst nach etwa 16 Minuten auftritt, sondern um Rückstände aus einem Vorversuch. Die Anlage wurde zwar mit Luft gereinigt um Rückstände zu minimieren, aber durch die erhöhte Temperatur konnten Überreste aus vorherigen Proben aus der Aktivkohle diffundieren und gleich durch das Spektrometer erfasst werden. Bei 80°C ergeben sich für die Verhältnisse der Retentionszeiten der drei Edelgase:

Edelgas	Retentionszeit in s	
	Bei 80°C	Bei 30°C
Argon	44	73
Krypton	146	300
Xenon	1050	4200

Tabelle 7.1.: Retentionszeiten der Edelgase für zwei Messungen bei unterschiedlicher Temperatur.

$$\frac{t_{\text{Xe}}}{t_{\text{Kr}}} \approx 23 \quad \text{und} \quad \frac{t_{\text{Kr}}}{t_{\text{Ar}}} \approx 3,3. \quad (7.1)$$

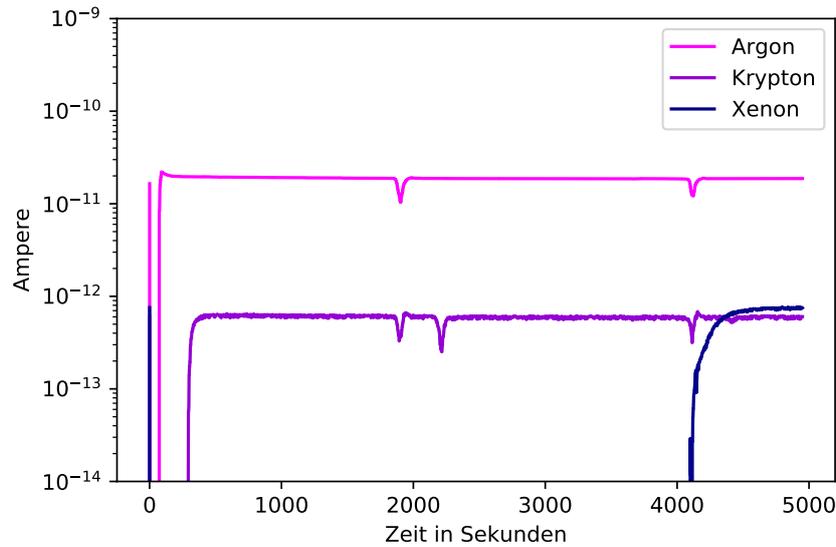


Abbildung 7.2.: Durchbrüche der Edelgase Argon (in magenta), Krypton (in lila) und Xenon (in Blau). Während der Messung hatte die Aktivkohlesäule eine Temperatur von etwa 30°C .

Eine zweite Messung wurde bei Raumtemperatur durchgeführt. Aufgrund der niedrigeren Temperatur der Aktivkohle dauern die Adsorptionsprozesse deutlich länger. Anzumerken ist, dass der Druck, mit dem die Probe durch die Anlage strömt, am Anfang für einige Sekunden etwas niedrig war. Dadurch könnten sich die Durchbrüche von Argon und Krypton leicht verschoben haben. Wir vermuten aber keinen signifikanten Einfluss auf das Verhältnis der Retentionszeiten. Da die Messung über eine längere Zeit lief, wurde während des Experiments zweimal die Probe gewechselt um einen konstanten Gasstrom zu gewährleisten. In dieser Wechselphase kam es zu kurzzeitigen Druckabfällen und damit verbunden den in Abbildung 7.2 zu erkennenden Absenkungen. Dies hat keinen Einfluss auf die Ergebnisse.

Bei 30°C ergeben sich für die Verhältnisse der Retentionszeiten der drei Edelgase:

$$\frac{t_{\text{Xe}}}{t_{\text{Kr}}} \approx 14 \quad \text{und} \quad \frac{t_{\text{Kr}}}{t_{\text{Ar}}} \approx 4. \quad (7.2)$$

Auch wenn uns detailliertere Informationen über die Aktivkohlestrecken in der Filteranlage des Druckwasserreaktors fehlen, können wir davon ausgehen, dass sie bei Raumtemperatur betrieben werden und nicht auf höhere Temperaturen geheizt werden. Wir finden aber für eine Messung bei 80°C ein Verhältnis der Retentionszeiten, das dem für den Reaktor angegebenen Verhältnis am Nächsten kommt.

Aus Gleichung (7.1) und Gleichung (7.2) ergeben sich in Bezug auf die bekannte Verzögerungszeit für Krypton von mindestens 60 h im Druckwasserreaktor eine Verzögerungszeit für Argon von 15 h bis 18 h. Diese Abschätzung entspricht unseren Erwartungen,

da Argon durch seine geringere Masse flüchtiger ist als die anderen betrachteten Edelgase. In den folgenden Abschnitten werden wir für die Rückhaltezeit der radioaktiven Argonisotope 12 h ansetzen, da wir an einer oberen Abschätzung der Emissionen interessiert sind. Aufgrund der langen Halbwertszeit von Argon-37 haben Rückhaltezeiten in dieser Größenordnung allerdings wenig Einfluss auf die emittierte Aktivität.

7.2. Kühlmittelentgasung im Druckwasserreaktor

Wir wollen nun einen Schritt zurück treten und sehen, welcher Gasstrom über diese Verzögerungsstrecke geleitet wird. In diesem Abschnitt diskutieren wir, welche Emissionen aus den Aktivierungsprozessen innerhalb des Reaktordruckbehälters folgen. Ein dafür entscheidender Mechanismus ist die Kühlmittelreinigung.

Bei der Kernspaltung entstehen Gase, die im Kühlwasser Blasen bilden können und so die Reaktivität des Reaktors verändern. Um diesen Prozess zu unterbinden und den Dampfblasenkoeffizienten konstant zu halten, werden dem Wasser über die Kühlmittelreinigung Gase und Partikel entzogen. Im primären Kühlkreislauf des Druckwasserreaktors sind 405 m^3 Wasser enthalten. Davon werden etwa 10 % pro Stunde mit einer Hochdruckförderpumpe in den Entgaser geleitet. Wird auch die zweite zur Verfügung stehende Pumpe in Betrieb genommen, verdoppelt sich die Rate. Für Edelgase liegt die Effizienz der Reinigung bei 99,9 %. Pro Stunde werden daher 9,99 % bzw. 18,98 % aller Edelgase aus dem Kühlmittel heraus gezogen. Bereits über den Zeitraum von etwa einem Tag wird das Kühlmittel damit nahezu vollständig entgast.

Für die hier betrachteten Rechnungen ist dies in zweierlei Hinsicht relevant: Zum einen wird dem Wasser Argon-37 entzogen und über das Abgassystem in die Verzögerungsstrecke geleitet. Zum anderen verringert sich auch der Gehalt an stabilen Argonisotopen, so dass sie nicht mehr für eine Aktivierung im Kühlmittel verfügbar sind. Dadurch hat die Kühlmittelreinigung einen wesentlichen Einfluss auf die Emissionen von Argon-37 aus einem Druckwasserreaktor.

Wir werden im Folgenden zuerst eine allgemeine Differentialgleichung für die Kühlmittelentgasung aufstellen und anschließend mehrere konkrete Szenarien und ihre Randbedingungen besprechen, um zu bestimmen, welche Konzentrationen an Argon-37 dabei abgegeben werden. Diese Darstellungen wurden mit Franziska Gerfen ausgearbeitet und sind detailliert in Gerfen (2018) beschrieben.

Wie wir gesehen haben, beeinflusst die Kühlmittelentgasung sowohl den Gehalt an radioaktiven als auch an stabilen Argon-Isotopen, die für die Bildung von Argon-37 relevant sind. Um die Aktivität von Argon-37 zu bestimmen, die über den Reinigungsprozess entzogen wird, müssen wir daher Gewinn- und Verlustterme sowohl für Argon-37 als auch für Argon-36 betrachten. Der Zugewinn an Argon-37 geht allein auf den Neutroneneinfang von Argon-36 zurück und wird durch den positiven Beitrag in Gleichung (7.3) beschrieben. Der Verlust setzt sich aus radioaktivem Zerfall und der Entgasungsrate zusammen. In diesem Abschnitt gehen wir zuerst davon aus, dass ausschließlich stabile Argonisotope aktiviert werden. Damit ergibt sich allgemein die Differentialgleichung:

$$\left(\frac{dN_{37}}{dt}\right) = f_V f_P \sigma_{36} \phi a_{36} \exp(-(\Delta + f_V f_P \sigma_{36} \phi) t) - (\Delta + \lambda) N_{37}(t) \quad (7.3)$$

mit

- f_V Anteil des Kühlmittels, dass im Reaktor für eine Aktivierungsreaktion zur Verfügung steht, 0,0539
- f_P Anteil der Leistung am Vollastbetrieb
- a_{36} Teilchenzahl für Argon-36 zum Zeitpunkt $t = 0$
- a_{37} Teilchenzahl für Argon-37 zum Zeitpunkt $t = 0$
- Δ Entgasungsrate, 0,099 h⁻¹ bzw. 0,189 h⁻¹

Gleichung (7.3) hat die allgemeine Lösung:

$$N_{37}(t) = \exp(-(\Delta + \lambda) t) \left(a_{37} + \frac{f_V f_P \sigma_{36} \phi a_{36}}{\lambda - f_V f_P \sigma_{36} \phi} (\exp(\lambda - f_V f_P \sigma_{36} \phi) \cdot t - 1) \right). \quad (7.4)$$

Die Anfangsmenge a_{37} an Argon-37 unterscheidet sich je nach Anfangsbedingung der unterschiedlichen Szenarien.

Um die emittierte Aktivität zu berechnen, müssen wir die Rückhaltezeit t_R der Gase in den Filtern und die zusätzliche Verdünnung des Luftstroms f_F berücksichtigen. Hier gilt für den Fortluftverdünnungsfaktor $f_F = 0,02169 \text{ s m}^{-3}$ (Kraftwerk Union AG, oD). Für Zeiten kleiner als die Retentionszeit der Rückhalteinrichtung gibt es keine signifikanten Emissionen. Danach gilt allgemein für die abgegebene Aktivität in Bq:

$$A_{37}(t \geq t_R) = \lambda f_F \Delta \cdot N_{37}(t - t_R) \exp(-\lambda t_R) \quad (7.5)$$

Die Menge an Argon-37 hängt von unterschiedlichen Randbedingungen ab, die durch den Betrieb des Druckwasserreaktors gegeben sind. Wir werden vier Szenarien besprechen, bei denen Argon-37 im Kühlmittel entsteht oder dorthin gelangt.

Szenario 1: Zusatz einer geringen Kühlmittelmenge

Um den reibungslosen Betrieb zu gewährleisten, müssen wir annehmen, dass das Kühlmittel früh und kontinuierlich entgast wird und daher kaum Argonisotope enthält. Da allerdings während des Routinebetriebs Tritium produziert wird, wird empfohlen, täglich eine Menge von etwa 5000 Litern Kühlmittel hinzugeben, um die Tritiumkonzentration gering zu halten (Kraftwerk Union AG, oD). Von dieser Menge nehmen wir an, dass sie mit natürlichen Argon-Isotopen luftgesättigt ist. Theoretisch wäre auch denkbar, dass durch einen Störfall Kühlmittel verloren geht und daher nachgeschüttet werden muss. Auch dabei gäbe es eine geringe Menge an luftgesättigten Wasser, das für eine Aktivierung zur Verfügung steht. Wir gehen davon aus, dass das vorhandene Kühlmittel zum Zeitpunkt $t = 0$ vollständig entgast ist und daher kein Argon-37 vorhanden ist, also $a_{37} = 0$ gilt. Das nachgeschüttete Volumen V enthält Argon-36 mit der

Konzentration $c_{36} = 2,07 \cdot 10^{-4} \text{ g L}^{-1}$. Zusammen mit der Masse eines einzelnen Argon-36-Atoms ergibt sich aus diesen Größen die Teilchenzahl N_{36} , die zur Aktivierung zur Verfügung steht. Damit folgt aus Gleichung (7.4):

$$N_{37}(t) = \exp -(\Delta + \lambda) t \left(\frac{f_V V c_{36} \sigma_{36} \phi}{m_{36}(\lambda - f_V f_P \sigma_{36} \phi)} (\exp(\lambda - f_V f_P \sigma_{36} \phi) - 1) \right). \quad (7.6)$$

Pro ausgetauschtem (und luftgesättigten) Liter Wasser ($f_V = 1$) ergibt sich mit $t_R = 12 \text{ h}$ und einer Entgasungsrate von $\Delta = 0,099$ beim Betrieb einer Pumpe eine maximale Aktivität von etwa:

$$A_{1L, \text{Szenario1}} = 0,238 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}. \quad (7.7)$$

Wird dem Kühlmittelkreislauf ein Volumen von 5000 L luftgesättigtes Wasser zugegeben ergibt sich daraus eine Aktivität von $A_{5000L, \text{Szenario1}} = 1,19 \cdot 10^3 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$.

Szenario 2: Anfahren nach einem Brennelementwechsel

Während eines Brennelementwechsels hat das Kühlmittel Luftkontakt und wird so vollständig mit Argon-36 gesättigt. Die Bildungsrate von Argon-37 hängt vom Neutronenfluss ab, der wiederum durch die Leistung des Reaktors bestimmt wird. Der Reaktor wird langsam über mehrere Tage zunächst in einen Schwachlastbetrieb genommen, bis er schließlich zur Vollast hochgefahren wird. Der stufenweise Anstieg dient dazu, zunächst das Kühlmittel auf Betriebstemperatur zu bringen.

Wir nehmen an, dass der Reaktor für die ersten 8,5 h bei erneuter Inbetriebnahme eine gedrosselte Leistung von etwa 5,3 % der Vollast hat Kraftwerk Union AG (1973). Dies deckt den Energieeigenbedarf des Kraftwerks und während dieser Zeit wird der Moderator auf Betriebstemperatur gebracht. Anschließend wird die Leistung auf 30 % und weiter bis zur Vollast erhöht (Kraftwerk Union AG, 1973). Für dieses Szenario werden fünf äquidistante Leistungsstufen zwischen dem maximalen Schwachlastbetrieb und der Vollast angenommen. Die Anfangswerte für Argon-36 und Argon-37 ergeben sich jeweils aus dem vorangegangenen Leistungsschritt. Die Dynamik dieses Prozesses geht aus Abbildung 7.3 hervor.

Bei einer Rückhaltezeit von 12 h und dem Betrieb einer Kühlmittelpumpe erwarten wir damit eine Aktivität von maximal:

$$A_{\text{max}, \text{Szenario2}} = 35,2 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}. \quad (7.8)$$

Szenario 3: Vollständige Sättigung und verzögerte Reinigung

Um einen Maximalwert für größtmögliche Emissionen aus der Kühlmittelentgasung zu ermitteln, betrachten wir in diesem Abschnitt Wasser, das mit Argon-36 luftgesättigt ist. Dies ist der Fall bei einem frischen Reaktorkern oder nach einem längeren Stillstand wie einem Brennelementwechsel, bei dem das Wasser ausreichend lange Kontakt zu Luft hatte. Im Unterschied zum bereits diskutierten Szenario nehmen wir nun an,

dass die Kühlmittelentgasungsanlage nicht direkt zu Beginn des neuen Betriebszykluses beim Hochfahren des Reaktors eingesetzt wird, sondern erst später. Dieses Szenario ist unwahrscheinlich und wird im Betrieb eines Druckwasserreaktor wohl nicht vorkommen, soll aber als obere Abschätzung hier diskutiert werden (Kraftwerk Union AG, oD). Mit den Randbedingungen $\Delta = 0$ und $a_{37} = 0$ vereinfacht sich Gleichung (7.4) zu:

$$N_{37}(t) = \frac{f_V V c_{36} \sigma_{36} \phi}{m_{36}(\lambda - f_V f_P \sigma_{36} \phi)} (\exp(-c_V \sigma_{36} \phi) - \exp(-\lambda t)) \quad (7.9)$$

Aus den Gleichungen (7.5) und (7.9) ergibt sich beim Betrieb von zwei Hochdruckförderpumpen und mit einer Rückhaltezeit von 12 h für dieses Szenario eine maximale Aktivität von etwa:

$$A_{\max, \text{Szenario3}} = 6,29 \cdot 10^7 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}. \quad (7.10)$$

Szenario 4: Emissionen aus einem defekten Brennstab

In Kapitel 5 haben wir die Entstehung von Argon-37 im Brennstoff untersucht. Der hier von uns betrachtete Reaktorkern des Kraftwerks Biblis C hat in einem Brennelement 193 Brennstäbe. Wir wollen das Szenario daraufhin untersuchen, welche Aktivität an Argon-37 zu erwarten ist, wenn ein Brennstab einen Defekt aufweist.

Der Brennstoff ist von einem Spalt umgeben, der mit Helium gefüllt ist. Dort sammeln sich Gase, die während der Bestrahlung gebildet werden. Wird die äußere Hülle des Brennstabes beschädigt, entweicht ein Teil dieser Gase ins Kühlmittel. Wasser kann nun durch den Riss eintreten und sich im Spalt ansammeln und so Gas, das weiterhin in den Spalt gelangt, direkt dem Kühlmittelfluss zuführen. Durch diesen kontinuierlichen Ausstrom aus dem Brennstab stellt sich im Spalt des Brennstabs, aber auch im Kühlmittel ein neues Gleichgewicht ein.

Betrachten wir zunächst, was innerhalb des Brennstabs geschieht. Nur Gase, die nahe der Oberfläche des Brennstoffes entstehen, sind in der Lage in den Spalt zu gelangen (Lewis, 1987). Zwei unterschiedliche Modelle, die beschreiben, wie Gasteilchen den Brennstoff verlassen, kommen in Betracht: Das Knockout-Modell und das Rückstoß-Modell. Entweder das Gasatom bewegt sich direkt durch das Uranoxid-Gitter (Rückstoß), oder durch Interaktionen mit anderen Atomen wird einem Gasatom sehr dicht an der Grenzfläche genug Energie übertragen, dass es herausgeschlagen wird (Knockout) (Lewis u. a., 2017). Da sich diese Prozesse nur in unmittelbarer Nähe zur Brennstoffoberfläche abspielen, ist der Beitrag an Gasen, die entweichen niedrig. Die relevante Schicht ist etwa $10 \mu\text{m}$ tief, was der Reichweite eines Spaltfragments entspricht (Lewis u. a., 2017). Sowohl theoretische Überlegungen als auch Messungen konnten zeigen, dass für weniger langlebige Isotope der Beitrag aus dem Knockout-Modell vernachlässigt werden kann. Es genügt daher, allein das Rückstoß-Modell heranzuziehen, da dies der dominante Prozess ist (Lewis, 1987). Für Edelgase ergibt sich nach Lewis (1987) ein Anteil für die Freisetzung aus dem Brennstoff in den Spalt von $r_S = 0,13\%$.

Wir gehen hier davon aus, dass der Defekt am Brennstab spontan zu einem willkürlichen Zeitpunkt während des laufenden Standardbetriebes auftritt, so dass im Spalt bereits ein zeitlich konstantes Gleichgewicht (aus Zerfall und Zugewinn aus dem Brennstoff) an Argon-37 herrscht. Durch den abrupten Riss im Hüllrohr des Brennstabes tritt bei einem ersten Ausbruch etwa 10 % des bereits gebildeten Gases aus (Rim, 1982). Diesen Anteil bezeichnen wir als r_A .

Dieser Anteil an der zuvor gebildeten Gleichgewichtsaktivität im Brennstab ergibt den Anfangswert für die Aktivität im Kühlmittel:

$$a_{37} = r_A \cdot \frac{r_S \sigma_{40} \phi N_{40}}{\lambda}. \quad (7.11)$$

Die Aktivität hängt von der Teilchenzahl der vorhandenen Calcium-40 Atomen N_{40} ab. Aus einer Verunreinigung von 5 ppm ergibt sich $N_{40} = 1,7 \cdot 10^{20}$. Der Gehalt an Argon-37 im Kühlmittel wird durch die folgende Gleichung beschrieben:

$$N_{37}(t) = r_S \sigma_{40} \phi N_{40} \left(\frac{r_K}{\lambda + \Delta} + \left(\frac{r_A}{\lambda} - \frac{r_K}{\lambda + \Delta} \right) \exp(-(\lambda + \Delta)t) \right) \quad (7.12)$$

Für die unterschiedlichen Anteile an Argon-37, die von einem Ort zum anderen gelangen gilt:

$$\begin{aligned} r_S &= 0,13\% && \text{Vom Brennstoff in den Spalt (Lewis, 1987)} \\ r_A &= 10\% && \text{Vom Spalt ins Wasser, Ausbruch (Rim, 1982)} \\ r_K &= 1\% && \text{Vom Spalt ins Wasser, kontinuierlich (Rim, 1982)} \end{aligned}$$

Beim Betrieb von beiden Hochdruckförderpumpen und mit einer Rückhaltezeit von 12 h ergibt sich daraus eine maximale Emission von:

$$A_{\max, \text{Szenario4}} = 8,8 \cdot 10^{-3} \text{ Bq m}^{-3}. \quad (7.13)$$

7.2.1. Diskussion der Emissionen aus dem Kühlmittel

Der zeitliche Verlauf der Aktivitätskonzentrationen aller Szenarien ist in Abbildung 7.3 dargestellt.

In zwei Fällen können sich kontinuierliche Emissionen ergeben. Dies gilt zum einen für einen defekten Brennstab, aus dem Argon-37 austritt und über die Kühlmittelreinigung an die Umwelt abgegeben wird (Szenario 4). Die Aktivitätskonzentration ist die niedrigste der vier Szenarien, klingt zunächst exponentiell ab und liefert einen konstanten Beitrag von etwa $3,63 \cdot 10^{-6} \text{ Bq m}^{-3}$, der allerdings so niedrig ist, dass er nicht weiter ins Gewicht fällt. Höhere Emissionen ergeben sich, wenn luftgesättigtes Kühlmittel nachgeschüttet wird. Auch dieser Prozess führt vermutlich zu einer kontinuierlichen Abgabe von Argon-37 an die Umwelt. Aus der empfohlene Menge von 5000 l folgt eine Aktivitätskonzentration von 1190 Bq m^{-3} .

Die anderen beiden Szenarien beschreiben Emissionen, die in einem zeitlich begrenzten Rahmen von wenigen Stunden bis Tagen auftreten. Innerhalb dieser Zeit klingt die Aktivität soweit ab, dass kein weiterer Beitrag zu erwarten ist.

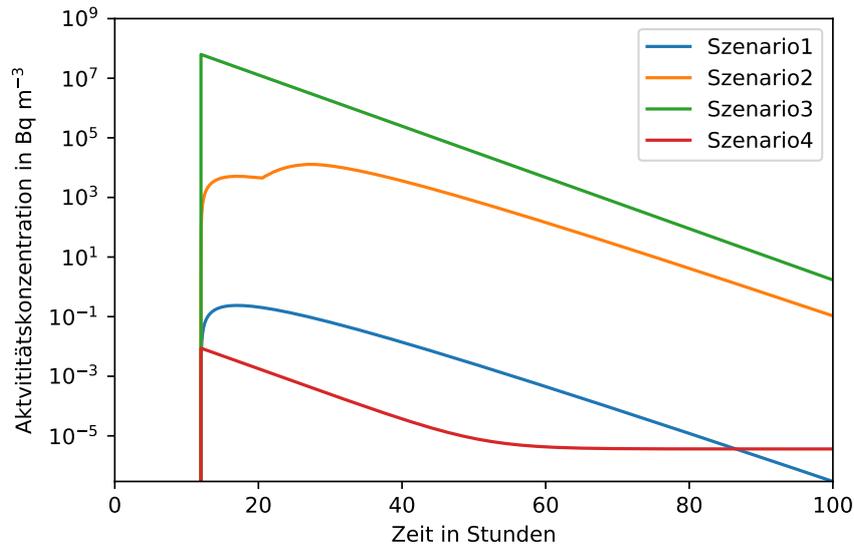


Abbildung 7.3.: Aktivitätskonzentration von Argon-37 für vier unterschiedliche Szenarien: Szenario 1: 1 Liter frisches Kühlmittel, Szenario 2: Anfahren des Reaktors, Szenario 3: verzögerte Kühlmittelreinigung, Szenario 4: ein defekter Brennstab. Für die Rückhaltezeit haben wir 12 h angenommen. Es werden beide Förderpumpen betrieben ($\Delta = 0,189 \text{ h}^{-1}$).

Wird der Reaktor aus dem Stillstand wieder angefahren, wird die Leistung zunächst bis zum Schwachlastbetrieb erhöht und dann schrittweise bis zur Vollast gesteigert. Diese Dynamik wird auch in Abbildung 7.3 deutlich. Besonders ist hier, dass die Emissionen geringfügig höher sind, wenn nur eine Förderpumpe betrieben wird. Dies erklärt sich dadurch, dass durch die geringere Reinigungsrate mehr Argon-37 für die Aktivierung bei zunehmender Leistung zur Verfügung steht. (Für die bessere Vergleichbarkeit der maximalen Emissionen in Abbildung 7.3 und Tabelle 7.2 ist allerdings der Betrieb beider Förderpumpen angenommen).

Die höchsten Aktivitätskonzentrationen werden erreicht, wenn sich im Kühlmittel über längere Zeit ein Gleichgewicht an Argon-37 aufbauen konnte, ohne dass das Wasser entgast wird. Auch diese Emissionen klingen über einige Tage so weit ab, dass es keinen relevanten Beitrag mehr gibt. Dieses Szenario ist allerdings unrealistisch und vom Betreiber nicht vorgesehen.

Zwei Parameter haben Einfluss auf die abgegebenen Aktivitäten: Die Rückhaltezeit im Filter und die Entgasungsrate, mit der das Kühlmittel gereinigt wird, die durch die Anzahl der Pumpen gegeben ist. Da wir in diesem Kontext an einer Abschätzung der maximal möglichen Emissionen interessiert sind, betrachten wir für die maximalen Werte eine Rückhaltezeit von 12 h und den Betrieb von beiden Förderpumpen, was einer Entgasungsrate von $0,189 \text{ h}^{-1}$ entspricht. Die maximal zu erwartenden Aktivitätskonzentrationen sind in Tabelle 7.2 zusammengefasst.

Szenario	maximale Aktivitätskonzentration in Bq m ⁻³
1: Zusatz einer geringen Kühlmittelmenge	0,24 pro Liter
2: Anfahren des Reaktors	1,29 · 10 ⁴
3: vollständige Sättigung und verzögerte Reinigung	6,29 · 10 ⁷
4: Leckage aus einem defekten Brennstab	8,8 · 10 ⁻³

Tabelle 7.2.: Zeitliche Maximalkonzentration beim Betrieb von zwei Hochdruckförderpumpen und einer Rückhaltezeit von 12h für Argon-37 für unterschiedliche Szenarien im Druckwasserreaktor.

Alle vorangegangenen Betrachtungen für Argon-37 lassen sich auf andere Isotope wie Argon-41 übertragen. Wir haben allerdings gesehen (vergleiche Abbildung 7.3), dass die Emissionen zeitlich begrenzt sind und die bestimmten Aktivitäten innerhalb weniger Stunden bis Tage abklingen. Der Vergleich mit Aktivitätswerten für Argon-41 ist für uns besonders für den Vergleich mit Messwerten aus Kernkraftwerken interessant. Wir müssen aber davon ausgehen, dass es unrealistisch ist, die hier diskutierten zeitlich begrenzten Emissionen bei einer Messkampagne zu erfassen. Die dabei festgestellten Werte gehen vermutlich auf einen zeitlich konstanten Prozess zurück. Kenntnisse über zeitlich begrenzte, aber teilweise hohe Emissionen sind dennoch wichtig, um diese Emissionsspitzen von Signalen aus einem Kernwaffentest unterscheiden zu können. Sie könnten sonst irrtümlich für eine Detektion aus einem unterirdischen Test gehalten werden.

7.3. Emissionen aus Aktivierungsprozessen außerhalb des Reaktorkerns

Neben den bereits in Kapitel 5 diskutierten Bildungspfaden kommen Aktivierungsreaktionen noch an anderen Orten in einem Druckwasserreaktor in Betracht. Die in diesem Abschnitt beschriebenen Ergebnisse wurden von Timo Schlüsch und Prof. Dr. Gerald Kirchner gefunden und sind ausführlich in Schlüsch (2018) dargestellt.

Die Neutronenflussdichte wird außerhalb des Reaktorkerns abgeschwächt. An den Reaktordruckbehälter schließt sich ein erster Luftspalt, dann eine Betonschicht und ein weiterer äußerer Luftspalt an (siehe Abbildung 7.4). In diesen drei Bereichen können Aktivierungsreaktionen auftreten: Die in den Luftspalten enthaltenen Argon-36 Atome werden über Neutroneneinfang zu Argon-37 und im Beton ist Calcium-40 enthalten, das über die bekannte Aktivierungsreaktion zu Argon-37 wird.

Die Neutronenflussdichte außerhalb des Reaktorkerns wurde mit einem eindimensionalen Modell bestimmt (Kirchner, 2018). Insgesamt wurde das Neutronenspektrum in 1260 Abschnitten zwischen der Kernumfassung und dem zweiten Betonspalt bestimmt. In den beiden Luftspalten ist die freie Weglänge der Neutronen so groß, dass der Fluss in allen Energiegruppen konstant bleibt. Im Beton fällt die Flussdichte deutlich ab und

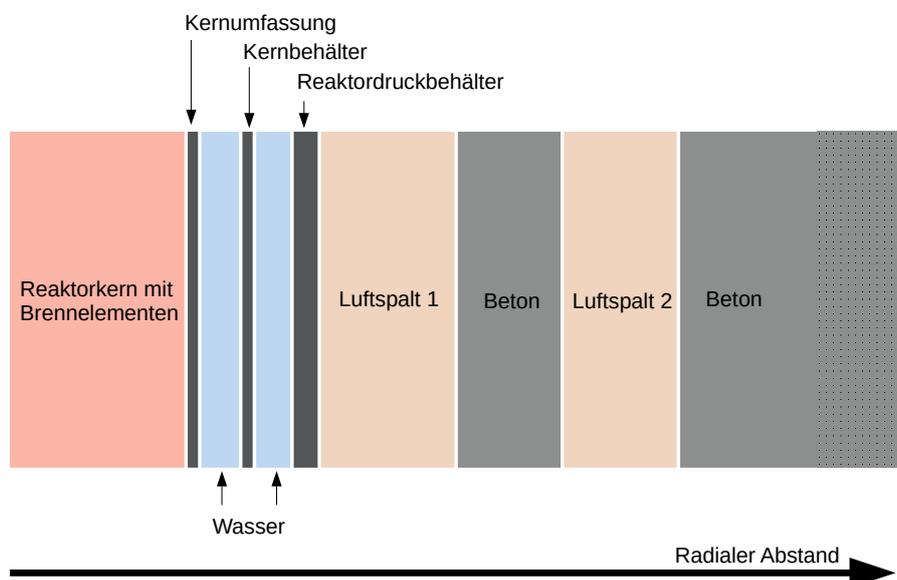


Abbildung 7.4.: Schematischer Querschnitt durch den Aufbau eines Druckwasserreaktors. Die Abbildung ist nicht maßstabsgetreu.

Produktionspfad	Aktivitätsstrom in $\text{Bq} \cdot \text{s}^{-1}$
Diffusion aus Beton in den inneren Luftspalt	
- für 8,7 % Calciumanteil	520,4
- für 37,5 % Calciumanteil	75,8
Diffusion aus Beton in den äußeren Luftspalt	
- für 8,7 % Calciumanteil	$2,2 \cdot 10^3$
- für 37,5 % Calciumanteil	326,7
Aktivierung im inneren Luftspalt	$1,1 \cdot 10^3$
Aktivierung im äußeren Luftspalt	72

Tabelle 7.3.: Beiträge zum Leck- und Lüftungsstrom, die auf die Aktivierung von Calcium-40 im Beton und Argon-36 in der Luft zurückgehen (Schlüschen, 2018).

durch Streuprozesse der Neutronen mit im Beton enthaltenen Wasserstoff steigt die thermische Flussdichte zunächst in der ersten Betonschicht an.

Der Calciumgehalt im Beton variiert je nach Zusammensetzung des Materials zwischen 8,7 % und 37,5 %. Die Reaktionsrate, mit der Argon-37 im Beton gebildet wird, ist am Anfang der Schicht am höchsten und fällt mit zunehmender Schichtdicke drastisch

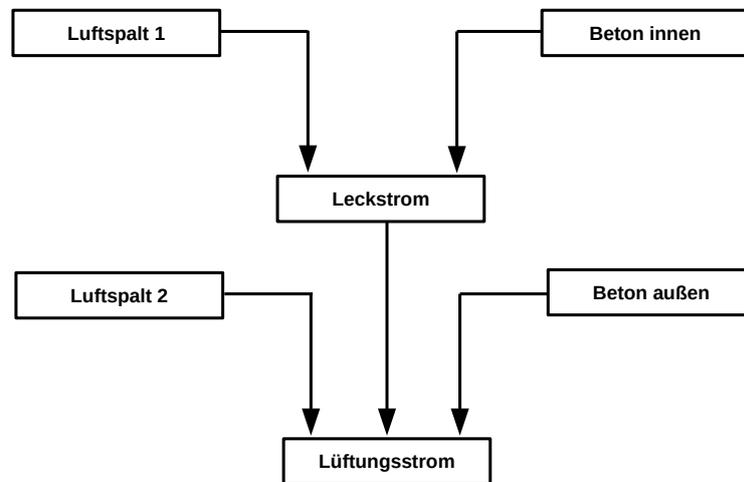


Abbildung 7.5.: Schematische Darstellung der Aktivitätsbeiträge zum Leck- und Lüftungsstrom für Aktivierungsprozesse außerhalb des Reaktorkerns.

ab (siehe Abbildung 5 in Schlüschien (2018)). Daher bildet sich besonders im ersten Randbereich Argon-37, das dann zu einem gewissen Anteil entlang des Konzentrationsgradient in den Beton hinein (statt in den ersten Luftspalt) diffundiert. Insgesamt entweicht allerdings der Großteil des im Beton gebildeten Argons in den ersten Luftspalt und nur ein kleiner Teil in den zweiten Luftspalt.

Die Aktivitätskonzentration von Argon-37 setzt sich aus dem aus dem Beton hinaus diffundierendem Aktivitätsstrom (siehe Tabelle 7.3) und der durch Aktivierung des in der Luft enthaltenen Argon-36 zusammen. Insgesamt ergibt sich im ersten Luftspalt damit eine Aktivität von $8,9 \cdot 10^8$ Bq (für 8,7 % Calciumanteil) bzw. $1,8 \cdot 10^9$ Bq (für 37,5 % Calciumanteil) für Argon-37. Die Betonschicht selbst ist keine solide Begrenzung sondern an manchen Stellen leicht durchlässig, sodass es einen Leckstrom aus dem ersten Luftspalt in den zweiten äußeren Luftspalt gibt. Die Argon-37 Aktivität im zweiten Luftspalt setzt sich wie in Abbildung 7.5 dargestellt, aus drei Beiträgen zusammen: Dem Leckstrom aus dem ersten Luftspalt, der Aktivierung des Argon-36 in der Luft und zu geringen Teilen aus dem Aktivitätsstrom aus dem Beton. Daraus ergibt sich eine Aktivität von $6,3 \cdot 10^7$ Bq (für 8,7 % Calciumanteil) bzw. $1,3 \cdot 10^8$ Bq (für 37,5 % Calciumanteil) für Argon-37. Der zweite Luftspalt ist an das zentrale Belüftungssystem angeschlossen. Die Aktivitätsströme aus dem ersten und zweiten Luftspalt sind in Tabelle 7.4 zusammengefasst.

Schlüschien (2018) nimmt in seiner Arbeit zunächst keine Rückhaltezeit an, um diese bewusst offen zu lassen und diskutiert nur abschließend Aktivitätskonzentrationen,

	Aktivitätsstrom in Bq s ⁻¹	
Calciumanteil im Beton	8,7 %	37,5 %
Leckstrom	1,53 · 10 ³	3,16 · 10 ³
Lüftungsstrom	1,68 · 10 ³	3,58 · 10 ³

Tabelle 7.4.: Aktivitätsstrom für Argon-37 aus dem inneren Luftspalt in den äußeren Luftspalt (Leckstrom) sowie den Lüftungsstrom in Abhängigkeit vom Calciumanteil im Beton (Schlüschen, 2018).

Isotop	Aktivitätskonzentration in Bq m ⁻³
Argon-41	77,2
Argon-37 (8,7 %)	35,7
Argon-37 (37,5 %)	71,6

Tabelle 7.5.: Emissionen aus einem Druckwasserreaktor, die auf die Aktivierungsprozesse außerhalb des Reaktors zurück gehen. Für die Rückhaltezeit haben wir 12 h angenommen. (Unverzögerte Aktivitätskonzentrationen wurden von Schlüschen (2018) bestimmt.)

die 24 h verzögert wurden. Wir verwenden in Hinblick auf die Überlegungen aus Abschnitt 7.1 und für eine bessere Vergleichbarkeit mit den bisherigen Überlegungen eine Rückhaltezeit von 12 h und passen die von Schlüschen (2018) nicht verzögerten Werte entsprechend an. Die Aktivitätskonzentrationen sind in Tabelle 7.5 aufgeführt.

7.4. Diskussion der Ergebnisse aus dem Druckwasserreaktor und Vergleich mit Messwerten

In früheren Messkampagnen konnten mehrere Werte für eine Argon-37 Aktivitätskonzentration in der Fortluft eines Druckwasserreaktors bestimmt werden, die in Tabelle 7.6 zusammengefasst sind (Purtschert, 2018).

Datum der Probennahme	Aktivitätskonzentration in Bq m ⁻³	
	Argon-37	Xenon-133
12.12.2016	21,7 ± 0,2	1,05 ± 0,16
11.09.2017	24,9 ± 0,7	
13.09.2017	10,2 ± 0,3	

Tabelle 7.6.: Aktivitätskonzentrationen für Argon-37 (gemessen von der Universität Bern) und Xenon-133 (gemessen vom BfS) im Kamin des Kernkraftwerks Philippsburg (KKP 2).

Aktivierungsreaktion	Emissionsrate in Bq pro Jahr
In Beton und Luftspalten (8,7% Calcium)	$4,5 \cdot 10^{10}$
In Beton und Luftspalten (37,5% Calcium)	$1,0 \cdot 10^{11}$
Im Kühlmittel (Szenario 1)	$3,0 \cdot 10^8 \cdot V$
Im Kühlmittel (Szenario 2)	$4,5 \cdot 10^{13}$
Im Kühlmittel (Szenario 3)	$7,9 \cdot 10^{16}$
Im Brennstoff (Szenario 4)	$1,1 \cdot 10^7$

Tabelle 7.7.: Argon-37 Emissionen pro Jahr für unterschiedliche Entstehungsprozesse bei einer Rückhaltezeit von 12 Stunden. In Szenario 1 gibt V das Volumen des nachgeschütteten Kühlmittels an. Die Werte gelten für den Betrieb von zwei Kühlmittelentgasungspumpen, für eine sind die Jahresemissionen entsprechend geringer.

Da die Messwerte zeitlich relativ konstant sind, gehen sie vermutlich auf eine kontinuierliche Argon-37 Emission zurück. Hier kommt vor allem die Emission aus Beton und Luftspalten in Betracht, die in guter Übereinstimmung mit den gemessenen Werten liegt, nimmt man eine niedrige Calcium-Verunreinigung an (vergleiche Tabelle 7.5 und Tabelle 7.6). Über die gleichen Aktivierungsprozesse kann auch Xenon-133 im inneren und äußeren Luftspalt gebildet werden. Allerdings ergibt sich daraus für Xenon-133 eine Aktivitätskonzentration von $0,009 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$, die die gemessenen Emissionen nicht erklären kann (Schlischen, 2018). Wir gehen daher davon aus, dass die gemessenen Edelgasisotope über unterschiedliche Prozesse gebildet werden und daher der Rückschluss von einem Isotop auf das andere nicht möglich ist.

Oft finden sich auch Angaben, in denen die Aktivität pro Jahr angegeben wird. Solchen Werten liegt die Annahme zugrunde, dass der Reaktor über die gesamte Zeit bei konstanter Leistung (respektive Vollast) betrieben wurde. Wir haben bereits diskutiert, dass dies oft nicht gegeben ist (vergleiche Abschnitt 5.3) und bevorzugen daher die Aktivitätskonzentration als Vergleichswert.

Besonders bei den jährlichen Emissionen für Szenario 1, 2 und 3 aus Abschnitt 7.2 ist hervorzuheben, dass eine Angabe über einen so großen Zeitraum kaum sinnvoll ist, da die Emission innerhalb weniger Tage auftritt und keinen kontinuierlichen Beitrag liefert. Sie sind in Tabelle 7.7 der Vollständigkeit halber aufgeführt und nur bedingt mit den anderen Entstehungsprozessen vergleichbar.

Wir geben auch die Aktivitäten an, die in einem Zeitraum von 315 Tagen bei Vollast abgegeben werden, um einen realistischen Vergleich zu weiteren Messwerten zu haben. Van der Stricht u. a. (2010) nennt für die Kraftwerksblöcke Biblis A und B Argon-41 Emissionen von $2,2$ bis $4,6 \cdot 10^{10} \text{ Bq a}^{-1}$. Diese Messwerte sind ebenfalls in guter Übereinstimmung mit den theoretischen Werten für Aktivierungsprozesse in Beton und Luft-

spalten. Auch die kontinuierliche Zugabe von einigen hundert Litern Kühlmittel ergibt Jahresaktivitäten, die vergleichbar mit den gemessenen Emissionsdaten sind.

Wir finden durch im Vergleich mit jährlichen Emissionsdaten sowie einzelnen lokalen Messungen (vergleiche Tabelle 7.6) gute Übereinstimmungen für die Emissionen aus einem Druckwasserreaktor, wenn wir annehmen, dass die Aktivitäten von Argon-37 und Argon-41 auf die Aktivierung von Calcium-40 im Beton und stabilen Argonisotopen in der Luft außerhalb des Reaktorkerns zurückgehen.

7.5. Emissionen aus dem FRM II

Nachdem wir die Emissionen aus einem Druckwasserreaktor ermittelt haben, diskutieren wir nun, welche Beiträge aus einem Forschungsreaktor zu erwarten sind. In Kapitel 6 haben wir die Aktivitätskonzentration von Argon-37 und Argon-41 in der Reaktorhalle des FRM II ermittelt. Wir wollen in diesem Abschnitt bestimmen, welche Konzentrationen aus dieser Anlage in die Umwelt gelangen. Im Gegensatz zum Druckwasserreaktor gibt es für den Forschungsreaktor keine besonderen Rückhaltevorrückungen. Die Luft in der Reaktorhalle wird mit einer konstanten Rate R von $15000 \text{ m}^3 \text{ h}^{-1}$ ausgetauscht. Daraus ergibt sich ein Fortluftstrom von $4,17 \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$ für den FRM II (was etwa einem Zehntel der Fortluft eines Druckwasserreaktors entspricht).

V_{Halle}	Luftvolumen in der Reaktorhalle	12000 m^3
$V_{\text{Schornstein}}$	Luftvolumen in Luftführung und Schornstein	50 m^3
R	Belüftungsrate	$15000 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$
λ_Z	Zerfallskonstante	Argon-37: $2,30 \cdot 10^{-7} \text{ s}^{-1}$ Argon-41: $1,05 \cdot 10^{-4} \text{ s}^{-1}$
λ_D	Diffusionskonstante	$2,15 \cdot 10^{-8} \text{ s}^{-1}$
λ_A	Belüftungskonstante	$3,47 \cdot 10^{-4} \text{ s}^{-1}$
λ_E	Emissionskonstante	$0,0834 \text{ s}^{-1}$

Tabelle 7.8.: Parameter zur Berechnung der emittierten Aktivitätskonzentration aus dem FRM II.

In Abschnitt 6.5 haben wir bereits bestimmt, mit welcher Argon-37 Aktivität in der Reaktorhalle zu rechnen ist. Diese Überlegungen führen wir nun weiter und bestimmen analog, welche Aktivität über den Schornstein an die Umgebung abgegeben wird. Dieser Prozess wird durch eine Differentialgleichung beschrieben, die sich aus der ausgetauschten Luft der Reaktorhalle (Gewinn) und dem Ausstrom aus dem Schornstein zusammensetzt und zusätzlich noch um den radioaktiven Zerfall verringert ist (Verluste):

$$\frac{dN_{\text{Emission}}}{dt} = \lambda_A \cdot N_{\text{Halle}} - \lambda_Z \cdot N_{\text{Emission}} - \lambda_E \cdot N_{\text{Emission}} . \quad (7.14)$$

Um die Emissionskonstante λ_E zu bestimmen, die den Ausstrom aus dem Schornstein beschreibt, müssen wir das in der Luftführung transportierte Volumen abschätzen. Wir

verwenden exemplarisch ein Volumen von 50 m^3 , und merken an, dass das Ergebnis gegenüber Schwankungen dieser Schätzung sehr robust ist. Auch für deutlich größere Volumen ergeben sich nur Abweichungen innerhalb der ersten Sekunden, nach 45 Tagen beträgt die Differenz der Aktivitätskonzentrationen bei einem zehnfach höheren Volumen nur 1 mBq m^{-3} . Die Emissionskonstante ergibt sich damit zu:

$$\lambda_E = \frac{R}{V_{\text{Schornstein}}} = 0,0834 \text{ s}^{-1} . \quad (7.15)$$

Aus Gleichung (7.14) ergibt sich mit Gleichung (6.12) die Lösung für die emittierte Teilchenzahl:

$$\begin{aligned} N_{\text{Emission}} &= \frac{\lambda_A P}{\lambda_A (\lambda_Z + \lambda_E)} \left(1 - \exp(-(\lambda_Z + \lambda_E) t) \right) \\ &+ \frac{\lambda_A P}{\lambda_Z (\lambda_E - \lambda_A)} \left(\exp(-(\lambda_Z + \lambda_E) t) - \exp(-\lambda_Z t) \right) \end{aligned} \quad (7.16)$$

Zum Zeitpunkt $t = 0$ können wir annehmen, dass die Aktivität $N_{\text{Emission},0}$, die zu Beginn aus dem Schornstein emittiert wird, Null ist. Aufgrund der direkten Luftführung von der Reaktorhalle zum Schornstein kommt es dort kaum noch zu Aktivitätsveränderungen und es wird nahezu die gleiche Aktivitätskonzentration emittiert, die im Mittel in der Halle herrscht. Nach 45 Tagen erwarten wir nach Gleichung (7.17) eine Aktivitätskonzentration von etwa 39 Bq m^{-3} .

Im Zuge der Messkampagne wurde die Aktivitätskonzentration im Kamin zu $34,5 \text{ Bq m}^{-3}$ bestimmt. Dieses Ergebnis ist damit in guter Übereinstimmung mit den Ergebnissen der Messung.

Da Argon-37 innerhalb eines Bestrahlungszykluses keinen Gleichgewichtswert erreicht (siehe Abbildung 7.6), ist auch das Verhältnis von Argon-41 zu Argon-37 nicht konstant. Der Verlauf des Aktivitätsverhältnisses für einen Bestrahlungszyklus ist in Abbildung 7.7 dargestellt. Aus diesem Grund sind Überlegungen aus anderen voran gegangenen Arbeiten, bei denen die Aktivität von Argon-37 über ein konstantes Verhältnis aus Werten für Argon-41 errechnet wurden, kritisch zu hinterfragen.

Isotop	Messwert in $\text{Bq} \cdot \text{m}^{-3}$	Modellergebnis in $\text{Bq} \cdot \text{m}^{-3}$
Argon-37	$34,5 \pm 0,6$	38,7
Argon-41	$3664 \pm 4,37$	981,1

Tabelle 7.9.: Aktivitätskonzentration im Kamin für die Isotope Argon-37 und Argon-41.

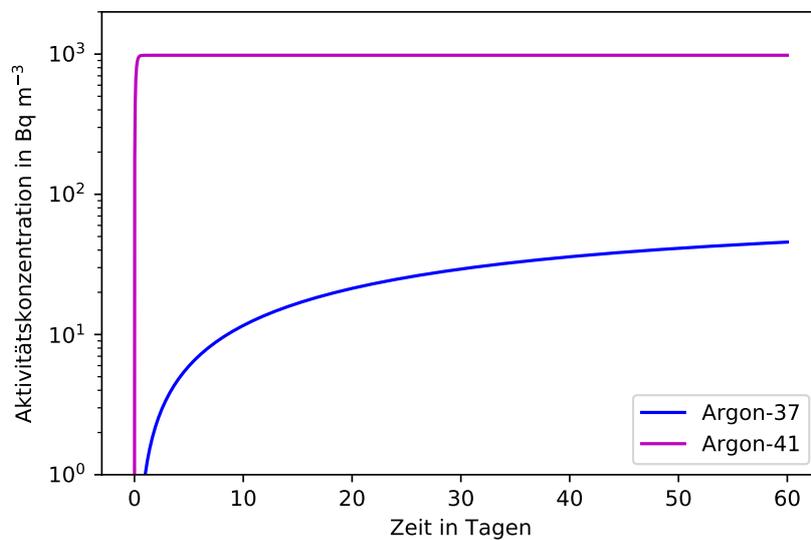


Abbildung 7.6.: Aktivitätskonzentration für Argon-37 und Argon-41 über einen Bestrahlungszyklus im Schornstein des FRM II.

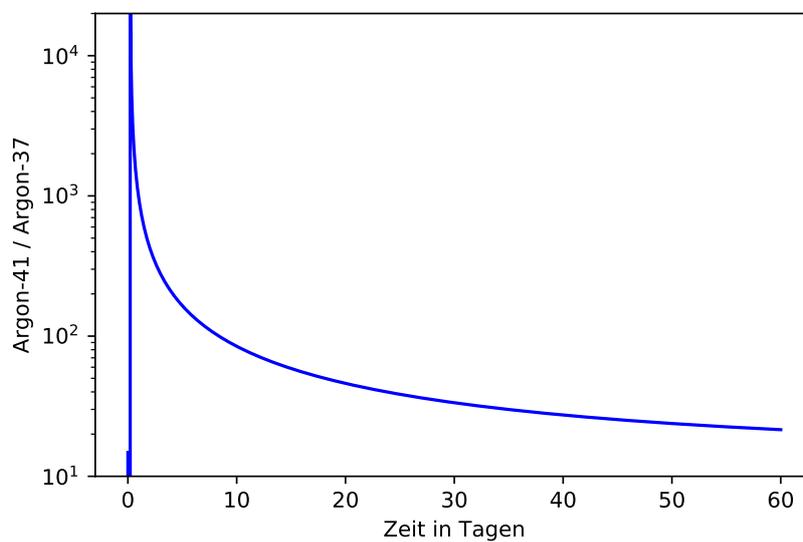


Abbildung 7.7.: Aktivitätsverhältnis für Argon-41 zu Argon-37 über einen Bestrahlungszyklus im Schornstein des FRM II.

7.6. Atmosphärische Verdünnung der Emissionen aus zivilen Anlagen

Wir kennen nun die Aktivitätskonzentrationen und Emissionsraten von Argon-37 aus einem Druckwasser- und einem Forschungsreaktor. Wir wollen diese Ergebnisse in den Kontext der Verifikation von Kernwaffentests einordnen.

Die Messstationen des internationalen Überwachungssystems (vergleiche Kapitel 1) sind weit verteilt: Der Abstand zwischen zwei Stationen, die mit Edelgasmesstechnik ausgestattet sind, liegt zwischen 1000 und 4300 km. Wir betrachten exemplarisch die Entfernungen bis zu 2000 km, da viele Stationen innerhalb dieser Entfernung zueinander liegen und hier eine Obergrenze der hohen Konzentrationen interessant ist. Eine Emissionswolke aus einer zivilen Quelle legt daher eine große Distanz zurück, ehe sie gemessen werden kann.

Es gibt unterschiedliche Modellierungsansätze für den atmosphärischen Transport, mit denen die Verdünnung in Abhängigkeit von der Entfernung bestimmt werden kann. Wir werden kurz die verschiedenen Ansätze besprechen und anschließend die Verdünnung für die in diesem Kapitel bestimmten Emissionen abschätzen.

Eine erste Näherung der Ausbreitung einer Emissionswolke gibt das Gauß-Fahnenmodell: Mit einfachen Randbedingungen gibt dieses Modell eine analytische Lösung der Diffusionsgleichung. Dabei nimmt man an, dass das Windfeld homogen verteilt ist und die Diffusionskoeffizienten (parallel und senkrecht zur mittleren Windrichtung) weder räumlich noch zeitlich variieren.

Schätzt man eine Reihe von Parametern (Windgeschwindigkeit, Emissionshöhe etc.) für die Ausbreitung ab, kann man den Verdünnungsfaktor für langlebige Isotope bestimmen. Für kurzlebige Isotope müsste der Faktor zusätzlich noch um den Zerfall korrigiert werden. Für Gauß-Fahnenmodelle kann der Verdünnungsfaktor als Funktion der Entfernung gut durch Potenzgesetze beschrieben werden (United Nations. Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, 2000).

Präzisere Ausbreitungsrechnungen sind mit dem Modellcode HYSPLIT („*Hybrid Single Particle Lagrangian Integrated Trajectory*“) möglich. Im Gegensatz zum Gauß-Fahnenmodell, das Diffusion behandelt, berücksichtigt HYSPLIT atmosphärische Dispersion. Der Code kombiniert einen Lagrange-Ansatz, der ein bewegtes Bezugssystem entlang einer Trajektorie zur Berechnung der Diffusion verwendet mit der Eulerschen Methode, die auf ein dreidimensionales, festes Gitter zurückgreift.

Modelle nach Gauß werden eher für kürzere Distanzen zwischen Quell- und Messort verwendet, Lagrange-Modelle bei größeren Entfernungen (Eslinger u. a., 2015).

In Abbildung 7.8 ist der Verdünnungsfaktor basierend auf einem einfachen Potenzgesetz nach dem Gauß-Fahnenmodell (United Nations. Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, 2000) und einem Potenzgesetz, das aus vielen Modellrechnungen mit HYSPLIT ermittelt wurde (Eslinger u. a., 2015) dargestellt.

Modellierungen nach dem Lagrange-Ansatz geben unter den hier geltenden Annahmen eine etwas größere Verdünnung im Vergleich zum Gauß-Fahnenmodell. Da diese Modelle gerade über die großen Distanzen für Überwachungszwecke eher Anwendung

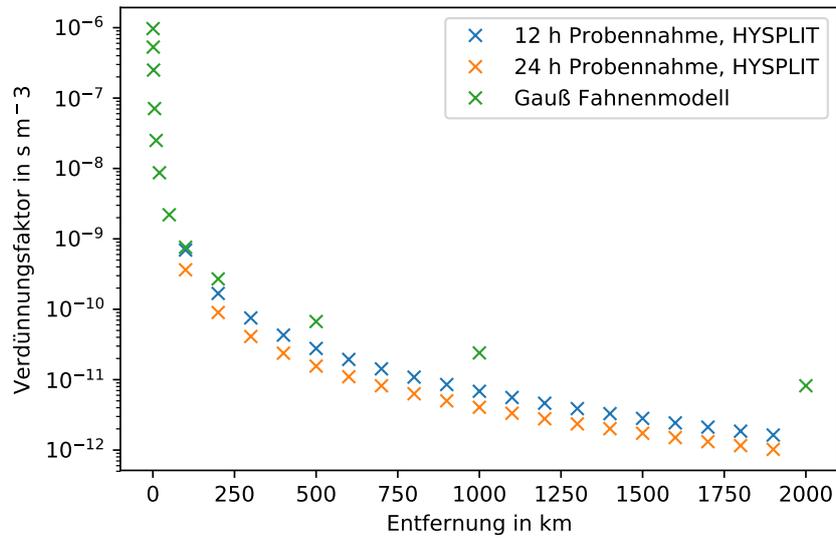


Abbildung 7.8.: Der Verdünnungsfaktor basierend auf einem einfachen Potenzgesetz nach dem Gauß-Fahnenmodell (United Nations. Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, 2000) und einem Potenzgesetz, das aus vielen Modellrechnungen mit HYSPLIT ermittelt wurde (Eslinger u. a., 2015).

finden, verwenden wir das von Eslinger u. a. (2015) beschriebene Potenzgesetz (siehe Gleichung (7.17)) um die Aktivitätskonzentration in größeren Entfernungen zu bestimmen.

Der Verdünnungsfaktor ist innerhalb der untersten 100 m in der Atmosphäre gemittelt und die Obergrenze für die Modelle auf 10 km gesetzt. Aufgrund der begrenzten Genauigkeit der meteorologischen Daten gilt die ermittelte Näherungsformel für den Verdünnungsfaktor nur für Distanzen von mehr als 100 km (Eslinger u. a., 2015). Um auch kürzere Entfernungen akkurat zu modellieren wäre ein hoch aufgelöstes Modell notwendig. Für unsere Überlegungen ist das nicht hinderlich, da die Messstation weit von einander entfernt sind und wir der Frage nachgehen, ob Argon-37 global zur Verifikation gemessen werden kann. In Abbildung 7.8 erkennen wir für kleine Entfernungen gute Übereinstimmung mit dem einfachen Potenzgesetz, welches auf dem Gauß-Fahnenmodell basiert, so dass dieses zur Berechnung der Verdünnung bei weniger als 100 km dienen kann.

Der zerfallskorrigierte Verdünnungsfaktor f_V hängt von der Entfernung d (in km) ab und berechnet sich nach Eslinger u. a. (2015) zu:

$$f_V = A \cdot \exp(-\lambda(-1,552 + 0,0405 \cdot d)) \cdot 5,37 \cdot 10^{-8} \cdot d^{-2,35}. \quad (7.17)$$

Der Abschwächungsfaktor A ist eine Funktion der Probenentnahmezeit und der Entfernung:

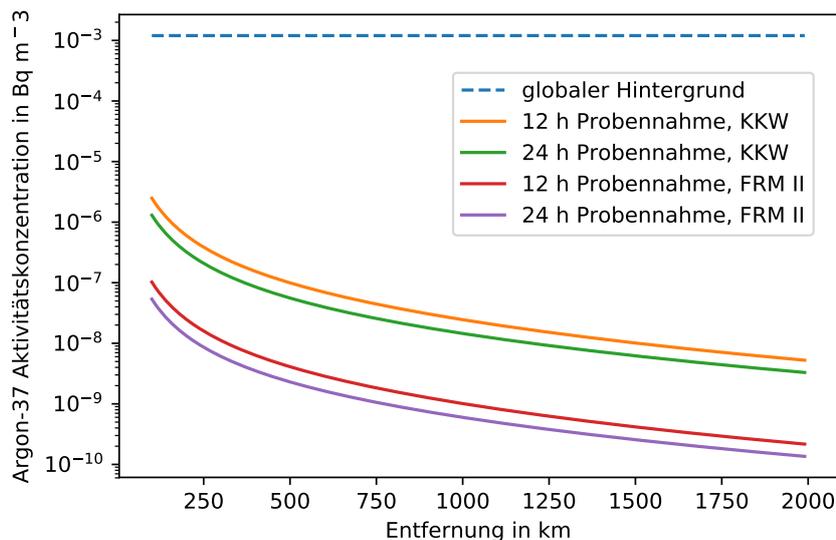


Abbildung 7.9.: Aktivitätskonzentration für Argon-37 in steigender Entfernung zum Quellort für Emissionen aus einem Druckwasser- und einem Forschungsreaktor.

$$A = c_0 + c_1 d + c_2 d^2 + c_3 d^3 + c_4 d^4. \quad (7.18)$$

Die Koeffizienten c_i hängen von der Probenentnahmezeit ab und wurden Eslinger u. a. (2015) entnommen. Zur Detektion von Radioxenon werden zur Zeit das schwedische SAUNA System und das französische SPALAX System verwendet, die eine Probenentnahmezeit von 12 h bzw. 24 h (für die neueste SPALAX-Generation ebenfalls 12 h) haben.

Unsere Rechnungen ergeben, dass der Einfluss der Probenentnahmezeit auf die Verdünnung deutlich größer ist als der der Zerfallskonstanten.

Abbildung 7.9 zeigt die Aktivitätskonzentration für Argon-37 für die in diesem Kapitel bestimmten Emissionsraten. Für den Druckwasserreaktor haben wir die kontinuierliche Emissionsrate angenommen, die maßgeblich auf die Aktivierung von Calcium-40 im Beton zurückgeht (3580 Bq s^{-1} , vergleiche Tabelle 7.4). Für den Forschungsreaktor ergibt sich eine Emissionsrate von $137,6 \text{ Bq s}^{-1}$ für Argon-37.

In Kapitel 3 haben wir den globalen Hintergrund für Argon-37 diskutiert. Riedmann u. Purtschert (2011) geben ihn mit $1,2 \pm 0,5 \text{ mBq m}^{-3}$ an. Dies ist in Abbildung 7.9 als Referenzwert gezeigt. Es wird deutlich, dass die Aktivitätskonzentrationen für die zu erwartenden kontinuierlichen Emissionen bereits nach einer atmosphärischen Ausbreitung von weniger als 100 km deutlich unter dem Untergrund liegen.

Damit haben wir gezeigt, dass die realistischen, kontinuierlichen Emissionen aus zwei unterschiedlichen zivilen Anlagen keinen signifikanten Beitrag zum globalen Argon-37 Hintergrund liefern. Da Aktivitätskonzentrationen bereits in vergleichsweise kurzen

Entfernungen deutlich niedriger als der Argon-37-Untergrund sind, stellen diese zivilen Emissionen kein Problem für eine globale Messung von Argon-37 zu Verifikationszwecken dar.

Atmosphärische Ausbreitung von lokalen Emissionsspitzen

Wir wollen die bis hierhin angestellten Überlegungen ergänzen, indem wir zusätzlich zu den kontinuierlichen Emissionen aus zivilen Anlagen auch die maximal möglichen Emissionen betrachten, um zu sehen, ob sie unter Umständen mit den Emissionen aus einem unterirdischen Test verwechselt werden könnten.

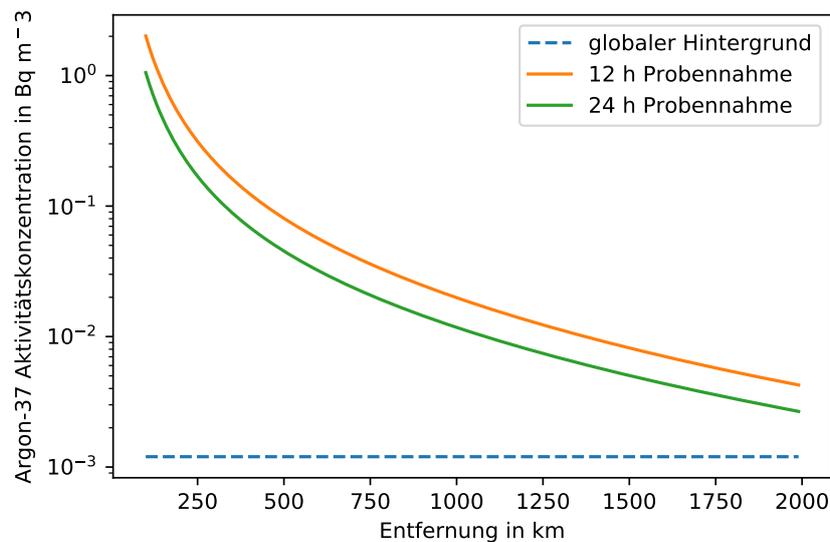


Abbildung 7.10.: Aktivitätskonzentration für Argon-37 in steigender Entfernung zum Quellort für die maximale, zeitlich begrenzte Emissionsrate aus einem Druckwasserreaktor.

Die höchsten Emissionsspitzen erwarten wir für einen Druckwasserreaktor, wenn das Kühlmittel mit stabilen Argonisotopen luftgesättigt ist, die aktiviert werden können. In diesem Fall setzt die Kühlmittelentgasung erst ein, wenn die Produktion von Argon-37 ein Gleichgewicht erreichen konnte. Aufgrund der Beschreibungen des Betreibers (Kraftwerk Union AG, oD) ist dieses Szenario zwar unrealistisch, liefert uns aber eine Obergrenze für die Abschätzung. Emissionen von bis zu $6,29 \cdot 10^7 \text{ Bq m}^{-3}$ sind in diesem Szenario möglich (vergleiche Szenario 3 in Abschnitt 7.2). Für den FRM II erwarten wir keine höheren Emissionsspitzen.

Aus Abbildung 7.10 wird deutlich, dass die maximal möglichen Emissionen aus einem Druckwasserreaktor deutlich über dem globalen Argon-37 Untergrund liegen. Die hier bestimmten Aktivitätskonzentrationen liegen außerdem auch für größere Entfernungen noch deutlich über der in Kapitel 3 angesprochenen minimale Nachweisgrenze von 26 mBq m^{-3} für mobilen Messeinheiten.

Dabei ist anzumerken, dass die Konzentration bei einer Ausbreitungsrechnung einen unteren Wert angibt, da sich die Aktivität nicht exakt gleichmäßig im Volumen verteilt. Praktisch bedeutet das, dass es lokal zu höheren Konzentrationen kommen kann (Ross, 2018).

Für den (unrealistischen) Fall von stark erhöhten Emissionsspitzen, die auf eine verzögerte Kühlmittelentgasung zurückgehen, könnte es zu Detektionen kommen, die nur aufgrund ihrer Amplitude nicht von den Signalen von einem Kernwaffentest unterscheidbar wäre.

Für Radioxenon ist bereits bekannt, dass der Nachweis eines einzelnen Isotops nicht zur Verifikation genügt. Gleiches gilt auch für Argon-37, das für eine globale Messung im Überwachungssystem in Relation zu anderen radioaktiven Emissionen aus einem Kernwaffentest gesetzt werden sollte.

Da bei den Aktivierungsreaktionen im Druckwasserreaktor keine größeren Mengen an Radioxenon entstehen, könnte das Verhältnis von Xenon-133 zu Argon-37 hilfreich sein, um die Signale zu unterscheiden. Allerdings merken wir an, dass nach den unterirdischen Kernwaffentests der letzten Jahre oft keine Detektion der Xenonisotope möglich war (siehe Abschnitt 1.4).

7.7. Zusammenfassender Überblick über die Emissionen aus einem Druckwasser- und Forschungsreaktor

Wir haben in diesem Kapitel bestimmt, mit welchen Emissionen aus einem Druckwasserreaktor und einem Forschungsreaktor zu rechnen ist.

Im Vergleich mit Messwerten (siehe Tabelle 7.6) konnten wir bestimmen, dass für Druckwasserreaktoren die Aktivierung von Calcium-40 im Beton des biologischen Schildes außerhalb des Reaktorkerns der relevante Produktionspfad ist. Je nach Calciumgehalt des Betons erwarten wir Aktivitätskonzentrationen von $35,7 \text{ Bq m}^{-3}$ oder $71,6 \text{ Bq m}^{-3}$ am Schornstein.

Außerdem legt der Vergleich mit Messwerten nahe, dass Argon- und Xenonisotope über unterschiedliche Produktionspfade entstehen. Xenon-133 Emissionen lassen sich nicht auf Aktivierungsreaktionen zurückführen.

Für den FRM II spielen Verzögerungen durch Rückhalteeinrichtungen keine Rolle. Aufgrund der Belüftungsrate erwarten wir eine emittierte Aktivitätskonzentration von etwa 39 Bq m^{-3} . Innerhalb eines Betriebszykluses wird allerdings kein Gleichgewichtswert für Argon-37 erreicht.

Kontinuierliche Emissionen aus zivilen kerntechnischen Anlagen werden durch atmosphärischen Transport bereits über kurze Entfernungen stark verdünnt, sodass sie deutlich unter dem globalen Hintergrund liegen. Wir können daher zivile Anlagen im Standardbetrieb als Störquellen ausschließen.

Zeitlich begrenzte Emissionsspitzen aus einem Druckwasserreaktor könnten über der Nachweisgrenze von Messsystemen für Argon-37 liegen und daher möglicherweise zu einem falschen Alarm führen. Hier sind weitere Überlegungen notwendig, um die Signaturen eindeutig unterscheiden zu können.

8. Abschließende Zusammenfassung und Ausblick

In diesem Kapitel tragen wir die wesentlichen Ergebnisse dieser Arbeit zusammen. Anschließend geben wir einen Ausblick darauf, welche Fragestellungen in Zukunft bearbeitet werden können.

Einleitung

Wir haben diese Arbeit damit begonnen, die thematische Fragestellung in den Kontext der Friedensforschung einzuordnen. Die bislang etablierten Methoden zur Überwachung von unterirdischen Kernwaffentests sind nicht ausreichend und müssen erweitert werden, um zweifelsfrei den nuklearen Charakter einer Explosion belegen zu können. Das radioaktive Isotop Argon-37 bietet hier neue Chancen.

Grundlagen

Im zweiten Kapitel dieser Arbeit haben wir die theoretischen Grundlagen diskutiert, die die komplexen physikalischen Prozesse im Inneren eines Kernreaktors beschreiben. **Der Transport und die Interaktion von Neutronen mit Materie werden mit Gleichungen beschrieben, die nur numerisch lösbar sind. Wir haben das dafür verwendete Programm SCALE vorgestellt und gezeigt, dass es gut dazu geeignet ist, Neutronenfluss und Abbrand für die komplexen Geometrien eines Druckwasser- und Forschungsreaktors zu bestimmen.**

Argon

Im dritten Kapitel haben wir das Isotop Argon-37 genauer betrachtet. Es zerfällt über einen Elektroneneinfang und kann aufgrund seiner geringen spezifischen Aktivität nur in einem Untergrundlabor gemessen werden. **Argon-37 entsteht bei unterirdischen Kernwaffentests, wenn Calcium-40 in der Erde um das Testgelände durch einen Neutroneneinfang aktiviert wird und unter Aussendung eines Alpha-teilchens zerfällt.**

Argon-37 im Druckwasserreaktor

Dieses Kapitel behandelt unterschiedliche Produktionspfade im Inneren eines Druckwasserreaktors. Der erste relevante Bildungspfad ist die Aktivierung der stabilen Argon-36-Isotope, die natürlicher Bestandteil von Luft sind und im Kühlmittel des Reaktors gelöst sein können. Für eine entsprechende Modellrechnung haben wir die Löslichkeit von Argon bei den Betriebsbedingungen des Druckwasserreaktors bestimmt. **Bei der Aktivierung der gelösten Argonisotope im Kühlmittel erhalten wir Aktivitäten von $7,5 \cdot 10^{14}$ Bq für Argon-37 und $4,5 \cdot 10^{16}$ Bq für Argon-41.** Wir betrachten Argon-41, da für dieses Isotop Messwerte aus Kernkraftwerken bekannt sind und es über den gleichen Prozess gebildet wird. Aufgrund der geringeren Halbwertszeit reagiert es deutlich sensibler auf Leistungsänderungen als Argon-37. Daher ist es nicht möglich, direkt aus den Aktivitäten von Argon-41 auf Argon-37 zurückzuschließen. Der zweite relevante Bildungspfad ist die Aktivierung von Calcium-40 (analog zum Kernwaffenstoff). Calcium-40 Verunreinigungen können im Reaktor an unterschiedlichen Stellen auftreten: **Für geringe Spuren Calcium-40 an den Hüllrohren ergibt sich eine Aktivität von $3 \cdot 10^{12}$ Bq. Nimmt man im Brennstoff eine Verunreinigung von etwa 5 ppm Calcium-40 an, erhalten wir eine Aktivität von $2,0 \cdot 10^{13}$ Bq.**

Argon-37 im FRM II

Für den Forschungsreaktor ist es uns gelungen, mehrere Bildungspfade zu evaluieren und auszuschließen. Wir erwarten keinen Beitrag aus einer Verunreinigung des Brennstoffes. Das Moderatorbecken befindet sich in Kontakt zur Raumluft, weshalb stabile Argonisotope gelöst im Wasser vorkommen. Im Moderator ergeben sich daraus Aktivitäten von etwa $5 \cdot 10^{13}$ Bq m⁻³. Allerdings dauert die Diffusion der radioaktiven Isotope bis zur Grenzschicht zu lange, um zur Aktivitätskonzentration in der Reaktorhalle beizutragen. Durch die Produktion der radioaktiven Gase kommt es nicht zu einer Blasenbildung im moderierenden Wasser. **Der im FRM II relevante Prozess zur Erzeugung von Argon-37 ist die Aktivierung der stabilen Argonisotope in der Luft der Reaktorhalle, aus denen eine Aktivitätskonzentration von etwa 31 Bq m⁻³ für Argon-37 resultiert.** Dieser Wert ist in guter Übereinstimmung mit experimentellen Werten aus einer Messkampagne am FRM II.

Tatsächliche Emissionen von Argon-37 in die Atmosphäre

Wir haben bestimmt, welche Aktivitätskonzentrationen aus einem Kernkraftwerk und dem Forschungsreaktor FRM II an die Umwelt abgegeben werden. Zusätzlich zu den Aktivierungsreaktionen im Reaktorkern des Druckwasserreaktors sind auch Entstehungsprozesse außerhalb relevant. **Ein Vergleich mit Messwerten ergab, dass sich die Emissionen gut durch eine Aktivierung des im Beton des biologischen Schilddes enthaltenen Calcium-40 erklären lassen. Für einen Anteil von 8,7 %**

Calcium erwarten wir eine Aktivitätskonzentration von etwa $35,7 \text{ Bq m}^{-3}$. Maximal können über diesen Produktionspfad Aktivitätskonzentrationen bis zu $71,6 \text{ Bq m}^{-3}$ entstehen. Diese Emissionen sind kontinuierlich.

Über einen Zeitraum von wenigen Tagen könnte es durch Aktivierungsprozesse im Kühlmittel zu Aktivitätsspitzen von bis zu $6,29 \cdot 10^7 \text{ Bq m}^{-3}$ kommen. Diese Konzentrationen sind zwar in der Realität unwahrscheinlich, könnten unter Umständen auch nach einer Verdünnung bei einer Messstation nachgewiesen werden und müssen daher von möglichen Emissionen aus einem unterirdischen Test unterschieden werden.

Für den FRM II werden die durch Modellrechnungen bestimmten Aktivitäten nur durch die Belüftungsrate modifiziert. **Wir erwarten kontinuierlich emittierte Aktivitätskonzentrationen für den Forschungsreaktor von etwa 39 Bq m^{-3} .**

Die kontinuierlichen Aktivitätskonzentrationen aus Druckwasser- und Forschungsreaktor verdünnen sich durch atmosphärischen Transport bereits über wenige Kilometer soweit, dass sie deutlich unter dem globalen Argon-37 Hintergrund liegen. Zeitlich begrenzte Emissionsspitzen liegen allerdings deutlich über dem Untergrund und der Nachweisgrenze von mobilen Messeinheiten.

8.1. Ausblick

In diesem Abschnitt machen wir uns einige Gedanken zu zukünftigen Forschungsfeldern. Wir zeigen auf, welche Aspekte der in dieser Arbeit berührten Thematiken weiter untersucht werden könnten.

Weitere zivile Quellen

Druckwasserreaktoren sind weltweit die häufigsten Reaktortypen. Daher lag auch in dieser Arbeit der Fokus auf diesem Typ eines Kernkraftwerkes. Eine für die Entstehung von Argon-37 wichtige Größe sind die Einfangwirkungsquerschnitte. Sie sind energieabhängig und im thermischen Bereich hoch, weshalb diese Reaktionen in Leichtwasserreaktoren häufig auftreten. Abbildung 8.1 gibt eine Übersicht über verschiedene Reaktoren, die zur Zeit weltweit in Betrieb sind. Andere Reaktortypen zeigen andere Spektren: Für einen Hochflussreaktor ist der Neutronenfluss deutlich in den hochenergetischen Bereich verschoben. In diesem Fall wären Aktivierungsreaktionen weniger wahrscheinlich, aber Prozesse wie Spallation könnten relevant sein. In Graphit-moderierten Reaktoren könnte auch die Aktivierungsprozesse, die auf Calcium-40 zurückgehen wichtig sein.

Neben Kernkraftwerken gibt es weitere kerntechnische Anlagen, die als Emittenten für Argon-37 in Betracht kommen. Denkbar wären hier medizinische Isotopenfabriken und Einrichtungen für Nuklearmedizin, bei denen Neutronenstrahlung zum Einsatz kommt. Messungen von Dr. Roland Purtschert haben für ein Zyklotron eine Aktivitätskonzentration

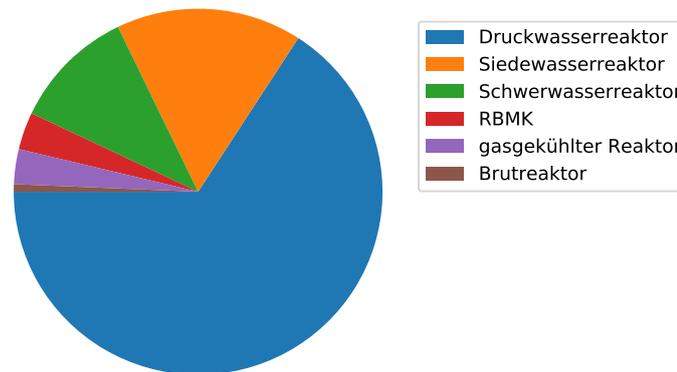


Abbildung 8.1.: Verteilung der unterschiedlichen Reaktortypen weltweit (IAEO). Insgesamt sind zur Zeit 299 Kernkraftwerke in Betrieb.

tration in der Fortluft gefunden, die vergleichbar mit dem Wert für Kernkraftwerke ist (Purtschert, 2018). Hier sind weitere Studien notwendig, um die genauen Produktionsmöglichkeiten für Argon-37 festzustellen. Die hier angesprochene Einrichtung hat allerdings eine im Vergleich zum Druckwasserreaktor niedrige Betriebszeit, was dazu führt, dass die jährlichen Emissionen deutlich geringer sind. Daher ist aus diesen Einrichtungen kein wesentlicher Beitrag zum Argon-Hintergrund zu erwarten.

Diffusionsmodell für Emissionen aus einem unterirdischen Kernwaffentest

Die wesentliche Herausforderung ist, die Aktivitätskonzentrationen der radioaktiven Edelgase an der Oberfläche zu bestimmen. Die Produktion der Teilchen lässt sich für verschiedene Gesteinstypen abschätzen (die genaue geologische Zusammensetzung des Testortes und damit auch der Calcium-40 Gehalt ist nicht bekannt), für den Transport allerdings gibt es kein Modell. Einfache Abschätzungen sind hier nicht ausreichend, da die Ausbreitung des Edelgases durch den Boden komplex ist: Das im Untergrund gebildete Argon-37 diffundiert durch Porositäten im Gestein an die Oberfläche. Es ist ein komplexes Transportmodell für diese Diffusion notwendig, um zu bestimmen, welche Aktivitätskonzentrationen (in Abhängigkeit von Calciumgehalt und Sprengkraft) aus dem Boden austreten.

Mit atmosphärischen Transportrechnungen könnte man anschließend einen Richtwert dafür bekommen, welche Aktivitätskonzentrationen an einer Messstation des IMS detektiert werden könnten.

Dies ist wichtig, um ein vollständiges Verständnis für die Unterscheidbarkeit von Emissionen aus zivilen Anlagen und aus nuklearen Explosionen zu entwickeln.

In dieser Arbeit lag der Fokus auf unterirdischen Kernwaffentest. Sollte sich die politische Lage in Zukunft dramatisch ändern und atmosphärische Tests durchgeführt

werden, würden dabei ganz andere Signaturen von Argon-37 frei gesetzt werden, da es in der Atmosphäre über die stabilen Argonisotope produziert wird.

Unterscheidbarkeit von Wasserstoffbombe und herkömmlichen Kernwaffen

Bei der Explosion einer Wasserstoffbombe wird ein höherer Neutronenfluss freigesetzt, der zu höheren Aktivitäten von Argon-37 führt. Zukünftige Arbeiten könnten sich mit der Unterscheidbarkeit von Wasserstoff- und konventionellen Spaltbomben beschäftigen, um abzuschätzen, inwieweit die Argon-37 Aktivität beziehungsweise das Verhältnis zum Spaltprodukt Xenon ein Indikator darstellt.

Danksagung

Ich danke zuallererst meinem Doktorvater, Prof. Dr. Gerald Kirchner für die jahrelange Zusammenarbeit. Während dieser Zeit konnte ich viel von ihm lernen. Ebenso danke ich Prof. Dr. Caren Hagner, die sich freundlicherweise bereiterklärt hat, diese Arbeit zu begutachten.

Mein Dankt gilt auch der Deutschen Stiftung Friedensforschung, die dieses Projekt gefördert hat.

Weiterhin möchte ich mich bei allen Kollegen und Mitstreitern bedanken, die mich unterstützt haben. Dr. Roland Purtschert von der Universität Bern war ein unverzichtbarer Projektpartner, der die Messkampagne am FRM II durchgeführt und die genommenen Proben vermessen hat. Weitere Messergebnisse wurden von Kollegen des Bundesamt für Strahlenschutz in Freiburg und München beigesteuert, ich danke hier stellvertretend Dr. Andreas Bollhöfer.

Ich danke auch meinen Kollegen am ZNF. Simon Hebel hat eine Messung mit der Krytonabtrennungsanlage ermöglicht und viele weitere haben mich mit ihrer Zuversicht aufgebaut.

Darüber hinaus möchte ich mich auch bei allen Menschen bedanken, die während dieser Zeit meiner Promotion im Hintergrund gewirkt haben. Ohne ihren unermüdlichen Einsatz wäre dies nicht möglich gewesen.

Am Ende möchte ich mich bei meinem Partner Johannes Martin bedanken. Er hat an mich und die Arbeit geglaubt, geholfen, korrigiert und Mut gemacht.

A. Anhang

Absorption von Nukliden im Druckwasserreaktor

Isotop	Absorption in %	Dichte in g cm ⁻³
U-325	25,17	19,16
U-238	19,72	19,16
Pu-239	16,47	19,82
Ag-109	6,56	10,49
In-115	5,25	7,31
Pu-240	2,39	19,82
Xe-135	2,09	0,0059
Pu-241	1,89	19,82
Anteile zwischen 0,1 % und 1%		
cs-133	0,30	1,9
eu-153	0,11	5,25
nd-143	0,85	7,00
nd-145	0,18	7,00
np-237	0,12	20,45
pm-147	0,30	7,2
rh-103	0,49	12,38
sm-149	0,55	7,54
sm-151	0,29	7,54
sm-152	0,23	7,54
tc-99	0,23	11,5
u-236	0,36	19,16
xe-131	0,31	0,0059
zr-91	0,32	6,50

Tabelle A.1.: Neutronenabsorptionsanteil unterschiedlicher Isotope im Brennstoff.

Der Brennstoff des FRM II

Zukünftige Verwendung

Im Zuge der Umrüstung auf eine niedrigere Anreicherung werden verschiedene neuartige Brennstoffe untersucht, die in Zukunft im FRM II zum Einsatz kommen könnten. Um die niedrigere Anreicherung auszugleichen, muss dieser neue Brennstoff hochdicht gepackt sein. Außerdem sollte er die bei der Kernspaltung entstehenden Gase einschließen, damit sie nicht entweichen. Aufgrund der hohen Flussdichte und der damit verbundenen Wärmeentwicklung ist auch die Wärmeleitfähigkeit des Brennstoffes wichtig, um eine Überhitzung im Inneren zu verhindern und die Wärme nach außen abführen zu können. Um genau diesen Flüssen standzuhalten sollte er sich unter der anhaltenden Bestrahlung auch nicht mechanisch verformen.

Um diese Anforderungen zu erfüllen, wird zur Zeit an Uran-Molybdän (UMo) Brennstoffen geforscht, hier sind sowohl disperse als auch monolithische Brennstoffe denkbar. Welche Form sich letztendlich bewähren wird, ist zum Zeitpunkt dieser Arbeit noch nicht absehbar.

Disperse Brennstoffe

In einem Dispersionsbrennstoff werden die Partikel pulverisiert in eine Aluminiummatrix eingebracht. Die UMo Teilchen können dabei eine Größe bis zu $100\ \mu\text{m}$ haben. Problematisch ist, dass alle Experimente der an der Entwicklung beteiligten Gruppen gezeigt haben, dass der Brennstoff bei höheren Temperaturen, Spaltraten und Wärme-flüssen ein sonderbares Schwellverhalten zeigt. Dies ist besonders kritisch, da solche Bedingungen beim Betrieb des Reaktors erreicht werden. Dieses sogenannte „pillowing“ entsteht an der Grenzschicht zwischen Uran und Aluminium, der Interaktionsschicht. Dort können dann die entstandenen Spaltprodukte nicht in stabile Blasen eingeschlossen werden, sondern diffundieren weiter nach Außen, bis an den Rand der Interaktionsschicht. Eine Möglichkeit, diese Schicht zu reduzieren ist, dem Aluminium wenige Prozent Silizium beizumengen. Dadurch werden auch die Diffusionseigenschaften des Urans beeinflusst.

Monolithische Brennstoffe

Für einen monolithischen Brennstoff wird durch Walzen eines gegossenen Stückes Uran eine Folie hergestellt, die einige $100\ \mu\text{m}$ stark ist. Diese wird anschließend in Aluminium verschweißt. Ein solcher Brennstoff hat eine maximale Dichte, die vom Uranmetall bestimmt wird. Sie verringert sich durch den Anteil an Molybdän, der eingebracht wird, typisch sind hier Werte von etwa $16\ \text{g}/\text{cm}^3$ (Englert, 2010). Damit ist zum einen die Dichte deutlich höher als bei Dispersionsbrennstoffen und zum Anderen wird durch die kompakte Folie die Oberfläche der Interaktionsschicht von Aluminium und Brennstoff reduziert.

Umrüstung

Aus dem Blickfeld der Friedensforschung ist eine Verwendung von hoch angereicherter Uran (im Englischen: „highly enriched uranium“, HEU) als Brennstoff in einem Forschungsreaktor problematisch. (Die Anreicherung des Brennelementes mit 93% entspricht der Anreicherung der Kernwaffe, die auf Hiroshima abgeworfen wurde). Weltweit sind viele Forschungseinrichtungen sowie Betreiber von medizinischen Isotopenfabriken dazu übergegangen, ihre Reaktoren stattdessen mit niedrig angereichertem Uran (low enriched uranium, LEU) zu betreiben. Der FRM II wurde unter wissenschaftlichen und wirtschaftlichen Gesichtspunkten auf den Betrieb mit HEU ausgelegt und soll nun zukünftig auf LEU umgestellt werden. Zu diesem Zweck wurden bereits Vorarbeiten geleistet, wie ein entsprechender Reaktorkern aussehen könnte um nach wie vor die entsprechend hohen Neutronenflüsse liefern zu können.

Bislang ließ sich die Umrüstung nicht realisieren, da der Umbau erst erfolgen soll, wenn ein geeigneter Brennstoff mit einer entsprechend hohen Dichte, die die Einbußen des spaltbaren U235 ausgleicht, zur Verfügung steht. Eine solche Entwicklung wäre auch von Bedeutung für andere Hochflussreaktoren mit evolventenförmigen Brennelementen wie den Forschungsreaktor am Institut Laue-Langevin (ILL) in Grenoble oder für den Hochflussreaktor (HFIR) am Oak Ridge National Laboratory.

Abreicherung

Ein Brennelement verbleibt etwa 60 Tage im Reaktor und wird anschließend ausgewechselt (Röhrmoser u. Petry, 2009). Das abgebrannte Brennelement weist immer noch eine Anreicherung von etwa 85% auf. Der Verein „Umweltinstitut München“ äußerte in diesem Kontext die Idee, das Brennelement weiter abzureichern, bevor es gelagert wird. Zu diesem Zweck könnte direkt in Garching eine entsprechende Anlage gebaut werden. In einem solchen Fall würde das Brennelement eingeschmolzen oder in einem chemischen Prozess aufgelöst werden, bei dem sich die unterschiedlichen Uran-Brennstoffkomponenten irreversibel vermischen würden. Dabei würden auch die beim Betrieb entstandenen Spaltprodukte frei werden, darunter auch flüchtige Gase, die aufwendig zurück gehalten werden müssten. Der Betreiber sieht hier eher eine Wiederaufbereitung in bereits existierenden Anlagen wie im französischen La Hague als Möglichkeit (TUM).

Eidesstattliche Versicherung

Hiermit versichere ich an Eides statt, die vorliegende Dissertationsschrift selbst verfasst und keine anderen als die angegebenen Hilfsmittel und Quellen benutzt zu haben.

Die eingereichte schriftliche Fassung entspricht der auf dem elektronischen Speichermedium.

Die Dissertation wurde in der vorgelegten oder einer ähnlichen Form nicht schon einmal in einem früheren Promotionsverfahren angenommen oder als ungenügend beurteilt.

Hamburg, den

Unterschrift der Doktorandin

Literaturverzeichnis

- [Aalseth u. a. 2011] AALSETH, Craig E. ; DAY, Anthony R. ; HAAS, Derek A. ; HOPPE, Eric W. ; HYRONIMUS, Brian J. ; KEILLOR, Martin E. ; MACE, Emily K. ; ORRELL, John L. ; SEIFERT, Allen ; WOODS, Vincent T.: Measurement of ^{37}Ar to support technology for On-Site Inspection under the Comprehensive Nuclear-Test-Ban Treaty. In: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment* 652 (2011), Nr. 1, S. 58–61
- [Atwood 2013] ATWOOD, David A.: *Radionuclides in the Environment*. John Wiley & Sons, 2013
- [Axmann u. a. 1997] AXMANN, A ; BÖNING, K ; ROTTMANN, M: FRM-II: The new German research reactor. In: *Nuclear engineering and design* 178 (1997), Nr. 1, S. 127–133
- [Böhmer 2006] BÖHMER, Michael: *Messung der Spallationsreaktion $^{56}\text{Fe} + p$ in inverser Kinematik*, Technische Universität München, Diss., 2006
- [Carrigan u. Sun 2011] CARRIGAN, CR ; SUN, Y: Issues involving the osi concept of operation for noble gas radionuclide detection / Lawrence Livermore National Lab.(LLNL), Livermore, CA (United States). 2011. – Forschungsbericht
- [Colt 2012] COLT, John: *Dissolved Gas Concentration in Water*. Elsevier, 2012
- [Deller 2018] Private Kommunikation
- [Demtröder 2014] DEMTRÖDER, Wolfgang: *Experimentalphysik 4 Kern-, Teilchen- und Astrophysik*. Springer Spektrum, 2014
- [Dubasov 2010] DUBASOV, Yuri V.: Underground nuclear explosions and release of radioactive noble gases. In: *Pure and applied geophysics* 167 (2010), Nr. 4-5, S. 455–461
- [Egnatuk u. a. 2012] EGNATUK, Christine M. ; LOWREY, Justin ; BIEGALSKI, Steven R. ; BOWYER, Theodore ; HAAS, Derek ; ORRELL, John ; WOODS, Vincent ; KEILLOR, Martin: Production of ^{37}Ar in The University of Texas TRIGA reactor facility. In: *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 291 (2012), Nr. 1, S. 257–260
- [Englert 2010] ENGLERT, Matthias: *Neutronenphysikalische Simulationsrechnungen zur Proliferationsresistenz nuklearer Technologien*, Technische Universität, Diss., 2010

- [Eslinger u. a. 2015] ESLINGER, Paul W. ; BOWYER, Ted W. ; CAMERON, Ian M. ; HAYES, James C. ; MILEY, Harry S.: Atmospheric plume progression as a function of time and distance from the release point for radioactive isotopes. In: *Journal of environmental radioactivity* 148 (2015), S. 123–129
- [Fachausschuss für Austausch von Betriebserfahrungen 1992] FACHAUSSCHUSS FÜR AUSTAUSCH VON BETRIEBSERFAHRUNGEN: Deutsche Kernkraftwerke: Betriebsergebnisse 1991. In: *Atomwirtschaft - Atomtechnik* (1992)
- [Fay u. Biegalski 2013] FAY, AG ; BIEGALSKI, SR: Contributions to the ^{37}Ar background by research reactor operations. In: *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 296 (2013), Nr. 1, S. 273–277
- [Fay 2014] FAY, Alexander G.: *Characterization of sources of radioargon in a research reactor*, Diss., 2014
- [Gaeggeler 1995] GAEGGELER, HW: Radioactivity in the atmosphere. In: *Radiochimica Acta* 70 (1995), Nr. s1, S. 345–354
- [Gaubatz 1999] GAUBATZ, Werner: *Rechnerische Optimierung der sekundären Neutronenquellen des neuen Münchener Forschungsreaktors FRM-II*, Technische Universität München, Diss., 1999
- [Gerfen 2018] GERFEN, Frankiska: *Simulationsrechnung zur Emission von Ar-37 aus dem Kühlmittel eines Druckwasserreaktors*, Unisersität Hamburg, Bachelorarbeit, 2018
- [Glaser u. a. 2000] GLASER, Alexander ; PISTNER, Christoph ; LIEBERT, Wolfgang: Verifizierung und Präzisierung der Informationen zu den Brennstoff-Varianten für den Forschungsreaktor München II / IANUS Interdisziplinäre Arbeitsgruppe Naturwissenschaft, Technik und Sicherheit. 2000. – Forschungsbericht
- [Haas u. a. 2010] HAAS, Derek A. ; ORRELL, John L. ; BOWYER, Ted W. ; MCINTYRE, Justin I. ; MILEY, Harry S. ; AALSETH, Craig E. ; HAYES, James C.: The science case for ^{37}Ar as a monitor for underground nuclear explosions. In: *Number June* (2010)
- [Hebel 2018] HEBEL, Simon: *Automated separation of krypton from small atmospheric air samples for measurement with atom trap trace analysis*, Universität Hamburg, Diss., 2018
- [Hertig Aeschbach] HERTIG AESCHBACH, Werner: *Physics of aquatic systems*. http://www.iup.uni-heidelberg.de/institut/studium/lehre/AquaPhys/docMVEEnv3_12/AqSysSkript_Kap6.pdf
- [IAEO] IAEO: *PRIS Database*. <https://www.iaea.org/PRIS/WorldStatistics/OperationalReactorsByType.aspx>

- [Johnson u. a. 2017] JOHNSON, Christine ; BIEGALSKI, Steven R. ; ARTNAK, Edward J. ; MOLL, Ethan ; HAAS, Derek A. ; LOWREY, Justin D. ; AALSETH, Craig E. ; SEIFERT, Allen ; MACE, Emily K. ; WOODS, Vincent T. u. a.: Production and release rate of ^{37}Ar from the UT TRIGA Mark-II research reactor. In: *Journal of environmental radioactivity* 167 (2017), S. 249–253
- [KAERI] KAERI: *Table of Nuclides*. <http://atom.kaeri.re.kr/nuchart/>
- [Kalinowski u. a. 2010] KALINOWSKI, Martin B. ; AXELSSON, Anders ; BEAN, Marc ; BLANCHARD, Xavier ; BOWYER, Theodore W. ; BRACHET, Guy ; HEBEL, Simon ; MCINTYRE, Justin I. ; PETERS, Jana ; PISTNER, Christoph u. a.: Discrimination of nuclear explosions against civilian sources based on atmospheric xenon isotopic activity ratios. In: *Pure and applied geophysics* 167 (2010), Nr. 4-5, S. 517–539
- [Kennan u. Pollack 1990] KENNAN, Richard P. ; POLLACK, Gerald L.: Pressure dependence of the solubility of nitrogen, argon, krypton, and xenon in water. In: *The Journal of Chemical Physics* 93 (1990), Nr. 4, S. 2724–2735
- [Kirchner 2018] Private Kommunikation an Timo Schlüschen
- [Kraftwerk Union AG 1973] KRAFTWERK UNION AG: Sicherheitsbericht Kernkraftwerk Grafenrheinfeld mit Druckwasserreaktor / Kraftwerk Union AG. 1973. – Forschungsbericht
- [Kraftwerk Union AG oD] KRAFTWERK UNION AG: Sicherheitsbericht Kernkraftwerk Biblis C mit Druckwasserreaktor / Kraftwerk Union AG. o.D.. – Forschungsbericht
- [Krieger 2013] KRIEGER, Hanno: *Strahlungsquellen für Technik und Medizin*. Springer, 2013
- [Lenntech] LENNTECH: *Argon und Wasser*. <https://www.lenntech.de/pse/wasser/argon/argon-und-wasser.htm>
- [Lewis 1987] LEWIS, BJ: Fission product release from nuclear fuel by recoil and knock-out. In: *Journal of Nuclear Materials* 148 (1987), Nr. 1, S. 28–42
- [Lewis u. a. 2017] LEWIS, Brent J. ; ONDER, E N. ; PRUDIL, Andrew A.: *Fundamentals of nuclear engineering*. John Wiley & Sons, 2017
- [Li u. a. 2015] LI, Wei ; YAN, Zhaotong ; XIANG, Yongchun ; WANG, Hongxia ; XIANG, Qingpei ; ZE, Rende ; LIU, Qiang ; GONG, Jian: Latest Development on MARDs - an Argon-37 Detection System. In: *Science and Technology conference*, 2015
- [Loosli u. a. 1973] LOOSLI, HH ; OESCHGER, H ; STUDER, R ; WAHLEN, M ; WIEST, W: Atmospheric concentrations and mixing of Argon-37. In: *Noble Gases* (1973)
- [Matuszek u. a. 1975] MATUSZEK, JM ; PAPERIELLO, CJ ; KUNZ, CO: Reactor contributions to atmospheric noble gas radioactivity levels. In: *Noble Gases* (1975), S. 360–364

- [Michael u. a. 1984] MICHAEL, H ; WÖLFLE, R ; QAIM, SM: Production of ^{37}Ar . In: *The International journal of applied radiation and isotopes* 35 (1984), Nr. 8, S. 813–815
- [Olsen u. a. 2016] OLSEN, Khris B. ; KIRKHAM, Randy R. ; WOODS, Vincent T. ; HAAS, DH ; HAYES, James C. ; BOWYER, Ted W. ; MENDOZA, Donaldo P. ; LOWREY, Justin D. ; LUKINS, Craig D. ; SUAREZ, RD u. a.: Noble gas migration experiment to support the detection of underground nuclear explosions. In: *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 307 (2016), Nr. 3, S. 2603–2610
- [Petry u. a. 2008] PETRY, Winfried ; RÖHRMOSER, Anton ; BOULCOURT, P ; CHABRE, A ; DUBOIS, S ; LEMOINE, P ; JAROUSSE, Ch ; FALGOUX, J ; BERGHE, Svd ; LEENAERS, A: UMo full size plate irradiation experiment IRIS-TUM—a progress report. In: *12th International Meeting on Research Reactor Fuel Management (RRFM)*, 2008
- [Pilger u. a. 2017] PILGER, Christoph ; CERENNA, Lars ; BÖNNEMANN, Christian: *Monitoring Compliance with the Comprehensive Nuclear-Test-Ban Treaty (CTBT)*. Bundesanstalt für Geowissenschaften und Rohstoffe (GBR), 2017
- [Potter u. Clynne 1978] POTTER, RW ; CLYNNE, MA: The solubility of the noble gases He. In: *Ne, Ar, Kr, and Xe in water up to the critical point: Journal of Solution* (1978)
- [Purtschert 2018] Private Kommunikation
- [Purtschert u. a. 2017] PURTSCHERT, Roland ; KALINOWSKI, Martin ; BOURGOUIN, Pierre ; WIESLANDER, Elisabeth ; BLANCHARD, Xavier ; RIEDMANN, Robin ; RAGHOO, Lauren ; KUSMIERCZYK-MICHULEC, Jolanta ; GHEDDOU, Abdelhakim ; SCHLOSSER, Clemens ; TOMITA, Yutaka: *Ar-37, Be-7 and Xe-133 in the atmosphere*. Presentation at SnT, 2017
- [Qaim u. a. 1977] QAIM, SM ; RUSHEED, A ; STÖCKLIN, G ; WÖLFLE, R: ^{37}Ar formation from calcium in fission reactors. In: *The International Journal of Applied Radiation and Isotopes* 28 (1977), Nr. 6, S. 585–589
- [Rearden u. Jessee 2016] REARDEN, BT ; JESSEE, MA: SCALE Code System / Oak Ridge National Laboratory. 2016. – Forschungsbericht
- [Riedmann u. Purtschert 2011] RIEDMANN, Robin A. ; PURTSCHERT, Roland: Natural ^{37}Ar concentrations in soil air: Implications for monitoring underground nuclear explosions. In: *Environmental science & technology* 45 (2011), Nr. 20, S. 8656–8664
- [Rim 1982] RIM, CS: Background and derivation of ANS-5.4 standard fission product release model. In: *US Nuclear Regulatory Commission Report, Washington DC* (1982)

- [Ripert u. a. 2008] RIPERT, M ; DUBOIS, S ; NOIROT, J ; BOULCOURT, P ; LEMOINE, P ; BERGHE, S Van d. ; LEENAERS, A ; ROHRMOSER, A ; PETRY, W ; JAROUSSE, C: Overview on High Density UMo fuel in-pile experiments in OSIRIS. In: *12th International Meeting of Research Reactor Fuel Management (RRFM)*, 2008
- [Röhrmoser 2010] RÖHRMOSER, A: Core model of new German neutron source FRM II. In: *Nuclear engineering and design* 240 (2010), Nr. 6, S. 1417–1432
- [Röhrmoser u. Petry 2009] RÖHRMOSER, A ; PETRY, W: Fuel plate temperatures during operation of FRM II. In: *Transactions of the 13th International Topical Meeting on Research Reactor Fuel Management (RRFM)*, Wien Bd. 22, 2009, S. 25
- [Ross 2018] Private Kommunikation
- [Saey u. a. 2007] SAEY, Paul R. ; BEAN, M ; BECKER, A ; COYNE, J ; D'AMOURS, R ; DE GEER, L-E ; HOGUE, R ; STOCKI, TJ ; UNGAR, RK ; WOTAWA, G: A long distance measurement of radioxenon in Yellowknife, Canada, in late October 2006. In: *Geophysical Research Letters* 34 (2007), Nr. 20
- [Schlüschen 2018] SCHLÜSCHEN, Timo: *Simulationsrechnung zur Bildung von Ar-37 in den Luftspalten und Betonschilden eines Druckwasserreaktors zur Abschätzung der Emissionsrate*, Unisersität Hamburg, Bachelorarbeit, 2018
- [Schnieders 2018] Framatome, Private Kommunikation an Prof. Dr. Gerald Kirchner
- [Stacey 2018] STACEY, Weston M.: *Nuclear reactor physics*. John Wiley & Sons, 2018
- [Stohl u. a. 2005] STOHL, Andreas ; FORSTER, C ; FRANK, A ; SEIBERT, P ; WOTAWA, G: The Lagrangian particle dispersion model FLEXPART version 6.2. In: *Atmospheric Chemistry and Physics* 5 (2005), Nr. 9, S. 2461–2474
- [Van der Stricht u. a. 2010] STRICHT, S Van d. u. a.: Radiation Protection 164, radioactive effluents from nuclear power stations and nuclear fuel reprocessing sites in the European Union, 2004–08. In: *European Commission, Brussels Google Scholar* (2010)
- [TUM] TUM: *Forschungs-Neutronenquelle Heinz Maier-Leibnitz (FRM II)*. www.frm2.tum.de
- [United Nations. Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation 2000] UNITED NATIONS. SCIENTIFIC COMMITTEE ON THE EFFECTS OF ATOMIC RADIATION: *Sources and effects of ionizing radiation: sources*. Bd. 1. United Nations Publications, 2000
- [Wolff 2018] Private Kommunikation
- [Ziegler u. Allelein 2013] ZIEGLER, Albert ; ALLELEIN, Hans-Josef: *Reaktortechnik: physikalisch-technische grundlagen*. Springer-Verlag, 2013