Der Kritikalitätsunfall von Tokai-mura

Autor(en): **Brockmann, Hans / Kugeler, Kurt / Philippen, Peter-W.**

Objekttyp: **Article**

Zeitschrift: **Bulletin des Schweizerischen Elektrotechnischen Vereins, des Verbandes Schweizerischer Elektrizitätsunternehmen = Bulletin de l'Association Suisse des Electriciens, de l'Association des Entreprises électriques suisses**

Band (Jahr): **92 (2001)**

Heft 3

PDF erstellt am: **30.05.2024**

Persistenter Link: https://doi.org/10.5169/seals-855666

Nutzungsbedingungen

Die ETH-Bibliothek ist Anbieterin der digitalisierten Zeitschriften. Sie besitzt keine Urheberrechte an den Inhalten der Zeitschriften. Die Rechte liegen in der Regel bei den Herausgebern.
Die auf der Plattform e-periodica veröffentlichten Dokumente stehen für nicht-kommerzielle Zwecke in Lehre und Forschung sowie für die private Nutzung frei zur Verfügung. Einzelne Dateien oder Ausdrucke aus diesem Angebot können zusammen mit diesen Nutzungsbedingungen und den korrekten Herkunftsbezeichnungen weitergegeben werden.
Das Veröffentlichen von Bildern in Print- und Online-Publikationen ist nur mit vorheriger Genehmigung der Rechteinhaber erlaubt. Die systematische Speicherung von Teilen des elektronischen Angebots auf anderen Servern bedarf ebenfalls des schriftlichen Einverständnisses der Rechteinhaber.

Haftungsausschluss

Alle Angaben erfolgen ohne Gewähr für Vollständigkeit oder Richtigkeit. Es wird keine Haftung übernommen für Schäden durch die Verwendung von Informationen aus diesem Online-Angebot oder durch das Fehlen von Informationen. Dies gilt auch für Inhalte Dritter, die über dieses Angebot zugänglich sind.

Ein Dienst der *ETH-Bibliothek*
ETH Zürich, Rämistrasse 101, 8092 Zürich, Schweiz, www.library.ethz.ch

http://www.e-periodica.ch

Der Kritikalitätsunfall von Tokai-mura

Eine Bestandesaufnahme ein Jahr danach

Im September 1999 ereignete sich in einer der Urankonversionsanlagen in Tokai-mura ein Kritikalitätsunfall[1], bei dem es zu einer etwa 20 Stunden dauernden, sich selbst erhaltenden, unkontrollierten nuklearen Kettenreaktion kam. Sie führte im Umkreis der betroffenen Anlage zu erhöhten Neutronen- und Gamma-Ortsdosen. Zwei der drei direkt am Unfall beteiligten Mitarbeiter sind in der Zwischenzeit auf Grund der Strahlenbelastung verstorben. Die Freisetzung von Radioaktivität in die Umgebung in Form von Spaltprodukten blieb hingegen gering. Die japanischen Behörden ordneten das Ereignis in die Stufe 4 der siebenstufigen International Nuclear Event Scale ein. Der Unfall hat Konsequenzen für das in Zukunft in Japan praktizierte Genehmigungsverfahren und die behördliche Aufsicht bei Brennstoffverarbeitungsanlagen. Eine Überprüfung der kerntechnischen Anlagen zur Brennstoffverarbeitung in Deutschland ergab, dass auf Grund des Unfalls in Tokai-mura kein Handlungsbedarf vorliegt, die Vorsorgemassnahmen in diesen Einrichtungen zu ändern oder zu ergänzen.

Am späteren Vormittag des 30. Septembers 1999 ereignete sich in einer der Nuklearanlagen der Japan Nuclear Conversion Company Ltd. (JCO) in Tokai-mura (rund 120 km nordöstlich von Tokio) ein Kritikalitätsunfall in einem Behälter mit einer Uranlösung. Dieser Unfall löste ein grosses Echo in der Berichterstattung aus, insbesondere in den Ländern, die einer friedlichen Nutzung der Kernenergie kritisch oder ablehnend gegenüberstehen. Da die Umstände und die Ursachen des Unfalls in Tokai-mura damals nicht im Detail bekannt waren, konnten die bisher zugänglichen Informationen und die gegebenen Beschreibungen des Unfalls nur vorläufiger Natur sein.

Heute sind durch Untersuchungen und Veröffentlichungen der japanischen Nuclear Safety Commission (NSC) und durch eine Vielzahl weiterer Analysen bessere Voraussetzungen für eine detaillierte Beschreibung gegeben.

Die Urankonversionsanlage

Die Nuklearanlagen in Tokai-mura umfassen verschiedene selbständige Einheiten, die sowohl kommerziellen als auch Forschungszwecken dienen, wie etwa Wiederaufarbeitung von Brennelementen, Konversion von Uranverbindungen oder Brennelement-Herstellung. Der Unfall ereignete sich in einer der drei Urankonversionsanlagen der JCO, die zwei der Anlagen mit einer jährlichen Kapazität von insgesamt bis zu 715 t Uran mit einem für Leichtwasserreaktoren üblichen niedrigen Anreicherungsgrad von bis zu 5%[2] betrieb. In der dritten Urankonversionsanlage, in welcher der Unfall geschah, konnten jährlich bis zu 3 t Uran mit einem für schnelle Reaktoren üblichen mittleren Anreicherungsgrad bis zu 20% verarbeitet werden.

Adresse der Autoren
Hans Brockmann, Dr. rer. nat.; *Kurt Kugeler*, Prof. Dr.-Ing.; *Peter-W. Phlippen*, Prof. Dr.-Ing.; *Winfried Scherer*, Dr. rer. nat.; *Jasbir Singh*, Dr.-Ing.; Forschungszentrum Jülich, Institut für Sicherheitsforschung und Reaktortechnik, D-52425 Jülich
h.brockmann@ fz-juelich.de

Diese dritte Anlage der JCO diente der Herstellung von Urandioxid(UO_2)-Pulver oder Uranylnitratlösung (UO_2 $(NO_3)_2$ $\cdot 6H_2O$) aus Uranhexafluorid (UF_6), Yellow Cake[3] oder Uranabfall. Hierbei bestand ein Prozessschritt darin, in Pulverform angeliefertes Triuranoctoxid (U_3O_8) in einem Lösungstank mit Hilfe von Salpetersäure (HNO_3) aufzulösen und in eine wässrige Uranylnitratlösung zu überführen.

Bei der üblichen Herstellung von UO_2 für die Brennelement-Fertigung wird nach Reinigung mittels Flüssigkeitsextraktion anschliessend durch Zugabe von Ammoniak (NH_3) aus der Uranylnitratlösung Ammoniumdiuranat ($(NH_4)_2U_2O_7$) ausgefällt, das dann filtriert und getrocknet wird. Die thermische Zersetzung bei 700 °C liefert (Kalzinierung) reines

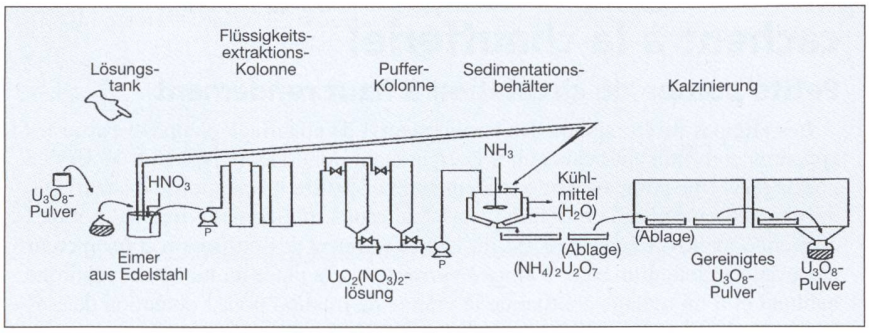


Bild 1 Genehmigter und geänderter (Pfeil) Verfahrensablauf der chemischen Umwandlung bei der JCO in Tokai-mura

[1] Kritikalität ist die Bezeichnung für den Zustand eines spaltstoffhaltigen Systems, bei dem eine eingeleitete Kettenreaktion gerade aufrechterhalten wird.

[2] Natururan besteht im Wesentlichen aus den Isotopen ^{238}U und ^{235}U mit den jeweiligen Gewichtsanteilen 99,28% bzw. 0,72%. Angereichertes Uran ist Uran, bei dem der Gewichtsanteil des ^{235}U gegenüber dem natürlichen Anteil erhöht worden ist.

[3] Yellow Cake ist ein wegen seiner gelben Farbe so genanntes Zwischenprodukt bei der Uranerzaufbereitung und in dieser Form das übliche Handelsprodukt des Rohurans.

U_3O_8. Dieses wird im Wasserstoffstrom (H_2) bei 800 °C zu sinterfähigem Urandioxid reduziert, das anschliessend in den Hauptprozess der Brennelement-Herstellung gelangt. Bei den Arbeiten, die zu dem Kritikalitätsunfall führten, war allerdings nur vorgesehen, das U_3O_8 aufzulösen und durch Mischen und Homogenisieren jeweils 40 l umfassende Uranylnitratlösungen mit gleicher Konzentration herzustellen (Bild 1).

Der Lösungstank (44 l, ∅160 mm) war geometrisch kritikalitätssicher ausgelegt. Nach erfolgter Auflösung des U_3O_8 war eine Bestimmung des Urangehalts der Lösung sowie des Anreicherungsgrads vorgesehen. Anschliessend wurde die Lösung mittels einer Dosierpumpe in einen Sedimentationsbehälter überführt.

Der verwendete Sedimentationsbehälter (95 l, ∅450 mm) war nicht geometrisch kritikalitätssicher ausgelegt. Der japanischen Genehmigungsbehörde war als Begründung angegeben worden, dass die geringeren Abmessungen eines geometrisch kritikalitätssicheren Behälters die Ammoniumdiuranat-Kristallisation und damit die Eigenschaften des hergestellten Uranpulvers ungünstig beeinflussen würden. Deshalb war zur Kritikalitätssicherung eine administrative Beschränkung der zugeführten Uranmasse vorgesehen, die 16 kg Uran mit einer Anreicherung bis zu 5% bzw. 2,4 kg Uran mit einer Anreicherung zwischen 16% und 20% betrug.

Die Testanlage für die Urankonversion wurde nur gelegentlich betrieben und hauptsächlich dazu benutzt, Brennstoff für den Schnellen Forschungsreaktor Joyo zu verarbeiten. In den Jahren 1986 bis 1999 haben insgesamt fünf Kampagnen zur Herstellung von Uranylnitrat stattgefunden, wobei jeweils zwischen 40 kg und 290 kg Uran verarbeitet wurden. Die Unfallkampagne sah die Verarbeitung von 60 kg Uran vor.

Der Hergang des Unfalls

Im Laufe der Jahre hatte der in der Anlage praktizierte Ablauf bei der Herstellung der Uranylnitratlösung hinsichtlich der Auflösung und Homogenisierung wesentliche Änderungen erfahren. Während die Vorgehensweise in der ersten Kampagne mit der Genehmigung konform und kritikalitätssicher war, ist man später ohne Genehmigung dazu übergegangen, die Lösung bzw. die Wiederauflösung des U_3O_8 nicht mehr im Lösungsbehälter, sondern in 10-l-Eimern vorzunehmen. Allerdings wurden zunächst die Mischung und die Homogenisierung noch in geometrisch sicheren Produktbehältern bzw. einem sicheren Lagertank vorgenommen, um die Menge des in den Sedimentationsbehälter überführten Materials zu kontrollieren. Erst in der Unfallkampagne wurde die Uranylnitratlösung von 40 l zunächst in den 10-l-Eimern hergestellt und dann in den nicht geometrisch kritikalitätssicheren Sedimentationsbehälter gegeben (Bild 1).

Es sollten etwa 60 kg Uran mit einer Anreicherung von 18,8% zu 160 l Uranylnitrat verarbeitet werden, wobei als Endprodukt vier Chargen zu je 40 l der Lösung mit gleicher Konzentration herzustellen waren. Dies bedeutet, dass 15 kg Uran in Form von U_3O_8 in Salpetersäure aufgelöst werden mussten. Da die Massenbegrenzung des Sedimentationsbehälters 2,4 kg Uran betrug, entsprach dies sechs bis sieben Einzelchargen. Für die Homogenisierung der Uranylnitratlösung wurden dann auch sieben Chargen mit insgesamt 16,8 kg Uran bereitgestellt.

Entgegen dem genehmigten Prozessablauf wurde die Auflösung des U_3O_8-Pulvers aber nicht in dem dafür vorgesehenen Lösungsbehälter, sondern in einem 10-l-Eimer vorgenommen. Bei einer Urandichte von 0,375 g/l enthielt ein Eimer somit etwa 6,5 l Uranylnitrat. Nach der Auflösung wurde jeweils die Hälfte der 6,5 l in ein 5-l-Gefäss umgefüllt und anschliessend durch einen Trichter in den Sedimentationsbehälter gegeben. Am Tag vor dem Unfall waren schon vier Chargen des gereinigten U_3O_8 im 10-l-Eimer aufgelöst und in den Sedimentationsbehälter geschüttet worden, was bereits einer Uranmenge von 9,6 kg entsprach.

Am Unfalltag wurden die drei restlichen Chargen in gleicher Weise aufgelöst und in den Sedimentationsbehälter gegeben. Beim Einfüllen der zweiten Hälfte des siebten Eimers kam es dann zu einer sich selbst erhaltenden, unkontrollierten nuklearen Kettenreaktion mit einer starken Emission von Neutronen- und Gammastrahlung, die erst nach rund 20 h beendet wurde. Infolge der Exkursion[4] wurden 182,7 g Uran nicht mehr eingefüllt, so dass die Kritikalität der Uranlösung durch etwa 16,6 kg Uran bestimmt wurde.

Die zwei Arbeiter, die mit dem Auflösen des Urans und dem Umfüllen beschäftigt waren, und ein weiterer Arbeiter, der sich in einem Nebenraum aufhielt, waren einer starken Strahlenbelastung ausgesetzt. Als die Arbeiter den Alarm des Gamma-Monitors hörten, verliessen sie unverzüglich das Gebäude. Im Raum mit dem Sedimentationstank befand sich kein Neutronenmonitor, und die Arbeiter trugen keine Personendosimeter. Sie berichteten später, das blaue Licht der Cherenkov-Strahlung wahrgenommen zu haben.

In der näheren Umgebung der Testanlage kam es bis zu einer Entfernung von 800 m während der Exkursion zu erhöhten Neutronen- und Gamma-Ortsdosen. Die Freisetzung von Radioaktivität – hauptsächlich in Form von kurzlebigen radioaktiven Edelgasen und Jodisotopen – war dagegen gering. Es kam bei dem Unfall zu keiner Explosion, und das Gebäude wurde nicht beschädigt.

Während der Kritikalität wurde am Zaun der Anlage (in etwa 90 m Entfernung vom Konversionsgebäude) eine Neutronendosisleistung von 4,5 mSv/h[5] und eine Gammadosisleistung von 0,84 mSv/h gemessen. Wegen des erhöhten Strahlenpegels wurden 161 Anwohner in einem Umkreis von 350 m um die Anlage evakuiert, und die Bevölkerung in einem Umkreis von 10 km wurde am späten Abend aufgefordert, im Haus zu bleiben.

Die japanischen Behörden ordneten den Unfall in die Stufe 4 der siebenstufigen Ines-Skala[6] ein. Dies bedeutete, dass nach Einschätzung der Behörden durch den Unfall keine wesentlichen Risiken ausserhalb der Anlage bestanden.

Massnahmen zur Beendigung des Unfalls

Experten kamen nach einer ersten Untersuchung des Unfalls und Kritikalitätsberechnungen zum Ergebnis, dass die Entfernung des Wassers aus dem Kühlmantel des Sedimentationsbehälters dazu beitragen würde, die Kritikalität zu beenden. Das Wasser im Kühlmantel wirkte als Neutronenreflektor, wodurch die erforderliche kritische Masse zur Auslösung der nuklearen Kettenreaktion verringert wurde.

Zehn Gruppen bestehend aus je zwei Arbeitern und einem Fahrer wurden eingesetzt, um das Wasser aus dem Kühlmantel des Sedimentationsbehälters abzulassen und die Folgen des Unfalls zu beschränken. Zunächst wurde das Zu-

[4] Exkursion bedeutet hier eine Abweichung vom normalen, vorschriftsmässigen Verlauf eines Vorgangs.

[5] Zur Beschreibung der biologischen Strahlenwirkung dient der Begriff der Äquivalentdosis, die ein Mass für die infolge der Strahlung aufgenommene Energie und die unterschiedliche Wirksamkeit der jeweiligen radioaktiven Strahlung darstellt. Die Masseinheit ist das Sievert (Sv). Die mittlere natürliche pro Zeiteinheit aufgenommene Äquivalentdosis beträgt in Deutschland etwa 0,3 µSv/h.

[6] Ines (International Nuclear Event Scale) ist eine internationale Skala zur Klassifizierung von Zwischenfällen in kerntechnischen Anlagen.

laufventil am Kühlturm ausserhalb des Gebäudes geschlossen und das Ablaufventil geöffnet. Als aber nur wenig Wasser abfloss und sich die Neutronendosisrate nur leicht verringerte, wurde die Wasserleitung durchtrennt und die Wasserzufuhr dadurch unterbrochen. Der Abfluss des Wassers musste ausserdem durch das Einspeisen von Argongas beschleunigt werden. Durch diese Massnahmen konnte die nukleare Kettenreaktion am Morgen des 1. Oktober beendet werden. Hierdurch ging die gemessene Neutronendosisleistung auf weniger als 1 µSv/h und die Gammadosisleistung auf 4 µSv/h zurück. Im weiteren Verlauf fiel die Gammadosisleistung mit Werten um 0,1 µSv/h dann wieder auf das natürliche Niveau. Am Nachmittag des gleichen Tages wurde die Empfehlung zum Verbleib im Haus aufgehoben. Am 2. Oktober um 18.30 Uhr wurde auch der Evakuierungsbeschluss für die Bevölkerung im Umkreis von 350 m aufgehoben.

Parallel mit dem Entfernen des Kühlwassers wurden Vorkehrungen getroffen, Borsäure (H_3BO_3) in den Sedimentationsbehälter zu injizieren. Bor ist ein starker Neutronenabsorber, dessen Anwesenheit zur Folge hat, dass weniger Neutronen zur Verfügung stehen, um weitere Spaltprozesse im Uran auszulösen. Da keine Borsäure auf dem Gelände der JCO verfügbar war, musste diese aus einer 10 km entfernten Forschungsanlage herbeigeschafft werden. Eine Feuerspritze wurde benutzt, um 17 l der Borsäure mit einem Anteil von 25 g Bor/l in den Sedimentationsbehälter einzufüllen.

Nach Beendigung der nuklearen Kettenreaktion bestand eine weitere Aufgabe darin, die Umgebung gegen die Gammastrahlung abzuschirmen, die von den Spaltprodukten im Sedimentationsbehälter ausging und die zunächst durch das Gebäude zurückgehalten wurde. Am Morgen des 2. Oktober wurde eine Abschirmung aus Sandsäcken um das Gebäude errichtet. Ausserdem wurden an einigen Stellen um die Testanlage Betonblöcke aufgebaut.

Die Arbeiter, die die Borsäure in den Sedimentationsbehälter eingefüllt hatten, berichteten, dass keine mechanischen Schäden an den Einrichtungen und den Gebäuden zu beobachten gewesen seien und das Ventilationssystem, das für einen Unterdruck im Gebäude sorgte, noch ordnungsgemäss arbeite. Als jedoch entdeckt wurde, dass radioaktives ^{131}I in die Umgebung freigesetzt worden war, wurde am 5. Oktober beschlossen, das Ventilationssystem abzuschalten, und es wurden Massnahmen ergriffen, um die passive Zurückhaltung der Spaltprodukte durch das Gebäude zu verbessern.

Neutronenphysikalische und thermodynamische Überlegungen zum Unfallablauf

Für eine hinreichend belastbare quantitative Analyse des Unfallablaufs lagen kurz nach dem Unfall noch nicht genügend Detailinformationen vor. Trotzdem war es aber möglich, grundsätzliche Aussagen über die zeitliche Entwicklung der erzeugten nuklearen Leistung und der auftretenden Temperaturen zu machen. Die das Zeitverhalten bestimmenden Anfangs- und Randbedingungen sind dabei im Wesentlichen durch die zeitliche Zufuhr der Spaltstoffmenge, durch die Lösungsmittelmenge, die Behältergeometrie und durch die während der ca. 20 h andauernden Kritikalität vom Kühlsystem abgeführte Wärmemenge gegeben. Über diese Grössen lagen vorläufige Daten vor, die es den Autoren erlaubten, einige erste Modelluntersuchungen durchzuführen. Inzwischen wurden derartige Analysen auch von anderen Institutionen, wie der japanischen NSC und dem Japan Atomic Energy Research Institute (Jaeri), durchgeführt. Wegen der Streubreite der zu Grunde gelegten Randbedingungen unterscheiden sich die quantitativen Ergebnisse. Der grundsätzliche Verlauf ist aber wohl verstanden und wird dadurch nicht beeinflusst.

Verlauf der Reaktivitätstransienten

Durch die Zugabe von weiterem Uranylnitrat zur bereits in den Sedimentationsbehälter eingefüllten Uranlösung wurde das vorliegende System mit dem als Neutronenreflektor wirkenden Wasserkühlmantel stark überkritisch. Als Folge davon entstand eine schnell anwachsende Kettenreaktion mit entsprechend starker Wärmeerzeugung. Dies führte zu einer Aufheizung der Uranylnitratlösung bis zum Siedepunkt. Durch die Temperaturerhöhung der Uranlösung kam es aber zu einer Verringerung der ausgelösten Kernspaltungen bzw. der Neutronenproduktion durch folgende physikalischen Rückkopplungseffekte:

- negativer Dopplerkoeffizient im ^{238}U
- negativer Moderatorkoeffizient im Säure/Wasser-Gemisch
- negativer Void-Koeffizient durch Ausdehnung und Blasenbildung in der Lösung

Hierdurch wurde die eingebrachte Überschussreaktivität[7] abgebaut. Die gesamte Zeitdauer dieser ersten Phase

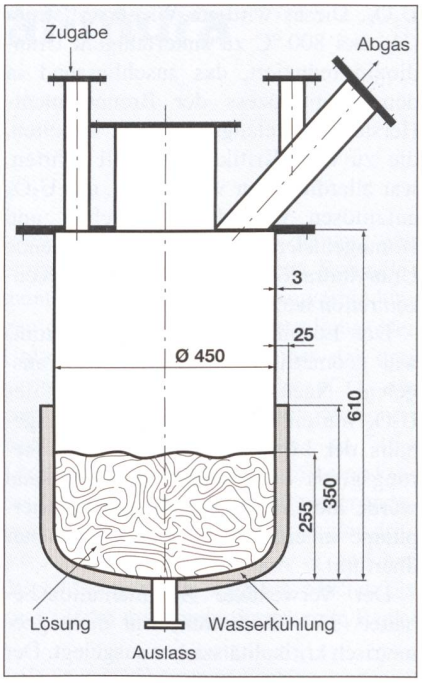


Bild 2 Geometrie des Sedimentationsbehälters der JCO-Anlage in Tokai-mura (Angaben in mm)

dürfte bei maximal einigen Sekunden gelegen haben.

Nach Beendigung dieser Exkursionsphase blieb im zeitlichen Mittel – wahrscheinlich kam es durch Instabilitäten beim Wechselspiel zwischen Sieden und zumindest teilweisem Rekondensieren an den Behälterwänden zu einem oszillatorischen Verhalten – ein gerade kritisches System mit selbsterhaltender Kettenreaktion zurück. Die von diesem System erzeugte nukleare Leistung war im Gleichgewicht mit der vom Kühlsystem abgeführten Leistung. Bei zeitlich konstanter Kühlung stellte sich demnach eine Plateauphase mit konstanter Neutronenproduktion ein. Diese wurde erst nach ca. 20 Stunden durch das Ablassen des Kühlwassers beendet. Im verbleibenden unterkritischen System kam die Kettenreaktion sofort zum Erliegen, und als Restwärmequelle verblieb nur die durch die Spaltprodukte in geringer Menge erzeugte Nachzerfallswärme.

Ergebnisse von Berechnungen

Zur Abschätzung der eingebrachten Reaktivität und des sich daraus ergebenden Spaltleistungsverlaufs wurden die Rechenprogramme MCNP-4B und Keno-Va eingesetzt. Zur Beschreibung des transienten Verlaufs wurde ein auf den punktkinetischen Gleichungen basierendes Programm um die hier wirkenden

[7] Die Überschussreaktivität ist ein Mass dafür, wie schnell die nukleare Leistung bzw. die Neutronenpopulation in einem überkritischen System ansteigt.

Rückkopplungseffekte zu einem einfachen Modell des mit der Uranylnitratlösung gefüllten Sedimentationsbehälters ergänzt.

Die Daten über die Geometrie des Behälters und die Beschaffenheit der Spaltstofflösung wurden der Literatur entnommen. Danach hatte der Behälter einen Innendurchmesser von 45 cm. Die Behälterwand und der Boden bestanden aus Edelstahl von 0,3 cm Dicke, umgeben von einem Wasserkühlmantel von ca. 3 cm Dicke (Bild 2). Das Gesamtvolumen der Spaltstofflösung wurde mit ca. 40 l angegeben. Die Füllhöhe des Behälters ergab sich dann zu etwa 25 cm. Aus diesen Daten wurde ein geometrisches Rechenmodell erstellt, das in Bild 3 gegeben ist.

Die Kritikalität des betrachteten Systems wird ausser von der Menge und der Anreicherung des eingebrachten Urans auch von der Salpetersäurekonzentration bestimmt, da der enthaltene Stickstoff als leichter Neutronenabsorber wirkt und die Salpetersäure den Wasseranteil reduziert. Detaillierte Angaben zu dieser Konzentration lagen kurz nach dem Unfall nicht vor, und es wurde daher eine gewisse Bandbreite parametrisiert. Ebenso wurde mit der nicht bekannten Zusammensetzung des Behälterwandmaterials verfahren.

Die Monte-Carlo-Berechnungen ergaben bei der Annahme von 16 kg Uran und einer 18,8%igen Anreicherung Multiplikationsfaktoren[8] zwischen 1,02 und 1,09 für den gesamten zu Grunde gelegten Inhalt des Behälters bei vorhandener Wasserkühlung. Aus heutiger Sicht dürfte der untere Wert die tatsächlichen Bedingungen am besten beschreiben. Damit war das System auf jeden Fall erheblich überkritisch, und die Exkursionsphase dürfte heftig gewesen sein. Gleichzeitig scheint heute festzustehen, dass die in das System eingebrachte Reaktivität nicht nur kleiner war, sondern der Eintrag auch bedeutend langsamer erfolgte als von den Autoren in einer früheren Untersuchung angenommen. Im Gegensatz zu der früher gemachten Annahme eines linearen Eintrags von 5% in 5 s wird heute davon ausgegangen, dass eine Reaktivität von etwas mehr als 2% innerhalb von etwa 30 s eingebracht wurde. Der Grund hierfür ist wohl, dass die Uranylnitratlösung aus dem 5-l-Gefäss über einen Trichter, dessen Ausfluss den Volumenstrom begrenzt, in den Sedimentationsbehälter eingefüllt wurde. Die damaligen Rechnungen wurden deshalb für diese neuen Randbedingungen wiederholt.

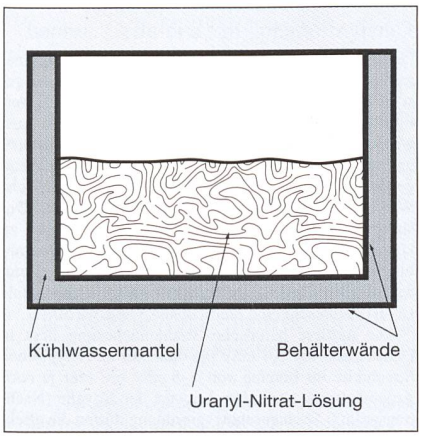


Bild 3 Modell des Sedimentationsbehälters

Mit einem zu Grunde gelegten Multiplikationsfaktor von 1,02 ergab eine erneute Rechnung, dass die eingebrachte Überschussreaktivität durch das Erhitzen der Uranlösung bis zum Siedepunkt und durch Dampfblasenbildung abgebaut wurde. Bei einer mittleren spezifischen Wärme für Wasser von ca. 4,2 kJ/kg war dazu eine Energie von etwa 17 MJ erforderlich. Zumindest diese Energie wurde durch Kernspaltungen während der Exkursionsphase aufgebracht. Wenn, wie wahrscheinlich, diese Phase innerhalb einiger Sekunden abgeschlossen war, muss die Peak-Leistung des Systems kurzfristig weit im Megawattbereich gelegen haben. Dies wird durch die durchgeführten Dynamikberechnungen bestätigt.

Die während der Plateauphase vorliegende mittlere Spaltleistung wurde anhand der durch die Kühlung abgeführten Leistung abgeschätzt. Unter Annahme einer Wärmeübergangszahl von ca. 1000 W/m^2K für den Wärmeübergang von der merklich bewegten Lösung zur Behälterwand und von ca. 150 W/m^2K von der Behälterwand an das Kühlwasser ergibt sich bei einer angenommenen Temperaturdifferenz von 60 °C und einer Kühlfläche von ca. 0,35 m^2 eine abgeführte Leistung von etwa 2,5 kW. Die während der Plateauphase von dem kritischen System nuklear erzeugte Wärme liegt damit bei ca. 180 MJ, d.h. sie ist etwa zehnmal so gross wie die in der Exkursionsphase erzeugte Wärme. Mit der bekannten Zahl von $3{,}2 \cdot 10^{10}$ Kernspaltungen pro Joule ergibt sich damit die Gesamtzahl der Kernspaltungen zu etwa $5 \cdot 10^{18}$, wobei davon ca. 90% während der Plateauphase stattgefunden haben.

In den Bildern 4–6 sind die wichtigsten Resultate der dynamischen Rechnungen zusammengefasst. Bild 4 zeigt den Verlauf der nuklearen Leistung im Kurzzeitbereich, während Bild 5 einen zeitlichen Gesamtüberblick gibt. Demnach folgt auf den sehr hohen Peak (7 MW) eine Phase der Leistungsreduktion, deren Verlauf durch Unterkritikalität und die Dynamik der verzögerten Neutronen charakterisiert ist. Nach Beendigung der starken Siedephase und durch leichte Abkühlung geht die Leistungsproduktion mit abklingenden Oszillationen in ein Gleichgewicht mit der durch das Kühlsystem abgeführten Leistung von ca. 2,5 kW über. In Bild 6 ist die in den ersten 3 h freigesetzte Energie als Funktion der Zeit dargestellt. Nach der sprunghaften Freisetzung zu Beginn geht diese Grösse in einen linearen Verlauf über, der nach 20 h den oben angegebenen Wert von ca. 180 MJ erreicht.

Wenn die angegebenen Zahlen auf Grund der vereinfachten Modellierung auch mit Unsicherheiten behaftet sein mögen, so geben sie doch einen Eindruck vom zeitlichen Verlauf und der Grössenordnung der Spaltungen und freigesetzten Energien. Diese werden auch durch die bisher veröffentlichten Angaben des Jaeri und der japanischen NSC bestätigt. Nach deren Untersuchungen erreichte der erste Peak während der Exkursionsphase eine Leistung im Bereich von 7–20 MW, und die Zahl der hierbei aufgetretenen Spaltungen betrug 2 bis $4 \cdot 10^{17}$. Die Gesamtzahl der bei dem Unfall ausgelösten Spaltungen wurde durch Messungen unter Verwendung zweier unterschiedlicher Methoden bestimmt. Eine radiochemische Analyse der Uranylnitratlösung ergab einen Wert von $2{,}5 \cdot 10^{18}$, und eine Aktivierungsanalyse des Behälterstahls lieferte einen Wert im Bereich von 2,3 bis $2{,}4 \cdot 10^{18}$. Derzeit wird für die Gesamtzahl der Spaltungen von einem Wert von $2{,}5 \cdot 10^{18}$ ausgegangen. Zusammenfassend kann man sagen, dass der Unfall von Tokai-mura ähnlich abgelaufen ist wie frühere Kritikalitätsunfälle in spaltstoffhaltigen Lösungen.

Kritikalitätswerte bei Einhaltung der administrativ vorgegebenen Uranmengen

Abschliessend soll noch über Ergebnisse von Kritikalitätsrechnungen bei Einhaltung der Mengenbegrenzung für das Uran berichtet werden. Für eine Uranmenge von 2,4 kg, die bis zu einer 18,8%igen Anreicherung zur Verarbeitung im Sedimentationsbehälter genehmigt worden sind, ergab sich in der Rechnung ein Multiplikationsfaktor von $k_{2.4(19\%)} = 0{,}60$, also ein absolut kritisch

[8] Der Multiplikationsfaktor ist eine physikalische Grösse zur Beschreibung der Neutronenbilanz in einem spaltstoffhaltigen System. Im stationären Fall ist der Multiplikationsfaktor = 1, bei Zunahme der Kernspaltungsprozesse > 1 und bei deren Abnahme < 1.

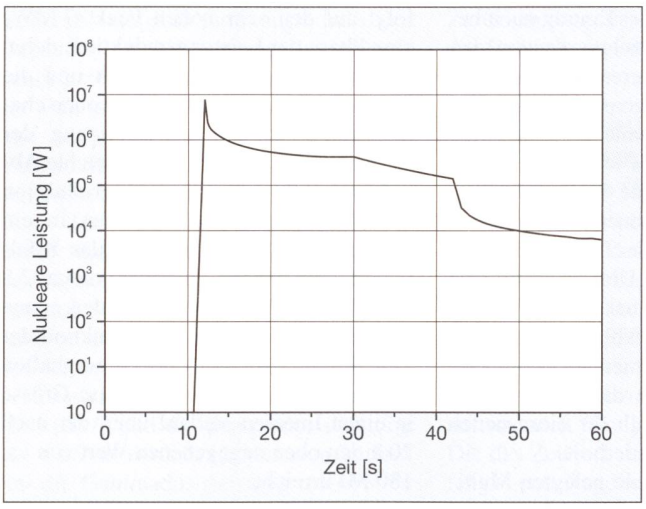


Bild 4 Leistungstransiente im Kurzzeitbereich

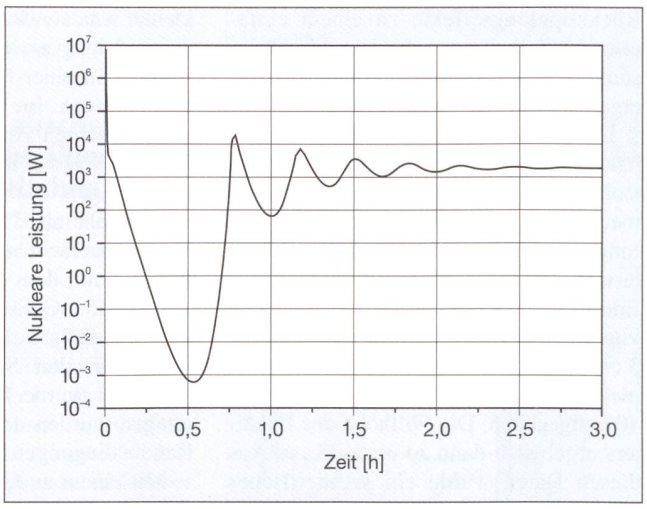


Bild 5 Leistungstransiente im Stundenbereich

sicherer Wert. Desgleichen zeigte eine vergleichende Rechnung, dass für 4% Anreicherung auch bei 16 kg Uran keinerlei Gefahr bestanden hätte. Auch hier ergab sich mit $k_{16\,(4\%)} = 0{,}61$ ein sicherheitstechnisch völlig unbedenkliches Ergebnis. Dies zeigt, dass bei Einhaltung der administrativ vorgegebenen Grenzwerte ein Unfall, selbst bei Umgehung der behördlich vorgeschriebenen Prozessschritte, sicher hätte ausgeschlossen werden können.

Radiologische Auswirkungen

Infolge des Kritikalitätsunfalls in Tokai-mura wurde eine grosse Anzahl von Personen einer Neutronen- und Gammastrahlung ausgesetzt, welche während der Exkursions- und der Plateauphase der Kettenreaktion freigesetzt wurde. Hinzu kam die Gammastrahlung, die von den bei den Spaltprozessen gebildeten Spaltprodukten im Sedimentationstank ausging. Zur Bestimmung der von den betroffenen Personengruppen aufgenommenen Strahlungsdosen wurden so weit wie möglich Ganzkörpermessungen und Filmdosimeterauswertungen vorgenommen. Ausserdem wurde die zeitliche Veränderung der Strahlungsdosen für verschiedene Entfernungen unter Verwendung von Neutronen- und Gammamessungen abgeschätzt. Auf der Grundlage dieser Daten und unter Berücksichtigung des Individualverhaltens und der Abschirmwirkung der Gebäude wurden auch die aufgenommenen Dosen von Personen abgeschätzt, für die keine Messwerte vorlagen. Insgesamt ergibt sich hierbei das folgende Bild.

Dosisbelastung der JCO-Angestellten

Die drei mit dem Einfüllen der Uranylnitratlösung beschäftigten Arbeiter erlitten eine sehr hohe Strahlenbelastung. Die von ihnen aufgenommene Dosis wurde durch die Untersuchung der ^{24}Na-Konzentration im Blut, durch Ganzkörpermessungen, durch Chromosomenuntersuchungen und Lymphozytenzählung bestimmt. Ein Arbeiter erhielt demnach eine Strahlungsdosis, die einer 16–20 Gy-äquivalenten (GyEq)[9] Gammastrahlung oder mehr entsprach, und ist an den Folgen dieser Dosis am 21. Dezember gestorben. Ein weiterer Arbeiter starb am 27. April des Folgejahres (Dosis: 6–10 GyEq). Der dritte Arbeiter wurde einer Strahlung von 1–4,5 GyEq ausgesetzt und konnte am 20. Dezember aus dem Krankenhaus entlassen werden. Er bedarf aber immer noch einer medizinischen Behandlung und wird regelmässig untersucht.

Weitere 169 Angestellte befanden sich während des Unfalls auf dem Anlagengelände und waren an der Beendigung des Unfalls beteiligt. Von diesen waren 18 Personen während der bestehenden Kritikalität zur Entfernung des Wassers aus dem Kühlmantel des Sedimentationsbehälters eingesetzt und waren dabei Strahlungsdosen zwischen 3,6 und 48 mSv ausgesetzt[10]. Die sechs Personen, die zum Einfüllen der Borsäure eingesetzt worden waren, erhielten Dosen zwischen 0,7 und 3,5 mSv. Ganzkörpermessungen und Filmdosimeterauswertungen ergaben bei weiteren 49 Personen Belastungen von 0,6–47,4 mSv. Bei den restlichen 96 Personen wurde die aufgenommene Dosis aus den Messdaten für die örtliche und

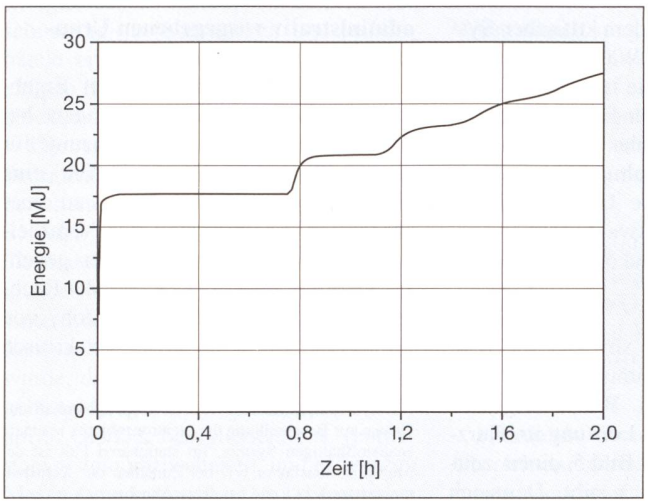


Bild 6 Nuklear freigesetzte Energie im Stundenbereich

[9] Die Arbeiter wurden bei dem Kritikalitätsunfall einer gemischten Neutronen- und Gammastrahlung ausgesetzt, die auch bei gleicher Energieaufnahme der jeweiligen Strahlung zu unterschiedlichen biologischen Auswirkungen führen. Die Grösse GyEq wird hier benutzt, um anzuzeigen, dass die Neutronendosen entsprechend gewichtet worden sind, um deren relative biologische Wirksamkeit zu berücksichtigen und die angegeben Dosiswerte mit denen für Gammastrahlen vergleichen zu können. Bei einmaliger kurzzeitiger Ganzkörperbestrahlung können 7 Gy als absolut tödliche Dosis angenommen werden. Eine Bestrahlung mit 4 Gy (mittlere letale Dosis) verursacht eine Sterblichkeit von etwa 50%.

[10] Die mittlere natürliche Strahlenbelastung liegt in Deutschland bei 2,4 mSv pro Jahr mit einer typischen Streubreite im Bereich von 1–5 mSv pro Jahr je nach Aufenthaltsort. Nach dem Entwurf der Novelle (Nachtragsgesetz) Strahlenschutzverordnung dürfen die effektiven Körperdosen für beruflich strahlenexponierte Personen 20 mSv pro Jahr nicht überschreiten.

zeitliche Dosisverteilung abgeschätzt, und die resultierenden Werte lagen im Bereich von 0,06–6,6 mSv.

Belastung von weiterem Personal

Von Regierungsseite wurden 206 Personen im Zusammenhang mit den Arbeiten zur Beendigung des Unfalls eingesetzt. Bei 57 Personen zeigten Film- bzw. Thermoluminiszenzdosimeter eine Strahlenexposition an, wobei Dosiswerte von 0,1–9,2 mSv festgestellt wurden. Bei den drei Feuerwehrleuten, die bei den Notfallmassnahmen eingesetzt worden waren, ergaben Ganzkörpermessungen Dosiswerte zwischen 4,6 und 9,4 mSv.

Aufgenommene Strahlungsdosis der Anwohner

Bei sieben Anwohnern in der Evakuierungszone, die sich innerhalb von 350 m um die betroffene Anlage erstreckte, wurden Ganzkörpermessungen durchgeführt, und die von diesen Personen aufgenommenen Dosen wurden zu 6,7–16 mSv bestimmt. Bei 200 weiteren Personen, die in der Evakuierungszone wohnten oder arbeiteten und für die keine Messungen vorlagen, aber eine Strahlenexposition angenommen werden musste, wurde die Dosisbelastung unter Berücksichtigung des Individualverhaltens zu 0,01–21 mSv abgeschätzt.

Schlussfolgerungen

Der Kritikalitätsunfall in Tokai-mura ist nach den bekannt gewordenen Informationen in seinem physikalischen Ablauf vergleichbar mit früheren Kritikalitätsexkursionen in spaltstoffhaltigen Lösungen. Die Ursachen für den Unfall lagen im Wesentlichen in den folgenden Unzulänglichkeiten:

- Der Sedimentationsbehälter in der betroffenen Urankonversionsanlage war nur dann unterkritisch, wenn Anreicherungsgrad und zugehörige Spaltstoffmenge korrekt eingehalten wurden.
- Es lagen Mängel in der anlageninternen Kontrolle und der behördlichen Aufsicht vor. Diese rührten daher, dass nach dem japanischen Atomgesetz eine regelmässige Kontrolle und Überwachung der nuklearen Sicherheit von Brennstoffverarbeitungs und -fertigungsanlagen nicht vorgesehen waren.
- Das Fachwissen des Personals der JCO war hinsichtlich Kritikalitätssicherheit offensichtlich unzureichend.
- Der Betreiber der Anlage und die eingesetzten Arbeiter hatten den Arbeitsvorgang gegenüber dem genehmigten Prozessablauf geändert.

Die nach dem Unfall durchgeführten Untersuchungen ergaben, dass die radiologischen Auswirkungen im Wesentlichen auf die Anlage und das direkt beteiligte Personal beschränkt blieben. Dabei war allerdings die Strahlenbelastung der Arbeiter, die mit dem Umfüllen der Uranlösung beschäftigt waren so hoch, dass zwei von ihnen verstorben sind. Der dritte Arbeiter hat zwar den Unfall überlebt, muss aber immer noch medizinisch behandelt und regelmässig untersucht werden.

Der Firmenleitung der JCO und der Aufsichtsbehörde ist im Zusammenhang mit der Beendigung des Unfalls vorzuwerfen, dass es keine Pläne zur Bewältigung von Störfällen oder Unfällen bei einer Kritikalität gab. Es fehlten ausserdem ein Neutronenmonitor im dem Raum mit dem Sedimentationsbehälter sowie Personendosimeter für die eingesetzten Arbeiter. Die Borsäure zur Erhöhung der parasitären Neutronenabsorption in der Uranlösung musste erst aus einer 10 km entfernten Forschungsanlage mit der Feuerwehr herangeschafft werden. Weiter ist nicht zu verstehen, dass es mehr als 13 h dauerte, bis die Entscheidung getroffen wurde, das Kühlwasser aus dem Mantel des Sedimentationsbehälters abzulassen, und dass bis zur Evakuierung der 161 Anwohner rund 10 h verstrichen sind. Durch schnellere Entscheidungen hätten die radiologischen Auswirkungen des Unfalls auf das eingesetzte Personal und die Anwohner in der Umgebung verringert werden können.

Als Folge des Unfalls und der sich daran anschliessenden Untersuchungen wurde und wird das japanische kerntechnische Regelwerk geändert. Zukünftig sollen alle Anlagen, die mit mehr als einer kritschen Masse Spaltstoff umgehen, regelmässig inspiziert werden. Dabei sollen jährliche Inspektionen auf Änderungen der Anlagen und vierteljährliche Kontrollen auf Einhaltung der Sicherheitsbestimmungen durch Regierungsinspektoren durchgeführt werden; ausserdem sollen in den betroffenen Anlagen Regierungsinspektoren zur täglichen Kontrolle der Arbeitsabläufe eingesetzt werden. Weiter wird ausdrücklich gefordert, dass das bei kerntechnischen Arbeiten eingesetzte Personal in Zukunft geschult wird. Allerdings zeigen die Ereignisse von Tokai-mura auch, dass eine Kritikalitätskontrolle, die allein auf administrativen Massnahmen beruht, keine ausreichende Sicherheit vor Unfällen dieser Art bietet.

Auf Grund des Unfalls wurden auch in Deutschland die kerntechnischen Anlagen zur Brennstoffversorgung und die damit verbundenen Vorsorgemassnahmen einer erneuten Bewertung unterzogen. Hierbei wurden folgende wichtige Sachverhalte überprüft:

- Auslegung von Anreicherungsanlagen und Brennelementfabriken gegen Kritikalitätsunfälle
- Anwendung des Sicherheitsprinzips des Doppelfehlers (d.h. mindestens zwei voneinander unabhängige, gleichzeitig wirkende, im bestim-

L'accident de criticalité de Tokai-mura

Bilan – un an après

En automne 1999, un accident de criticalité* s'est produit dans une des installations de conversion d'uranium de Tokai-mura, provoquant une réaction en chaîne nucléaire incontrôlée et s'entretenant elle-même qui a duré environ 20 heures. Celle-ci a fait apparaître dans les alentours de l'installation concernée des doses locales élevées de rayonnement neutronique et gamma. Deux des trois collaborateurs directement touchés par l'accident sont décédés depuis des suites de l'irradiation. En revanche, seule une faible quantité de radioactivité s'est échappée vers l'environnement sous forme de produits de fission. L'autorité japonaise a classé l'incident dans la catégorie 4 de l'International Nuclear Event Scale qui comprend sept niveaux. Cet événement aura des répercussions sur les procédures d'autorisation appliquées à l'avenir au Japon et la surveillance exercée par les autorités sur les installations de traitement des combustibles. Un contrôle des installations de traitement des combustibles nucléaires en Allemagne a révélé que l'accident de Tokai-mura ne donnait pas lieu à des mesures particulières en vue de modifier ou de compléter les mesures de prévention de ces dispositifs.

* On appelle criticalité l'état d'un système contenant des matières fissiles dans lequel une réaction en chaîne une fois déclenchée peut tout juste se maintenir.

mungsgemässen Betrieb nicht zu erwartende Ereignisse müssen eintreten, bevor Kritikalität erreicht werden kann)
- Regelmässige interne und externe behördliche bzw. gutachterliche Kontrolle der Einhaltung der Sicherheitsvorkehrungen und regelmässige Fachkundenachweise des kerntechnischen Personals

Die Überprüfung ergab, dass wegen des Unfalls in Tokai-mura kein Handlungsbedarf vorliegt, die Vorsorgemassnahmen in Deutschland zu ändern oder zu ergänzen. Der Unfall in Japan zeigt allerdings nochmals auf, wie wichtig es ist, dass das erforderliche Fachwissen bei den Betreibern von Brennstoffversorgungseinrichtungen und bei den Gutachterorganisationen auf dem Gebiet der Kritikalitätssicherheit erhalten bleibt und die Einhaltung der vorgegebenen Regeln durch Kontrollen überprüft wird.

Literatur

The Report of the Uranium Processing Plant Criticality Accident Investigation Committee. Nuclear Safety Commission. December 1999, Provisional Translation May 29, 2000.

U.S. Department of Energy: Trip Report of Visit to Tokio and Tokai-mura, Japan, on October 18–19, 1999. March 2000.

A. Suzuki: Causes of the JCO Criticality Accident and Lessons Learned, International Workshop on the Safety of the Nuclear Fuel Cycle. Tokio, May 29–31, 2000.

International Atomic Energy Agency (IAEA): Report on the preliminary fact finding mission following the accident at the nuclear fuel processing facility in Tokai-mura, Japan. Wien, November 1999.

K. Kugeler, H. Brockmann, P. Phlippen, W. Scherer und J. Singh: Informationen und Analysen zum Kritikalitätsunfall in Tokai-mura. atw 44, Heft 11, November 1999.

J.F. Briesmeister: MCNP-A General Monte-Carlo N-Particle Transport Code, Version 4B. LA-12625-M, 1997.

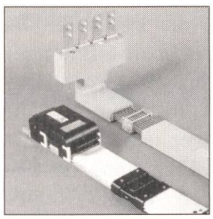
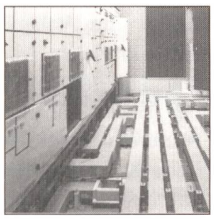
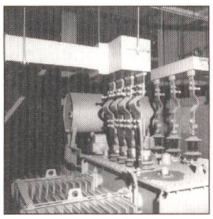
L. M. Petrie, L.F. Landers: Keno-Va: An Improved Monte-Carlo Criticality Program with Supergrouping. Nureg/CR-0200, 1993.

ICRP-Publication 60: 1990 Recommendations of the International Commission of Radiological Protection. Annals of the ICRP 21 No.1–3, 1991.

Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit: Entwurf einer Verordnung für die Umsetzung von Euratom-Richtlinien zum Strahlenschutz, Stand 3. April 2000.

W. Heinicke et. al.: Handbuch zur Kritikalität. Gesellschaft für Reaktorsicherheit (GRS), Dezember 1985.

Deutsches Atomforum e.V.: Dokumentation zum Kritikalitätsunfall in Tokai-mura. Bonn, 5. November 1999.

LANZ HE Schienenverteiler zur Stromübertragung und -Verteilung

für Büro-, Gewerbe-, Zweck- und Industriebauten
400 – 6'000 A/1'000 V AC/DC IP 54 und IP 68
EN/IEC-normkonform Produktion ISO 9001

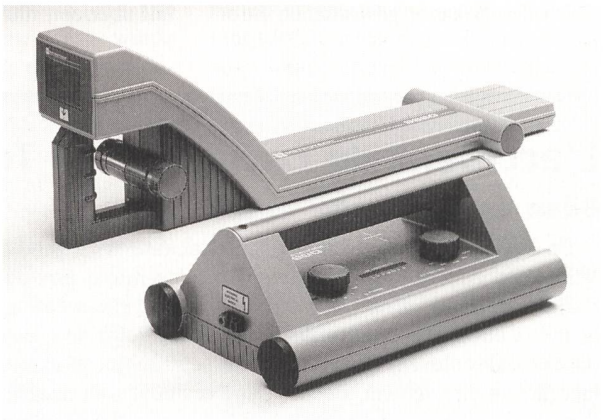
- Giessharzvergossen
- Mit Cu- oder Al-Leiter
- Wenig Spannungsverlust
- Hohe Kurzschlussfestigkeit
- Hohe mech. Festigkeit
- Beste thermische Eigenschaften
- Keine Kondensation Keine Korrosion
- Anschlusselemente + Abgangskästen nach Kundenwunsch
- Wartungsfrei
- Just-in-time lieferbar
- Preisgünstig

Profitieren Sie von der LANZ Kernkompetenz. Verlangen Sie Beratung, Offerte, rasche und preisgünstige Lieferung von
lanz oensingen ag ch-4702 oensingen südringstrasse 2
tel. ++41/62 388 21 21 fax ++41/62 388 24 24 e-mail: info@lanz.oens.com

☐ LANZ HE Schienenverteiler interessieren mich. Senden Sie Unterlagen.
☐ Können Sie mich besuchen? – Bitte telefonische Voranmeldung
Name/Adresse/Tel. _____

lanz oensingen ag
4702 Oensingen Südringstrasse 2 Tel. ++41/62 388 21 21

FM 9800
Intelligentes Leitungsortungssystem für erdverlegte Kabel und Rohre



- Automatisches Richtungsführungssystem
- Strommessung zur Differenzierung von parallel verlaufender Leiter
- Einknopfbedienung mit digitaler Tiefenanzeige

INTERSTAR
Alte Steinhauserstrasse 19, 6330 Cham
Telefon 041 741 84 42, Fax 041 741 84 66
Internet: www.interstar.ch E-Mail: info@interstar.ch