



Technische Universität Darmstadt
Institut für Kernphysik

Abbrandrechnungen
für ein System zur Eliminierung
von Waffenplutonium

Alexander Glaser

Diplomarbeit, Februar 1998

Inhaltsverzeichnis

1	Einführung	5
2	Hintergrund und Zielsetzung	7
2.1	Die NAS-Studie und der Spent Fuel Standard	8
2.2	Kritische Aspekte des Spent Fuel Standards	9
2.3	Der irreversible Entzug des Plutoniums	12
2.4	Rahmenbedingungen für einen Prozeß zur Eliminierung von Plutonium . . .	13
2.4.1	Voraussetzungen	13
2.4.2	Unmittelbare Implikationen	14
2.4.3	Beispiele: pro & contra	15
3	Konzeption eines Pu-Burners	17
3.1	Parameter des Systems	17
3.1.1	Technologie	17
3.1.2	Brennstoff und Materialien	17
3.1.3	Leistungsdichte und Gesamtleistung	18
3.1.4	Temperaturen und Sicherheitsaspekte	18
3.2	Einschränkungen und Ergebnisse der INEL-Studie	19
3.3	Beurteilung des Konzepts	21
4	Wirkungsquerschnitte und Resonanzen	23
4.1	Grundlegende Größen und Begriffe	23
4.1.1	Mikro- und makroskopischer Wirkungsquerschnitt	23
4.1.2	Reaktionsrate und Neutronenfluß	24
4.1.3	Effektiver Wirkungsquerschnitt	25
4.2	Resonanzen	26
4.2.1	Selbstabschirmung	27
4.2.2	Doppler-Verbreiterung der Resonanzen	27
4.3	Berechnung der Gruppenquerschnitte in homogenen Medien	28
4.3.1	Die Näherungsmethode nach Bondarenko	29
4.3.2	Beispiel: Konsequenzen für Plutonium-Querschnitte	31
5	Plutonium in inerten Matrizen	39
5.1	Zusammensetzung der Brennstoffe	39
5.2	Wirkungsquerschnitte der Plutonium-Isotope	43

5.3	Verzögerte Neutronen	43
5.4	Multiplikationsfaktor und Reaktivität	45
5.5	Konzentration des Plutoniums	46
5.6	Absorbermaterialien	46
5.7	Metallische und oxidische Brennstoffe	47
5.8	Reaktivitätskoeffizienten	48
5.8.1	Temperaturkoeffizient des Brennstoffs	48
5.8.2	Temperaturkoeffizient des Moderators	48
6	Zellabbrandrechnungen für Waffenplutonium in einer inerten Matrix	53
6.1	Berechnungsverfahren	53
6.2	Voraussetzungen	56
6.2.1	Brennstoffzusammensetzung und Geometrie	56
6.2.2	Leistungsdichte	56
6.2.3	Behandlung der Absorbermaterialien	57
6.3	Resultate	58
6.3.1	Multiplikationsfaktor k_{∞}	58
6.3.2	Totaler Neutronenfluß	59
6.3.3	Neutronenspektrum	60
6.3.4	Nuklidkonzentrationen	61
6.3.5	Umsatz und Zusammensetzung des Plutoniums	62
6.3.6	Effektive Wirkungsquerschnitte	62
6.3.7	Spaltprodukte	64
6.3.8	Materialbelastung	64
6.3.9	Radiotoxizität	66
7	Potential eines Pu-Burners	83
7.1	Mehrzyklenbetrieb	83
7.1.1	Lineares Reaktivitätsmodell	84
7.1.2	Anwendung auf einen nicht-fertilen Plutonium-Brennstoff	86
7.2	Möglichkeiten der Optimierung	87
7.2.1	Allgemeines zur Anordnung von Brennelementen	87
7.2.2	Simulation eines Brennelement-Gitters	88
7.2.3	Periphere Anordnung	89
7.3	Absoluter Umsatz einer Anlage	91
7.4	Beispiel einer Beseitigungsstrategie	94
8	Zusammenfassung und Ausblick	97
A	Kritische Massen	101
B	Radiotoxizität	103
C	Lineares Reaktivitätsmodell	107
	Literaturverzeichnis	109

Kapitel 1

Einführung

*The end of the Cold War has created a new climate
for international action to eliminate nuclear weapons, a new opportunity.
It must be exploited quickly or it will be lost.*

Canberra Commission, 1996

DIE KERNWAFFENFREIE WELT, die als das umfassende Ziel der nuklearen Abrüstungsbemühungen angesehen werden muß, kann nur dann dauerhaft stabil sein, falls ein langfristig sinnvoller Umgang für alle kernwaffenfähigen Materialien gefunden wird. Insbesondere die Frage, inwiefern technische Möglichkeiten zur Eliminierung dieser Materialien zur Verfügung gestellt werden können, ist in diesem Zusammenhang von besonderem Interesse.

Die vorliegende Arbeit konzentriert sich auf das Waffenplutonium, das in den USA und in Rußland als „überschüssig“ (engl.: *excess* oder *surplus*) deklariert wurde bzw. werden wird, und versucht das Potential eines Reaktors zu bestimmen, der keine andere Funktion besitzt als Plutonium effizient und sicher zu eliminieren.

Die Problematik der Plutonium-Beseitigung wird in Kapitel 2 beleuchtet und Unzulänglichkeiten der aktuellen Strategien diskutiert. Hierbei werden insbesondere Kriterien zur Verfügung gestellt, die eine Beurteilung von Eliminierungsoptionen erlauben sollen.

Anschließend wird das Konzept des Reaktors vorgestellt, der als Referenzsystem für spätere Zellabbrandrechnungen dienen wird: dieser Reaktor, im folgenden *Pu-Burner* genannt, wurde erstmals in einer Studie des *Idaho National Engineering Laboratory* untersucht. Er stellt bei sehr niedriger Leistungsdichte keine elektrische Energie zur Verfügung und erzielt durch den Einsatz von nicht-fertilen Brennstoffen hohe Plutonium-Umsatzraten (Kapitel 3). Da die Ergebnisse der INEL-Studie auf stark vereinfachten Annahmen beruhen, versucht die vorliegende Arbeit, diese zu präzisieren und insbesondere das abbrandabhängige Aktinideninventar element- und isotopenspezifisch abzuschätzen.

Zuvor werden allerdings die allgemeinen physikalischen Aspekte der Wirkungsquerschnitte von Neutronen mit Materie beleuchtet (Kapitel 4). Dabei spielen insbesondere die Resonanzen im epithermischen Bereich eine wesentliche Rolle, da diese für das makroskopische Verhalten eines neutronenmultiplizierenden Systems und für Abbrandrechnungen — aufgrund der Resonanzselbstabschirmung — von entscheidender Bedeutung sind. Ein Näherungsverfahren zur Berechnung von spektrum-gemittelten Querschnitten wird vorgestellt, das die Selbstabschirmung berücksichtigt und die eingehenden physikalischen Effekte erhellt (Bondarenko-Methode). Es zeigt sich, daß durch den Effekt der Resonanzselbstabschirmung die spektrum-gemittelten Querschnitte einiger Aktiniden erheblich beeinflußt werden, was insbesondere auch für die Plutonium-Isotope gilt. Für die Berechnungen, die den Ergebnissen dieser Arbeit zugrunde liegen, werden die benötigten Daten und Werte durch Monte Carlo Simulationen ermittelt; solche Simulationen werden generell als die zuverlässigste Methode zur Bestimmung von spektrum-gemittelten Querschnitten angesehen, da insbesondere der Effekt der Resonanzselbstabschirmung implizit berücksichtigt wird.

Die neutronenphysikalischen Eigenschaften von Plutonium — in bezug auf einen Einsatz in Kernreaktoren — werden in Kapitel 5 diskutiert. Hier werden ebenso die Brennstoffe vorgestellt, die als mögliche Kandidaten für die sich anschließenden Zellabbrandrechnungen in Erwägung gezogen werden. Diese Brennstoffe betten das WPu in eine sog. inerte Matrix ein und verhindern somit die systematische Neuproduktion anderer spaltbarer Materialien.

In den Teilen der Arbeit, die der quantitativen Analyse der Plutonium-Eliminierung gewidmet sind (Kapitel 6 und 7), werden grundlegende Resultate für den Pu-Burner ermittelt. Auf der Basis von Zellabbrandrechnungen werden hierbei der Multiplikationsfaktor k_∞ , das Neutronenspektrum, die Nuklidkonzentrationen der Aktiniden und der Spaltprodukte, die effektiven Wirkungsquerschnitte, die Materialbelastung sowie die Radiotoxizität des Brennstoffs (abbrandabhängig) bestimmt. Anschließend wird versucht, die gewonnenen Zahlen auf ein endliches System zu übertragen, um Aussagen über den tatsächlich erreichbaren relativen und absoluten Plutonium-Umsatz machen zu können.

Die wesentlichen Ergebnisse dieser Arbeit sowie einige Konsequenzen, die sich daraus ableiten lassen, werden noch einmal in Kapitel 8 zusammengefaßt.

Kapitel 2

Hintergrund und Zielsetzung

BEDINGT DURCH DIE ERFOLGE der anhaltenden Abrüstungsbemühungen ergibt sich historisch erstmalig die Situation, daß große Mengen kernwaffenfähiger Materialien nicht mehr „benötigt“ werden und infolgedessen gelagert, entsorgt oder beseitigt werden müssen. In diesem Kontext erfordert insbesondere das überschüssige Waffenplutonium (WPu) besondere Aufmerksamkeit, da keine Möglichkeit existiert, es wirksam in einen kernwaffen-untauglichen Zustand zu überführen.¹

Das Plutonium-Inventar im militärischen Sektor wird mit ca. 250 Tonnen weltweit abgeschätzt (Tabelle 2.1). Der überwiegende Teil dieser Menge liegt als WPu vor, das sich durch einen außergewöhnlich hohen Pu-239-Anteil auszeichnet; eine angenäherte Isotopenzusammensetzung für WPu ist in Tabelle 2.2 angegeben. Lediglich das US-amerikanische Plutonium-Inventar kann jedoch genauer aufgeschlüsselt werden [DoE 96a]: von den existierenden 99.5 t militärischen Plutoniums werden 14.5 t als Non-WPu (Pu-240 Anteil > 7 wt%) eingestuft und sollen vollständig entsorgt werden.² Von den verbleibenden 85 t WPu sind 38.2 t als überschüssig deklariert. Das heute in den USA zu entsorgende separierte Plutonium beläuft sich somit auf 52.7 t.³

Nachdem die *US-National Academy of Sciences* (NAS) 1994 die erste umfassende Bewertung der Entsorgungsoptionen für überschüssiges Waffenplutonium vorgestellt hatte [NAS 94], wurde die Diskussion in den USA — aber auch weltweit — auf einige wenige Optionen fokussiert. Diese favorisierten Optionen basieren alle auf dem Konzept der minimierten Zugänglichkeit (engl.: *minimized accessibility*); hierbei wird durch eine physische, chemische oder radiologische Barriere der Zugang bzw. die unmittelbare Kernwaffentauglichkeit des Materials eingeschränkt. Die intrinsischen Komponenten der Proliferationsresistenz werden

¹Im Gegensatz zu Waffenplutonium kann hochangereichertes Uran (HEU) durch Mischung mit natürlichem oder abgereichertem Uran leicht denaturiert werden: sinkt der Anteil des Uran-235 unter 20 %, so ist das Uran de facto kernwaffenuntauglich (vgl. Tabelle A.2 in Anhang A).

²Diese 14.5 t Non-WPu setzen sich zum Großteil aus Plutonium zusammen, das immer noch 80–90 wt% Pu-239 enthält.

³Als Arbeitszahlen für überschüssiges WPu werden i. a. 50 t bei Diskussion der aktuellen US-Situation und 100 t bei Diskussion der aktuellen globalen Situation (USA + Rußland) herangezogen. Langfristig — und dies gilt insbesondere vor dem Hintergrund der Kernwaffenfreien Welt — kann jedoch die Entsorgung des gesamten WPu-Inventars notwendig werden.

relativ zu den institutionellen Komponenten erhöht. Da die NAS-Studie die Debatte um die Problematik der WPU-Entsorgung nachhaltig beeinflusst, wenn nicht gar entschieden hat, sollen kurz die wesentlichen Begriffe und Aussagen dieser Arbeit vorgestellt und diskutiert werden.

2.1 Die NAS-Studie und der Spent Fuel Standard

Eine Möglichkeit, den Gebrauch des Materials in Kernwaffen zu erschweren, kann durch die Errichtung einer radiologischen Barriere realisiert werden. Die NAS führt in diesem Kontext den *Spent Fuel Standard* (SFS) ein, der das Waffenplutonium in bezug auf die Verwendung in Kernwaffen vergleichbar unzugänglich („*roughly as inaccessible*“) machen soll wie das bereits existierende zivile Plutonium, das in abgebrannten Brennelementen eingebettet ist. Das *US-Department of Energy* (US-DoE) erweitert die Definition des SFS, indem das Kriterium der *Attraktivität* hinzugenommen wird [DoE 96b]:

„A concept to make the plutonium as unattractive and inaccessible for retrieval and weapons use as the residual plutonium in the spent fuel from commercial reactors.“

Dabei ist zunächst offen, wie dieser Standard erreicht werden soll; zwei Optionen werden jedoch favorisiert:⁴

Reaktor-gestützte Option: Das WPU wird in existierenden kommerziellen Reaktoren ohne anschließende Wiederaufarbeitung des Brennstoffes (engl.: *once-through-cycle*) bestrahlt. Obwohl zunächst verschiedene Varianten denkbar sind, fokussiert diese Option mittlerweile ausschließlich den Einsatz des WPU's als MOX⁵ in Leichtwasserreaktoren.

Immobilisierung: Das WPU wird — ohne vorherige Bestrahlung in einem Reaktor — zusammen mit hochradioaktiven Abfällen und Neutronenabsorbieren in massive Glas- oder Keramik-Blöcke eingegossen.

Die NAS weist darauf hin, daß eine weitergehende Behandlung des WPU's, was mit zusätzlichen Kosten, Risiken und Verzögerungen verbunden wäre, aufgrund des ohnehin vorhandenen zivilen Plutoniums zunächst zu keinen zusätzlichen Sicherheitsvorteilen führen würde. Es wird allerdings auch betont, daß langfristig ein Hinausgehen über den *Spent Fuel Standard* sinnvoll und notwendig ist; dann müßte allerdings das gesamte separierte zivile Plutonium und eventuell auch das Plutonium, das in radioaktiven Abfällen eingebettet ist, berücksichtigt werden.⁶

⁴Dies gilt zumindest für die USA, die sich für den sog. *dual-track approach* entschieden haben und zunächst die beiden hier beschriebenen Optionen verfolgen [DoE 97].

⁵Misch-Oxid-Brennstoff (MOX): PuO₂ in natürlichem oder angereichertem UO₂.

⁶Vgl. [NAS 94], p. 34 und p. 205.

	USA	Rußland	Andere
Pu im militärischen Bereich	99.5 t	~ 130 t	~ 20 t
Separiertes Pu im zivilen Bereich	—	~ 30 t	~ 100 t
Pu in abgebrannten Brennelementen	~ 1000 t		

Tabelle 2.1: Abschätzung des Plutonium-Weltinventars (1995). Illustrative Zahlen nach [DoE 96a] und [Alb 97]. Angaben für Rußland und Andere sind mit Ungenauigkeiten von bis zu 15 % behaftet.

	^{238}Pu	^{239}Pu	^{240}Pu	^{241}Pu	^{242}Pu	^{241}Am
wt%	0.010	93.820	5.800	0.130	0.020	0.220
at%	0.010	93.845	5.778	0.129	0.020	0.218

Tabelle 2.2: Zusammensetzung des Waffenplutoniums bei einem Alter von ca. 20 Jahren (vgl. [NAS 95], p. 45). Angaben in Gewichtsprozent (wt%) und Atomprozent (at%).

2.2 Kritische Aspekte des Spent Fuel Standards

Auch wenn der *Spent Fuel Standard* in Anbetracht der Umstände auf dem zivilen Sektor ein pragmatisches Nahziel der Plutonium-Entsorgung darstellen mag, so sind dennoch schwerwiegende Kritikpunkte zu benennen. Diese werden die Stabilität der Kernwaffenfreien Welt erheblich einschränken — und auch den non-proliferationspolitischen Weg dorthin erschweren.

Eine Studie, die 1996 im Auftrag des US-DoE von den führenden US-amerikanischen Laboratorien erstellt wurde, untersucht die non-proliferationsrelevanten Eigenschaften des SFS [RTR 96]. Obgleich dieser sog. *Red Team Report* (RTR) zu dem Schluß kommt, daß durch den SFS — unterstützt durch institutionelle Barrieren — ein hohes Maß an Proliferations-

resistenz gewährleistet werden kann,⁷ benennt er dennoch wesentliche Schwachpunkte des SFS in quantitativ präziser Form.

Zur Zugänglichkeit: Die intrinsischen Eigenschaften des SFS entlasten die institutionellen Anforderungen zum Schutz des Materials; ersetzen diese jedoch nicht. Beispielsweise ist ein nicht-verdeckter Diebstahl (engl.: *overt theft*) ohne Abschirmungsmaßnahmen bei allen Varianten des SFS möglich;⁸ langfristig ist außerdem zu beachten, daß die radiologische Barriere zerfällt,⁹ wobei insbesondere einige Spaltprodukte betroffen sind, die chemisch schwierig abzutrennen sind.¹⁰ Aus diesen Gründen erleichtert sich sowohl der physische als auch der chemisch-technologische Zugang. Da das entsorgte Material für den Eigentümer (engl.: *host-nation*) jederzeit zugänglich und eine Extraktion des Plutoniums in einer kernwaffenfähigen Form auf keine technischen Probleme stößt (s. u.), stellt der SFS für den Eigentümer keine Barriere dar. Die Abzweigung von Waffensstoff durch den Eigentümer selbst kann somit nicht verhindert werden; daß ein Break-out zur Umkehrung des Abrüstungsprozesses durch einen erneuten Zugriff auf Waffensstoffe unbemerkt bleibt, wird vom RTR jedoch als unwahrscheinlich eingeschätzt. Allerdings kann, nachdem das Plutonium in ein Endlager eingebracht wurde, der Zugriff auf eine solche „Plutonium-Mine“ unter Umständen kostengünstiger und schneller durchführbar sein als die Neuproduktion des Materials in einem Kernreaktor. Dies würde eine raschere Umkehrung des Abrüstungsprozesses ermöglichen.¹¹

Zur Nützlichkeit: Da die Waffentauglichkeit von Plutonium für jede Isotopenzusammensetzung als gesichert gelten muß,¹² stellen der Zugriff auf plutonium-haltigen „Rohstoff“ und die technologische Fähigkeit zur Extraktion von Plutonium Schlüsselemente für die Schaffung oder Aufrechterhaltung einer Kernwaffenoption dar. Der RTR kommt zu dem Schluß, daß aus allen SFS-Einheiten¹³ signifikante Pu-Mengen (8 kg)¹⁴ gewonnen werden können. Der dazu erforderliche Aufwand wird bezüglich Personal, Ausstattung und Zeit als relativ gering eingeschätzt.¹⁵ Eine Barriere, die die Nützlichkeit des plutonium-haltigen Materials einschränkt, kann somit bestenfalls einen geringen Beitrag zur Proliferationsresistenz leisten.

Zur Sicherheit: Aussagen zur Sicherheit einer plutonium-haltigen Endlagerungsform werden durch die Tatsache erschwert, daß Plutonium-239 mit einer Halbwertszeit von 24 200 Jahren in Uran-235 — mit einer ungleich höheren Halbwertszeit von 704 Millionen Jahren

⁷Dieser hohe Standard wird allerdings erst dann erreicht, wenn das Material in einem versiegelten Endlager deponiert ist (a. a. O. p. 4-16).

⁸Die bei einem nicht-verdeckten Diebstahl in 15–20 Minuten erhaltene Dosis (max. 3 Sv) führt zu keinen akuten Symptomen (a. a. O. p. 4-11 ff. und p. 4-37).

⁹Im Fall der Immobilisierung des Plutoniums zusammen mit Cäsium-137 folgt der Zerfall der Barriere der Halbwertszeit des Cäsiums von 30.1 Jahren.

¹⁰Die NAS-Studie nennt hier Zirkonium- und Niobium-Isotope. Vgl. [NAS 95], p. 39.

¹¹Diskussion beispielsweise in [Lym 94] oder [Pet 96].

¹²Der RTR faßt die Waffentauglichkeit von Plutonium in einer kompakten Form zusammen: „*All plutonium is good plutonium; some is better than other*“ (a. a. O. p. 4-5). Detaillierte Diskussionen zur Waffentauglichkeit von Plutonium in [Kan 89] und [Mar 93].

¹³Ein Brennelement bzw. ein Glas- oder Keramik-Block.

¹⁴Signifikante Menge gemäß *International Atomic Energy Agency* (IAEA). Zu den kritischen Massen von Plutonium vgl. Tabelle A.2 in Anhang A.

¹⁵Vgl. a. a. O. p. 4-1. Der RTR schätzt, daß im ungünstigsten Fall 6 Monate zur Prozeß-Vorbereitung und 8 Wochen zur Extraktion einer signifikanten Menge notwendig sind. Zusätzlich sind, so der RTR, für den Bau der Kernwaffe selbst Tage — nicht Wochen — hinzuzurechnen (a. a. O. Tabelle 4-2, p. 4-6).

— zerfällt. Da Uran-235 vergleichbar hohe Spaltquerschnitte wie das ursprüngliche Plutonium besitzt, muß eine Stabilität bzw. Unterkritikalität der Konfiguration quasi ad infinitum gewährleistet werden.¹⁶

Beispiel: Verglasung. Bei realistischen Pu-Konzentrationen (5–8 wt% PuO₂) in der Glasmatrix ist aufgrund der höheren Löslichkeit der Neutronenabsorber (im Vergleich zu Plutonium oder Uran) ein Erreichen der Kritikalität möglich: unter ungünstigsten Voraussetzungen geschieht dies nach einigen tausend Jahren; bei Zusatz von Europium erst nach einigen hunderttausend Jahren. Die Kritikalität kann durch weitere Erhöhung der Absorberkonzentration verzögert, jedoch nicht prinzipiell verhindert werden [Sy1 97].

Zu den Perspektiven: Im Falle der reaktor-gestützten Option (MOX) ist es fraglich, ob die erheblichen Investitionen zur Errichtung einer Anlage zur Produktion des MOX-Brennstoffes nach Abschluß der WPU-Mission aufgegeben werden. Es besteht somit die Gefahr, daß die Entsorgung des WPU's ein Signal zu einer langfristig ausgerichteten zivilen Plutonium-Nutzung gibt, was in jedem Fall neue Proliferationskanäle schaffen würde.¹⁷ Da insbesondere Rußland über große Mengen an separiertem zivilen Plutonium verfügt, ist davon auszugehen, daß letzteres ebenso zu MOX-Brennstoff verarbeitet werden wird.¹⁸

Wie eingangs erwähnt, wird der SFS trotz dieser mannigfaltigen Unzulänglichkeiten als pragmatischer Zugang der WPU-Entsorgung angesehen, da er auch dem zivilen Sektor zugrunde liegt. Dennoch ist — und dieser Idee folgt die vorliegende Arbeit — eine andere Auslegung der Situation möglich: die Entsorgung des überschüssigen WPU's ist akut *und* quantitativ begrenzt. Insofern bietet sich die WPU-Entsorgung an, um neuartige und nachhaltig sinnvolle Konzepte für den Umgang mit kernwaffenfähigen Materialien zu entwickeln und anzuwenden; Konzepte also, die über den Status quo hinausgehen, der durch die heutige Kernenergienutzung „definiert“ wird.¹⁹ Im Idealfall sollten diese Konzepte später auf alle Pu-Formen, d. h. auf das abgetrennte zivile Plutonium und — in letzter Konsequenz — auf das in abgebrannten Brennelementen eingebettete Plutonium angewandt werden. Auch die NAS deutet die Notwendigkeit einer solchen Vorgehensweise an.

„While the spent fuel standard is an appropriate goal for next steps, further steps should be taken to reduce the proliferation risks posed by all of the world's plutonium stocks, military and civilian, separated and unseparated; the need for such steps exists already, and will increase with time. Options for near-total elimination of plutonium may have a role to play in this effort, and research on defining and exploring these options should be continued at a conceptual level.“

[NAS 94], p. 222

¹⁶Eine Kritikalität ist problematisch, da die neu entstehenden Spaltprodukte in die Biosphäre gelangen können. Zweifelhaft bleibt die Möglichkeit unterirdischer nuklearer Explosionen solcher oder ähnlicher Konfigurationen (Glasblöcke oder abgebrannte Brennelemente); solche Ereignisse werden von Bowman et al. (LANL) diskutiert [Bow 94].

¹⁷Siehe dazu auch Paragraph 2.4.2.

¹⁸Berücksichtigt man die besondere „strategische“ Bedeutung des WPU's, so ist sogar denkbar, daß zunächst das zivile Plutonium diesem Prozeß zugeführt wird. Der WPU-Entsorgungsprozeß würde das Gegenteil seines ursprünglichen Ziels — d. h. die Reduzierung des Proliferationsrisikos — erreichen.

¹⁹Vgl. [NAS 94], p. 205: *Beyond the Spent Fuel Standard*.

2.3 Der irreversible Entzug des Plutoniums

Aufgrund der obengenannten Schwachpunkte des *Spent Fuel Standards* — oder allgemein aller Optionen, die lediglich die Zugänglichkeit durch verschiedenartige Barrieren erschweren — ist eine langfristig sinnvolle Strategie vonnöten. Der in diesem Kontext wünschenswerteste Zustand wäre der *irreversible Entzug des Materials vom Zugang des Menschen*. Obwohl zunächst verschiedene Arten des Entzugs denkbar sind,²⁰ kann offenbar nur die *Eliminierung* als einzig realistische Variante angesehen werden: dies würde einen Einsatz des Plutoniums in einem Kernreaktor o. ä. implizieren. Einem Neutronenfluß ausgesetzt, würde es entweder direkt oder nach sukzessiven nuklearen Prozessen (Neutroneneinfang, Zerfall, ...) einen Spaltprozeß erfahren.

Die Effizienz eines Systems zur Eliminierung von Plutonium kann bei vorgegebener freigesetzter Energie durch die Masse der dabei insgesamt gespaltenen Plutonium-Kerne beurteilt werden. Zunächst gilt allgemein:

$$\frac{\Delta M}{\text{GW}_{\text{th a}}} \approx \frac{10^9 \text{ W (365 24 60 60) s}}{211 \cdot 10^6 \cdot 1.602 \cdot 10^{-19} \text{ Ws}} \times \frac{239 \text{ g/mol}}{6.022 \cdot 10^{23} \text{ 1/mol}} \approx 370 \frac{\text{kg}}{\text{GW}_{\text{th a}}} \quad (2.1)$$

Eine Anlage mit einer thermischen Leistung von 1 GW_{th} spaltet pro Jahr demnach rund 370 kg Schwermetall.²¹ Je dichter die tatsächlich vernichtete Plutonium-Menge an diese physikalisch vorgegebene Obergrenze heranreicht, desto effizienter arbeitet das betrachtete System im Hinblick auf das hier verfolgte Ziel. Diese Situation läßt sich auch durch das

$$\text{Konversionsverhältnis} \equiv \frac{\text{Produzierte spaltbare Nuklide pro Zeiteinheit}}{\text{Vernichtete spaltbare Nuklide pro Zeiteinheit}} \approx 0$$

beschreiben.²² Bereits aus (2.1) wird deutlich, daß ein möglicher Eliminierungsprozeß — von beispielsweise 50 Tonnen Plutonium — auch mit mehreren Anlagen einige Dekaden in Anspruch nehmen wird. Die Beseitigung des Waffenplutoniums wird somit vergleichbar aufwendig sein wie dessen einstige Produktion.²³

Anmerkung: Die NAS führt in diesem Kontext außerdem den zusätzlichen Begriff der effektiven, d. h. virtuellen, Eliminierung ein: wird das WPu in einem Reaktor eingesetzt, der im Normalfall mit schwach angereichertem Uran betrieben wird und dabei Plutonium

²⁰Zu den hier nicht weiter diskutierten Varianten des irreversiblen Entzugs gehören die Verdünnung des Waffenplutoniums in den Weltmeeren und die extraterrestrische Entsorgung. Detaillierte Diskussion in [NAS 94], pp. 206–209 und pp. 264–272.

²¹Im Rechenexempel: Massenzahl $A = 239$; Spaltungsenergie $E = 211 \text{ MeV}$.

²²Das Konversionsverhältnis wurde ursprünglich eingeführt, um die Effizienz von Brutreaktoren zu beurteilen und beträgt dort 1.0–1.3; für einen Leichtwasserreaktor, der mit schwach angereichertem Uran betrieben wird, ergibt sich ein Verhältnis von 0.6–0.8.

²³Die militärische Produktion von WPu wurde in speziellen Reaktoren realisiert, die bis zu 250 kg pro GW_{th} und Jahr erzeugen können [Lym 94]. Die Produktion von Plutonium in zivilen Kernreaktoren — von ca. 110 Tonnen pro Jahr [Mat 97] — und dessen Abtrennung in Wiederaufarbeitungsanlagen hält unvermindert an.

produziert, dann wird das WPU als effektiv eliminiert angesehen, wenn die Plutonium-Mengen bei der Entladung — unabhängig von der gewählten Strategie — identisch sind.²⁴ Im Rahmen dieser Arbeit werden nur Optionen berücksichtigt, die auf einem konsequenten Ansatz zur Eliminierung des WPU's basieren und zu einer tatsächlichen und erheblichen Reduktion des spaltbaren Inventars führen. Insbesondere soll das vernichtete Plutonium nicht systematisch durch den Aufbau anderer spaltbarer Materialien ersetzt werden: letzteres ist bei konventionellen Konzepten üblich, um den Reaktivitätsverlust des Brennstoffes auszugleichen. Offenbar kann nur durch einen Verzicht auf solche fertilen Brennstoffe das Effizienzkriterium (2.1) erfüllt werden.

2.4 Rahmenbedingungen für einen Prozeß zur Eliminierung von Plutonium

Nur unter einigen wesentlichen Voraussetzungen wird ein Eliminierungsprozeß sinnvoll und insbesondere öffentlich akzeptabel sein; diese sollen im folgenden kurz diskutiert werden.

2.4.1 Voraussetzungen

Effizienz: Nur eine quasi-vollständige Eliminierung des WPU's würde den notwendigen Aufwand für die Entwicklung, den Bau und den Betrieb einer oder mehrerer Anlagen rechtfertigen. Allerdings ist bei der Bewertung nicht nur die verbleibende Menge an Plutonium zu berücksichtigen, sondern auch die Konzentration sowie der Isotopenvektor des Plutoniums im abgebrannten Brennstoff.

Technologie: Um den Erfolg der Eliminierungsstrategie sicherzustellen, sollte das gewählte Konzept möglichst auf etablierten Technologien basieren, da auf diese Weise Entwicklungsrisiken vermieden werden können.

Umwelt- und Sicherheitsstandard: Das Beseitigungskonzept wird letztlich nur dann akzeptabel sein, wenn hohe Anforderungen an Umwelt- und Sicherheitsstandards erfüllt werden; dies gilt insbesondere auch für eine öffentliche Akzeptabilität des Projekts. Aufgrund des zu erwartenden hohen Plutonium-Inventars solcher Anlagen müssen die angelegten Standards daher strenger sein als bei modernen kommerziellen Reaktoren üblich.

Proliferationsresistenz: Im Zentrum der Bemühungen um den irreversiblen Entzug kernwaffenfähiger Materialien steht die Minimierung des davon ausgehenden Proliferationspotentials. Daher muß auch der Beseitigungsprozeß selbst im Sinne der Proliferationsresistenz sinnvoll gestaltet sein; insbesondere sollten unnötige neue Möglichkeiten zur Abzweigung

²⁴Beispiel: Strategie A basiere auf Uran-Brennstoff und ergebe eine Pu-Nettoproduktion von 300 kg (0 kg → 300 kg). Strategie B setze 100 kg Pu im frischen Brennstoff ein und führe zu der gleichen Pu-Entlademenge (100 kg → 300 kg). Im letzteren Fall werden die eingesetzten 100 kg Pu als „effektiv eliminiert“ angesehen, obwohl die Absolutmenge zunimmt.

des Plutoniums vermieden²⁵ und benötigte Anlagen nur unter internationaler Kontrolle betrieben werden.

2.4.2 Unmittelbare Implikationen

Aus diesen wenigen Rahmenbedingungen, die eine sinnvolle Eliminierungsstrategie begleiten (müssen), lassen sich bereits einige wesentliche Konsequenzen in bezug auf die technologischen Optionen ableiten.

Keine Wiederaufarbeitung: Würde man Wiederaufarbeitung des Brennstoffes zulassen, so könnte — zumindest prinzipiell; und mehr oder weniger effizient — jeder Reaktortyp und zahlreiche Brennstoff-Typen herangezogen werden, um die Mission der Plutonium-Eliminierung zu realisieren.²⁶ Die Stufe der Wiederaufarbeitung, die sich durch große frei fließende Mengen an Plutonium auszeichnet, stellt allerdings die wesentliche Schwachstelle bezüglich Abzweigung oder Diebstahl des Materials dar. Der RTR bestätigt, daß in solchen Anlagen die Abzweigung mehrerer signifikanter Mengen (à 8 kg) pro Jahr möglich ist. Auch die NAS hält fest, daß der Einsatz des traditionellen Verfahrens zur Abtrennung von Plutonium (PUREX) zum Zwecke der WPu-Eliminierung das Netto-Proliferationsrisiko eher erhöhen als absenken würde. Weiterhin ist zu beachten, daß gerade der Aufbau oder die Beibehaltung einer Infrastruktur zur Wiederaufarbeitung problematisch ist, falls der Prozeß der Eliminierung tatsächlich irreversibel sein soll. Zu berücksichtigen ist auch das Signal, das vom Betrieb einer Wiederaufarbeitungsanlage ausgeht, und das Andere zu einer langfristigen zivilen Plutonium-Wirtschaft führen könnte. Eine Wiederaufarbeitung von Brennstoffen ist daher auch zur Eliminierung kernwaffenfähiger Materialien nicht zu vertreten.

Kein Einsatz von Brutstoffen: Soll die umgesetzte Plutonium-Menge an das Kriterium (2.1) heranreichen, so muß eine systematische Neuproduktion spaltbarer Materialien vermieden werden. Dies wird durch die Einbettung des Plutoniums in eine sog. inerte Matrix erreicht; eine solche Matrix ist in der Regel aus Elementen niedriger Ordnungszahl aufgebaut und kann im Hinblick auf Wechselwirkungen mit Neutronen praktisch vernachlässigt werden. Wesentlich ist, daß im gesamten System — und nicht nur in bestimmten Zonen des Reaktors — auf den Einsatz von Brutstoffen verzichtet wird.

Unkonventionelle Betriebsstrategien: Da eine möglichst vollständige Vernichtung des Plutoniums angestrebt wird, sind unkonventionelle Betriebsstrategien der Anlage zu erwarten; solche Strategien²⁷ sind in der Regel nicht mit ökonomisch sinnvollen Kriterien zu vereinbaren, so daß ein wirtschaftlicher Betrieb der Anlage in jedem Fall in Frage gestellt ist. Werden daher ökonomische Interessen a priori ausgeblendet und — im Extremfall — auf

²⁵Dies gilt, obgleich während der Vorbereitung und der Durchführung des Eliminierungsprozesses — wie bei allen Entsorgungsoptionen — zumindest zeitweise von einem Niveau der Proliferationsresistenz unterhalb des *Stored Weapons Standards* oder des *Spent Fuel Standards* auszugehen ist. Vgl. [RTR 96], p. 4-37.

²⁶Vgl. [NAS 94], pp. 214–215.

²⁷Vgl. dazu Paragraph 7.2: weitere Bestrahlung von stark abgebrannten Brennelementen, die kaum noch Energie freisetzen, in der Peripherie oder im Zentrum des Reaktors (engl.: *spiking*). Außerdem mögen Anzahl und Dauer der Zyklen frei wählbar sein.

eine Energieauskopplung verzichtet, so ist eine erheblich höhere Flexibilität des Anlagendesigns zu erwarten, was wiederum den Sicherheitsstandards zugute kommen kann. Außerdem würde durch einen nicht-kommerziellen Betrieb der Anlage ein Signal zur Schaffung eines Plutoniummarktes vermieden werden.

2.4.3 Beispiele: pro & contra

Beschleuniger-gestützte Systeme: Seit Beginn der Neunziger-Jahre werden beschleuniger-gestützte Systeme wieder verstärkt diskutiert, nachdem insbesondere in Arbeiten des *Los Alamos National Laboratory* (LANL) und des *Centre Européen de Recherches Nucléaires* (CERN) verschiedene Konzepte vorgestellt wurden.²⁸ Der hohe technische Aufwand und Entwicklungsrisiken, die vor allem die Beschleunigertechnologie und die chemische Abtrennungstechnologie betreffen, lassen solche Konzepte zur Pu-Eliminierung — aus heutiger Sicht — jedoch ausscheiden. Besonders problematisch ist die Tatsache, daß das Forschungsprogramm in den USA als Dual-Use Projekt angelegt ist: zum einen wird es als Eliminierungsoption für überschüssiges WPU und radioaktive Abfälle konzipiert; zum anderen ist auch die beschleuniger-gestützte Produktion von Tritium vorgesehen, das als Neutronenmultiplikator in modernen Kernwaffen eingesetzt wird.

Thorium-WPU-Zyklus: Im Rahmen der WPU-Entsorgung wird auch der Einsatz von Thorium-Brennstoffen für den Einsatz in existierenden — oder auch neuartigen — Leichtwasserreaktoren erwogen.²⁹ Der Reaktivitätsverlust wird für einen solchen Brennstoff durch den Aufbau von U-233 — nach Neutroneneinfang im Th-232 und zwei anschließenden β -Zerfällen — ausgeglichen. Das spaltbare Material Plutonium wird somit durch ein anderes ersetzt; U-233 zeichnet sich zudem durch eine vergleichbar niedrige kritische Masse aus (vgl. Tabelle A.2 in Anhang A).³⁰

Periphere Anordnung im LWR: Brennelemente, die WPU in einer inerten Matrix enthalten, können in der Peripherie eines konventionellen Leistungsreaktors angeordnet werden, da sie dort die Eigenschaften des Reaktors bezüglich Steuerung und Sicherheit nur unwesentlich beeinflussen [Cho 96]. Mit diesem Verfahren können in diesen speziellen Brennelementen sehr hohe Umsatzraten erzielt werden; allerdings wird in den zentralen Elementen weiterhin Plutonium produziert, so daß eine Netto-Plutonium-Produktion resultiert.

Beide Strategien können daher als Eliminierungsoptionen — im Sinne der oben diskutierten Kriterien — nicht herangezogen werden, da das Effizienzkriterium aus unterschiedlichen Gründen nicht erfüllt wird. Der Thorium-WPU-Zyklus greift auf einen fertilen Brennstoff

²⁸Eine Beurteilung solcher Systeme im Hinblick auf den hier diskutierten Einsatz findet sich beispielsweise in [Lie 97].

²⁹Vgl. beispielsweise [Mat 97].

³⁰Um eine Waffentauglichkeit des Urans auszuschließen, wird außerdem ein geeignet zu wählender Zusatz von U-238 zum Ausgangsbrennstoff diskutiert, so daß zu keiner Zeit unmittelbar kernwaffenfähiges Uran vorliegt — jedoch (in absoluten Zahlen) wenig Pu-239 erbrütet wird. Auch diese Strategie kann allerdings ausgehebelt werden, indem aus relativ schwach bestrahltem Brennstoff das Pa-233 abgetrennt wird, welches mit einer Halbwertszeit von 27 Tagen in U-233 zerfällt.

zurück, so daß (2.1) *global* nicht erfüllt wird; die periphere Anordnung hingegen kann (2.1) nur *lokal* erfüllen, das Plutonium-Inventar des Gesamtsystems nimmt, wie erwähnt, zu.

Im folgenden Kapitel wird ein Konzept vorgestellt, das Ideen aus diesen beiden letzten Strategien aufgreift, diese jedoch konsequent umsetzt. Plutonium-haltiger Brennstoff wird im gesamten System eingesetzt (analog zum Thorium-WPu-Zyklus), der Reaktivitätsverlust wird jedoch — wenn überhaupt — nur durch brennbare Neutronengifte aufgefangen. Durch den Verzicht auf Brutstoffe (analog zur peripheren Anordnung) kann das Effizienzkriterium (2.1) dann global erfüllt werden. Da das Potential eines solchen Systems bislang nur grob abgeschätzt werden konnte, beschäftigen sich die wesentlichen Teile der vorliegenden Arbeit mit Berechnungen, die dieses präzisieren.

Kapitel 3

Konzeption eines Pu-Burners

IM RAHMEN DER NAS-STUDIE wurde das *Idaho National Engineering Laboratory* (INEL)¹ beauftragt, das Konzept eines Plutonium-Burners zu entwickeln [INE 93]. Dieser Reaktor hätte keine andere Funktion als die sichere und effiziente Eliminierung von Plutonium und würde bei sehr niedriger Leistungsdichte keine elektrische Energie zur Verfügung stellen. Die wesentlichen Parameter eines solchen Reaktors und die vorläufigen Ergebnisse der INEL-Studie sollen im folgenden vorgestellt werden.

3.1 Parameter des Systems

3.1.1 Technologie

Das System basiert auf konventioneller Leichtwasserreaktor-Technologie. Die Umwandlung der freigesetzten thermischen Energie in elektrische, kommerziell nutzbare Energie wird „geopfert“,² um ein einfaches und flexibles Design zu ermöglichen, das sich insbesondere durch ein erhöhtes Sicherheitsniveau auszeichnet.

3.1.2 Brennstoff und Materialien

Als Brennstoff dient Waffenplutonium (WPu) in einer inerten Matrix. Die INEL-Studie fokussiert dabei Brennstoffe auf metallischer Basis, d. h. metallische Plutoniumverbindungen in einer Matrix aus Aluminium, Zirkonium, Eisen oder Nickel. Insbesondere die Aluminiumoption wird genauer diskutiert, da diese vorteilhafte fabrikationstechnische Eigenschaften

¹Seit Ende Januar 1997 heißt diese Forschungseinrichtung *Idaho National Engineering and Environmental Laboratory* (INEEL).

²Denkbar ist allerdings auch eine Nutzung der thermischen Energie, beispielsweise als Fernwärme. Diese Option wird jedoch nicht näher diskutiert; die gesamte thermische Energie wird über Kühltürme abgegeben.

besitzt; Brennstoff ist metallisches PuAl_x , das in einer Aluminiummatrix auf die erforderliche bzw. gewünschte Konzentration verdünnt wird. Als Absorber werden Wolfram, Europium und Erbium untersucht, die entweder integraler Bestandteil des Brennstoffes sind oder in den Strukturmaterialien (engl.: *cladding*) eingebettet werden.

3.1.3 Leistungsdichte und Gesamtleistung

Die Leistungsdichte kann für dieses Konzept prinzipiell „beliebig“ niedrig sein, da keine Umwandlung in elektrische Energie vorgesehen ist und somit keine Optimierung des (mit steigender Betriebstemperatur wachsenden) Wirkungsgrades $P_{\text{el}}/P_{\text{th}}$ angestrebt wird. Als Richtwert werden 10 % der Leistungsdichte eines konventionellen LWR angenommen:³

$$\frac{P_{\text{th,Burner}}}{V_{\text{Fuel}}} = 30 \text{ W/cm}_{\text{Fuel}}^3 \approx \frac{1}{10} \frac{P_{\text{th,LWR}}}{V_{\text{Fuel}}}$$

Um trotz der niedrigen Leistungsdichte „realistische“ Plutonium-Umsatzraten zu erzielen, wird eine thermische Gesamtleistung des Referenz-Systems in der Größenordnung eines kommerziellen Leistungsreaktors festgelegt; hier:

$$P_{\text{th,Burner}} = 1000 \text{ MW}_{\text{th}} \approx \frac{1}{3} P_{\text{th,LWR}}$$

Die Gesamtleistung des Systems spielt bei der Berechnung des Abbrandes in der Einheitszelle (Brennstab im unendlichen Gitter) keine Rolle; dort ist nur die Leistungsdichte von Bedeutung. Erst bei Betrachtung des endlichen Systems geht diese Größe ein, da die installierte thermische Gesamtleistung des Reaktors — bzw. der Reaktoren — letztlich den absoluten Umsatz des Plutoniums pro Zeit festlegt.

3.1.4 Temperaturen und Sicherheitsaspekte

Aus der oben diskutierten Leistungsdichte resultieren vergleichsweise niedrige Temperaturen für den Brennstoff und das Kühlmittel.⁴ Für einen metallischen Brennstoff werden max. 130 °C im Zentrum des Brennstabs angegeben, was zu einer Kühlmitteltemperatur von 50–70 °C führt.⁵ Im Vergleich dazu herrschen im LWR max. 1800 °C im Brennstab und 280–310 °C im Kühlmittel. Generell gilt demnach, daß wenig Energie im Kühlmittel und in den Strukturmaterialien gespeichert ist, was für praktisch alle denkbaren Störfälle von Vorteil ist. Ausgehend von diesen moderaten Betriebsbedingungen lassen sich zudem weitere Größen abschätzen, die für die Sicherheit des Gesamtsystems von Bedeutung sind.

³Dieser Wert wird auch den Abbrandrechnungen des Kapitels 6 zugrunde gelegt.

⁴Alle hier angegebenen Zahlen beruhen auf Abschätzungen, die in der INEL-Studie gemacht werden. Vgl. a. a. O. insbesondere die Tabellen E-1 (p. E-5) und E-3 (p. E-9).

⁵Für einen oxidischen Brennstoff sind aufgrund der reduzierten Wärmeleitfähigkeit höhere Temperaturen im Zentrum des Brennstabs zu erwarten (max. 400 °C). Dies ist jedoch den erheblich höheren Schmelztemperaturen der Oxide gegenüberzustellen (vgl. Tabelle 5.4).

- Der Wasserdruck liegt etwa $75\times$ unter dem Wert eines typischen Druckwasserreaktors.
- Für den Störfall *Kühlmittelverlust bei voller Leistung* ist die Zeitspanne bis zum Erreichen der Brennstoff-Schmelztemperatur T_{MP} von wesentlicher Bedeutung. Hier ergeben sich Werte, die um einen Faktor 2 (metallischer Brennstoff) bzw. 14 (oxidischer Brennstoff) größer sind als für einen Druckwasserreaktor.
- Die Wärmezufuhr, die notwendig ist, um die Temperatur von der Betriebstemperatur bis auf T_{MP} des Brennstoffs ansteigen zu lassen, ist für einen oxidischen Brennstoff ca. $6\times$ größer als für einen metallischen.

Anmerkung: Die hier genannten Parameter des Pu-Burners stehen den ökonomischen Anforderungen an einen kommerziellen Reaktor diametral gegenüber: dort sind sowohl möglichst hohe Kühlmitteltemperaturen als auch möglichst hohe Leistungsdichten notwendig, um die Wirtschaftlichkeit des Gesamtsystems zu gewährleisten [Zie 84]: die erste Bedingung erhöht den Wirkungsgrad, letztere reduziert insbesondere das Kernvolumen und somit die Anlagengröße.

3.2 Einschränkungen und Ergebnisse der INEL-Studie

Die Abbrandberechnungen des INEL wurden mit dem ORIGEN2 Programmsystem durchgeführt, das auf Wirkungsquerschnittsbibliotheken zugreift, die für verschiedene *existierende* Reaktortypen entwickelt wurden. Die Autoren weisen darauf hin, daß geeignete abbrandabhängige Wirkungsquerschnitte notwendig wären, deren Bereitstellung allerdings einen erheblichen Entwicklungsaufwand bedeutet. Existierende Bibliotheken sind für die hier interessierenden hohen Plutoniumabbrände nicht geeignet.⁶ Um dennoch Abschätzungen machen zu können, werden Resultate ausgewertet, die sich auf Querschnittsbibliotheken verschiedener Reaktortypen⁷ stützen, und Unterschiede diskutiert.

Die Präzision dieser Berechnungen ist systematisch begrenzt, da vorausgesetzt werden muß, daß die spektralen Eigenschaften des Pu-Burners identisch zu dem Reaktor sind, dessen Querschnittsbibliothek zugrunde gelegt wird. Wie in Abb. 3.1 deutlich wird, weicht das Neutronenspektrum des Pu-Burners im thermischen Bereich allerdings erheblich von einem typischen Reaktorspektrum ab: aus den hohen thermischen Absorptionsquerschnitten des Pu-239 resultiert ein wesentlich härteres Spektrum, da thermalisierte Neutronen frühzeitig eingefangen werden. In der Regel sind daher die Eingruppen-Querschnitte jener Prozesse, die durch das thermische Spektrum dominiert werden, erheblich niedriger als die Werte, die sich für Brennstoffe auf Uran-Basis ergeben.⁸

⁶Vgl. a. a. O. p. A-4.

⁷Folgende Reaktortypen werden herangezogen: BWR (Siedewasserreaktor), PWR (Druckwasserreaktor), CANDU (Canadian Deuterium-Uranium Reactor), LMR (Liquid Metal Reactor) und HTGR (High-Temperature Gas-Cooled Reactor). Keiner dieser Reaktortypen kann als besonders (un)geeignet in bezug auf den Vergleich mit dem Pu-Burner angesehen werden.

⁸Konstante Spalt-Reaktionsraten werden durch ein Anheben des totalen Neutronenflusses erzielt — allerdings verschieben sich die Verhältnisse der Querschnitte untereinander, so daß sich insgesamt ein anderes Abbrandverhalten für einen Brennstoff auf Plutonium-Basis ergibt. Zur Diskussion dieses Effekts

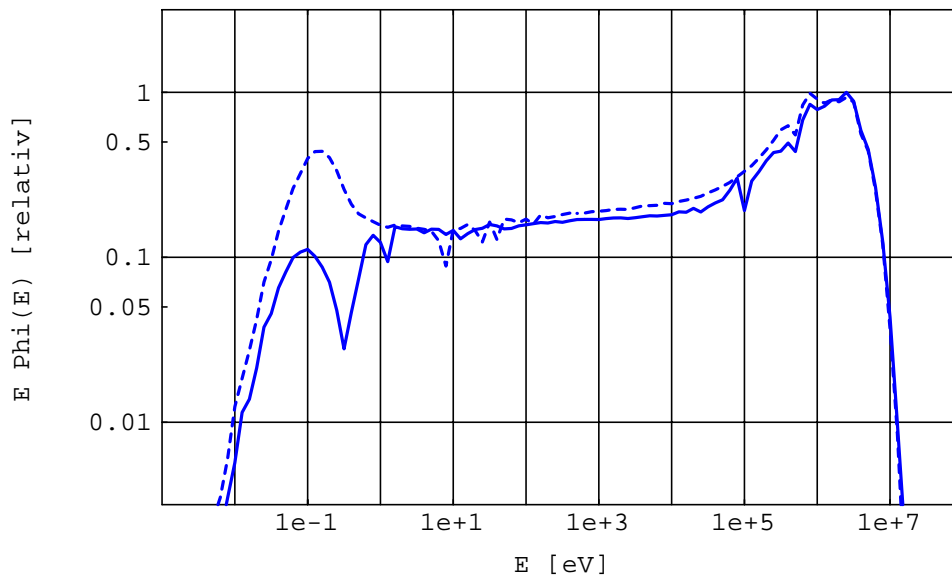


Abbildung 3.1: Neutronenspektrum (in Lethargiedarstellung $E \cdot \phi(E)$) eines konventionellen Leichtwasserreaktors bei Betrieb mit schwach angereichertem Uran (LEU) (- -) und des Pu-Burners mit Brennstoff 015E125 (—). Die Brennstoffe des Pu-Burners werden in Kapitel 5 definiert. Monte Carlo Simulation(en). $1e \pm x = 10^{\pm x}$.

Die Ergebnisse der INEL-Studie — so die Autoren selbst — sollen daher nicht so ausgelegt werden, als würden sie Isotopenvektoren und Umsatzraten für ein konkretes Pu-Burner-Design liefern:⁹ Isotopenvektoren werden daher gar nicht, Umsatzraten nur grob abgeschätzt. Der erreichbare totale Plutonium-Umsatz wird bei einer optimalen Wahl des Brennstoffs ohne Wiederaufarbeitung (engl.: *once-through-cycle*) mit 70–95 % angegeben. Drei bis sechs Pu-Burner könnten den größten Teil der betrachteten 50 Tonnen Waffenplutonium in 30 bis 40 Jahren eliminieren.¹⁰

vgl. [Pis 98].

⁹Vgl. a. a. O. p. A-17.

¹⁰Vgl. a. a. O. p. 5. und p. 14.

3.3 Beurteilung des Konzepts

Die vorläufigen Ergebnisse der INEL-Studie deuten an, daß alle wesentlichen Forderungen der NAS erfüllt werden; darunter insbesondere die effiziente Eliminierung des Plutoniums, hohe Sicherheitsstandards sowie — durch den Rückgriff auf etablierte Technologien — minimierte Entwicklungsrisiken. Das vorliegende Konzept wird jedoch aus ökonomischen Gründen abgelehnt: der Wert des WPu als Energieträger wird betont und der Einsatz in kommerziellen Reaktoren empfohlen.¹¹ Auch die NAS wird das Konzept aus verschiedenen Gründen letztlich verwerfen:¹²

- *Design, Entwicklung und Lizenzierung eines solchen Reaktors würden viele Jahre in Anspruch nehmen.* Dies ist richtig; allerdings ist zu beachten, daß auch für die Entwicklung und Durchführung der Immobilisierungs- oder MOX-Option mehrere Dekaden notwendig sind. Es ist ohnehin ausgeschlossen oder zumindest unwahrscheinlich, daß bereits die erste zu entsorgende WPu-Generation einem Pu-Burner zugeführt werden kann. Vielmehr wäre die Verfügbarkeit eines ausgereiften Pu-Burner-Konzepts — auch zu einem späteren Zeitpunkt — im Kontext der Kernwaffenfreien Welt von ausgezeichneter Bedeutung.
- *Verlorene Einkünfte bei Vergleich mit kommerziellen Reaktoren; nicht wettbewerbsfähig mit MOX.* Dieses Argument ist nur dann gültig, falls man — wie es die NAS tut — davon ausgeht, daß ein Pu-Burner das WPu ausschließlich in den *Spent Fuel Standard* überführt. Dabei wird ignoriert, daß das absolute Plutonium-Inventar signifikant reduziert wird. Basierend auf ökonomischen Argumenten ist daher ein Vergleich mit einem MOX-betriebenen Reaktor nicht sinnvoll.

Die NAS hält an anderer Stelle fest, daß die Ausbeutung des Energieinhalts des WPu's kein zentrales Kriterium bei der Beurteilung von Entsorgungsoptionen sein darf: zum einen kann Plutonium auf dem heutigen Markt nicht mit Uran konkurrieren; zum anderen ist der ökonomische Wert des WPu's — wie hoch er heute oder in der Zukunft auch sein mag — klein im Vergleich zu den vom WPu ausgehenden Sicherheitsrisiken.¹³ Schließlich sind die Kosten zur Entsorgung bzw. Eliminierung des WPu's mit den kernwaffen-bezogenen Ausgaben insgesamt zu vergleichen (vgl. Tabelle 3.1 zu den US-Zahlen); auch eine kosten-intensive WPu-Beseitigungskampagne fällt auf dieser Kostenskala nur unwesentlich ins Gewicht.

Wie bereits angedeutet, gewinnt das Konzept an Bedeutung, falls man es vor dem Hintergrund einer möglichen Kernwaffenfreien Welt oder als Ausgangspunkt für einen non-proliferationspolitisch sinnvolleren Umgang mit kernwaffenfähigen Materialien betrachtet. Daher wird es hier erneut aufgegriffen und die vorläufigen, aber vielversprechenden, Ergebnisse präzisiert. Insbesondere soll dabei überprüft werden, inwiefern eher die 70 % oder

¹¹ „[...] The general consensus among the report authors is that plutonium is a valuable resource for electricity generation. Furthermore, it is hoped that this plutonium is used in existing commercial reactors to benefit society.“ (a. a. O. p. 2).

¹² Vgl. [NAS 95], pp. 195–196.

¹³ Vgl. [NAS 94], p. 20. Sicherheit hier *security* statt *safety*.

die 95 % Angabe eine realistische Obergrenze des erreichbaren Umsatzes darstellt. Allgemein sollen umfassende Zahlen in bezug auf das resultierende Aktinideninventar gewonnen werden. Dazu werden konsistente Zellabbrandrechnungen basierend auf geeigneten abbrandabhängigen Wirkungsquerschnitten durchgeführt (Kapitel 6).

	Gesamtkosten:	3900 Milliarden US\$
Herstellung der Kernwaffen (inkl. Produktion des WPu's und HEU's):		378 Milliarden US\$
Kosten zur Reinigung des nuklear-militärischen Komplexes:		200–500 Milliarden US\$

Tabelle 3.1: Kernwaffen-bezogene Ausgaben der USA von 1940–1995 (Auszug). Reinigungskosten enthalten zukünftig anfallende Ausgaben für bereits verursachte Schäden [BAS 95].

In den Kapiteln 4 und 5 werden zunächst allgemeine Probleme bei der Bestimmung von spektrum-gemittelten Wirkungsquerschnitten und neutronenphysikalische Eigenschaften von Plutonium in bezug auf einen Einsatz in Reaktoren diskutiert; ebenso werden verschiedene modellhafte Brennstoff-Typen vorgestellt.

Kapitel 4

Wirkungsquerschnitte und die Behandlung der Resonanzen

ABBRANDRECHNUNGEN für einen konkreten Brennstoff können nur dann in konsistenter Weise durchgeführt werden, wenn geeignete spektrum-gemittelte Wirkungsquerschnitte zur Verfügung stehen. Neben der Einführung einiger grundlegender Begriffe der Neutronenphysik soll im folgenden gezeigt werden, weshalb die Bestimmung solcher spektrum-gemittelter Querschnitte ein nicht-triviales und aufwendiges Problem darstellt. Ursache hierfür ist insbesondere die Resonanzstruktur der mikroskopischen Querschnitte: diese Struktur führt auf den Effekt der Resonanzselbstabschirmung und bewirkt ferner — über die Doppler-Verbreiterung der Resonanzen — eine Temperaturabhängigkeit der spektrum-gemittelten Querschnitte.

4.1 Grundlegende Größen und Begriffe

4.1.1 Mikro- und makroskopischer Wirkungsquerschnitt

Unterschieden werden der mikroskopische Wirkungsquerschnitt $\sigma(E)$, der die für eine Wechselwirkung wirksame Fläche eines einzelnen Atomkerns mit einem Neutron beschreibt und der makroskopische Wirkungsquerschnitt $\Sigma(\vec{r}, E)$:¹ sei $N(\vec{r})$ die Dichte der Targetkerne, dann stellt

$$\Sigma(\vec{r}, E) = N(\vec{r}) \sigma(E) \tag{4.1}$$

die gesamte wirksame Stoßfläche pro Einheitsvolumen des Materials dar.

¹Wirkungsquerschnitte sind (selbstverständlich) für beliebige wechselwirkende Teilchen definiert. Im folgenden sind jedoch nur Reaktionen zwischen Neutronen und Atomkernen von Bedeutung.

Man betrachte nun einen Strahl monoenergetischer Neutronen der Teilchendichte $n(x)$ der senkrecht auf ein halbbunendlich-ausgedehntes homogenes Medium trifft (keine Ortsabhängigkeit des makroskopischen Wirkungsquerschnitts). Die Art der Wechselwirkung mit dem Medium sei zunächst irrelevant; sie führe jedoch in jedem Fall zum Verlust des Neutrons. Es gilt dann:

$$\frac{dn}{dx} = -n N \sigma = -n \Sigma \quad \text{und} \quad n(x) = n_0 \exp[-\Sigma x] \quad (4.2)$$

dn/dx in (4.2) entspricht der Änderung der Neutronendichte; somit kann Σ auch als die mittlere Anzahl der Kollisionen pro Neutron und Einheitslänge (des zurückgelegten Weges) interpretiert werden. Weiterhin ergibt sich die mittlere freie Weglänge für ein Neutron zu

$$\langle x \rangle = \left(\int_0^\infty x \underbrace{n_0 \exp[-\Sigma x]}_{n(x)} dx \right) / \left(\int_0^\infty \underbrace{n_0 \exp[-\Sigma x]}_{n(x)} dx \right) = \dots = \frac{1}{\Sigma} \equiv \lambda.$$

Generell werden mikro- und makroskopische Querschnitte für die verschiedenen Arten der Wechselwirkung von Neutronen mit Atomkernen unterschieden: elastische und inelastische Streuung, Einfang (mit anschließender Emission eines Photons), Spaltung, etc. Weiterhin gilt für den totalen makroskopischen Querschnitt eines Mediums, das sich aus k verschiedenen Nukliden zusammensetzt $\Sigma_{\text{tot}} = \Sigma_{\text{tot},1} + \Sigma_{\text{tot},2} + \dots + \Sigma_{\text{tot},k}$.

4.1.2 Reaktionsrate und Neutronenfluß

Um nun Aussagen über die Reaktionen pro Zeiteinheit zu machen, betrachte man Neutronen der Energie E , die sich in einem Medium mit dem makroskopischen Wirkungsquerschnitt $\Sigma_{\text{tot}}(\vec{r}, E)$ bewegen. Da jedes Neutron in der Zeit dt den Weg $v(E) dt$ zurücklegt, ergibt sich für die Anzahl der Reaktionen im Volumen dV der Ausdruck:

$$\Sigma_{\text{tot}}(\vec{r}, E) n(\vec{r}, E) v(E) dt dV$$

Allgemein wird die Größe

$$F(\vec{r}, E) \equiv \Sigma_{\text{tot}}(\vec{r}, E) n(\vec{r}, E) v(E) \quad (4.3)$$

als *Reaktionsrate* oder auch *Stoßdichte* eingeführt und entspricht der Anzahl der Kollisionen pro Volumen- und Zeiteinheit. Dabei spielt das auftauchende Produkt $n(\vec{r}, E) v(E)$ in der Physik eine besondere Rolle; es wird als *Neutronenfluß* definiert:

$$\phi(\vec{r}, E) \equiv n(\vec{r}, E) v(E) = \frac{F(\vec{r}, E)}{\Sigma_{\text{tot}}(\vec{r}, E)} \quad (4.4)$$

Die Größe $\phi(\vec{r}, E) dE dV$ entspricht der im Volumen dV pro Zeiteinheit insgesamt zurückgelegten Weglängen aller Neutronen einer Energie zwischen E und $E + dE$. Der Fluß ϕ bezieht sich nicht auf eine bestimmte Einheitsfläche, die von den Neutronen passiert wird; tatsächlich ist die Angabe einer solchen Fläche bezüglich ϕ nicht sinnvoll.

4.1.3 Effektiver Wirkungsquerschnitt

Um absolute Reaktionsraten für den Prozeß x eines Nuklids i , welches polyenergetischen Neutronen ausgesetzt ist, zu bestimmen, sind Integrale der Form

$$\int_0^\infty dE \sigma_x^i(E) \phi(E) \quad (4.5)$$

zu lösen. In der Praxis ist es dazu zweckmäßig, kleinere Energieintervalle, sog. Energiegruppen, mit $0 < E_1 < E_2 < \dots < E_g < E_{g+1} < \dots$ einzuführen. Dadurch können die gruppenbezogenen Größen

$$\phi_g \equiv \int_{E_g}^{E_{g+1}} dE \phi(E) \quad \text{und} \quad \sigma_{x,g}^i \phi_g \equiv \int_{E_g}^{E_{g+1}} dE \sigma_x^i(E) \phi(E) \quad (4.6)$$

definiert werden; anschließend ergibt sich durch Summation über alle Gruppen der zur Reaktionsrate proportionale gesuchte Ausgangsausdruck.

$$\int_0^\infty dE \sigma_x^i(E) \phi(E) = \sum_g \sigma_{x,g}^i \phi_g \quad (4.7)$$

Darin ist $\sigma_{x,g}^i$ der *effektive Wirkungsquerschnitt* oder *Gruppenquerschnitt* des Nuklids i für den Prozeß x in der Gruppe g , der nach (4.6) durch

$$\sigma_{x,g}^i = \frac{\int_{E_g}^{E_{g+1}} dE \sigma_x^i(E) \phi(E)}{\int_{E_g}^{E_{g+1}} dE \phi(E)} \quad (4.8)$$

gegeben ist. Die prinzipielle Schwierigkeit bei der Berechnung der effektiven Wirkungsquerschnitte besteht darin, daß die Funktion $\phi(E)$ zunächst nicht bekannt ist. Zur Lösung der Differentialgleichung, die $\phi(E)$ in allgemeiner Form beschreibt (Boltzmann-Gleichung), müssen bereits Reaktionsraten, also auch spektrum-gemittelte Gruppenquerschnitte vom Typ (4.8), bekannt sein; die beiden scheinbar unabhängigen Probleme, d. h. die Bestimmung der $\sigma_{x,g}^i$ und die Bestimmung des $\phi(E)$, sind auf diese Weise gekoppelt. Weiterhin ist bei der Berechnung der Gruppenquerschnitte eine angemessene Behandlung der Resonanzen notwendig, wobei insbesondere der Effekt der Resonanzselbstabschirmung berücksichtigt werden muß.

4.2 Resonanzen

Zur Beschreibung des Verlaufs der mikroskopischen Wirkungsquerschnitte werden drei Bereiche unterschieden.² Im *thermischen Energiebereich* bis 0.5 eV folgt der Wirkungsquerschnitt im wesentlichen einem $1/v$ -Verlauf; er ist dort also — klassisch formuliert — proportional zur Dauer des Aufenthalts des Neutrons in der Nähe des Kerns. Da der Abstand der Kernniveaux bei etwa 8 MeV über dem Grundzustand etwa 1–10 eV beträgt³ und die Niveaubreiten bei diesen Energien vergleichsweise klein sind (ca. 20 meV), werden für Neutronenenergien bis zu einigen hundert keV Resonanzen der Wirkungsquerschnitte beobachtet. Das Energieintervall zwischen 0.5 eV und 1 MeV wird daher als *Resonanzbereich* eingeführt. Im sich anschließenden *schnellen Energiebereich* bilden sich keine Resonanzen mehr aus, da die Resonanzbreiten groß gegen den Abstand der Kernniveaux werden. Daher ergibt sich — abgesehen von Schwellenenergien für hochenergetische Prozesse — ein schwach energieabhängiger Verlauf des Querschnitts (vgl. Abb. 4.1).

Bei der Berechnung von spektrum-gemittelten Querschnitten ist insbesondere der Resonanzbereich bei einigen Nukliden von besonderer Bedeutung, da der Beitrag einer Resonanz zum gemittelten Querschnitt schwierig zu bestimmen ist; weiterhin sind die Resonanzen über den Doppler-Effekt für die Temperaturabhängigkeit der mikroskopischen Querschnitte verantwortlich.

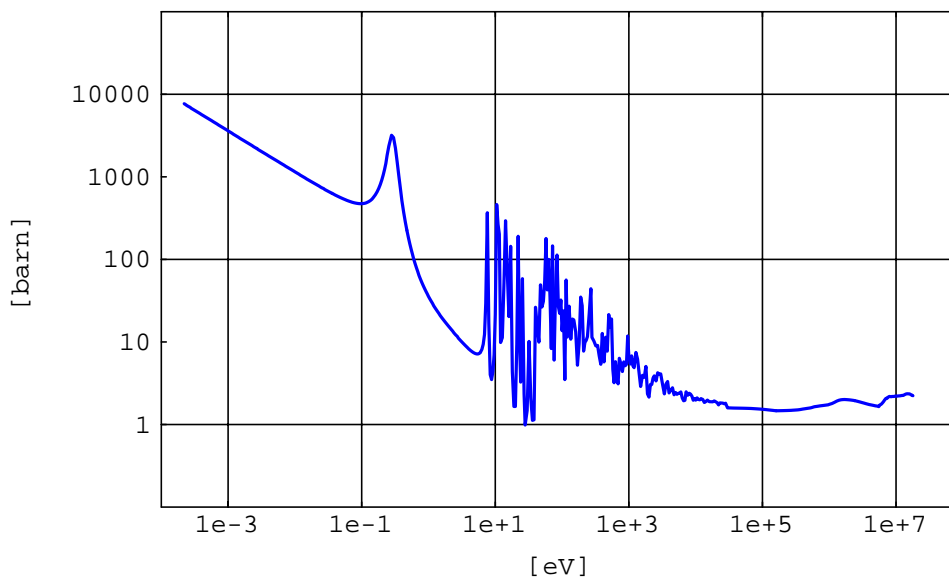


Abbildung 4.1: Mikroskopischer Wirkungsquerschnitt für Spaltung des Pu-239. Datenbasis: JEF-2.2 aus [JEF 94]. $1e^{\pm x} = 10^{\pm x}$.

²Die genaue Festlegung der Intervallgrenzen ist bis zu einem gewissen Grad willkürlich.

³Dies gilt für mittlere bis hohe Massenzahlen und entspricht der Anregungsenergie des Compoundkerns, die durch die Bindung des Neutrons frei wird.

4.2.1 Selbstabschirmung

Bei gegebenem totalen Neutronenfluß sinkt die Reaktionsrate pro Atom bei erhöhter Konzentration des Materials, da der Fluß im Resonanzbereich einbricht. Dieser Effekt wird *Resonanzselbstabschirmung* genannt. Demnach ist die Reaktionsrate eines bestimmten Prozesses *nicht* proportional zur lokalen Konzentration des betrachteten Nuklids.

Es werden die *energetische* und die *räumliche* Selbstabschirmung unterschieden. Die energetische Selbstabschirmung entspricht dem *lokalen* Effekt, der in Abb. 4.2 dargestellt ist (Einbruch des Flusses im Resonanzbereich); daraus resultiert jedoch auch ein räumlicher Effekt, da in der Regel bestimmte Bereiche einer Geometrie durch das umgebende Material abgeschirmt werden.

4.2.2 Doppler-Verbreiterung der Resonanzen

Das Argument des Wirkungsquerschnitts $\sigma(E)$ bezieht sich auf die Energie des Neutrons im Laborsystem, setzt also einen ruhenden Targetkern voraus. Entscheidend für die Wechselwirkung ist jedoch die Relativenergie E' zwischen Neutron und Kern. Diese Differenz $\Delta E = E' - E$ ist zwar klein — und in der Regel zu vernachlässigen — in der Nähe einer Resonanz allerdings von wesentlicher Bedeutung: die Reaktionswahrscheinlichkeit eines Neutrons der Energie $E \approx E_{\text{Res}}$ wird hier durch die thermische Bewegung des Targetkerns erheblich beeinflusst (Doppler-Effekt).

Der Wirkungsquerschnitt eines Neutrons einer kinetischen Energie E' relativ zum Kern kann im Bereich einer Resonanz zunächst durch die Breit-Wigner-Formel angenähert dargestellt werden.

$$\sigma(E') = \frac{\sigma_{\text{Res}}}{1 + [(E' - E_{\text{Res}})/(\Delta/2)]^2} \quad (4.9)$$

Darin ist σ_{Res} der maximale Wirkungsquerschnitt bei der Resonanzenergie E_{Res} und Δ , die totale Breite der Resonanz bei $\sigma_{\text{Res}}/2$ (*total width @ half maximum*). Um nun den Beitrag des Doppler-Effekts abschätzen zu können, muß zunächst ein Bezug zwischen der relativen Energie E' des Neutrons zum Kern und der Energie E des Neutrons im Laborsystem hergestellt werden. Wird eine Maxwell'sche Geschwindigkeitsverteilung für den Targetkern vorausgesetzt, so kann bei vorgegebener Temperatur T eine entsprechende Wahrscheinlichkeitsverteilung $P(E', E)$ angegeben werden.

$$P(E', E) dE' \sim \exp \left[- \frac{(E' - E)^2}{\Delta^2} \right] dE' \quad \text{mit} \quad \Delta \sim \sqrt{T E}$$

Der durch den Doppler-Effekt korrigierte Querschnitt ergibt sich durch Auswertung von

$$\sigma_{\Delta}(E) = \int_0^{\infty} \sigma(E') P(E', E) dE',$$

wobei $\sigma(E')$ durch (4.9) ersetzt werden kann. Über $P(E', E)$ ist die Breite der Resonanz somit temperaturabhängig. Die Fläche unter der Resonanz wird durch den Doppler-Effekt nicht beeinflusst, woraus auf eine Konstanz der Reaktionsraten geschlossen werden könnte. Bei Berücksichtigung der Resonanzselbstabschirmung ergibt sich jedoch eine andere Situation. Der Einbruch des Spektrums um die Resonanzenergie ist weniger stark ausgeprägt, so daß sich auch der Abschirmungseffekt reduziert (Abb. 4.2). Der Doppler-Effekt führt zu einem Ansteigen der Reaktionsraten, da mehr Neutronen für eine Reaktion innerhalb der Resonanz zur Verfügung stehen.⁴

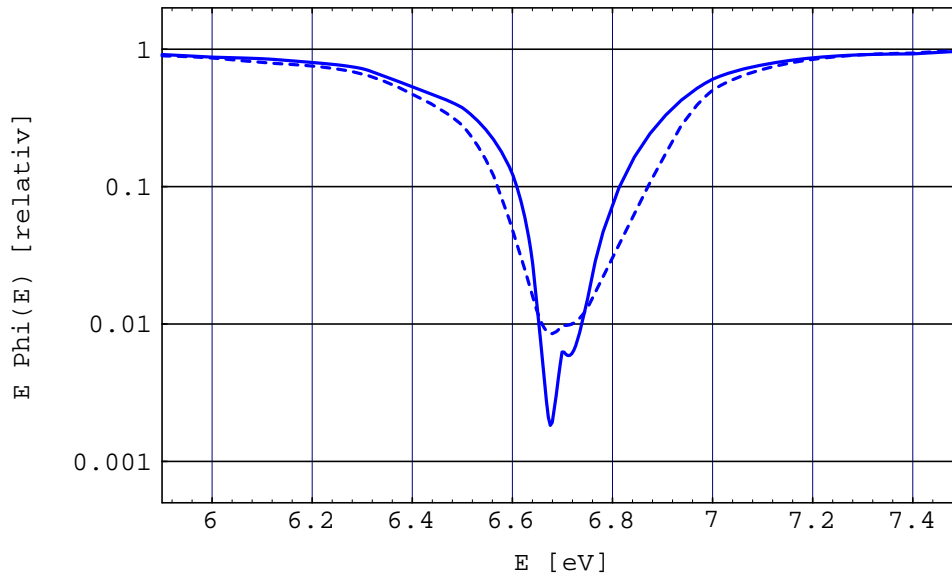


Abbildung 4.2: Auswirkung der U-238 Resonanz bei 6.7eV auf das Neutronenspektrum eines LWR bei 300 K (—) und bei 900 K (- -) im Brennstoff. MCNP Simulation(en).

4.3 Berechnung der Gruppenquerschnitte in homogenen Medien

Im folgenden soll ein einfaches Verfahren vorgestellt werden, das es ermöglicht, Gruppenquerschnitte vom Typ (4.8) zu berechnen. Dabei wird durch geeignete Näherungen der Effekt der Resonanzselbstabschirmung berücksichtigt. Die Überlegungen sind in dieser Form zunächst nur für unendlich ausgedehnte homogene Medien gültig, d. h. für Medien, deren Ausdehnung wesentlich größer als die mittlere freie Weglänge der Neutronen ist.

⁴Die mikroskopischen Wirkungsquerschnitte sind aufgrund des Doppler-Effekts temperaturabhängig. Da in allen folgenden Überlegungen und Rechnungen die Temperatur jedoch als konstant angenommen werden kann, wird diese Abhängigkeit nicht explizit mitgeführt.

4.3.1 Die Näherungsmethode nach Bondarenko

Zur Auswertung der Integrale, die in der Definition des effektiven Gruppenquerschnitts (4.8) auftreten, können die mikroskopischen Wirkungsquerschnitte und insbesondere auch die Resonanzparameter als bekannt vorausgesetzt werden; nicht jedoch die mikroskopische Struktur des Flußverlaufes. Daher wird $\phi(E)$ gemäß (4.4) durch

$$\phi(E) = \frac{F(E)}{\Sigma_{\text{tot}}(E)} \quad \text{mit} \quad \Sigma_{\text{tot}}(E) = \sum_j N_j \sigma_{\text{tot}}^j(E)$$

ersetzt.

$$\sigma_{x,g}^i = \left(\int_{E_g}^{E_{g+1}} dE \frac{F(E) \sigma_x^i(E)}{\Sigma_{\text{tot}}(E)} \right) / \left(\int_{E_g}^{E_{g+1}} dE \frac{F(E)}{\Sigma_{\text{tot}}(E)} \right) \quad (4.10)$$

Die wesentliche Annahme zur Behandlung der Resonanzen besteht nun darin, die Unabhängigkeit der Stoßdichte $F(E)$ von der Existenz einer scharfen Resonanz eines Nuklids i innerhalb einer Gruppe vorauszusetzen (engl.: *narrow resonance approximation*). Diese Näherung ist gerechtfertigt, falls die Breite der Resonanz klein gegenüber dem mittleren Energieverlust eines Neutrons bei Streuung am Moderator ist; eine einzige Streuung reicht dann aus, um die Resonanz zu überbrücken. Die Stoßdichte bei der Resonanzenergie E wird dann nur durch Neutronen bestimmt, die aus einem Energieintervall eingestreut werden, das noch nicht durch die Resonanz selbst beeinflußt wird. $F(E)$ und $F_R(E)$ seien die Stoßdichten mit bzw. ohne Resonanz und werden im folgenden nicht unterschieden, da nach Voraussetzung

$$F(E) \approx F_R(E) \quad (4.11)$$

gilt. Der totale makroskopische Wirkungsquerschnitt $\Sigma_{\text{tot}}(E)$ in (4.10) kann nun in eine Form gebracht werden, die sich für die weiteren Überlegungen als günstig erweist.

$$\Sigma_{\text{tot}}(E) = N_i \sigma_{\text{tot}}^i(E) + \sum_{j \neq i} N_j \sigma_{\text{tot}}^j(E) = \frac{1}{N_i} \left(\sigma_{\text{tot}}^i(E) + \sigma_0(E) \right) \quad (4.12)$$

Darin ist

$$\sigma_0(E) = \frac{\sum_{j \neq i} N_j \sigma_{\text{tot}}^j(E)}{N_i} \quad (4.13)$$

der sog. *Hintergrundquerschnitt*, der den Beitrag aller von i verschiedenen Nuklide zum totalen makroskopischen Wirkungsquerschnitt pro Atom des Nuklids i beschreibt. Die Näherungsmethode nach Bondarenko vernachlässigt Feinstrukturen, indem σ_0 innerhalb jeder Energiegruppe als konstant angenommen wird [Bon 64].

$$\sigma_0 = \frac{\sum_{j \neq i} N_j \sigma_{\text{tot},g}^j}{N_i} \quad (4.14)$$

Diese Näherung ist in der Regel gerechtfertigt, da der Gruppenquerschnitt eines einzelnen Nuklids nur sehr schwach von der Summe der totalen Querschnitte aller anderen Nuklide abhängig ist. Die Methode wird ungenau oder versagt, falls Resonanzen verschiedener Nuklide innerhalb einer Gruppe zusammenfallen. Der Gruppenquerschnitt (4.10) kann mit (4.12) und (4.14) jetzt so formuliert werden, daß eine Auswertung mit deutlich reduziertem Aufwand möglich wird.

$$\sigma_{x,g}^i(\sigma_0) = \left(\int_{E_g}^{E_{g+1}} dE \frac{F(E) \sigma_x^i(E)}{\sigma_{\text{tot}}^i(E) + \sigma_0} \right) / \left(\int_{E_g}^{E_{g+1}} dE \frac{F(E)}{\sigma_{\text{tot}}^i(E) + \sigma_0} \right) \quad (4.15)$$

Für $\sigma_0 \rightarrow \infty$ läßt sich der *Gruppenquerschnitt unendlicher Verdünnung* angeben, der gerade dem Wert entspricht, der sich für das betreffende Nuklid ergäbe, wäre es selbst nicht anwesend ($N_i \rightarrow 0$): in diesem Fall liegt keine Resonanzselbstabschirmung vor. Es gilt $\sigma_0 \gg \sigma_{\text{tot}}^i(E)$, so daß $\sigma_{\text{tot}}^i(E)$ in (4.15) vernachlässigt und das konstante σ_0 jeweils vor das Integral gezogen und gekürzt werden kann.

$$\sigma_{x,g}^i(\infty) \equiv \sigma_{x,g}^i(\sigma_0 \rightarrow \infty) = \frac{\int_{E_g}^{E_{g+1}} dE F(E) \sigma_x^i(E)}{\int_{E_g}^{E_{g+1}} dE F(E)} \quad (4.16)$$

Über das Verhältnis zwischen (4.15) und (4.16) werden nun die Bondarenko- f -Faktoren (auch: *resonance-masking* oder *self-shielding* Koeffizienten) definiert.⁵

$$f_{x,g}^i(\sigma_0) \equiv \frac{\sigma_{x,g}^i(\sigma_0)}{\sigma_{x,g}^i(\infty)} \quad (\text{a}) \quad \text{bzw.} \quad \sigma_{x,g}^i(\sigma_0) = f_{x,g}^i(\sigma_0) \sigma_{x,g}^i(\infty) \quad (\text{b}) \quad (4.17)$$

In der Regel gilt

$$f_{x,g}^i(\sigma_0) \leq 1,$$

was den Effekt der Resonanzselbstabschirmung widerspiegelt. Theoretisch sind jedoch auch Werte $f_{x,g}^i(\sigma_0) > 1$ möglich, die bei asymmetrischem Verlauf einer Resonanz auftreten können.

Vorgehensweise: Um die Ausdrücke (4.15) und (4.16) zu evaluieren, wird $F(E)$ beispielsweise durch $F(E) \approx 1/E$, was dem typischen Stoßdichtenverlauf im Resonanzbereich entspricht, oder durch eine a posteriori bekannte Einhüllende des Flußspektrums ersetzt. Berechnet man nun $\sigma_{x,g}^i(\sigma_0)$ und $\sigma_{x,g}^i(\infty)$ für einige wenige σ_0 , so lassen sich mit (4.17; a) die entsprechenden $f_{x,g}^i(\sigma_0)$ gewinnen. Der Clou der Bondarenko-Methode besteht darin, daß

⁵Die f -Faktoren können allgemein auch temperaturabhängig eingeführt werden.

— aufgrund von (4.14) — nicht mehr die präzise Kenntnis der konkreten Nuklidzusammensetzung notwendig ist, sondern allein der resultierende Hintergrundquerschnitt σ_0 in die Rechnung eingeht. Dies erlaubt eine „allgemeingültige“ Tabellierung der f -Faktoren. Durch geeignete Interpolation dieser f -Faktoren lassen sich dann für beliebige Hintergrundquerschnitte σ_0 korrespondierende f -Faktoren angeben, so daß schließlich über (4.17; b) der korrigierte Gruppenquerschnitt bestimmt werden kann. Ein niedriger Wert von σ_0 entspricht dabei einer hohen Konzentration des Nuklids und *kann* zu einer starken Resonanzselbstabschirmung bzw. zu einem kleinen f -Faktor führen.

Konsistente Berechnung von σ_0 : Fallen zwei oder mehrere Resonanzen verschiedener Nuklide in einer Gruppe zusammen, so ist die Bestimmung des Hintergrundquerschnitts σ_0 nicht mehr eindeutig; man spricht dann von σ -Ambiguität. Durch ein Iterationsverfahren kann diese Situation jedoch ebenso (annähernd) konsistent beschrieben werden:

$$\sigma_0^{i(n)} = \frac{\sum_{j \neq i} N_j f^{j(n-1)} \sigma_{\text{tot},g}^j}{N_i} \quad \text{mit} \quad f^{j(0)} = 1 \quad (n = 1, 2, 3, \dots)$$

Darin stellt (n) die Ordnung der Iteration dar. Um das σ_0 für das Nuklid i in (n)-ter Ordnung zu berechnen, müssen die f -Faktoren *aller* anderen Nuklide in ($n - 1$)-ter Ordnung bekannt sein. Es gehen demnach nicht mehr die „vollständigen“ Querschnitte der übrigen Nuklide ein, da diese ebenso abgeschirmt sind. Die Konvergenz des Verfahrens ist in der Regel gewährleistet; aufgrund der systematischen Einschränkungen der Bondarenko-Methode muß der Grenzwert für $\sigma_0^{i(n)}$ jedoch nicht auf den f -Faktor führen, der letztlich den korrekten Gruppenquerschnitt bereitstellt [Seg 75].

4.3.2 Beispiel: Konsequenzen für Plutonium-Querschnitte

Um den Effekt der Resonanzselbstabschirmung zu verdeutlichen, werden beispielhaft die Auswirkungen auf die (n, γ)-Gruppenquerschnitte des Pu-240 und des Pu-242 untersucht: die Eingruppen-Querschnitte dieser Plutonium-Isotope werden erheblich durch dominante Resonanzen beeinflusst (Abb. 4.3 und 4.5). Die Rechnungen beziehen sich auf ein „fiktives“ Material bestehend aus einer homogenen Mischung aus Wasser und dem entsprechenden Plutonium-Isotop im Verhältnis 10:1.⁶ Die hier verwendeten 25-Energiegruppen entsprechen der von Bondarenko 1964 eingeführten Struktur und erlauben lediglich eine begrenzte Genauigkeit; zum Verständnis der prinzipiellen Konsequenzen ist diese einfache Gruppenstruktur jedoch völlig ausreichend.

Die Gruppenquerschnitte unendlicher Verdünnung $\sigma_{x,g}^i(\infty)$ ergeben sich — wie oben beschrieben — durch Auswertung von (4.16) mit Hilfe einer Einhüllenden des Flußspektrums, die durch eine Monte Carlo Simulation gewonnen wird;⁷ analog hierzu werden mit (4.15)

⁶Der Zusatz von Wasser ist an dieser Stelle zweckmäßig, um einen signifikanten Fluß im epithermischen und thermischen Bereich zu erhalten, so daß Abschirmungseffekte zum Tragen kommen.

⁷Alternativ hierzu kann, wie in Paragraph 4.3.1 angedeutet, $F(E) \approx 1/E$ angenähert werden; meist liegen die Gruppenquerschnitte unendlicher Verdünnung bereits tabelliert vor.

die $\sigma_{x,g}^i(\sigma_0)$ für verschiedene σ_0 bestimmt.⁸ In den Abbildungen 4.4 und 4.6 sind repräsentativ die f -Faktor-Tabellenwerte und die entsprechenden Interpolationen für jeweils drei Energiegruppen der (n, γ) -Gruppenquerschnitte des Pu-240 bzw. des Pu-242 dargestellt.

Für hohe Hintergrundquerschnitte, also bei Abwesenheit des betrachteten Nuklids, liegt zunächst keine Abschirmung vor ($f \approx 1$). In einem Übergangsbereich, der sich in der Regel über mehrere σ_0 -Dekaden erstreckt, greift der Effekt der Resonanzselbstabschirmung, so daß der f -Faktor sinkt. Allerdings existiert meist auch ein Sättigungsbereich: auch bei weiterer Erhöhung der Konzentration des Nuklids ändert sich der Gruppenquerschnitt nicht mehr; der Neutronenfluß bei der Resonanz ist zusammengebrochen, so daß der Gruppenquerschnitt durch das mittlere Niveau des Querschnitts in der Gruppe festgelegt wird.

Die Werte der Tabellen 4.1 und 4.2 wurden durch *kubische Spline-Interpolationen* ermittelt, wobei für $\sigma_0 \rightarrow \infty$ eine horizontale Tangente für $f(\sigma_0)$ gefordert wurde.⁹ Um Aussagen über die Präzision der Korrekturen machen zu können, sind in den Tabellen Referenzquerschnitte angegeben, die direkt über eine Monte Carlo Simulation ermittelt wurden.

Pu-240: Der (n, γ) -Eingruppenquerschnitt des Pu-240 wird durch die Resonanz bei 1.05 eV dominiert. Da diese Resonanz bei der gewählten Struktur zwischen zwei Energiegruppen fällt (Abb. 4.3), sind die in das Modell eingehenden Annahmen nicht mehr vollständig erfüllt; es ergeben sich erhebliche Ungenauigkeiten für die entsprechenden f -Faktoren: Tabelle 4.1, Gruppen 23 und 24.

Pu-242: In diesem Fall ist die Situation günstiger, da die dominante Resonanz des Pu-242 bei 2.55 eV innerhalb einer Gruppe isoliert ist (Abb. 4.5); die entsprechende Korrektur stimmt daher erwartungsgemäß mit dem Referenzwert der Monte Carlo Rechnung besser überein: vgl. Tabelle 4.2, Gruppe 22.

Die letztlich interessierenden (n, γ) -Eingruppenquerschnitte werden durch Einsatz der Bondarenko-Methode in beiden Fällen erheblich — um einen Faktor 4 bzw. 6 — gegenüber den Querschnitten unendlicher Verdünnung reduziert (vgl. 1G-Angaben in den Tabellen 4.1 und 4.2). Die Abweichungen zu den mit MCNP ermittelten Referenzwerten betragen aber immer noch ca. 12 % für das Pu-240 und ca. 6 % für das Pu-242.

Anmerkung: Da das Bondarenko-Verfahren in dieser Form nur für homogene, unendlich ausgedehnte Medien gültig ist, muß der Formalismus erweitert werden, um allgemeinere Situationen zu erfassen; beispielsweise können durch Korrektur des σ_0 -Wertes auch Effekte heterogener Strukturen berücksichtigt werden, indem der Einfluß des Moderators und der Strukturmaterialien abgeschätzt wird (Dancoff-Faktoren für regelmäßige Gitter).

Insgesamt wird also deutlich, daß im Rahmen von Abbrandrechnungen die zugrundeliegenden Wirkungsquerschnitte mit Sorgfalt bestimmt werden müssen. Dabei ist insbesondere zu beachten, daß das Neutronenspektrum eines Reaktors vom Abbrand des Brennstoffs abhängig ist, so daß auch die Gruppenquerschnitte zeitlich veränderlich sind. Die Bereitstellung von Wirkungquerschnitten erübrigt sich heute bei konventionellen Materialien und

⁸Stützstellen für den Hintergrundquerschnitt σ_0 werden i. d. R. dekadeweise gewählt; interpoliert und dargestellt wird daher $\log_{10}(\sigma_0)$.

⁹Eine optimale Interpolation solcher f -Faktor-Tabellenwerte ist in vielen Fällen schwierig. Einen Überblick der diesbezüglich vorgeschlagenen Interpolationsschemata gibt [Gre 81].

typischen Geometrien, da umfangreiche Querschnittsbibliotheken existieren, auf die zurückgegriffen werden kann. In der vorliegenden Arbeit wird dies jedoch nicht der Fall sein: hier werden Brennstoffe mit hohem Plutoniumgehalt in inerten Matrizen untersucht. Solche Brennstoffe waren in der Vergangenheit nicht von Interesse, so daß weder experimentelle Erfahrungswerte vorliegen noch Querschnittsbibliotheken existieren.

Aufgrund der systematischen Einschränkungen des oben vorgestellten Verfahrens — und ähnlicher Näherungsverfahren — wird in dieser Arbeit nicht die Bondarenko-Methode zur Bestimmung von Wirkungsquerschnitten gewählt: vielmehr werden alle Eingruppen-Querschnitte über umfangreiche Monte Carlo Rechnungen bestimmt, die die oben diskutierten Schwierigkeiten implizit umgehen.¹⁰ Dabei wird ein Programmsystem verwendet, das im Rahmen der Diplomarbeit von C. Pistner entwickelt und validiert wurde [Pis 98]; einige Anmerkungen zur Funktionsweise dieses Systems folgen in Paragraph 6.1.

¹⁰Da Monte Carlo Methoden als sehr zuverlässig gelten, werden sie sogar zur „Eichung“ analytischer Näherungsverfahren genutzt.

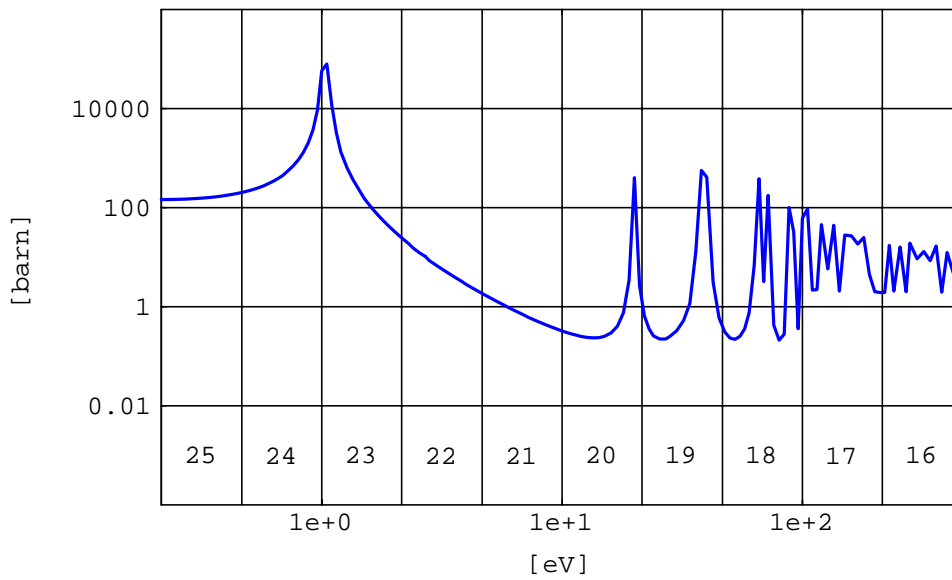


Abbildung 4.3: Verlauf des (n, γ) -Querschnitts des Pu-240 (Ausschnitt) und Bondarenko-Gruppen-Struktur. Datenbasis: JEF-2.2 aus [JEF 94]. $1e^{\pm x} = 10^{\pm x}$.

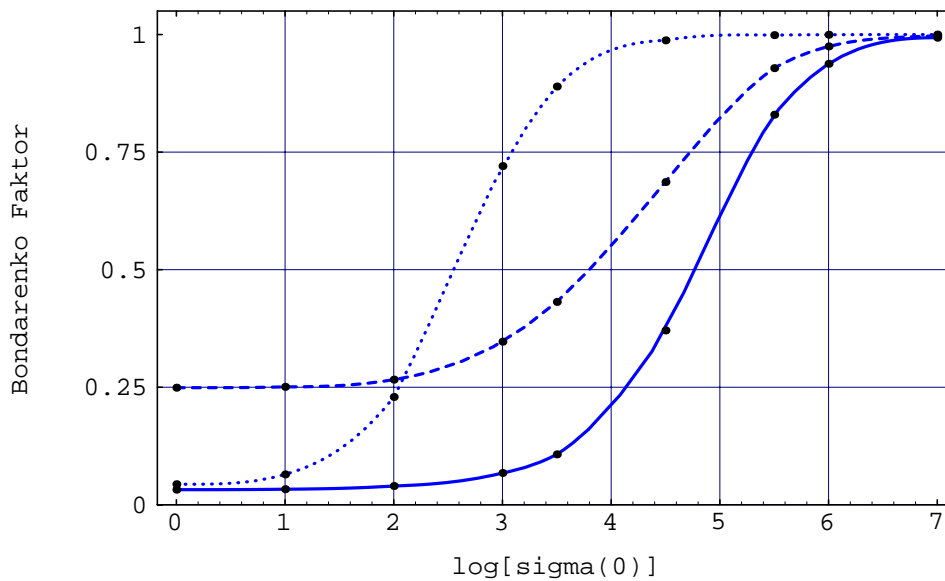


Abbildung 4.4: Verlauf der f -Faktoren für die (n, γ) -Gruppenquerschnitte des Pu-240: Gruppe 20 (\cdots), Gruppe 23 (—) und Gruppe 24 (- -). Material: Pu-240 homogen in Wasser; Pu:H₂O = 1:10. Temperatur: 300 K.

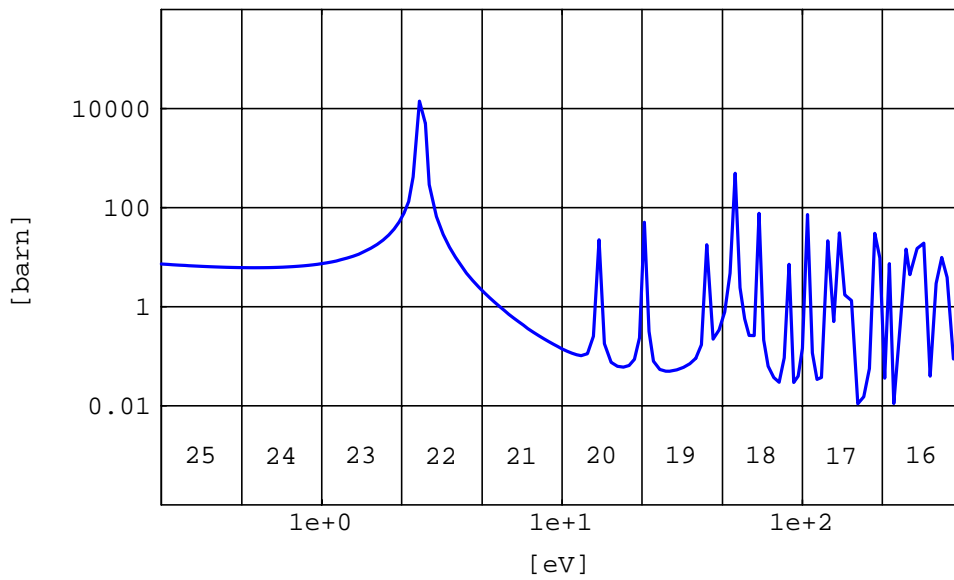


Abbildung 4.5: Verlauf des (n, γ) -Querschnitts des Pu-242 (Ausschnitt) und Bondarenko-Gruppen-Struktur. Datenbasis: JEF-2.2 aus [JEF 94]. $1e^{\pm x} = 10^{\pm x}$.

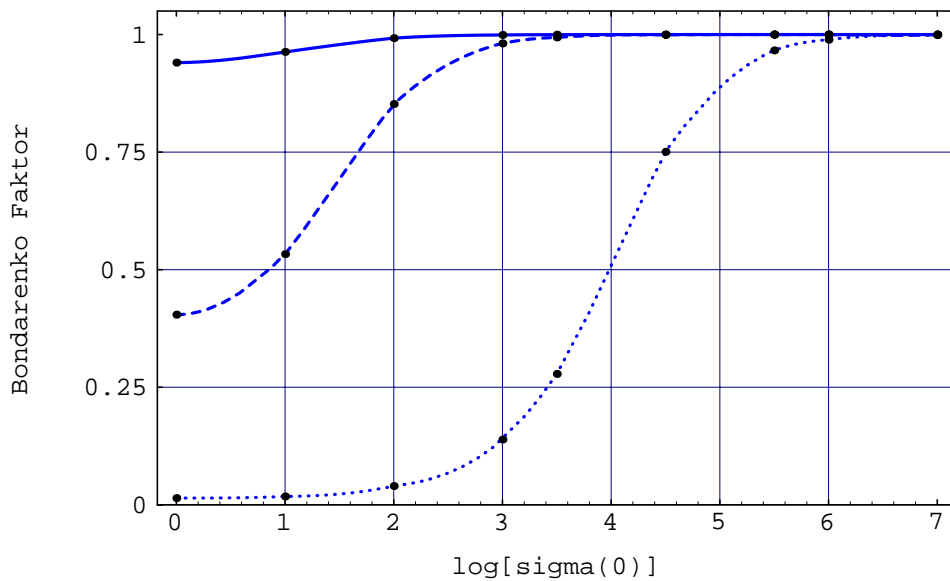


Abbildung 4.6: Verlauf der f -Faktoren für die (n, γ) -Gruppenquerschnitte des Pu-242: Gruppe 20 (- -), Gruppe 21 (—) und Gruppe 22 (· · ·). Material: Pu-242 homogen in Wasser; Pu:H₂O = 1:10. Temperatur: 300 K.

i	E_{\max} [eV]	σ_0 [b]	f -Faktor	$\sigma_{\gamma,g}(\infty)$ [b]	$\sigma_{\gamma,g}(\sigma_0)$ [b]	$\sigma_{\gamma,g}(\text{MCNP})$ [b]
	2.00e+7	32	1.000	< 0.01	< 0.01	< 0.01
1	1.05e+7	35	1.000	< 0.01	< 0.01	< 0.01
2	6.50e+6	48	0.997	< 0.01	< 0.01	0.01
3	4.00e+6	64	1.000	0.03	0.03	0.03
4	2.50e+6	77	1.000	0.07	0.07	0.06
5	1.40e+6	122	1.000	0.10	0.10	0.10
6	8.00e+5	160	1.000	0.15	0.15	0.15
7	4.00e+5	201	1.000	0.20	0.20	0.19
8	2.00e+5	258	1.000	0.30	0.30	0.30
9	1.00e+5	322	1.000	0.46	0.46	0.47
10	4.65e+4	376	1.000	0.70	0.70	0.69
11	2.15e+4	410	1.000	0.99	0.99	0.98
12	1.00e+4	429	1.000	1.40	1.40	1.35
13	4.65e+3	438	0.999	2.04	2.03	1.91
14	2.15e+3	443	0.999	3.23	3.23	2.86
15	1.00e+3	445	0.994	5.40	5.37	4.45
16	4.65e+2	446	0.975	9.83	9.59	6.34
17	2.15e+2	446	0.897	23.62	21.20	10.45
18	1.00e+2	447	0.555	46.20	25.65	11.82
19	4.65e+1	447	0.451	75.13	33.87	14.63
20	2.15e+1	447	0.551	27.41	15.11	9.45
21	1.00e+1	448	0.999	0.80	0.80	0.87
22	4.65e+0	449	0.987	7.70	7.60	8.91
23	2.15e+0	451	0.052	1952.67	101.79	315.65
24	1.00e+0	458	0.308	1564.63	482.35	568.11
25	4.65e-1	470	0.998	160.78	160.45	164.04
	2.15e-1	529	0.981	178.99	175.67	183.76
1G				36.79	9.96	11.36

Tabelle 4.1: (n, γ) -Gruppenquerschnitte für Pu-240; homogen in Wasser; Pu:H₂O = 1:10. $\sigma_{\gamma,g}(\infty)$ nach (4.16), $\sigma_{\gamma,g}(\sigma_0)$ nach (4.17;b) mit interpoliertem f -Faktor. Referenzwert $\sigma_{\gamma,g}(\text{MCNP})$ durch Monte Carlo Simulation. 1G: Eingruppenquerschnitt. Alle Querschnitte in barn.

i	E_{\max} [eV]	σ_0 [b]	f -Faktor	$\sigma_{\gamma,g}(\infty)$ [b]	$\sigma_{\gamma,g}(\sigma_0)$ [b]	$\sigma_{\gamma,g}(\text{MCNP})$ [b]
	2.00e+7	32	1.000	< 0.01	< 0.01	< 0.01
1	1.05e+7	35	1.000	< 0.01	< 0.01	< 0.01
2	6.50e+6	48	0.997	< 0.01	< 0.01	< 0.01
3	4.00e+6	64	1.000	0.03	0.03	0.02
4	2.50e+6	77	1.000	0.08	0.08	0.05
5	1.40e+6	122	1.000	0.10	0.10	0.09
6	8.00e+5	160	1.000	0.14	0.14	0.12
7	4.00e+5	201	1.000	0.14	0.14	0.15
8	2.00e+5	258	1.000	0.21	0.21	0.21
9	1.00e+5	322	1.000	0.37	0.39	0.36
10	4.65e+4	376	1.000	0.66	0.66	0.63
11	2.15e+4	410	1.000	0.95	0.95	0.89
12	1.00e+4	429	1.000	1.29	1.29	1.25
13	4.65e+3	438	1.000	1.95	1.95	1.53
14	2.15e+3	443	1.000	2.88	2.88	2.10
15	1.00e+3	445	0.977	4.12	4.02	2.89
16	4.65e+2	446	0.922	6.12	5.64	3.60
17	2.15e+2	446	0.868	11.22	9.75	4.80
18	1.00e+2	447	0.357	37.25	13.30	7.84
19	4.65e+1	447	0.927	3.12	2.90	3.45
20	2.15e+1	447	0.954	1.70	1.62	1.44
21	1.00e+1	448	0.998	0.61	0.61	0.74
22	4.65e+0	449	0.083	1403.83	117.16	120.00
23	2.15e+0	452	0.987	15.96	15.75	15.76
24	1.00e+0	457	1.000	6.44	6.44	6.59
25	4.65e-1	471	1.000	6.61	6.61	6.88
	2.15e-1	547	0.996	11.22	11.18	12.00
1G				26.85	4.35	4.09

Tabelle 4.2: (n, γ) -Gruppenquerschnitte für Pu-242; homogen in Wasser; Pu:H₂O = 1:10. $\sigma_{\gamma,g}(\infty)$ nach (4.16), $\sigma_{\gamma,g}(\sigma_0)$ nach (4.17;b) mit interpoliertem f -Faktor. Referenzwert $\sigma_{\gamma,g}(\text{MCNP})$ durch Monte Carlo Simulation. 1G: Eingruppenquerschnitt. Alle Querschnitte in barn.

Kapitel 5

Plutonium in inerten Matrizen

EINE EFFIZIENTE REDUZIERUNG von spaltbarem Material ist nur dann möglich, wenn dieses bei der Neutronenbestrahlung in einer inerten Matrix eingebettet ist (Paragraph 2.4.2). Durch diese Vorgehensweise wird die systematische Neuproduktion anderer spaltbarer Materialien unterbunden. Für diese sog. nicht-fertilen Brennstoffe (engl.: *non-fertile fuels*) liegen vergleichsweise wenig experimentelle Erfahrungen vor, da sie aufgrund des stärker ausgeprägten Reaktivitätsverlusts ökonomisch wenig attraktiv sind und ihr Einsatz bislang unnötig war; erst im Rahmen einer möglichen Plutonium-Eliminierung gewinnen nicht-fertile Brennstoffe an Bedeutung.

Auf den folgenden Seiten wird zunächst auf die reaktor-relevanten Eigenschaften von Plutonium — und insbesondere auf die Unterschiede zu Uranbrennstoffen — hingewiesen. Diese element- oder nuklid-spezifischen Eigenschaften allein reichen jedoch nicht aus, um das makroskopische Verhalten einer kritischen Anordnung vorherzusagen. Dieses Verhalten wird erst durch Festlegung der genauen Brennstoffzusammensetzung, inklusive der ggf. eingesetzten Absorbermaterialien, und der Geometrie der Anordnung (insb. dem Verhältnis von Brennstoff zu Moderator) bestimmt. Grundlegende Eigenschaften solcher Brennstoffe werden hier herausgearbeitet.

5.1 Zusammensetzung der Brennstoffe

In Tabelle 5.2 sind die Brennstoff-Typen zusammengefaßt, die als mögliche Kandidaten für die sich anschließenden Abbrandrechnungen berücksichtigt wurden. Auch wenn diese Brennstoffe als „Modelle“ anzusehen sind, erlauben sie dennoch eine Beurteilung der grundlegenden Auswirkungen der gewählten Plutoniumkonzentration, der Absorbermaterialien, etc.¹ Die Abmessungen der zwei Einheitszellen, die den Simulationen der Brennstoffe zugrunde liegen, sind in Tabelle 5.1 bzw. Abb. 5.1 wiedergegeben. Die Abmessungen des Brennstabes der Zellen 1 und 2 entsprechen den LWR-Standardwerten.² Insbesondere ist das Spiel zwi-

¹Detailliertere Brennstoffkonzepte werden in [Cho 96] und [Mat 97] vorgestellt.

²Umfassende Angaben zu Abmessungen der Komponenten (Brennelemente, usw.) sind beispielsweise in [Dix 84] zusammengestellt.

schen Brennstoff und Brennstabhülle fabrikationsbedingt. Dieser Zwischenraum, der sich im Laufe der Bestrahlung schließt, ist weder für die neutronenphysikalischen Eigenschaften der Geometrie noch für die Aufnahme der Spaltgase von Bedeutung; er beeinflusst jedoch die Wärmeleitung. Ein zweiter Brennstab mit verstärkter Hülle wird eingeführt: sollte sich bei den Abbrandrechnungen herausstellen, daß die Materialbelastung, die mit einem maximierten Plutonium-Umsatz verbunden sind, über den Werten liegen, die in existierenden Reaktoren erreicht werden, so kann auf eine solche robustere Geometrie zurückgegriffen werden. Das Hüllmaterial der betrachteten Brennstäbe besteht bei den metallischen Brennstoffen aus Aluminium, bei den oxidischen Brennstoffen aus Zirkonium, das einen Zircaloy-Stahl repräsentieren soll.³

Alle Effekte, die sich auf Neutronenbilanz und -spektrum auswirken, werden im wesentlichen durch die Konzentrationen des Plutoniums und des Absorbers festgelegt; der Einfluß der inerten Matrix ist von untergeordneter Bedeutung.

Unter der Nebenbedingung, daß alle Brennstoffe aus Tabelle 5.2 ein k_∞ von 1.30 ergeben sollen,⁴ wurden die Nukliddichten wie folgt bestimmt: zunächst wird die gewünschte Konzentration des Plutoniums festgelegt, daraufhin die notwendige Konzentration des Absorbers ermittelt⁵ und schließlich die Matrix bis auf die Atomdichte ergänzt, die sich im „ungestörten“ Fall ergibt. Einige relevante Materialeigenschaften der verwendeten Elemente und Oxide sind in Tabelle 5.4 zusammengefaßt.

³Zircaloy-Stahl besteht zu über 98wt% aus Zirkonium; er enthält geringe Anteile von Zinn, Eisen, Chrom und ggf. Nickel.

⁴Zum unendlichen Multiplikationsfaktor k_∞ vgl. Paragraph 5.4.

⁵Die notwendige Konzentration des Absorbers ergibt sich näherungsweise durch Vergleich der makroskopischen Eingruppen-Querschnitte von Brennstoff und Absorber; anschließend wird durch MCNP Simulationen die „exakte“ Konzentration bestimmt.

	Zelle 1/(2)	Zelle 3	
Brennstoff-Durchmesser	8.190	8.190	[mm]
Zwischenraum	0.082	0.082	
Stärke der Brennstabhülle	0.573	1.823	
Brennstab-Durchmesser	9.500	12.000	
Gitterteilung	12.500 (11.000)	14.500	[mm]

Tabelle 5.1: Abmessungen der Einheitszellen.

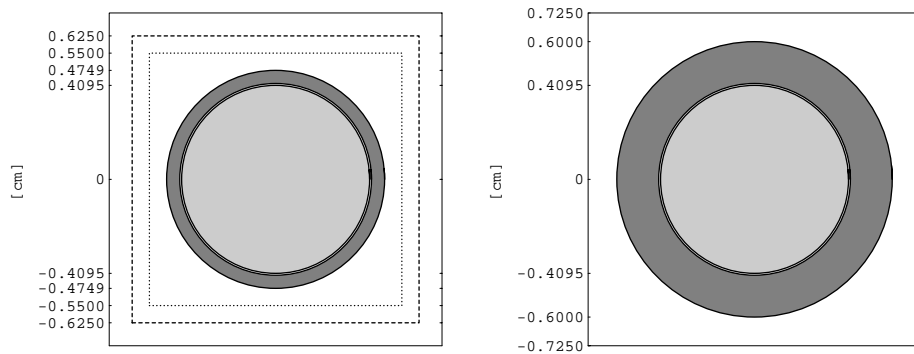


Abbildung 5.1: Einheitszellen. Links: Standard-Brennstab. Gitterteilung: 12.5mm (- -) und 11.0 mm (· · ·). Rechts: Brennstab mit verstärkter Hülle. Gitterteilung: 14.5 mm. Numerische Werte der Konfigurationen auch in Tabelle 5.1.

Typ	Fuel	Absorber		Matrix	Gitterteilung [mm]
	$[\frac{10^{-3} \text{ mol}}{\text{cm}^3}]$	$[\frac{10^{-3} \text{ mol}}{\text{cm}^3}]$	$[\frac{10^{-3} \text{ mol}}{\text{cm}^3}]$	$[\frac{10^{-3} \text{ mol}}{\text{cm}^3}]$	
	Pu	W(nat)	Eu(nat)	Al	
M10E110	1.000		0.086	98.914	11.0
M10E125	1.000		0.096	98.904	12.5
M10W125	1.000	7.800		91.200	12.5
M15E125	1.500		0.142	98.358	12.5
M15W125	1.500	10.000		88.500	12.5
M30E125	3.000		0.264	96.736	12.5
M30W125	3.000	14.600		82.400	12.5
	PuO ₂		Eu ₂ O ₃	MgO	
O10E110	1.000		0.042	87.195	11.0
O10E125	1.000		0.048	87.180	12.5
O15E125	1.500		0.070	86.375	12.5
O15E145*	1.500		0.068	86.380	14.5
O30E125	3.000		0.130	83.975	12.5
O30E145*	3.000		0.128	83.980	14.5

Tabelle 5.2: Mögliche Brennstoffe. Alle Typen ergeben bei der jeweils angegebenen Gitterteilung ein k_{∞} von 1.30. Monte Carlo Simulation(en). Geometrie der Konfiguration in Abb. 5.1. Brennstoffe, die mit einem Stern (*) versehen sind, beruhen auf der modifizierten Einheitszelle (No. 3 in Tabelle 5.1). Temperatur des Wassers: 300 K. Dichte: 0.996 g/cc. Isotopenzusammensetzung des Plutoniums in metallischer und oxidischer Form nach Tabelle 2.2.

5.2 Wirkungsquerschnitte der Plutonium-Isotope

Die thermischen Absorptionsquerschnitte der Plutonium-Isotope liegen deutlich über den Werten des U-238 bzw. U-235. Thermalisierte Neutronen werden daher mit höherer Wahrscheinlichkeit eingefangen, so daß die mittlere Energie der Neutronen steigt (Aushärtung des Spektrums). Gleichzeitig reduziert sich die Wirksamkeit von Neutronengiften (im Kühlmittel oder in den Steuerstäben), da diese vornehmlich im thermischen Bereich absorbieren; dies erfordert wiederum zusätzliche Absorberkapazität. Ein Reaktor, der ursprünglich für einen Uran-Betrieb ausgelegt wurde, kann aus diesem Grund nur bedingt auf einen Plutonium-Brennstoff umgestellt werden.

Eine weitere Schwierigkeit ergibt sich aus der dominanten Resonanz des Pu-239 bei 0.28 eV (vgl. Abb. 4.1). Bei einem Anstieg der Temperatur verschiebt sich die thermische Energie der Neutronen zu höheren Energien, so daß die Resonanz an Bedeutung gewinnt: dies führt über einen Anstieg der Reaktionsrate zu einer erhöhten Energiefreisetzung und letztlich zu einem weiteren Anstieg der Temperatur.⁶ Dieser Effekt ist insbesondere dann stark ausgeprägt, wenn nur wenig Pu-240 vorhanden ist; ihm muß mit geeigneten Absorbermaterialien entgegengewirkt werden.

5.3 Verzögerte Neutronen

Die Freisetzung der bei der Kernspaltung emittierten Neutronen ist auf zwei unterschiedliche physikalische Prozessabläufe zurückzuführen. Die *prompten Neutronen* werden unmittelbar ($\approx 10^{-14}$ s) nach dem Spaltprozeß größtenteils von den Spaltfragmenten — und nicht vom Compound-Kern — abgedampft, da sich diese durch einen hohen Neutronenüberschuß und durch eine ausreichend hohe Anregungsenergie auszeichnen. Die Energieverteilung der prompten Neutronen kann durch das sog. Watt-Spektrum ($\sim \exp(-E) \sinh(\sqrt{E})$) angenähert beschrieben werden; die mittlere Emissionsenergie beträgt ca. 2 MeV.

Die *verzögerten Neutronen* hingegen werden erst nach einem β -Zerfall eines primären neutronenreichen Spaltprodukts emittiert; der Prozeß ist nur dann möglich, wenn die β -Zerfallsenergie des Mutterkerns größer als die Bindungsenergie des Neutrons im Tochterkern ist. Die Abgabe der Anregungsenergie des Tochterkerns kann dann entweder durch Emission eines Photons oder durch Emission eines Neutrons erfolgen. Da diese Prozesse unmittelbar nach dem β -Zerfall erfolgen, wird der Zeitpunkt der Neutronenemission durch das Zerfallsgesetz des Mutterkerns festgelegt.

Die verzögerten Neutronen stellen nur einen sehr geringen Anteil β der insgesamt emittierten Neutronen dar (*delayed neutron fraction*: $\beta < 0.01$); sie legen dennoch die mittlere Lebensdauer l^* der Neutronen in einer kritischen Anordnung fest: die Lebensdauer erhöht sich von 0.1–1 ms (prompte Lebensdauer l) auf 30–80 ms (vgl. Tabelle 5.3). In der Regel werden zur Beschreibung der verzögerten Neutronen sechs Gruppen unterschieden, die sich jeweils durch die Zerfallskonstante $\lambda_i = 1/\tau_i$ unterscheiden.

⁶Zu den Reaktivitätskoeffizienten vgl. Paragraph 5.8.

	Uran 235		Plutonium 239		Plutonium 241	
Gruppe	τ_i	β_i	τ_i	β_i	τ_i	β_i
1	74.96 s	0.000261	75.36 s	0.000069	73.53 s	0.000092
2	30.54 s	0.001318	32.38 s	0.000588	33.37 s	0.001322
3	8.278 s	0.001125	8.818 s	0.000409	8.569 s	0.000811
4	3.303 s	0.002357	3.419 s	0.000735	3.258 s	0.001886
5	1.177 s	0.001198	1.166 s	0.000332	1.149 s	0.001044
6	0.351 s	0.000611	0.366 s	0.000107	0.333 s	0.000345
	$\langle \tau \rangle$	β	$\langle \tau \rangle$	β	$\langle \tau \rangle$	β
	11.43 s	0.006870	13.74 s	0.002240	11.87 s	0.005500
$\beta \langle \tau \rangle \approx l^*$	78.54 ms		30.78 ms		65.29 ms	

Tabelle 5.3: Daten für verzögerte Neutronen [Eme 93].

$$l^* = (1 - \beta)l + \sum_{i=1}^6 \beta_i(\tau_i + l) \approx \sum_{i=1}^6 \beta_i \tau_i = \beta \langle \tau \rangle \quad \text{mit} \quad \sum_{i=1}^6 \beta_i = \beta \quad \text{und} \quad \langle \tau \rangle = \frac{1}{\beta} \sum_{i=1}^6 \beta_i \tau_i$$

Unter der Voraussetzung, daß die Kettenreaktion ohne die verzögerten Neutronen nicht aufrecht erhalten werden kann, wird der Reaktor durch diese erheblich stabilisiert⁷ — er reagiert langsamer auf „Störungen“. Das bedeutet in der Praxis, daß die Steuerung eines Reaktors mit Brennstoff auf Pu-239-Basis — oder mit einem hohen Anteil an Pu-239 — prinzipiell schwieriger ist als die Steuerung eines Reaktors, der im wesentlichen auf der Spaltung von U-235 basiert.⁸ Der Anteil der verzögerten Neutronen erhöht sich allerdings im Laufe der Bestrahlung durch Aufbau anderer spaltbarer Nuklide (vgl. beispielsweise Pu-241 in Tabelle 5.3).

⁷Zum Multiplikationsfaktor k_{eff} vgl. Paragraph 5.4. Gilt $k_{\text{eff}} < 1 + \beta$, so wird das System verzögert kritisch bezeichnet; wird k_{eff} größer, so liegt der prompt kritische Zustand vor, der zur unkontrollierten Leistungsexkursion führen kann.

⁸Eine eingehende Diskussion der Konsequenzen dieses Effektes auf die Steuerbarkeit eines Kernreaktors kann hier nicht erfolgen. Allerdings ist sogar für existierende Reaktoren, die konstruktionsbedingt nicht für einen Einsatz von Plutonium ausgelegt sind, eine 100%-MOX-Beladung im Rahmen der WPu-Entsorgung vorgesehen (vgl. [DoE 96b], Kapitel 2.2).

5.4 Multiplikationsfaktor und Reaktivität

Das wesentliche Kriterium zur Beschreibung einer sich selbst erhaltenden — oder auch von außen gestützten — Kettenreaktion in einem endlichen System, das spaltbares Material enthält, ist durch den *effektiven Multiplikationsfaktor* gegeben.

$$k_{\text{eff}} = \frac{\text{Anzahl der pro Zeiteinheit durch Spaltung gewonnenen Neutronen}}{\text{Anzahl der pro Zeiteinheit durch Absorption und Leckage verlorenen Neutronen}}$$

Das k_{eff} eines Systems ist abhängig von der Zusammensetzung der Materialien, von der Geometrie und den Abmessungen sowie von der im System herrschenden Temperatur. Im Rahmen von Zellabbrandrechnungen wird die vorgegebene Geometrie jedoch zunächst auf eine symmetrische Grundstruktur reduziert; diese Struktur bildet die Einheitszelle, die im Fall eines thermischen Reaktors aus einem zentralen Brennstab und dem umgebenden Moderator material zusammengesetzt ist (vgl. beispielsweise Abb. 5.1). Durch unendliche Fortsetzung dieser Einheitszelle lassen sich zahlreiche Größen bestimmen, die bereits viele charakteristische Eigenschaften des tatsächlichen endlichen Systems widerspiegeln. Für eine solche unendlich ausgedehnte Struktur kann wiederum ein Multiplikationsfaktor k_{∞} definiert werden; offenbar gilt

$$k_{\infty} > k_{\text{eff}},$$

da für k_{∞} ein Neutronenverlust durch Leckage ausgeschlossen ist. Analog zu den Multiplikationsfaktoren kann die Reaktivität

$$\rho = \frac{k - 1}{k} \quad \text{oder} \quad \rho[\$] = \frac{1}{\beta} \frac{k - 1}{k}$$

definiert werden. Eine Reaktivität von +1\$ entspricht gerade dem in Paragraphen 5.3 besprochenen prompt kritischen Reaktorzustand, der durch $k_{\text{eff}} \approx 1 + \beta$ gekennzeichnet ist. Werden Reaktivitätsdifferenzen betrachtet, so gilt:

$$\Delta\rho = \rho_2 - \rho_1 = \frac{k_2 - 1}{k_2} - \frac{k_1 - 1}{k_1} = \frac{k_2 - k_1}{k_2 k_1}$$

Bei der jeweils vorgegebenen Geometrie des Systems und bei einer Temperatur des Wassers von 300 K ergeben alle diskutierten Brennstoff-Varianten ein k_{∞} von 1.30 ($\rho \approx 0.23$); dies entspricht dem typischen Richtwert, der auch für konventionelle Brennstoffe erzielt wird und als Ausgangspunkt für Zellabbrandrechnungen dient.

5.5 Konzentration des Plutoniums

Von wesentlicher Bedeutung ist die Plutoniumkonzentration im Brennstoff; hier ist kein a priori ausgezeichnete Wert anzugeben, da sowohl hohen als auch niedrigen Konzentrationen Vor- bzw. Nachteile innewohnen. Drei unterschiedliche Konzentrationen werden betrachtet: $1.0\times$, $1.5\times$ und 3.0×10^{-3} mol/cm³ WPu.⁹

Eine hohe Konzentration des Plutoniums impliziert beispielsweise längere Zyklen, eine höhere Kapazität der Anlage und geringere Fabrikationskosten des Brennstoffs; eine niedrige Konzentration hingegen eine leichtere Kontrolle des Systems und eine geringere Materialbelastung bei maximalem Abbrand. Hinzu kommen allerdings Einschränkungen, die sich aus Anforderungen an die thermische Stabilität des Systems ergeben: da das Verhältnis von Moderator zu Brennstoff nicht beliebig groß werden darf, muß die Konzentration des Plutoniums unter Umständen ein Minimum überschreiten.¹⁰

Über die Konzentration wird bei vorgegebenem Brennstoffvolumen selbstverständlich auch das Gesamtinventar der Anlage bestimmt; dadurch wird wiederum das Plutonium-Inventar pro Brennelement bei Be- und Entladung festgelegt. Diese Größen sind insbesondere bei einer Beurteilung der Proliferationsresistenz von Bedeutung.

Anmerkung: Da bei kommerziell eingesetzten UO₂-Brennstoffen die Anreicherung des U-235 aus ökonomischen Gründen möglichst niedrig sein soll, stellt die Konzentration des spaltbaren Nuklids keine „freie Variable“ dar. Die kritische Bedingung kann aufgrund des prinzipiellen Neutronenmangels nur erreicht werden, falls Moderator und Strukturmaterial möglichst wenig Neutronen absorbieren und das System selbst eine gewisse Mindestgröße überschreitet.¹¹

5.6 Absorbermaterialien

Aus verschiedenen Gründen ist die Verwendung von Absorbermaterialien sinnvoll oder notwendig. Zunächst gewährleisten Absorbermaterialien, daß für verschiedene Plutoniumkonzentrationen die Reaktivität des frischen Brennstoffs auf den Zielwert abgestimmt werden kann. Hier sind insbesondere brennbare Neutronengifte (engl.: *burnable poisons*) von Interesse, da sie die gebundene Überreaktivität des Brennstoffs im Laufe der Bestrahlung freigeben und somit einen höheren Abbrand ermöglichen. Schließlich kann ein Resonanzabsorber notwendig sein, um einen negativen Temperaturkoeffizienten des Moderators zu gewährleisten

⁹Es ist zu beachten, daß sich die angegebenen Konzentrationen auf das in Tabelle 2.2 definierte WPu beziehen; darin enthalten ist demnach ein geringer Anteil an Americium-241. Zum Vergleich der Konzentrationen: MOX-Brennstoff enthält 4 wt% thermisch-spaltbares Plutonium (239 und 241) in Uran; dies entspricht etwa 1.4×10^{-3} mol/cm³.

¹⁰Vgl. Paragraph 5.8.

¹¹Alle konventionellen thermischen Reaktorkonfigurationen leiden unter einem Neutronenmangel. Dieser Umstand führte in der Vergangenheit zur Entwicklung schneller Reaktoren, die sich durch eine bessere Neutronenökonomie auszeichnen, und in jüngster Zeit auch zur Konzeption beschleuniger-gestützter Systeme, die diesen Mangel durch extern zugeführte Neutronen ausgleichen sollen.

(vgl. Paragraph 5.8). Alle hier betrachteten Absorbermaterialien sind integraler Bestandteil des Brennstoffs.¹² Dies ist günstig in bezug auf den Doppler-Effekt, da Änderungen der Temperatur unmittelbar auf Brennstoff und Absorber wirken.

Als brennbares Neutronengift wird Europium sowohl in metallischen als auch in oxidischen Brennstoffen eingesetzt;¹³ im letzteren Fall als Eu_2O_3 . Außerdem wird in den metallischen Brennstoff-Varianten Wolfram als Absorbermaterial betrachtet: Wolfram wirkt zwar nicht als brennbares Neutronengift, gewährleistet jedoch einen starken negativen Temperaturkoeffizienten (vgl. Paragraph 5.8); die Verwendung von Wolfram als Resonanzabsorber wird in der INEL-Studie favorisiert.

Ein besonders geeignetes Absorbermaterial ist offenbar Erbium-167. Dieses besitzt eine dem Plutonium-239 sehr ähnliche Resonanzstruktur, wobei insbesondere die dominante Resonanz bei 0.42 eV zu der des Plutoniums bei 0.28 eV korrespondiert. Gewinnt die Resonanz des Plutoniums an Bedeutung, was zunächst zu einem Anstieg der Reaktivität führen würde, so ist quasi-simultan und ausgleichend die Erbium-Resonanz davon betroffen. Die Erbium-Isotope konnten in dieser Arbeit nicht konsistent simuliert werden, da keine MCNP-Wirkungsquerschnittsbibliotheken zur Verfügung standen.

5.7 Metallische und oxidische Brennstoffe

Brennstoffe auf metallischer Basis werden in kommerziellen Leistungsreaktoren nicht eingesetzt; dies ist vor allem durch die niedrigen Schmelztemperaturen der Aktiniden-Metalle begründet (Tabelle 5.4). Bei den Temperaturen, die sich aus einer erheblich reduzierten Leistungsdichte ergeben, ist ein Einsatz metallischer Brennstoffe jedoch möglich.¹⁴ Die INEL-Studie fokussiert dabei diese Brennstoffe auf metallischer Basis, d.h. metallische Plutoniumverbindungen in einer Matrix aus Aluminium, Zirkonium, Eisen oder Nickel. Insbesondere die Aluminiumoption wird genauer diskutiert, da für diese die meisten Erfahrungen vorliegen. Brennstoff ist in diesem Fall metallisches PuAl_x , das in einer Aluminiummatrix auf die erforderliche bzw. gewünschte Konzentration verdünnt wird.

Eine zwischenzeitliche Transformation des metallisch vorliegenden Waffenplutoniums in PuO_2 könnte allerdings den Einsatz von oxidischen Brennstoffen nahelegen. Bereits bei der Umwandlung des WPU's in Non-Pit-Form¹⁵ — dies ist der erste unmittelbar notwendige Bearbeitungsschritt — wird oxidisches Plutonium erzeugt. Da oxidiertes Plutonium für alle favorisierten Entsorgungsoptionen geeignet ist, weniger attraktiv in bezug auf seine unmittelbare Kernwaffenfähigkeit ist und sich außerdem durch wesentlich höhere Schmelztemperaturen auszeichnet, werden in der vorliegenden Arbeit in erster Linie diese Brennstoffe betrachtet.

¹²Denkbar ist auch eine Einbettung der Absorbermaterialien in der Brennstabhülle.

¹³Durch eine Kombination von Europium und Plutonium wird außerdem die unmittelbare Nützlichkeit des Brennstoffes zum Gebrauch in Kernwaffen wesentlich herabgesetzt. Kann das Europium nicht vollständig abgetrennt werden, so resultiert daraus eine erhöhte komprimierte kritische Masse des Materials [Sy1 94].

¹⁴Zu den Temperaturen vgl. Paragraph 3.1.4.

¹⁵Dies geschieht beispielsweise durch den sog. ARIES-Prozeß (ARIES: *Advanced Recovery and Integrated Extraction System*). Vgl. [RTR 96], Paragraph 3.1.2.

5.8 Reaktivitätskoeffizienten

Um das Verhalten eines Reaktors, d. h. die Änderung der Neutronenpopulation, während kurzer Zeiträume (einige wenige Sekunden) vorherzusagen, müssen die *Reaktivitätskoeffizienten* des Systems bekannt sein; diese legen die Änderung der Reaktivität als Funktion der Betriebsparameter x_i (darunter die Temperatur, die Leistung, der Druck, etc.¹⁶) fest.

$$\alpha_i = \frac{\partial \rho}{\partial x_i}$$

Bei einigen Koeffizienten ist dabei genauer anzugeben, welche Komponente des Systems (Brennstoff, Kühlmittel und ggf. Moderator) von der Variation des Parameters betroffen ist. Dies gilt insbesondere für den Reaktivitätskoeffizienten der Temperatur, den sog. *Temperaturkoeffizienten*, da hier sowohl der Brennstoff als auch der Moderator Ausgangspunkt für eine Änderung der Temperatur sein kann. Man spricht von einem negativen Temperaturkoeffizienten, wenn die Reaktivität des Systems bei steigender Temperatur abnimmt. Dieser selbst-regulierende Effekt ist notwendig, da er die Stabilität des Reaktors in bezug auf Temperaturschwankungen gewährleistet.

5.8.1 Temperaturkoeffizient des Brennstoffs

Bei einer Änderung der Spaltrate ist zunächst der Brennstoff — und erst zeitlich verzögert der Moderator — von einer Temperaturänderung betroffen; daher wird dieser Koeffizient auch als prompter Temperaturkoeffizient eingeführt. Die Änderung der Reaktivität ist in diesem Fall auf den temperaturabhängigen Doppler-Effekt zurückzuführen. Die (vorläufigen) Untersuchungen der INEL-Studie zeigen, daß bereits ein geringer Zusatz von Europium ausreicht, um einen negativen prompten Temperaturkoeffizienten von Plutonium-Brennstoffen zu gewährleisten.

5.8.2 Temperaturkoeffizient des Moderators

Bei einem Anstieg der Temperatur nimmt die Dichte des Moderators ab. Daraus resultiert eine Zunahme der mittleren freien Weglänge der Neutronen im Moderator, so daß die Wahrscheinlichkeit für das Erreichen eines benachbarten Brennstabes steigt. Gleichzeitig nimmt die Bedeutung der Querschnitte im Resonanzbereich relativ zu den thermischen Querschnitten zu, da die Neutronen weniger stark moderiert werden. Das System verhält sich stabil, falls in dieser Situation die Reaktivität abnimmt: das Gitter ist *untermoderiert* und der Temperaturkoeffizient des Moderators negativ.

¹⁶Bei Siedewasserreaktoren spielt außerdem der Blasen volumenanteil im Kühlmittel eine entscheidende Rolle; dessen Auswirkung wird durch den sog. Void-Koeffizienten erfaßt.

Dieser Effekt läßt sich bei konstanter Temperatur untersuchen, indem das Verhältnis von Moderator- zu Brennstoffvolumen variiert wird; in der Praxis entspricht das einer Modifikation der Gitterteilung (engl.: *pitch*), also einer Variation des Abstands zwischen den Brennstäben. Man spricht von einem *negativen isothermalen Temperaturkoeffizienten*, falls eine Abnahme des Brennstab-Abstands auch zu einer Abnahme der Reaktivität führt: das System ist dann, wie gefordert, untermoderiert. Ein solcher Bereich muß allerdings nicht notwendigerweise existieren bzw. kann nur schwach ausgeprägt sein. Der Verlauf des isothermalen Temperaturkoeffizienten wurde für verschiedene Brennstoffe, d.h. für unterschiedliche Absorbermaterialien und Plutoniumkonzentrationen, im Rahmen dieser Arbeit ermittelt.

Kombination mit Europium: Bei vorgegebener Geometrie sind nicht für alle der in Tabelle 5.2 angegebenen Plutoniumkonzentrationen negative Temperaturkoeffizienten zu erzielen: da eine Reduktion des WPU's in der Matrix einer Zunahme des Verhältnisses $V_{\text{H}_2\text{O}}/V_{\text{Fuel}}$ entspricht, verschiebt sich die Position des maximalen k_∞ hin zu kleineren Gitterteilungen. MCNP Simulationen ergeben, daß für Brennstoffe mit $1.0 \times 10^{-3} \text{ mol/cm}^3$ die Standard-Gitterteilung von 12.5 mm nicht mehr zu einem deutlich untermoderierten Gitter führt; erst ab einer Konzentration von $1.5 \times 10^{-3} \text{ mol/cm}^3$ wird diese Situation erreicht (Abb. 5.2).

Kombination mit Wolfram: Die Variation des k_∞ als Funktion der Gitterteilung ist bei Einsatz von Wolfram im untermoderierten Bereich wesentlich stärker ausgeprägt als bei Einsatz von Europium (Abb. 5.3). Bei der Referenz-Gitterteilung von 12.5 mm ergibt sich für den Absolutbetrag des isothermalen Temperaturkoeffizienten daher ein vergleichsweise großer Wert, so daß der Brennstoff Temperaturschwankungen in stärkerem Maße entgegenwirkt.

Auch wenn die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Stabilitätsbetrachtungen nicht ausreichend sind, um das Verhalten der Brennstoffe präzise vorherzusagen, so sind die grundlegenden Stabilitätsbedingungen jedoch erfüllbar. Es wird außerdem deutlich, daß durch die Wahl des Absorbermaterials — bzw. durch geeignete Kombination verschiedener Materialien — verschiedene (negative) Werte für den Temperaturkoeffizienten eingestellt werden können.

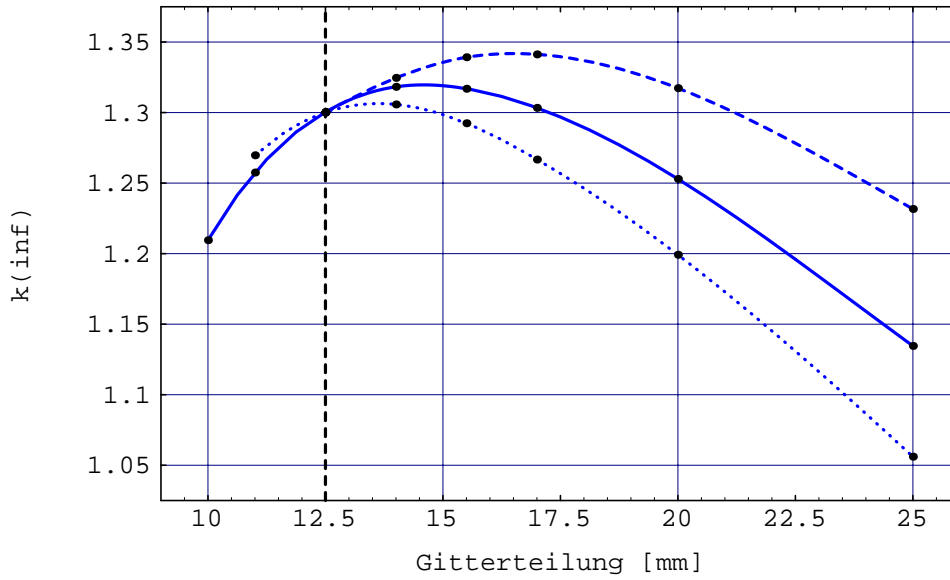


Abbildung 5.2: Verhalten der isothermalen Temperaturkoeffizienten bei Brennstoffen mit unterschiedlichen Plutonium-Konzentrationen und Europium-Absorber: Typen 010E125 (\cdots), 015E125 (—) und 030E125 (- -).

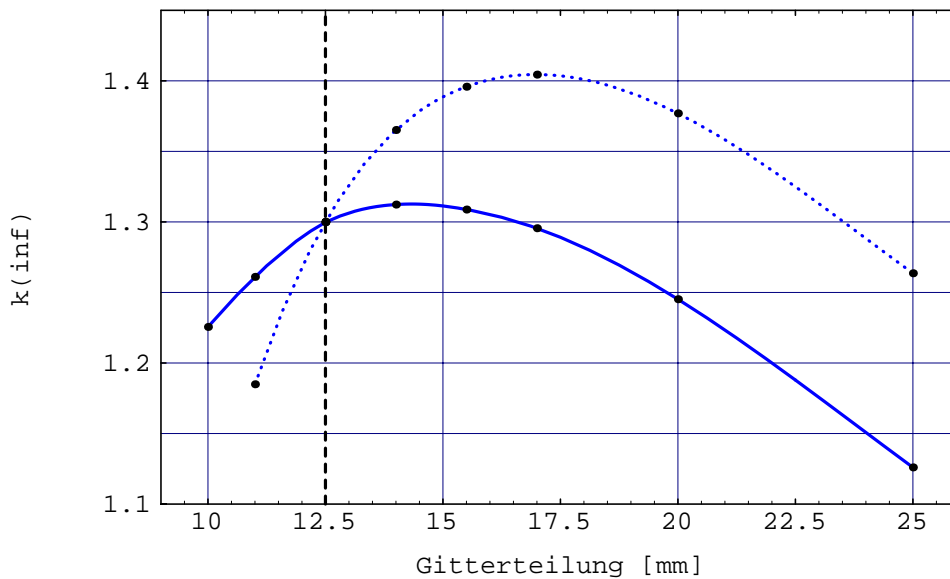


Abbildung 5.3: Verhalten der isothermalen Temperaturkoeffizienten bei unterschiedlichen Absorber-Materialien. Europium in Brennstoff M15E125 (—) und Wolfram in Brennstoff M15W125 (\cdots).

	T_{MP} [°C]	Dichte [g/cm ³]	Molare Masse [g/mol]	Molare Dichte [mol/cm ³]
U	1132	19.05	238.03	0.0800
Pu	640	19.84	239.06	0.0830
Eu	817	5.25	151.96	0.0346
Zr	1852	6.49	91.22	0.0712
W	3400	19.25	183.85	0.1047
Al	660	2.70	26.98	0.1001
UO ₂	2878	10.96	270.03	0.0406
PuO ₂	2390	11.46	271.06	0.0423
Eu ₂ O ₃	2350	7.42	351.92	0.0211
ZrO ₂	2700	5.89	123.22	0.0478
MgO	2852	3.58	40.30	0.0888

Tabelle 5.4: Eigenschaften einiger Materialien [CRC 90]. Vor Erreichen der Schmelztemperatur (T_{MP}) kommt es insb. beim Pu zu Phasenübergängen, die die Dichte des Material erheblich beeinflussen. Pu ist WPu.

Kapitel 6

Zellabbrandrechnungen für Waffenplutonium in einer inerten Matrix

DA DAS POTENTIAL DES PU-BURNERS bisher nur sehr grob abgeschätzt werden konnte,¹ sind detaillierte Berechnungen sinnvoll bzw. notwendig. Hierbei ist insbesondere von wesentlicher Bedeutung, ob und unter welchen Bedingungen ein hoher Plutonium-Umsatz erzielt werden kann und welche Aktinidenzusammensetzung bei Bestrahlungsende resultiert. Dazu sollen im folgenden Zellabbrandrechnungen für einen der in Kapitel 5 vorgeschlagenen Brennstoffe durchgeführt werden.

6.1 Berechnungsverfahren

Für Abbrandrechnungen sind Gleichungen des Typs

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} N_i(\vec{r}, t) = & - \left[\int_0^\infty dE \sigma_a^i(E) \phi(E, \vec{r}, t) + \lambda_i \right] N_i(\vec{r}, t) \\ & + \sum_{j \neq i} \left[\int_0^\infty dE \sigma_{j \rightarrow i}(E) \phi(E, \vec{r}, t) + \lambda_{j \rightarrow i} \right] N_j(\vec{r}, t) \end{aligned} \quad (6.1)$$

für die Aktiniden und die Spaltprodukte zu lösen.² Bei *Zellabbrandrechnungen* wird durch Einführung hinreichend kleiner räumlicher Zonen gleicher Ausgangsmaterialzusammensetzung die Ortsabhängigkeit in (6.1) eliminiert. Der Abbrand innerhalb solcher Zonen ist somit homogen, so daß keine Effekte erfaßt werden, die sich durch Variation des Neutronenflusses

¹Vgl. Paragraph 3.2.

²Darin stellen $\sigma_a^i(E)$ den Absorptionsquerschnitt und λ_i die Zerfallskonstante des Nuklids i dar. $\sigma_{j \rightarrow i}(E)$ und $\lambda_{j \rightarrow i}$ charakterisieren Prozesse, die von Nuklid j auf Nuklid i führen. Detaillierte Diskussion zur Lösung dieser Gleichungen und zur Legitimität verschiedener Näherungen in [Pis 98].

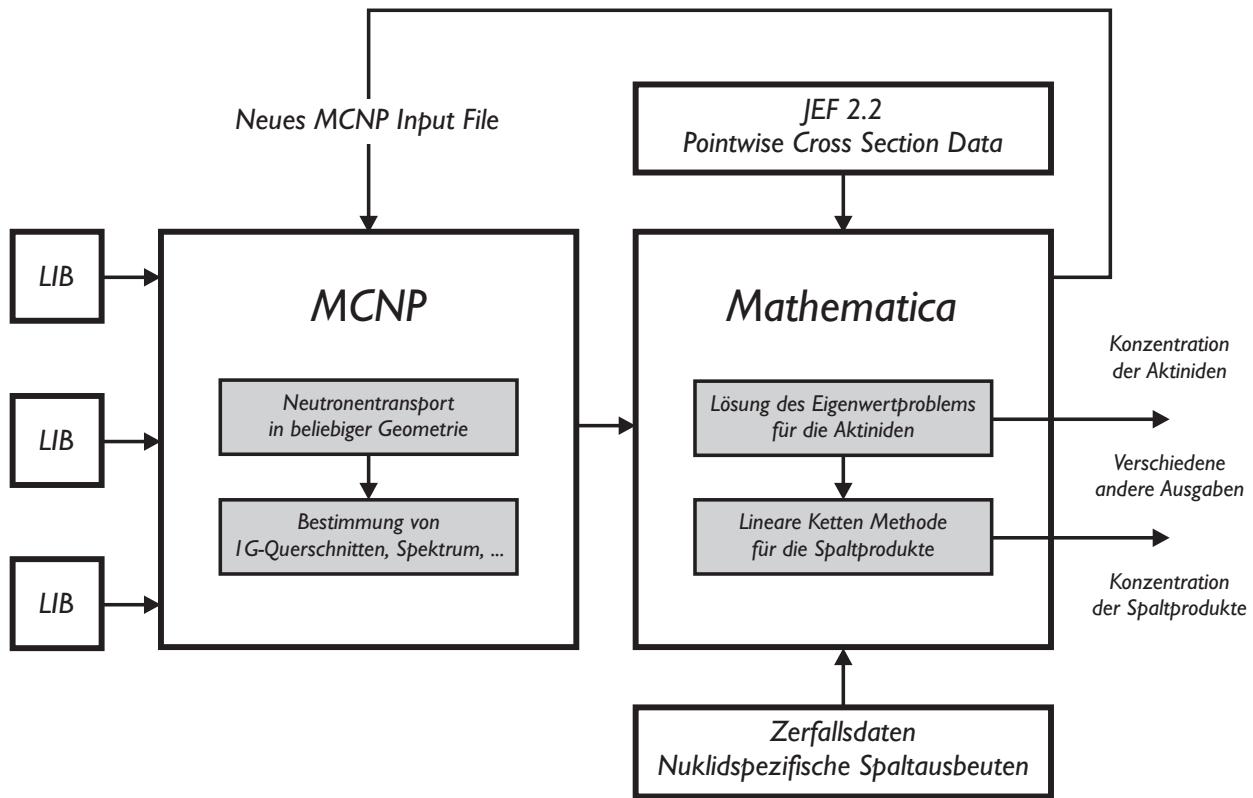


Abbildung 6.1: Funktionsweise des Programmsystems. Kopplung von Neutronentransport und Abbrandmodul. Detaillierte Diskussion in [Pis 98].

innerhalb einer Zone ergeben würden. Werden ferner in Analogie zu (4.6) und (4.8) die Eingruppenrößen

$$\phi_{\text{tot}}(t) = \int_0^\infty dE \phi(E, t) \quad \text{und} \quad \sigma_x^i(t) = \frac{\int_0^\infty dE \sigma_x^i(E) \phi(E, t)}{\int_0^\infty dE \phi(E, t)} \quad (6.2)$$

definiert und schließlich die Zeitabhängigkeit von ϕ_{tot} — und damit auch von σ_x^i — für hinreichend kleine Bestrahlungsintervalle vernachlässigt, so vereinfachen sich die Abbrandgleichungen zu einem linearen DGL-System mit konstanten Koeffizienten.

$$\frac{d}{dt} N_i(t) = - [\sigma_a^i \phi_{\text{tot}} + \lambda_i] N_i(t) + \sum_{j \neq i} [\sigma_{j \rightarrow i} \phi_{\text{tot}} + \lambda_{j \rightarrow i}] N_j(t) \quad (6.3)$$

Da das Neutronenspektrum $\phi(E)$ — und insbesondere dessen Abbrand-Abhängigkeit — für die unkonventionellen Brennstoffe aus Tabelle 5.2 zunächst unbekannt ist und erhebliche Abweichungen zu Uran-Brennstoffen zu erwarten sind, ist ein Rückgriff auf bereits bekannte Eingruppenquerschnitte σ_x^i nicht möglich.³ Das im Rahmen dieses Projektes entwickelte Programmsystem verwendet daher Eingruppenquerschnitte, die es selbst aus einer Monte

³Zu dieser Problematik vgl. die Paragraphen 3.2, 4.1.3 und 4.2.

Carlo Simulation gewinnt. Die Funktionsweise dieses Systems ist in Abb. 6.1 schematisch dargestellt: es basiert im wesentlichen auf einem Abbrandmodul, das in *Mathematica* realisiert ist und alle problemspezifischen Informationen durch den Neutronentransport-Code MCNP 4A gewinnt.⁴

Die hier vorgestellten Rechnungen berücksichtigen die Uran-, Neptunium-, Plutonium-, Americium- und Curium-Isotope, d. h. die Ordnungszahlen 92 bis 96,⁵ sowie 73 Spaltprodukte (vgl. hierzu Tabelle 6.4). Die sich durch Zerfälle und neutronen-induzierte Prozesse ergebende Kopplung der Nuklide untereinander ist in Abb. 6.2 für die Aktiniden dargestellt. Grundlegende Strategien zur Lösung der Abbrandgleichungen sowie eine detaillierte Beschreibung der Funktionsweise des Programmsystems, inkl. dessen Validierung, finden sich in der Diplomarbeit von C. Pistner [Pis 98].

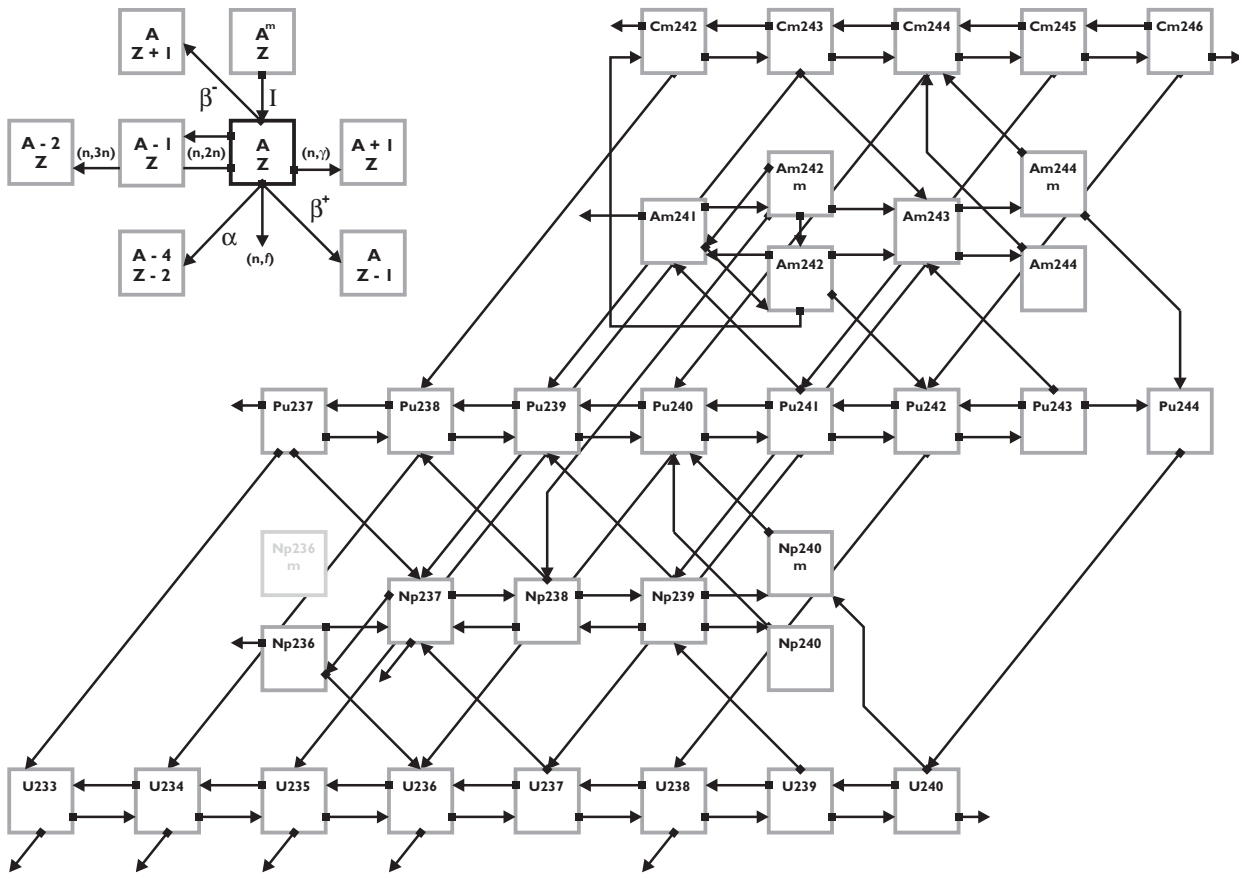


Abbildung 6.2: Behandlung der Aktinide. Nuklide und Prozesse, die bei der Lösung der Abbrandgleichungen berücksichtigt werden: (n, f) -, (n, γ) -, $(n, 2n)$ - und $(n, 3n)$ -Prozesse, α -, β^- - und β^+ -Zerfälle sowie Übergänge zwischen Isomeren. In der Abbildung nicht dargestellt sind (n, f) - und $(n, 3n)$ -Prozesse.

⁴MCNP 4A kann ebenso den Transport von Photonen und Elektronen simulieren. Die Funktionsweise und die Fähigkeiten des MCNP 4A-Codes werden in [Bri 93] beschrieben.

⁵Die Anzahl der in den Rechnungen berücksichtigten Nuklide ist prinzipiell frei wählbar. Werden Brennstoffe auf Uran-Basis betrachtet, so ist beispielsweise die Hinzunahme der Ordnungszahlen 90 und 91 (Thorium und Protactinium) möglich.

6.2 Voraussetzungen

6.2.1 Brennstoffzusammensetzung und Geometrie

Die Ergebnisse der Paragraphen 5.5 bis 5.8 legen die Verwendung eines oxidischen Brennstoffes nahe, der durch Einsatz eines brennbaren Neutronengifts einen maximalen Abbrand erlaubt. Damit die Bestrahlungsdauer bei niedriger Leistungsdichte nicht unrealistisch große Werte annimmt, wird weiterhin eine möglichst niedrige Konzentration des Plutoniums favorisiert. Den in Paragraph 5.8.2 angegebenen Einschränkungen folgend, bietet sich daher der Typ 015E125 als Referenz-Brennstoff an (vgl. Tabelle 5.2). Die Plutonium-Konzentration von $1.5 \times 10^{-3} \text{ mol/cm}^3$ entspricht hier einem Anteil von 10.4 wt% PuO_2 bzw. 9.2 wt% Pu.

Die dem Brennstoff-Typ 015E125 zugrundeliegende Einheitszelle stimmt in allen Abmessungen einer typischen LWR-Zelle überein (Abb. 6.3). Der vom zentral angeordneten Brennstab eingeschlossene Brennstoff stellt die (einzige) Abbrandzone dar. Alle in den Berechnungen gewonnenen Daten — wie Neutronenspektrum, effektive Wirkungsquerschnitte, Nuklidkonzentrationen, usw. — ergeben sich daher als Mittelwert dieser Zone.

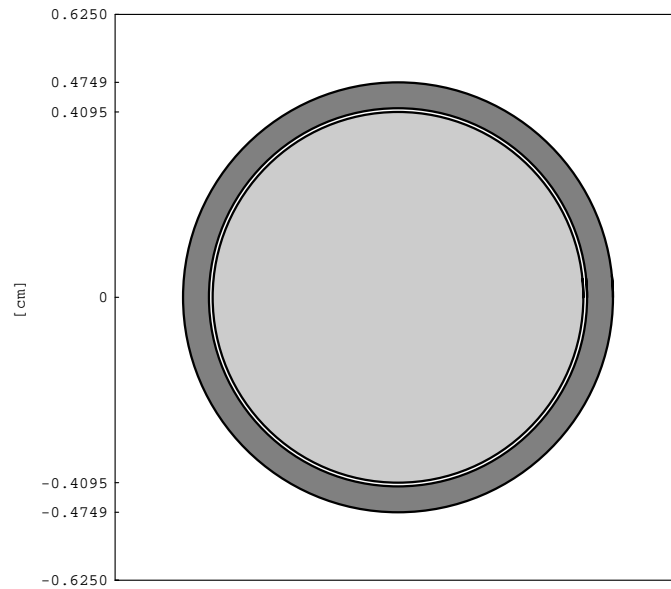


Abbildung 6.3: Geometrie der Standard-Einheitszelle.

6.2.2 Leistungsdichte

Wie bereits in Kapitel 3 betont, kann die Leistungsdichte für dieses Konzept prinzipiell „beliebig“ niedrig sein, da keine Umwandlung in elektrische Energie vorgesehen ist. Als Richtwert werden 10 % der Leistungsdichte eines konventionellen LWR angenommen; dies entspricht dem Wert, der auch in der INEL-Studie gewählt wurde.

$$\frac{P_{\text{th,Burner}}}{V_{\text{Fuel}}} = 30 \text{ W/cm}_{\text{Fuel}}^3 \approx \frac{1}{10} \frac{P_{\text{th,LWR}}}{V_{\text{Fuel}}}$$

6.2.3 Behandlung der Absorbermaterialien

Um den Einfluß des brennbaren Neutronengifts in 015E125 beurteilen zu können, werden vergleichende Zellabbrandrechnungen für den Brennstoff M15W125 durchgeführt, der — bei gleicher Konzentration des Plutoniums — Wolfram als Resonanzabsorber enthält. Zur Abschätzung des Abbrandverhaltens des Wolframs wird das untenstehende vereinfachte Differentialgleichungssystem betrachtet: hier geht die Annahme ein, daß W-184 und W-186 nach einem Neutroneneinfang verloren gehen, d. h. in Nuklide mit verschwindendem Wirkungsquerschnitt übergehen.⁶

$$\frac{d}{dt} \begin{bmatrix} N_{182}(t) \\ N_{183}(t) \\ N_{184}(t) \\ N_{186}(t) \end{bmatrix} = \langle \phi \rangle \begin{bmatrix} -\langle \sigma_{182} \rangle & 0 & 0 & 0 \\ +\langle \sigma_{182} \rangle & -\langle \sigma_{183} \rangle & 0 & 0 \\ 0 & +\langle \sigma_{183} \rangle & -\langle \sigma_{184} \rangle & 0 \\ 0 & 0 & 0 & -\langle \sigma_{186} \rangle \end{bmatrix} \begin{bmatrix} N_{182}(t) \\ N_{183}(t) \\ N_{184}(t) \\ N_{186}(t) \end{bmatrix}$$

Werden für die Wirkungsquerschnitte und den Neutronenfluß typische Werte eingesetzt

$$\langle \sigma_{182} \rangle = \langle \sigma_{183} \rangle = \langle \sigma_{186} \rangle \approx 5 \text{ b} \quad \langle \sigma_{184} \rangle \approx 0.5 \text{ b} \quad \langle \phi \rangle \approx 2 \cdot 10^{13} \frac{\text{cm}}{\text{cm}^3 \text{ s}},$$

so zeigt sich, daß die Konzentration und die Wirksamkeit des Wolframs für den Zeitraum der Bestrahlung nahezu konstant bleiben (Abb. 6.4):⁷ die relative Konzentration des Wolframs sinkt auf ca. 97%, der totale makroskopische (n, γ)-Querschnitt auf ca. 95% des Ausgangswertes. Unter Inkaufnahme eines geringen Fehlers kann daher auf eine explizite Berechnung des Wolfram-Abbrandes verzichtet und die Konzentration im Brennstoff als konstant angenommen werden.

Da der mikroskopische Eingruppen- (n, γ) -Querschnitt von natürlichem Europium in typischen Leichtwasserreaktor-Spektren ca. $50\times$ über dem des Wolframs liegt, sind Änderungen der Konzentration und des Isotopenvektors hier signifikant. Daher ist eine explizite Berücksichtigung der wesentlichen Isotope des Europiums — und der durch β -Zerfälle gebildeten Isotope des Gadoliniums — notwendig; dies geschieht jedoch ohnehin im Rahmen der Behandlung der Spaltprodukte. Aufgrund der besonderen Bedeutung des Europiums in diesem Fall werden dessen Querschnitte durch die Monte Carlo Simulationen explizit bestimmt und für die Behandlung der verallgemeinerten Spaltprodukte zur Verfügung gestellt;⁸ dadurch ist gewährleistet, daß auch der Resonanzselbstabschirmung Rechnung getragen wird.

⁶Die resultierenden Nuklide W-185 und W-187 sind β -instabil und zerfallen mit einer Halbwertszeit von 75.1d bzw. 23.8h in Rhenium-Isotope. Durch deren Vernachlässigung wird die Abnahme des makroskopischen Querschnitts überschätzt.

⁷Die Querschnitte und der Neutronenfluß ergeben sich für den frischen Brennstoff M15W125.

⁸Die Routine zur Behandlung der Spaltprodukte berücksichtigt die Nuklide, die tatsächlich durch Spaltung der Aktiniden aufgebaut werden, aber auch die „künstlich“ zugesetzten Absorbermaterialien.

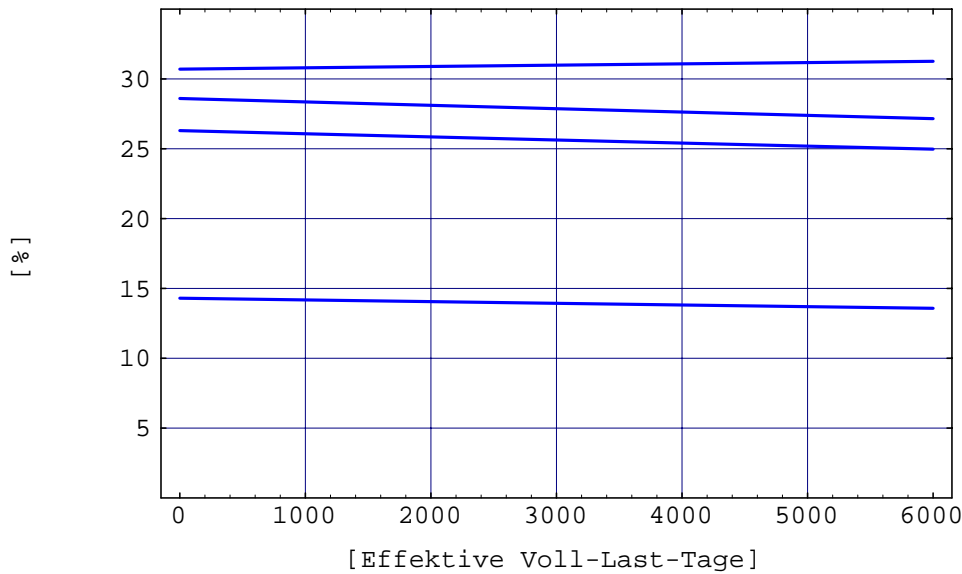


Abbildung 6.4: Konzentration der Wolfram-Isotope relativ zur Anfangskonzentration von 100 %. Von oben nach unten: Wolfram-184, -186, -182 und -183. Brennstoff: M15W125.

6.3 Resultate

Alle hier vorgestellten Resultate für den Brennstoff 015E125 basieren auf einer Zellabbrandrechnung, die bei einer konstanten Borierung des Moderators von 500 ppm⁹ durchgeführt wurde. Dies soll der Tatsache Rechnung tragen, daß der Borgehalt im Moderator von ca. 1000 ppm kurz nach Zyklus-Beginn auf Null bei Zyklus-Ende abgesenkt wird. Der Einfluß des Bors auf das nuklidspezifische Abbrandverhalten des Brennstoffs ist allerdings relativ gering.

6.3.1 Multiplikationsfaktor k_{∞}

Die zeitliche bzw. abbrandabhängige Entwicklung des k_{∞} ist in Abb. 6.5 dargestellt. Der Ausgangswert des k_{∞} ist während der ersten 3000 Tage nahezu konstant, was in erster Linie auf den vorzeitigen Abbau des Eu-151 zurückzuführen ist (Abb. 6.16). Nachdem die Wirksamkeit des brennbaren Neutronengifts erschöpft ist, ergibt sich der typische, nahezu lineare, Reaktivitätsverlust für den Brennstoff.

Der Einfluß des brennbaren Neutronengifts in 015E125 auf die Entwicklung des k_{∞} läßt sich durch Vergleich mit dem Brennstoff M15W125 abschätzen. Wie in Paragraph 6.2.3 diskutiert, bleibt der makroskopische Wirkungsquerschnitt des Wolframs bei der Bestrahlung nahezu konstant; daher ergibt sich für M15W125 über die gesamte Bestrahlungsdauer ein

⁹ppm: *parts per million*. 1 ppm Bor entspricht 1 µg (natürlichem) Bor in 1 g Wasser. Oder: 1 mg Bor in einem Liter Wasser bei $\rho = 1 \text{ g/cm}^3$.

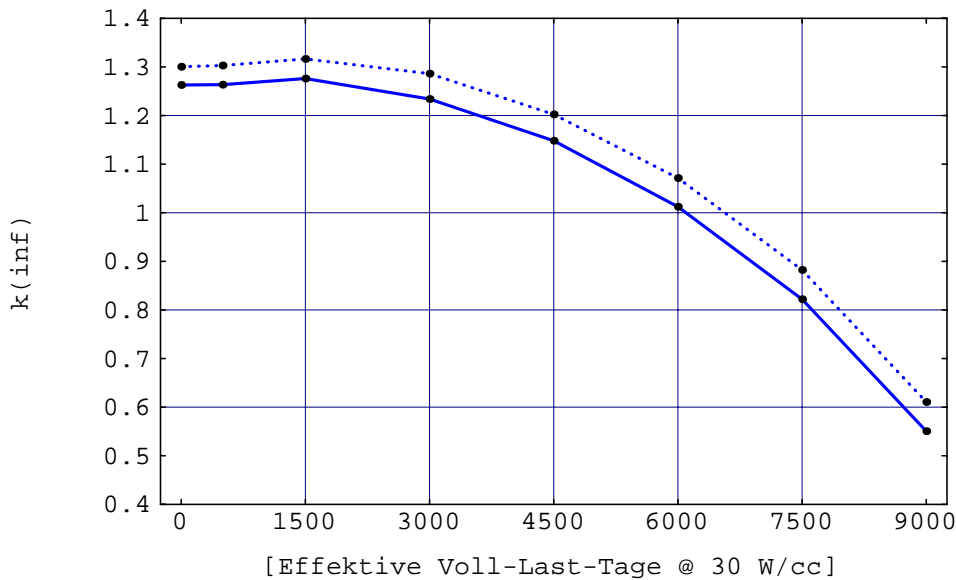


Abbildung 6.5: Entwicklung des k_{∞} für Brennstoff-Typ 015E125. Mit 500 ppm Bor im Moderator (—) und ohne Borierung (···). $W/cc = W/cm^3_{\text{Fuel}}$.

annähernd linearer Reaktivitätsverlust. Abb. 6.6 zeigt, daß bei einer vergleichbaren Reaktivität des abgebrannten Brennstoffs eine zusätzliche Bestrahlung von ca. 2000 Tagen für den Typ 015E125 möglich ist.¹⁰ Durch eine zweite Vergleichsrechnung, die einen Brennstoff bei Entzug des Absorbermaterials simuliert, wird weiterhin deutlich, daß auch bei Bestrahlungs-ende signifikante Reaktivitätsreserven durch die aus dem Europium entstandenen Nuklide gebunden werden.

6.3.2 Totaler Neutronenfluß

Bei vorgegebener Leistungsdichte nimmt der totale Neutronenfluß

$$\phi_{\text{tot}} = \int_0^{\infty} \phi(E) dE$$

aufgrund des Reaktivitätsverlusts des Brennstoffs im Laufe der Bestrahlung zu. Da die Leistungsdichte bei diesem Konzept ca. $10 \times$ unter dem Wert eines kommerziellen Reaktors liegt, reduziert sich auch ϕ_{tot} näherungsweise um diesen Faktor. Der totale Neutronenfluß ist bei $2\text{--}8 \times 10^{13} \text{ cm}/(\text{cm}^3 \text{ s})$ angesiedelt.

Während der ersten 6000 Tage sind nur relativ schwache Korrekturen des Neutronenflusses notwendig. Da für höhere Abbrände das k_{∞} der Konfiguration unter Eins sinkt, ist ein überproportionales Anheben des Flusses notwendig, um eine konstante Spaltrate zu

¹⁰Eine Bestrahlung von 2000 Tagen entspricht bei 30 W/cm^3 einem zusätzlichen Abbrand von ca. 167 MWd/kg(WPu).

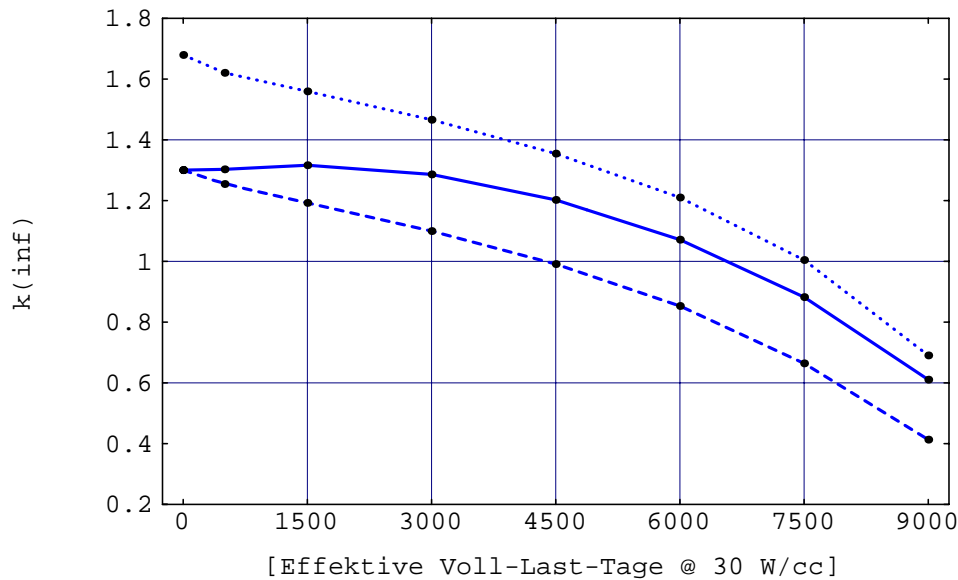


Abbildung 6.6: Einfluß des brennbaren Neutronengifts auf die Entwicklung des k_{∞} . Brennstoff-Typen: O15E125 (—) und M15W125 (- -). Zum Vergleich: Abbrandabhängige Entwicklung des k_{∞} bei Entzug des Absorbermaterials (\cdots).

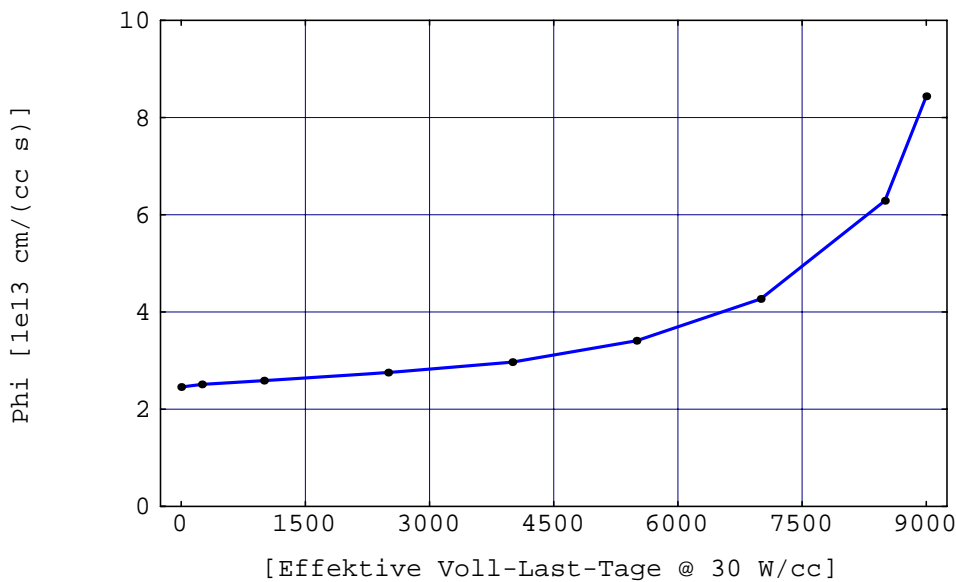
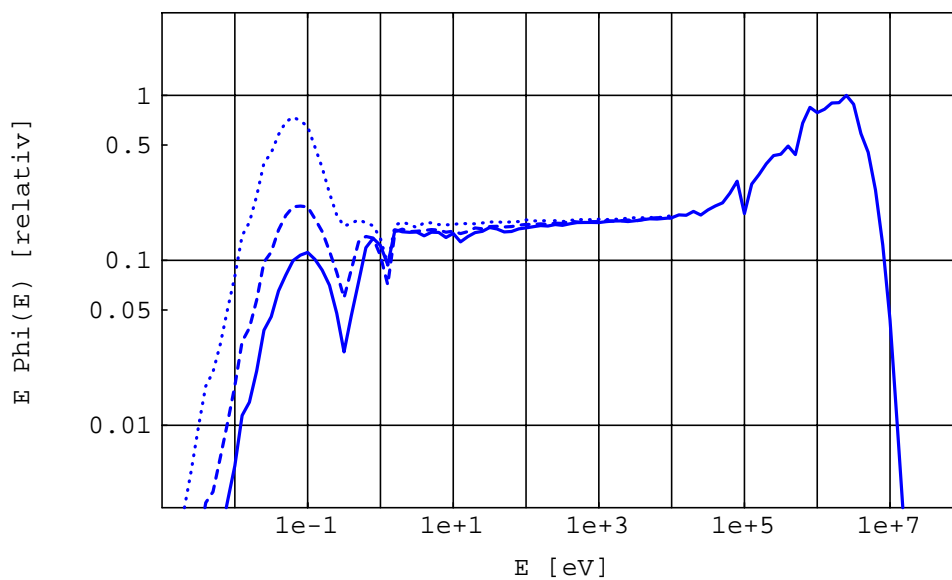
gewährleisten (Abb. 6.7). Da der Neutronenfluß in einem Brennelement nicht unabhängig von den Werten in den angrenzenden Elementen beeinflusst werden kann, ergibt sich unter Umständen, daß in stark abgebranntem Brennstoff nicht mehr die gewünschte Leistungsdichte aufrechterhalten werden kann.¹¹

6.3.3 Neutronenspektrum

Durch den Abbau des Plutoniums, das durch einen ungewöhnlich hohen thermischen Wirkungsquerschnitt charakterisiert ist, gewinnt der thermische Anteil des Neutronenspektrums im Laufe der Bestrahlung an Bedeutung (Abb. 6.8).¹² Deutlich sichtbar ist außerdem der Einbruch des Neutronenflusses bei 0.28 eV, der auf die Resonanz des in hoher Konzentration vorliegenden Pu-239 im frischen Brennstoff zurückzuführen ist. Bedingt durch den Abbau des Pu-239, reduziert sich dieser Effekt im Laufe der Bestrahlung und verschwindet schließlich völlig.

¹¹Vgl. dazu auch Paragraph 7.2.2.

¹²Der gleiche Effekt wird auch bei MOX-Brennstoff beobachtet; der entgegengesetzte Effekt, d. h. eine Härtung des Spektrums durch den Aufbau von Plutonium, ergibt sich für LEU-Brennstoff.

Abbildung 6.7: Abbrandabhängige Entwicklung des ϕ_{tot} .Abbildung 6.8: Abbrandabhängige Entwicklung des Neutronenspektrums. Brennstoff 015E125 frisch (—), nach 4500 Tagen (- -) und nach 9000 Tagen (...). $1e\pm x = 10^{\pm x}$.

6.3.4 Nuklidkonzentrationen

In den Abbildungen 6.10 bis 6.15 ist der abbrandabhängige Konzentrationsverlauf der wesentlichen Aktiniden dargestellt;¹³ in Tabelle 6.3 sind außerdem numerische Daten zu dis-

¹³In den Abbildungen bedeutet: $1e\pm x = 10^{\pm x}$.

kreten Zeitpunkten für alle relevanten Isotope des Urans, Neptuniums, Plutoniums, Americiums und Curiums angegeben. Auch bei maximalem Abbrand des Brennstoffs setzt sich das Aktinideninventar im wesentlichen aus Plutonium-Isotopen zusammen. Dennoch ergeben sich hohe *relative* (nicht: absolute) Konzentrationen für die höheren Aktiniden: ca. 10 % des Aktinideninventars setzen sich aus Americium-Isotopen, ca. 3 % aus Curium-Isotopen zusammen.

6.3.5 Umsatz und Zusammensetzung des Plutoniums

Aufgrund der Fragestellung, die dieser Arbeit zugrunde liegt, sind die Plutonium-Isotope von besonderem Interesse. Der relative Umsatz des Pu-239, des gesamten Plutoniums sowie des Schwermetalls ist in Abb. 6.9 dargestellt. Systematisch vorgegeben ist der lineare Zusammenhang zwischen Bestrahlungsdauer und Schwermetall-Umsatz, da eine fixierte Leistungsdichte mit einer konstanten Spaltrate gleichbedeutend ist.¹⁴ Der Pu-239-Umsatz verläuft für hohe Abbrände flacher, da die Energiefreisetzung nicht mehr durch das Pu-239 dominiert wird.

Pu-Konzentrationen im Brennstoff, Isotopenvektoren sowie Plutoniumbilanzen sind in Tabelle 6.1 für verschiedene Bestrahlungszeiten zusammengestellt. Bei einer Bestrahlung von 9000 Tagen bei $30 \text{ W/cm}^3_{\text{Fuel}}$, was einem Abbrand von 753 MWd/kg(WPu) entspricht, sind ca. 80 % des gesamten Plutonium-Inventars umgesetzt; dabei wird das Pu-239-Inventar um ca. 97 % reduziert. Die entscheidende Frage ist, ob dieser Abbrand, der mit einer hohen Unterreaktivität des Brennstoffs verbunden ist (Abb. 6.5), tatsächlich erreicht werden kann. Dieses Problem wird in Kapitel 7 näher beleuchtet.

Zum Gebrauch in Kernwaffen: Die statische kritische Masse der Pu-Zusammensetzung bei einem Abbrand von 750 MWd/kg(WPu) ist ca. doppelt so hoch wie für WPu (vgl. Tabelle A.2 in Anhang A); gleichzeitig steigen sowohl der Neutronenhintergrund als auch die Wärmerate einer kritischen Masse mindestens um das 30-fache. Auch wenn dies die Nützlichkeit des Materials für den Gebrauch in Kernwaffen erheblich einschränken mag, soll nicht argumentiert werden, daß das Plutonium nun „kernwaffenuntauglich“ oder „denaturiert“ sei.¹⁵

6.3.6 Effektive Wirkungsquerschnitte

Durch die Änderung des Neutronenspektrums während der Bestrahlung des Brennstoffes und durch den Effekt der Resonanzselbstabschirmung sind die Eingruppen-Querschnitte der neutronen-induzierten Prozesse für alle Nuklide abbrandabhängig. Insbesondere im Fall der Plutonium-Isotope ist diese Abhängigkeit stärker ausgeprägt als bei konventionellen Brennstoffen üblich, da hier erhebliche absolute Änderungen der Nuklidkonzentrationen vorliegen.

¹⁴Dies gilt bei Vernachlässigung von nuklidspezifischen Differenzen der Spaltenergiefreisetzung.

¹⁵Vgl. Seite 10, Fußnote 12.

Zeit	0	8000	8500	9000	[Tage]
Pu-Konzentration	9.0132	2.6066	2.2162	1.8237	[10 ²⁰ at/cm ³]
Pu-238	0.01	4.71	6.14	7.92	[%]
Pu-239	94.05	26.13	19.36	13.20	
Pu-240	5.79	38.71	38.64	36.41	
Pu-241	0.13	19.23	20.39	20.98	
Pu-242	0.02	11.22	15.47	21.48	
Schwermetall-Umsatz		68.11	72.34	76.58	[%]
Totaler Plutonium-Umsatz		71.08	75.41	79.77	[%]
Pu-239-Umsatz		91.96	94.94	97.16	[%]

Tabelle 6.1: Plutoniumkonzentrationen, Isotopenvektoren und Plutoniumbilanzen für verschiedene Abbrände. Die angegebenen Zeiten beziehen sich auf eine Leistungsdichte von 30 W/cm³_{Fuel}. Brennstoff-Typ 015E125 bei einer Borierung des Moderators von 500 ppm. Angaben in Prozent sind Atomprozent.

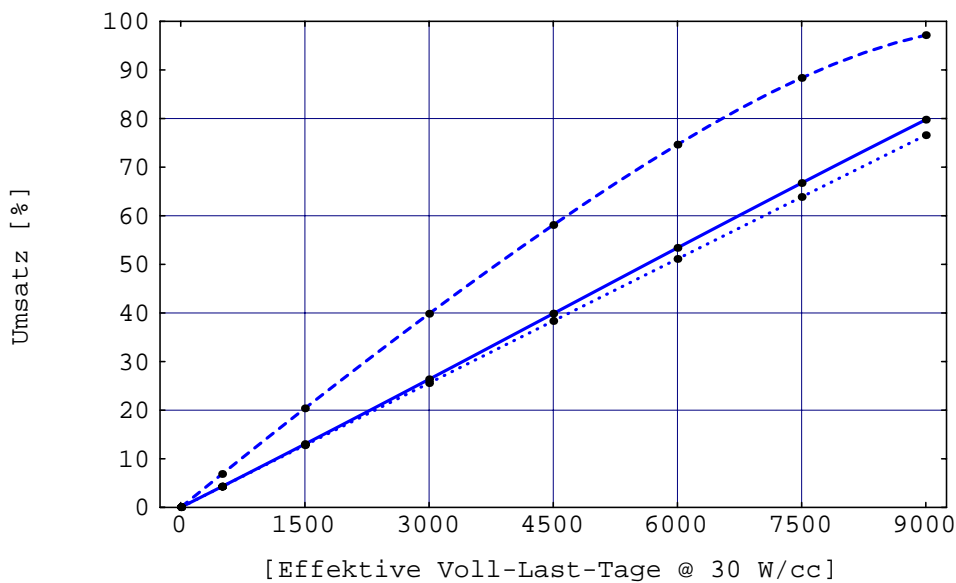


Abbildung 6.9: Prozentualer Umsatz für Brennstoff-Typ 015E125. Umsatz Pu-239 (- -); Umsatz des Gesamt-Plutonium-Inventars (—); Umsatz des Schwermetall-Inventars (···).

Pu-239: Bedingt durch die Thermalisierung des Neutronenspektrums (Abb. 6.8) und die abnehmende Resonanzselbstabschirmung steigen die Eingruppen-Querschnitte des Pu-239 für verschiedene Prozesse deutlich an (Abb. 6.18). Bei max. Bestrahlung ist der Spaltquerschnitt des Pu-239 beispielsweise auf das 4-fache (!) angestiegen.¹⁶

Pu-240: Das Verhalten der Querschnitte des Pu-240, das nach etwa 4500–5500 effektiven Voll-Last-Tagen seine maximale Konzentration erreicht, wird durch den Einfluß der Resonanzselbstabschirmung dominiert: es ergibt sich ein deutliches Minimum der Eingruppen-Querschnitte, das mit dem Maximum der Konzentration zusammenfällt (Abb. 6.19).

Die Eingruppen-Querschnitte der $(n, 2n)$ - und $(n, 3n)$ -Prozesse sind nur sehr schwach von der zeitlichen Entwicklung des Neutronenspektrums betroffen, da sie durch den hochenergetischen Anteil des Spektrums festgelegt sind.

In Tabelle 6.5 sind die Eingruppen-Querschnitte für Spaltung und Neutroneneinfang der wichtigsten Aktinide sowie von Xenon-135 und Samarium-149 zusammengestellt. Wie in Paragraph 6.1 diskutiert, wurden diese Querschnitte abbrandabhängig durch Monte-Carlo-Simulationen gewonnen.

6.3.7 Spaltprodukte

Die Konzentration der 73 explizit berücksichtigten Spaltprodukte sind in Tabelle 6.4 für den Zeitpunkt der max. Bestrahlung zusammengestellt; hierbei ist zu beachten, daß die Isotope des Europiums in diesem Fall keine „natürlichen“ Spaltprodukte darstellen, sondern durch den „künstlichen“ Zusatz im Ausgangsbrennstoff bei vergleichsweise hohen Konzentrationen angesiedelt sind.¹⁷ Die abbrandabhängige Konzentration der Europium-Isotope 151 bis 154 wird in Abb. 6.16 wiedergegeben.

Einen erheblichen Beitrag zum makroskopischen Absorptionsquerschnitt der Spaltprodukte liefert das Xenon-135. Es ist somit wesentlich für die sog. Vergiftung des Brennstoffs in bezug auf dessen Neutronenökonomie verantwortlich. Die Gleichgewichtskonzentration des Xe-135 stellt sich bereits nach wenigen Tagen ein (Abb. 6.17). Durch die Thermalisierung des Neutronenspektrums im Laufe der Bestrahlung steigt der Eingruppen-Querschnitt des Xe-135 auf das max. 5-fache (Tabelle 6.5). Da die Produktionsrate des Xe-135 (im wesentlichen durch den Zerfall des primären Spaltprodukts Jod-135) dabei nahezu konstant bleibt, sinkt die Konzentration des Xenons für große Bestrahlungszeiten, wobei der makroskopische Absorptionsquerschnitt jedoch weiterhin ansteigt.

6.3.8 Materialbelastung

Um die vorliegende Neutronen-Belastung des Brennstabes abzuschätzen, wird der absolute Neutronenfluß über die gesamte Bestrahlungsdauer integriert, so daß man die zurückgelegte

¹⁶Dies verdeutlicht noch einmal die Relevanz einer abbrandabhängigen Bestimmung der effektiven Wirkungsquerschnitte.

¹⁷Dies gilt insb. für die Europium-Isotope 153 bis 156.

Wegstrecke aller Neutronen im Einheitsvolumen erhält. Diese sog. *Fluenz* stellt ein Maß für die Belastung des Materials dar.

Es zeigt sich, daß die Materialbelastung, die sich für den Brennstoff 015E125 ergibt, mit der eines kommerziell eingesetzten Brennstoffs vergleichbar ist — oder sogar darunter liegt (Tabelle 6.2); als Referenzwerte dienen die Belastungen eines MOX-Brennstoffs bei verschiedenen Abbränden.¹⁸

In Paragraph 5.1 wurde ein modifizierter Brennstab definiert, der sich durch eine deutlich verstärkte Brennstabhülle auszeichnet (Wanddicke: 1.823 mm statt 0.573 mm für die Brennstoffe 015E145* und 030E145*). Der Einsatz einer solchen robusten Geometrie kann sich als sinnvoll bzw. notwendig erweisen, falls außergewöhnlich hohe Fluenzen vorliegen. Da dies bei dem hier betrachteten Brennstoff nicht der Fall ist, wurden keine zusätzlichen Abbrandrechnungen für diese modifizierte Geometrie durchgeführt.¹⁹

Anmerkung: Die Fluenz bei maximalem Abbrand ist im wesentlichen von der ursprünglichen Plutoniumkonzentration abhängig, da letztere die Bestrahlungsdauer festlegt. Werden Brennstoffe mit höherer Pu-Konzentration betrachtet, so können die MOX-Referenzwerte überschritten werden; der Einsatz einer verstärkten Brennstabhülle wird in diesem Fall notwendig sein.

	015E125		RPu-MOX			
Abbrand	(627)	(753)	33	42	50	[MWd/kg(SM)]
Bestrahlungsdauer	7500	9000	862	1097	1306	[Tage]
$\langle\phi\rangle$	3.19	3.71	32.42	33.29	34.07	[10^{13} cm/(cm ³ s)]
Freigesetzte Energie	19.44	23.33	24.29	30.92	36.81	[GJ/cm ³]
Fluenz	2.07	2.88	2.41	3.15	3.84	[10^{22} cm/cm ³]

Tabelle 6.2: Materialbelastung bei plutonium-haltigen Brennstoffen: freigesetzte Energie und zurückgelegter Weg pro Volumeneinheit. Die Abbrandwerte für 015E125 und RPu-MOX sind nicht miteinander vergleichbar, da der Brennstoff 015E125 kaum Schwermetall (SM) enthält (MgO- statt UO₂-Matrix.)

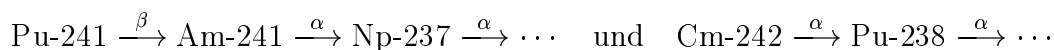
¹⁸Die Daten, die sich für den MOX-Brennstoff ergeben, basieren auf den Rechnungen von [Pis 98].

¹⁹Das Anschwellen des Brennstoffs (engl.: *swelling*) ist in hohem Maße von der Betriebstemperatur abhängig. Generell wird bei niedrigen Temperaturen ein schwächerer Effekt beobachtet; dies kann wiederum ein Argument für die hier gewählte Strategie sein.

6.3.9 Radiotoxizität

Eine umfassende Analyse der Eigenschaften des abgebrannten Brennstoffs 015E125 in bezug auf dessen Radiotoxizität kann im Rahmen dieser Arbeit nicht erfolgen. Insbesondere ist bei einer solchen Analyse, die Zeitabhängigkeit der Brennstoffzusammensetzung nach der Entladung aus dem Reaktor zu berücksichtigen.²⁰ In Anhang B wird dennoch eine Abschätzung angegeben, die unmittelbar nach der Entladung für die Aktiniden gültig ist. Damit ist eine Identifizierung der Nuklide möglich, die die Radiotoxizität in den ersten Jahren dominieren werden; über die jeweiligen Zerfallsketten ist außerdem eine qualitative Abschätzung der langfristigen Entwicklung der Radiotoxizität möglich. Gleichzeitig kann der Brennstoff des Pu-Burners mit anderen Brennstoffen (MOX und LEU) verglichen werden.

Ergebnisse aus Anhang B: Der Absolutwert der Aktiniden-Toxizität²¹ nimmt aufgrund der Bestrahlung des Brennstoffes erheblich — max. um einen Faktor 7.5 — zu. Dies ist auf die niedrige Toxizität des Pu-239 im Vergleich zu einigen sukzessiv aufgebauten Aktiniden zurückzuführen: beispielsweise ist Pu-238 ca. $250 \times$ und Cm-242 ca. $1800 \times$ radiotoxischer als Pu-239.²² Aus diesem Grund ist der Aufbau klein(st)er Mengen dieser Nuklide ausreichend, um eine Reduktion der Toxizität, die sich durch den Abbau des Pu-239 ergeben würde, zu verhindern. Dominiert wird die Radiotoxizität des abgebrannten Brennstoffs unmittelbar nach der Entladung durch Pu-238, Pu-241, Am-241 und Cm-242. Neptunium-Isotope können in den ersten Jahren nach der Entladung vernachlässigt werden; allerdings wird Np-237 aufgrund des späteren Aufbaus durch Zerfall des Am-241 zu einem für die Radiotoxizität bedeutsamen Nuklid. Maßgebend für die (langfristige) Radiotoxizität sind somit die Zerfallsketten



Bei Bezug auf die Nuklid-Konzentration im Brennstoff ist der Absolutwert der Radiotoxizität der Aktiniden bei der Entladung des Brennstoffs 015E125 jedoch immer noch niedriger als die eines frischen RPu-MOX-Brennstoffs. Aussagekräftiger ist der Vergleich mit WPu-MOX: hier sind die Ausgangswerte der Toxizität — bedingt durch die vergleichbare Konzentration des WPu's im Brennstoff — nahezu identisch. Die Toxizität des Brennstoffs 015E125 bei Bestrahlungsende liegt allerdings über der des WPu-MOX. Dies ist naheliegend, da im Fall des WPu-MOX neues Pu-239 aus U-238 erbrütet wird, so daß mehr Energie aus Pu-239 gewonnen werden kann und der Aufbau höherer Plutonium-, Americium- und Curium-Isotope vermieden wird. Detaillierte Zahlen in Anhang B.

Anmerkung: Die Radiotoxizität der Aktinidenzusammensetzung ist mit dessen „Kernwaffentauglichkeit“ korreliert. Die Tatsache, daß sich WPu durch eine vergleichsweise niedrige Radiotoxizität auszeichnet, spiegelt die Tatsache wider, daß ein niedriger Neutronen-

²⁰Ein Konzept zur Bestimmung der zeitabhängigen Entwicklung der Radiotoxizität einer Materialzusammensetzung wurde beispielsweise in [Kir 85] entwickelt.

²¹Die Toxizität der Spaltprodukte wird nicht diskutiert.

²²Zum Vergleich: Pu-239 ist ca. $790\,000 \times$ radiotoxischer als U-238, d. h. als das Material, das als Ausgangsstoff zur Produktion des Pu-239 eingesetzt wurde.

Alpha- und Gamma-Hintergrund vorliegt. Umgekehrt impliziert die hohe Toxizität des bestrahlten Plutoniums „Schwierigkeiten“ für den Gebrauch der entsprechenden Plutonium-Zusammensetzung in Kernwaffen. Insofern ist ein Ansteigen der Toxizität sehr differenziert zu bewerten.

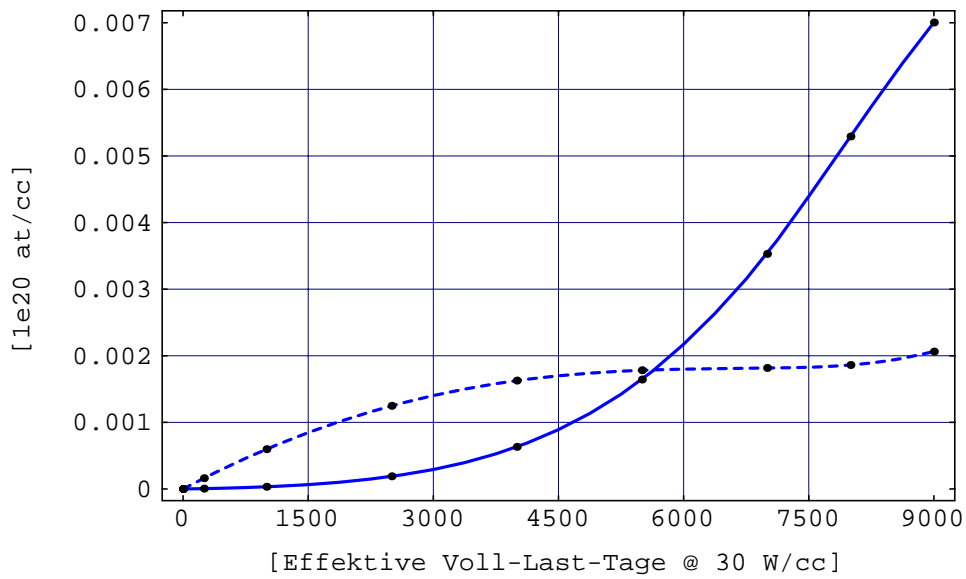


Abbildung 6.10: Konzentration ^{234}U (—) und ^{235}U (- -).

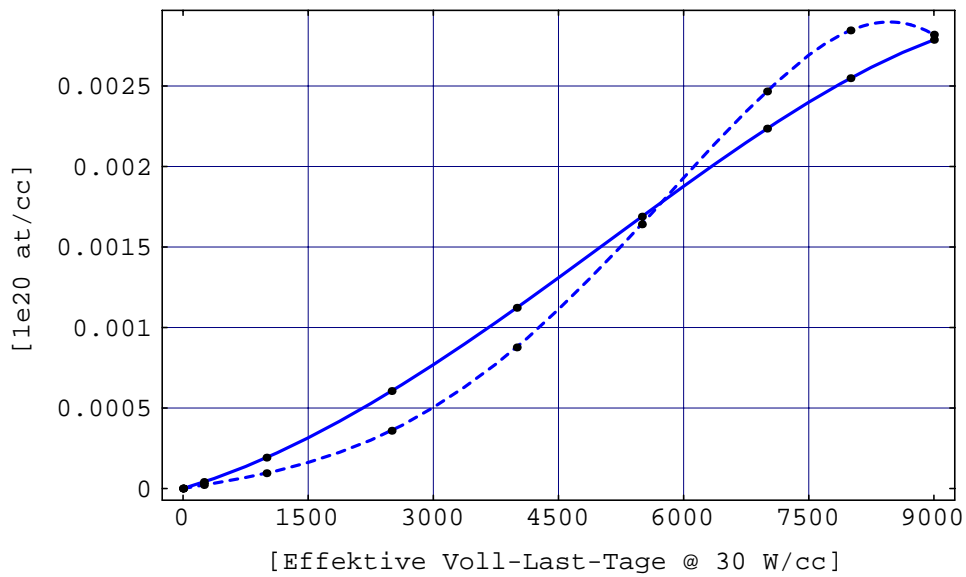


Abbildung 6.11: Konzentration ^{236}U (—) und ^{237}Np (- -).

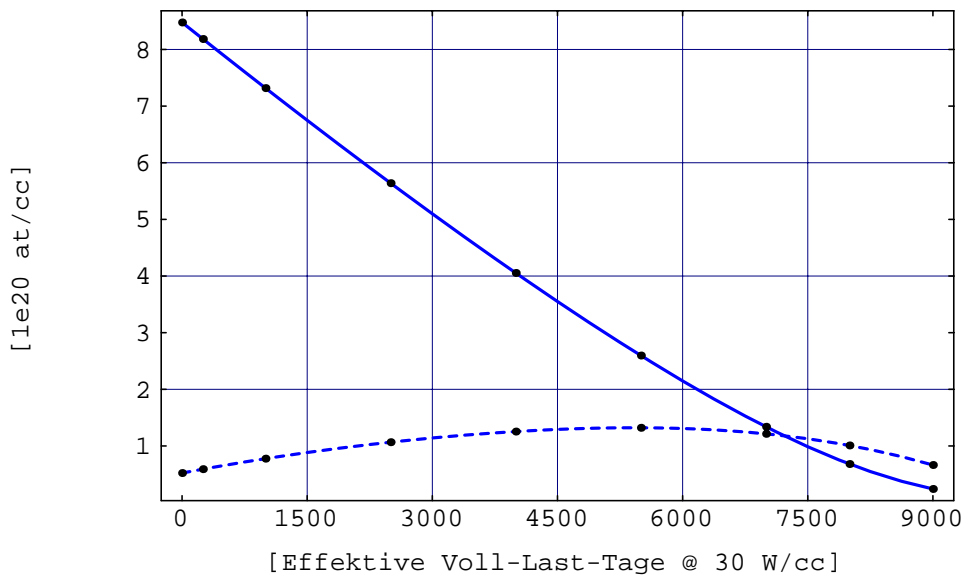


Abbildung 6.12: Konzentration ^{239}Pu (—) und ^{240}Pu (- -).

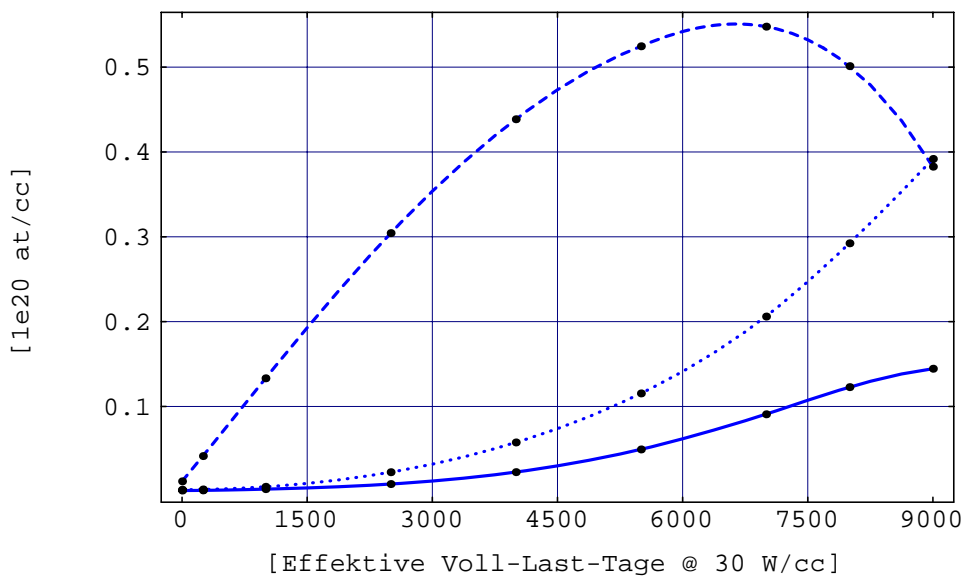


Abbildung 6.13: Konzentration ^{238}Pu (—), ^{241}Pu (- -) und ^{242}Pu (...).

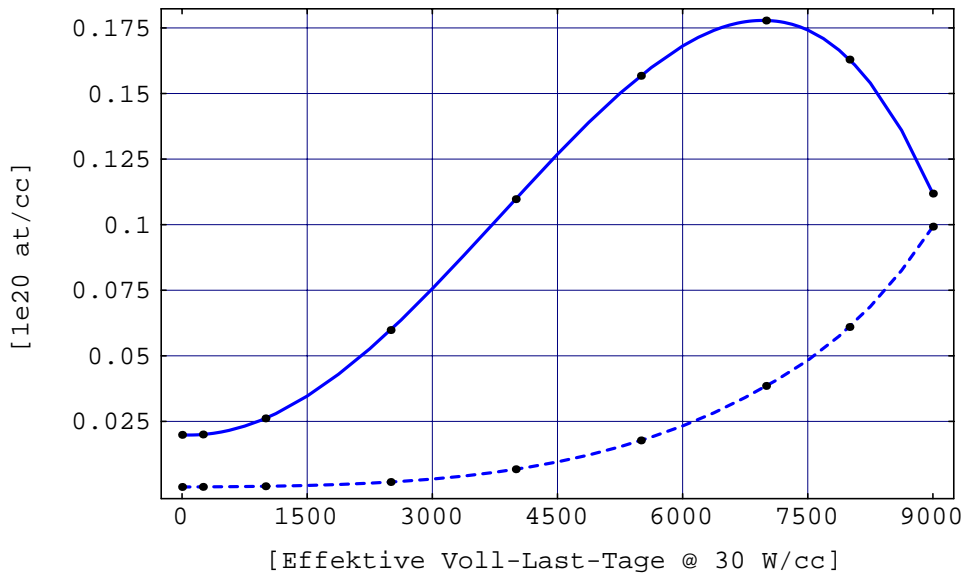


Abbildung 6.14: Konzentration ^{241}Am (—) und ^{243}Am (- -).

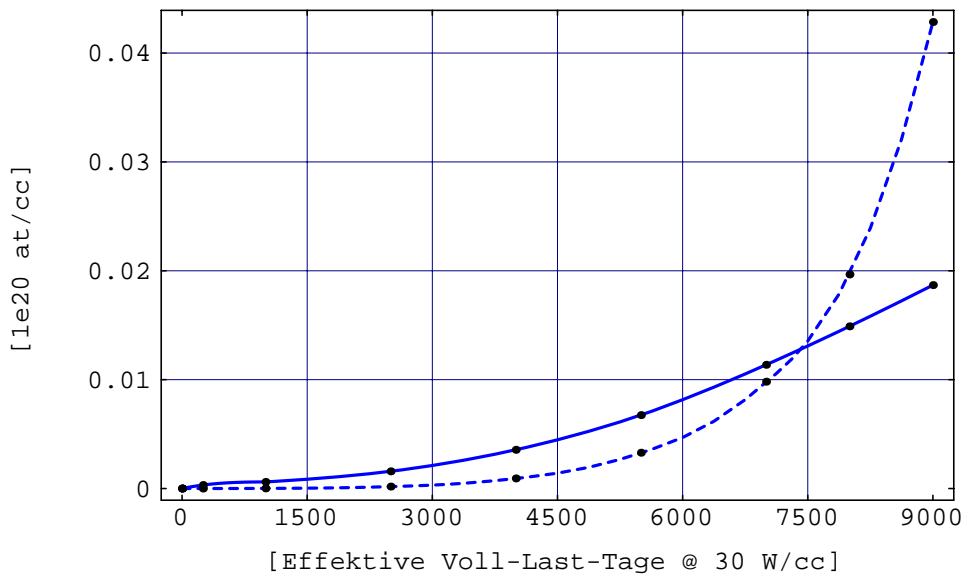


Abbildung 6.15: Konzentration ^{242}Cm (—) und ^{244}Cm (- -).

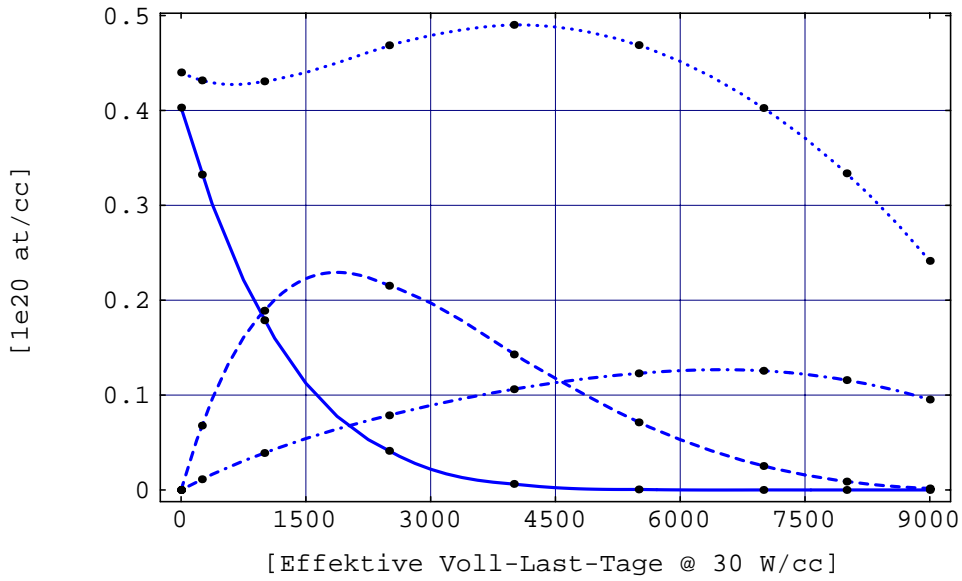


Abbildung 6.16: Konzentration der Europium-Isotope.
 ^{151}Eu (—), ^{152}Eu (- -), ^{153}Eu (...) und ^{154}Eu (-·-).

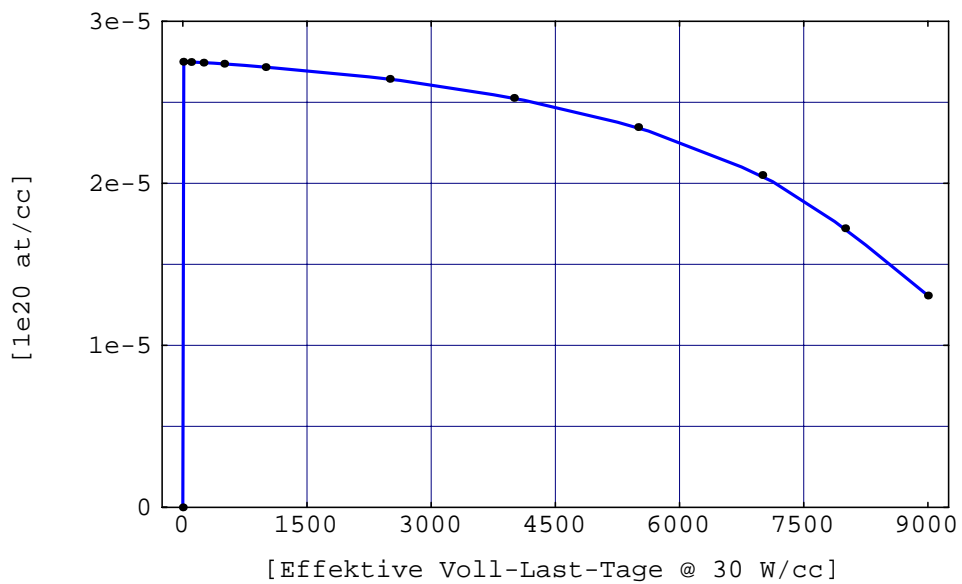


Abbildung 6.17: Konzentration des Xenon-135.

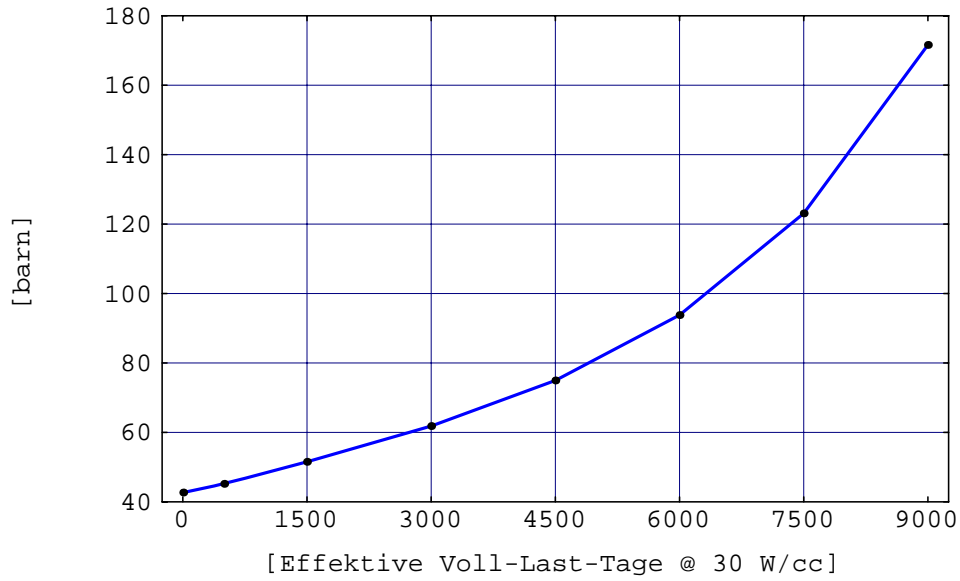


Abbildung 6.18: Abbrandabhängiger (n, f) -Querschnitt des Pu-239.

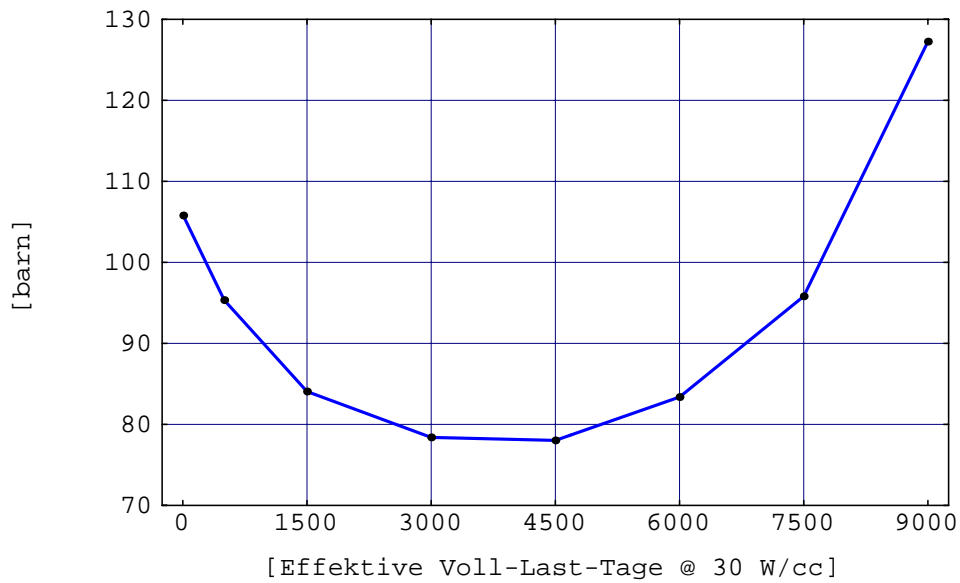


Abbildung 6.19: Abbrandabhängiger (n, γ) -Querschnitt des Pu-240.

Zeit	0	7500	8000	8500	9000	[Tage]
Abbrand	0	627	669	711	753	[MWd/kg(WPu)]
k_{∞} bei 0 ppm Bor	1.30	0.88	0.80	0.71	0.61	
k_{∞} bei 500 ppm Bor	1.26	0.82	0.74	0.65	0.55	
Uran						
Konzentration		0.0086	0.0097	0.0108	0.0119	[10^{20} at/cm ³]
Schwermetall-Anteil		0.26	0.34	0.43	0.56	[%]
U-234		50.65	54.53	57.41	59.05	[%]
U-235		21.47	19.17	17.79	17.39	
U-236		27.84	26.25	24.75	23.49	
U-237		0.01	0.01	0.01	0.02	
U-238		0.04	0.04	0.04	0.05	
Neptunium						
Konzentration		0.0027	0.0029	0.0029	0.0028	[10^{20} at/cm ³]
Schwermetall-Anteil		0.08	0.10	0.12	0.13	[%]
Np-237		99.95	99.94	99.92	99.90	[%]
Np-238		0.05	0.06	0.07	0.10	
Plutonium						
Konzentration	9.0132	2.9985	2.6066	2.2162	1.8237	[10^{20} at/cm ³]
Schwermetall-Anteil	99.78	91.86	90.47	88.71	86.20	[%]
Pu-238	0.01	3.58	4.71	6.14	7.92	[%]
Pu-239	94.05	32.91	26.13	19.36	13.20	
Pu-240	5.79	37.30	38.71	38.64	36.41	
Pu-241	0.13	18.05	19.23	20.39	20.98	
Pu-242	0.02	8.15	11.22	15.47	21.48	

Fortsetzung →

Zeit	0	7500	8000	8500	9000	[Tage]
Abbrand	0	627	669	711	753	[MWd/kg(WPu)]
k_{∞} bei 0 ppm Bor	1.30	0.88	0.80	0.71	0.61	
k_{∞} bei 500 ppm Bor	1.26	0.82	0.74	0.65	0.55	
Americium						
Konzentration	0.0199	0.2256	0.2259	0.2209	0.2126	[10^{20} at/cm ³]
Schwermetall-Anteil	0.22	6.91	7.84	8.84	10.05	[%]
Am-241	100.00	76.79	72.12	64.40	52.62	[%]
Am-242		0.03	0.03	0.04	0.04	
Am-242m		0.97	0.85	0.77	0.64	
Am-243		22.20	27.00	34.79	46.69	
Am-244				0.01	0.01	
Curium						
Konzentration		0.0290	0.0361	0.0474	0.0648	[10^{20} at/cm ³]
Schwermetall-Anteil		0.89	1.25	1.90	3.06	[%]
Cm-242		46.53	41.32	36.03	28.85	[%]
Cm-243		1.29	1.23	1.14	1.02	
Cm-244		49.53	54.55	59.53	66.17	
Cm-245		2.36	2.47	2.71	3.13	
Cm-246		0.29	0.43	0.58	0.80	
Cm-247			0.01	0.01	0.01	
Schwermetall-Umsatz		63.86	68.11	72.34	76.58	[%]
Totaler Plutonium-Umsatz		66.73	71.08	75.41	79.77	[%]
Pu-239-Umsatz		88.36	91.96	94.94	97.16	[%]

Tabelle 6.3: Nuklidkonzentrationen, Isotopenvektoren und Plutoniumbilanzen für verschiedene Abbrände. Brennstoff 015E125 bei einer Borierung des Wassers von 500 ppm. Die angegebenen Zeiten beziehen sich auf eine Leistungsdichte von $30 \text{ W/cm}^3_{\text{Fuel}}$. Angaben in Prozent sind Atomprozent.

Nuklid	Konzentration [$\frac{10^{20} \text{ at}}{\text{cm}^3}$]	Nuklid	Konzentration [$\frac{10^{20} \text{ at}}{\text{cm}^3}$]	Nuklid	Konzentration [$\frac{10^{20} \text{ at}}{\text{cm}^3}$]
Kr 83	2.645e-02	Cd 110	1.179e-01	Nd 143	1.955e-01
		111	2.544e-02	144	3.608e-01
Sr 90	9.702e-02	113	3.811e-05	145	1.835e-01
				147	2.650e-04
Zr 93	2.514e-01	In 115	2.083e-03	148	1.182e-01
96	3.347e-01				
		I 127	3.109e-02	Pm 147	1.488e-02
Mo 95	3.049e-01	129	9.112e-02	148	5.442e-05
97	3.519e-01	131	3.005e-04	149	3.729e-05
98	4.121e-01	135	2.043e-05	151	1.071e-05
99	1.813e-04				
100	4.709e-01	Xe 131	1.555e-01	Sm 147	6.646e-02
		132	4.477e-01	148	6.166e-02
Tc 99	3.596e-01	133	3.993e-04	149	1.964e-04
		135	1.307e-05	150	7.133e-02
Ru 101	4.026e-01	136	5.989e-01	151	1.757e-03
102	4.480e-01			152	3.650e-02
103	3.074e-03	Cs 133	3.853e-01		
104	4.314e-01	134	2.835e-02	Eu 151	4.887e-06
105	1.228e-05	135	3.675e-01	152	1.599e-03
106	2.151e-02	137	3.400e-01	153	2.415e-01
				154	9.533e-02
Rh 103	2.859e-01	Ba 137	1.065e-01	155	2.720e-02
105	9.594e-05			156	2.781e-03
106	2.077e-08	La 139	3.726e-01		
				Gd 154	1.524e-01
Pd 105	3.729e-01	Ce 141	1.791e-03	155	8.734e-04
106	2.814e-02	144	1.234e-02	156	4.431e-01
107	2.333e-01			157	9.328e-05
108	1.672e-01	Pr 141	3.449e-01	158	2.812e-02
		143	6.608e-04		
Ag 109	1.346e-01				

Tabelle 6.4: Konzentration der wichtigsten Spaltprodukte nach 9000 Tagen.

	0 d	5 d	500 d	1500 d	3000 d	4500 d	6000 d	7500 d	9000 d	
Uran 234										
σ_f	0.58	0.58	0.58	0.57	0.57	0.56	0.55	0.54	0.52	[b]
σ_γ	23.18	23.26	23.18	24.21	24.77	25.92	27.35	29.84	34.58	[b]
N	—	9.77e-08	1.21e-05	6.70e-05	2.94e-04	8.89e-04	2.16e-03	4.36e-03	7.00e-03	[1e20 at/cc]
Σ_a	—	2.33e-10	2.86e-08	1.66e-07	7.44e-07	2.35e-06	6.02e-06	1.32e-05	2.46e-05	[1/cm]
Uran 235										
σ_f	24.82	24.83	26.01	29.15	34.44	41.32	51.18	67.80	97.84	[b]
σ_γ	7.12	7.11	7.33	7.84	8.74	9.91	11.57	14.33	19.30	[b]
N	—	3.32e-06	3.16e-04	8.46e-04	1.40e-03	1.70e-03	1.80e-03	1.85e-03	2.06e-03	[1e20 at/cc]
Σ_a	—	1.06e-08	1.05e-06	3.13e-06	6.06e-06	8.72e-06	1.13e-05	1.52e-05	2.42e-05	[1/cm]
Uran 236										
σ_f	0.38	0.38	0.38	0.37	0.37	0.36	0.35	0.33	0.31	[b]
σ_γ	11.53	11.15	11.15	11.08	10.90	10.87	10.75	10.44	10.47	[b]
N	—	7.57e-07	8.62e-05	3.15e-04	7.68e-04	1.31e-03	1.88e-03	2.39e-03	2.79e-03	[1e20 at/cc]
Σ_a	—	8.73e-10	9.93e-08	3.60e-07	8.66e-07	1.47e-06	2.08e-06	2.58e-06	3.01e-06	[1/cm]
Uran 237										
σ_f	0.59	0.59	0.59	0.60	0.61	0.63	0.65	0.68	0.75	[b]
σ_γ	22.63	22.64	23.58	26.30	30.69	36.40	44.50	58.19	83.01	[b]
N	—	1.88e-10	2.26e-08	8.57e-08	2.23e-07	4.06e-07	6.81e-07	1.12e-06	2.07e-06	[1e20 at/cc]
Σ_a	—	4.38e-13	5.45e-11	2.30e-10	6.99e-10	1.50e-09	3.07e-09	6.62e-09	1.73e-08	[1/cm]
Uran 238										
σ_f	0.12	0.12	0.12	0.12	0.11	0.11	0.11	0.10	0.09	[b]
σ_γ	8.75	8.70	8.89	8.87	8.91	8.91	8.84	8.53	8.15	[b]
N	—	4.61e-11	5.88e-09	3.67e-08	1.95e-07	6.09e-07	1.46e-06	3.02e-06	5.92e-06	[1e20 at/cc]
Σ_a	—	4.06e-14	5.30e-12	3.29e-11	1.76e-10	5.50e-10	1.30e-09	2.61e-09	4.88e-09	[1/cm]

Fortsetzung →

	0 d	5 d	500 d	1500 d	3000 d	4500 d	6000 d	7500 d	9000 d	
Neptunium 237										
σ_f	0.60	0.60	0.60	0.59	0.58	0.57	0.55	0.52	0.47	[b]
σ_γ	28.38	28.53	29.29	31.06	33.35	35.92	39.13	44.25	53.13	[b]
N	—	4.37e-07	4.42e-05	1.60e-04	5.00e-04	1.11e-03	1.92e-03	2.68e-03	2.82e-03	[1e20 at/cc]
Σ_a	—	1.27e-09	1.32e-07	5.08e-07	1.70e-06	4.04e-06	7.62e-06	1.20e-05	1.51e-05	[1/cm]
Neptunium 238										
σ_f	105.85	105.86	110.24	122.51	142.94	169.46	207.26	270.24	383.05	[b]
σ_γ	4.70	4.70	4.91	5.50	6.47	7.73	9.54	12.55	17.96	[b]
N	—	4.09e-11	8.52e-09	3.36e-08	1.22e-07	3.19e-07	7.06e-07	1.42e-06	2.76e-06	[1e20 at/cc]
Σ_a	—	4.52e-13	9.81e-11	4.30e-10	1.82e-09	5.65e-09	1.53e-08	4.00e-08	1.11e-07	[1/cm]

Fortsetzung →

	0 d	5 d	500 d	1500 d	3000 d	4500 d	6000 d	7500 d	9000 d	
Plutonium 238										
σ_f	2.08	2.07	2.09	2.17	2.29	2.45	2.67	3.07	3.80	[b]
σ_γ	18.53	18.45	19.56	22.38	27.13	33.31	42.22	57.36	85.24	[b]
N	9.03e-04	9.03e-04	1.50e-03	3.99e-03	1.21e-02	3.00e-02	6.19e-02	1.07e-01	1.44e-01	[1e20 at/cc]
Σ_a	1.86e-06	1.85e-06	3.25e-06	9.81e-06	3.57e-05	1.07e-04	2.78e-04	6.49e-04	1.29e-03	[1/cm]
Plutonium 239										
σ_f	42.72	42.68	45.19	51.53	61.82	74.96	93.80	123.08	171.60	[b]
σ_γ	22.44	22.39	23.67	26.80	31.85	38.28	47.39	61.03	82.38	[b]
N	8.48e+00	8.47e+00	7.89e+00	6.75e+00	5.10e+00	3.55e+00	2.15e+00	9.87e-01	2.41e-01	[1e20 at/cc]
Σ_a	5.52e-02	5.51e-02	5.44e-02	5.29e-02	4.78e-02	4.02e-02	3.04e-02	1.82e-02	6.11e-03	[1/cm]
Plutonium 240										
σ_f	0.65	0.65	0.64	0.63	0.62	0.61	0.59	0.56	0.52	[b]
σ_γ	105.45	105.79	95.34	84.06	78.39	78.02	83.38	95.81	127.25	[b]
N	5.22e-01	5.24e-01	6.54e-01	8.78e-01	1.13e+00	1.28e+00	1.30e+00	1.12e+00	6.64e-01	[1e20 at/cc]
Σ_a	5.54e-03	5.57e-03	6.27e-03	7.43e-03	8.94e-03	1.01e-02	1.09e-02	1.08e-02	8.48e-03	[1/cm]
Plutonium 241										
σ_f	56.03	56.07	58.61	65.43	77.02	91.89	113.32	147.83	208.23	[b]
σ_γ	19.70	19.72	20.62	23.15	27.35	32.75	40.54	53.03	74.73	[b]
N	1.17e-02	1.23e-02	7.38e-02	1.99e-01	3.63e-01	4.81e-01	5.48e-01	5.41e-01	3.83e-01	[1e20 at/cc]
Σ_a	8.83e-05	9.33e-05	5.85e-04	1.77e-03	3.79e-03	6.00e-03	8.44e-03	1.09e-02	1.08e-02	[1/cm]
Plutonium 242										
σ_f	0.50	0.50	0.50	0.49	0.48	0.47	0.46	0.43	0.39	[b]
σ_γ	38.99	38.69	39.73	38.51	37.45	36.66	33.09	29.88	26.43	[b]
N	1.81e-03	1.81e-03	2.85e-03	9.33e-03	3.20e-02	7.39e-02	1.41e-01	2.44e-01	3.92e-01	[1e20 at/cc]
Σ_a	7.13e-06	7.09e-06	1.15e-05	3.64e-05	1.22e-04	2.74e-04	4.72e-04	7.41e-04	1.05e-03	[1/cm]

Fortsetzung →

	0 d	5 d	500 d	1500 d	3000 d	4500 d	6000 d	7500 d	9000 d	
Americium 241										
σ_f	0.94	0.94	0.94	0.96	0.99	1.03	1.09	1.18	1.33	[b]
σ_γ	65.58	65.59	67.02	71.81	79.07	88.80	102.49	124.39	161.18	[b]
N	1.99e-02	1.99e-02	2.11e-02	3.47e-02	7.55e-02	1.27e-01	1.68e-01	1.73e-01	1.12e-01	[1e20 at/cc]
Σ_α	1.32e-04	1.32e-04	1.44e-04	2.52e-04	6.04e-04	1.14e-03	1.74e-03	2.18e-03	1.82e-03	[1/cm]
Americium 242m										
σ_f	303.10	303.20	319.75	365.27	441.11	539.12	678.96	909.62	1318.12	[b]
σ_γ	59.13	59.15	62.58	71.93	87.49	107.56	136.20	183.40	266.92	[b]
N	—	1.38e-06	1.19e-04	3.31e-04	8.34e-04	1.53e-03	2.13e-03	2.19e-03	1.35e-03	[1e20 at/cc]
Σ_α	—	5.00e-08	4.57e-06	1.45e-05	4.41e-05	9.91e-05	1.73e-04	2.40e-04	2.14e-04	[1/cm]
Americium 243										
σ_f	0.49	0.49	0.49	0.48	0.47	0.46	0.45	0.42	0.38	[b]
σ_γ	57.91	58.59	57.75	57.55	57.43	57.17	57.59	58.62	59.84	[b]
N	—	7.07e-07	9.55e-05	5.96e-04	3.12e-03	9.74e-03	2.40e-02	5.01e-02	9.92e-02	[1e20 at/cc]
Σ_α	—	4.17e-09	5.56e-07	3.46e-06	1.81e-05	5.62e-05	1.39e-04	2.96e-04	5.98e-04	[1/cm]

Fortsetzung →

	0 d	5 d	500 d	1500 d	3000 d	4500 d	6000 d	7500 d	9000 d	
Curium 242										
σ_f	0.51	0.51	0.51	0.52	0.54	0.57	0.61	0.68	0.81	[b]
σ_γ	5.37	5.38	5.38	5.57	5.75	5.90	6.12	6.54	7.05	[b]
N	—	8.24e-06	4.53e-04	8.34e-04	2.17e-03	4.57e-03	8.28e-03	1.35e-02	1.87e-02	[1e20 at/cc]
Σ_a	—	4.85e-09	2.67e-07	5.08e-07	1.37e-06	2.95e-06	5.57e-06	9.73e-06	1.47e-05	[1/cm]
Curium 243										
σ_f	44.45	44.47	45.81	49.67	56.15	64.59	76.50	96.54	132.66	[b]
σ_γ	13.88	13.87	14.64	16.72	20.22	24.75	31.28	42.29	62.41	[b]
N	—	2.00e-10	1.66e-06	8.37e-06	3.09e-05	8.31e-05	1.87e-04	3.75e-04	6.64e-04	[1e20 at/cc]
Σ_a	—	1.17e-12	1.01e-08	5.56e-08	2.36e-07	7.42e-07	2.01e-06	5.20e-06	1.29e-05	[1/cm]
Curium 244										
σ_f	1.03	1.03	1.03	1.02	1.02	1.02	1.01	0.98	0.94	[b]
σ_γ	16.25	16.52	16.27	16.36	17.19	17.81	17.88	17.68	17.36	[b]
N	—	1.63e-10	2.75e-06	3.99e-05	3.43e-04	1.50e-03	4.95e-03	1.43e-02	4.29e-02	[1e20 at/cc]
Σ_a	—	2.87e-13	4.77e-09	6.94e-08	6.25e-07	2.83e-06	9.34e-06	2.68e-05	7.84e-05	[1/cm]
Curium 245										
σ_f	74.35	74.33	78.01	88.18	105.29	127.60	159.66	214.11	314.04	[b]
σ_γ	13.88	13.87	14.64	16.72	20.22	24.75	31.28	42.29	62.41	[b]
N	—	5.42e-15	1.56e-08	5.79e-07	8.35e-06	5.07e-05	2.08e-04	6.82e-04	2.03e-03	[1e20 at/cc]
Σ_a	—	4.78e-17	1.45e-10	6.08e-09	1.05e-07	7.72e-07	3.98e-06	1.75e-05	7.64e-05	[1/cm]
Curium 246										
σ_f	0.64	0.64	0.64	0.63	0.62	0.61	0.59	0.57	0.53	[b]
σ_γ	4.52	4.45	4.44	4.42	4.34	4.36	4.23	4.07	4.01	[b]
N	—	6.78e-16	5.83e-11	6.54e-09	2.00e-07	2.13e-06	1.47e-05	8.54e-05	5.20e-04	[1e20 at/cc]
Σ_a	—	3.45e-19	2.96e-14	3.30e-12	9.92e-11	1.06e-09	7.10e-09	3.96e-08	2.36e-07	[1/cm]

Fortsetzung →

	0 d	5 d	500 d	1500 d	3000 d	4500 d	6000 d	7500 d	9000 d	
Xenon 135										
σ_γ	91756	91865	98275	115805	145449	183795	239093	331771	499572	[b]
N	—	2.75e-05	2.74e-05	2.70e-05	2.62e-05	2.48e-05	2.27e-05	1.92e-05	1.31e-05	[1e20 at/cc]
Σ_a	—	2.53e-04	2.69e-04	3.13e-04	3.81e-04	4.56e-04	5.44e-04	6.38e-04	6.53e-04	[1/cm]
Samarium 149										
σ_γ	2653	2651	2806	3243	3969	4919	6265	8494	12421	[b]
N	—	2.36e-05	1.56e-03	1.48e-03	1.19e-03	8.97e-04	6.28e-04	3.92e-04	1.96e-04	[1e20 at/cc]
Σ_a	—	6.27e-06	4.38e-04	4.82e-04	4.72e-04	4.41e-04	3.93e-04	3.33e-04	2.44e-04	[1/cm]

Tabelle 6.5: Abbrandabhängige Eingruppen-Querschnitte für Spaltung und Neutroneneinfang der wichtigsten Nuklide für den Brennstoff 015E125 bei einer Borierung von 500 ppm. Tage sind effektive Voll-Last-Tage bei $30 \text{ W/cm}_{\text{Fuel}}^3$. Der makroskopische Absorptionsquerschnitt Σ_a ergibt sich aus $N(\sigma_f + \sigma_\gamma)$, bzw. aus $N \sigma_\gamma$. $1e20 \text{ at/cc} = 10^{20} \text{ at/cm}_{\text{Fuel}}^3$.

Kapitel 7

Potential eines Pu-Burners

DIE ZELLABBRANDRECHNUNGEN des vorangegangenen Kapitels wurden für eine Einheitszelle bestehend aus Brennstab und umgebenden Moderator im unendlichen Gitter durchgeführt. Aufgrund der Tatsache, daß eine typische Reaktorkonfiguration aus einer sehr großen Anzahl ($> 50\,000$) solcher Einheitszellen zusammengesetzt ist,¹ können Randeffekte in erster Näherung vernachlässigt werden. Solche Zellabbrandrechnungen erlauben daher bereits relevante Aussagen in bezug auf das endliche System. Bisher mußte allerdings offengelassen werden, ob der im letzten Kapitel angegebene maximale Abbrand tatsächlich erreicht werden kann. Alle Überlegungen, die in den Paragraphen 7.1 und 7.2 angestellt werden, sollen dieses Problem genauer untersuchen. Diese Überlegungen sind allerdings keineswegs erschöpfend; sie sollen lediglich den Abbrand begrenzende Faktoren identifizieren sowie prinzipielle Optimierungsmöglichkeiten andeuten.

Anschließend werden die Ergebnisse der Zellabbrandrechnungen auf das Referenzsystem von 1GW_{th} extrapoliert² und relative sowie absolute Umsatzraten angegeben. Diese Zahlen können dann auf eine Eliminierungskampagne von 50 Tonnen WPU übertragen werden.

7.1 Mehrzyklenbetrieb

Aus verschiedenen Gründen wird ein Kernreaktor mit Brennelementen betrieben, die sich durch einen unterschiedlichen Abbrand bzw. Spaltstoffgehalt auszeichnen. Durch diese Strategie wird zum einen der erreichbare Abbrand erhöht, da die Überreaktivität der frischen Elemente, die der abgebrannten ausgleichen kann; zum anderen kann durch geeignete Mischung (engl.: *shuffling*) der Brennelemente eine flache Leistungsverteilung ermöglicht werden, indem zum Beispiel dem radialen Abfall des Neutronenflusses entgegengewirkt wird.

¹Im Fall des Pu-Burner-Konzepts aus Kapitel 3 ist die Anzahl solcher Einheitszellen sogar $> 150\,000$.

²Es werden keine Reaktorabbrandrechnungen durchgeführt, so daß weder Wechselwirkungen zwischen unterschiedlich abgebrannten Brennelementen noch Effekte, die sich aus der endlichen Ausdehnung der Anordnung ergeben, berücksichtigt werden.

Zunächst soll ein stark vereinfachtes Reaktivitätsmodell herangezogen werden, um erste Abschätzungen in bezug auf den erzielbaren Abbrand, die Zyklusdauer usw. zu erhalten. Es schließen sich weitere Überlegungen an, die andeuten wie eine Optimierung des erreichbaren Abbrandes realisiert werden kann (Paragraph 7.2).

7.1.1 Lineares Reaktivitätsmodell

Dem linearen Reaktivitätsmodell nach [Eme 93] liegt die folgende wesentliche Annahme zugrunde: *jedes Brennelement liefere den gleichen Beitrag zur Reaktivität des Gesamtsystems und weise das gleiche lineare Abbrandverhalten auf.* Das Modell kann aufgrund dieser systematischen Einschränkung keine Effekte erfassen, die sich aus der konkreten Anordnung der Brennelemente ergeben. Da alle Elemente äquivalent erfaßt werden, tragen solche im Zentrum und solche in der Peripherie in gleicher Weise zur Neutronenökonomie des Systems bei — dies entspricht nicht den realen Bedingungen.

Sei Z die Anzahl der Zyklen, sowie A_Z und T_Z der Abbrand bzw. die Bestrahlungsdauer pro Zyklus. Zunächst wird der Fall $Z = 1$ betrachtet, so daß alle weiteren Ergebnisse relativ zu T_1 und $A(T_1) = A_1$ angegeben werden können. Der Reaktivitätsverlauf wird für diese einfache Situation durch

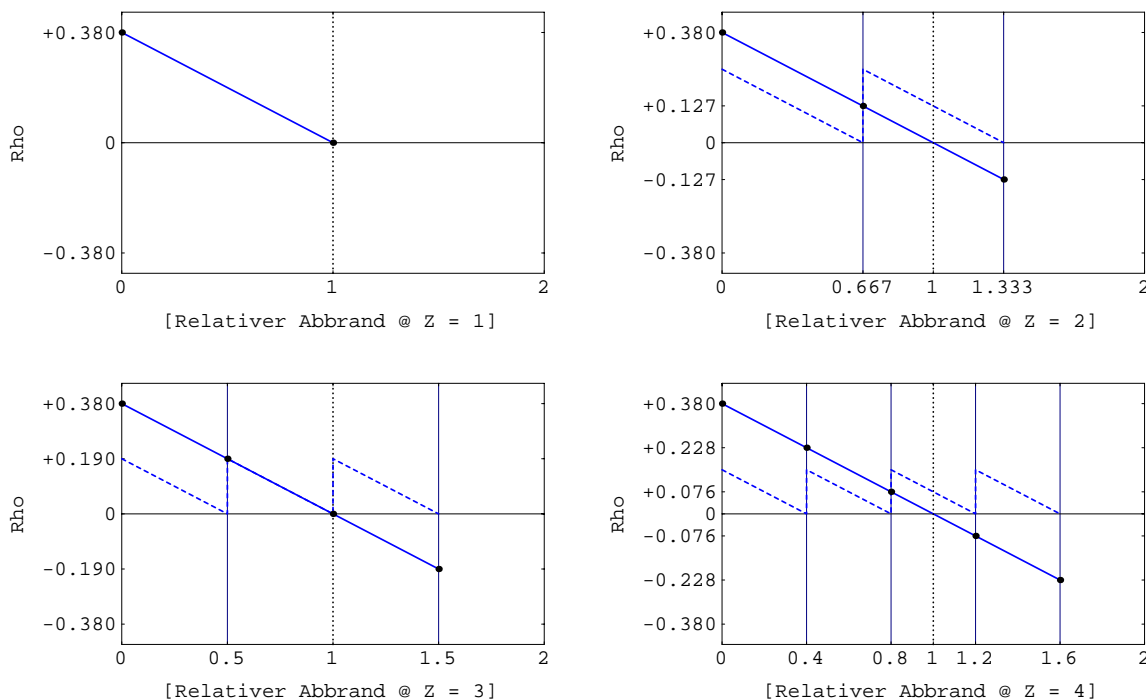


Abbildung 7.1: Lineares Reaktivitätsmodell für einen Mehrzyklenbetrieb. Verlauf von ρ_{max} zu ρ_{min} (—) und resultierende Gesamtreaktivität ρ_{tot} (- -).

Z	Zyklusdauer	Abbrand	$\rho_{\text{tot}}(0)$	ρ_{min}
1	1.000	1.000	+0.380	± 0.000
2	0.667	1.333	+0.253	-0.127
3	0.500	1.500	+0.190	-0.190
4	0.400	1.600	+0.152	-0.228
5	0.333	1.667	+0.127	-0.253
6	0.286	1.714	+0.109	-0.271
\vdots	\vdots	\vdots	\vdots	\vdots
∞	0.000	2.000	± 0.000	-0.380

Tabelle 7.1: Lineares Reaktivitätsmodell [Eme 93].

$$\rho_{\text{tot}}(t) = \rho_{\text{max}} \left[1 - \frac{A(t)}{A_1} \right]$$

beschrieben, wobei ρ_{max} die Überreaktivität des frischen Brennstoffs darstellt. Der Zyklus ist beendet, wenn $\rho_{\text{tot}}(t) = 0$, d. h. bei $t = T_1$. Gilt $Z > 1$, so werden nach der Zyklusdauer T_Z jeweils ein Z 'tel der Brennelemente entladen und — nach Umordnung der verbliebenen Elemente — durch eine gleiche Anzahl frischer Elemente ersetzt. Über einfache Überlegungen, die in Anhang C zusammengestellt sind, läßt sich ein Ausdruck für den Abbrand pro Zyklus $A(T_Z)$ relativ zum Abbrand A_1 bei $Z = 1$ gewinnen.

$$A(T_Z) = \frac{2}{1 + Z} A_1$$

Aufgrund der Voraussetzung eines linearen Abbrandverhaltens des Brennstoffs gilt für den totalen Abbrand $A(Z T_Z) = Z A(T_Z)$ und für die Zyklusdauer $T_Z = (A_Z/A_1) T_1$.

$$A(Z T_Z) = Z A(T_Z) = \frac{2Z}{1 + Z} A_1 \qquad T_Z = \frac{2}{1 + Z} T_1$$

Daraus lassen sich außerdem die Gesamtreaktivität bei Zyklusbeginn sowie die Unterreaktivität des entladenen Brennstoffs bestimmen.

$$\rho_{\text{tot}}(0) = \rho_{\text{max}} \frac{2}{1 + Z} \qquad \rho_{\text{min}} = \rho_{\text{max}} \frac{1 - Z}{1 + Z}$$

Die Bedeutung dieser Beziehungen wird bei Vergleich mit Abb. 7.1 deutlich; numerische Werte sind in Tabelle 7.1 zusammengestellt. Die wesentliche Konsequenz dieses Modells

läßt sich wie folgt zusammenfassen: *die Unterreaktivität der abgebranntesten Brennelemente muß bei $t = T_Z$ durch die Überreaktivität der Elemente erster Generation gerade noch ausgeglichen werden können.* Bei vorgegebenem ρ_{\max} für den frischen Brennstoff sind sowohl der maximale Abbrand als auch die Unterreaktivität des entladenen Brennstoffs systematisch begrenzt.

$$\lim_{Z \rightarrow \infty} \rho_{\min} = -\rho_{\max} \quad \lim_{Z \rightarrow \infty} A(Z T_Z) = 2 A_1$$

Entscheidend für den maximalen Abbrand ist somit das zulässige oder mögliche ρ_{\max} , da dies sowohl die maximale Unterreaktivität bei einer Zyklenzahl $Z > 1$ festlegt als auch implizit den Referenzabbrand A_1 bei $Z = 1$ bestimmt. Eine weitere offensichtliche Konsequenz des Mehrzyklenbetriebs, die über dieses Modell quantitativ abgeschätzt werden kann, ist die abnehmende Überreaktivität $\rho_{\text{tot}}(0) \leq \rho_{\max}$ bei zunehmender Zyklenzahl.

$$\rho_{\text{tot}}(0) = \rho_{\max} \frac{2}{1 + Z}$$

Dies ist für die Langzeitregelung des Reaktors von Bedeutung, da weniger Überschußreaktivität durch Absorber im Kühlmittel oder in Steuerstäben kompensiert werden muß.

7.1.2 Anwendung auf einen nicht-fertilen Plutonium-Brennstoff

Dieses Modell kann zunächst nicht auf den Brennstoff 015E125 angewandt werden, da dieser nicht das notwendige lineare Abbrandverhalten aufweist. Daher wurde eine zusätzliche Zellabbrandrechnung für einen Ersatzbrennstoff durchgeführt: das Europium-151 wurde hierbei durch Europium-153 ersetzt, so daß die absolute Anfangskonzentration des Europiums konstant bleibt. Dieser Ersatzbrennstoff weist einen nahezu linearen Reaktivitätsverlust auf und offenbart gleichzeitig die „implizit vorhandene“ Überreaktivität des ursprünglichen Brennstoffs (Abb. 7.2).³

Der Einsatz dieses Ersatzbrennstoffes ist legitimiert, da die durch das brennbare Neutronengift gebundene Reaktivität im Laufe der Bestrahlung freigegeben wird (Abb. 7.2). Aus diesem Grund ist nicht das ρ_{\max} des frischen Brennstoffs 015E125 für den maximalen Abbrand ausschlaggebend, sondern vielmehr der Wert, der sich durch Ersatz des Eu-151 ergibt: in diesem Fall wird ein ρ_{\max} von +0.380 erreicht, so daß sich beispielsweise für $Z = 5$ ein ρ_{\min} von -0.253 ergibt (Tabelle 7.1). Dies entspricht wiederum einem k_{∞} von 0.798, so daß dieses Modell mit den Berechnungen aus Kapitel 6 (vgl. insb. Tabelle 6.3) eine maximale Bestrahlung von ca. 8000 Tagen bei $30 \text{ W/cm}_{\text{Fuel}}^3$ vorhersagt. Erst für eine große Anzahl von Zyklen wäre auch eine Bestrahlung von 8500 Tagen bei $30 \text{ W/cm}_{\text{Fuel}}^3$ möglich.

³Eine weitere Vergleichsrechnung, bei der das Europium völlig entzogen wird, zeigt, daß auch bei maximalem Abbrand des Brennstoffs 015E125 signifikante „Reaktivitätsreserven“ im Europium (153 und 154) gebunden sind.

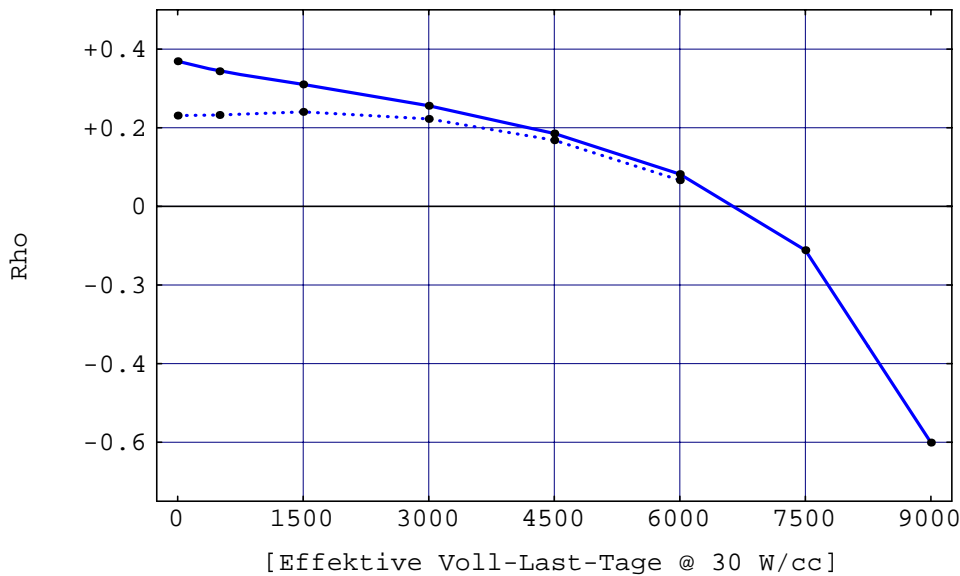


Abbildung 7.2: Reaktivitätsverlust für den Brennstoff 015E125 (···) und für den Ersatzbrennstoff mit Eu-151 → Eu-153 (—). Letzterer erreicht ein ρ_{\max} von 0,38.

Anmerkung: Begünstigend ist allerdings zu beachten, daß die Überreaktivität des Gesamtsystems $\rho_{\text{tot}}(0)$ bei einer hohen Zyklenzahl vergleichsweise niedrig sein wird. Daher könnte ein höheres ρ_{\max} des frischen Brennstoffes gewählt werden, um wiederum eine stärkere Unterreaktivität aufzufangen.

7.2 Möglichkeiten der Optimierung

Oben wurde bereits auf die systematischen Einschränkungen des linearen Reaktivitätsmodells hingewiesen, die sich daraus ergeben, daß jedes Brennelement in gleicher Weise berücksichtigt wird. Hier sollen nun Bedingungen diskutiert werden, die einer realen Situation Rechnung tragen. Auch diese Überlegungen dienen der Klärung der Frage, ob eine Bestrahlung des Brennstoffes 015E125 von bis zu 9000 Tagen möglich ist.

7.2.1 Allgemeines zur Anordnung von Brennelementen

Bei der Beladung von Reaktoren mit frischen Brennelementen werden i. a. die sog. *Außen- und Innenbeladung* unterschieden [Eme 93]. Bei der Außenbeladung, die insbesondere auch in Druckwasserreaktoren eingesetzt wird, werden frische Elemente in der Peripherie positioniert, um Leistungsspitzen im Zentrum des Systems zu umgehen. Die Nachteile dieser Strategie sind zum einen ein hoher Neutronenverlust durch Leckage und zum anderen — dadurch bedingt — eine hohe Belastung der umgebenden Strukturmaterialien. Durch diese Strategie ergibt sich jedoch eine wesentlich flachere Fluß- und Leistungsverteilung im System.

Neutronen-ökonomisch günstiger hingegen ist die Innenbeladung (engl.: *low-leakage-management*); hier werden die ältesten Brennelemente in der Peripherie des Reaktors eingesetzt, um den obengenannten Nachteilen entgegenzuwirken.⁴

Es ist offensichtlich, daß der Beitrag eines Brennelements zur Reaktivität des Gesamtsystems entscheidend von seiner Position im Reaktor abhängt; dabei führen insbesondere die skizzierten Beladeschemata zu völlig unterschiedlichen Bedingungen, die nicht durch das lineare Reaktivitätsmodell erfaßt werden können. Der Einfluß solcher Effekte, die sich durch die konkrete Anordnung des Brennstoffs ergeben und auf die Neutronenbilanz der Anordnung auswirken, soll durch einige Überlegungen — gestützt durch weitere Simulationen — abgeschätzt werden.

7.2.2 Simulation eines Brennelement-Gitters

Die Reaktivität des stark abgebrannten Brennstoffs 015E125 liegt deutlich unter dem Wert, der typischerweise in kommerziellen Reaktoren toleriert wird. Daher soll durch zusätzliche MCNP-Simulationen das k_∞ einer Anordnung bestimmt werden, die aus verschiedenen stark abgebrannten Brennelementen zusammensetzt ist. Dabei wird insbesondere überprüft, ob die jeweilige Konfiguration (noch) kritisch werden kann, und die Stärke des Neutronenfluß-Einbruches bestimmt.

Die Brennstäbe werden zunächst zu einem 17×17 -Brennelement zusammengefaßt. Von den sich ergebenden 289 Positionen bleiben 25 unbesetzt, die in der Praxis für Steuerstäbe vorgesehen sind. Schließlich wird ein unendliches Gitter definiert, dessen Einheitszelle aus 2×2 vollständigen Brennelementen besteht (Abb. 7.3); jeweils zwei diagonal gegenüberliegende Elemente weisen den gleichen Abbrand auf, so daß mit einer solchen Konfiguration die typische „schachbrettartige“ Anordnung der Brennelemente in Reaktoren simuliert werden kann.

Die Brennstoffzusammensetzung eines Brennelements wird als einheitlich angenommen. Dies stellt insofern eine Näherung dar, als daß die in einem Element außen angeordneten Brennstäbe stärker von den benachbarten Elementen (anderen Abbrands) beeinflusst werden: dies wirkt sich wiederum auf das Neutronenspektrum und den totalen Neutronenfluß im Element selbst aus, so daß der Abbrand eines Brennstabs von dessen Position im Brennelement abhängig ist. Weiterhin wird die axiale Abhängigkeit des Abbrandes der Brennelemente im Rahmen dieser Simulation nicht berücksichtigt. Die Differenz des Abbrandes der zwei unterschiedlichen Generationen in Abb. 7.3 beträgt 502 MWd/kg(WPu), was einer Bestrahlung von 6000 Tagen bei 30 W/cm^3 entspricht: kombiniert werden 0 und 6000 Tage, 1500 und 7500 Tage sowie 3000 und 9000 Tage.

Die korrespondierenden Multiplikationsfaktoren wurden durch MCNP-Simulationen bestimmt (Tabelle 7.2; links). Das k_∞ der Konfiguration bleibt auch in der Situation, die das Zyklusende beschreiben soll (3000 und 9000 Tage), über Eins und liegt nur leicht unter

⁴Dieses Beladeschema wird in jüngerer Zeit auch in Druckwasserreaktoren eingesetzt, um einen höheren Abbrand des Brennstoffs zu erzielen.

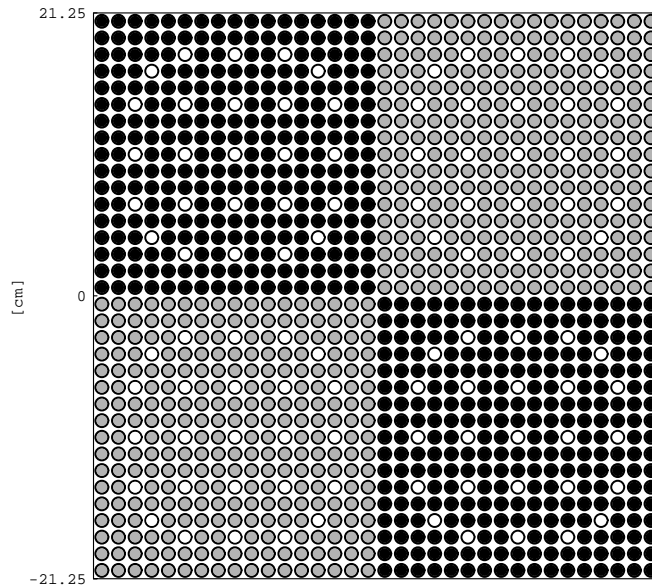


Abbildung 7.3: Geometrie der Einheitszelle, die sich aus 2×2 vollständigen Brennelementen zusammensetzt. Jeweils zwei diagonal gegenüberliegende Elemente weisen den gleichen Abbrand auf.

dem Wert, der sich für eine zu Vergleichszwecken durchgeführte MOX-Simulation ergibt. (Tabelle 7.2; rechts).

In Abb. 7.4 ist der relative totale Flußverlauf von Zentrum zu Zentrum zweier benachbarter Elemente aufgetragen. Es zeigt sich, daß im Fall des 015E125 der Einbruch des Flusses im Laufe der Bestrahlung zunimmt: da zunächst das brennbare Neutronengift abgebaut wird, verliert der frische Brennstoff innerhalb der ersten 3000 Tage kaum an Reaktivität (Abb. 6.5); erst nachdem der Multiplikationsfaktor des abgebrannten Brennstoffs nach ca. 7000 Tagen unter Eins gefallen ist, sinkt der Neutronenfluß relativ zu den frischen Elementen deutlich ab. Das Minimum des relativen Flußniveaus sinkt von anfangs 89.5 % auf 79.9 % nach 1500 Tagen und schließlich auf 70.6 % nach 3000 Tagen. Bei der MOX-Simulation ist der Einbruch wesentlich schwächer ausgeprägt: das relative Flußniveau sinkt nicht unter 86 %.

7.2.3 Periphere Anordnung

Können stark abgebrannte Brennelemente nicht mehr im Zentrum des Reaktors eingesetzt werden, ohne die Kritikalität des Systems zu verlieren, so ist dennoch eine Anordnung in der Peripherie des Systems möglich. Auch wenn der Neutronenfluß und die Leistungsdichte in solchen peripher angeordneten stark abgebrannten Brennelementen dann überproportional sinkt, so ist dadurch — zumindest prinzipiell — eine „unbegrenzte“ Bestrahlung möglich.⁵

⁵Dieses Prinzip liegt auch einem Konzept zugrunde, das in der INEL-Studie vorgeschlagen wurde und auch in der NAS-Studie Erwähnung fand: in einem *Naturkonvektion-Pool-System* werden die Brennelemente

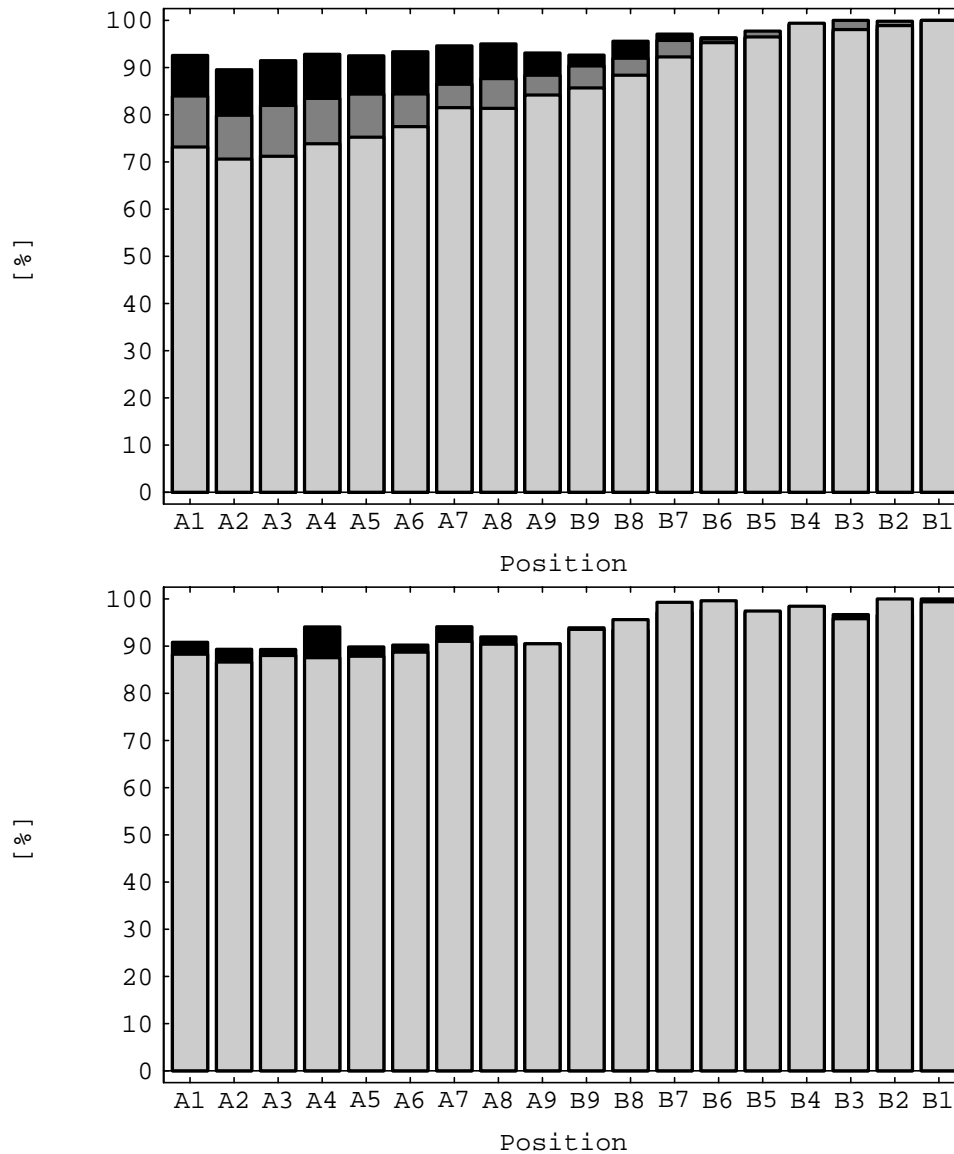


Abbildung 7.4: Relativer Neutronenfluß zu unterschiedlichen Zeitpunkten. Abgebranntes (A) und frisches (B) Brennelement; Position 1 ist Zentrum. Oben: Brennstoff 015E125 bei 0 und 6000 Tagen (schwarz), 1500 und 7500 Tagen (grau) sowie 3000 und 9000 Tagen (hellgrau). Unten: RPu-MOX bei 0 und 22.5 MWd/kg_{SM} (hellgrau) sowie 22.5 und 42.5 MWd/kg_{SM} (schwarz). Unbesetzt sind die Positionen A1, A4, A7, B7, B4 und B1 (vgl. Abb. 7.3).

015E125	RPu-MOX
0 und 6000 Tage: $k_\infty \approx 1.20$	0.0 und 22.5 MWd/kg(SM): $k_\infty \approx 1.20$
1500 und 7500 Tage: $k_\infty \approx 1.13$	22.5 und 42.5 MWd/kg(SM): $k_\infty \approx 1.05$
3000 und 9000 Tage: $k_\infty \approx 1.03$	

Tabelle 7.2: Multiplikationsfaktoren, die sich für die in Abb. 7.3 dargestellte Brennelement-Simulation ergeben. Zu den Multiplikationsfaktoren für 015E125 siehe Abb. 6.5 ohne Borierung. Zum Vergleich: MOX-Simulationen.

Die Bereitstellung von Kernvolumen für solche stark abgebrannte Brennelemente ist unter ökonomischen Gesichtspunkten unvorteilhaft, wird im Kontext dieser Arbeit jedoch sinnvoll, falls ein vorgegebener Zielabbrand erreicht werden „muß“.

7.3 Absoluter Umsatz einer Anlage

Die Ergebnisse der Paragraphen 7.1 und 7.2 lassen den Schluß zu, daß eine Bestrahlung des Brennstoffs von 9000 Tagen⁶ tatsächlich realisiert werden kann, falls — wie bereits mehrfach betont — ein ökonomischer Betrieb der Anlage in den Hintergrund tritt. Dabei bleibt unbestimmt, mit welcher Betriebsstrategie dieser Zielwert realisiert wird.

Die Nuklidkonzentrationen der Zellabbrandrechnungen werden als Basiswerte herangezogen, um Aussagen für den relativen und absoluten Umsatz eines Pu-Burners abzuleiten; dazu werden die Angaben aus Tabelle 6.3 auf ein 1 GW(th)-Reaktor extrapoliert. Effekte, die sich aus der endlichen Ausdehnung der Anordnung ergeben und Auswirkungen auf das nuklidspezifische Abbrandverhalten haben, sowie Wechselwirkungen zwischen unterschiedlich abgebrannten Brennelementen, werden nicht erfaßt.⁷

In Tabelle 7.3 sind absolute Zahlen für den Schwermetall-, Plutonium- und Pu-239-Umsatz zusammengestellt. Die Be- und Entlade-Mengen beziehen sich auf eine Zyklenzahl von $Z = 5$, spielen jedoch für den Umsatz pro GW_{th} und Jahr keine Rolle.⁸ Der absolute Schwermetall-Umsatz ist gemäß

in einem Wasserbecken abgebrannt. Vgl. hierzu [INE 93], Appendix H. Vorläufige Berechnungen, die im Rahmen der vorliegenden Arbeit durchgeführt wurden, sind allerdings eher ernüchternd in bezug auf den relativen und absoluten Plutonium-Umsatz.

⁶9000 Tage bei $30 \text{ W/cm}_{\text{Fuel}}^3$ entsprechen einem Abbrand von 753 MWd/kg(WPu).

⁷Zu den Unterschieden zwischen Zellabbrand- und Reaktorabbrandrechnungen vgl. [Eme 93].

⁸Die Wahl von $Z = 5$ im Fall des Pu-Burners soll der Tatsache Rechnung tragen, daß der hohe Abbrand unter Umständen nur mit einer vergleichsweise aufwendigen Betriebsstrategie erreicht werden kann.

$$\frac{10^9 \text{ W (365 24 60 60) s}}{211 \cdot 10^6 \cdot 1.602 \cdot 10^{-19} \text{ Ws}} \times \frac{239 \text{ g/mol}}{6.022 \cdot 10^{23} \text{ 1/mol}} \approx 370 \text{ kg}$$

bei 370 kg pro GW_{th} und Jahr angesiedelt. Dies gilt, da bei vorgegebener freigesetzter Energie näherungsweise auch die Masse der dabei insgesamt gespaltenen Kerne festgelegt ist.⁹ Charakteristisch für den Pu-Burner ist jedoch, daß das pro Jahr umgesetzte Plutonium ebenfalls bei diesem Maximalwert angesiedelt ist; dies ist eine wesentliche Forderung an ein Konzept zur Eliminierung von Plutonium (vgl. Paragraph 2.4) und resultiert aus dem Einsatz eines nicht-fertilen Brennstoffs. Da ein signifikanter Anteil des ursprünglich vorhandenen Plutoniums in andere Aktinide umgewandelt („transmutiert“) wird, ohne daß diese bei der Entladung gespalten worden wären, ist der Plutonium-Umsatz größer als 370 kg: für die Pu-Gesamtbilanz ergeben sich 385 kg, für das Pu-239 sogar 442 kg pro GW_{th} und Jahr.¹⁰

	Beladung	Entladung	$\Delta M/\text{GW}_{\text{th}} \text{ a}$
Schwermetall	2391 kg	563 kg	−370 kg
Plutonium (total)	2385 kg	485 kg	−385 kg
Pu-239	2243 kg	64 kg	−442 kg

Tabelle 7.3: Bilanz für Gleichgewichtszyklen des Brennstoffs 015E125 im Pu-Burner. Be- und Entladung: jeweils 20 % der Brennelemente nach 1800 Tagen ≈ 4.93 Jahren. Alle Angaben beruhen auf Zellabbrandrechnungen.

Um die Effizienz des Pu-Burners — im Hinblick auf das hier verfolgte Ziel — zu beurteilen, werden korrespondierende Zahlen anderer Reaktor-Optionen hinzugezogen (Tabelle 7.4). Angegeben sind wiederum die Be- und Entlademengen pro Zyklus, d. h. 1/3 Core für die LEU- und MOX-Strategien und 1/5 Core für den Pu-Burner. Im Vergleich mit diesen LWR-Brennstoffen wird die Überlegenheit des Pu-Burners deutlich. Nur eine 100 %-MOX-Beladung im LWR würde überhaupt eine signifikante Reduktion des Plutoniums erlauben: abgesehen von allen anderen Rahmenbedingungen, die mit einem Einsatz von MOX in kommerziellen Reaktoren einhergehen,¹¹ ist eine solche Strategie mit 115–136 kg pro GW_{th} und Jahr ca. $3\times$ weniger effizient als der Pu-Burner, der, wie oben diskutiert, die physikalisch

⁹Im Rechenexempel: Massenzahl $A = 239$; Spaltungsenergie $E = 211 \text{ MeV}$.

¹⁰Die „Plus-Beträge“ von 15 bzw. 72 kg liegen als Aktinide vor und implizieren zweierlei: sie sind einerseits maßgeblich für die Radiotoxizität des Brennstoffs verantwortlich, erschweren jedoch andererseits — aufgrund der hohen Aktivität — den Gebrauch des Materials in Kernwaffen.

¹¹Zum Einsatz von MOX als Brennstoff in kommerziellen Reaktoren und zu den Konsequenzen eines zivilen Plutonium-Marktes vgl. beispielsweise [Lev 95].

	Beladung	Entladung	$\Delta M(\text{Pu}_{\text{tot}})/\text{GW}_{\text{th a}}$	$\frac{\Delta M(\text{Pu}_{\text{tot}})/\text{GW}_{\text{th a}}}{-370 \text{ kg}}$	Umsatz
Uran (LEU)	0 kg	101 kg	+94 kg	-0.25	Produktion!
33 % RPu-MOX	163 kg	182 kg	+18 kg	-0.05	Produktion!
100 % RPu-MOX	489 kg	343 kg	-136 kg	0.37	30 %
100 % WPu-MOX	365 kg	242 kg	-115 kg	0.31	34 %
WPu-Burner	2385 kg	485 kg	-385 kg	1.04	80 %

Tabelle 7.4: Plutonium-Umsatz und Effizienz verschiedener Reaktor-Optionen bei 1 GW_{th} . Dauer der Zyklen: 392 Tage für Uran & MOX bei $Z = 3$; 1800 Tage für den WPu-Burner bei $Z = 5$. Alle Angaben beruhen auf Zellabbrandrechnungen. MOX-Zahlen nach [Pis 98].

vorgegebene Obergrenze erreicht.¹² Als Maß für die Effizienz einer Strategie ist in Tabelle 7.4 der Plutonium-Umsatz pro GW_{th} und Jahr relativ zu den o. g. 370 kg angegeben.

Anmerkung: Das Plutonium-Inventar eines abgebrannten Brennelements des Pu-Burners ist relativ gering: es enthält bei einem Brennstoff-Volumen von $50\,900 \text{ cm}^3$ ca. 3.7 kg Plutonium, darunter nur 490 g Pu-239. Zum Vergleich: MOX enthält bei einem Abbrand von $42.5 \text{ MWd/kg}_{\text{SM}}$ im gleichen Brennstoff-Volumen ca. 17.4 kg Plutonium, darunter 6.8 kg Pu-239.

¹²Der Einsatz von MOX wird allerdings auch nicht mit einer erwünschten Reduzierung von Plutonium begründet, sondern soll das WPu lediglich in den *Spent Fuel Standard* überführen.

7.4 Beispiel einer Beseitigungsstrategie

Die bei der vollständigen Spaltung von 50 Tonnen WPU freiwerdende Energie entspricht ca. 135 Reaktor-Jahren bei 1GW_{th} . Da jedoch nicht diese Gesamtmenge umgesetzt werden kann, sondern nur ca. 38–40 Tonnen tatsächlich gespalten werden, ergibt sich eine Betriebsdauer von 103–108 Reaktor-Jahren. 3 Reaktoren mit einer thermischen Leistung von je 1GW_{th} benötigen demnach ca. 34–36 Jahre, um diese Menge umzusetzen. Entsprechend sind andere Szenarien mit mehr oder weniger Anlagen denkbar, je nachdem welche Präferenzen in bezug auf den Zeitrahmen und die Investitionen gesetzt werden.

Von den 46.91 Tonnen Pu-239, die in der Referenzmenge von 50 Tonnen WPU enthalten sind, bleiben nach max. Bestrahlung noch 1.33 Tonnen zurück (Umsatz: 97.16 %). Während der Bestrahlung entstehen allerdings (netto) 5.83 Tonnen anderer Plutonium-Isotope, so daß — zusammen mit der ursprünglich vorhandenen Menge von 2.98 Tonnen — insgesamt 8.81 Tonnen Plutonium \neq Pu-239 vorhanden sind. Die Gesamtmenge an Plutonium beträgt bei Bestrahlungsende 10.14 Tonnen; zusammen mit den anderen Aktiniden ergeben sich 11.76 Tonnen (vgl. hierzu Tabelle 7.5 und Abb. 7.5).

	Beginn der Kampagne	Ende der Kampagne	Differenz
Aktinide ohne Pu	0.11 t	1.62 t	+1.51 t
Pu ohne Pu-239	2.98 t	8.81 t	+5.83 t
Pu-239	46.91 t	1.33 t	−45.58 t
Total	50.00 t	11.76 t	−38.24 t

Tabelle 7.5: Massenbilanz für 50 Tonnen Waffenplutonium.

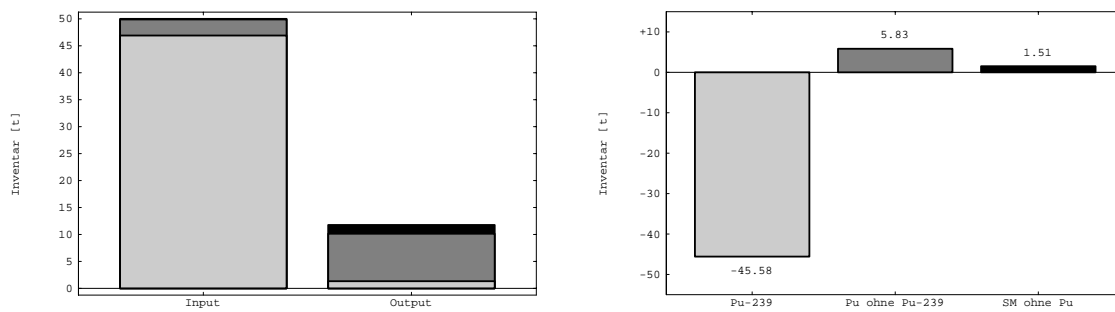


Abbildung 7.5: Links: Inventar bei Beginn und Ende der Eliminierungskampagne bei Einsatz der Referenzmenge von 50 Tonnen WPu im Pu-Burner. Pu-239 (hellgrau), Pu ohne Pu-239 (grau), Aktinide ohne Pu (schwarz). Rechts: Änderung des Aktinideninventars. Vgl. auch Tabelle 7.5.

Kapitel 8

Zusammenfassung und Ausblick

ALLE OPTIONEN, die lediglich die Zugänglichkeit von Plutonium — und von Waffenplutonium im besonderen — erschweren und dessen Attraktivität herabsetzen, stehen vor dem Dilemma, daß ein späterer Gebrauch des Materials in Kernwaffen nicht generell ausgeschlossen werden kann. Dies gilt insbesondere für den Eigentümer, der das Material jederzeit wiederverwenden kann, falls die dazu benötigte Infrastruktur zu diesem Zeitpunkt noch vorhanden ist. Das einzig umfassende Entsorgungskonzept für Plutonium ist daher der irreversible Entzug, d. h. konkret: die Eliminierung des Materials durch Spaltung. In der vorliegenden Arbeit wurde die Reichweite einer solchen Strategie — basierend auf prinzipiell verfügbarer Nuklear-Technologie — quantitativ abgeschätzt.

Um einen Eliminierungsprozeß sinnvoll gestalten zu können und insbesondere eine öffentliche Akzeptabilität des Projekts zu ermöglichen, wurden einige wesentliche Rahmenbedingungen vorgegeben: neben hohen Umwelt- und Sicherheitsstandards und einer hohen Proliferationsresistenz des Prozesses ist die Effizienz, d.h. der relative und absolute Plutonium-Umsatz, einer möglichen Beseitigungsstrategie von entscheidender Bedeutung. Daraus folgt unmittelbar, daß ein Konzept zur Eliminierung von Plutonium auf Wiederaufarbeitung des Brennstoffs verzichten muß und ferner der eingesetzte Brennstoff selbst keine Brutstoffe enthalten darf; schließlich ist die Betriebsstrategie der Anlage am Effizienzkriterium zu orientieren, so daß ein wirtschaftlicher Betrieb fraglich wird.

Die in Betracht kommenden Brennstoffe betten das Plutonium in eine inerte Matrix ein und werden auf Absorbermaterialien angewiesen sein: letztere gewährleisten geeignete Reaktivitätskoeffizienten und erlauben evtl. einen höheren Abbrand des Brennstoffs. Einige grundlegende Eigenschaften solcher Brennstoffe wurden in dieser Arbeit — unter anderem mithilfe von MCNP 4A Monte Carlo Simulationen — untersucht und exemplarisch ein Brennstoff-Typ für die sich anschließenden Abbrandrechnungen ausgewählt. Dieser Modell-Brennstoff setzt PuO_2 zusammen mit dem brennbaren Neutronengift Eu_2O_3 in einer MgO -Matrix ein.

Als Referenzsystem zur Bestrahlung dieses Brennstoffes wurde ein Konzept des *Idaho National Engineering Laboratory* zugrunde gelegt. Dieser Reaktor basiert auf konventioneller Leichtwasserreaktor-Technologie und stellt bei sehr niedriger Leistungsdichte keine elektrische Energie zur Verfügung. Bislang konnten für dieses System keine konsistenten Abbrand-

rechnungen durchgeführt werden, da die effektiven Wirkungsquerschnitte der betrachteten Plutoniumbrennstoffe nicht verfügbar waren; diese Querschnitte wurden im Verlaufe der Zellabbrandrechnungen — wiederum über umfangreiche MCNP 4A Monte Carlo Simulationen — bestimmt. Es bestätigt sich, daß insbesondere die effektiven Querschnitte der Plutonium-Isotope in hohem Maße vom Abbrand des Brennstoffes abhängig sind.

Die in Kapitel 6 vorgestellten Zellabbrandrechnungen wurden mit einem Programmsystem durchgeführt, das im Rahmen dieses Projektes entwickelt wurde [Pis 98]. Die Ergebnisse der Berechnungen sowie einige zusätzliche Überlegungen zeigen, daß durch die konsequente Vorgehensweise ein hoher relativer Umsatz des Plutoniums erzielt werden kann. Die Simulationen sagen voraus, daß das Pu-239 um ca. 97%, das totale Plutonium-Inventar um ca. 80% reduziert wird. Die absolute Pu-Umsatzrate eines Pu-Burners entspricht dabei der physikalisch vorgegebenen Obergrenze von 370 kg pro GW_{th} und Jahr. Besonders hervorzuheben ist der resultierende Isotopenvektor des Plutoniums, der sich durch einen außergewöhnlich hohen Anteil der Isotope 238, 240 und 242 auszeichnet, was einen Gebrauch des Materials in Kernwaffen — aufgrund der Wärme-Entwicklung und des Neutronenhintergrunds — erschwert (Anteil dieser Isotope bei max. Bestrahlung $> 65 \text{ at}\%$ des Pu's; vgl. Tabelle 6.3).

Auf der Basis der Zellabbrandrechnungen wurde außerdem die Radiotoxizität des Brennstoffes abgeschätzt. Auch bei Vernachlässigung des Beitrags der Spaltprodukte nimmt diese während der Bestrahlung deutlich zu. Die Toxizität wird dabei durch die sukzessiv aufgebauten Plutonium-, Americium- und Curium-Isotope bestimmt; der Abbau des Pu-239 kann dem nur unwesentlich entgegenwirken. Die Toxizität bleibt jedoch unter dem Wert, der sich für RPu-MOX-Brennstoff ergibt (Anhang B).

Eine untere Schranke für die Dauer einer Eliminierungskampagne ist durch die installierte thermische Leistung gegeben. Beispielsweise wird die Referenzmenge von 50 Tonnen WPu mit 3 Pu-Burner-Reaktoren à 1GW_{th} in 34–36 Jahren umgesetzt. Anschließend sind 45.6 der 46.9 Tonnen des Pu-239-Inventars eliminiert bzw. umgewandelt (Abb. 7.5); bei diesem Prozeß werden jedoch ca. 6 Tonnen anderer Plutonium-Isotope und ca. 1.5 Tonnen weiterer Aktinide erzeugt.

Der Plutonium-Gehalt eines Brennelements ist bei der Entladung mit 3.7 kg — darunter nur ca. 500 g Pu-239 — vergleichsweise gering. In Kombination mit dem stark verschobenen Isotopenvektor und den damit verbundenen Schwierigkeiten beim Umgang mit dem Material, ist ein erneuter Zugriff daher wenig attraktiv. Das entscheidende Kriterium bleibt jedoch die erhebliche Reduktion des Plutoniums durch den vorgeschlagenen Prozeß.

Ausblick: Auf einer konzeptionellen Ebene sollten diese und ähnliche Ideen zur Plutonium-Eliminierung weiterverfolgt werden. Neben der Entwicklung eines geeigneten nicht-fertilen Brennstoffs sind dazu insbesondere umfangreiche Reaktorabbrandrechnungen notwendig, die unter den vorgegebenen Rahmenbedingungen, d. h. bei Optimierung der Effizienz und der Sicherheit des Eliminierungsprozesses, die in dieser Arbeit bestimmten Zahlen weiter präzisieren. In diesem Zusammenhang sollte außerdem untersucht werden, inwiefern sich die Leistungsdichte auf das nuklidspezifische Abbrandverhalten auswirkt und welche quantitativen Sicherheitsvorteile der Betrieb bei niedrigen Temperaturen tatsächlich mit sich bringt. Auch wenn die Dauer einer Kampagne, wie erwähnt, durch die installierte thermische Leistung

festgelegt ist, würde eine mögliche Erhöhung der Leistungsdichte die Bestrahlungszeiten des Brennstoffs reduzieren.

Diese Arbeit konzentriert sich auf die Eliminierung des Waffenplutoniums, da dies ein naheliegender erster Schritt ist; mittelfristig muß jedoch zumindest auch das separierte zivile Plutonium in die Überlegungen mit einbezogen werden. Mit einer angepaßten Brennstoffzusammensetzung sollte der Pu-Burner auch für dieses Plutonium vergleichbare Umsatzraten erzielen. Eine umfassendere Plutonium-Eliminierung wird allerdings erst dann sinnvoll, wenn die Pu-Abtrennung in Wiederaufarbeitungsanlagen eingestellt wird.

Ein weiterer Aspekt, der bislang ausgeblendet wurde, sind die ökonomischen Randbedingungen, d. h. die Kosten für Entwurf, Bau und Betrieb eines oder mehrerer Pu-Burner sowie — unter Berücksichtigung der qualitativen Vorteile des hier vorgestellten Systems — der Vergleich mit den derzeit favorisierten Entsorgungsoptionen. Die (zusätzlichen) Kosten, die sich durch die Eliminierung des Waffenplutoniums ergeben, müssen allerdings den absoluten kernwaffen-bezogenen Ausgaben gegenübergestellt werden. Auch eine aufwendige Eliminierungskampagne würde auf dieser Kostenskala nur unwesentlich ins Gewicht fallen, da beispielsweise allein die Reinigung des US-nuklear-militärischen Komplexes mit 200–500 Milliarden US\$ veranschlagt wird (vgl. Tabelle 3.1).

	reaktor-basiert	nicht-reaktor-basiert
Spent Fuel Standard	MOX in LWR	Verglasung/Immobilisierung
Über den Spent Fuel Standard hinaus	Pu-Burner	?
Vollständige Eliminierung	?	—

Tabelle 8.1: Ebenen der WPU-Entsorgung

Interpretation: Bei Vergleich der non-proliferationsrelevanten Eigenschaften des entsorgten WPU's hat die Immobilisierung keine nennenswerten Nachteile gegenüber der reaktor-basierten MOX-Option: beide Varianten genügen dem *Spent Fuel Standard*. Aus diesem Grund ist ein Einsatz des WPU's in Kernreaktoren, was in jedem Fall mit zusätzlichen Kosten und Risiken verbunden ist, zur Realisierung dieses Standards weder notwendig noch sinnvoll. Erst mit dem weitergehenden Ziel einer Eliminierung oder zumindest einer signifikanten Reduktion des WPU's würde ein Einsatz von Reaktoren unumgänglich werden (Tabelle 8.1). Die Unzulänglichkeiten des *Spent Fuels Standards* legen jedoch nahe, daß dann tatsächlich eine effiziente und sichere Eliminierung bzw. Reduktion des WPU's im Mittelpunkt stehen muß (Paragraph 2.2). Eine quasi-vollständige Eliminierung des WPU's kann mit dem vorgestellten Konzept zunächst nicht realisiert werden, so daß zum heutigen Zeitpunkt offen bleibt, ob dieses umfassende Ziel — begleitet durch vernünftige Rahmenbedingungen — tatsächlich erreichbar ist.

Anhang A

Kritische Massen

Kritische Massen einiger Uran- und Plutoniumzusammensetzungen sowie korrespondierende Wärme- und Neutronenemissionsraten sind in Tabelle A.2 zusammengestellt. Die Zahlen sind statisch berechnet, berücksichtigen also nicht die Kompaktierung des Materials. Sie sagen „wenig“ über die tatsächlich notwendigen Massen zum Bau einer Kernwaffe aus; allerdings ist ein relativer Vergleich der Materialien möglich.

Wärme- und Neutronenemissionsraten für die Isotope des WPU's sind in Tabelle A.1 angegeben. Die Plutoniumzusammensetzungen in Tabelle A.2 entsprechen WPU nach Tabelle 2.2 sowie näherungsweise Reaktorplutonium (Pu-239: 59 %), Pu-Burner-Plutonium nach 7500 Tagen (Pu-239: 32 %) und Pu-Burner-Plutonium nach 9000 Tagen (Pu-239: 14 %).

Die kritischen Massen bleiben auch für stark abgebranntes Plutonium vergleichsweise niedrig; „ernstzunehmend“ werden vielmehr Probleme sein, die sich aus der Neutronenemissionsrate und der Wärmeentwicklung ergeben. Ersteres erhöht die Frühzündungswahrscheinlichkeit; letzteres erfordert Kühlung des Materials, um eine Überhitzung des konventionellen Sprengstoffs und eine evtl. Phasenumwandlung des Plutoniums zu vermeiden.

	^{238}Pu	^{239}Pu	^{240}Pu	^{241}Pu	^{242}Pu	^{241}Am	
Wärmerate	560	1.9	6.8	4.2	0.1	114	W/kg
Neutronenrate	2600	0.022	910	0.049	1700	1.2	n/(ms·kg)

Tabelle A.1: Wärme- und Neutronenemissionsrate für die verschiedenen Isotope des Waffenplutoniums. Daten nach [Mar 93].

Material	Phase	Unreflektierte Kugel		Reflektierte Kugel			Neutronen Emis. Rate [n/(ms·kg)]	Wärmerate [W/kg]
		Radius	Kritische Masse	Radius	Kritische Masse	Masse inkl. Reflektor		
U-233: 100 %		5.91 cm	16.13 kg	4.28 cm	6.13 kg	231.6 kg	—	—
U-235: 95 % U-238: 5 %		8.72 cm	52.22 kg	6.25 cm	19.23 kg	341.3 kg	< 0.002	—
U-235: 20 % U-238: 80 %		21.35 cm	770.45 kg	16.55 cm	358.88 kg	1487.6 kg	< 0.02	—
WPu	α	5.02 cm	10.51 kg	3.82 cm	4.64 kg	210.8 kg	53	2.5
Pu-238: 2 % Pu-239: 59 % Pu-240: 23 % Pu-241: 12 % Pu-242: 4 %	α	5.42 cm	13.23 kg	4.12 cm	5.81 kg	224.9 kg	329	14.4
Pu-238: 4 % Pu-239: 32 % Pu-240: 38 % Pu-241: 18 % Pu-242: 8 %	α	5.86 cm	16.72 kg	4.48 cm	7.47 kg	242.6 kg	586	26.4
	δ	7.30 cm	25.94 kg	5.36 cm	10.27 kg	287.2 kg		
Pu-238: 8 % Pu-239: 14 % Pu-240: 36 % Pu-241: 21 % Pu-242: 21 %	α	6.25 cm	20.29 kg	4.82 cm	9.31 kg	260.1 kg	893	48.4
	δ	7.80 cm	39.44 kg	5.78 cm	16.05 kg	314.2 kg		

Tabelle A.2: Kritische Massen für Uran- und Plutoniumkugeln verschiedener Isotopenzusammensetzungen. Monte Carlo Simulationen bei 300 K mit ENDF/B-V Querschnittsbibliotheken. Reflektor: Sphärische Schale aus natürlichem Uran; Stärke: 10 cm; Dichte: 19.05 g/cc. Dichte des α -Pu: 19.84 g/cc. Dichte des δ -Pu: 15.92 g/cc. Plutoniumzusammensetzungen, die durch hohe Wärmeraten gekennzeichnet sind, werden ohne Kühlung in der α -Phase ($T < 115^\circ\text{C}$) nicht stabil sein. Angaben in Prozent sind Atomprozent.

Anhang B

Radiotoxizität

Eine umfassende Analyse der Eigenschaften des abgebrannten Brennstoffs 015E125 in bezug auf dessen Radiotoxizität kann im Rahmen dieser Arbeit nicht erfolgen. Insbesondere ist bei einer solchen Analyse, die Zeitabhängigkeit der Brennstoffzusammensetzung nach der Entladung aus dem Reaktor zu berücksichtigen.¹ Dennoch soll eine Abschätzung angegeben werden, die unmittelbar nach der Entladung gültig ist. Damit ist eine Identifizierung der Nuklide möglich, die die Radiotoxizität in den ersten Jahren dominieren werden; über die jeweiligen Zerfallsketten ist außerdem eine qualitative Abschätzung der langfristigen Entwicklung der Radiotoxizität möglich. Gleichzeitig kann der Brennstoff des Pu-Burners mit anderen Brennstoffen (MOX und LEU) verglichen werden.

Der DoE-Standard: Ein vom *US-Department of Energy* im Jahre 1992 eingeführter Standard definiert drei sog. Gefahren-Kategorien (engl.: *hazard categories*), die Anlagen mit einem nuklearen Inventar zugeordnet werden [DoE 92]:

- **Kategorie 1:** Signifikante *off-site* Konsequenzen möglich.
- **Kategorie 2:** Signifikante *on-site* Konsequenzen möglich.
- **Kategorie 3:** Ausschließlich signifikante *lokale* Konsequenzen möglich.

Der DoE-Standard stellt nuklidspezifische Grenzwerte zur Verfügung, die sich auf das Inventar (d. h. die Masse) bzw. auf die entsprechende Aktivität beziehen. Anhand dieser Werte ist eine Zuordnung der Anlage zu Kategorie 2 oder 3 möglich.² Die Massen- bzw. Aktivitäts-Grenzwerte selbst ergeben sich aus einer maximalen Dosis, die aus der Freisetzung des Anlageninventars resultiert;³ insbesondere ist Gefahren-Kategorie 2 folgendermaßen definiert:

¹Ein Konzept zur Bestimmung der zeitabhängigen Entwicklung der Radiotoxizität einer Materialzusammensetzung wurde beispielsweise in [Kir 85] entwickelt.

²Die Zuordnung zu einer Kategorie dient zur Festlegung der notwendigen Sicherheitsstandards etc. Kategorie 1 wird gesondert behandelt, da weitere Eigenschaften der betrachteten Anlage von Bedeutung sind; beispielsweise gehören dieser Kategorie (automatisch) alle Reaktoren mit einer Leistung $> 20 \text{ MW}_{\text{th}}$ an.

³In die Berechnung dieser Dosis gehen zahlreiche charakteristische Größen ein: elementspezifische Freisetzunganteile (*release fraction*), Dosisfaktoren, Atmungsraten, etc.

Gefahren-Kategorie 2: Die ungehinderte Freisetzung (engl.: *unmitigated release*) der angegebenen Menge eines Materials führt unter konservativen Annahmen zu einer absoluten Dosis von 1 rem (0.01 Sv) im Abstand von 300 Metern von der Anlage.

Überschreitet das Inventar einer Anlage den Inventar-Grenzwert der Kategorie 2 (vgl. Tabelle B.1), so gehört sie dieser Kategorie an. Der Formalismus kann zunächst keine zeitabhängigen Effekte erfassen und dient lediglich zu vorläufigen Aussagen.⁴

Vergleich der Radiotoxizität: Dieser kompakte Formalismus soll an dieser Stelle verwendet werden, um Nuklide zu identifizieren, die die Radiotoxizität frischer und abgebrannter Brennstoffe dominieren. Hierzu werden die Inventar-Grenzwerte der Kategorie 2 mit dem nuklidspezifischen Inventar eines typischen Brennstoffvolumens eines Brennelements verglichen.⁵

$$T(A) = \frac{\text{Nuklid-Konzentration} \times \text{Brennstoffvolumen eines Brennelements}}{\text{Inventar-Grenzwert der Kategorie 2}}$$

Die in Tabelle B.2 angegebenen relativen Werte der Radiotoxizität werden in Paragraph 6.3.9 diskutiert.

⁴Die Zeitabhängigkeit der Radiotoxizität verschiedener Plutoniumzusammensetzungen wird beispielsweise in [Hei 95] untersucht; dabei wird der hier diskutierte DoE-Standard zugrunde gelegt.

⁵264 Brennstäbe [(17 × 17) – 25]; Länge: 366 cm; Durchmesser des Brennstoffs: 8.19 mm. Daraus: Brennstoffvolumen ca. 50 900 cm³.

	Aktivität [Ci]	Inventar [g]
U-233	2.2e+02	2.3e+04
U-234	2.2e+02	3.5e+04
U-235	2.4e+02	1.1e+08
U-238	2.4e+02	7.1e+08
Np-237	5.8e+01	8.3e+04
Np-238	9.1e+05	3.5e+00
Pu-238	6.2e+01	3.6e+00
Pu-239	5.6e+01	9.0e+02
Pu-240	5.6e+01	2.5e+02
Pu-241	2.9e+03	2.8e+01
Pu-242	5.9e+01	1.5e+04
Am-241	5.5e+01	1.6e+01
Am-242m	5.6e+01	5.8e+00
Am-243	5.5e+01	2.8e+02
Cm-242	1.7e+03	5.1e-01
Cm-245	5.3e+01	3.1e+02

Tabelle B.1: Grenzwerte für die Aktivität ($1\text{Ci} = 37\text{GBq}$) und das Inventar einer Anlage der Kategorie 2. Werte für Pu-240 und Pu-242 nach [Clö 94]; alle anderen nach [DoE 92].

	015E125		WPu-MOX		RPu-MOX		LEU	
	T(0)	T(A _{max})	T(0)	T(A _{max})	T(0)	T(A _{max})	T(0)	T(A _{max})
Np-238						0.05		0.27
Pu-238	0.50	80.74	0.50	21.57	121.82	110.59		30.68
Pu-239	19.03	0.54	18.98	6.53	15.97	7.52		3.16
Pu-240	4.24	5.39	4.23	14.22	22.42	20.59		4.86
Pu-241	0.85	27.84	0.85	75.38	106.16	115.75		27.38
Pu-242		0.05		0.05	0.06	0.13		0.02
Am-241	2.51	14.24	2.50	6.30		13.44		1.45
Am-242m		0.48		0.29		0.68		0.06
Am-243		0.73		0.55		1.70		0.27
Cm-242		74.94		58.85		114.18		17.10
Cm-245		0.01		0.02		0.09		0.01
Total	27.13	203.75	27.06	183.81	266.43	384.72	< 0.001	85.26
T(A _{max}) : T(0)	7.5		6.8		1.4		> 90 000	
T(A _{max}) - T(0)	176.60		156.74		118.29		85.26	

Tabelle B.2: Radiotoxizität T(A) als Funktion des Abbrandes verschiedener Brennstoffe: Verhältnis des Inventars eines Brennelements (Brennstoffvolumen ca. 50 900 cm³) zum Inventar-Grenzwert der Kategorie 2 (vgl. Tabelle B.1). A_{max} bei 015E125 entspricht einer Bestrahlung von 9000 Tagen, A_{max} bei MOX und LEU einem Abbrand von 42.5 MWd/kg(SM). Anreicherung des LEU auf 4 wt% U-235 (dadurch mit MOX vergleichbar).

Anhang C

Lineares Reaktivitätsmodell

Dem linearen Reaktivitätsmodell nach [Eme 93] liegt die folgende wesentliche Annahme zugrunde: *jedes Brennelement liefere den gleichen Beitrag zur Reaktivität des Gesamtsystems und weise das gleiche lineare Abbrandverhalten auf.* Sei Z die Anzahl der Zyklen, sowie A_Z und T_Z der Abbrand bzw. die Bestrahlungsdauer pro Zyklus. Zunächst wird der Fall $Z = 1$ betrachtet, so daß alle weiteren Ergebnisse relativ zu T_1 und $A(T_1) = A_1$ angegeben werden können. Der Reaktivitätsverlauf wird für diese einfache Situation durch

$$\rho_{\text{tot}}(t) = \rho_{\text{max}} \left[1 - \frac{A(t)}{A_1} \right]$$

beschrieben, wobei ρ_{max} die Überreaktivität des frischen Brennstoffs darstellt. Der Zyklus ist beendet, wenn $\rho_{\text{tot}}(t) = 0$, d. h. bei $t = T_1$. Für den Fall $Z > 1$ werden nun sog. Gleichgewichtszyklen betrachtet: ein Brennelement der n -ten Generation liefere bei Zyklus-Beginn den gleichen Reaktivitätsbeitrag wie ein Element der $(n-1)$ -ten Generation bei Zyklus-Ende. Eine seit $n \in \{0, 1, 2, \dots, (Z - 1)\}$ Zyklen bestrahlte Teilladung trägt zur Zeit $t \in [0, T_Z]$ mit

$$\frac{\rho_{\text{max}}}{Z} \left[1 - \frac{A(t + nT_Z)}{A_1} \right]$$

zur Gesamtreaktivität bei. Letztere kann nach Voraussetzung durch Summation über die Beiträge aller Teilladungen ermittelt werden.

$$\rho_{\text{tot}}(t) = \frac{\rho_{\text{max}}}{Z} \left\{ \left[1 - \frac{A(t)}{A_1} \right] + \left[1 - \frac{A(t + T_Z)}{A_1} \right] + \dots + \left[1 - \frac{A(t + (Z - 1)T_Z)}{A_1} \right] \right\} \quad (\text{C.1})$$

Die Zyklus-Dauer ist nun so zu wählen, daß

$$\rho_{\text{tot}}(T_Z) = \frac{\rho_{\text{max}}}{Z} \left\{ \left[1 - \frac{A(T_Z)}{A_1} \right] + \left[1 - \frac{A(2 T_Z)}{A_1} \right] + \cdots + \left[1 - \frac{A(Z T_Z)}{A_1} \right] \right\} \stackrel{!}{=} 0 \quad (\text{C.2})$$

erfüllt wird. Mit $A(n T_Z) = n A(T_Z)$ und $\sum_{k=1}^Z k = Z(Z+1)/2$ kann dies auf

$$Z - (1 + 2 + \cdots + Z) \frac{A(T_Z)}{A_1} = Z - \frac{Z(Z+1)}{2} \frac{A(T_Z)}{A_1} \stackrel{!}{=} 0$$

reduziert werden, so daß sich der Abbrand pro Zyklus $A(T_Z)$ und der totale Abbrand $A(Z T_Z)$ relativ zu A_1 angeben lassen.

$$A(T_Z) = \frac{2}{1+Z} A_1 \quad A(Z T_Z) = Z A(T_Z) = \frac{2Z}{1+Z} A_1 \quad (\text{C.3})$$

Aufgrund der Voraussetzung eines linearen Abbrandverhaltens des Brennstoffs gilt für die Zyklusdauer $T_Z = (A_Z/A_1) T_1$.

$$T_Z = \frac{2}{1+Z} T_1 \quad (\text{C.4})$$

Mit der Kenntnis von (A_Z/A_1) kann nun auch ein einfacher Ausdruck der Gesamtreaktivität für den Zyklusbeginn angegeben werden.

$$\begin{aligned} \rho_{\text{tot}}(0) &= \frac{\rho_{\text{max}}}{Z} \left\{ 1 + \left[1 - \frac{A(T_Z)}{A_1} \right] + \cdots + \left[1 - \frac{A((Z-1) T_Z)}{A_1} \right] \right\} \\ &= \frac{\rho_{\text{max}}}{Z} \left\{ Z - \frac{2}{1+Z} [1 + 2 + \cdots + (Z-1)] \right\} \\ &= \cdots = \rho_{\text{max}} \frac{2}{1+Z} \end{aligned} \quad (\text{C.5})$$

Nach (C.2) beträgt der Beitrag der entladenen Brennelemente zur Reaktivität des Gesamtsystems:

$$\frac{\rho_{\text{max}}}{Z} \left[1 - \frac{A(Z T_Z)}{A_1} \right] = \frac{\rho_{\text{max}}}{Z} \frac{1-Z}{1+Z}$$

Wird der entladene Brennstoff „isoliert“ betrachtet, d. h. wird dieser als Brennstoff in einer Zellrechnung eingesetzt, so beträgt die Gesamtreaktivität dem Z -fachen dieser Teilreaktivität.

$$\rho_{\text{min}} = \rho_{\text{max}} \frac{1-Z}{1+Z} \quad (\text{C.6})$$

Aus (C.3) bis (C.6) ergeben sich alle weiteren in Paragraph 7.1 angegebenen Beziehungen.

Literaturverzeichnis

- [Alb 97] Albright, D.; Berkhout F.; Walker, W.: Plutonium and Highly Enriched Uranium 1996. World Inventories, Capabilities and Policies. Stockholm International Peace Research Institute (SIPRI), Oxford University Press, 1997.
- [BAS 95] The Nuclear Weapons Cost Study Project Committee (edited by Schwartz, S. I.): Four Trillion Dollars an Counting. The Bulletin of the Atomic Scientists, pp. 32–52, Nov./Dec., 1995.
- [Bon 64] Bondarenko, I. I.: Group Constants for Nuclear Reactor Calculations. Consultant Bureau Enterprises, Inc., New York, 1964.
- [Bow 94] Bowman, C. D.; Venneri, F.: Underground Supercriticality from Plutonium and Other Fissile Material. LA-UR 94-4022A, Los Alamos National Laboratory, 1994.*
- [Bri 93] Briesmeister, J. F. (Editor): MCNP — A General Monte Carlo N-Particle Transport Code, Version 4A. Los Alamos, November 1993.*
- [Cho 96] Chodak III, P.; Driscoll, M.; Todreas, N.: A Pressurized Water Reactor Deep Burn Plutonium Fuel Cycle. Massachusetts Institute of Technology, Cambridge, Massachusetts, 1996.
- [Clo 94] Clow, J; et al.: Specific Activities and DOE-STD-1027-92 Hazard Category 2 Thresholds. LANL Fact Sheet. LA-12846-MS, Los Alamos National Laboratory, November 1994.*
- [CRC 90] CRC Handbook of Chemistry and Physics. 71st Edition 1990-1991. Edited by D. R. Lide. Chemical Rubber Publishing Company, CRC Press, 1990.
- [DoE 92] DOE Standard. Hazard Categorization and Accident Analysis Techniques for Compliance with DOE Order 5480.23, Nuclear Safety Analysis Reports. DOE-STD-1027-92 (Dezember 1992), Change Notice (September 1997). United States Department of Energy, Washington D. C., Dez. 1992/Sep. 1997.*
- [DoE 96a] Plutonium: The First 50 Years. United States plutonium production, acquisition, and utilization from 1944 to 1994. United States Department of Energy, Februar 1996.*

- [DoE 96b] Technical Summary Report for Surplus Weapons-Usable Plutonium Disposition. Office of Fissile Material Disposition. United States Department of Energy, 1996.*
- [DoE 97] Record of Decision for the Storage and Disposition of Weapons-Usable Fissile Material. Final Programmatic Environmental Impact Statement. United States Department of Energy, Washington D. C., January 14, 1997.*
- [Dix 84] Dixon, G. W.: Nuclear Power Plant Characteristics. A Training Manual prepared for the International Atomic Energy Agency (IAEA), Department of Safeguards. Program for Technical Assistance to IAEA Safeguards. Brookhaven National Laboratory, International Safeguards Project Office. ISPO Report No. 190, Februar 1984.
- [Gre 81] Green, N. M.: BONAMI-S: Resonance Self-Shielding by the Bondarenko Method. *Draft!* Issued as part of the SCALE 4.1 Manual. Oak Ridge National Laboratory. Oak Ridge, Tennessee, 1981.
- [Hei 95] Heindel, G.; et al.: The Radiological Hazard of Plutonium Isotopes and Specific Plutonium Mixtures. LA-13011, Los Alamos National Laboratory, November 1995.*
- [INE 93] Ryskamp, J. M.; et al.: A New Reactor Concept Without Uranium or Thorium for Burning Weapons-Grade Plutonium. In: *Weapons-Grade Plutonium Dispositioning*. Volume 3. Idaho National Engineering Laboratory, Juni 1993.
- [JEF 94] JEF-PC. A Personal Computer Program for Displaying Nuclear Data from the Joint Evaluated File Library. Version 1.0. Dazu: CD-ROM mit *JEF-2.2 Pointwise Cross Section Data*. OECD Nuclear Energy Agency, 1994.
- [Kan 89] Kankeleit, E.; Küppers, C.; Imkeller, U.: Bericht zur Waffentauglichkeit von Reaktorplutonium. IANUS Arbeitsbericht 1/1989, Dezember 1989.
- [Kir 85] Kirchner, G.: Ein neuer Toxizitätsindex zur Ermittlung des Gefährdungspotentials endgelagerter radioaktiver Abfälle. Dissertation. Bremen, 1985.
- [Lev 95] Leventhal, P.; Dolley, S.: The MOX and Vitrification Options Compared: A Non-Proliferation Perspective. Nuclear Control Institute, 1995.*
- [Lie 97] Liebert, W.; Glaser, A.; Pistner, C.: The Role of Accelerator-Based Systems for Optimal Elimination of Plutonium to Minimize Global Proliferation Risks. In: *Proceedings of the Second International Conference on Accelerator-Driven Transmutation Technologies and Applications*. Vol.1, pp. 377–384. Kalmar, Sweden, 1997.*
- [Lym 94] Lyman, E. S.: A Perspective on the Proliferation Risks of Plutonium Mines. Nuclear Control Institute. Presented at the U.S. Department of Energy Plutonium Stabilization and Immobilization Workshop, Washington, DC, December 14, 1994.*

- [Mar 93] Mark, J. C.: Explosive Properties of Reactor-Grade Plutonium. In: Science & Global Security, pp. 111–128, Volume 4, No. 1, 1993.
- [Mat 97] Matzke, H.j.; Geel, J. van; Magill, J.: Options for Plutonium Management: MOX, ThO₂-based fuels and inert matrices. Presented at: TOPFUEL, Manchester, June 9–11, 1997.
- [NAS 94] National Academy of Sciences. Management and Disposition of Excess Weapons Plutonium. National Academy Press, Washington D. C., 1994.*
- [NAS 95] National Academy of Sciences. Management and Disposition of Excess Weapons Plutonium. Reactor-Related Options. National Academy Press, Washington D. C., 1995.
- [Pet 96] Peterson, P. F.: Long-Term Safeguards and Security Parameters for Plutonium in Geologic Repositories. In: Science & Global Security, pp. 1–29, Volume 6, 1996.
- [Pis 98] Pistner, C.: Entwicklung und Validierung eines Programmsystems für Zellabbrandrechnungen. Diplomarbeit am Institut für Kernphysik, Technische Universität Darmstadt, März 1998.*
- [RTR 96] Sandia National Laboratories: Proliferation Vulnerability Red Team Report. SAND97-8203, Oktober 1996.*
- [Seg 75] Segev, M.: A Theory of Resonance-Group Self-Shielding. Nuclear Science and Engineering, Vol. 56, pp. 72–82, 1975.
- [Sy1 94] Sylvester, K. W. B.: A Strategy for Weapons-Grade Plutonium Disposition. Master's Thesis in Nuclear Engineering. Massachusetts Institute of Technology, Cambridge, Massachusetts, 1994.
- [Sy1 97] Sylvester, K. W. B.: Weapons-Grade Plutonium Disposition: An Alternate Immobilization Strategy. Ph. D. Thesis. Massachusetts Institute of Technology, Cambridge, Massachusetts, Juni 1997.

Es wurde außerdem mit verschiedenen Lehrbüchern zur Kernreaktortheorie gearbeitet, auf die im Text nur vereinzelt explizit verwiesen wird. Hervorzuheben sind:

- [DoE 93] DOE Fundamentals Handbook. Nuclear Physics and Reactor Theory. DOE-HDBK-1019/1-93 (Vol. 1) und 1019/2-93 (Vol. 2). United States Department of Energy, Washington D. C., Januar 1993.*
- [Eme 93] Emendörfer, D.; Höcker, K.-H.: Theorie der Kernreaktoren. Band 2: Der instationäre Reaktor. BI Wissenschaftsverlag, 1993.
- [Gla 61] Glasstone, S.; Edlund, M. C.: Kernreaktortheorie. Springer-Verlag, Wien, 1961.
- [Meg 60] Meghreblian, R. V.; Holmes, D. K.: Reactor Analysis. McGraw-Hill Book Company, Inc., New York, 1960.
- [Mur 57] Murray, R. M.: Nuclear Reactor Physics. Prentice-Hall, Inc. Englewood Cliffs, NJ, 1957.
- [Zie 84] Ziegler, A.: Reaktortechnik. Vol. 1: Reaktortheorie. Vol. 2: Reaktortechnik. Vol. 3: Kernkraftwerkstechnik. Heidelberg, 1984.

Die mit einem Stern (*) versehene Literatur ist im WWW verfügbar und unter der angegebenen Adresse zusammengestellt; dort ist ebenso die vorliegende Arbeit als PostScript-Datei erhältlich.

<http://www.tu-darmstadt.de/ze/ianus/publications/glaser/diplom.html>

Danksagung

Die vorliegende Diplomarbeit wurde am *Institut für Kernphysik der Technischen Universität Darmstadt* (TUD) durchgeführt. Sie ist gleichzeitig in das Projekt „Nichtverbreitung und Abrüstung von Kernwaffen“ der *Interdisziplinären Arbeitsgruppe Naturwissenschaft, Technik und Sicherheit* (IANUS) der TUD eingebettet.

Zahlreiche Personen haben zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen: neben Prof. Dr. E. Kankeleit, den Mitarbeitern seiner Arbeitsgruppe sowie den Mitgliedern der IANUS-Gruppe ist besonders Dr. Wolfgang Liebert zu nennen, der dieses Projekt in die Wege geleitet und mit großem Engagement betreut hat.

Außerordentlicher Dank gilt jedoch Christoph Pistner, dem zweiten an diesem Projekt beteiligten Physik-Diplomanden: ohne den kontinuierlichen Austausch von Ideen und die zahllosen kritischen Diskussionen wäre diese Arbeit nicht möglich gewesen.

Hiermit erkläre ich an Eides Statt, daß ich die vorliegende Diplomarbeit selbstständig und nur mit den genannten Hilfsmitteln erstellt habe.

Darmstadt, den 23. Februar 1998

Erklärung der Student Pugwash Bewegung

„I promise to work for a better world, where science and technology are used in socially responsible ways. I will not use my education for any purpose intended to harm human beings or the environment. Throughout my career, I will consider the ethical implications of my work before I take action. [...] I sign this declaration because I recognize that individual responsibility is the first step on the path to peace.“

Darmstadt, den 23. Februar 1998

Schriftsatz in T_EX

Zur Erstellung dieser Arbeit und zur Berechnung der darin vorgestellten Ergebnisse wurden GNU Emacs 19.30, Mathematica 2.2.4, MCNP 4A, OzT_EX 3.0 sowie PostScript unter Linux 2.0 und MacOS 7.5 eingesetzt.