

**Plutoniumfingerabdrücke
und Brennstoffzyklusstudien
für thermische Reaktorkonzepte**

Von der Fakultät für Maschinenwesen
der Rheinisch–Westfälischen Technischen Hochschule Aachen
zur Erlangung des akademischen Grades eines Doktors
der Naturwissenschaften genehmigte Dissertation

vorgelegt von

Benjamin Volmert

aus

Ratingen

Berichter: Univ.–Prof. Dr.–Ing. Kurt Kugeler
Priv.–Doz. Dr.rer.nat. Eberhard Teuchert
Prof. Dr.rer.nat. Detlef Filges
Tag der mündlichen Prüfung: 24. März 2003

Diese Dissertation ist auf den Internetseiten der Hochschulbibliothek online verfügbar.

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
1.1	Gliederung der Arbeit	2
2	Weltbevölkerung und Primärenergiebedarf	4
3	Status Quo der nuklearen Energieerzeugung	6
3.1	Entwicklungen in der Reaktorsicherheit	6
3.2	Entsorgung der nuklearen Abfälle	8
3.2.1	Derzeitiges und in Zukunft erwartetes Abfallaufkommen	9
3.2.2	Bedeutung des Plutoniums in der Entsorgungsfrage	9
3.2.3	Strategien zur Abfallreduzierung	12
3.2.4	Thoriumbasierter Brennstoffkreislauf	13
3.3	Safeguards und Proliferationsrisiken	15
4	Thermische Reaktorkonzepte und stellvertretende Referenzreaktoren	18
4.1	Konzept des Thermischen Reaktors	18
4.2	Der Konvoi-Druckwasserreaktor (LWR)	19
4.2.1	Abbrandstreuung entladener DWR-Brennelemente	21
4.3	Der 600 MW _e Standard-CANDU-Reaktor	24
4.3.1	Auswirkung dynamischer Beladeplanung auf die Abbrandstreuung	26
4.4	Der Calder Hall Magnox-Reaktor	29
4.5	Der RBMK-1000 Druckröhren-Siedewasserreaktor	33
4.6	Die HTR OTTO-100 Reaktorstudie	36
5	Reaktorsimulation mit V.S.O.P.	40
5.1	Übersicht	40
5.2	Funktionsweise der Programm-Module	41
5.2.1	Der Begriff des <i>batches</i> und der <i>region</i>	44
5.2.2	Zeitliche Diskretisierung der Simulation	45
5.2.3	Validierung des V.S.O.P.-Programmsystems	46

6 Kern-Abbrandsimulation der Referenzreaktoren	47
6.1 Simulation des 1300 MW _e Konvoi-DWR	48
6.1.1 Vereinfachtes Kern-Abbrandmodell des DWR	50
6.2 Simulation des 600 MW _e Standard-CANDU-Reaktors	51
6.2.1 Vereinfachtes Kern-Abbrandmodell des CANDU-Reaktors	52
6.3 Simulation des 180 MW _{th} Calder Hall Magnox-Reaktors	54
6.3.1 Vereinfachtes Kern-Abbrandmodell des Magnox-Reaktors	55
6.4 Simulation des RBMK-1000 Reaktors	57
6.4.1 Vereinfachtes Kern-Abbrandmodell des RBMK-Reaktors	57
6.5 Die HTR OTTO-100 Studie	59
6.5.1 Vereinfachtes Kern-Abbrandmodell des HTR OTTO-100	61
6.6 Gültigkeits- und Einsatzbereich der Kern-Abbrandmodelle	63
7 Plutoniumaufbau in den LEU-Brennstoffzyklen	64
7.1 Aufbauverhalten der Plutoniumisotope	64
7.2 Analyse des Plutoniuminventars in den Entladechargen	69
7.3 Abbrandabhängigkeit reaktorspezifischer Pu-Vektoren	77
7.4 Resümee über das Pu-Aufbauverhalten thermischer Reaktoren	81
8 Methodik zur Identifizierung von Pu-Vektoren	84
8.1 Anwendung des Best-Fit-Verfahrens	84
8.2 Synopse der Best-Fit-Ergebnisse	89
8.3 Bewertung der Methodik	91
9 Vergleich alternativer Brennstoffzyklen	92
9.1 Randbedingungen bei der Implementierung	93
9.2 Ausgewählte Isotopen-Bilanzen der Brennstoffzyklen	96
9.2.1 Uran-233/235-Bilanz	96
9.2.2 Plutonium-Bilanz	101
9.2.3 MA-Bilanz	105
9.3 Zusammenfassung	110
10 Zusammenfassung und Diskussion der Ergebnisse	112

Anhang	114
A Isotopenaufbau im LEU-Zyklus	114
B Vervollständigung der Best-Fit-Ergebnisse	119
C Die Programmserie ORIGEN / ORIGEN2 / ORIGEN-JÜL-II	123
D Kopplung von VSOP97 und ORIGEN-JÜL-II	125
Literaturverzeichnis	128
Abbildungsverzeichnis	137
Tabellenverzeichnis	138

1 Einleitung

Die vorliegende Arbeit versucht, einen Beitrag im Rahmen der Verbesserung der öffentlichen Akzeptanz der Kernenergie zu liefern. Hierzu nimmt sie sich der Entsorgungskette nuklearer Abfälle an, die in der Bevölkerung oft in kontroverser Diskussion steht.

Es werden für wohlbekannte thermische Reaktorkonzepte und derzeit diskutierte Brennstoffarten die reaktorspezifischen Bildungsgesetze langlebiger Radionuklide, insbesondere Plutoniums und der Minoren Aktiniden, untersucht. Diese Nuklide stellen einerseits bezüglich der Endlagerproblematik aber auch vor dem Hintergrund eines Proliferationsrisikos kernwaffentauglichen Materials die dominierende Nuklid-Fraktion im radioaktiven Abfall dar.

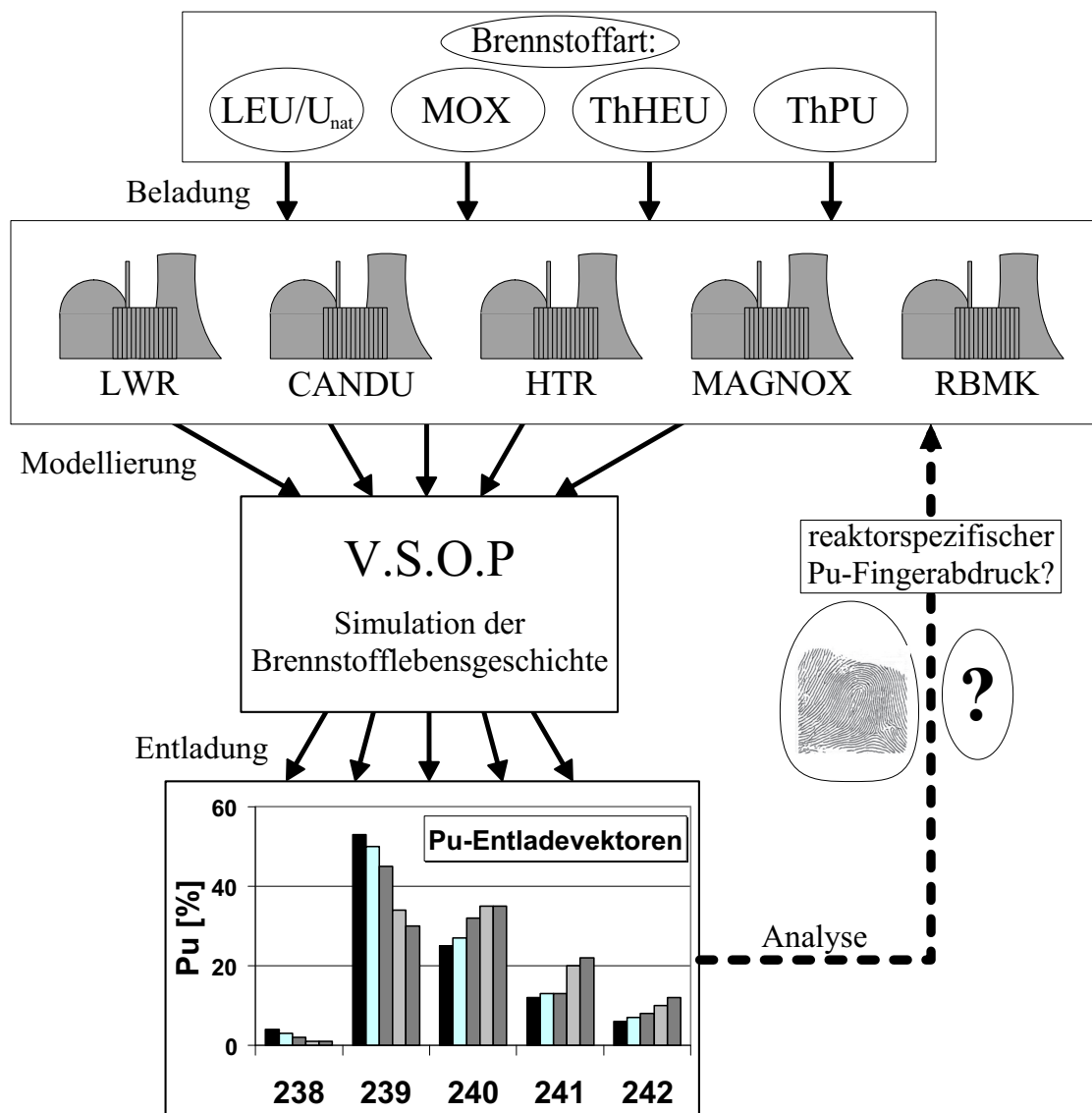


Abbildung 1: Schematisches Konzept der vorliegenden Arbeit

Abbildung 1 zeigt das schematische Konzept der vorliegenden Arbeit.

Die vier verschiedenen Brennstoffarten (LEU¹, MOX², ThHEU³ und ThPu⁴) werden in insgesamt fünf thermische Reaktorsysteme eingesetzt. Für jede dieser Kombinationen aus Brennstoff- und Reaktortyp wird mithilfe des Reaktorsimulationsprogrammes V.S.O.P. ein individuelles Kern-Abbrandmodell erstellt.

Nach der Simulation der Brennstofflebensgeschichte wird die Nuklid-Zusammensetzung der abgebrannten Brennelemente analysiert. Schließlich wird die Frage untersucht, ob der Plutonium-Isotopenvektor der Entladecharge eine Art eindeutigen *Fingerabdruck* der Ausgangskombination von Brennstoff- und Reaktortyp darstellt — und zwar unabhängig von der tatsächlichen Einsatzzeit der Brennelemente im Reaktorkern.

Der Hauptaspekt dieser Arbeit besteht in der Entwicklung einer Methodik, die es erlaubt, anhand der Plutoniumzusammensetzung einer Probe nuklearen Materials Hinweise auf den Ursprungsreaktor geben zu können. Auf dieser Weise ist es für bestimmte Proliferationsszenarien möglich, bestehende Safeguardslücken zu lokalisieren. Außerdem werden anhand des einheitlichen Programmsystems neben der Standard-Brennstoffart auch alternative Brennstoffzyklen für die thermischen Reaktorkonzepte simuliert und bezüglich Endlagerfragen und Abfallminimierungszielen bewertet.

1.1 Gliederung der Arbeit

Das folgende Kapitel nimmt sich — vor dem Hintergrund einer weltweiten Bevölkerungszunahme — der Problematik des global wachsenden Primärenergiebedarfs an und zeigt die Rolle der Kernenergie im Vergleich zu den anderen Primärenergieträgern auf.

Kapitel 3 beschreibt die aktuelle Situation der weltweiten Kernenergienutzung. Die bestehenden Gründe für ihre Akzeptanzschwierigkeit werden im Detail beleuchtet und die derzeit diskutierten Lösungswege werden dargestellt. Die Thematik der vorliegenden Arbeit wird in diesen inhaltlichen Rahmen eingeordnet.

In Kapitel 4 werden fünf thermische Reaktorkonzepte vorgestellt und jeweils ein typischer Reaktor als Vertreter des Konzeptes ausgewählt. Bei der Darstellung wird besonderer Wert auf die Kenngrößen der Kernneutronik sowie der Brennelementdaten gelegt.

Kapitel 5 stellt das in dieser Arbeit zur Reaktorkernsimulation verwendete Programmsystem V.S.O.P. vor. Anwendungsmöglichkeiten, Leistungscharakteristika und bisherige Testerfahrungen mit dem System wie auch dessen Gültigkeitsbereich werden besprochen.

In Kapitel 6 werden Kern-Abbrandsimulationen für die ausgewählten Referenzreaktoren durchgeführt. Für jede dieser komplexen Reaktorsimulationen wird ein stellvertretendes

¹Low Enriched Uranium

²Mixed Oxide Fuel

³Thorium-High Enriched Uranium

⁴Thorium-Plutonium

und für Brennstoffzyklusstudien besser geeignetes vereinfachtes Kern–Abbrandmodell eingeführt. Die Brennelement–Entladechargen der Referenzreaktorsimulationen werden mit denen der korrespondierenden Kern–Abbrandmodelle verglichen und im Hinblick auf die gewünschte Reproduktion von Brennstofflebensgeschichten diskutiert.

Kapitel 7 beleuchtet die Charakteristik des Plutoniumaufbaus im Standard–LEU–Brennstoffzyklus der fünf Reaktorkonzepte und beantwortet die Frage, inwiefern sich hierbei reaktorspezifische Unterschiede ergeben.

Im 8. Kapitel wird eine Methodik vorgestellt, die anhand der Kenntnis über das Plutoniumaufbauverhalten in den fünf Referenzreaktoren eine Aussage über die Herkunft unbekannter Plutoniumzusammensetzungen trifft. Die Methodik wird mithilfe zuvor berechneter Plutoniumvektoren sowie anhand von Literaturwerten verifiziert.

In Kapitel 9 werden die vorhandenen Kern–Abbrandmodelle genutzt, um — mit einem einheitlichen Programmsystem — Parameterstudien von alternativen Brennstoffzyklen für die fünf Reaktorkonzepte durchzuführen. Hieraus resultiert eine Bewertung der Konzepte hinsichtlich ihres Potentials, die Bildung von Plutonium und Minoren Aktiniden zu minimieren.

Abschließend faßt Kapitel 10 die Ergebnisse der Arbeit in einem Resümee zusammen.

2 Weltbevölkerung und Primärenergiebedarf

Die Weltbevölkerung ist im letzten Jahrhundert kontinuierlich angestiegen. Auch für die nächsten Jahrzehnte wird ein starkes Wachstum vorausgesagt. Schätzungen sprechen von einer Verdopplung der heutzutage 4 Milliarden Menschen in den Entwicklungsländern in den nächsten 50 Jahren[70], so daß die gesamte Welt in absehbarer Zukunft etwa 10 Milliarden Menschen beherbergen wird.

Im Einklang mit dem Anstieg der Weltbevölkerung wird ein Anstieg der durchschnittlichen Lebensqualität für die Menschen erwartet und gefordert. Dies gilt in besonderem Maße für die Länder, denen ein großes Potential für eine rasche wirtschaftliche Entwicklung vorausgesagt wird, beispielsweise China, Ost- und Südostasien. Die Lebensqualität ist in erster Linie verknüpft mit dem zur Verfügung stehenden Primärenergieeinsatz pro Kopf, so daß zwangsläufig auch der Primärenergiebedarf der Welt deutlich ansteigen wird.

Auf der einen Seite sorgen effizientere Nutzung durch Erhöhung von Prozeßwirkungsgraden und ein sparsamerer Umgang mit der vorhandenen Energie für eine merkliche Verlangsamung des Energie-Bedarfsanstieges in den Industrienationen, die sich die notwendigen Investitionen in diesem Bereich erlauben können; der weltweite Energiebedarf an sich wird jedoch nicht verhindert werden können. So sagt der Weltenergieericht eine Steigerung des weltweiten Stromverbrauchs um 50 bis 75 % bis zum Jahr 2020 voraus[68].

Nimmt man etwa China als Beispiel für die zu erwartende Entwicklung, dann läßt sich hier in den letzten 10 Jahren ein durchschnittlicher Anstieg des elektrischen Stromverbrauchs von 10 % pro Jahr feststellen. Derzeit ist der pro Kopf Verbrauch eines Chinesen jedoch nur ein Zehntel bis Zwanzigstel eines Bürgers der größeren Industrienationen. Unter der Annahme, daß sich der pro Kopf Verbrauch in China mittelfristig auf das bescheidene Niveau Südkoreas anheben wird, muß sich der pro Kopf Verbrauch in China — vom heutigen Wert aus gesehen — wenigstens verfünffachen[68].

Zur Deckung dieses immensen Energiebedarfs in der Zukunft werden alle verfügbaren Primärenergieträger gefordert sein, die durch ihren Einsatz hervorgerufenen Umweltprobleme verschärft und die Ressourcen weiter verknappert werden.

Während die Wasserkraft schon oft an die Grenze einer umweltverträglichen Kapazität gestoßen ist, sind die alternativen Energieträger, wie Wind- und Solarenergie, z. T. weit davon entfernt, wettbewerbsfähig Strom zu liefern. Ob sie jemals ein Grundpfeiler der Versorgung werden können, ist äußerst fraglich. Neben ihrer nicht kontinuierlichen Verfügbarkeit aufgrund der Schwierigkeiten, geeignete Speichersysteme zur Verfügung stellen zu können, bedingt ihre Nutzung einen sehr großen Flächenbedarf — eine Umweltressource, die besonders vor dem Hintergrund einer steigenden Weltbevölkerung und eines dazu parallelen Nahrungsmittelbedarfs als begrenzt gelten muß.

Die Fossilen Energieträger wie Kohle, Öl und Gas — mit 85 % Anteil derzeitige Stütz-

pfeiler an der weltweiten industriellen Energieversorgung — stehen nicht nur vor dem Problem einer als sicher erkannten Aufheizung der Atmosphäre durch Treibhausgase, sondern müssen aufgrund ihrer vergleichsweise einfachen Verfügbarkeit und technischen Realisierung für den Aufschwung in den Entwicklungsländern reserviert werden, denn diese verfügen zumeist — im Gegensatz zu den hoch technisierten Industrienationen — über keine technischen Alternativen für ihre künftige Energiebereitstellung.

Aus diesen Gründen fällt der Kernenergie in den Industrienationen eine tragende Rolle zu. Sie vereinigt die Vorzüge von großen Ressourcen, Unabhängigkeit, Wettbewerbsfähigkeit und einer umweltschonenden Art der Energiegewinnung in sich. So ist sie in der Lage, im Austausch gegen fossile Kraftwerke Emissionen von Treibhausgasen zu vermeiden und den Energiezuwachs in den Industrienationen — bei gleichzeitiger Schaffung des nötigen Freiraumes für die Entwicklungsländer — zu gewährleisten.

Bereits heutzutage liefert die Kernenergie an der Stromerzeugung weltweit einen erheblichen Beitrag (7 %)[68] und wird Prognosen zur Folge diesen Anteil in Zukunft weiter ausbauen. Dieser Ausbau ist nicht nur auf die Industrienationen beschränkt, sondern wird auch in Schwellenländern mit entsprechendem Wirtschaftswachstum diskutiert und vollzogen. So stehen von den letzten sieben, im Jahr 1999 ans Netz gegangenen Reaktoren, 2 in Japan, der Rest jedoch in Südkorea, Taiwan (jeweils 2) und China (1).

Auf der anderen Seite ist die friedliche Nutzung der Kernenergie i. a. mit Akzeptanzverweigerungen von breiten Bevölkerungsschichten konfrontiert, hervorgerufen durch nukleare Stör- und Unfälle in der Vergangenheit, einer als nicht gelöst angesehenen Endlagerfrage für die radioaktiven Langzeitabfälle und die Furcht vor dem Mißbrauch kernwaffenfähigen Materials durch den internationalen Terrorismus (sog. Proliferationsgefahr durch Lücken im Safeguardsystem). Der letzte Punkt ist seit dem 11. September 2001 verstärkt ins Licht der Öffentlichkeit gerückt.

Für diese Akzeptanzprobleme müssen Lösungen gesucht werden, um auf breiter gesellschaftlicher Basis die Nutzung und den Ausbau der Kernenergie möglich werden zu lassen. Damit könnten die Chancen für einen umweltverträglichen Anstieg des weltweiten Energieverbrauchs bei gleichzeitiger Steigerung des Lebensstandards der Menschen deutlich verbessert werden.

3 Status Quo der nuklearen Energieerzeugung

Nach nunmehr über 4 Jahrzehnten friedlicher Nutzung ist die Kernenergie zu einem wichtigen Element der weltweiten Stromerzeugungswirtschaft gereift. In 33 Ländern produzieren 436 Kernkraftwerke etwa 17 % des elektrischen Stroms, weitere 37 sind in Bau. In Deutschland sind 19 Reaktoren am Netz und tragen mit einer installierten Leistung von 22 GWe rund ein Drittel zur Stromerzeugung bei[67].

Die Nutzung der Kernenergie stößt jedoch in Teilen der Gesellschaft auf eine heftige Kritik. Diese resultiert zum einen durch die bisherigen Störfälle in Kernkraftwerken — hierbei vor allem die Reaktorhavarie in Tschernobyl (Rußland) und in TMI (USA). Zum anderen bietet die radioaktive Belastung großer Landstriche, vor allem in Rußland, bedingt durch die Emissionen und Abfälle aus den Kernwaffenprogrammen zu Zeiten des Kalten Krieges, Anlaß zu Ängsten in der Bevölkerung, ob eine Beherrschung dieser hochtechnisierten Energiegewinnungsart garantiert werden kann.

Nachdem die Kernwaffenforschung und –produktion durch eine Bindung der meisten nuklearen und potentiell–nuklearen Staaten durch international ratifizierte Abkommen weitestgehend eingestellt worden ist, kann auf Seite der friedlichen Nutzung der Kernenergie die Entwicklung von Reaktorkonzepten, bei denen die Auswirkungen von Störfällen auf die Anlage selbst begrenzt wird, eine unmittelbare Gefährdung der Bevölkerung für alle denkbaren Szenarien ausschließen.

Neben der Angst vor Unfällen in nuklearen Anlagen und Kraftwerken ist zum zweiten die verantwortungsvolle Entsorgung der radioaktiven Abfälle in den Augen großer Teile der Öffentlichkeit noch nicht gelöst. Durch lange Halbwertszeiten und die gleichzeitig hohe Radiotoxizität des abgebrannten Brennstoffes muß der nukleare Abfall teilweise Millionen von Jahren von der Umwelt ferngehalten werden.

Schließlich gibt es eine — besonders durch die jüngsten Ereignisse noch verstärkte — Befürchtung vor dem Mißbrauch kernwaffenfähigen Materials. Hier steht neben hoch angereichertem Uran insbesondere das Plutonium in der öffentlichen Diskussion.

Für alle drei Aspekte muß eine Lösung gefunden werden, um die Akzeptanz für die friedliche Nutzung der Kernenergie deutlich erhöhen zu können.

3.1 Entwicklungen in der Reaktorsicherheit

Um die potentiellen Auswirkungen nuklearer Störfälle möglichst klein halten und Unfälle in Zukunft vermeiden zu können, werden nicht erst seit den Ereignissen in TMI und Tschernobyl, sondern seit Beginn der Kernenergieära intensive Forschungs- und Entwicklungsprogramme auf nationaler und internationaler Ebene unterhalten. Hierbei steht meist die Weiterentwicklung von Sicherheitssystemen im Vordergrund.

Zum einen werden die Verfahren und Methoden in den wiederkehrenden Prüfungen der Reaktoren ständig verbessert. Damit wird in erster Linie ein sicherer Betrieb des Reaktors gewährleistet, aber auch die Reaktorlebensdauer kann über die ursprünglich angedachte Zeitspanne hinaus verlängert werden. Eine Vorreiterrolle nimmt die USA ein, in der einer Vielzahl von den über 100, in Betrieb befindlichen Reaktoren die Lizenz für weitere zwanzig Jahre über die geplante 40-jährige Betriebszeit hinaus zugestanden worden ist bzw. sich im laufenden Antragsverfahren befindet.

Neben den Verlängerungen der Reaktorbetriebszeit steht auch die Verbesserung bestehender und die Entwicklung neuer Reaktorkonzepte im Vordergrund.

Da heutzutage ca. 90 % der operierenden Leistungsreaktoren wassergekühlte Kerne besitzen, gibt es eine Vielzahl von sogenannten *evolutionären* Konzepten, die in den meisten Fällen auf eine Weiterentwicklung der bestehenden Leichtwasserreaktoren (LWR) fußen. Auf diese Weise ist es möglich, die über Jahrzehnte gewonnenen Betriebserfahrungen vorteilhaft in die Entwicklungsarbeiten einfließen zu lassen und Systeme zu entwerfen, die auf bewährten Technologien beruhen.

Hierzu zählen beispielsweise der von Framatome/Siemens angebotene EPR, ein weiterentwickelter Druckwasserreaktor. In den USA wurden drei neue Reaktorlinien entworfen, die sich zum Teil schon in Japan und Korea in Bau befinden. Hierbei handelt es sich um zwei Druckwasser- und einen Siedewasserreaktor (System 80+, AP600 und ABWR[69]). Allen Systemen gemein sind sogenannte passive Sicherheitseinbauten, die Störfälle auf naturgesetzlicher Basis beherrschen und nicht von aktiven Maßnahmen, deren 100-prozentige Verfügbarkeit nie garantiert werden kann, abhängig sein sollen. Zu diesen passiven Einbauten gehören entsprechende Nach- und Notkühlssysteme bis hin zu Corecatchern, welche sogar die Beherrschung einer potentiellen Kernschmelze ermöglichen sollen.

Neben den *evolutionären* gibt es auch die sogenannten *revolutionären* Konzepte. Diese innovativen Reaktorentwicklungen (Reaktoren der 4. Generation) verfügen über inhärente Sicherheitseigenschaften, die eine Kernschmelze naturgesetzlich ausschließen. Zusätzlich sollen diese Anlagen den Anforderungen an die Proliferationsresistenz des Brennstoffes mehr noch als bisher gerecht werden und das Aufkommen an nuklearem Abfall verringern. Kleine Blockgrößen führen zu geringeren Investitionskosten pro Reaktor und ermöglichen somit Flexibilität und Wettbewerbsfähigkeit, die von den liberalisierten Energiemärkten gefordert werden.

Mit wenigen Ausnahmen (IRIS-LWR, USA[69]) handelt es sich bei den Reaktoren der 4. Generation um heliumgasgekühlte und graphitmoderierte Reaktoren kleinerer modularer Größe[56]. Die Technologie der gasgekühlten Reaktoren befindet sich schon seit mehr als vier Jahrzehnten in vielen Ländern in der Entwicklung. Mehrere Prototyp- und Demonstrationsreaktoren wurden gebaut und betrieben und sie erlebt in letzter Zeit eine Art Renaissance. Mit verhältnismäßig kleinen Kernen und einer Leistung zwischen 100 und

300 MWe werden die nötigen Randbedingungen für eine 100 %tig passive und inhärente Sicherheit geschaffen — daneben offeriert sie vorteilhaft kurze Bauzeiten⁵ und geringere Investitionskosten. Außerdem hofft man, durch neuartige Brennstoffkreisläufe und Beladeplanungen Waffenplutonium zu nutzen und damit effektiv vernichten zu können.

Neben dem GT–MHR (*Gas Turbine Modular Helium Reactor*) von General Atomics findet z. Z. vor allem der südafrikanische PBMR (*Pebble Bed Modular Reactor*) internationale Beachtung. Nach dem Vorbild des äußerst erfolgreich, über mehr als 20 Jahre in Deutschland betriebenen AVR–Reaktors verwendet der PBMR Graphitkugeln mit kleinen beschichteten Brennstoffpartikeln in der Innenmatrix des Brennelementes. Hierdurch ist gewährleistet, daß der Brennstoff des PBMR Temperaturen von bis zu 1600 Grad Celsius ohne nennenswerte radioaktive Freisetzungen überstehen kann. Da die Auslegung des Reaktors das Überschreiten dieser Temperatur — auch im extremen Störfall des vollständigen Kühlmittelverlustes — naturgesetzlich ausschließt⁶, handelt es sich hierbei um ein inhärent sicheres Konzept[57][58].

Ein Vorteil dieser inhärenten Sicherheitseigenschaften ist, daß auf die kostentreibenden aktiv wirkenden Sicherheitssysteme verzichtet werden kann. Zudem vereinfacht sich der Einsatz in Schwellen- und Entwicklungsländern, indem sich die Anforderungen an die Ausbildung und Qualifikation des Betriebspersonals erheblich mindern.

In China und Japan haben vor kurzer Zeit die ersten derartigen Hochtemperatur–Prototypreaktoren die erste Kritikalität erreicht und der südafrikanische PBMR steht ebenfalls kurz vor der wichtigen Lizenzierung, die eine Aufnahme der Bauarbeiten Mitte 2002 ermöglichen kann[69]. Somit könnte sich in mittelfristiger Zukunft die gasgekühlte Hochtemperaturreaktorlinie als wichtiges Standbein einer künftigen 4. Reaktorgeneration etablieren.

3.2 Entsorgung der nuklearen Abfälle

Im Zuge der über vierzigjährigen Nutzung der Kernenergie zur Stromerzeugung sowie der Kernwaffenprogramme, vor allem in Rußland und den USA, sind große Mengen an nuklearem Abfall angefallen. Bei dem fortlaufenden Betrieb der Kernkraftwerke kommen jährlich weitere abgebrannte Brennelemente hinzu.

Die radioaktiven Abfälle werden als hoch-, mittel- und schwachaktiv eingestuft. Hierbei ist der hochaktive Abfall (HAW) für die Entsorgungsfrage bestimmend⁷.

⁵18 bis 24 Monate im Vergleich zu den für große Reaktoren üblichen 48 bis 72 Monaten[69].

⁶Die zur Verfügung stehende Wärmekapazität des Reaktorkerns ist ausreichend dimensioniert, um in Verbindung mit den stark negativen Reaktivitätskoeffizienten die unvermeidbare Nachwärmeproduktion der Brennelemente selbst bei Ausfall der Kühlung aufnehmen und damit den Temperaturanstieg im Kern beherrschen zu können.

⁷Hierbei insbesondere Plutonium und die Minoren Aktiniden gegenüber den kurzlebigeren Spaltprodukten

Für dessen Entsorgung wird je nach Land entweder die Plutonium–Rezyklierung bevorzugt (Belgien, England, Frankreich, Schweiz, Japan und Rußland), oder die direkte Endlagerung angestrebt (z. B. USA, Deutschland, Kanada und Schweden). Bei der direkten Endlagerung wird unterschieden zwischen permanenter und rückholbarer Endlagerung[60]. Vor der Rezyklierung oder der Endlagerung erfolgt die Zwischenlagerung — entweder dezentral an den Kraftwerksstandorten oder in zentralen Lägern — in dafür geeigneten Transport– und Lagerbehältern.

3.2.1 Derzeitiges und in Zukunft erwartetes Abfallaufkommen

In den USA liegen etwa 18 Kubikmeter von waffenfähigem Plutonium aus der militärischen Forschung und Produktion vor. Über 2000 Tonnen an bestrahltem Brennstoff müssen dort sicher verwahrt werden. In Rußland liegt die entsprechende Menge um mehr als das Vierfache (8700 Tonnen) höher.

Hinzu kommen aus den mehr als 400 weltweit operierenden Reaktoren insgesamt etwa 10.000 Tonnen entladener Brennstoff jährlich⁸. Ende 1999 belief sich die über die letzten vier Jahrzehnte akkumulierte Menge auf ca. 220.000 Tonnen, von denen etwa ein Drittel in die Wiederaufarbeitung flossen. Im Jahr 2015 dürfte sich diese Menge auf mehr als 340.000 Tonnen angehäuft haben[61]. Es fallen somit jährlich etwa 70 Tonnen Plutonium und ca. 10 Tonnen Minore Aktiniden (Americium, Neptunium und Curium) an[62].

In der EU sind bereits etwa 140 Tonnen Plutonium separiert und davon 80 Tonnen Plutonium in MOX–Brennelementen rezykliert worden[51]. 22 Tonnen rezyklierten deutschen Plutoniums, ursprünglich für die Verwendung in MOX–BE vorgesehen, lagern zur Zeit in Frankreich und Großbritannien[60] und eine fast genauso große Menge wurde als MOX–BE ausgeliefert. Insgesamt sind bisher etwa 80 Tonnen Plutonium in deutschen Kernkraftwerken entstanden.

Aus diesen Zahlen und Prognosen wird ersichtlich, daß aktuell bereits große Mengen an radioaktiven Abfällen vorliegen und diese in der Zukunft noch erheblich größer werden dürften. Das Plutonium nimmt hierbei aus mehreren Gründen eine Sonderrolle ein.

3.2.2 Bedeutung des Plutoniums in der Entsorgungsfrage

Plutonium ist ohne Zweifel dasjenige radioaktive Element, daß im Zentrum der öffentlichen Diskussion um die potentiellen Gefahren der Kernenergienutzung steht. Zum einen wird dies durch die lange Halbwertszeit in Verbindung mit der Radiotoxizität verursacht, was eine entscheidende Rolle in den Langzeitbetrachtungen für Endlager spielt. Der andere Grund liegt in der Kernwaffentauglichkeit der spaltbaren Plutoniumisotope. Aus diesen

⁸In einem modernen Leichtwasserreaktor (LWR) der 1300 MWe–Klasse werden jährlich rund 26 Tonnen bestrahlter Kernbrennstoff mit einem mittleren Abbrand von 40 GWd/t_{SM} entladen[60].

Gründen muß Plutonium vor unerlaubtem Mißbrauch geschützt und eine unkontrollierte Freisetzung in die Biosphäre ausgeschlossen werden.

Plutonium ist ein zwangsläufiger Bestandteil von abgebrannten Kernbrennstoffen, die Uran-238 als Brutstoff enthalten. Durch sukzessiven Neutroneneinfang entsteht hierbei aus Uran-238 eine Kette von Transuranen, von denen die Plutoniumisotope mengenmäßig den größten Anteil darstellen.

Die ungradzahligen Plutoniumisotope (Pu-239 und Pu-241) sind durch thermische Neutronen spaltbar und erhöhen die Kritikalität des Reaktorkerns; die gradzahligen Isotope (Pu-238, Pu-240 und Pu-242) vergiften durch ihre hohen Neutroneneinfang-Wirkungsquerschnitte den Reaktorkern und reduzieren somit die Kritikalität des Kerns.

Plutonium ist nicht stabil, sondern zerfällt unter Aussendung von Alphastrahlen und ist deshalb — ebenso wie andere natürliche α -Strahler (z.B. Radium, Thorium und Uran) radiotoxisch⁹. Die meisten Pu-Isotope sind darüberhinaus sehr langlebig¹⁰. Bei Langzeitsicherheitsbetrachtungen für nukleare Endlager spielt Plutonium aus diesen beiden Gründen eine entscheidende Rolle.

Durch die Wiederaufarbeitung abgebrannten Brennstoffes und durch die Lagerung der entladenen, nicht rezyklierten Brennelemente sind im Laufe der Kernenergienutzung mittlerweile in vielen Ländern Plutoniummengen im Tonnenmaßstab vorhanden. Deutlich vergrößert wurde diese Menge durch die jahrzehntelang betriebene Kernwaffenforschung und -produktion hauptsächlich zu Zeiten des Kalten Krieges (in erster Linie in Rußland und den USA, aber auch in Frankreich, England, China etc.).

Unter typischen Betriebsbedingungen gegenwärtiger Leichtwasserreaktoren fallen etwa 180 kg an spaltbaren Plutoniumisotopen[40] und etwa 250 kg Gesamtplutonium pro Jahr und Gigawatt elektrischer Betriebsleistung an. Bezogen auf die weltweite nukleare Energiewirtschaft ergeben sich um die 100 Tonnen Plutoniumoxid pro Jahr in den abgebrannten Brennelementen der laufenden Reaktoren, wobei etwa 20 Tonnen pro Jahr durch die Wiederaufarbeitung separiert werden. Insgesamt liegen gegenwärtig etwa 800 Tonnen Plutonium in Form von abgebrannten Brennelementen vor[59].

Eine zweite Quelle des Plutoniums besteht in den abgerüsteten nuklearen Sprengköpfen, durch die etwa 100 Tonnen metallischen Plutoniums mit hohem Spaltplutoniumanteil zwischen 1996 und 2005 anfallen[41]. Insgesamt dürfte es etwa 230 Tonnen Plutonium aus militärischen Beständen geben[59], hinzu kommen noch ca. 1500 Tonnen hoch angereichertes Uran (HEU), das etwa 94 % Uran-235 enthält[60].

Waffenplutonium erscheint im Hinblick auf die Proliferationsgefahr auf den ersten Blick deutlich problematischer als Reaktorplutonium, da es in waffentauglicher Isotopenzusam-

⁹Die gesundheitlichen Gefahren des Plutoniums gehen vor allem von einer Inkorporation über die Lungen und die Nahrungsaufnahme aus und nicht von dessen direkten Strahlungseigenschaften.

¹⁰Die Halbwertszeit des Pu-239 beträgt beispielsweise 24.110 Jahre.

mensetzung vorliegt, während das Plutonium in den abgebrannten Brennelementen eine für den Bau von Kernwaffen ungünstige Isotopenzusammensetzung besitzt. Ist das Reaktorplutonium nicht von dem restlichen Brennstoff separiert, bildet zudem die umgebende Matrix von Spaltprodukten und anderen Transuranen einen gewissen Proliferationsschutz. Plutonium ist — je nach Isotopengemisch — mehr oder weniger kernwaffentauglich. Waffenplutonium enthält die spaltbaren Isotope Pu-239 (ca. 94 %) und Pu-241. Der Rest ist im wesentlichen das Pu-Isotop-240 (ca. 6 %). Reaktorplutonium enthält dagegen nur ca. zwei Drittel an spaltbaren Pu-Isotopen bei einem Abbrand von 30 GWd/t – 45 GWd/t. Dieser Spaltstoffanteil verringert sich mit steigendem Abbrand[60]. Tabelle 1 zeigt jeweils einen typischen Waffen-Pu- und einen LWR-Pu-Vektor.

Nuklid	Waffen-Pu [%]	Reaktor-Pu [%] (Abbrand ca. 30 MWd/kg _{SM})
Pu-238	0,01	1,3
Pu-239	93,8	60,3
Pu-240	5,8	24,3
Pu-241	0,13	5,6
Pu-242	0,02	5,0
Am-241	0,22	3,5

Tabelle 1: Vergleich von Waffenplutonium und Reaktorplutonium (LWR)[60]

Zwar ist das Reaktorplutonium nicht so effizient in Kernwaffen verwendbar wie das Waffenplutonium; allerdings ist mit etwa 10 kg Reaktorplutonium eine Kernwaffe mit einer den ersten Atombomben vergleichbaren Wirkung herstellbar und deren Sprengkraft läge im Bereich von modernen taktischen Atomwaffen (1 – 2 kT TNT). Bei einer Verbesserung der Zündungs- und Implosionstechnik kann diese Sprengkraft sogar noch erhöht werden[60]. Aus diesem Grund darf bzgl. der Proliferations- und Safeguard-Fragen im Prinzip kein Unterschied zwischen beiden Plutoniumarten gemacht werden.

Die sich bietenden Optionen, wie mit der anfallenden Plutoniummenge verfahren werden sollte, sind vielfältig. Zum einen bietet sich für die in den abgebrannten Brennelementen anfallende Menge die direkte Endlagerung der Brennelemente an, wie sie auch zur Zeit in Deutschland favorisiert wird. Für waffenfähiges Material schließt sich diese Möglichkeit allerdings so gut wie aus, da die Proliferationssicherheit über die nötigen Verschlusszeiträume kaum gewährleistet werden kann. Außerdem bleibt das immense energetische Potential der spaltbaren Plutoniumisotope bei dem Konzept der Direkten Endlagerung gänzlich ungenutzt¹¹.

Dieses energetische Potential kann bei der Verwendung von rezykliertem Reaktor- oder

¹¹Ein markantes Beispiel: zur Zeit liefert Plutonium in den laufenden Kernkraftwerken etwa ein Drittel der Energie, die im Fall von Deutschland etwa der gesamten jährlichen Stromerzeugung aus Wasserkraft und der Verbrennung von Heizöl, Erdgas und Müll zusammengenommen entspricht[59].

Waffen-Plutonium in Mischoxidbrennelementen (sogenannte *MOX-BE*) genutzt werden. Die Rückführung des Plutoniums in den Brennstoffkreislauf ist zusätzlich geeignet, um den Plutonium-Isotopenvektor im Laufe der Einsatzzeit im Reaktor in Richtung auf höhere Plutoniumisotope zu verschieben und damit im Hinblick auf eine denkbare Verwendung als Waffenmaterial proliferationssicherer zu machen¹².

Nach [60] empfiehlt es sich, das Plutonium als *MOX-Brennstoff*¹³ erneut dem Brennstoffkreislauf zuzuführen, dessen Waffeneignung erheblich zu verschlechtern und damit netto kein weiteres Plutonium zu erzeugen¹⁴.

Die Transmutation in beschleunigergetriebenen Systemen und der Einsatz von Plutonium in Reaktoren mit Thorium-basiertem Brennstoff sind weitere Optionen. Hier wird einerseits das energetische Potential des eingesetzten Plutoniums genutzt und andererseits auch die Gesamtmenge deutlich reduziert, da der Neuaufbau des Plutoniums weitestgehend vermieden wird. Allerdings selbst wenn die Transmutation einmal marktreif sein sollte, was eine Zeitspanne von 3 – 5 Jahrzehnten dauert[62], sei sie keine Komplettlösung für die Entsorgung der radioaktiven Abfälle und könnte allenfalls den jährlichen Zuwachs auffangen[51].

Folglich gibt es ein begründetes Interesse an Brennstoffzyklen und geeigneten Reaktorkonzepten, durch die eingesetztes Plutonium so effizient wie möglich durch Spaltprozesse und den Aufbau in höhere Aktiniden umgesetzt wird. Darüberhinaus ist zu wünschen, daß bei weiterem Ausbau der Kernenergie Reaktorkonzepte bevorzugt werden, die möglichst wenig Plutonium neu erzeugen und damit das Anwachsen des weltweit vorhandenen Plutoniuminventars einschränken.

3.2.3 Strategien zur Abfallreduzierung

Neben der Entsorgung der übrigen hochaktiven Abfälle, die i. a. keine Weiterverwendungsmöglichkeiten bieten, sind die spaltbaren Uran- und Plutoniumisotope von besonderer Bedeutung, da sie neben der Rezyklierung und Verarbeitung zu neuem Brennstoff zum Bau von Kernwaffen geeignet sind.

Die Aufbewahrung des erzeugten Plutoniums ist sehr kompliziert, da eine zeitlich nicht begrenzte Lagerung prinzipiell abgelehnt wird und die Lagerzeit von waffenfähigem Plutonium minimiert werden soll. Außerdem müssen die Sicherungs- und Schutzmaßnahmen

¹²Diese Verschiebung des Pu-Isotopenvektors erfolgt hierbei durch die Spaltung des überwiegenden Anteils der ungradzahligen Pu-Isotope sowie durch den Aufbau der gradzahligen nicht spaltbaren Pu-Isotope. Allerdings wird die entladene Pu-Gesamtmenge durch das aus der Uran-238-Matrix der *MOX-Brennelemente* neu gebildete Plutonium nicht wesentlich reduziert.

¹³Aktuell ist die Nachfrage nach *MOX-Brennelementen* größer als die verfügbaren Produktionskapazitäten[64].

¹⁴Heute findet Plutonium-Verbrennung in ungeänderten LWR-Reaktorkernen mithilfe von *MOX-BE* auf der Basis von Uran-238 statt, allerdings mit einer wenig effizienten absoluten Plutoniumvernichtungsrate.

eines solchen Lagers hohe Standards erfüllen. Deshalb ist der Wunsch, das Plutonium auf irgendeine Art und Weise zu vernichten und damit einen potentiellen Mißbrauch in der Zukunft auszuschließen, seit langem präsent.

Seit einem Jahrzehnt werden in den USA, Japan, Rußland und Europa Strategien zur Plutoniumvernichtung bzw. –minimierung untersucht. Neben der noch in der Anfangsphase der Entwicklung stehenden Transmutation¹⁵ in beschleunigergetriebenen unterkritischen Systemen wird vor allem auf modifizierte alternative Brennstoffkreisläufe gesetzt. Hierdurch könnte die künftig anfallende Abfallmenge deutlich reduziert und parallel dazu Plutonium genutzt und gleichzeitig vernichtet werden.

3.2.4 Thoriumbasierter Brennstoffkreislauf

Bei der Nutzung von Uranbrennstoffen und Mischoxid–Brennstoffen, die auf Uran basieren, erfolgt die Bildung des Plutoniums im wesentlichen über die Neutronenabsorption im Uran–238–Nuklid. Die nachfolgenden Minoren Aktiniden (Neptunium, Americium und Curium) entstehen ihrerseits über den Neutroneneinfang in der stetig anwachsenden Plutoniumfraktion des abbrennenden Brennstoffes. Eine Vermeidung von Plutonium und der nachfolgenden Minoren Aktiniden könnte verwirklicht werden, wenn das Uran–238 aus dem Brennstoff entfernt würde. Allerdings besitzt das Uran–238 für die Stabilität des Reaktorkerns unverzichtbare neutronenphysikalische Eigenschaften, die ein Ersatznuklid übernehmen müsste.

Hier kommt das Thorium–232 in Frage, das in der Natur zu 100 % aus diesem Isotop besteht. Es verhält sich in neutronenphysikalischer Hinsicht sehr ähnlich zu dem Uran–238. Dem nicht spaltbaren Thorium–232 muß ein spaltbares Isotop zugesetzt werden, um den Reaktorkern weiterhin kritisch werden zu lassen. Das einzige, in der Natur vorkommende spaltbare Isotop ist das Uran–235, das — zur Vermeidung eines relevanten Uran–238–Anteils — in hochangereicherter Form (HEU) als Spaltstoff zugesetzt werden muß.

Alternative für diesen natürlichen Spaltstoff kann das Plutonium sein, entweder aus der Waffenproduktion oder aus rezykliertem Reaktorbrandstoff. Das hat den Vorteil, die bestehende Menge an Plutonium einerseits zu verringern und parallel dazu die Waffentauglichkeit entladenen Plutoniums zu verschlechtern.

Allerdings wird bei dem Thoriumzyklus auch das spaltbare Uran–233 erzeugt, das einerseits nach der Rezyklierung als Spaltstofffraktion in neuen Brennstoffen Einsatz finden kann, andererseits waffenfähiges Material darstellt, von dem erneut eine Proliferationsgefahr ausgeht. Glücklicherweise ist das Uran–233 durch begleitende Verunreinigungen (Uran–232) leicht detektierbar, so daß dadurch eine gewisse Proliferationssicherheit für den Thorium–Brennstoffzyklus gegeben ist.

¹⁵Umwandlung in kurzlebige Nuklide

Die Möglichkeit, Thorium anstelle von Uran als Brutstoff zu verwenden, wurde bereits zu Beginn der friedlichen Nutzung der Kernenergie diskutiert, vor allem vor dem Hintergrund, auf diese Weise die verfügbare Menge an Spaltstoff erheblich strecken zu können. Die prinzipielle Eignung von Thorium als Brennstoff wurde schon damals nachgewiesen¹⁶.

So sind beispielsweise Hunderte von CANDU¹⁷-Brennelementen mit Uran–Thorium, Plutonium–Thorium oder reinem Thorium erfolgreich über Jahre bei voller Leistung bestrahlt worden[65]. Weitere Beispiele finden sich in [46]. In Indien und den USA gab es schon erfolgversprechende Bestrahlungstests mit PuTh-Brennstoffen[46]. Studien untersuchen derzeit den Einsatz von Pu–Th–BE in leicht modifizierten LWR–Kernen[63].

Die Forschungsarbeiten und Entwicklungen rund um den Thoriumbrennstoff erleben in den letzten Jahren eine Art Renaissance, nachdem lange Zeit das Interesse gegenüber der Alternative Thorium aufgrund der weitaus größer als angenommenen Uran–Ressourcen ruhte. Heutzutage wird der Einsatz von Thorium als Brennstoff für aktuelle und zukünftige Reaktoren wieder international intensiv diskutiert. Besonders die deutliche Minderung an neu erzeugtem Plutonium sowie die Möglichkeit, die existierenden Plutoniumaltlasten unter Energiegewinnung zu reduzieren, stehen im Vordergrund. Weiterhin hofft man, eine Reduzierung von Gesamtabfallmengen, kleiner Nachzerfallswärmeleistung und geringerer Toxizität durch den Einsatz von Thorium–Brennelementen zu erreichen[65].

Auch von Betreiberseite wird aktuell überlegt, künftig die Verwendung von Thorium–Brennstoffen in Betracht zu ziehen. Einige Randbedingungen, unter denen Thorium gegenüber dem Uran–Zyklus als benachteiligt angesehen wurde, haben sich grundlegend geändert. Insbesondere zeigt sich bei hohen Abbränden, die in der Zukunft angepeilt werden, ein deutlicher Vorteil des Thoriums bzgl. besserer Wärmeleitfähigkeit und geringerer Spaltgasfreisetzung. Schließlich gibt es keine nennenswerten Unterschiede in der Nachwärmeproduktion zwischen Uran– und Thorium–Brennstoffkreisläufen. Die Ressourcen für Kernbrennstoffe würden bei Verwendung des Thoriumzyklus drastisch erhöht[55].

Aufgrund der Ähnlichkeit zum etablierten Uranzyklus ist der Aufwand für die Einführung des Thorium–Brennstoffzyklus verhältnismäßig gering. Die erhöhten Kosten der Einführung dieses Brennstoffzyklus können durch die Minimierung oder gar Vernichtung der aus o. g. Gründen problematischen, weltweit vorhandenen Plutoniummenge gegenübergestellt werden.

Die Vernichtung und die Verwertung von Plutonium reicht jedoch nicht aus, um das Toxizitätsniveau abgebrannten Brennstoffes soweit abzusenken, daß in technisch beherrschbaren Zeiten ein unkontrollierter Kontakt mit der Biosphäre erlaubt werden könnte. Dies liegt im wesentlichen an den Minoren Aktiniden (MA). Die anfallende Menge der MA ist jedoch deutlich kleiner als die des Plutoniums. Zudem sind sie i. a. nicht kernwaffentaug-

¹⁶AVR, THTR, Fort St. Vrain

¹⁷kanadische schwerwassermoderierte Reaktorbaureihe

lich. In mittelfristiger Zukunft wäre jedoch auch für diese letzte Fraktion des nuklearen Abfalls eine akzeptanzverbessernde Entsorgungslösung (siehe Transmutation) wünschenswert.

Vor diesem Hintergrund ist ein Vergleich der verschiedenen Reaktorkonzepte anhand eines einheitlichen Programmsystems interessant. Ein Teil dieser Arbeit befaßt sich hierbei mit der Untersuchung des Nuklidenaufbauverhaltens in unterschiedlichen Reaktorkonzepten für den Standard-LEU- und für alternative Brennstoffzyklen und erlaubt eine Klassifizierung der Konzepte nach den o. g. Plutonium-Minimierungszielen.

3.3 Safeguards und Proliferationsrisiken

Die Schlagworte *Nichtverbreitung* und *Safeguards* sind eng mit der friedlichen Nutzung der Kernenergie verbunden. Die meisten direkt oder indirekt hiervon betroffenen Nationen haben im Rahmen der IAEA (*International Atomic Energy Agency*) den sogenannten *Non Proliferation Treaty* unterzeichnet, der die Nichtverbreitung von Kernwaffen zum Ziel hat und somit bestrebt ist, die Anzahl der Kernwaffenstaaten nicht anwachsen zu lassen.

Um der Proliferationsgefahr begegnen zu können, werden von internationalen Organisationen (IAEA, EURATOM) Safeguardmechanismen entwickelt und Kontrollen aller Einzelschritte des Brennstoffkreislaufes durchgeführt, um undeklarierte Abzweigungen nuklearen Materials zu unterbinden.

Trotz scharfer Anwendung in allen Mitgliedsstaaten können diese Maßnahmen jedoch niemals lückenlos sein. Beispiele hierfür sind die unerwarteten Funde der UN-Inspektionsteams im Irak oder der begründete Verdacht von Abzweigungen nuklearen Materials aus dem Brennstoffkreislauf in Nordkorea (beides Mitgliedsstaaten), die eindeutig auf Aktivitäten mit dem Ziel der Herstellung von Kernwaffen schließen ließen[53].

Da Hunderte von Anlagen in der Welt spaltbares Material verwalten[71], bestehende Kernwaffen in der NATO und den GUS-Staaten demontiert und abgerüstet werden und bei steigendem Energiebedarf die Zahl der Kernreaktoren weiter ansteigen wird, ist ein paralleles Ansteigen der zu überwachenden Menge nuklearen Materials die Konsequenz.

Ferner finden derzeit in Rußland ernste Anstrengungen statt, radioaktiven Abfall aus dem europäischen und asiatischen Raum zu importieren und gegen entsprechendes Entgelt im eigenen Land wiederaufzuarbeiten und endzulagern. Zu den 14.000 Tonnen eigener abgebrannter Brennelemente könnten auf diese Weise 20.000 Tonnen aus dem Ausland hinzukommen[52] — inklusive der dementsprechend grenzüberschreitenden Materialverschiebungen.

Im Zuge der Kontrollen, die die Proliferation von nuklearem Material und insbesondere von waffentauglichem Plutonium oder Uran verhindern sollen, kam es stets zu Funden von proliferationsfähigem Material unbekannter Herkunft. Als Beispiel sei hier der

in Deutschland bekannteste Fall genannt, der Plutoniumfund 1986 auf dem Münchener Flughafen. Hier wurden 363 g Plutonium mit einem Anteil von 87 % Plutonium-239 sichergestellt, deren Herkunftsort lange Zeit Gegenstand der öffentlichen Diskussion war und auch wissenschaftliche Institute als gerichtliche Gutachter bemühte[42].

In der IAEA-Datenbank, die alle Zwischenfälle mit herrenlosem und undeklariertem radioaktiven Material aus 60 Ländern aufnimmt, sind bis Juni 1999 insgesamt 320 Fälle registriert. Allein in den USA erfolgen ca. 200, der NRC (*Nuclear Regulatory Commission*) gemeldete Ereignisse jährlich, und es wird angenommen, daß es sich hierbei nur um die *Spitze des Eisberges* handle[49]. Bei den von der WCO (*World Customs Organization*) bestätigten Fällen in dem Zeitraum von 1993 bis 1998 führt Deutschland sogar die Statistik mit 63 Ereignissen an. Funde von Plutonium machten hierbei weltweit über 4 Prozent aus (10 Fälle)[49].

Nicht erst seit den besorgniserregenden Funden von waffenfähigem Material 1994 in Europa gibt es allgemeine Befürchtungen eines sich etablierenden atomaren *Schwarzmarktes*[66]. Auch in Zukunft ist bei der gegenwärtigen weltpolitischen Lage eher mit einer zahlenmäßigen Zunahme dieser Ereignisse zu rechnen.

Nach den terroristischen Anschlägen des 11. Septembers 2001 wird verstärkt auf die Bemühungen der IAEA geblickt, vermißte und verlassene radiologische Quellen zu finden, um die Gefahr eines Mißbrauchs jeder Art ausschließen zu können[54]. Auch die IAEA selbst sieht es als eine ihrer wichtigsten Aufgaben an, das sogenannte *vagabundiere Kernmaterial* aufzuspüren und aus dem Verkehr zu ziehen. Hierzu müsse insbesondere die Meßmethodik und forensische Analysetechnik verbessert werden[50]. Das ITU entwickelt aus diesem Grunde ein Kernmaterialdatenbank, die das Spektrum des Kernmaterials im zivilen Kernbrennstoffkreislauf in Rußland und der europäischen Union abdecken soll. Im Auftrag der EURATOM werden in diesem Zusammenhang jährlich bis zu 2500 Proben analysiert[51].

Die Aufzählung dieser Ereignisse und Prognosen zeigt, daß die Safeguards und Nichtverbreitungsbemühungen in der Zukunft deutlich ausgebaut werden müssen. Verbesserungen der einzelnen Messmethoden und der Werkzeuge für eine effektivere Spaltstoffflußkontrolle sind aus diesen Gründen anzustreben.

So ist es aus naheliegenden Gründen wünschenswert, die Herkunft aufgespurten Materials zu ermitteln, da hierdurch Safeguard-Lücken lokalisiert werden können.

Oft gelingt es, die Herkunft bereits mittels der Begleitumstände, die zum Fund des Materials führten, aufzudecken. Auch radioaktive Spurenisotope oder Kontaminationen an Verpackungen etc. lassen manchmal den Ort der Entnahme oder Wiederaufarbeitung erkennen, sofern er nur durch eine Datenbank über charakteristische Einflußgrößen und Kenntnisse der letzten nuklearen Transaktionen ausreichend beschrieben ist[42].

Ein wesentliches Hilfsmittel ist letztendlich das Material selbst in seiner charakteristischen

Nuklidzusammensetzung. Hier wäre es wünschenswert, wenn aus der nuklearen Zusammensetzung des Materials eine Information über dessen Ursprung, d. h. beispielsweise über den Reaktortyp, in dem es erzeugt wurde, abgeleitet werden könnte.

Die Untersuchung dieser Fragestellung ist ein wesentlicher Aspekt der vorliegenden Arbeit. Es wird eine Methodik entwickelt, um die Plutonium-Zusammensetzung einer Probe mit dem Herkunftsreaktortyp zu korrelieren. Auf diese Weise könnten in der Zukunft bestehende Safeguard-Sicherheitslücken in bestimmten Fällen schneller lokalisiert und geschlossen werden.

4 Thermische Reaktorkonzepte und stellvertretende Referenzreaktoren

Im folgenden wird kurz das Prinzip des thermischen Reaktors erläutert und auf die Unterschiede der fünf wichtigsten Konzepte thermischer Reaktoren hingewiesen. Ihr Stellenwert auf dem Energiemarkt in der Vergangenheit sowie in der Gegenwart wird beleuchtet. Daraus leitet sich unmittelbar die Gesamtmenge der entladenden Brennelemente pro Reaktorlinie ab. Für jedes der fünf genannten Konzepte wird ein typischer Vertreter vorgestellt. In vier Fällen handelt es sich um Kraftwerke, die sich seit Jahren im Leistungsbetrieb befinden, und in einem Fall um eine Studie für ein fortschrittliches Reaktordesign.

Bei der Darstellung wird besonders auf den Bereich des Reaktorkerns Wert gelegt, da von ihm die gesamte für den Abbrand der Brennelemente und den Aufbau der Aktiniden entscheidende Neutronik abhängt. Aus dem gleichen Grund werden Angaben wie Zyklusdauer, durchschnittlicher Abbrand der Entladecharge, Beladungsschemata und andere, die Brennelementgeschichte beeinflussende Größen, genauer analysiert.

4.1 Konzept des Thermischen Reaktors

Thermische Reaktoren unterscheiden sich von schnellen Reaktoren in erster Linie dadurch, daß sie einen Moderator besitzen, der die aus der Kernspaltung hervorgerufenen schnellen Neutronen auf die thermische Energie des sie umgebenden Mediums abbremsst. Die Spaltprozesse werden durch die thermalisierten Neutronen bewirkt. Die wenigen weltweit operierenden schnellen Reaktoren machen nur einen kleinen Anteil gegenüber den thermischen Reaktoren aus. Es sind heutzutage fast ausschließlich die thermischen Reaktoren, die als Leistungsreaktoren den nuklearen Anteil des elektrischen Stromes bereitstellen.

Es gibt mehrere Kriterien, nach denen sich thermische Reaktorkonzepte differenzieren lassen. Neben der Art des Moderators und des verwendeten Kühlmittels als wichtigste Unterscheidungscharakteristika sind auch Brennstoffart und –anreicherung sowie das Material eines den Brennstoff umschließenden Hüllenwerkstoffes maßgeblich. Für alle diese Charakteristika sind zahlreiche Wahlmöglichkeiten denkbar. Als Moderatoren eignen sich neben Schwer- und Leichtwasser auch Graphit, Beryllium, organische Substanzen etc. Nur wenige haben sich als technisch zufriedenstellend erwiesen. Aus diesem Grund basiert die überwiegende Mehrheit der weltweit existierenden Leistungsreaktoren und fortschrittlichen Reaktorstudien auf den fünf, in Tabelle 2 dargestellten, thermischen Konzepten[32],[1].

Der in den Reaktoren verwendete Spaltstoff ist im Standardfall Uran-235, allerdings kommt in Einzelfällen auch Uran-233 und Pu-239/241 als Spaltstoff und Thorium oder Plutonium anstelle von Uran-238 als Brutstoff zum Einsatz.

¹⁸In einigen wenigen Fällen fand bei den schwerwassermoderierten Reaktoren auch leichtes Wasser, Gas oder eine organische Flüssigkeit als Kühlmittel Verwendung.

Reaktortyp	Leichtwasser (DWR/SWR)	Schwerwasser (CANDU)	Magnox/ AGR	Hoch- temperatur	RBMK
Moderator	leichtes Wasser	schweres ¹⁸ Wasser	Graphit	Graphit	Graphit
Kühlmittel	leichtes Wasser	schweres Wasser	Kohlen- dioxid	Helium	leichtes Wasser
Hüllenwerkstoff	Zirkaloy	Zirkaloy	Magnox, Stahl	Graphit, Silizium	Zirkaloy, Stahl
Brennstoff ¹⁹	Uranoxid	Uranoxid	Uranmetall	Uranoxid	Uranoxid
Uran- Anreicherung	3 – 4 %	0,7 %	0,7 – 2 %	8 – 93 %	1,8 – 2 %
Leistungsdichte (MW/m ³)	100 / 50	10 – 15	0,5 / 2	3 – 6	4
Kühlmittel- temp. (°C)	326 / 285	310	340 / 650	750 – 950	285
Kühlmittel- druck (bar)	160 / 70	100	7 / 40	40 – 60	70
Beladungsart	3–4 Zyklen	kont.	3–5 Zyklen	kont.	kont.

Tabelle 2: Charakteristika etablierter thermischer Reaktorkonzepte

Für jedes der genannten Konzepte, die in ihrer Gesamtheit nahezu alle stromerzeugenden Reaktoren in der Welt umfassen, wird im folgenden ein typischer Vertreter ausgewählt und im Detail vorgestellt. Die maßgeblichen Reaktordaten dieser Referenzreaktoren dienen als Referenzwerte für die spätere Simulation durch das Programmsystem V.S.O.P.[34].

Stellvertretend für die übrigen Konzepte wird für den LWR die Abbrandstreuung entladener Brennelemente besprochen und die Bedeutung eines *mittleren Abbrandwertes* untersucht. In einem weiteren Abschnitt wird für den CANDU-Reaktor die Auswirkung der Beladepanung auf die Abbrandstreuung dargestellt. Beide Abschnitte dienen als Fallbeispiele für die in dieser Arbeit betrachteten Konzepte, da die dort getroffenen Aussagen qualitativ für jeden Leistungsreaktor gelten.

4.2 Der Konvoi-Druckwasserreaktor (LWR)

Der mit angereichertem Uran zu betreibende Leichtwasserreaktor ist der weltweit dominierende Reaktor für die nukleare Stromerzeugung. Die Mehrheit der Kernkraft betreibenden Länder verfolgt heutzutage hauptsächlich diese Reaktorlinie. Das den Kern durchströmende leichte Wasser dient sowohl als Moderator als auch als Kühlmittel. Die Brennelemente bestehen aus einer Vielzahl dünner Brennstäbe einer Zirkonlegierung, die das leicht angereicherte Urandioxid enthalten.

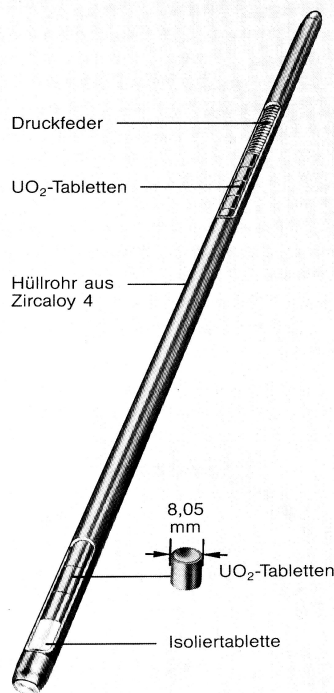


Abbildung 2: Skizze eines DWR–Brennstabs mit UO₂-Tabletten [2]

Auch die meisten evolutionären Reaktorentwicklungen gründen auf dem Leichtwasserreaktor (beispielsweise der EPR (*E*uropean *P*ressurized *W*ater *R*eactor) und der ABWR (*A*dvanced *B*oiling *W*ater *R*eactor))[1].

Einer der bekanntesten und zugleich modernsten deutschen Vertreter für die Leichtwasserreaktoren ist der KWU 1300 MW_e Konvoi–Druckwasserreaktor²⁰, der im folgenden als Referenzreaktor für das LWR–Konzept verwendet wird.

Nach den Grundlagen der Konvoi–Planung sollten die standortunabhängigen Gebäude, Komponenten und Systeme, die einen Anteil von etwa 80 % am gesamten Kraftwerk ausmachen, nach einheitlichem Konzept und in einer mit den Betreibern vor Baubeginn abgestimmten und festgelegten Technik ausgeführt werden. Die konsequente Durchführung dieses Konzeptes ermöglichte es, Genehmigung und Fertigung erheblich gestrafft und das Bauvorhaben zeit– und kostengünstig abzuwickeln[13].

Tabelle 3 zeigt die konvoi–spezifischen Daten für den Reaktorkern. Die Kernstruktur besteht hauptsächlich aus 193 langen, stabförmigen Brennelementen quadratischer Querschnittsfläche, deren Anordnung näherungsweise einem Zylinder entspricht. Die Struktur wird längsseitig von boriiertem Leichtwasser unter hohem Druck durchströmt, der das

¹⁹Bei diesen in Bau befindlichen Anlagen lag das Verhältnis von DWR zu SWR bei 8:1 zugunsten des DWR.

²⁰Die DWR Isar–2, Emsland und Neckar–2 gehören zu dieser Baureihe und sind die jüngsten, in Deutschland an das Netz gegangenen Leistungsreaktoren.

Man unterscheidet zwei Arten von Leichtwasserreaktoren: den Druckwasser– (DWR) und den Siedewasserreaktor (SWR). Im Druckwasserreaktor wird die Energie des aufgeheizten Kühlwassers in einem Dampferzeuger an einen sekundären Dampfkreislauf übertragen. Bei Siedewasserreaktoren wird auf Dampferzeuger verzichtet, da die Verdampfung im Reaktorkern stattfindet und der Dampf direkt auf die Turbine geleitet wird. Hohe Leistungsdichten im Kern, besonders beim DWR, sind technisch realisierbar. Die technische Reife dieses Konzeptes ist sehr weit entwickelt und ermöglicht hohe Verfügbarkeiten der Anlagen. Der Anteil der Leichtwasserreaktoren betrug 1992 rund 85 Prozent der weltweit installierten Kernkraftwerksleistung, wobei die Druckwasserreaktoren dreimal so stark vertreten waren wie die Siedewasserreaktoren. Schaut man auf die zu diesem

Zeitpunkt in Bau befindlichen Kernkraftwerksblöcke, so fielen prozentual sogar 88 Prozent auf die Leicht-

thermische Vollastleistung	3.765 MW _{th}
Kernleistungsdichte	94,4 MW/m ³
Kernabmessungen	Höhe 3,92 m, Durchmesser 3,44 m
Volumen der aktiven Zone	39,88 m ³
mittlere Brennstofftemperatur	750 °C
mittlere Kühlmitteltemperatur	310 °C
Anreicherung der Nachlade-BE	4,0 %
Schwermetalleinsatz im Kern	106 t
Beladungsfrequenz und -menge	alle 320 Vollasttage etwa 1/4 des Kerns
mittlerer Entladeabbrand	44,3 MWd/kg _{SM} (für diese BE-Version)

Tabelle 3: Spezifische Kerndaten für den Konvoi-DWR [13]

Sieden bei den gegebenen Temperaturen weitgehend unterbindet. Der ganze Kern ist eingeschlossen in den Reaktordruckbehälter.

Anzahl der Brennelemente	193
Anzahl der Brennstäbe pro BE	18x18–24
Radius der Brennstoffzone	4,025 mm
Pitch	12,76 mm
Hüllrohrmaterial	Zirkaloy
Hüllrohrdicke	0,64 mm
Strukturmaterial	Cr, Fe, Ni

Tabelle 4: Spezifische Brennelementdaten für den Konvoi-DWR [13]

Abbildung 2 zeigt den Aufbau eines Brennstabs aus Uranoxid-Pellets und dem Zirkaloyhüllrohr; die zugehörigen Daten können Tabelle 4 entnommen werden. In einem 18x18-Gitter werden 300 dieser Brennstäbe zu einem der insgesamt 193 Brennelemente (siehe Abbildung 3) des Reaktorkerns angeordnet. 24 Stabpositionen in jedem Brennelement bleiben frei, um Kontroll-/Absorberstäbe oder Kerninstrumentierung aufzunehmen. Zusätzliche Kernstrukturen wie Abstandshalter, Strömungsbleche, Kernmantel etc. vervollständigen den DWR-Kern.

4.2.1 Abbrandstreuung entladener DWR-Brennelemente

Wie im folgenden gezeigt, kann es irreführend sein, einen einzigen Wert für den durchschnittlichen Entladeabbrand eines Reaktorkerns anzugeben. Es gibt viele Faktoren, die den Abbrand jedes einzelnen Brennelements beeinflussen. Mit der variablen Zykluslänge, der räumlich-zeitlich unterschiedlichen Neutronenflußverteilung und der teilweise wechselnden Position des Brennelements im Kern seien beispielhaft einige wichtige Parameter genannt. Die gesamte Leistungsgeschichte des Reaktors und die dynamisch angepaßten Beladeschemata sind niemals wirklich periodisch oder für zwei Brennelemente identisch. Es

macht in diesem Zusammenhang lediglich Sinn, von einem durchschnittlichen Abbrand aller über einen großen Zeitraum entladener Brennelemente zu sprechen und dabei stets die Varianzen im Auge zu behalten, mit denen dieser Mittelwert behaftet ist. Hinzu kommt, daß sich besonders in den letzten 10–20 Jahren der durchschnittliche Abbrand entladener LWR–Brennelemente ständig durch technische Neuerungen erhöht hat[12]. Der Vorteil eines angestrebten höheren Abbrands für den Betreiber liegt in einer besseren Uranausnutzung und in einer beträchtlichen Reduzierung der Brennstoffkreislaufkosten durch die Verringerung der jährlich entladenen Brennelementmenge.

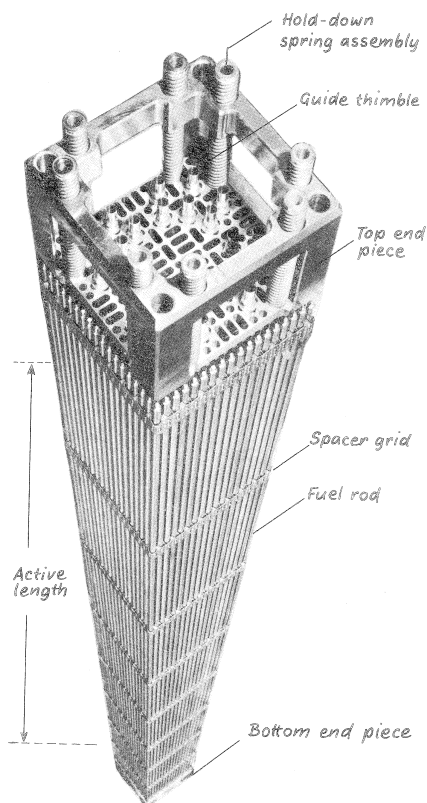


Abbildung 3: Brennelement für den Konvoi-Reaktor mit 18x18–Brennstabmatrix[2] anvisiert[8].

Um die Größenordnung dieser Abbrandvarianz einschätzen zu können, wird im folgenden die zeitliche Entwicklung des Zielabbrands für LWR–Brennelemente skizziert. Ende der 70er Jahre wurden Druckwasserbrennelemente üblicherweise für Entladeabbrände von 30 bis 35 MWd/kg_{SM} ausgelegt[7]. 1982 wurden BE–Nachladungen für einen Abbrand bis zu 40 MWd/kg_{SM}, 1988 für bis zu 45–48 MWd/kg_{SM} von der Advanced Nuclear Fuels Corp. (ANF) angeboten[9]. Siemens erreicht mit DUPLEX–Hüllrohren in der 18x18–BE–Geometrie heutzutage einen durchschnittlichen Abbrand von mehr als 50 MWd/kg_{SM} und in Einzelfällen bis maximal 60 MWd/kg_{SM}[12]. Die Planungen von modernen BE–Transport– und Lagerbehältern gehen heutzutage von einem BE–Abbrand von bis zu 75 MWd/kg_{SM} aus.

Der heute größte Abbrand für den SWR liegt mit ATRIUM–10–BE bei bis zu 50 MWd/kg_{SM}[12]. Bei dem EPR–Projekt für die nächste europäische DWR–Generation ist ein Abbrand zwischen 55 und 65 MWd/kg_{SM}

Weiterhin ist der Blick auf die Menge und Verteilung der bereits in Deutschland während der bisherigen Zeit der Kernenergienutzung entladener Brennelemente aufschlußreich. Der Stand im Dezember 1997 war wie folgt: ca. 20 % aller von Siemens gelieferten BE für DWR haben einen Abbrand zwischen 40 und 50 MWd/kg_{SM}, für ein Drittel liegt er zwischen 35–40 MWd/kg_{SM}, für 25 % zwischen 30–35 MWd/kg_{SM} und für den Rest darunter.

Selbst ein einzelnes Brennelement zeigt kein homogenes Abbrandverhalten. Der heutzutage i. a. erreichte Spitzenwert von 73 MWd/kg_{SM} für einzelne Brennstäbe liegt um mehr als 20 MWd/kg_{SM} über dem Durchschnittswert für die gesamte Entladecharge[12].

Obwohl für die Zusammensetzung der Isotopenverteilung eines entladenen Brennelements die Größe des Abbrands ein wichtiger Parameter ist, spielt daneben auch die zeitliche Leistungsgeschichte eine Rolle. Da für ein Leichtwasserkernkraftwerk eine gewisse Flexibilität in der Länge der Abbrandzyklen von Vorteil ist – streng optimierte Revisionsplanungen schließen kurzfristige Verschiebungen des BE–Wechsels i. a. aus –, werden ausreichende Margen für die neutronenphysikalische Einsatzplanung der Brennelemente angestrebt. Aus diesem Grund wurde für die Konvoi–Anlagen der Übergang von 16x16– auf 18x18–Stabanordnung für die BE gewählt. Diese Maßnahme führt zu einer Reduktion der Brennstablängenleistung und senkt die Brennstofftemperaturen. Das wiederum wirkt sich günstig auf die mechanischen Beanspruchungen aus und erhöht die Lebensdauer der Brennelemente[7]. In jüngster Zeit haben Reaktoren, besonders in den USA, ihre Zykluslänge von 12 auf 18 bis 24 Monate ausdehnen können[12].

Der für den hier näher untersuchten Konvoi–Referenzreaktor verwendete durchschnittliche Abbrand von 44,3 MWd/kg_{SM} (siehe Tabelle 3) liegt unter den heutzutage für moderne DWR ausgewiesenen BE–Abbrand–Spitzenwerten. Allerdings befindet er sich – bezogen auf alle bisher aus DWR entladene Brennelemente – dennoch in der Abbrandgruppe der oberen zehn Prozent. Dieser Wert stellt somit auch für die nahe Zukunft einen repräsentativen durchschnittlichen DWR–BE–Abbrand dar.

Zusammenfassend ist somit festzustellen, daß die Abbrandstreuung entladener BE nicht vernachlässigt werden darf. Diese Aussage ist nicht nur auf die Leichtwasserreaktoren beschränkt, sondern gilt für die anderen Reaktorkonzepte gleichermaßen, denn sich räumlich–zeitlich verändernde Neutronenspektren, dynamisch bestimmte Zykluslängen und BE–Einsatzpläne etc. sind Randbedingungen, die auch dort Gültigkeit besitzen. Der Wert des durchschnittlichen Abbrands einer entladene Brennelementcharge sollte stets vor vorgenanntem Hintergrund interpretiert und mit der vorhandenen Streubreite assoziiert werden.

4.3 Der 600 MW_e Standard–CANDU–Reaktor

thermische Vollastleistung	2.180 MW _{th}
Kernleistungsdichte	11,8 MW/m ³
Kernabmessungen	5,94 m Länge, 6,29 m Durchmesser
Volumen der aktiven Zone	184,3 m ³
mittlere Brennstofftemperatur	936 °C
mittlere Kühlmitteltemperatur	300 °C
Anreicherung der Nachlade–BE	Natururan
Schwermetalleinsatz im Kern	85,7 t
Beladungsfrequenz und –menge	kontinuierlich, im Mittel 17 BE pro Tag
mittlerer Entladeabbrand	vorgesehen in dieser Version: 7,0 MWd/kg _{SM}

Tabelle 5: Spezifische Kerndaten für den 600 MW_e Standard–CANDU–Reaktor [24]

Schweres Wasser als Moderator bietet den Vorteil, Natururan als Brennstoff verwenden zu können. Das deckt sich mit den Interessen eines nicht unbedeutenden Marktes, der keinen Gebrauch von der Urananreicherung machen kann oder möchte. Allerdings ist hierbei ein sehr großes Moderator–zu–Uran–Volumenverhältnis unumgänglich. Der Kern muß daher sehr groß ausgelegt werden und daraus resultiert eine vergleichsweise kleine Leistungsdichte. Die Schwerwasserreaktorlinie wird vor allem von Kanada, Argentinien, Indien, Rumänien und Korea vertreten und dort in Zukunft zumeist weiter verfolgt. Schwerwassermoderierte Reaktoren stellten Ende 1992 einen weltweiten Anteil von 5 % an der insgesamt installierten Kernkraftwerksleistung[1].

Der kanadische CANDU–Reaktor, als der zahlenmäßig stärkste Vertreter unter allen Schwerwasserreaktoren, ist ein Druckröhrenreaktor, der das schwere Wasser auch als Kühlmittel verwendet. Weltweit sind 32 Kernkraftwerksblöcke Reaktoren des kanadischen CANDU–Typs mit einer installierten Leistung von insgesamt 19 GWe. Darunter befinden sich neun Reaktoren der 700 MW_e–Klasse (CANDU 6 Klasse, einer leichten Modifizierung des ursprünglichen 600 MW_e Standard–CANDU) und zwölf der 900 MW_e–Klasse (CANDU 9), die alle den gleichen Brennelementtyp einsetzen. CANDU–Einheiten befinden sich zumeist unter den ersten zehn Positionen der weltweiten Rangliste für Kernreaktoren hinsichtlich ihrer jährlichen und auf ihren gesamten Leistungsbetrieb bezogenen Verfügbarkeit[28].

Die Menge der bereits aus CANDU–Reaktoren entladenen BE ist beträchtlich. Laut Stand im März 1992 werden etwa 94.000 BE–Bündel jährlich aus kanadischen Reaktoren entladen und insgesamt 830.000 BE–Bündel zumeist vor Ort gelagert (davon alleine 34.000 in Gentilly–2).

Bei dem für diese Arbeit ausgewählten Referenzreaktor handelt es sich um den Standard–CANDU mit einer elektrischen Leistung von 600 MW. Tabelle 5 enthält die Kerndaten für

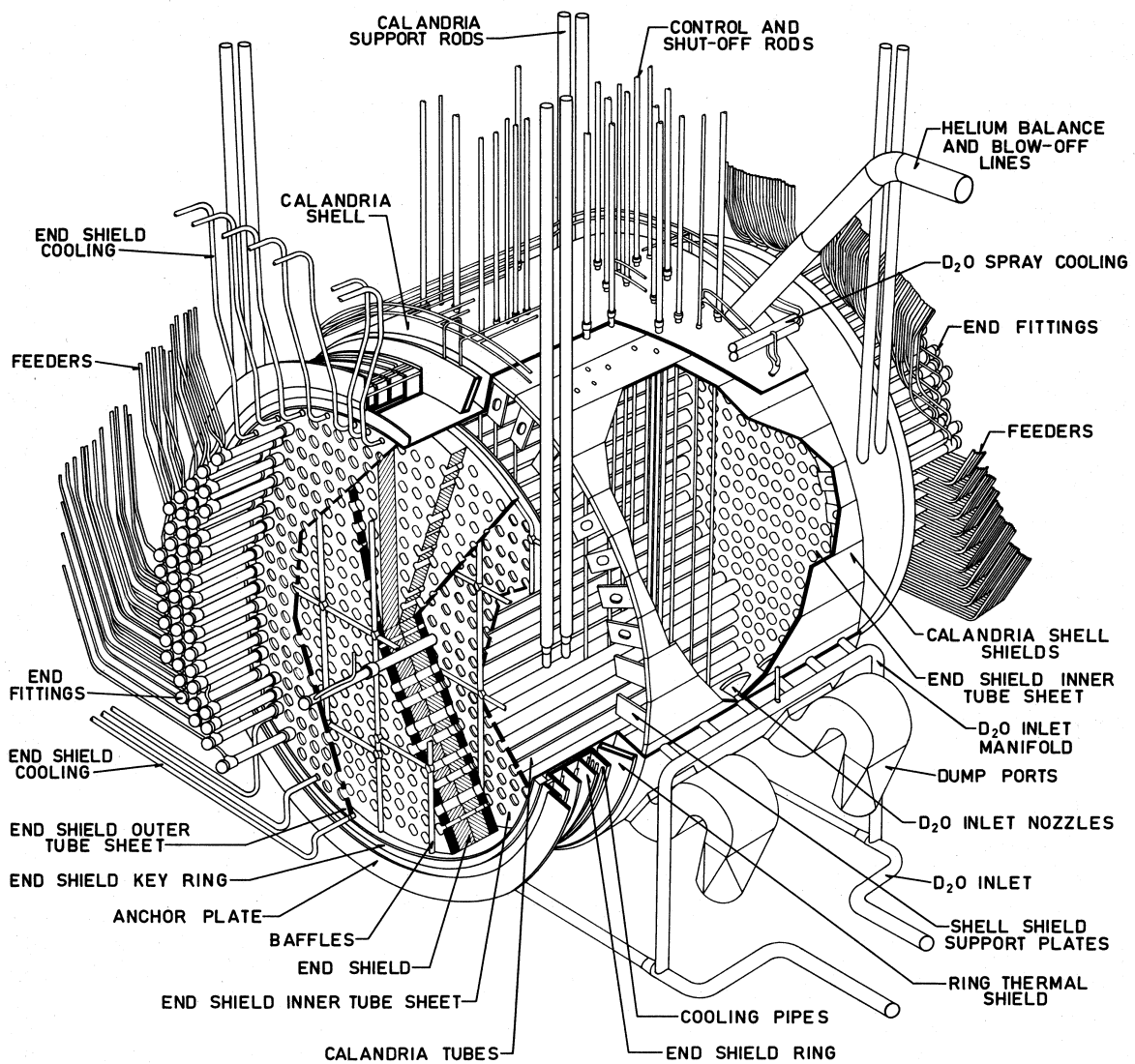


Abbildung 4: Kernstrukturen des Bryce-2-CANDU-Reaktors [3]

diesen Standardtyp, die als Referenzwerte für die spätere Simulation Verwendung finden. Der Standard-CANDU ist in seiner ursprünglichen Form zweimal in Kanada (Gentilly-2, Point Lepreau), in Argentinien (Cordoba) und in Korea (Wolsung) gebaut worden[27].

Der CANDU-Reaktorkern (siehe Abbildung 4) besteht aus einer quadratgitterförmigen horizontalen Anordnung von 380 Calandriaröhren innerhalb des mit Schwerwasser bei 70 °C gefüllten Calandriatanks. Jede dieser Röhren enthält ihrerseits eine Druckröhre, in der sich die lose hintereinanderliegenden Brennelementbündel befinden. Die Kühlung der Bündel erfolgt durch Schwerwasser einer mittleren Temperatur von 317 °C. Leistungsregel- und Abschaltstäbe ragen senkrecht zwischen den Röhren in den Calandriatank hinein. Zur Kompensation der Erstkernreaktivität und zur Steuerung des Leistungsprofils über den Kern gibt es zusätzliche vertikale Hohlstäbe, die mit Leichtwasser gefüllt werden

können. Durch die im Vergleich zum Schwerwasser erhöhten Absorptionseigenschaften des leichten Wassers kann der Neutronenfluß durch die Variation des Leichtwasservolumens im Kern partiell reduziert und die Kritikalität gesteuert werden.

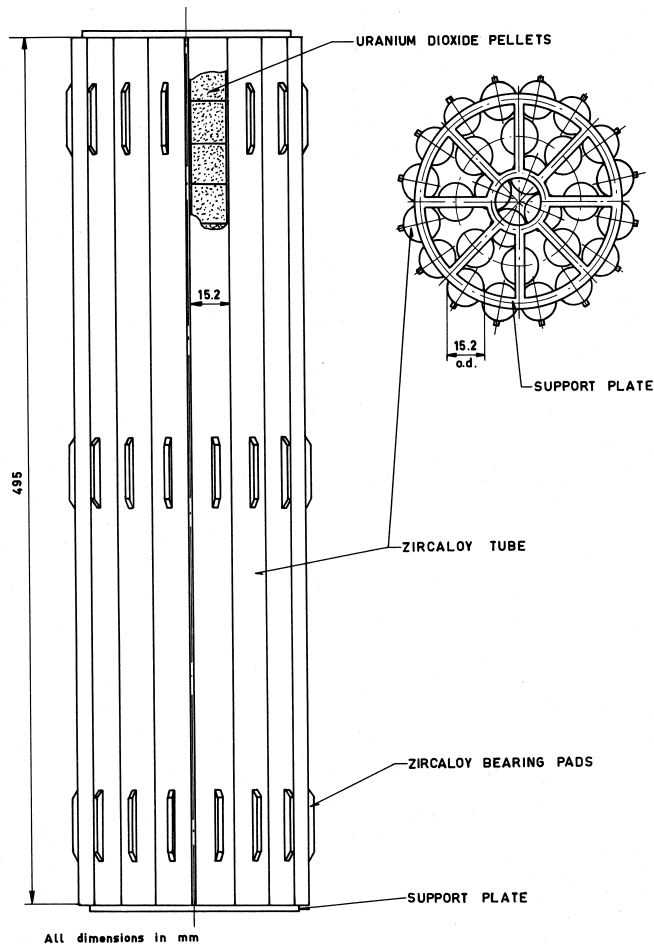


Abbildung 5: Längs- und Querschnitt eines CANDU-Brennelementbündels [3]

Die Entwicklung der CANDU-Brennelementbündel lief über 7-, 19-, 28- bis zum heute meistgebrauchten 37-Stab-Bündel, welches in den neueren CANDU-Reaktoren eingesetzt wird. Die 37er BE-Bündel verschiedener Reaktoren unterscheiden sich nur geringfügig voneinander, je nachdem welche Lademaschine oder welches Kanaldesign verwendet wird. Das 37er Bündel wird auch im 600 MW_e Standard-CANDU eingesetzt. Über 99 Prozent eines CANDU-Brennelements bestehen aus Natururanoxid und der einhüllenden Zirkonlegierung. Dadurch ist die parasitäre Neutronenabsorption sehr gering.

Tabelle 6 zeigt die Daten für ein 37er BE-Bündel sowie für einen Brennstab. Der Längs- und Querschnitt des Bündels kann Abbildung 5 entnommen werden.

Anzahl der Druckröhren	380
Anzahl der BE-Bündel pro Druckröhre	12
Durchmesser der BE-Bündel	10,3 cm
Anzahl der Brennstäbe pro BE	37
Radius der Brennstoffzone im Brennstab	6,077 mm
Pitch der Brennstäbe im BE-Bündel	14,63 mm
Pitch der Druckröhren im Calandriatank	28,575 cm
Brennstab-Hüllrohrmaterial	Zirkaloy-4
Brennstab-Hüllrohrdicke	4,63 mm
Druckröhrenmaterial	Zr-Nb-Legierung
Calandriaröhrenmaterial	Zirkaloy-2

Tabelle 6: Spezifische Brennelementdaten für den 600 MW_e Standard-CANDU-Reaktor [24]

4.3.1 Auswirkung dynamischer Beladepanung auf die Abbrandstreuung

Am Beispiel des CANDU-Reaktors wird die Optimierung von Beladestrategien diskutiert. Die Beladestrategien versuchen, zum Teil gegenläufige Aspekte wie Neutronenökonomie, Leistungsverteilung, Materialgrenzen und Brennstoffnutzung mit der allgemeinen Wirtschaftlichkeit des Reaktors in Einklang zu bringen. Anschließend werden die Auswirkungen der Beladestrategie auf die Abbrandstreuung entladener BE quantifiziert, um zu verdeutlichen, wie eng Beladepan und Abbrandstreuung miteinander verknüpft sind.

Schwerwassermoderierte Reaktoren sind wirtschaftlich nur sinnvoll, wenn sie Natururan als Brennstoff verwenden können. Mit Natururan ist jedoch nur eine kleine Überschußreaktivität zu erreichen, so daß Brennelementwechsel in kurzen zeitlichen Abständen erforderlich sind. Aus diesem Grund müssen die Brennelemente während des Betriebs bei vollem Druck ausgewechselt werden, damit der Reaktordruckbehälter nicht jedesmal unter Nulllast druckentlastet werden muß. Dieser notgedrungene Umstand bringt jedoch auch Vorteile mit sich. Der durchschnittliche Abbrand der BE läßt sich durch ein optimiertes Beladeschema erhöhen und die Leistungsdichteverteilung über das gesamte Kernvolumen gut einstellen.

Für die Be- und Entladung während des laufenden Betriebs werden zwei fernbediente Beladungsmaschinen eingesetzt, die sich auf gegenüberliegenden Seiten des Reaktors befinden. Die Beladung eines Kanals erfolgt durch das Hineinschieben einer definierten Anzahl von BE-Bündeln auf der einen Seite des Kanals und dem gleichzeitigen Entladen der am Ende des Kanals erscheinenden alten Brennelemente. Je nachdem wieviele Bündel während dieser Beladeoperation in den Kanal geladen werden, spricht man von einer *n-shift-bundle*-Operation. Ursprünglich war für die ersten CANDU-Reaktoren eine *2-bundle-shift* vorgesehen, aber die Erfahrungen mit der kleineren und älteren Douglas Point Einheit zeigten bereits, daß die Verfügbarkeit der Belademaschinen nicht ausgereicht hätte. Es ergab sich nach einer Studie über die verschiedenen 2, 4, 6, 8-bundle-shift-Möglichkeiten, daß die 8-bundle-shift die ökonomischste ist[29]. Sie wurde danach für den Standard-CANDU übernommen. Der Zielabbrand dieses Beladepans lag jedoch gegenüber der flexibleren 2-bundle-shift um ca. 0,5 MWd/kg_{SM} niedriger.

Die Beladung des CANDU erfolgt gewöhnlich täglich. Benachbarte Kanäle werden in entgegengesetzter Schubrichtung beladen, so daß stets frische BE an einem Kanalende älteren abgebrannteren BE eines Nachbarkanals gegenüberliegen. Auf diese Weise wird für eine symmetrische axiale Leistungsverteilung gesorgt.

Das Wiederverwenden entladener Brennelemente wird vor allem aus wirtschaftlichen Gründen nicht erwogen, da die Kosten für die größere Anzahl von Beladeoperationen und -maschinen größer wären als der Gewinn durch den zu erzielenden höheren Abbrand der rückgeführten Brennelemente[29].

Es gibt für die CANDU-Reaktoren in der Regel kein festes Beladeschema, wohl einige

Grundsätze, die die Basis eines individuellen dynamischen Beladepans bilden. Grundsätzlich werden die Brennelemente des Kanals mit dem höchsten akkumulierten Abbrand entladen. Der Reaktivitätsgewinn nach einer Beladung spielt vereinzelt jedoch eine wichtige Rolle. So wird oft ein Kanal ausgesucht, der im Fall von knappen Reaktivitätsreserven den höchsten Reaktivitätszugewinn erzielen kann. Zonen höherer Temperatur werden gemieden, da sonst dort nach dem Einsatz frischer Elemente die Temperatur weiter ansteigen würde[30].

Alle o. g. optimierten Beladestrategien wirken sich direkt auf die Abbrandstreuung entladener CANDU–BE aus. In [21] wird die Abbrandverteilung entladener BE für einen CANDU–6–Reaktor analysiert und ist hier beispielhaft zusammengefaßt:

- Die Erstkernbeladung eines 700 MW_e CANDU–6 Reaktors, der den gleichen 8–bundle–shift–Beladepan wie der Standard–CANDU verwendet, enthält Brennelemente weit gestreuter Abbrände. Sie reichen von 0,5 MWd/kg_{SM} (ca. 5 % Mengenanteil) bis zu 12 MWd/kg_{SM}. Ein zahlenmäßiges Maximum tritt bei etwa 5,5 MWd/kg_{SM} auf. 75 % aller BE liegen zwischen 3,5 und 7,5 MWd/kg_{SM}.
- Die Beladungen nach dem Erstkern bis zum Gleichgewichtskern produzieren BE–Abbrandverteilungen mit lokalen Maxima um 5 bzw. um 10 MWd/kg_{SM} (etwa gleiche Häufigkeit).
- Der 95 % der CANDU–Lebenszeit ausmachende Gleichgewichtszyklus produziert ebenfalls eine Abbrandverteilung um zwei Maxima. Eines liegt bei etwa 5,5 MWd/kg_{SM} und umfaßt ca. ein Drittel der Brennelemente. Hierbei handelt es sich um BE des mittleren Kerndrittels, die lediglich einen Abbrandzyklus gesehen haben. Das andere Maximum befindet sich bei ca. 10 MWd/kg_{SM} und umfaßt die BE der Kernrandzonen[22].

Man kann eine vergleichbare Abbrandstreuung für den Standard–CANDU erwarten, lediglich die Maxima dürften aufgrund seiner leicht geringeren Leistung und seines geringeren Durchschnittsabbrands zu kleineren Abbrandwerten verschoben sein.

Zusammenfassend wird deutlich, daß Beladeoperationen i. a. nicht periodisch reproduziert werden, sondern sich dynamisch entwickeln und situationsbedingte Flexibilitäten aufweisen. Dieser Umstand nimmt entschiedenen Einfluß auf die Standzeiten der Brennelemente im Kern und damit auf deren Zielabbrand. Die Streubreite des BE–Abbrands wurde im Fall des CANDU–6–Reaktors quantifiziert und deren Größenordnung abgeschätzt. Für die übrigen thermischen Reaktorkonzepte gilt gleichermaßen, daß dynamisch angepaßte und optimierte Beladestrategien die Abbrandstreuung entladener BE maßgeblich beeinflussen.

4.4 Der Calder Hall Magnox-Reaktor

Magnox-Reaktoren besitzen heutzutage mehr eine geschichtliche Bedeutung insofern, daß mit der Inbetriebnahme des britischen Calder Hall Reaktors am 17. Oktober 1956 die nukleare Stromerzeugung eingeleitet wurde. Sie waren die ersten bis zur industriellen Reife entwickelten Reaktoren – vornehmlich in Großbritannien und Frankreich produziert – und verwenden vornehmlich Natururan als Brennstoff, Graphit als Moderator und werden mit Kohlendioxid gasgekühlt. Ihr Name leitet sich aus ihrer Hüllrohrlegierung mit der Bezeichnung MAGNOX (**MAG**nesium **NON** **OX**idizing) ab, einer Legierung aus Al, Be, Ca und Mg.

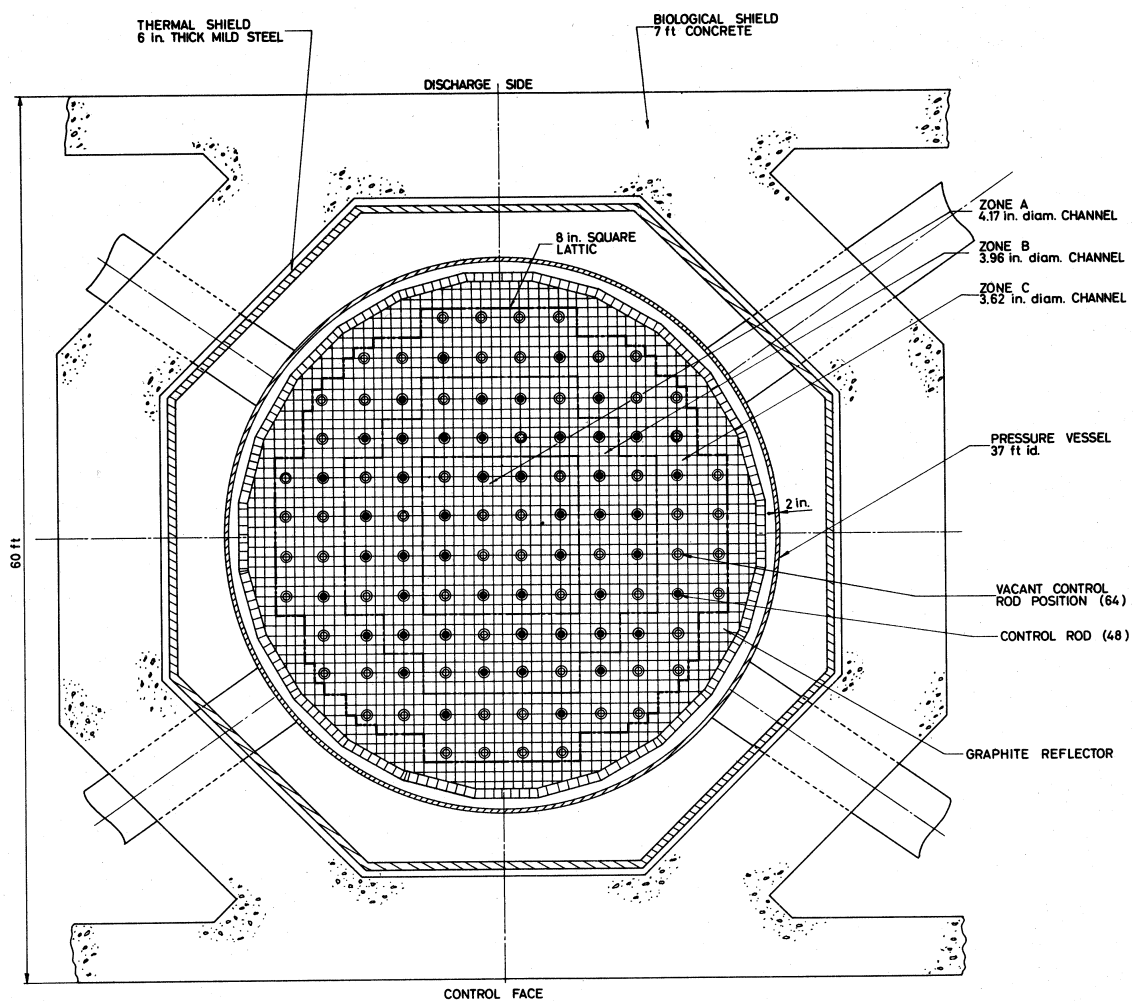


Abbildung 6: Querschnitt durch den Calder Hall Reaktorkern [4]

Die Plutoniumerzeugung stand bei diesem Reaktorkonzept ursprünglich im Vordergrund, so daß eine gute Neutronenökonomie angestrebt wurde. Diese wird durch einen sehr voluminösen Kern geringer Leckage erreicht, der aufgrund der Verwendung von Natururan in Verbindung mit Graphit als Moderator gefordert wird. Durch die große Dimensionierung

der Kernstruktur muß der den Kern umschließende Druckbehälter ungewöhnlich voluminös sein und kann demzufolge nur gegen eine vergleichsweise geringe Druckbelastung ausgelegt werden. Zwangsläufig ist somit der Kühlgasdruck relativ niedrig und die Kernleistungsdichte sehr gering, was zu hohen spezifischen Anlagekosten führt. Deshalb wurde Ende der sechziger Jahre die Entwicklung dieser Linie aufgegeben, obwohl die Verfügbarkeit der Magnox-Reaktoren — auch im internationalen Vergleich — sehr hoch war. Anfang der 70er Jahre steuerten die Magnox-Reaktoren 20 Prozent zu der weltweit installierten nuklearen Leistung bei und erreichten Ende 1992 immerhin noch 1,4 Prozent[1]. Noch heute ist in Großbritannien einer der ersten in Calder Hall vor rund 40 Jahren ans Netz gegangenen Blöcke im Betrieb.

Eine Weiterentwicklung des Magnox ist der Fortgeschrittene Gasgekühlte Reaktor (AGR), der angereichertes Uran und Edelstahlhüllrohre verwendet. Die Anreicherung erlaubt es, kompaktere Kerne mit höherem Kühlgasdruck und –temperatur zu verwenden, was höhere Kernleistungsdichten und bessere Wirkungsgrade ermöglicht. Trotzdem konnte sich der lediglich in Großbritannien hergestellte AGR international nicht behaupten. AGR-Reaktoren stellten Ende 1992 einen Anteil von 2,5 Prozent an der weltweit installierten Bruttoleistung.

Der in dieser Arbeit betrachtete Calder Hall Reaktor entspricht dem ursprünglich geplanten Design der BNFL (*British Nuclear Fuels Limited*) für einen Magnox-Reaktor. An den Standorten Sellafield und Chapelcross wurden bis vor kurzem jeweils vier Blöcke mit einer installierten Leistung von je 55 MW_e betrieben. Mit einer Leistung von 42 MW_e nahm der erste Reaktor 1956 seinen Betrieb auf und war damit 1996 der älteste, kommerziell in Betrieb befindliche Reaktor. Die Calder Hall Reaktoren wurden ferner dazu genutzt, unterschiedliche Auslegungen für Prototyp-Reaktoren zu testen.

Die 40-jährige Betriebszeit der Calder Hall Reaktoren zeichnete sich durch eine sehr hohe Verfügbarkeit aus. Weiterhin gelang eine Erhöhung der vorgesehenen Leistung um 50 Prozent: die ursprünglich geplante Leistung von 180 MW_{th} konnte durch eine verstärkte Gebläseleistung, die effizientere Nutzung der Neutronenabsorber im Kern und die Einführung eines neuen Brennelements (Herringbone-Element) innerhalb von 18 Jahren sukzessive auf 270 MW_{th} angehoben werden[20].

Tabelle 7 faßt die Kerndaten für die 180 MW_{th}-Ursprungsversion des Calder Hall Reaktors zusammen. Abbildung 6 bietet einen Querschnitt durch den Reaktorkern. Gut erkennbar ist die zylindrische Anordnung von weit mehr als tausend Graphitblöcken, von denen jeder einen Kühlkanal enthält, in dem sich sechs übereinandergestapelte Brennelemente befinden. Für jeweils 16 quadratisch angrenzende Kanäle ist ein zentraler Kontrollstab größeren Durchmessers vorgesehen.

Eine Besonderheit des Kernaufbaus ist die Einteilung in drei radiale Zonen mit nach innen steigendem Kühlkanaldurchmesser, um die produzierte Wärme radial gleichmäßig

thermische Vollastleistung	180 MW _{th} im Ursprungsdesign
Kernleistungsdichte	0,4 MW/m ³
Kernabmessungen	6,4 m Höhe, 9,4 m Durchmesser
Volumen der aktiven Zone	445,2 m ³
mittlere Brennstofftemperatur	418 °C an der BE-Oberfläche
mittlere Kühlmitteltemperatur	240 °C
Anreicherung der Nachlade-BE	keine
Schwermetalleinsatz im Kern	128 t
Beladungsfrequenz und -menge	einmal im Jahr ca. 20–25 t
mittlerer Entladeabbrand	2,7 MWd/kg _{SM}

Tabelle 7: Spezifische Kerndaten für den Calder Hall Magnox-Reaktor

abzuführen. Der Kern ist in einen Druckbehälter, einen thermischen Stahlschild sowie einen biologischen Schild aus Beton eingeschlossen.

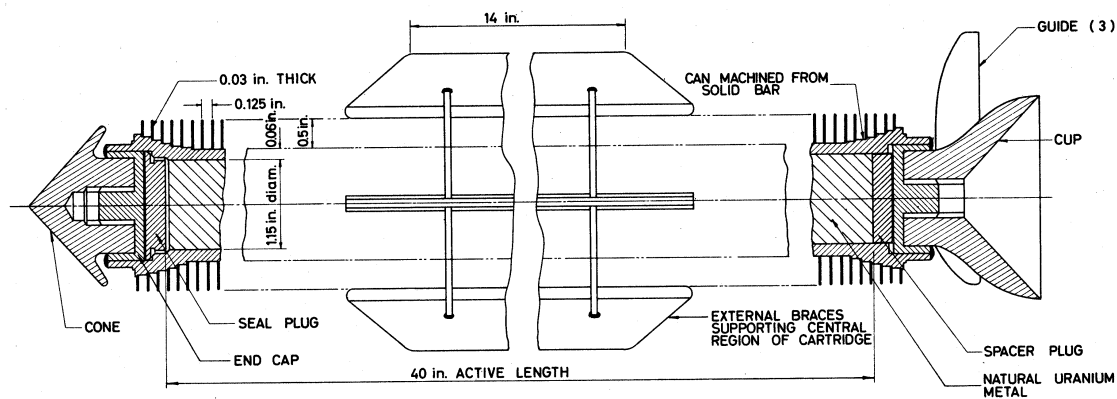


Abbildung 7: Längsschnitt durch ein Calder Hall Brennelement [4]

Anzahl der Brennelementkanäle	1696
Anzahl der Brennelemente pro Kanal	6
Radius der Brennstoffzone	14,605 mm
Pitch	20,333 cm
Hüllrohrmaterial	Magnox
Hüllrohrdicke	1,524 mm

Tabelle 8: Spezifische Brennelementdaten für den Calder-Hall-Magnox-Reaktor

Abbildung 7 zeigt einen Längsschnitt durch ein Brennelement und Tabelle 8 enthält dessen charakteristische Daten. Es handelt sich hierbei um das – auch im Referenzreaktor eingesetzte – Vorgängermodell des Herringbone-Elements. Letzteres wurde für einen höheren Abbrand, besseren Wärmetransfer und verbesserte aerodynamische Stabilität ausgelegt. Der Magnox-Reaktor wird jährlich be- und entladen und muß hierzu druckentlastet werden. Dabei werden etwa 20–25 % des Kerninventars ausgetauscht[4].

Nicht ganz einfach gestaltet sich die Regelung des Reaktors. Die Reaktivitätsentwicklung des frisch beladenen Kerns ist in den ersten drei Tagen durch den Xenonaufbau, danach durch den Samarium- und Plutoniumaufbau geprägt. Die Reaktivität fällt somit zuerst kurzfristig ab und steigt dann über viele Wochen und Monate durch den verstärkten Aufbau des Plutonium-239 kontinuierlich an. Dieser Anstieg der Reaktivität mit etwa 0,2 % pro Monat wird durch das sukzessive Hineinschieben der Kontrollstäbe kompensiert. Nach etwa 3 Monaten reichen die Kontrollstäbe schon halb ins Core hinein und bewirken unangenehme radiale Flußveränderungen, die zu hohen Spitzentemperaturen in einigen Brennelementen führen. Um trotzdem eine gleichmäßige Leistungsverteilung in radialer Richtung zu erzielen, kann der Kühlgasstrom in den einzelnen Kühlkanälen justiert werden[19].

Der Entladeabbrand in einzelnen Brennelementen ist nach bis zu fünfjähriger Standzeit an unterschiedlichen Positionen im Kern erwartungsgemäß breit gestreut. Um den entladenen Brennstoff im Hinblick auf seinen Abbrand sinnvoll charakterisieren zu können, bietet sich die Angabe des durchschnittlichen Abbrands über die Entladecharge eines kompletten Zyklus an.

Die Leistungserhöhung der Calder–Hall–Reaktoren über die Jahrzehnte führte zwangsläufig zu veränderten Werten von Zielabbrand, Kühlgastemperaturen und anderen abhängigen Größen. So konnte der durchschnittliche Abbrand von 2,7 MWd/kg_{SM} (siehe Tabelle 7) auf 4 MWd/kg_{SM} gesteigert werden[4]. In dieser Arbeit wird jedoch der ursprüngliche Reaktor mit dem mittleren Abbrand von 2,7 MWd/kg_{SM} betrachtet und für die folgenden Rechnungen als Referenz herangezogen, da von diesem Modell über die Jahrzehnte des Leistungsbetriebes vergleichsweise viele Brennelemente entladen wurden.

4.5 Der RBMK–1000 Druckröhren–Siedewasserreaktor

In der zweiten Hälfte der Sechziger Jahre wurde in der ehemaligen Sowjetunion aufgrund der bisher gesammelten Erfahrungen entschieden, die weitere Entwicklung der Kernkraftwerke auf zwei Hauptlinien zu konzentrieren: den WWER Druckwasserreaktor und den leichtwassergekühlten graphitmoderierten Druckröhren–Siedewasserreaktor RBMK[16]. Der RBMK wurde daraufhin seit Anfang der 70er Jahre als Fließbandreaktor hergestellt.

Der RBMK–1000 Reaktorkern besteht aus einem zylindrischen, der Moderation dienenden Graphitblock. Er ist umgeben von einem Kernbehälter aus Stahl, einem Wasser– und Sandtank als biologischem Schild und der Reaktorgrube aus Beton. Tabelle 9 enthält die wesentlichen Kerndaten. Einen Längsschnitt des Kerns zeigt Abbildung 8.

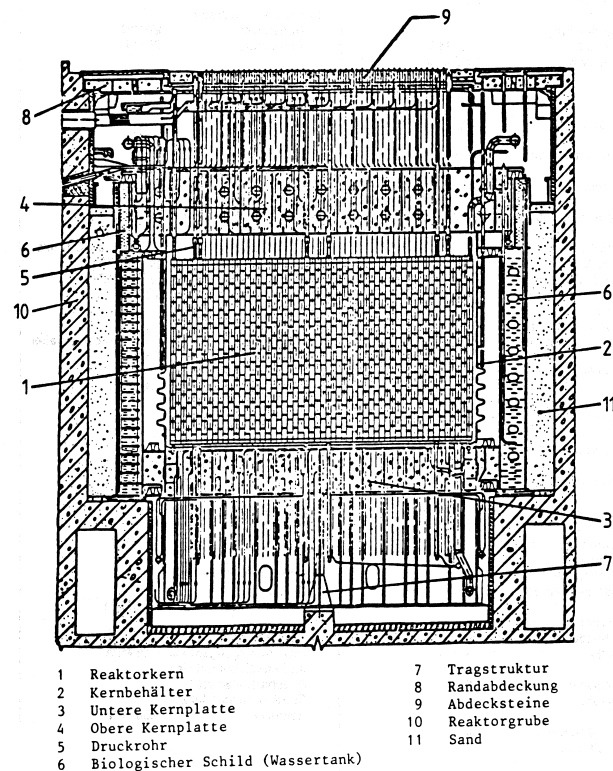


Abbildung 8: Längsschnitt durch den Kern des RBMK–1000

Tabelle 9 enthält die wesentlichen Kerndaten. Einen Längsschnitt des Kerns zeigt Abbildung 8.

thermische Vollastleistung	3200 MW _{th}
Kernleistungsdichte	4,2 MW/m ³
Kernabmessungen	7 m Höhe, 11,8 m Durchmesser
Volumen der aktiven Zone	(?) m ³
mittl. Brennstofftemperatur	546 °C
mittl. Kühlmitteltemperatur	280 °C
Anreicherung der Nachlade-BE	2,0 %
Schwermetalleinsatz im Kern	180 t
Beladungsfrequenz und -menge	kontinuierlich (ca. 3 Jahre BE-Standzeit)
mittlerer Entladeabbrand	18,4 MWd/kg _{SM}

Tabelle 9: Spezifische Kerndaten für den RBMK–1000 Reaktor

Er wird vertikal von 1693 Druckröhren durchzogen, die innerhalb des Kerns aus einer Zirkon–Niob Legierung bestehen, außerhalb aus Edelstahl. Jedes Druckrohr nimmt zwei übereinanderstehende Brennelementbündel zu je 18 Brennstäben auf (siehe Abbildung 9). Weitere vertikale Kanäle bieten Platz für die Regel- und Abschaltstäbe sowie die

Kerninstrumentierung.

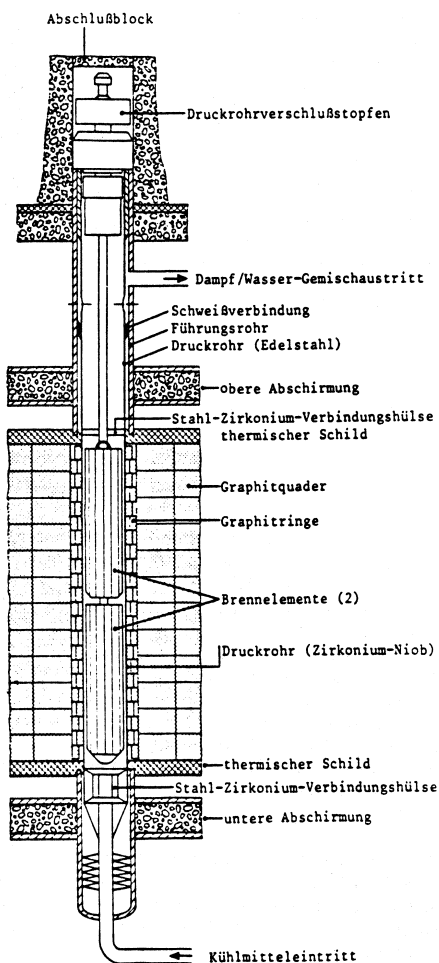


Abbildung 9: Längsschnitt durch einen Kühlkanal im Kern des RBMK-1000

Der Reaktor bietet einige betriebsseitige und konstruktive Vorteile. Wegen der guten neutronenphysikalischen Charakteristika des Reaktors und seiner kontinuierlichen Beladungsmöglichkeiten unter Lastbedingungen kann leicht angereicherter Brennstoff mit hoher Effizienz genutzt und ein hoher Abbrand mit relativ wenig Restspaltstoff in den entladenen Brennelementen erreicht werden. Die RBMK-Blöcke erzielen international durchaus übliche Verfügbarkeiten.

Ein weiterer Vorteil des Reaktorkonzeptes liegt darin, daß aufgrund des Druckröhrenprinzips kein Druckbehälter erforderlich ist. Hierdurch ist die Fertigung des Reaktors stark vereinfacht und erlaubt mit vergleichsweise geringem Aufwand Blöcke sehr hoher Leistung.

Der Kühlmitteldurchsatz in den einzelnen Druckröhren kann über Eintrittsdrosseln an jedem Druckrohr in begrenztem Umfang verändert werden, um den Austrittsdampfgehalt trotz unterschiedlicher Brennelementleistung konstant zu halten [17].

Die Brennstabhüllen sind aus der gleichen Legierung wie die Druckröhren. Die Brennstoffanreicherung der Nachladebrennelemente beträgt zwei Prozent. Ein quasikontinuierliches Wechseln der Brennelemente unter Last ermöglicht einen vergleichsweise hohen Abbrand von rund $20 \text{ MWd/kg}_{\text{SM}}$ [14] (siehe Tabelle 9). Es ist anzunehmen, daß durch die Flexibilität, die durch das kontinuierliche Beladen bei laufendem Reaktor gegeben ist, die Brennstoffnutzung der einzelnen Brennelemente maximiert wird. Vermutet wird deshalb eine zu anderen Reaktorkonzepten vergleichsweise geringer ausfallende Abbrandstreuung zwischen den endgültig entladenen Brennelementen. Die Brennelementdaten sowie einen BE-Bündelquerschnitt zeigen Tabelle 10 und Abbildung 10.

Der ursprünglich unter dem Gesichtspunkt effizienter Plutoniumproduktion entwickelte Reaktor

Anzahl der Druckröhren	1693
Anzahl der BE-Bündel pro Druckröhre	2
Durchmesser der BE-Bündel	8,8 cm
Anzahl der Brennstäbe pro BE-Bündel	19-1 (Zentralposition: nur Edelstahl)
Radius der Brennstoffzone im Brennstab	5,73 mm
Pitch der Brennstäbe im BE-Bündel	16,91 mm
Pitch der Druckröhren im Graphitblock	28,2 cm
Brennstab-Hüllrohrmaterial	Zirkon-Niob (Kernbereich)
Brennstab-Hüllrohrdicke	1,07 mm
Druckröhrenmaterial	Zr-Nb-Legierung

Tabelle 10: Spezifische Brennelementdaten für den RBMK-1000 Reaktor

Andererseits resultiert gerade aus dem fehlenden Druckbehälter, einem entgegen westlichen Standards nicht vorhandenen Containment, einem sich mit dem Abbrand noch verstärkenden positiven Voidkoeffizienten sowie den in vielen anderen Bereichen mangelnden Sicherheitseinrichtungen ein stark erhöhtes Störfallrisiko. 1986 führte dieses konzeptionelle Defizit zum tragischen Unfallereignis von Tschernobyl.

Die RBMK-Reaktoren stellten 1984 60 % der sowjetischen Kernkraftwerkskapazität dar[14] und trugen selbst Ende 1992 noch über 5 Prozent zu der weltweit installierten nuklearen Leistung bei[1].

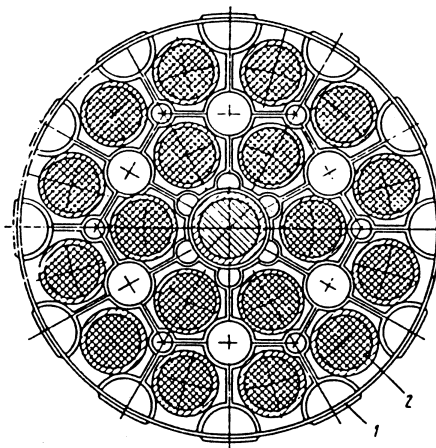


Abbildung 10: Querschnitt durch ein RBMK-BE-Bündel

4.6 Die HTR OTTO–100 Reaktorstudie

Der heliumgekühlte Hochtemperaturreaktor (HTR) stellt die konsequente Weiterentwicklung der vorgenannten, graphitmoderierten und gasgekühlten Reaktoren dar. Durch eine Erhöhung von Kernleistungsdichte, Kühlgastemperatur und Brennstoffnutzung wird die Wirtschaftlichkeit und Einsatzmöglichkeit verbessert. Die Kernstrukturen des HTR enthalten kein Metall sondern ausschließlich Graphit, der zur Moderation und als Spaltproduktbarriere dient. Die hohe Temperaturbeständigkeit, Festigkeit und Wärmeleitfähigkeit des Graphit wird hier in Verbindung mit dessen geringem Neutronenabsorptionsquerschnitt ideal ausgenutzt.

Der Brenn- und Brutstoff liegt in Form von sehr kleinen, mit Graphit und Siliziumkarbid beschichteten Partikeln (*Coated Particles*) vor, die in eine Graphitmatrix eingebettet sind und dadurch Spaltprodukte selbst bei hohen Temperaturen ausgezeichnet zurückhalten. Abbildung 11 zeigt eine Brennelementkugel, die ca. fünfzehntausend *Coated Particles* enthält. Bei den hier vorliegenden Partikeln handelt es sich um die Fünf-Schicht-TRISO-Partikel, die eine besonders gute Spaltprodukt-rückhaltung und Korrosionsfestigkeit bieten [6].

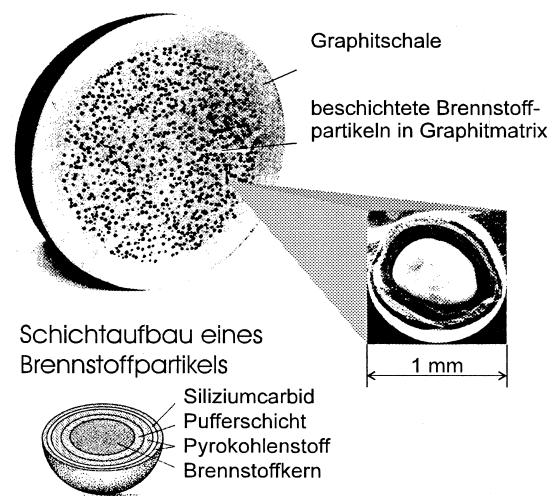


Abbildung 11: HTR-Brennelementkugel mit Querschnitt durch ein TRISO-Brennstoffpartikel

Der Brennstoff ist je nach Zyklus mittel-schwach bis hoch angereichert. Der Verzicht auf metallische Kerneinbauten erlaubt sehr hohe Kühlgastemperaturen und damit einen hohen thermischen Wirkungsgrad. Durch die hohen Kühlgastemperaturen von über 750 ° C kann der HTR – im Gegensatz zu anderen Reaktoren – zur Erzeugung von Prozeßdampf genutzt werden. Als Kühlmittel wird das inerte und nicht aktivierbare Helium verwendet.

Bei den gebauten Prototypreaktoren findet man sowohl diejenigen mit prismatischen Blockbrennelementen als auch die Kugelhaufenreaktoren. Bei letztgenannten liegen die kugelförmigen Brennelemente als lose Schüttung innerhalb eines zylindrischen Graphitreflektors vor und erlauben es, den Reaktor kontinuierlich von oben zu beladen und unten die abgebrannten Kugeln abzuziehen. Das bietet u. a. den Vorteil entfallender Stillstandszeiten für Brennelementwechsel. Mehrere Prototyp-Hochtemperaturreaktoren wurden in den USA, Deutschland, England, Japan und China gebaut. Sie lieferten im allgemeinen

thermische Vollastleistung	100 MW _{th}
Kernleistungsdichte	3,34 MW/m ³
Kernabmessungen	Zylinder mit Konus, H=5,25 m, D=2,8 m
Volumen der aktiven Zone	29,8 m ³
mittlere Brennstofftemperatur	650 °C
mittlere Kühlmitteltemperatur	610 °C
Anreicherung der Nachlade-BE	6,9 % innen und 11,6 % außen
Kernvolumenanteil der beiden BE-Typen	etwa 50 für jede Art
Schwermetalleinsatz im Kern	1,06 t
Beladungsfrequenz und -menge	kontinuierlich, etwa 170 Kugeln pro Tag
mittlerer Entladeabbrand	80 MWd/kg _{SM}

Tabelle 11: Spezifische Kerndaten für den HTR OTTO-100

Anzahl der Brennelementkugeln im Kern	151.000
Schwermetallgehalt einer BE-Kugel	7 g
Anzahl der Coated Partikel pro BE	a. 10-30 Tausend
Radius der BE-Kugel	3 cm
Radius der Brennstoffzone im BE	2,5 cm
Radius des TRISO-Partikels	0,51 mm
Radius des Urankerns im TRISO-Partikel	0,25 mm
Radius und Dichte der 4 Coatings	poröser C : 95 μm, 1,05 g/cm ³ pyrolyt. C: 40 μm, 1,90 g/cm ³ Si.-Karbide: 35 μm, 3,18 g/cm ³ pyrolyt. C: 40 μm, 1,90 g/cm ³
Strukturmaterial	nur Graphit

Tabelle 12: Spezifische Brennelementdaten für den HTR OTTO-100

sehr überzeugende Ergebnisse und konnten die Marktreife des Systems nachweisen. Einige weiterentwickelte HTR-Konzepte liegen, teilweise genehmigungsbereit, als umfangreiche Studien vor oder befinden sich im laufenden Lizenzierungsverfahren (PBMR-SA, siehe Kapitel 3.1). Es handelt sich sowohl um Anlagen kleiner modularer Leistung mit absolut inhärenten Sicherheitseigenschaften, als auch um Reaktoren größerer Art mit bis zu 500 MW elektrischer Leistung.

Trotz all dieser Vorzüge hat sich die Hochtemperaturreaktortechnologie bis jetzt nicht auf dem Markt etablieren können. Sie stellt jedoch bei veränderten umweltbezogenen und politischen Randbedingungen eine wirkliche Alternative zu den etablierten Reaktorkonzepten dar und zeichnet sich aus durch einen sehr hohen Sicherheitsstandard und vielfältige Einsatzmöglichkeiten [1].

Die Tabellen 11 und 12 enthalten die Kern- und Brennelementdaten des für diese Arbeit ausgewählten Referenz-HTR, den OTTO-100 Reaktor. Er stellt eine Studie für einen

kleinen Hochtemperatur–Kugelhaufenreaktor dar, der ausgeprägte inhärente Sicherheitseigenschaften aufweist. An seinem Design lassen sich die spezifischen Charakteristika von Kugelhaufenreaktoren modularer Größe gut nachweisen.

Für Kugelhaufenreaktoren sind zwei mögliche Beladungsschemata denkbar: Mehrfachdurchlauf (MEDUL) und Einfachdurchlauf (OTTO: **O**nce **T**hrough **T**hen **O**ut) ohne Rückführung der entnommenen Kugeln.

Der OTTO–Zyklus bietet den Vorteil, die gesamte Beladeeinrichtung möglichst einfach auszulegen, da auf automatische und komplexe Rückführmechanismen der BE–Kugeln verzichtet werden kann.

Der OTTO–100 wird in einer Zweizonenbeschickung beladen, d. h. er verwendet Brennelemente zweierlei Anreicherungen. Die niedriger angereicherten Brennelemente werden von oben dem zentralen Bereich des Kerns zugeführt, die höher angereicherten den Kernrandzonen. Auf diese Weise wird ein radial gleichmäßiges Leistungsprofil angestrebt. Abbildung 12 zeigt einen Längsschnitt durch die Hälfte des radialsymmetrischen zylindrischen Kerns inkl. Graphitreflektor. Neben den angedeuteten Führungen für das Helium–Kühlgas sind im Kernbereich die sogenannten Fließkurven eingezeichnet, die die Bewegung der Kugeln durch den Kern andeuten und für die Berechnungen der Abbrandgeschichte eine Rolle spielen. Aufgrund der geringen radialen Ausdehnung müssen innerhalb des Kerns keine Absorberstäbe verfahren werden, sondern alle für die Regelung und Abschaltung des Reaktors nötigen Kontrollstäbe können auf geeignete Positionen im Seitenreflektor beschränkt bleiben.

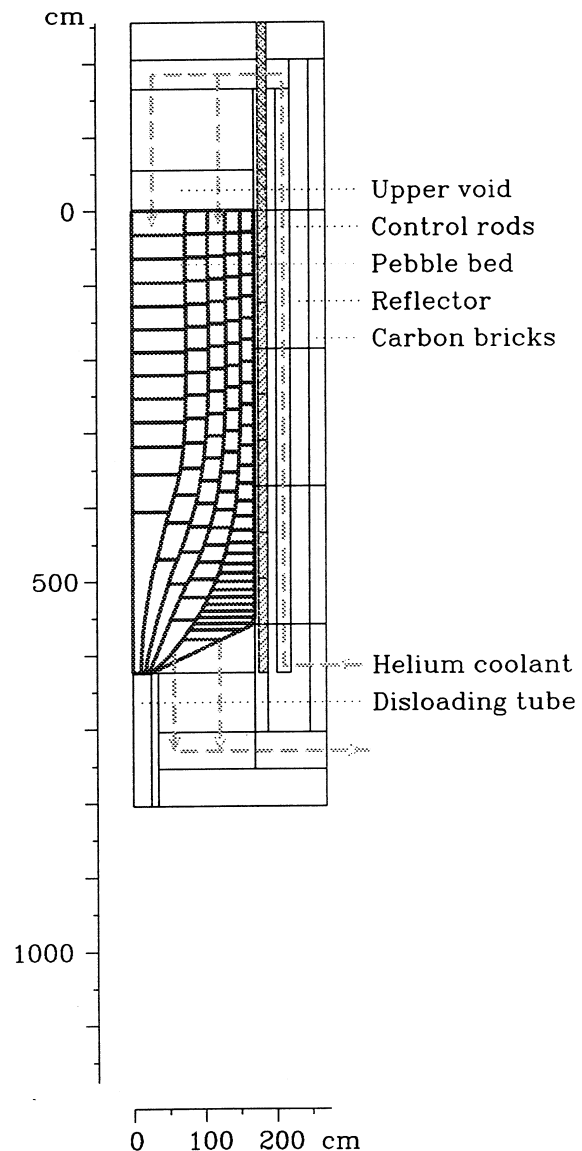


Abbildung 12: Längsschnitt durch die Kernhälfte des HTR OTTO–100 [6]

Hochtemperatur–Kugelhaufenreaktoren lassen eine Vielzahl von unterschiedlichen Brennstoffzyklen zu, denn sowohl Schwermetallart und –gehalt in den einzelnen BE–Kugeln sowie deren Zielabbrand können variiert werden. Die kugelförmigen Brennelemente sind erfolgreich bis zu Abbränden von mehr als 140 MWd/kg_{SM} in aussagekräftiger Anzahl getestet worden, ohne dabei Spaltproduktfreisetzungen zu beobachten. Ferner ist ebenso eine Aufteilung in Brenn- und Brutelemente, die gleichzeitig in den Reaktor eingesetzt werden, realisierbar. Die entladenen Brennelemente des hier betrachteten HTR OTTO–100 besitzen einen durchschnittlichen Abbrand von 80 MWd/kg_{SM}. Dabei ist für die innen befindlichen, niedrig angereicherten Elemente ein Zielabbrand um 65 MWd/kg_{SM} und für die außen Eingesetzten ein Abbrand über 100 MWd/kg_{SM} vorgesehen.

5 Reaktorsimulation mit V.S.O.P.

Nachdem im vorhergehenden Kapitel die thermischen Reaktorkonzepte eingeführt und für jedes Konzept ein typischer Referenzreaktor ausgewählt worden ist, wird nun das Programmsystem V.S.O.P. vorgestellt. Mithilfe dieses Reaktor(kern)simulationsprogramms ist es möglich, die fünf Referenzreaktoren zu modellieren und die nuklearen Lebensgeschichten der eingesetzten Brennelemente zu berechnen.

Um die Grundlagen für die Diskussion der im nächsten Kapitel für die Referenzreaktoren einzuführenden Kern–Abbrandmodelle zu schaffen, werden die für das Reaktorsimulationsprogramm charakteristischen Eigenschaften vorgestellt. Die Arbeitsweise der einzelnen Programm–Module wird erklärt und deren Zusammenspiel skizziert. Wichtige Begriffe im Rahmen der Reaktorsimulation mit V.S.O.P., die in späteren Kapiteln dieser Arbeit eine wesentliche Rolle spielen, werden definiert. Abschließend erfolgt eine Zusammenstellung der bisherigen Benchmarkstudien für die Validierung des V.S.O.P.–Programmsystems.

5.1 Übersicht

V.S.O.P. (Very Superior Old Programs)[34] ist ein Programmsystem für die numerische Simulation der physikalischen Aspekte thermischer Reaktoren. Das System wurde im Forschungszentrum Jülich vor allem für die Auslegung von Kugelhaufen–Hochtemperaturreaktoren (AVR und Nachfolgeprojekte) eingesetzt und enthält aus diesem Grund viele für diesen Reaktortyp zugeschnittene Programmerweiterungen.

Das System V.S.O.P. besteht aus mehreren, ursprünglich zumeist selbständigen Programmen zur Lösung folgender Aufgaben:

- Aufbereitung von Wirkungsquerschnitten
- Geometrieingabe von Reaktorkern und Brennelementen
- Berechnung von Neutronenspektrum und -diffusion
- Verfolgung von Brennstoffabbrand, -belade- und -umsetzoperationen
- Reaktorregelung
- Thermohydraulik von Gleichgewichtszuständen und Transientenberechnung (für Kugelhaufenreaktoren)

Rückkopplungseffekten wird durch wiederholte Berechnung der verschiedenen physikalischen Größen Rechnung getragen.

Mittels V.S.O.P. können ein thermischer Reaktor vom Erstkern bis zum Gleichgewichtskern simuliert, zeitliche Leistungsrampen nachvollzogen, Lebensgeschichten von Brennelementen, deren Nachwärmeproduktion und Aufbau und Zerfall einzelner Isotope verfolgt sowie Brennstoffzykluskosten bestimmt werden. Die jüngsten Erweiterungen des Programmsystems erlauben das detaillierte Studium vom Aktinidenaufbau in den einzelnen Brennelementen, besonders mit Blick auf Plutoniumerzeugung, Aktinidentransmutation- bzw. -minimierung.

Das kontinuierlich gepflegte Programmsystem besteht zur Zeit aus etwa 65000 FORTRAN-Befehlen und läuft im Forschungszentrum Jülich unter dem Betriebssystem AIX auf IBM RS-6000 Workstations sowie als PC-Version unter Windows.

Die Programmversion V.S.O.P.(97) unterscheidet sich von der Vorgängerversion V.S.O.P.(94)[35] durch eine detailliertere Behandlung der Schwermetallketten bei der Abbrandberechnung²¹, eine konzentrationsabhängige Resonanzintegralberechnung geklumpfter Resonanzabsorber sowie vielen Detailverbesserungen des Programms und der Dokumentation zugunsten einer besseren Anwenderfreundlichkeit. Weiterhin existiert eine reine PC-Version unter dem Namen V.S.O.P.(99)[33] mit weiteren Detailverbesserungen.

5.2 Funktionsweise der Programm-Module

Eine Übersicht über den Aufbau des V.S.O.P.(97)-Programmsystems gibt Abbildung 13. In dem Flußdiagramm sind die Hauptprogrammeinheiten sowie deren Vernetzung untereinander dargestellt.

Funktionell teilt sich das System in drei Teile auf: die vorbereitenden Programmeinheiten und Bibliotheken, die eigentlichen Programme für die reaktorphysikalische Simulation und die in entsprechender Form abgelegten Ergebnisdatensätze, die von anderen externen Programmen weiterverwendet werden können.

Die für epithermische und thermische Spektrumsrechnungen sowie für Resonanzintegralberechnungen (ZUT-DGL) verwendeten nuklearen Daten entstammen den ENDF/B-IV, -V und JEF-I Bibliotheken. Graphitstreumatrizen basieren auf dem Young-Koppel-Spektrum für Graphit.

Das Unterprogramm DATA-2 bereitet die geometrischen und stofflichen Eingabedaten der Brennelemente für verschiedene V.S.O.P.-Programmeinheiten vor und enthält spezielle Routinen für die Behandlung von Partikelbrennstoff von Hochtemperaturreaktoren.

BIRGIT und TRIGIT bereiten die für zwei- bzw. dreidimensionale Diffusionsrechnung benötigten Maschennetze sowie die Definition der Abbrandbereiche mithilfe der Geometriedaten des Reaktors vor. Das für zweidimensionale Geometrien verwendete BIRGIT

²¹28 Schwermetallnuklide (vom Th²³² bis zum Cm²⁴⁴) werden im Abbrandteil von V.S.O.P.(97) explizit berücksichtigt.

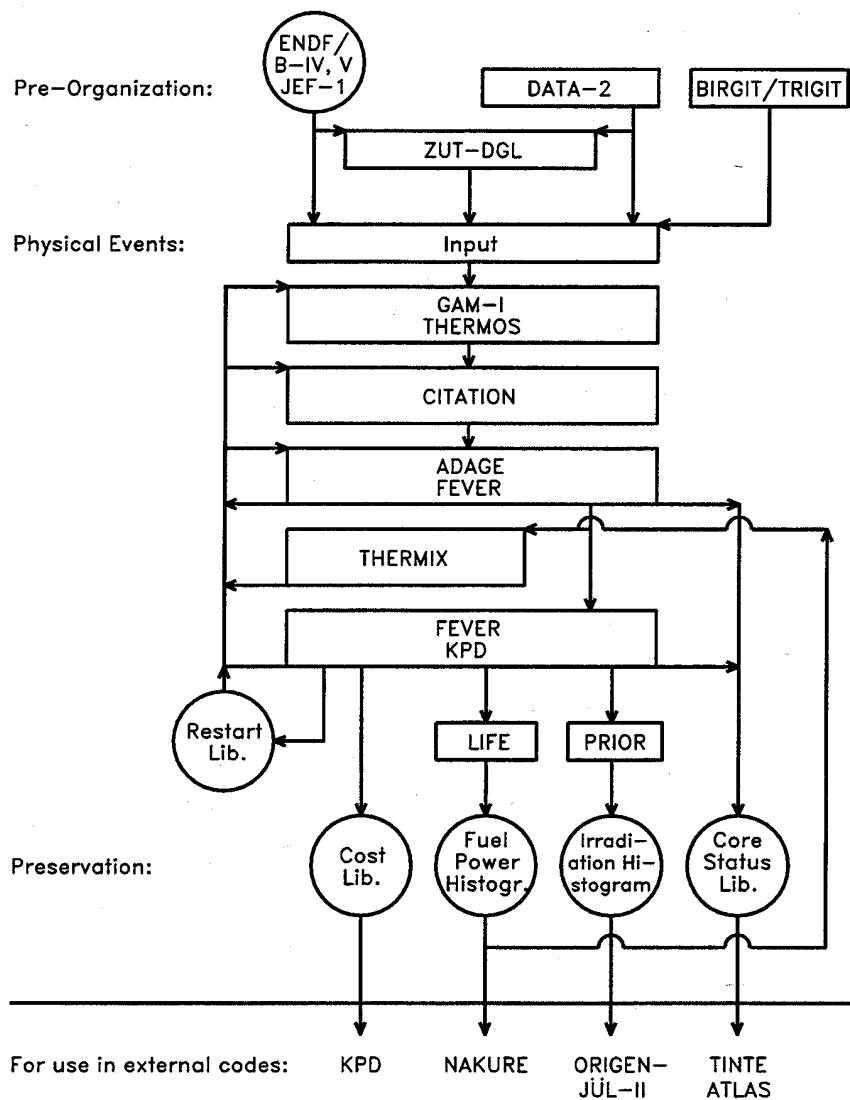


Abbildung 13: Die Vernetzung der V.S.O.P.(97)-Programm-Module[34]

ist besonders geeignet für die Darstellung der Bewegung der Brennelemente in Kugelhautreaktoren. Es ermöglicht die Simulation von Kugelfließen und die Kopplung an das Thermohydraulikprogramm THERMIX.

Die Zellrechnungen für eine vordefinierte Anzahl homogener Spektrumzonen werden für den schnellen und epithermischen Energiebereich durch das Programm GAM-I und für den Thermischen durch das Programm THERMOS durchgeführt. Die Neutronendiffusion in zwei oder drei Dimensionen und die Kritikalitätsrechnung übernimmt das *Finite-Differenzen*-Diffusionsprogramm CITATION.

Abbrandrechnungen werden durch die Programme FEVER und ADAGE durchgeführt, letzteres ist für die Schwermetallketten zuständig. Über ein mit dem Schnittstellenprogramm PRIOR vorbereitetes Bestrahlungshistogramm können nach einem V.S.O.P.-Lauf ohne großen Aufwand detailliertere Abbrandrechnungen für mehr als 1000 Nuklide mit

dem Programm ORIGEN–JÜL–II[39] durchgeführt werden.

KPD[37] erstellt eine Bibliothek der Beschickungsgeschichte für die Brennstoffkreislaufkosten des gegebenen Problems auf Basis der Barwertmethode. Das Unterprogramm LIFE bereitet eine Bibliothek der Brennstofflebensgeschichten vor, mit der die Analyse der Brennelement–Nachzerfallswärmefunktionen durch das in THERMIX implementierte Programm NAKURE[38] möglich ist.

Neben einer Kernstatusbibliothek für die Verwendung durch Nachfolgeprogramme kann eine Restart–Bibliothek angelegt werden, mithilfe derer ohne großen Aufwand und Rechenzeit ein Neustart zum Zeitpunkt der letzten Reaktorsituation möglich ist.

In V.S.O.P.(97) werden im Vorfeld der Hauptrechnung die Resonanzintegrale für unterschiedliche Absorbtemperaturn und -konzentrationen in Abhängigkeit der verwendeten Brennelementgeometrien durch das Programm ZUT–DGL berechnet und als diskrete Stützstellenwerte abgespeichert. Auf diese Weise können die Selbstabschirmungseffekte der drei wichtigsten Resonanzabsorber Th^{232} , U^{238} und Pu^{242} für den epithermischen Energiebereich explizit berücksichtigt werden.

Ein Reaktorkern wird üblicherweise in mehrere Spektrumzonen unterteilt, die durch unterschiedliche Temperaturen und Konzentrationen von Absorber und Moderator charakterisiert sind. Für jede dieser Spektrumzonen werden die Resonanzintegrale an den Spektralcode GAM–I übergeben, nachdem sie mithilfe der vorher abgelegten Stützstellenwerte für jede Spektrumsrechnung linear interpoliert worden sind.

Da die Spektrumsrechnungen in V.S.O.P. im epithermischen Energiebereich vom GAM–Modul und im thermischen Energiebereich vom THERMOS–Modul ausgeführt werden, benötigt das Programmsystem zwei unterschiedliche Wirkungsquerschnitt–Bibliotheken. Die 68–Energiegruppen–Bibliothek für GAM umfaßt den Energiebereich von 0,414 eV bis 10 MeV und enthält Wirkungsquerschnittsdaten für 190 Isotope. Die 30–Gruppen–THERMOS–Bibliothek reicht von 10^{-5} bis 2,05 eV und enthält neben den Absorptionswirkungsquerschnitten für die Isotope der GAM–Bibliothek zusätzlich temperaturabhängige Streumatrizen für die wichtigsten Moderatoren.

Ursprünglich liegen die thermischen Wirkungsquerschnitte in der 96–Energiegruppen–Struktur des nulldimensionalen THERMALIZATION–Spektrumprogramms vor. Sie werden für die Verwendung in THERMOS mithilfe eines für den zu simulierenden Reaktor typischen Neutronenspektrums im V.S.O.P.–Unterprogramm TTTT auf die 30 THERMOS–Energiegruppen kondensiert. Schließlich sorgt die ADAGE–Bibliothek für die Bereitstellung der Zerfallskonstanten, die für die korrekte Behandlung der Schwermetallketten im Abbrandteil des Programmes notwendig sind.

Die GAM– und THERMOS–Bibliotheken enthalten Wirkungsquerschnitte für 116 Spaltprodukte. Die relativen Häufigkeiten (Yields) in Abhängigkeit des verwendeten Spaltstoffs liegen für 87 Spaltprodukte vor. Fest im Programmsystem verdrahtet ist eine Spaltpro-

duktkette mit den 44 wichtigsten Spaltprodukten, die in Summe für über 98 Prozent der Neutronenabsorption in Spaltprodukten verantwortlich sind. Die übrigen Spaltprodukte mit geringerer Neutronenabsorption sind in einem einzigen, nicht sättigenden, virtuellen Mischisotop zusammengefaßt, das eine Stellvertreter-Rolle einnimmt. Auf Wunsch können neben den 44 eingebauten Spaltprodukten zusätzliche aus den insgesamt 116 Verfügbaren mit frei wählbaren Yield- und Zerfallskonstanten hinzugenommen werden.

GAM-I berechnet das epithermische und schnelle Spektrum nach einer P1-Näherung der Transportgleichung. Das Material wird pro Spektrumzone als homogen verteilt angenommen. Heterogenitätseffekten wird durch optional anzugebende Selbstabschirmungsfaktoren entsprochen. Die Neutronenleckage von benachbarten Spektrumzonen wird durch Bucklingfaktoren berücksichtigt, die aus der Diffusionsrechnung resultieren.

THERMOS löst die Transportgleichung in energie- und ortsabhängiger Form und berechnet das thermische Spektrum für eine eindimensionale Zellgeometrie. Optionale Selbstabschirmungsfaktoren tragen doppelten Heterogenitätseffekten Rechnung. Albedos werden aus der Diffusionsrechnung übertragen und berücksichtigen somit die Leckage in benachbarte Spektrumzonen.

Für Brennstoff mit beschichteten Partikeln innerhalb einer Moderatormatrix werden anstelle der Dancoffaktoren Entkommwahrscheinlichkeiten berechnet und sowohl in THERMOS- wie ZUT-DGL-Rechnungen übernommen. Hiermit wird der doppelten Heterogenität des Partikelbrennstoffes entsprochen.

Das Diffusionsprogramm CITATION ermöglicht eine flexible Anzahl von 1 bis 33 Grobenergiegruppen. Es berechnet die räumliche Neutronenflußverteilung sowohl in 2 als auch 3 Dimensionen und ermittelt den Multiplikationsfaktor der Anordnung.

5.2.1 Der Begriff des *batches* und der *region*

Die in der V.S.O.P.-Eingabe definierten Einheitszellen enthalten neben der Geometrie die zumeist heterogene Materialverteilung der Brennelemente. In der thermischen Spektrumsrechnung und der Resonanzintegralberechnung werden diese Heterogenitäten explizit berücksichtigt.

Die homogenisierten Atomzahldichten der o. g. Brennelementeinheitszellen fließen ein in die elementare Einheit für Materialkompositionen, den sogenannten *batch*. Für jeden einzelnen *batch* werden Abbrandrechnung, Beladeoperation, Kostenrechnung und Nachzerfallswärmebilanz durchgeführt.

In vielen Fällen liegen verschiedene Arten von Brennelementen, die sich durch unterschiedlichen Abbrand und Anreicherung auszeichnen, in nahezu homogener Vermischung im Kern eines Reaktors vor. Sie sind damit i. a. dem selben lokalen Neutronenfluß ausgesetzt. Aus diesem Grund ist es in V.S.O.P. möglich, mehrere *batches* zu der kleinsten

geometrischen Einheit in V.S.O.P., der *region*, zusammenzufassen. Jede *region* ist definiert über ihre geometrische Form innerhalb des Reaktorkerns oder des Reflektors und belegt ein partielles Volumen im Reaktor. Eine *region* enthält als Materialkomposition die gemittelten Atomzahldichten aller *batches*, aus denen sie zusammengesetzt ist.

Der gesamte Reaktor inklusive der Reflektorbereiche ist schließlich aus dem Maschennetz der nicht zwangsläufig rechteckigen *regions* zusammengesetzt. Im Fall des Kugelhaufen-Hochtemperaturreaktors können experimentell verifizierte Fließlinien als Begrenzungen der *regions* definiert werden.

Für die Diffusionsrechnung mit dem Programm CITATION ist ein eigenes rechteckiges Maschennetz erforderlich, das im Vorbereitungsteil von V.S.O.P. in den Modulen BIRGIT oder TRIGIT definiert wird. Ein Transfer aller Atomzahldichten zwischen diesen beiden Maschennetzen wird durch das Aufstellen einer Volumenmatrix ausgeführt und ermöglicht so das korrekte Zusammenspiel der Programm-Module untereinander.

Für die Spektrumsrechnung werden gezielt diejenigen *batches*, für die ein nahezu gleiches Neutronenspektrum zu erwarten ist, zu *Spektrumzonen* zusammengefaßt. Die Zonen enthalten die gemittelten Atomzahldichten der sie bildenden *batches* und sind durch die spezifischen Temperaturen für Moderatoren und Resonanzabsorber charakterisiert. Für jede dieser Spektrumzonen wird eine eigene Spektrumsrechnung durchgeführt.

5.2.2 Zeitliche Diskretisierung der Simulation

Die Abbrandberechnungen für den Brennstoff im Reaktorkern finden innerhalb von Abbrandzyklen (*burnup cycles*) statt, an deren Ende jeweils eine Beladeoperation des Reaktors simuliert wird. Jeder Abbrandzyklus ist unterteilt in mehrere *Große Abbrandzeitschritte* (*large burnup time steps*), an deren Beginn Spektrums- und Diffusionsrechnungen durchgeführt werden können. Jeder große Abbrandzeitschritt ist weiterhin aufgeteilt in ein oder mehrere *Kleine Abbrandzeitschritte* (*small burnup time steps*). Zwischen diesen kleinen Abbrandzeitschritten wird die Neutronenflußhöhe auf die gewünschte Reaktorleistung renormiert, die räumliche und energetische Neutronenflußverteilung jedoch nicht neu berechnet. Zu jedem kleinen Abbrandzeitschritt werden die Abbrandgleichungen für alle 187 in V.S.O.P. enthaltenen Nuklide gelöst und deren veränderte Konzentrationen für den Fortgang der Rechnungen aktualisiert.

5.2.3 Validierung des V.S.O.P.–Programmsystems

Die bisherigen Testerfahrungen und Benchmarkstudien des V.S.O.P.–Programmsystems beziehen sich auf folgende Reaktortypen[25]:

- HTR vom Kugelhaufentyp:
 - Vereinfachte Simulation des AVR
 - Vergleichsrechnungen zur THTR–Berechnung der Firma HRB
 - Vergleichsrechnungen zum MODUL–Reaktor der Firma INTERATOM
- Modularer HTGR mit blockförmigen Brennelementen
- Druckwasserreaktor der Konvoi–Reihe
- MAGNOX–Reaktor (ursprüngliches Calder Hall Design mit $180 \text{ MW}_{\text{th}}$)
- Graphitmoderierter wassergekühlter Druckröhrenreaktor RBMK–1000
- Schwerwassermoderierter und –gekühlter Standard–CANDU Reaktor mit 600 MW_e (Gentilly-2–Typ)

Die Ergebnisse o. g. Benchmarks und Reaktorsimulationen stimmen durchweg gut und vielfach sehr gut mit den gegebenen Reaktordaten überein. Beispielsweise ergibt sich für den Konvoi DWR für die Jahreszykluslänge eine Übereinstimmung mit den Betreiberdaten bis auf weniger als 3 Tage [36].

Da sämtliche in dieser Arbeit vorgestellten Reaktorkonzepte in der o. g. Validierungsliste enthalten sind und erfolgreich mit V.S.O.P. simuliert wurden, bietet sich das V.S.O.P.–Programmsystem als geeignetes Werkzeug für die Brennstoffkreislaufsimulationen der Referenzreaktoren an.

6 Kern–Abbrandsimulation der Referenzreaktoren

In Kapitel 4 wurden die fünf wichtigsten thermischen Reaktorkonzepte besprochen und für jedes Konzept wurde ein Referenzreaktor als Vertreter ausgewählt. Für jeden der fünf ausgewählten Referenzreaktoren wurden die charakteristischen Kern- und Brennelementdaten zusammengestellt sowie auf die spezifischen Beladeoperationen des jeweiligen Reaktors eingegangen. Beispielhaft ist für zwei Reaktoren die Problematik diskutiert worden, die sich im Rahmen einer Abbrandanalyse von entladenen Brennelementen ergibt. Anschließend wurde das in dieser Arbeit verwendete Werkzeug für die Reaktorsimulation, das Programmsystem V.S.O.P., vorgestellt und dessen charakteristische Eigenschaften beschrieben. Sie ermöglichen den Einsatz des Programmes zur Simulation aller verschiedenen thermischen Reaktoren.

Nach diesen Vorbereitungen werden in diesem Kapitel die ausgewählten fünf Referenzreaktoren im Detail mithilfe von V.S.O.P. simuliert. Die Simulation zielt darauf ab, das komplette Kerngeschehen und damit insbesondere die Abbrandgeschichte der eingesetzten Brennelemente für jeden der fünf Reaktoren zu berechnen. Die Ergebnisse der Simulationen werden schließlich den in Kapitel 4 zusammengestellten reaktorspezifischen Daten gegenübergestellt. Differenzen zwischen den berechneten Simulationswerten einerseits und den Literaturangaben aus Kapitel 4 andererseits werden diskutiert und bewertet.

Jeder dieser fünf Simulationen des kompletten Referenzreaktors wird daraufhin ein vereinfachtes Modell gegenübergestellt, mit dessen Hilfe repräsentative Untersuchungen des Brennstoffkreislaufs für den entsprechenden Referenzreaktor möglich sind. Mithilfe dieser *vereinfachten* Modelle können auf effiziente Weise für jedes Reaktorkonzept Studien zu verschiedenen Brennstoffkreisläufen durchgeführt werden, die auf Basis der sehr komplexen Detailsimulationen des Reaktors nicht praktikabel wären. Diese, als *Kern–Abbrandmodelle* bezeichneten Simulationen, enthalten alle notwendigen Daten der komplexen Referenzreaktorsimulationen. Lediglich bei der räumlichen Diskretisierung der Reaktorkerne wird eine Kondensation auf einfachere Strukturen angestrebt.

Auf diese Weise wird zweierlei erreicht: zum einen repräsentiert das Kern–Abbrandmodell die benötigten, über den Reaktor gemittelten Informationen über das Abbrandgeschehen; zum anderen entfällt das für eine größere Anzahl von Brennstoffkreislaufstudien unbequeme Management einer Vielzahl von BE–Umsetzoperationen und Bilanzierungsrechnungen. Im weiteren Verlauf wird jedoch deutlich, daß nicht in jedem Fall eine strikte räumliche Kondensation des komplexen Reaktorkerns möglich ist, ohne dabei für das Abbrandgeschehen wichtige räumliche Eigenschaften des Kerns zu verlieren.

Vor diesem Hintergrund wird die im Vergleich zur komplexen Reaktorsimulation gewählte Struktur jedes Kern–Abbrandmodells sowie dessen Detaillierungsgrad diskutiert. Die Ergebnisse der reaktorspezifischen Abbrandsimulationen der Referenzreaktoren werden denjenigen der Kern–Abbrandmodelle gegenübergestellt, um die generelle Aussagekraft

der Modelle bewerten zu können. Dazu wird insbesondere der Plutoniumvektor einer entladenen Brennelementcharge als Bewertungsmaßstab angesehen, da er ein wesentlicher Bestandteil des Aktinidenaufbaus im Brennstoff ist und bzgl. Endlagerung und Proliferationsgefahr eine entscheidende Rolle innehat. Je besser die Entlade–Plutoniumvektoren von Referenzreaktorsimulation und vereinfachtem Kern–Abbrandmodell übereinstimmen, desto genauer sollte das Modell die Abbrandgeschichte des entsprechenden Referenz–Reaktors reproduzieren können.

6.1 Simulation des 1300 MW_e Konvoi–DWR

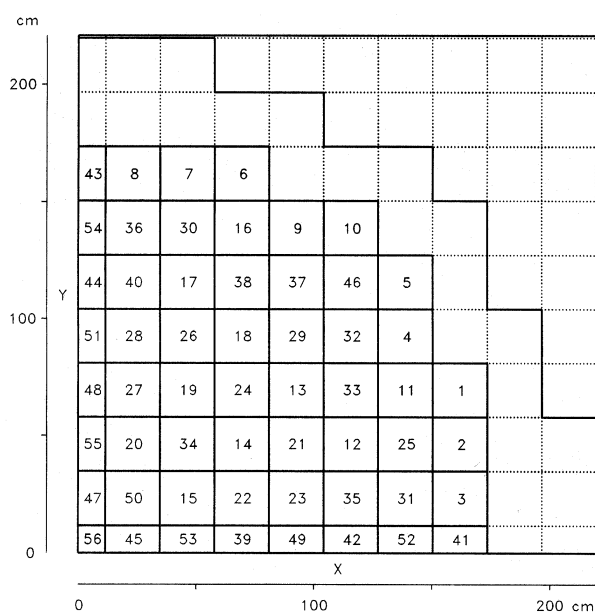


Abbildung 14: Querschnitt durch den Konvoi–Kern mit V.S.O.P.–batch–Numerierung [6]

region siehe Kapitel 5), die jeweils ein viertel, ein halbes oder ein ganzes Brennelementbündel repräsentieren. Abbildung 14 zeigt einen Querschnitt durch die oberste aktive Ebene des simulierten Konvoi–DWR–Kerns. Die aktiven batches sind an der (intern verwendeten) V.S.O.P.–Numerierung zu erkennen. Die unbenannten Randbatches stellen den Seitenreflektor dar.

Geometrie und Zusammensetzung der Brennstäbe und Brennelementbündel wie auch alle anderen, in Kapitel 4 vorgestellten Konvoi–DWR–Kennwerte, werden als Eingabegrößen in der Simulation berücksichtigt. Für die Beladung des Erstkerns werden die äußeren Brennelemente mit 3,5 % angereichertem Uran bestückt, die weiter innen liegenden mit 2,5 % bzw. 1,9 % Anreicherung. Nachladebrennelemente werden auf die äußeren Positionen gesetzt und haben stets 4,0 %ige Anreicherung.

Der Kern ist aufgeteilt in fünf Spektrumzonen, die jeweils Regionen von Brennelementen

Aus Symmetriegründen ist es ausreichend, nur ein Achtel des Konvoi–Reaktorkerns nachzubilden. Das dreidimensionale Modell des Kernoktanten berücksichtigt den Rest des Kerns durch reflektierende Randbedingungen für die Neutronenstreuung an den entsprechenden Schnittebenen. Der Kernoktant (im folgenden zur Vereinfachung nur als *Kern* bezeichnet) ist in fünf horizontale Ebenen aufgeteilt. Die Oberste stellt den oberen, aus Wasser bestehenden Reflektor des LWR–Kerns dar, die anderen vier den aktiven Bereich des Kerns einschließlich Seitenreflektor aus Wasser und Strukturmaterialien. Der aktive Kern enthält für jede Ebene 56 rechteckige regions (Begriff

gleicher Standzeit zusammenfassen. Der gesamte Seiten- und Deckenreflektorbereich stellt die fünfte Spektrumzone dar. Insgesamt ergibt sich eine Diskretisierung des aktiven Kerns in 4×56 , also 224 *batches*, in denen die Abbrandgeschichte der Brennelemente abgebildet wird.

Die Einbrennphase des Reaktorkerns erfolgt nach der Erstkernbeladung unter ständiger Kontrollgiftanpassung, die ein $K_{\text{eff}}=1$ gewährleistet. Das Zyklusende ist erreicht, wenn die Kontrollgiftkonzentration auf Null gesunken ist. Es schließt sich eine BE-Umladeoperation an, bei der etwa ein Viertel des Kerns mit frischen Brennelementen, zumeist auf den äußeren Positionen, beladen wird. Die Brennelemente, die sich dort befanden, werden auf ausgewählte Positionen weiter innen versetzt, wo sie ihrerseits Brennelemente verdrängen. Schließlich wird nach drei internen Umsetzoperationen ein Viertel des Kerns entladen. Daraufhin beginnt der nächste Zyklus unter erneuter Kontrollgiftanpassung für den nun überkritischen Kern.

Sinnvolle Zeitschrittlängen für Kontrollgiftanpassungen, Diffusions- und Spektrumsrechnungen liegen in der Größenordnung von sieben Tagen. Nahe des erwarteten Zyklusendes wird die Zeitschrittlänge auf einen Tag reduziert, um iterativ besser das exakte Zyklusende bestimmen zu können.

Nach einer über mehrere Zyklen andauernden Einbrennphase wird ein Gleichgewichtskern erreicht, der daran zu erkennen ist, daß er stets gleiche Zykluslängen reproduziert. Die Zusammensetzung dieses Gleichgewichtskerns wird direkt nach einer Beladeoperation abgespeichert. Somit kann jederzeit auf die Simulation des Gleichgewichtszyklus zurückgegriffen werden, ohne zuvor den gesamten Einbrennvorgang erneut simulieren zu müssen.

Die Gleichgewichtszyklusdauer für den Konvoi–DWR ergibt sich in der Simulation zu knapp 321 Vollasttagen. Im Gleichgewichtszyklus besitzen jeweils knapp ein Viertel der Brennelemente gleiche Standzeiten und damit vergleichbare Abbrandwerte. Die einzige Ausnahme bildet ein einzelner batch im Zentrum des Kerns (siehe Position Nr.56 in Abbildung 14), der einige wenige zentrale Brennelemente im fünften Abbrandzyklus repräsentiert.

Die sich bei der Simulation ergebenden spezifischen Daten für den Konvoi–DWR stimmen sehr gut mit den Literaturwerten (siehe Kapitel 4) überein. Für die Entladecharge ergeben sich Abbrandwerte zwischen 39 und 41 MWd/kg_{SM} für den oberen Bereich des Kerns, der über die gesamte Zyklusdauer einen geringen Neutronenfluß erfährt. Vergleichsweise hohe Abbrände zwischen 54 und 55 MWd/kg_{SM} resultieren aus dem einzigen, entladenen, zentralen batch mit einem aus fünf statt aus vier Abbrandzyklen akkumulierten Abbrand. In Tabelle 13 ist der minimale und der maximale Abbrand ausgewiesen, der sich für die Brennelemente der Entladecharge ergibt.

6.1.1 Vereinfachtes Kern–Abbrandmodell des DWR

Das vereinfachte Kern–Abbrandmodell des Konvoi–DWR verwendet im Wesentlichen zu der komplexen Referenzreaktorsimulation vergleichbare Eingabedatensätze. Die Kernstrukturen des Reaktors werden im Modell auf einen Kubus mit einem Volumen von einem Kubikmeter kondensiert und normiert. Die Reflektorbereiche des Originalkerns fallen weg und werden durch reflektierende Randbedingungen ersetzt. Die über die Kontrollgiftanpassung erreichte Reaktivität ist somit um den Leckagefaktor des Konvoi–DWR höher. Das Einheitsvolumen des DWR–Abbrandmodells enthält die vier Brennelementkompositionen unterschiedlicher Standzeit, die zu gleichen Volumenanteilen homogen verteilt werden. Das anteilmäßig eher unbedeutende Zentralelement mit der längeren Standzeit (5. Zyklus) entspricht, wird im vereinfachten Kern–Abbrandmodell vernachlässigt. Das Beladeschema der komplexen Referenzreaktorsimulation wird im Grundsatz übernommen, so daß jedesmal das älteste Viertel der Brennelemente gegen eine frische BE–Charge ausgetauscht wird.

V.S.O.P.–Reaktor–Modell	komplex	vereinfacht
Anzahl der aktiven batches	224	4
Anzahl der Spektrumzonen	5	4
SM–Kerneinsatz (kg)	13.258,7	2.659,5
Kernvolumen (m ³)	4,985	1,0
Kernleistungsdichte (MW/m ³)	94,4	94,4
Zykluslänge (d)	320,88	320,89
durchschn. Standzeit der BE (d)	1.285,97	1.271,10
mittlere Abbrand der Entladecharge (Max/Min) (MWd/kg _{SM})	45,04 (55,13/39,26)	45,04 –
Pu–Vektor der Entladecharge		
Pu–239 (kg/GWa)	44,63	44,85 (+0,5 %)
Pu–240 (kg/GWa)	20,57	20,36 (-1,0 %)
Pu–241 (kg/GWa)	12,53	12,43 (-0,8 %)
Pu–242 (kg/GWa)	5,70	5,55 (-2,6 %)
Pu _{gesamt} (kg/GWa)	83,43	83,19 (-0,3 %)

Tabelle 13: Vergleich des komplexen und vereinfachten V.S.O.P.–Konvoi–Reaktormodells

Tabelle 13 zeigt die spezifischen Daten sowie den Plutoniumvektor der Entladecharge, sowohl für die komplexe Reaktorsimulation als auch für das vereinfachte Kern–Abbrandmodell. Während das vereinfachte Kern–Abbrandmodell stets zu homogenen Zusammensetzungen der BE des gleichen Abbrandzyklus führt, wird bei der komplexen Reaktorsimulation über alle entladenen BE (eingeschlossen des kleinen Beitrags für das zentrale Element) der Mittelwert berechnet.

Die Bewertung der Leistungsfähigkeit des Kern–Abbrandmodells bzgl. der Nachbildung des Referenzreaktor–Kerngeschehens erfolgt über den Vergleich des Pu–Entladevektors²². Die Massenabweichungen der Pu–Isotope beider Entladechargen betragen maximal 2,6 % für das Pu–242–Isotop und bis zu 1,0 % für alle anderen Isotope sowie das Pu–Gesamtinventar. Das vereinfachte Kern–Abbrandmodell bildet somit das gemittelte Kerngeschehen des Referenzreaktors — trotz erheblich vereinfachter Geometrie und Beladepoperationen — innerhalb der o. g. Fehlermargen recht erfolgreich ab.

6.2 Simulation des 600 MW_e Standard–CANDU–Reaktors

Auch beim CANDU–Reaktor wird aus Symmetriegründen nur ein Achtel des Kerns abgebildet. Der simulierte Kernoktant ist in sieben horizontale Ebenen unterteilt, die obere stellt den Deckenreflektor aus Schwerwasser dar, die restlichen sechs bilden den aktiven Kern inklusive Schwerwasserseitenreflektor. Den aktiven Kern durchziehen vertikal 95 batches pro Ebene, jeder batch enthält ein BE–Bündel, den zugehörigen Abschnitt für Druck– und Calandriarohr und das moderierende Schwerwasser des Calandriatanks. Der Kern ist in fünf Spektrumzonen aufgeteilt: eine für den zentralen Kernbereich, drei für die äußeren aktiven Kernzonen und eine für den gesamten Reflektorbereich. Die batches in dem zentralen Kernbereich enthalten homogen verteiltes Bor, das die Kontrollstäbe für die Betriebsregelung repräsentiert.

Abbildung 15 zeigt den schematischen Kernaufbau des CANDU für die komplexe Reaktorsimulation. Man erkennt den Seiten– und Deckenreflektor aus Schwerwasser und die vier numerierten Spektrumzonen des aktiven Kerns. Für die Spektrumzone Nr.1 ist das Maschennetz für die jeweils 27 batches pro Ebene angedeutet. Die Pfeile deuten schematisch die Umpositionierung der batches einer äußeren Kernzone nach der halben Standzeit an, um den besonderen Charakteristika des CANDU–600 Beladepplans zu entsprechen (siehe weiter unten).

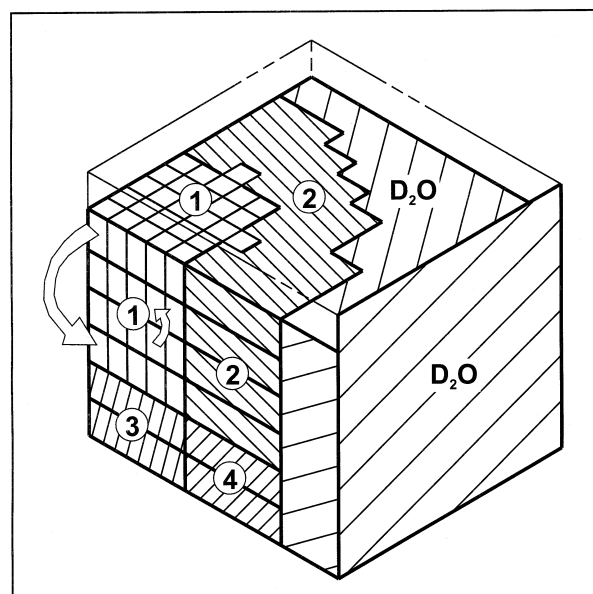


Abbildung 15: Aufbau des CANDU–Kernoktanten in der V.S.O.P.–Simulation

In der V.S.O.P.–Simulation besteht die für den CANDU modellierte Einheitszelle für die Spektrumsrechnung aus drei radialen Zonen: Brennstäbe und D₂O–Kühlmittel in der Inneren, die Materialdaten für die Druck– und Calandriaröhre in der Zweiten, und in der Äußeren das Schwerwasser des

²²Der Pu–Vektor ist ein wichtiger Schlüssel für den Aufbau aller Aktiniden (siehe auch nächstes Kapitel)

Calandriatanks. Die doppelte Heterogenität der Brennelementbündel (siehe Kapitel 4.3) wird in einer vorangestellten Resonanzintegralberechnung und der Bestimmung von thermischen Selbstabschirmungsfaktoren für ausgewählte Isotope berücksichtigt.

Der Brennelementbeladeplan für den simulierten CANDU–Reaktor ist vergleichsweise kompliziert und orientiert sich an dem *8–shift–bundle*–Plan (siehe Kapitel 4.3.1) des Originals. Grundsätzlich wird hier zwischen der ein Drittel des Kernvolumens umfassenden inneren Kernregion (Spektrumzonen 3 und 4 in Abbildung 15) und der äußeren, den restlichen Teil des Kerns bildenden Region (Spektrumzonen 1 und 2) unterschieden. Die Brennelementbündel in der inneren Zone besitzen die halbe Standzeit gegenüber den Bündeln der äußeren Zone. Die quasikontinuierliche Beschickung des CANDU wird in der Simulation durch einen Bündelumsetzplan simuliert, der alle 11,5 Vollasttage 24 Bündel entlädt und frische Bündel einsetzt. Alle übrigen Bündel wechseln zu diesem Zeitpunkt ihre Position im Kern und zirkulieren auf diese Weise im Laufe ihres Einsatzlebens auf bis zu 34 unterschiedlichen Positionen durch ihren zugehörigen Kernteilbereich.

Mit diesem Umsetzschemata werden zwei Effekte erzielt. Zum einen vergleichmäßigen sich die Abbrandgeschichten aller Bündel einer Spektrumzone, da jedes Bündel im Laufe seiner Einsatzzeit exakt die gleichen Positionen im Kern durchläuft. Zum anderen wird dabei das Durchschieben älterer Bündel von einem Kanalende zum gegenüberliegenden simuliert, das beim Beladevorgang frischer Brennelemente im Original–Reaktor auftritt (siehe Kapitel 4.3.1).

Nach mehr als 80 Abbrandzyklen von knapp 11,5 Tagen befindet sich der Kern im Gleichgewichtszustand, so daß sich Kritikalitätsrechnung, Leistungsverteilung und Brennstoffentladung nahezu vollständig reproduzieren. Der simulierte CANDU ist, soweit es die in [24] enthaltenen Daten zulassen, an die Literaturvorgaben angepaßt. Da das aus der Simulationsrechnung resultierende Leistungsdichteprofil die Vorgaben aus [24] sehr gut trifft, ist auch für die Abbrandstreuung der Entladecharge eine gute Übereinstimmung mit dem Original–CANDU–600 zu erwarten.

In Tabelle 14 finden sich die spezifischen Daten für die V.S.O.P.–Simulation des CANDU–Referenzreaktors. Sie stimmen gut mit den Literaturwerten aus Kapitel 4.3 überein.

6.2.1 Vereinfachtes Kern–Abbrandmodell des CANDU–Reaktors

Das vereinfachte Kern–Abbrandmodell des CANDU–Reaktors beschränkt sich auf ein zweidimensionales Zylindermodell des aktiven Kerns mit allseitig reflektierenden Randbedingungen. Der Reflektor wird vernachlässigt, da er nur minimalen Einfluß auf die Zusammensetzung der Entladecharge hat. Die einzige region des Modells besteht aus 40 batches identischen Volumens. Jeder batch repräsentiert Brennelemente vergleichbarer Standzeiten und Abbrandwerte. Die einzige Spektrumzone umfaßt alle batches, die somit

V.S.O.P.–Reaktor–Modell	komplex	vereinfacht
Anzahl der aktiven batches	570	40
Anzahl der Spektrumzonen	5	1
SM–Kerneinsatz (kg)	10.659,57	462,68
Kernvolumen (m ³)	23,0384	1,0
Kernleistungsdichte (MW/m ³)	11,82	11,83
Zykluslänge (d)	11,53	6,85
durchschn. Standzeit der BE (d)	273,81	273,84
mittlerer Abbrand der Entladecharge, (Max/Min) (MWd/kg _{SM})	7,0 (5787/8218)	7,0 –
Pu–Vektor der Entladecharge		
Pu–239 (kg/GWa)	125,71	125,68 (+0,02 %)
Pu–240 (kg/GWa)	44,50	44,55 (+1,0 %)
Pu–241 (kg/GWa)	11,15	11,17 (+0,2 %)
Pu–242 (kg/GWa)	2,67	2,60 (-2,6 %)
Pu _{gesamt} (kg/GWa)	184,03	184,00 (-0,02 %)

Tabelle 14: Vergleich des komplexen und vereinfachten CANDU–Reaktormodells

dem selben über alle Abbrandstufen gemittelten Spektrum unterliegen. Diese Vereinfachung ist gerechtfertigt aufgrund der sehr großen Neutronen–Diffusionslängen im Schwerelementtank. Zur Simulation der Kontrollstäbe enthält jeder batch einen durchschnittlichen Borgehalt.

Etwa alle sieben Tage wird der batch mit dem größten Abbrand entladen und einer mit frischem Brennstoff nachgeführt. Die Leistungsdichte im Kern–Abbrandmodell ist der durchschnittlichen Leistungsdichte des Referenzreaktorkerns angepaßt. Die durchschnittliche Standzeit der entladenen Brennelemente entspricht derjenigen der komplexen Simulation des Referenzreaktors.

Da die Zusammensetzung der BE–Entladecharge des Abbrandmodells dem Durchschnitt der aus dem komplexen Reaktormodell entladenen Brennelemente entsprechen soll, wird eine Streuung des Abbrands im Modell bewußt nicht berücksichtigt. Trotz dieser Vereinfachung stimmen die Entlade–Plutoniumvektoren der komplexen Reaktorsimulation und des Kern–Abbrandmodells sehr gut überein (siehe Tabelle 14). Die vergleichsweise große Differenz für das Plutonium–242–Isotop liegt begründet in der Abbrandstreuung der Entladecharge bei der komplexen CANDU–Simulation (siehe Kapitel 4.3.1²³). Insgesamt ist festzustellen, daß das vereinfachte Kern–Abbrandmodell für die Berechnung der Isotopenzusammensetzung einer gemittelten Entladecharge des CANDU–600–Reaktors geeignet ist — im Rahmen der Fehlermargen in Tabelle 14 —.

²³Das Pu–242–Isotop unterliegt im Besonderen einem nicht–abbrandlinearen verzögerten Aufbau. Somit steigt der Pu–242–Gesamtanteil in einer Entladecharge sowohl mit höherem Durchschnittsabbrand als auch mit größer werdender Abbrandvarianz.

6.3 Simulation des 180 MW_{th} Calder Hall Magnox–Reaktors

Für den Calder Hall Reaktor (vgl. Abb. 6 in Kapitel 4.4) wird aus Symmetriegründen ebenfalls nur ein Kernoktant simuliert. Dieser Magnox–Teilkern setzt sich aus vier horizontalen Ebenen zusammen. Die oberste Ebene stellt den oberen Graphit–Reflektor dar, die drei unteren Ebenen enthalten den Seitenreflektor und den aktiven Teil des Kerns (ähnliches Geometrieschema wie in Abbildung 14 für den Konvoi–DWR).

Die aktive Kernzone ist in $3 \times 28 = 84$ rechteckige regions eingeteilt, die jeweils die 16, der Nachbarschaft eines zentralen Kontrollstabes zugehörigen Brennelemente umfassen. Der Calder Hall Magnox–Kern besteht im Original aus drei radialen Zonen mit unterschiedlichen Kühlkanaldurchmessern. In der V.S.O.P.–Modellierung werden deshalb entsprechend homogenisierte Materialdichten für Moderator und Kühlmittel verwendet. Die innere Zone umfaßt dabei 15,1 % des Kernvolumens, die mittlere 34 % und die äußere 50,9 %. Jeder dieser drei Zonen bildet in der Simulation eine eigene Spektrumzone. Dadurch ist sowohl den radial abnehmenden durchschnittlichen Brennelementabbränden als auch den bei unterschiedlichen Moderatorichten verschiedenen freien Weglängen für die Neutronenstreuung Rechnung getragen. Die insgesamt neun Kernspektrumzonen (jeweils drei pro aktive Kernebene) werden durch zwei weitere für den Reflektor ergänzt.

Der für jeweils 16 Brennelementkanäle zuständige Kontrollstab kann in der Simulation wegen der doppelten Heterogenität lediglich durch eine homogenisierte Materialdichteverteilung in den regions berücksichtigt werden. Hierzu werden Selbstabschirmungsfaktoren für die GAM–Eingabe in einer externen Rechnung ermittelt. Sie beinhalten die Änderung des Neutronenflusses, der jeweils über den Umgebungsbereich des Absorberstabes und über ausgewählte Energiegruppen gemittelt wird.

Nach der Beladung des gesamten Kerns erfolgt die Simulation der mehr als fünfjährigen Abbrennphase. In Realität wird der Calder Hall jährlich zu etwa einem Fünftel (siehe Kapitel 4.4) entladen. Alle übrigen Brennelemente behalten ihre ursprünglichen Positionen bei. In der V.S.O.P.–Simulation wird dieser Fünf–Zyklus–Betrieb näherungsweise durch einen einzigen, ununterbrochenen, ca. fünfjährigen Abbrandzyklus dargestellt. Die einzelnen Kernzonen (s. o.) werden mit einer über die gesamte Standzeit der Brennelemente vorherrschenden, mittleren Kontrollgiftkonzentration beaufschlagt. Die Überschubreaktivität des frisch beladenen Kerns ist dadurch in der V.S.O.P.–Simulation erheblich höher als in der Realität. Aus den gleichen Gründen liegt die Reaktivität des Kerns am Ende des fünfjährigen Abbrandzyklus unter Eins. Die Auswirkung auf das Abbrandverhalten der Brennelemente ist jedoch nur geringfügig, da hauptsächlich die Form des Spektrums und die Höhe des Neutronenflusses die primären Einflußgrößen für den Aktinidenaufbau sind.

Die zeitliche Entwicklung der Reaktivität bei der Simulation des Referenzreaktors zeigt die bekannte magnoxspezifische Charakteristik für die Einbrennphase des Kerns.

Die Reaktivität erfährt anfangs einen allmählichen Anstieg durch den Aufbau des spaltbaren Plutoniumisotops–239. Obwohl, in ähnlichem Maße wie Plutonium–239 erbrütet, Uran–235 verbraucht wird, erhöht sich trotzdem aufgrund der unterschiedlichen Spalt–Wirkungsquerschnitte beider Isotope insgesamt der makroskopische Spaltwirkungsquerschnitt und damit die Gesamtreaktivität des Kerns. Später, wenn die Pu–239–Konzentration ein Gleichgewicht zwischen Aufbau und Abbau erreicht, folgt durch den vermehrten Aufbau der Spaltprodukte und höheren, zum Teil parasitären Plutoniumisotope ein kontinuierlicher Abfall der Überschußreaktivität, bis schließlich der gesamte Kern (nach etwa 1920 Tagen) entladen wird. Die gewählte Zeitschrittlänge beträgt in der V.S.O.P.–Simulation 20 Tage für einen großen Abbrandzeitschritt, der seinerseits unterteilt ist in 10 kleine Abbrandzeitschritte.

Erwartungsgemäß besitzen die entladenen Brennelemente weit gestreute Abbrandwerte, da sie im Gegensatz zu Beladeschemata anderer Reaktoren während ihrer mehrjährigen Standzeit im Kern nicht umgesetzt werden. Dadurch unterliegt das Abbrandverhalten keiner Vergleichmäßigung durch die räumliche BE–Positions–Mittelung, wie sie etwa beim DWR–Konvoi–Umsetzschema vorliegt. Beim Magnox–Reaktor ist der Abbrandwert jedes Brennelementes während der gesamten Standzeit exakt mit seiner Position im Kern und dem dort herrschenden Neutronenfluß verknüpft.

Der mittlere Abbrand in den drei Kernzonen beträgt in der komplexen Referenzreaktorsimulation zu 4,03/3,35/1,87 MWd/kg_{SM} (von innen nach außen). Für die gesamte Entladecharge ergibt sich somit ein durchschnittlicher Gesamtabbrand von 2,70 MWd/kg_{SM}, der dem in Kapitel 4 erwähnten Literaturwert für den Calder Hall entspricht.

6.3.1 Vereinfachtes Kern–Abbrandmodell des Magnox–Reaktors

Das vereinfachte Kern–Abbrandmodell des Calder Hall Reaktors ist auf ein Kernvolumen von einem Kubikmeter kondensiert und weist keine Reflektorbereiche aus. Es enthält allseitig reflektierende Randbedingungen.

Um die BE–Ladeoperationen einfach halten und trotzdem die Abbrandgeschichte des Calder Hall abbilden zu können, wird für jede der drei radialen Zonen des Kerns eine separate Simulationsrechnung durchgeführt. Dabei werden jeweils die spezifischen Kühlkanalquerschnitte berücksichtigt und die zonengemittelten Entladeabbrände als Zielabbrand eingestellt. Mit dieser dreifachen Modellstruktur läßt sich bei volumengewichteter Addition der drei resultierenden Entladechargen die Zusammensetzung der kompletten Entladecharge des komplexen Calder Hall Referenzreaktors gut reproduzieren.

Der Blick auf Tabelle 15 läßt eine für höhere Plutoniumisotope zunehmende Abweichung des Plutonium–Entladevektors für das vereinfachte Modell gegenüber der komplexen Reaktorsimulation erkennen. Für das Pu–242 ist die Abweichung am höchsten und beträgt

V.S.O.P.–Reaktor–Modell	komplex	vereinfacht
Anzahl der aktiven batches	84	3 x 1
Anzahl der Spektrumzonen	11	3 x 1
SM–Kerneinsatz (kg)	16.010	3 x 287,66
Kernvolumen (m ³)	55,656	3 x 1,0
Kernleistungsdichte (MW/m ³)	0,404	0,28/0,50/0,60
Zykluslänge (d)	1.920	1.920
durchschn. Standzeit der BE (d)	1.920	1.920
mittlerer Abbrand der Entladecharge, (Max/Min) (MWd/kg _{SM})	2,6985 (0,761/5,117)	2,6986 –
Pu–Vektor der Entladecharge		
Pu–239 (kg/GWa)	173,03	177,30 (+2,5 %)
Pu–240 (kg/GWa)	46,08	45,50 (-1,3 %)
Pu–241 (kg/GWa)	7,86	7,51 (-4,5 %)
Pu–242 (kg/GWa)	1,06	0,91 (-14,2 %)
Pu _{gesamt} (kg/GWa)	228,03	231,22 (+1,4 %)

Tabelle 15: Vergleich des komplexen und vereinfachten V.S.O.P.–Calder Hall–Reaktormodells über 14 %.

Ursache für diese Differenz ist die große Abbrandvarianz innerhalb der Entladecharge für die komplexe Reaktorsimulation. Sie beträgt für jede Zone jeweils über 2,4 MWd/kg_{SM}. Für die gesamte Entladecharge des Magnox–Reaktorkerns liegt sie bei 4,3 MWd/kg_{SM}. Daher kann das lediglich auf den Mittelwert jeder Zone beschränkte vereinfachte Kern–Abbrandmodell den Plutonium–Entladevektor aufgrund des *nicht-linearen* Aufbaus der einzelnen Plutoniumisotope nur bedingt reproduzieren. Dieser Umstand wird verstärkt bei den hier vorliegenden geringen Abbrandwerten der Entladechargen. Pu–242 ist ein späteres Glied in der Pu–Aufbaukette und wird erst gegen Ende der Abbrandphase aufgebaut. Daher ist die Pu–242–Konzentration empfindlich vom Entladeabbrand abhängig (siehe Kapitel 7 für eine detailliertere Betrachtung des reaktorspezifischen Plutoniumaufbauverhaltens bzw. Abb. 52 im Anhang).

Allgemein muß für den Magnoxreaktor bemerkt werden, daß bei der Verwendung des vereinfachten Kern–Abbrandmodells vor allem der Anteil des Plutonium–242 unterschätzt wird. Die anderen Plutoniumisotope werden jedoch mit einer Genauigkeit erfaßt, die auch für die anderen Referenzreaktoren bei Verwendung der vereinfachten Kern–Abbrandmodelle erreicht wird.

6.4 Simulation des RBMK–1000 Reaktors

In einer V.S.O.P.–Studie über den Tschernobyl–Unfall[18] wurden die Zusammenhänge zwischen der Neutronenphysik und der Thermohydraulik für einen typischen Kühlkanal des RBMK–1000 Reaktors untersucht. Dazu wurde die Vorgeschichte des Kerns bis zum Zeitpunkt des Unfalls so gut wie möglich nach den verfügbaren Informationen rekonstruiert. Anhand dieser Studie wird das in dieser Arbeit verwendete Kern–Abbrandmodell des RBMK–1000 entwickelt.

Da die o. g. Studie nicht den kompletten Kern des RBMK–Reaktors abbildet, sondern lediglich auf einen Kühlkanal beschränkt ist, ist ein Vergleich zwischen Referenzreaktor und vereinfachtem Kern–Abbrandmodell (wie für alle übrigen Reaktorkonzepte) nicht möglich. Eine detaillierte Beschreibung des hier verwendeten Abbrandmodells und eine Einordnung der Modell–Resultate im Hinblick auf den realen RBMK–1000 Reaktor erlauben jedoch eine Aussage über den Gültigkeitsbereich des vereinfachten RBMK–Kern–Abbrandmodells.

6.4.1 Vereinfachtes Kern–Abbrandmodell des RBMK–Reaktors

Das RBMK–Abbrandmodell beschränkt sich auf die dreidimensionale Darstellung eines Kühlkanals mit eingesetztem Brennelementbündel und dem umgebenden Graphitblock. Reflektierende Randbedingungen sorgen für die entsprechende Neutronenrückstreuung. Da der RBMK–Kern verhältnismäßig groß ist und sich nach längerem Vollastbetrieb ein ausgeglichenes Profil für den Neutronenfluß im Kern einstellt[18], ist – mit Ausnahme der Bereiche am Rand des Kerns (wegen des zunehmenden Gradienten des Neutronenflusses) – obige Randbedingung (Kühlkanal umgeben von gleichartigen Nachbarkanälen) größtenteils gegeben. Weiterhin sorgt die quasikontinuierliche Beladung des Reaktors für eine Vergleichmäßigung der Abbrandstreuung zwischen den einzelnen Brennelementbündeln. Im Hinblick darauf, daß das RBMK–Abbrandmodell in erster Linie gültige Aussagen für die entladene Durchschnittscharge des RBMK–Reaktors treffen soll, ist die Betrachtung eines typischen RBMK–Kühlkanals für den gegebenen Sachverhalt ausreichend.

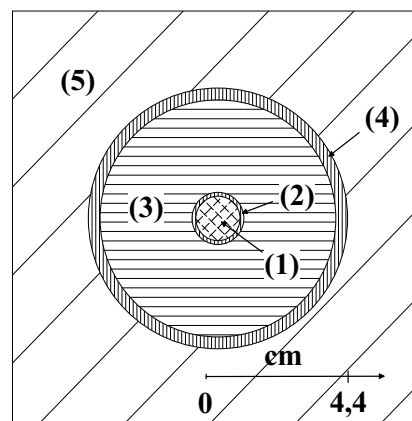


Abbildung 16: Querschnitt durch den Kühlkanal des RBMK–1000 im V.S.O.P.–Kern–Abbrandmodell

Der Kühlkanal ist in der V.S.O.P.–Simulation in fünf radiale Zonen aufgeteilt (siehe Abbildung 16), die von innen nach außen den zentralen Edelstahlstab des Brennelementbündels (1), dessen Zirkon–Niob–Umhüllung (2), eine homogenisierte Mischung der

Brennstäbe samt durchströmendem Kühlmittel (3), die Druckröhre des Kanals (4) und schließlich den umgebenden Graphit (5) enthalten. Da beim RBMK das Kühlwasser in der oberen Sektion des Kanals zu Sieden beginnt, wurde für das Wasser eine über die Länge des Kanals gemittelte Dichte verwendet.

Die region, die den Kanal bildet, besteht aus 45 batches gleichen Volumens. Jeder batch enthält Materialkompositionen für Brennelementbündel unterschiedlicher Standzeit. Die nahezu kontinuierliche Zuführung der Nachladebrennelemente wird aus programmtechnischen Gründen in 45 Zeitintervallen von etwa 26 Tagen Länge durchgeführt. Nach jedem der knapp vierwöchigen Abbrandzyklen wird immer derjenige batch mit der höchsten Standzeit entladen und durch ein frisches Brennelementbündel ersetzt.

Im RBMK–Reaktor übersteigt die Diffusionslänge in Graphit deutlich den Abstand der Kanäle untereinander, so daß im realen Reaktor das Neutronenspektrum der Nachbar Kanäle Einfluß auf das Spektrum im betrachteten Kanal nimmt. Somit ist es für das RBMK–Kern–Abbrandmodell plausibel, das örtliche Neutronenspektrum über eine Mittelung der Nachbarspektren zu bilden. Aus diesem Grund wird eine gemeinsame, alle 45 batches umfassende Spektrumzone verwendet.

Der doppelten Heterogenität des Brennelementbündels und den Auswirkungen lokaler Kontrollstäbe auf das Neutronenspektrum wird – in gleicher Weise wie beim vorher besprochenen Magnox–Reaktor – mit vorher berechneten Selbstabschirmungsfaktoren entsprochen. Diese Faktoren werden in der eigentlichen V.S.O.P.–Rechnung in den Modulen GAM und THERMOS berücksichtigt.

Anzahl der aktiven batches	45
Anzahl der Spektrumzonen	1
SM–Kerneinsatz (kg)	57,123
Kernvolumen (m ³)	0,2125
Kernleistungsdichte (MW/m ³)	4,2
Zykluslänge (d)	26,172
durchschnittliche Standzeit der BE (d)	1.177,7
Abbrand der Entladecharge (MWd/kg _{SM})	18,405
Pu–Vektor der Entladecharge:	
Pu–239 (kg/GWa)	49,06
Pu–240 (kg/GWa)	27,70
Pu–241 (kg/GWa)	12,82
Pu–242 (kg/GWa)	4,82
Pu _{gesamt} (kg/GWa)	94,39

Tabelle 16: Spezifische Daten für das RBMK–1000 V.S.O.P.–Kern–Abbrandmodell

Die Leistungsdichte im Kern–Abbrandmodell entspricht der mittleren Kernleistungsdich-

te des RBMK–1000 Reaktors und führt nach einer Standzeit von mehr als drei Jahren bei den entladenen Brennelementen zu einem Abbrand von 18,4 MWd/kg_{SM}. Tabelle 16 gibt neben den charakteristischen Daten des RBMK–Abbrandmodells auch den Plutoniumvektor der Entladecharge wieder. Die Streuung des Entladeabbrands sollte für den RBMK–1000 Reaktor in etwa die Größenordnung erreichen, die für den CANDU–Reaktor festgestellt worden ist (siehe Kapitel 4.3.1). Beide Reaktoren verwenden ein quasikontinuierliches Beladeschema. Große Diffusionslängen im Moderator sorgen für spektrale Mittelung von Neutronenflüssen über große räumliche Kernbereiche. Besonders im Hinblick auf die kurzfristigen Eingriffsmöglichkeiten in das Beladeschema des RBMK–Reaktors bei Vollast, gelten die Werte in Tabelle 16 lediglich für eine *durchschnittliche* Entladecharge, wie sie nach dem begrenzten Wissensstand über RBMK–1000 Reaktoren berechnet werden kann.

6.5 Die HTR OTTO–100 Studie

Der Hochtemperaturreaktor HTR OTTO–100 wird in V.S.O.P. als zweidimensionales zylindersymmetrisches Modell simuliert, das einen Längsschnitt durch eine Kernhälfte des Reaktors darstellt. Decken–, Seiten– und Bodenreflektoren aus Graphit umgeben den Kern des OTTO–100. An der zentralen Mittelachse ersetzen reflektierende Randbedingungen die zweite Reaktorhälfte. Die Graphitstrukturen werden je nach Lage im Reaktor durch unterschiedliche Graphitdichten beschrieben, um heterogenen Anordnungen wie Kühlgas– und Abschaltssystemführungen usw. zu entsprechen. In Teilen des Bodenreflektors ist der Kugelabzugsmechanismus durch Beimischung von Eisen berücksichtigt. Die Betriebsposition der Kontrollstäbe ist durch eine Beimengung von Bor zum Graphit in einer ringförmigen dünnen Zone oberhalb des Kerns simuliert. Abbildung 12 in Kapitel 4.6 zeigt einen Längsschnitt durch den OTTO–100 Referenzreaktor in der V.S.O.P.–Geometrie.

Der zylindrische Kern des OTTO–100 verjüngt sich im unteren Teil und besitzt dort einen Konus aus Graphit. Der Kern ist aufgeteilt in fünf parallele vertikale Fließkanäle, die ihrerseits insgesamt 96 volumengleiche batches umfassen. Durch eine Übergabe von Brennelementen zwischen den untereinander angeordneten batches eines Kanals ist das langsame *Fließen* der Kugeln in der Kugelschüttung von oben nach unten in Richtung auf den Kugelabzug nachgebildet.

Den inneren drei Kanälen werden Brennelemente von 6,9 % Anreicherung, den äußeren zwei Brennelemente von 11,7 % Anreicherung zugeführt. Durch diese *Zwei–Zonen–Beschickung* wird ein radial vergleichmäßigttes Leistungsprofil erzielt. Lediglich der Erstkern wird mit Brennelementen geringerer Anreicherung ausgestattet.

Der HTR OTTO–100 wird gemäß seines Namens (**O**nce **T**hrough **T**hen **O**ut) nur mit frischen Brennelementen beladen, die nach einmaligen Durchlauf durch den Kern nicht

wiederverwendet werden. Die eigentlich kontinuierliche Beladung wird aus programmtechnischen Gründen in V.S.O.P. quasikontinuierlich in Zyklen mit einer Länge von 47 Tagen gehandhabt. Der oberste batch jedes Fließkanals wird zu Beginn eines Zyklus mit frischen Brennelementen beladen, alle anderen batches des Kanals rücken um eine Position weiter nach unten, und der unterste batch entlädt seinen Inhalt schließlich in eine Auffangbox. In der Simulation stellt sich nach knapp 150 Beladungszyklen der Gleichgewichtskern ein. Bei Be- und Entladung machen die 6,9 %-angereicherten Brennelemente 60 Vol-% aus, die höher Angereicherten 40 Vol-%.

Der OTTO-100-Reaktor ist in 25 Spektrumzonen aufgeteilt, 15 für die Reflektorbereiche und 10 für den aktiven Kern. Im Kern entfallen fünf Spektrumzonen auf die drei inneren Kanäle und die anderen fünf auf die beiden äußeren Kanäle. Alle Spektrumzonen sind mit den für ihren Bereich gültigen Durchschnittstemperaturen beaufschlagt.

Die entladenen Brennelemente besitzen durchschnittliche Abbrände von 65 bzw. 102 MWd/kg_{SM}, je nachdem, ob es sich um Elemente der inneren oder äußeren Fließkanäle handelt. Die Abbrandvarianzen und der Durchschnittswert für die gesamte Entladecharge, deren Plutoniumvektor sowie weitere charakteristische Parameter der V.S.O.P.-Simulation sind in Tabelle 17 ausgewiesen.

V.S.O.P.-Reaktor-Modell	komplex	vereinfacht
Anzahl der aktiven batches (pro Kanal)	96 (13/15/17//21/30)	40 (15//25)
Anzahl der Spektrumzonen (Core+Refl.)	10 + 15 = 25	10 + 11 = 21
SM-Kerneinsatz (kg)	1.129	1.129
Kernvolumen (m ³)	29,9	29,9
Kernleistungsdichte (MW/m ³)	3,34	3,38
Zykluslänge (d)	47,1	47,1
durchschn. Standzeit der BE (d)	905	895
mittlerer Abbrand der Entladecharge, (Max/Min) (MWd/kg _{SM})	80,013 (63,7/107,4)	80,011 (62,5/106,3)
Pu-Vektor der Entladecharge		
Pu-239 (kg/GWa)	20,46	20,51 (+0,25 %)
Pu-240 (kg/GWa)	17,49	17,43 (-0,34 %)
Pu-241 (kg/GWa)	9,07	9,01 (-0,65 %)
Pu-242 (kg/GWa)	6,55	6,51 (-0,56 %)
Pu _{gesamt} (kg/GWa)	53,56	53,47 (-0,18 %)

Tabelle 17: Vergleich des komplexen und vereinfachten V.S.O.P.-OTTO-100-Reaktormodells

6.5.1 Vereinfachtes Kern–Abbrandmodell des HTR OTTO–100

Im Gegensatz zu den übrigen Reaktoren ist es im Fall des OTTO–100 Reaktors nicht möglich, das vereinfachte Kern–Abbrandmodell auf ein Einheitsvolumen mit allseits reflektierenden Randbedingungen zu beschränken. Die ausschließliche Verwendung eines einzigen Brennelementtyps einer mittleren Anreicherung anstelle des ursprünglichen Zwei–Zonen–Kerns führt zu nicht tolerablen Differenzen beider Reaktormodelle. Selbst die Verwendung von zwei unabhängigen Abbrandmodellen für die beiden, verschieden angereicherten Brennelementtypen des HTR OTTO–100 bei jeweils mehreren Spektrumzonen für die unterschiedlich langen Standzeiten der Brennelemente führt zu großen Abweichungen der entladenen Plutoniumvektoren. Aus diesen Gründen ist es zwingend, ein vereinfachtes Kern–Abbrandmodell zu wählen, das die eigentliche Reaktorgeometrie und Kernzusammensetzung im Wesentlichen beibehält.

Die o. g. Problematik des HTR OTTO–100 bezüglich der Einführung eines vereinfachten Kern–Abbrandmodells liegt in den folgenden Aspekten begründet. Zum einen ist die Diffusionslänge in Graphit – gerade im Hinblick auf die kleine radiale Ausdehnung des Reaktors – recht groß, so daß sich benachbarte Kernbereiche gegenseitig spektral beeinflussen. Das bedeutet für den OTTO–100 Reaktorkern, daß das Spektrum in den höher angereicherten Brennelementen Einfluß nimmt auf dasjenige in den inneren Zonen mit den niedriger angereicherten Brennelementen und umgekehrt. Aus dem gleichen Grund erweist sich die Rückstreuung aus den Reflektorbereichen nicht nur in einem vernachlässigbaren Randbereich des Kerns als spektral mitbestimmend, sondern verändert selbst den Mittelwert des radial schmalen Reaktors maßgeblich. So zeigten mehrere V.S.O.P.–Rechnungen während der Auslegung des vereinfachten OTTO–100 Kern–Abbrandmodells, daß zumindest die Integration des Seitenreflektors sowie die gemeinsame Verwendung beider Anreicherungen notwendig war, um den Plutoniumvektor des Referenzreaktors ausreichend genau reproduzieren zu können.

Eine weitere Eigenart des HTR OTTO–100 ist in den hohen durchschnittlichen Abbränden der Brennelemente zu suchen, die außerdem bei einem axial stark inhomogenen Leistungs-

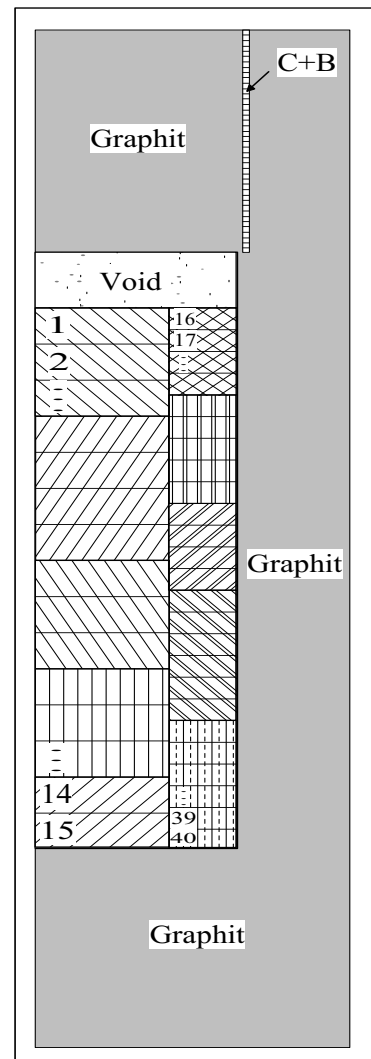


Abbildung 17: Geometrie des OTTO–100 Abbrandmodells

profil entstehen. Sorgt die hohe Leistung im oberen frischen Teil des Kerns noch zu einer schnellen Zunahme des Abbrands der Brennelemente, so sinkt die Leistung und damit der integrale Neutronenfluß im unteren Teil des Kerns um mehr als eine Größenordnung ab. Dadurch ergibt sich ein geändertes zeitliches Aufbauverhalten der Schwermetalle und Spaltprodukte in den Brennelementen im Vergleich zu Reaktorkernen, bei denen frische und abgebrannte Brennelemente benachbart eingesetzt und damit einem gemittelten, annähernd zeitlich konstanten Fluß ausgesetzt sind. Deshalb ist die axiale Unterteilung des Kerns in unterschiedliche Spektrumzonen für unterschiedlich große Brennelementstandzeiten sowohl in der komplexen HTR OTTO–100 Referenzreaktorsimulation als auch im vereinfachten Kern–Abbrandmodell unumgänglich.

Abbildung 17 zeigt das resultierende HTR OTTO–100 Kern–Abbrandmodell. Alle typischen Merkmale der komplexen Referenzreaktorsimulation finden sich dort wieder. Die Reflektorbereiche sind übernommen, genauso wie der Bereich für das Abschaltssystem (**C** + **B**). Die vormals fünf Fließkanäle mit Konus sind zu zwei linearen Fließkanälen zusammengefaßt, einer für jeden Brennelementanreicherungstyp. Die Anzahl der batches jedes Kanals entspricht dem Mittelwert über die integrierten Einzelkanäle, was zu einer leicht unterschiedlichen durchschnittlichen Standzeit bei den entladenen Brennelementen führt (siehe Tabelle 17). Die V.S.O.P.–batch–Numerierung beider Fließkanäle kann der Abbildung ebenso entnommen werden wie die durch unterschiedliche Schraffierung dargestellten Kern–Spektrumzonen. Das vereinfachte Kern–Abbrandmodell wird auf den mittleren Abbrand der gesamten Entladecharge des Referenzreaktors geeicht.

Laut Tabelle 17 ergeben sich erstaunlich geringe Abweichungen für die durchschnittliche Leistungsdichte und die Abbrandvarianzen der einzelnen Kanäle. Die Differenzen für den Entlade–Plutoniumvektor zwischen komplexer Referenzreaktorsimulation und vereinfachtem Abbrandmodell liegen für jedes Isotop unter einem Prozent.

6.6 Gültigkeits– und Einsatzbereich der Kern–Abbrandmodelle

In den vorherigen fünf Abschnitten wurden für jeden Referenzreaktor korrespondierende Kern–Abbrandmodelle entwickelt, die bei gleichem Zielabbrand der Entladecharge möglichst gute Übereinstimmungen bzgl. des kompletten Uran– und Aktinidenentladevektors mit den komplexen Referenzreaktorsimulationen besitzen sollten.

Je nach Reaktorkonzept konnten hierbei unterschiedlich ausgeprägte Vereinfachungen in der Modellierung des Kerns und der Beladeoperationen erzielt werden. Die Vereinfachungen dienen sämtlich der Vorbereitung für die folgenden Berechnungen von Kernlebensgeschichten und Brennstoffkreislaufstudien, die auf alleinigen Basis der komplexen Referenzreaktormodelle nicht praktikabel gewesen wären.

Die Güte der Kern–Abbrandmodelle bezüglich des Aktinidenaufbauverhaltens in den BE wurde anhand der Übereinstimmung des Pu–Entladevektors von komplexer Referenzreaktorsimulation und korrespondierendem Kern–Abbrandmodell überprüft. Die Überprüfung anhand des Pu–Vektors ist vor dem Hintergrund von Toxizitäts– und Proliferationsfragen sinnvoll, da Plutonium das signifikanteste Transuran in der Entladecharge ist. Weiterhin hängt die Berechnung des Aufbauverhaltens aller nachfolgenden höheren Aktiniden entscheidend von der Güte des zuvor berechneten Pu–Aufbauvektors ab.

Im allgemeinen ergeben sich Differenzen zwischen der Entlademasse von Gesamt–Plutonium sowie der Pu–Isotope von nicht mehr als 1%. Vereinzelt ist — besonders beim höchsten Pu–Isotop (Pu–242) — die Abweichung größer, was hauptsächlich bei geringen Entladeabbränden beobachtet wird²⁴. Insgesamt bilden die Kern–Abbrandmodelle den Pu–Aufbau der komplexeren Referenzreaktormodelle gut ab. Sie werden somit in der folgenden Untersuchung zum Aktinidenaufbau in den thermischen Reaktorkonzepten als Simulationswerkzeug eingesetzt.

Es darf jedoch nicht vergessen werden, daß bei jedweder Mittelwertbildung unumgänglich Informationen verloren gehen. Ferner sei an die komplexe Zusammensetzung der Entladecharge in den realen Reaktoren erinnert, die zumeist aus BE stark unterschiedlicher Lebensgeschichten gebildet wird. Schließlich sind auch die jeder nuklearen Simulation zugrundeliegenden Wirkungsquerschnittsbibliotheken dynamischen Verbesserungen (besonders im Resonanz– und Aktinidenbereich) unterworfen, so daß hierdurch eine weitere Ungewißheit für das simulierte Aktinidenaufbauverhalten bestehen bleibt. Kern–Abbrandmodelle können somit lediglich eine globale und damit simplifizierende Aussage für das Geschehen in einem Reaktorkern liefern.

²⁴Die Verwendung eines mittleren Abbrandwertes im Kernabbrandmodell im Vergleich zu der teils ausgeprägten Abbrandvarianz innerhalb der Entladecharge der komplexen Reaktorsimulation spielt hier auch eine Rolle.

7 Plutoniumaufbau in den LEU–Brennstoffzyklen

In diesem Kapitel wird detailliert der Plutoniumaufbau in den nicht oder niedrig angereicherten Uran–Brennstoffkreisläufen (*LEU = Low Enriched Uranium*) der fünf Referenzreaktoren untersucht. In diesem Brennstoffzyklus führt die Neutronenabsorption im Uran–238 zum sukzessiven Aufbau der Plutoniumisotope und anderen Transuranen. Der LEU–Zyklus ist für jeden der hier genannten Reaktoren der Standardzyklus. Aus diesem Grund erfolgt die allgemeine Diskussion des Plutonium– und Aktinidenaufbauverhaltens in den verschiedenen Reaktorkonzepten an dieser Stelle.

Zuerst wird anhand der nuklearen Prozeßketten der sukzessive Aufbau der Plutoniumisotope und der höheren Aktiniden erläutert. Während der Aufbauweg der höheren Plutoniumisotope und deren Folgeprodukte verhältnismäßig gradlinig erfolgt, muß das weit komplexere Bildungsverhalten des Pu–238 genauer untersucht werden.

Anschließend werden im zweiten Teil des Kapitels die für den Plutoniumaufbau bedeutenden nuklearen Einflußgrößen besprochen. Die sich im Standard–LEU–Zyklus ergebenden Plutonium– und Aktinideninventare der Reaktorkonzepte werden einander gegenübergestellt. Konkrete Aussagen über die spezifischen Eigenschaften jedes Konzeptes bzgl. der Plutoniumerzeugung und *in situ*²⁵ Nutzung werden getroffen, und die typischen *Pu–Fingerabdrücke* für die Entladechargen der Reaktorkonzepte werden abgeleitet.

Im dritten Teil wird die Frage untersucht, ob der Plutoniumvektor auch im Verlauf des Abbrandvorganges – und damit nicht nur am Ende der üblichen BE–Standzeit im Kern – ein reaktorspezifisches Verhalten zeigt.

Im abschließenden vierten Abschnitt werden die wesentlichen Resultate dieses Kapitels zusammengestellt und bewertet.

7.1 Aufbauverhalten der Plutoniumisotope

Die genaue Kenntnis der wesentlichen Plutonium– und Aktiniden–Aufbaupfade und deren Mutternuklide ist erforderlich, um das zeitliche Aufbauverhalten der Transurane im Umfeld des Kerngeschehens verstehen zu können.

Abbildung 18 zeigt die maßgebenden Nuklidketten für den Aufbau der Plutoniumisotope und der wichtigsten Aktiniden (*Minor Actinides = MA*), sortiert nach Ordnungs– und Massenzahl der entsprechenden Isotope. Die drei bedeutenden Spaltisotope Uran–235, Plutonium–239 und –241 sind durch eine stärkere Umrandung hervorgehoben. Der für Plutonium–239 und die höheren Plutoniumisotope dominante Aufbaupfad ist gesondert gekennzeichnet.

²⁵*in situ* Nutzung bedeutet in diesem Zusammenhang die direkte Nutzung neu erzeugter Spaltisotope vor Ort, d. h. im Kern des Reaktors, ohne zwischenzeitliche Aufarbeitung und Rezyklierung in entsprechenden externen nuklearen Einrichtungen.

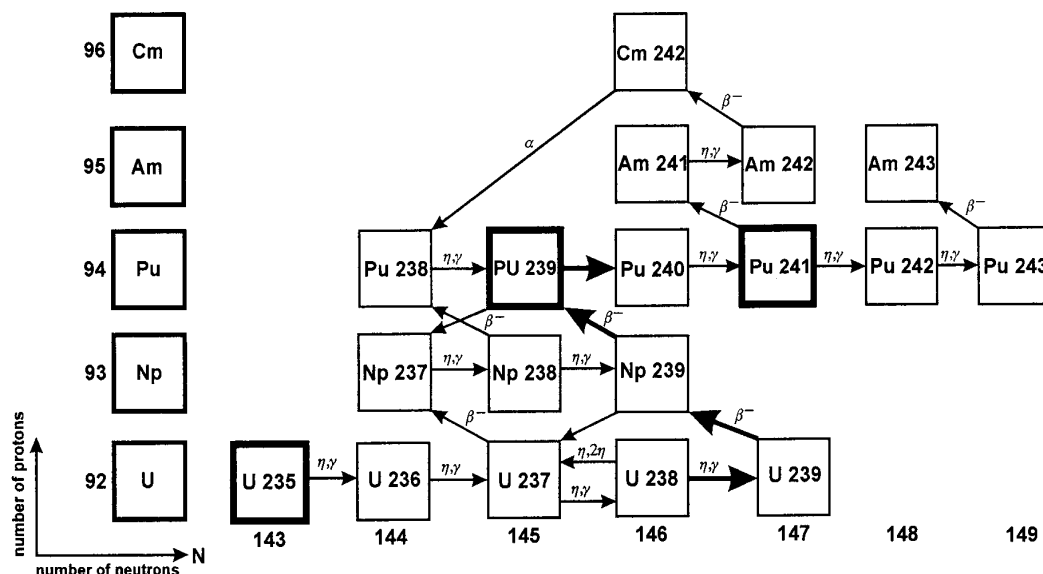


Abbildung 18: Die wichtigsten nuklearen Prozeßketten für den Pu- und MA-Aufbau

Grundsätzlich sind beim Plutoniumaufbau zwei Pfade zu unterscheiden:

- Der erste ist entscheidend für den Aufbau der Plutoniumisotope der Massenzahl 239 und höher. Über den Neutroneneinfang im Uran-238 ergibt sich nach zwei β -Zerfällen über das Neptunium-239 das Plutonium-239. Da Pu-239 einen großen Spaltwirkungsquerschnitt besitzt, dient ein Teil des Pu-239-Inventars der Aufrechterhaltung der Kettenreaktion und verschwindet somit durch Spaltung aus der Bilanz der Transurane. Der andere Teil geht bei Neutroneneinfang in das Plutonium-240 über, einen fast reinen Neutronenabsorber mit großer Halbwertszeit. Weitere Neutroneneinfänge bilden über Plutonium-241 und Plutonium-242 das kurzlebige Plutonium-243, das in das Americium-243 zerfällt. Ein Teil des entstehenden Plutoniums-241 wird in situ gespalten und verschwindet ebenfalls aus der Bilanz der Transurane. Da Plutonium-241 eine Halbwertszeit von 14,4 Jahren besitzt, zerfällt mit steigender Konzentration ein nicht unerheblicher Anteil in das Americium-241, das in der Folge Ausgangspunkt für den Aufbau von Americium-242 und schließlich Curium-242 ist.

Entscheidende Einflußgrößen für die Aufbaurrate der Plutoniumisotope 239–243 und der nachfolgenden Aktiniden sind die Uran-238-Konzentration sowie der am Ort des Brennstoffes vorliegende Neutronenfluß im Energiebereich der Resonanzen und des thermischen Spektrums. Der betreffende spektrale Fluß ist von Reaktorkonzept zu Reaktorkonzept durchaus unterschiedlich. Für den HTR OTTO findet etwa weniger als ein Siebtel der Absorptionen des Uran-238 im *thermischen* Energiebereich statt, beim CANDU beträgt der Absorptionsanteil im Thermischen dagegen mehr als 70 %²⁶.

²⁶Im nächsten Abschnitt (7.3) sind alle für den Plutoniumaufbau relevanten, nuklearen Parameter für

- Das Plutonium–238–Isotop folgt – im Gegensatz zu den oben vorgestellten höheren Plutoniumisotopen – gänzlich anderen Aufbaupfaden. Zahlenmäßig am bedeutendsten, vor allem bei Bilanzierung über die gesamte Abbrandperiode, sind hierbei die ersten zwei der folgenden Aufbaupfade:
 - Bei frisch eingesetzten Brennelementen spielt zunächst die $(n,2n)$ –Reaktion im Uran–238 eine dominante Rolle. Hierbei bildet sich Uran–237 mit einer Halbwertszeit von 6,75 Tagen. Der radioaktive Zerfall des Isotopes führt zu Neptunium–237, dessen weiterer Neutroneneinfang mit anschließendem Zerfall schließlich Pu–238 ergibt. Dieser Pfad stellt am Zyklusanfang die überwiegende Quelle für den Pu–238–Aufbau dar, wird aber relativ schnell durch den folgenden Pfad in seiner Bedeutung abgelöst.
 - Beim Uran–236–Pfad bildet sich mit einiger Verzögerung über Neutroneneinfang im Uran–235 und Uran–236 gleichfalls das Uran–237 und folgt ab dann dem zuvor genannten Teil des Plutonium–238–Aufbaupfades. Schon nach kurzer Zeit stellt dieser Uran–236–Pfad den größten Anteil am Pu–238–Quellterm und liegt über einen Großteil der Reaktorperiode in allen Reaktorkonzepten bei 75 – 95 %. Lediglich bei Reaktoren mit kleinen Zielabbränden (wie beim Magnox) ist der Uran–236–Pfad durch die Verzögerung gegenüber dem Uran–238–Pfad selbst am Zyklusende noch nicht dominierend (siehe Abbildung 19).
 - Ein dritter Pfad führt über das Cm–242, welches sich bei höherem Abbrand mit einer größeren Konzentration aufbaut. Dessen Alpha–Zerfall (Halbwertszeit 162,8 Tage) stellt einen weiteren Quellterm für das Pu–238 dar. Da jedoch das Cm–242 erheblich verzögert und damit nur in einem Reaktor mit vergleichsweise hohem Abbrand merklich aufgebaut wird, spielt diese Quelle für den Aufbau des Pu–238 i. a. nur im letzten Teil der Brennelementstandzeit eine gewisse Rolle. Sein Beitrag liegt für die hier betrachteten Konzepte im LEU–Zyklus im Maximum bei etwa 15 %.
 - Letztlich wird das Plutonium–238 durch $(n,2n)$ –Reaktionen im Plutonium–239 gebildet. Bei steigender Konzentration läuft allerdings vermehrt der Prozeß in umgekehrter Richtung ab (Pu–238– (n,γ) –Pu–239). Dieser vierte Bildungspfad ist jedoch eher unbedeutend wegen des sehr kleinen $(n,2n)$ –Wirkungsquerschnitts des Pu–239. Der entsprechende $(n,2n)$ –Wirkungsquerschnitt des Uran–238 ist beispielsweise mehr als doppelt so groß wie der des Plutonium–239, und als Nuklid mit der weitaus größten Konzentration im LEU–Zyklus ist dessen Reaktionsrate erheblich höher.

Die abbrandabhängige Bedeutung des dominierenden Uran–236–Pfades beim Plutonium–238–Aufbau kann Abbildung 19 entnommen werden. Für alle Reaktoren wird er nach einer jeden Referenzreaktor in tabellierter Form zusammengestellt.

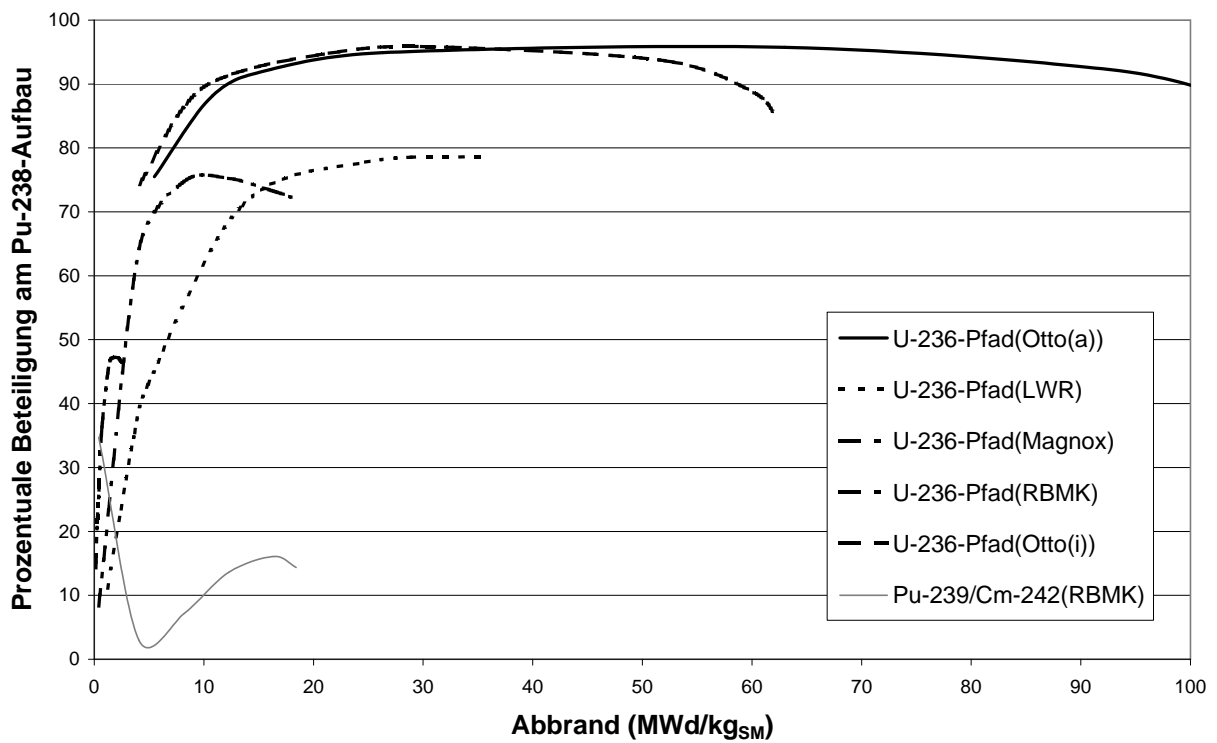


Abbildung 19: Zeitliche Wichtung des U-236-Pfades für den Pu-238-Aufbau in verschiedenen Reaktoren

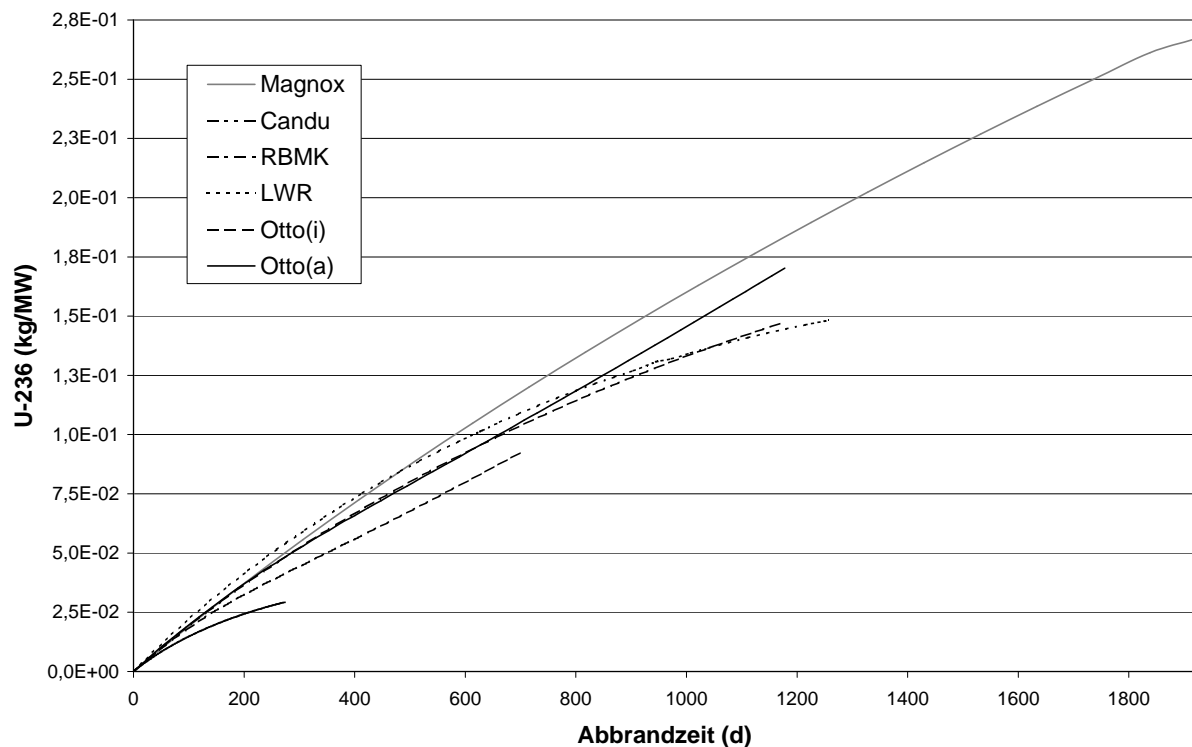


Abbildung 20: Leistungsbezogener Uran-236-Aufbau

kurzen Einbrennphase zum wichtigsten Pu-238–Quellterm. Am Anfang spielt die (n,2n)–Reaktion im Uran-238 die größte Rolle und sorgt bei kleinen Abbränden für die zeitliche Verzögerung des relativen Uran-236–Pfad–Anteils. Mittels der dünn ausgezogenen Kurve in der linken unteren Ecke von Abbildung 19 ist für den RBMK als Fallbeispiel der Summenanteil der beiden untergeordneten Pfade (Cm-242 und (n,2n)–Reaktion im Pu-239) dargestellt. Er liegt im lokalen Maximum für den größten Teil des Zyklus bei unter 20 %.

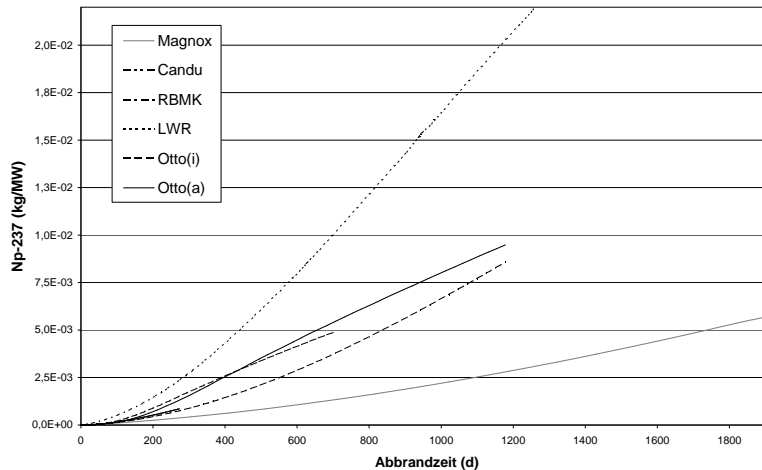


Abbildung 21: Leistungsbezogener Np-237–Aufbau

Das komplizierte Zusammenspiel von Wirkungsquerschnitten, Neutronenflüssen und Spektrumsverläufen sowie unterschiedlichen Standzeiten der Brennelemente führt dazu, daß die Bildungsrate eines Nuklides innerhalb einer Aufbaukette um so schwieriger zu deuten ist, je mehr nukleare Prozesse darin verwickelt sind.

Während sich der Aufbau der Plutonium-239– und Folge–Isotope gut als überwiegende Funktion von Abbrand, Neutronenspektrum und Flußverlauf verstehen läßt, ist der am Ende einer mehrstufigen verzweigten Kette liegende Pu-238–Aufbau nicht trivial einsichtig. Zwar verläuft der Aufbau von Uran-236 im ersten Teil der Reaktorperiode bei allen Konzepten sehr ähnlich (siehe Abbildung 20), doch schon bei dem nachfolgenden Nuklid der Kette, dem Neptunium-237, beginnt eine deutliche Differenzierung (siehe Abb.21).

Durch den im Vergleich zu den übrigen Konzepten hohen schnellen und epithermischen Fluß im LWR vollzieht sich bei diesem Reaktortyp der Aufbau des Neptunium-237 erheblich rascher als bei den übrigen Reaktoren. Das liegt daran, daß der maßgebliche (n,γ)–Prozeß im Uran-236 größtenteils im nicht–thermischen Energiebereich abläuft. Beim Magnox bietet sich aufgrund der sehr kleinen Leistungsdichten und dem geringem Neutronenfluß ein entgegengesetztes Bild mit den vergleichsweise geringsten Aufbauraten des Neptuniums-237.

Unter Berücksichtigung o. g. Aspekte sind die im folgenden für jedes Reaktorkonzept dargestellten Aufbauraten des Plutonium-238 zumindest in der Tendenz verständlich. Abbildung 22 weist den LWR als Reaktor mit dem größten leistungsbezogenen Plutonium-238 Aufbau aus. Der Magnox–Reaktor läßt den erörterten schwachen Anstieg des Plutonium-238 erkennen. Die Aufbauraten des Pu-238 für die übrigen Reaktoren liegen zwischen

diesen beiden Fällen, da auch die betreffenden nuklearen Parameter (siehe Tabellen 18 bis 21 in Abschnitt 7.3) für den Pu–238–Aufbau zwischen den eingrenzenden Werten der LWR und Magnox–Reaktoren liegen. Im Anhang A finden sich für jedes Reaktorkonzept die Diagramme über den zeitlichen Aufbau aller übrigen wichtigen Nuklide, deren ausführliche Diskussion an dieser Stelle zu weit führen würde.

Zusammenfassend bleibt festzuhalten, daß der Aufbau der einzelnen Plutoniumisotope nach unterschiedlichen Mechanismen erfolgt und stark mit den für die Reaktorkonzepte spezifischen nuklearen Größen verknüpft ist. Obwohl hier ausnahmslos thermische Konzepte vorgestellt werden, deutet sich bereits an, daß die neutro-

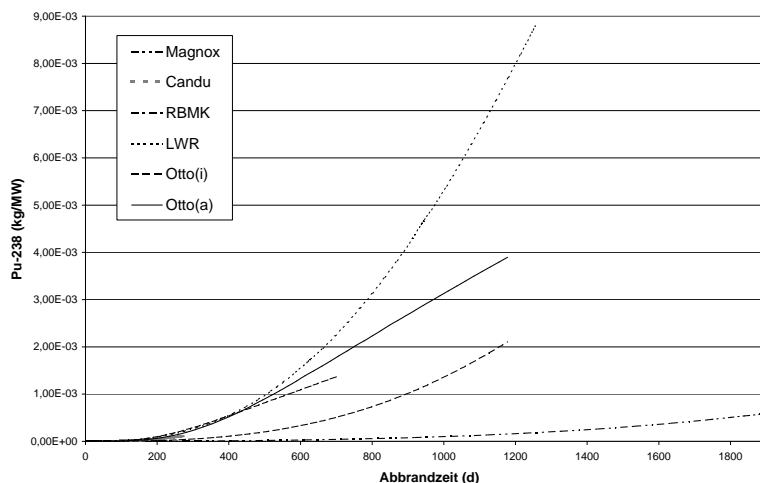


Abbildung 22: Leistungsbezogener Pu–238–Aufbau

nischen Unterschiede zwischen den Konzepten ausgeprägt genug sein könnten, um die Konzepte anhand ihrer spezifischen Isotopenaufbauzeiten identifizieren zu können. Ob hierzu lediglich die Beschränkung auf die fünf Freiheitsgrade des Plutoniumisotopenvektors (Pu–238 bis Pu–242) ausreicht und inwieweit sich der totale Plutoniumaufbau bei den Reaktoren unterscheidet, wird im Folgenden untersucht.

7.2 Analyse des Plutoniuminventars in den Entladechargen

Für das Plutoniuminventar im Standard–LEU–Zyklus und dessen Isotopenzusammensetzung wird ein differenziertes Bild für die fünf Referenzreaktoren erwartet. Die Gründe dafür liegen zum einen in den verschachtelten Aufbaupfaden der Plutoniumisotope, die im vorherigen Abschnitt diskutiert wurden. Im Umfeld dieser Aufbaupfade spielen andererseits eine ganze Reihe von weiteren neutronischen Einflußgrößen eine Rolle. Sie unterscheiden sich von Reaktor zu Reaktor teils erheblich:

- Jeder Reaktor besitzt sein – von der Geometrie der Brennelemente und den Eigenschaften des Moderators abhängiges – typisches Neutronenspektrum. Die jeweilige Faltung dieser Spektren mit den Absorptionswirkungsquerschnitts–Verläufen der für die Plutoniumproduktion relevanten Isotope führt in den einzelnen Referenzreaktoren zu unterschiedlichen Nuklidenaufbauzeiten.

- Die nukleare Resonanzstruktur der Pu–Isotope und deren unterschiedliche Selbstabschirmung verstärken hierbei zusätzlich die Sensibilität des Plutoniumaufbaus auf Spektrumsverschiebungen.
- Die in der Zyklusmitte um mehr als eine Größenordnung voneinander verschiedenen Neutronenflüsse der Referenzreaktoren sowie die unterschiedlichen Verhältnisse vom schnellen und epithermischen Fluß zum thermischen Fluß sind ebenfalls dominante Parameter für den allgemeinen Isotopenaufbau (siehe Tabelle 18).
- Die unterschiedliche Brennstofftemperatur nimmt auf die Resonanzabsorption und den Schwerpunkt des Spektrums merklichen Einfluß.
- Die unterschiedliche Anreicherung des Uranbrennstoffs in den frischen Brennelementen ist der jeweilige Ausgangspunkt für die nachfolgende Abbrandgeschichte. Sie bestimmt im Zusammenhang mit der geforderten thermischen Leistung sowohl die Zyklusgesamtlänge als auch die Neutronenflußhöhe.
- Schließlich bedingen die verschiedenen Standzeiten der Brennelemente (beispielsweise Faktor 7 zwischen Magnox– und CANDU–Reaktor) wie auch die starke zeitliche Abhängigkeit des Neutronenflusses ein unterschiedliches und damit reaktorspezifisches Plutoniumaufbauverhalten²⁷.

Die Vielzahl von Einflußgrößen für den Aufbau der einzelnen Nuklide in einem Reaktor können nur bedingt durch direkte und anschauliche Kausalitäten beschrieben werden. Alle Faktoren sind miteinander verknüpft und entziehen sich somit einer einfachen Entschlüsselung. Jedoch kann durch einen Vergleich der wichtigsten Kernparameter der Unterschied der Reaktorkonzepte verdeutlicht werden.

Die Tabellen 18 bis 21 zeigen die nuklearen Daten für den Gleichgewichtszyklus der Referenzreaktoren. Hier sind für die Zyklusmitte (*moc = middle of cycle*) jeweils kerngemittelte Neutronenflüsse, mikroskopische Wirkungsquerschnitte (WQS) und die daraus resultierenden prozentualen Absorptionen und Spaltungen in den Leitnukliden zusammengestellt. Alle Diskussionen in diesem Kapitel bzgl. des Plutoniumaufbaus nehmen von Fall zu Fall Bezug auf die Daten in diesen Tabellen.

Ein Blick auf die spezifischen Unterschiede der Referenzreaktoren bzgl. Neutronenfluß, mikroskopischem Wirkungsquerschnitt und Neutronenbilanz läßt bereits ein reaktorspezifisches Nuklidaufbauverhalten erwarten²⁸. Für die im Zusammenhang mit dem Plutoni-

²⁷Besonders stark ist diese zeitliche Abhängigkeit beim HTR OTTO ausgeprägt, dessen Flußhöhe aus Sicht einer den Kern durchwandernden Brennelementkugel zum Ende des Zyklus hin um mehr als eine Größenordnung abfällt.

²⁸Man beachte beispielsweise das deutlich unterschiedliche Verhältnis von thermischen zu schnellem Fluß für den LWR und den CANDU (Tabelle 18).

Reaktorkonzept (moc)	Magnox	CANDU	RBMK	LWR	OTTO
$\Phi_{th} (cm^{-2}s^{-1})$	1,0E+13	2,3E+14	6,7E+13	4,9E+13	7,0E+13
$\Phi_{schnell} (cm^{-2}s^{-1})$	8,3E+12	8,0E+13	5,9E+13	2,6E+14	7,9E+13
$V_{\Phi_{th}/\Phi_{schnell}}$	1,2	2,9	1,14	0,19	0,89

Tabelle 18: Verhältnis von thermischem zu schnellem Fluß (kerngemittelt, moc)

Reaktorkonzept (moc)	Magnox σ_a (barn)	CANDU σ_a (barn)	RBMK σ_a (barn)	LWR σ_a (barn)	OTTO σ_a (barn)
Nuklid:					
Uran–235	217	208	173	241	276
Uran–236	1,9	1,7	1,5	2,1	2,4
Uran–238	1,0	0,9	0,8	1,1	1,2
Np–237	85,8	67,9	77,5	147	135
Pu–239	638	443	630	835	1227
Pu–240	360	207	345	872	735
Pu–241	631	509	550	725	992
Pu–242	7,4	6,6	6,0	9,3	9,9

Tabelle 19: Kerngemittelte mikroskopische thermische Absorptions–WQS (moc)

umaufbau wichtigen Nuklide ergeben sich im allgemeinen deutlich verschiedene Absorptionswirkungsquerschnitte bzw. Uran–238–Resonanzintegrale.

Die thermischen und schnellen Neutronenflüsse aus Tabelle 18 werden gefaltet mit den mikroskopischen thermischen und schnellen Wirkungsquerschnitten der Tabellen 19 und 20 und führen – unter Einbeziehung der jeweiligen kerngemittelten Nuklidkonzentrationen – zu deutlich unterschiedlichen Neutronenbilanzen (siehe Tabelle 21).

Es stellt sich nun die Frage, auf welche Weise die Nuklidinventare der Referenzreaktoren durch die o. g. reaktorspezifischen Parameter geprägt werden.

Einhergehend mit den unterschiedlichen Kern– und Brennelementauslegungen benötigen die Reaktoren für die Umwandlung von beispielsweise einem Gigawattjahr thermischer Energie unterschiedliche Mengen eingesetzten Schwermetalls. Direkt offensichtlich ist beispielsweise, daß der HTR OTTO bei den vergleichsweise hohen Abbränden, also gelieferter Arbeit pro Kilogramm eingesetzten Schwermetalls, eine sehr vorteilhafte Brennstoffnut-

Reaktorkonzept (moc)	Magnox σ_a (barn)	CANDU σ_a (barn)	RBMK σ_a (barn)	LWR σ_a (barn)	OTTO σ_a (barn)
Nuklid:					
Uran–235	17,5	22,4	17,7	12,3	19,0
Uran–236	16,8	23,1	16,9	10,3	17,5
Uran–238	0,7	0,9	1,1	0,9	5,5
Np–237	18,7	25,1	19,0	13,1	20,3
Pu–239	20,3	26,6	20,5	14,2	22,0
Pu–240	9,0	11,4	9,1	6,4	9,6
Pu–241	35,2	48,0	35,7	23,8	38,0
Pu–242	58,1	83,1	58,5	38,2	60,9
U–238–Res.–Integral	7,7	9,0	15,5	18,3	99,3

Tabelle 20: Kerngemittelte mikroskopische schnelle Absorptions–WQS (moc)

zung bietet. Abbildung 23 zeigt den Vergleich der netto–entladenen Plutonium– und MA–Inventare (MA = Minore Aktiniden) bezogen auf ein thermisches Gigawattjahr geleisteter Reaktorarbeit. Der HTR OTTO liegt mit knapp einem Fünftel des Magnox–Pu–Inventars pro Gigawattjahr am günstigsten.

Zum Teil wird jedoch der erreichte in situ Verbrauch des Plutoniums – und damit die Reduzierung des Pu–Gesamtinventars – durch den verstärkten Aufbau der höheren Aktiniden erkauft. Diese bilden sich zwangsläufig durch weitere Absorptionen in den Plutoniumisotopen und deren nachfolgenden radioaktiven Zerfallsprodukten. Aus diesem Grund ist links neben den Plutoniuminventaren in Abbildung 23 das Aktinideninventar der Entladecharge aufgezeigt.

Allgemein gilt, daß mit steigendem Abbrand das Aktinideninventar anwächst. Der LWR zeigt hierbei allerdings eine hohe Aktinidenmenge im Vergleich zum HTR OTTO, obwohl letzterer fast den doppelten Abbrand ausweist. Verursacht wird dies durch das große Verhältnis von schnellem zu thermischem Fluß beim LWR, das zu einer hohen Bildungsrate von Neptunium–237 bzw. — über eine Reihe von N–Absorptionen — von Plutonium–243 führt. Ersteres stellt mit etwa zwei Dritteln den größten Anteil am MA–Inventar des LWR, letzteres ist das Ausgangsnuklid für viele Americium– und Curiumisotope.

Im Hinblick auf eine gewünschte Plutoniumminimierung in der Entladecharge für den Standard–LEU–Brennstoffzyklus ergibt sich eine Art Rangfolge der betrachteten Reaktorkonzepte. Die Konzepte nutzen unterschiedlich stark Plutonium in situ als Spaltstoff und wandeln es damit zum Teil direkt in Spaltprodukte um. Eine hohe in situ Nutzung bietet den Vorteil, daß sich die Mengen an Plutonium und Aktiniden, die für die Aufar-

Reaktorkonzept (moc)	Magnox	CANDU	RBMK	LWR	OTTO
Absorptionen (%) in:					
Uran-235	34,9	27,3	30,9	28,1	40,0
Uran-236	0,1	0,1	0,3	0,1	0,5
Uran-238	38,8	35,7	24,8	26,3	20,7
Pu-239	15,9	21,9	18,2	18,8	18,0
Pu-240	1,3	2,4	3,7	4,6	4,7
Pu-241	0,3	1,2	2,2	3,2	3,4
Pu-242	–	–	–	0,2	0,1
Pu-ges	17,5	25,5	24,1	26,8	26,2
Spaltstoffen	51,1	50,3	51,3	50,2	61,4
Xenon	1,1	2,5	2,0	2,0	2,7
Schwermetallen	91,1	88,6	80,4	82,9	87,9
Spaltprodukten + Neutr.-Gift	2,6	5,5	5,9	12,0	8,3
Moderator + Strukturmaterial	6,3	5,8	13,8	5,1	3,8
Spaltungen (%) in:					
Uran-235	70,3	58,6	63,7	56,6	70,4
Pu-239	25,0	38,0	28,8	30,2	23,8
Pu-241	0,4	2,2	4,2	5,9	5,4
MA + Uran-238	4,3	1,2	3,3	7,2	0,3
Neutronenproduktion (%) in:					
Uran-235	62,1	54,5	59,8	52,6	66,7
Uran-238	4,7	1,3	3,5	7,5	0,3
Pu-239	32,6	41,7	31,9	33,0	26,8
Pu-241	0,6	2,5	4,7	6,6	6,2

Tabelle 21: Kerngemittelte Neutronenbilanzen der Referenzreaktoren (moc)

beitung bzw. Endlagerung anfallen, deutlich verringern. Damit wird parallel der Aufwand für eine externe Nachbehandlung des entladenen Brennstoffs reduziert, was zu Kosten- und Umweltvorteilen führt.

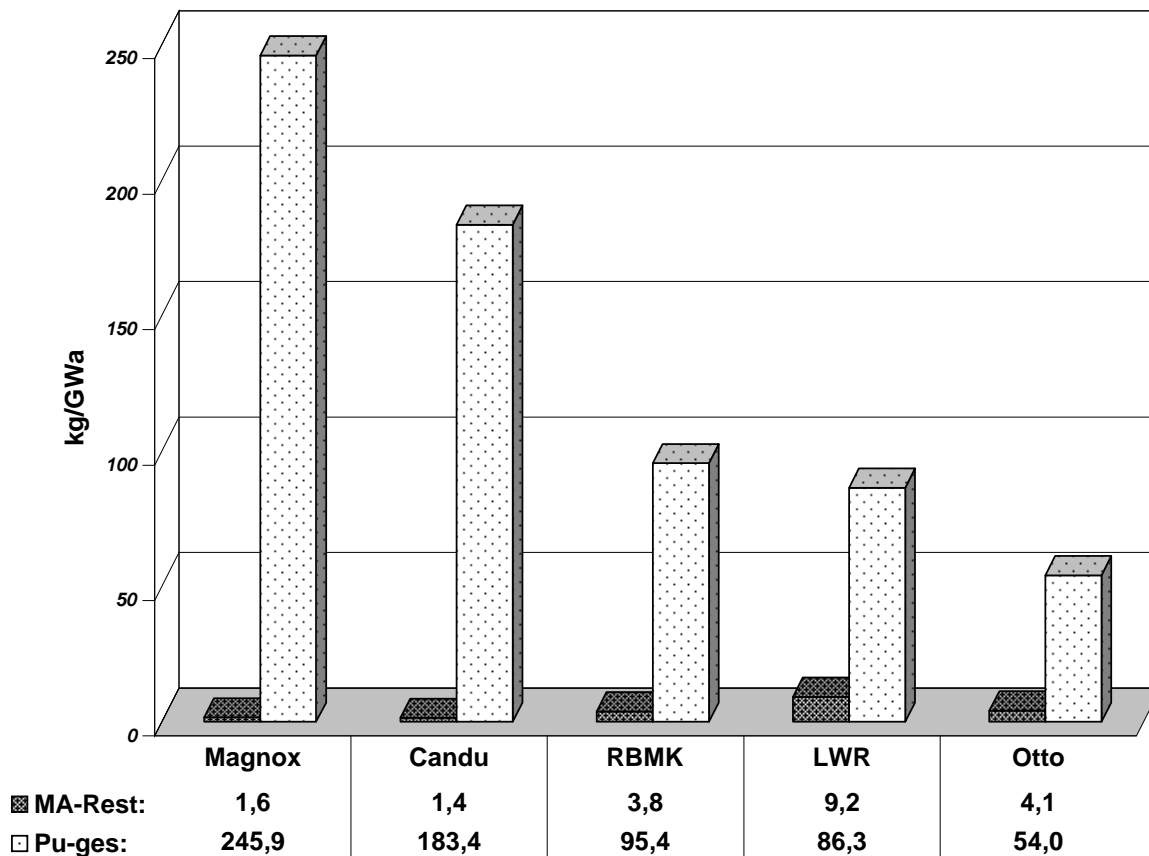


Abbildung 23: Plutonium- und MA-Netto-Erzeugung pro thermisches Gigawattjahr

Abbildung 24 zeigt den prozentualen Anteil aller insgesamt im Laufe eines Brennelementlebens erzeugten Transurane (TU)²⁹, die im Reaktor durch Spaltung in situ umgesetzt werden. Allgemein gilt auch hier, daß mit steigendem Zielabbrand die spaltbaren Plutoniumisotope vermehrt zur Aufrechterhaltung der Kettenreaktion im Reaktorkern genutzt werden³⁰.

Abbildung 25 schließlich zeigt den sogenannten Plutonium-Fingerabdruck der Entladecharge, also die für den jeweiligen Reaktor charakteristischen prozentualen Plutoniumisotopenanteile, bezogen auf das Gesamtplutoniuminventar.

Erwartungsgemäß ist mit steigendem Entladeabbrand ein immer stärker werdender Anteil der höheren Plutoniumisotope zu beobachten, da sie sich verzögert aber sukzessive über die leichteren Plutoniumisotope aufbauen. Ausnahme ist hierbei jedoch das Plutonium-238, dessen Aufbauweg sich von dem seiner Schwesterisotope grundsätzlich unterscheidet (siehe Kapitel 7.1). So nimmt von links nach rechts in der Abbildung, angefangen vom Magnox bis hin zum HTR OTTO, die relative Menge der Plutoniumisotope 240–242 i. a.

²⁹ Transurane sind alle Isotope höherer Ordnungszahl als die des Uran (=92). In diesem Fall alle *Minoren Aktiniden* und die Plutoniumisotope.

³⁰ Der Anteil der *Minoren Aktiniden* an den hier beschriebenen Spaltungen ist im Vergleich zu den Plutoniumisotopen 239 und 241 sehr gering, aber mitbilanziert.

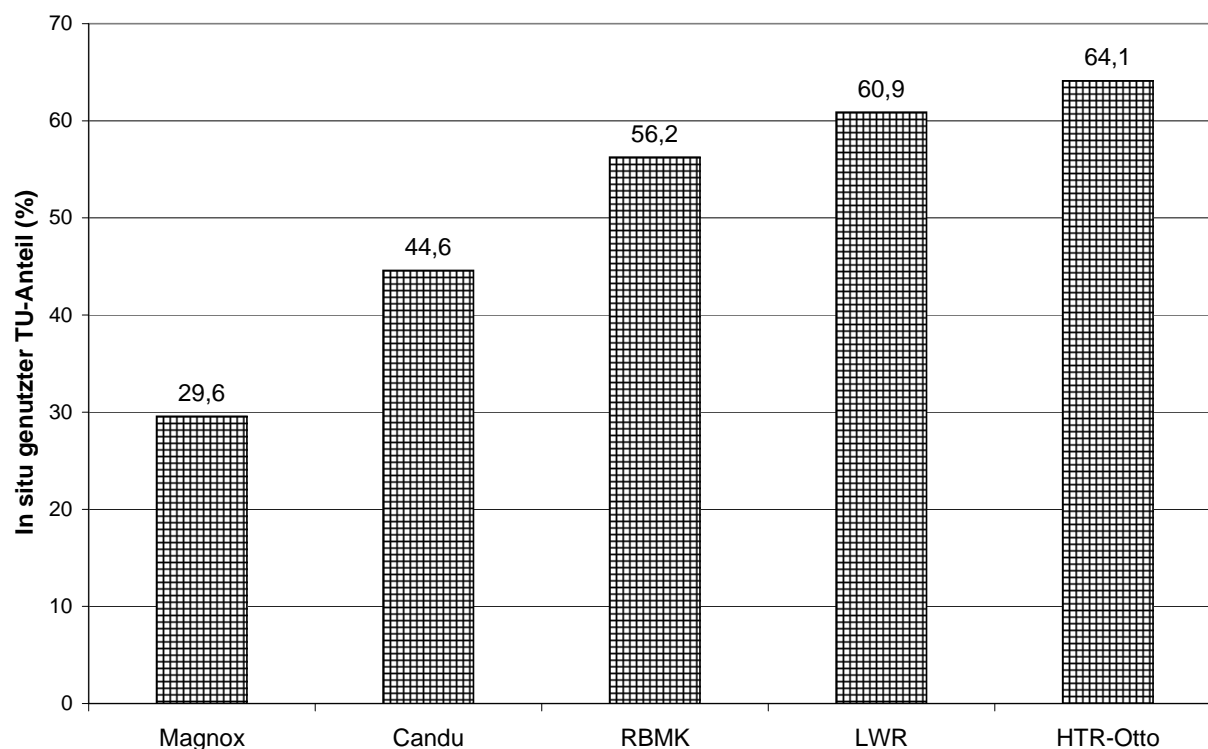


Abbildung 24: In situ genutzter TU–Anteil beim Aufbau von Plutonium und den MA (LEU)

stetig zu.

Annähernd das Gleiche gilt auch für das sich bereits zu Beginn eines Zyklus bildende Plutonium–239. Dessen Konzentration nimmt jedoch im Fall des HTR OTTO bei hohen Abbränden bereits wieder ab, verursacht durch den zunehmenden in situ Verbrauch durch Spaltung und Absorption am Ende des Zyklus³¹.

Bezüglich Aufarbeitungs– und Endlagerfragen ist eine umfassendere Betrachtung nötig, die über die isolierte Bilanzierung und Zusammensetzung des entladenen Plutoniums hinausgehen muß. Sie erfordert eine Toxizitätsberechnung des gesamten entladenen Isotopengemisches einschließlich der Aktiniden und Spaltprodukte. Diese Toxizitätswerte müssen über einen hinsichtlich der Endlagerproblematik angemessenen Zeitraum verfolgt und bewertet werden, was jedoch nicht Gegenstand dieser Arbeit ist.

Plutonium ist nicht nur durch seine hohe Toxizität problematisch für die Aufarbeitung und die Endlagerung, sondern aufgrund seiner Spalteigenschaften auch proliferationsgefährdend. Die Proliferationsgefahr entladenen Brennstoffs geht einher mit der Menge des anfallenden Plutoniums einerseits wie auch mit dem Anteil spaltbarer Plutoniumisotope andererseits. Der Anteil spaltbarer Plutoniumisotope liegt bei über 80 % beim Magnox und bei knapp 54 % beim HTR OTTO – ein weiterer Vorteil höheren Abbrands

³¹Im Anhang A ist das zeitliche Aufbauverhalten aller Plutoniumisotope und anderer wichtiger Leitnuklide im einzelnen wiedergegeben.

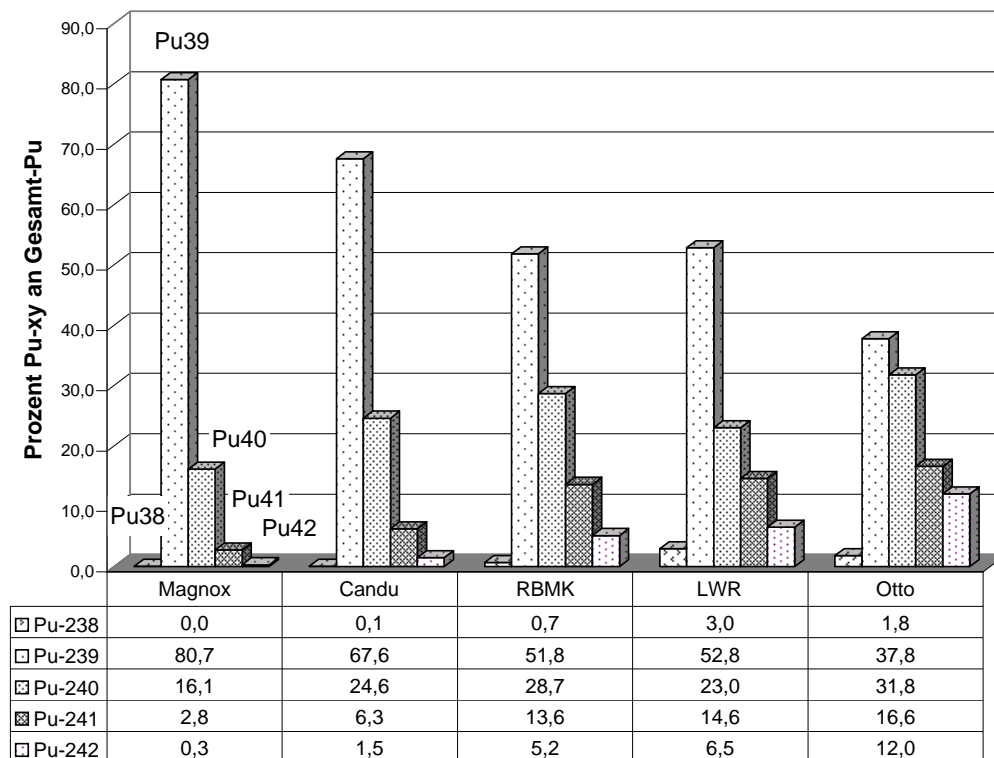


Abbildung 25: Plutoniumvektor in den Entladechargen der Referenzreaktoren (LEU)

der Entladecharge (Abbildung 25).

Auffällig in Abbildung 25 ist schließlich der in der Tat deutlich verschiedene Plutonium–Fingerabdruck, der sich für die einzelnen Reaktor–Entladechargen ergibt. Anhand dieses Abdrucks der Entladecharge ist in Abbildung 25 eindeutig der Herkunftsreaktor identifizierbar.

Die Identifizierung eines Reaktortyps anhand dessen Pu–Fingerabdrucks der Entladecharge ist nach Stand der bisherigen Untersuchungen jedoch nur gültig für entladene Brennelemente, deren Standzeit im Reaktorkern exakt der Vorgabe für diesen Referenzreaktor entspricht und die nicht vorzeitig entladen werden. Die Frage stellt sich nun, ob diese Aussage durch die in jedem Reaktor vorliegende Abbrandstreuung (siehe Kapitel 4.2.1 und 4.3.1) nicht nur – wie hier geschehen – für die gemittelte Entladecharge, sondern auch für Einzelelemente aufrecht erhalten werden kann.

Schließlich ist es aufschlußreich zu untersuchen, ob eine Zuordnung zum Herkunftsreaktor auch für vorzeitig entladene Brennelemente anhand des Plutoniumvektors möglich ist. Dazu ist es erforderlich, den zeitlichen Aufbau der Plutonium– und Aktinidenisotope innerhalb der Reaktorkerne zu betrachten.

7.3 Abbrandabhängigkeit reaktorspezifischer Pu-Vektoren

In den vorherigen Abschnitten wurde bereits festgestellt, daß für jedes der betrachteten Reaktorkonzepte ein charakteristischer Plutonium-Fingerabdruck in der Entladecharge existiert, anhand dessen man den Reaktortyp eindeutig zuordnen kann.

Strenggenommen gilt dieser Fingerabdruck nur für die hier behandelten Referenzreaktoren unter den hier angenommenen Randbedingungen. Jeder der Referenzreaktoren ist jedoch ein typischer Vertreter seiner Reaktorlinie. Er unterscheidet sich von seinen Konzeptbrüdern hauptsächlich durch eine gewisse Variation von BE-Anreicherung, BE-Standzeiten und ähnlichen betriebsdynamischen Parametern.

Als Beispiel sei der LWR genannt, dessen BE hier mit einer Anreicherung von 4 % angesetzt werden. In früheren Jahren wurde die Mehrheit der Leichtwasser-Reaktoren mit BE-Anreicherungen um 3,3 % betrieben, und heutzutage sind durchaus mehr als 4 % BE-Anreicherung für frische Brennelemente repräsentativ.

Diese gewisse Variabilität liegt auch bei den anderen Reaktorkonzepten vor und muß stets berücksichtigt werden³². Für die Konzeptbrüder der in dieser Arbeit diskutierten Referenzreaktoren muß folglich eine entsprechende Varianz der berechneten Plutoniumvektoren erwartet werden. Diese Varianz sollte jedoch eng begrenzt bleiben, so daß die Verwandtschaft zwischen Pu-Vektor und entsprechendem Reaktorkonzept erkennbar bleibt.

Ein weiteres Problem ist, daß je nach Reaktorkonzept Brennelemente z. T. bereits deutlich vor der üblichen Standzeit aus dem Reaktor entnommen werden können. Geeignet dafür sind vor allem die kontinuierlich beladenen Systeme mit Zugriffsmöglichkeiten unter Lastbedingungen, also im Besonderen der RBMK- und der CANDU-Reaktor. Sie wurden zum Teil gerade wegen dieser Eigenschaft in früheren Zeiten für die Plutoniumproduktion mit hohem Pu-239-Anteil verwendet, der sich lediglich bei kleinen Abbränden einstellt.

Weniger geeignet sind die Magnox- und Leichtwasserreaktoren, da dort der Kern erst nach Abschalten des Reaktors zur Brennelemententnahme geöffnet werden kann.

Gänzlich ungeeignet – und damit in dieser Hinsicht besonders proliferationssicher – ist der HTR mit dem OTTO-Zyklus, da dort nur unter sehr aufwendiger Entladung des gesamten Kerns an die Brennelemente geringeren Abbrands gelangt werden kann.

Es bleibt somit die Frage, mit welcher Sicherheit ein beliebiger Plutoniumisotopenvektor dem ihn korrespondierenden Reaktorkonzept zugeordnet werden kann. Unter Proliferationsbegrenzungsaspekten wäre es zumindest ein Teilerfolg, wenn gewisse Reaktorkonzepte als möglicher Ursprung einer gegebenen Pu-Zusammensetzung ausgeschlossen werden könnten.

³²Der HTR OTTO ist als Konzeptstudie mit dem *Once Through Then Out*-Zyklus und seiner geringen thermischen Leistung als Unikat anzusehen, der jedoch die allgemeinen nuklearen Bedingungen in Hochtemperaturreaktoren für hohe Abbrände tendenziell abbildet.

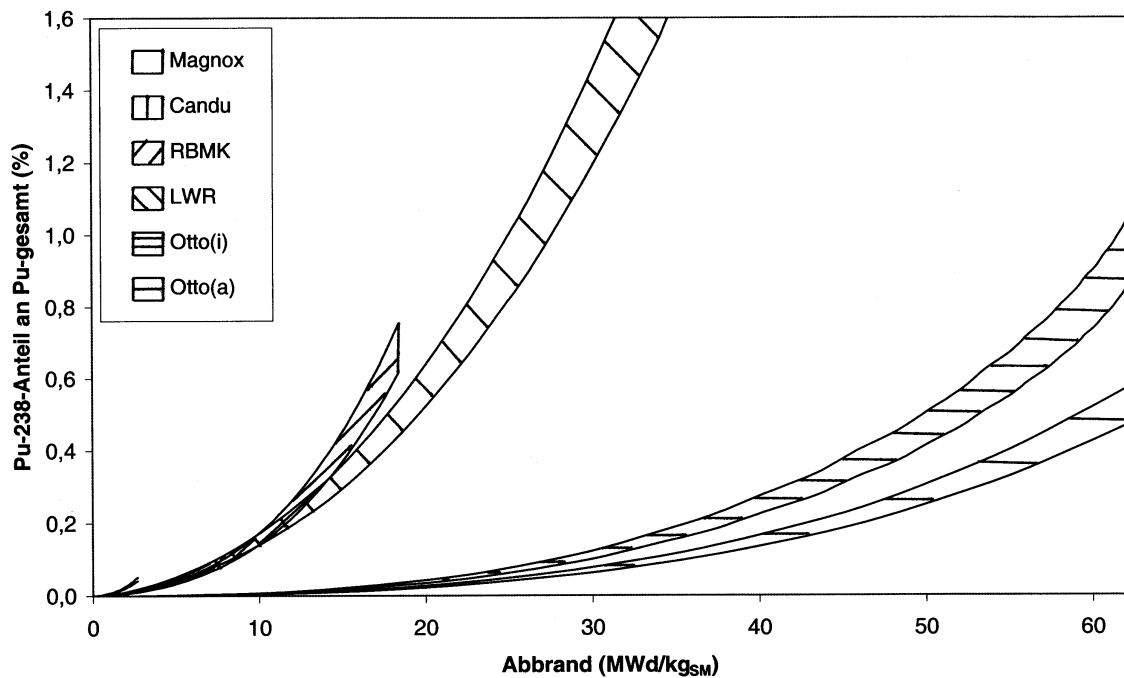


Abbildung 26: Prozentuale Pu-238-Anteile am Gesamtplutoniuminventar

Voraussetzung für die Zuordnung von Pu-Fingerabdruck und Reaktorkonzept ist eine Ausdehnung der Untersuchung über den Entladeplutoniumvektor hinaus zu den abbrandabhängigen Plutoniumvektoren. Diese ändern sich dynamisch während der Einsatzzeit im Kern.

Es muß erneut darauf hingewiesen werden, daß es sich hierbei nur um die Betrachtung von kerngemittelten Durchschnittswerten handelt. Diese Durchschnittswerte besitzen zwar eine allgemeine Aussagekraft für das betrachtete Konzept, müssen aber im Zweifelsfall – wenn etwa ein strenger Beweis über die Herkunft eines Plutoniumvektors geführt werden soll – durch eine detaillierte Simulation des betreffenden Reaktors überprüft werden. Dennoch lassen sich, wie man im folgenden sehen wird, Eingrenzungen vornehmen, die den Herkunftsort einer Pu-Probe nach dem Ausschlußverfahren einkreisen können.

In den Abbildungen 26 bis 30 sind die prozentualen Anteile der Pu-238- bis Pu-242-Isotope am Gesamtplutoniuminventar in Abhängigkeit des Abbrands für die fünf Reaktorkonzepte dargestellt. Setzt man für die Brennstoffzyklussimulationen der Referenzre-

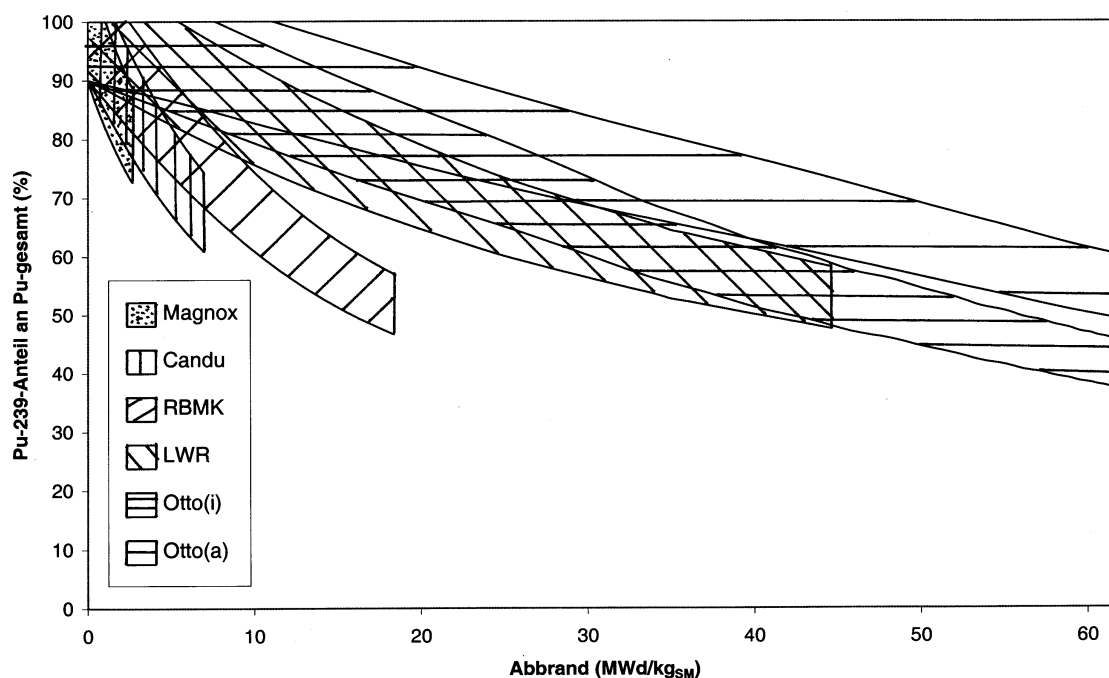


Abbildung 27: Prozentuale Pu-239-Anteile am Gesamtplutoniuminventar

aktoren einen generellen Fehler von 10 % für die Abbrandrechnungen an³³, so ergeben sich die dargestellten Isotopenanteil-Bereichsbänder. Für den HTR OTTO sind die beiden Kanalzonen unterschiedlicher Anreicherung getrennt (*Otto(i)* und *Otto(a)*, *i* = innen, *a* = außen) bilanziert, um dem unterschiedlichen Aufbauverhalten in den beiden Zonen Rechnung zu tragen.

Die Abbildungen 26 bis 30 zeichnet eine unterschiedliche Charakteristik aus. Während bereits bei geringen Abbränden eine Unterscheidung der Reaktorkonzepte alleine anhand des Pu-238-Isotopenanteils gelingt (Abb. 26), ist das gleiche für den Pu-239-Anteil im Prinzip nicht möglich (Abb. 27). Hier überlappen die Pu-239-Anteilsbänder der einzelnen Konzepte oft entlang des gesamten bilanzierten Abbrandintervalls, so daß für einen gegebenen Abbrandwert keine eindeutige Zuordnung zu einem bestimmten Reaktorkonzept gelingt.

³³Die 10 % sind notgedrungen ein willkürlicher, aber dennoch im gewissen Sinne konservative Fehler. Er ist zumeist erheblich größer als die jeweils festgestellte prozentuale Isotopenabweichung zwischen Referenzreaktor-Simulation und Kern-Abbrandmodell. Weiterhin soll er jedoch die Varianz des Pu-Vektors abdecken, die durch die Abbrandstreuung im Reaktorkern (innerhalb eines Konzepts) hervorgerufen wird.

Da sich die entlang der Pu–Aufbaukette befindlichen Pu–240–, Pu–241– und Pu–242–Isotope zeitlich verzögert aus dem Pu–239 bilden, ist jedoch eine immer größer werdende Differenzierung nach den jeweiligen Reaktorkonzepten in den Abbildungen 26 bis 30 zu erkennen:

- Nach der ersten Absorption im Pu–239 bildet sich vermehrt das Pu–240, dessen prozentualen Anteile bereits eine bessere Trennung der Reaktorkonzepte erlauben. Lediglich die Bereichsbänder von LWR und den beiden HTR OTTO–Kanälen überlappen noch über das gesamte Abbrandintervall. Die anderen Reaktoren sind jedoch schon deutlich anhand ihres spezifischen Pu–240–Anteils unterscheidbar (Abb. 28).
- Beim Pu–241, das seinerseits erst nach der Bildung des Pu–240 entstehen kann, ist die Differenzierung der prozentualen Isotopenanteile nach den Referenzreaktoren bereits fast vollständig gegeben (Abb. 29).
- Die abbrandabhängigen Anteile des Pu–242 (Abb. 30) erlauben schließlich eine eindeutige Unterscheidung der Referenzreaktoren zu jedem Zeitpunkt der Brennelementlebensgeschichte.

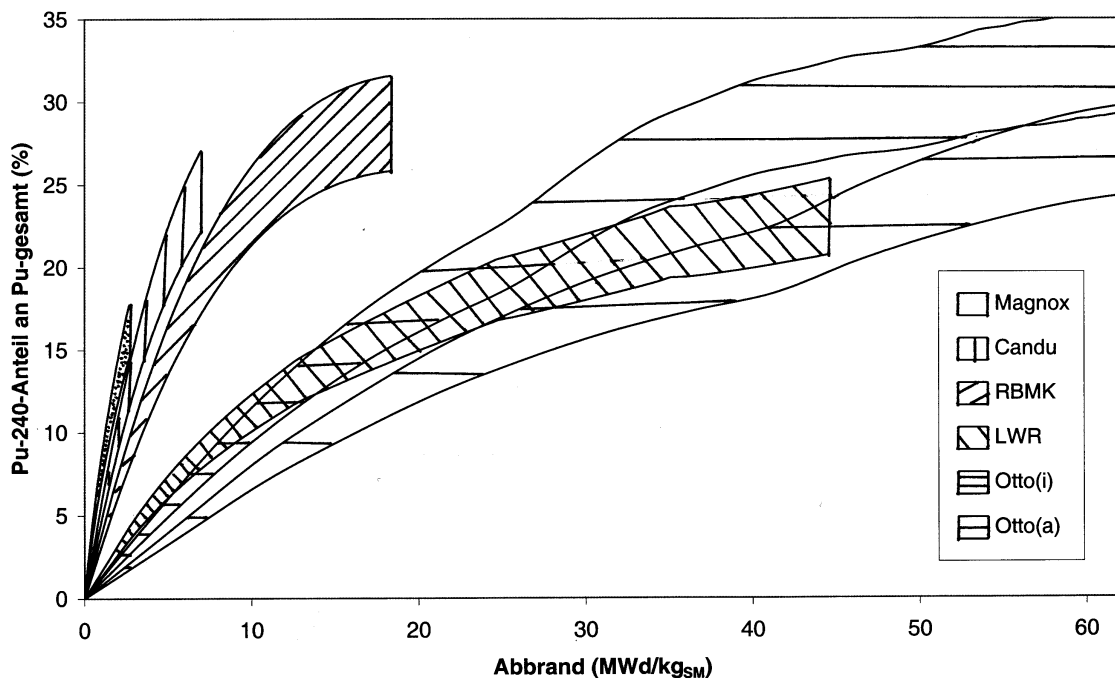


Abbildung 28: Prozentuale Pu–240–Anteile am Gesamtplutoniuminventar

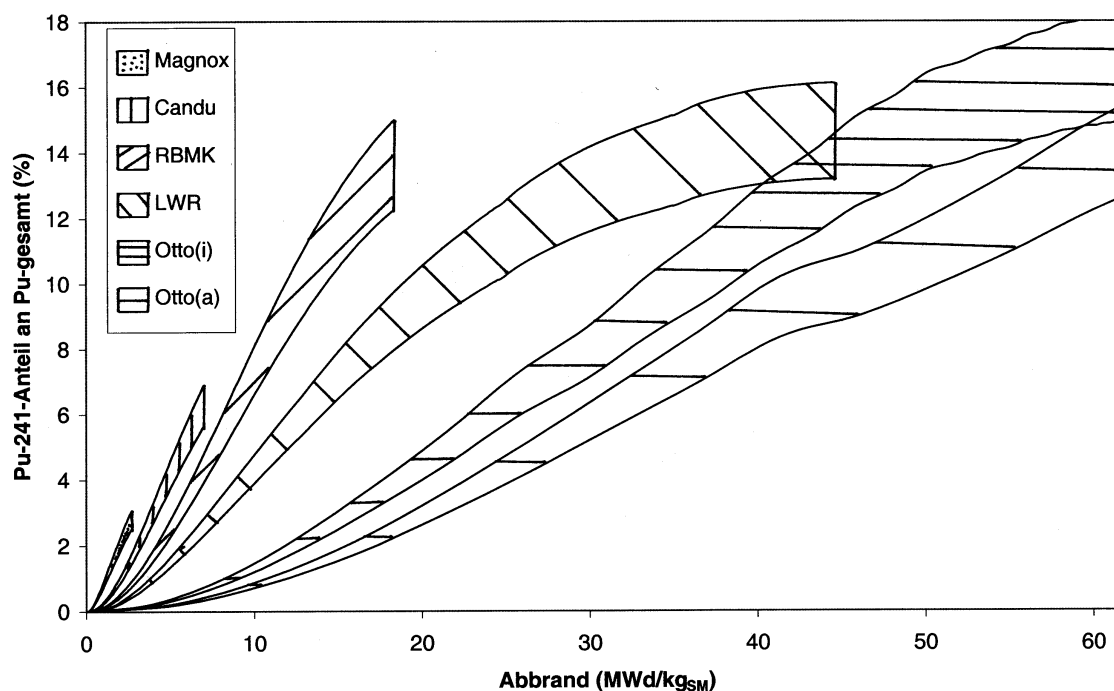


Abbildung 29: Prozentuale Pu–241–Anteile am Gesamtplutoniuminventar

Bei der geschlossenen Betrachtung des fünf–dimensionalen Pu–Vektors ist die eindeutige Zuordnung zu einem bestimmten Reaktorkonzept erheblich einfacher als für jedes einzelne Isotop.

Die fünf Freiheitsgrade des Plutoniumaufbaus genügen damit offensichtlich, um eine Pu–Zusammensetzung wohldefinierten Abbrandwertes auch zu Zeitpunkten vor der üblichen Kernentladung einem Herkunfts–Reaktortyp zuzuordnen.

7.4 Resümee über das Pu–Aufbauverhalten thermischer Reaktoren

In diesem Kapitel wurde im Detail das Aufbauverhalten der Plutoniumisotope und damit zusammenhängender Nuklide in thermischen Reaktoren untersucht. Neben den Nuklidenaufbauketten wurden die in diesem Zusammenhang relevanten, reaktorkernspezifischen, nuklearen Parameter gegenübergestellt und hinsichtlich ihres Einflusses auf das Pu–Aufbauverhalten beleuchtet. Für jedes Reaktorkonzept wurde das Aufbauverhalten der charakteristischen Nuklide diskutiert, so wie sie aus den Brennstoffkreislaufsimulationen mit den Kern–Abbrandmodellen resultieren. Die Pu– und MA–Gehalte der Entladechargen wurden bilanziert und miteinander verglichen. Anschließend wurde besonderer Wert auf die Fragestellung gelegt, inwieweit ein gegebener Plutoniumvektor reaktor-

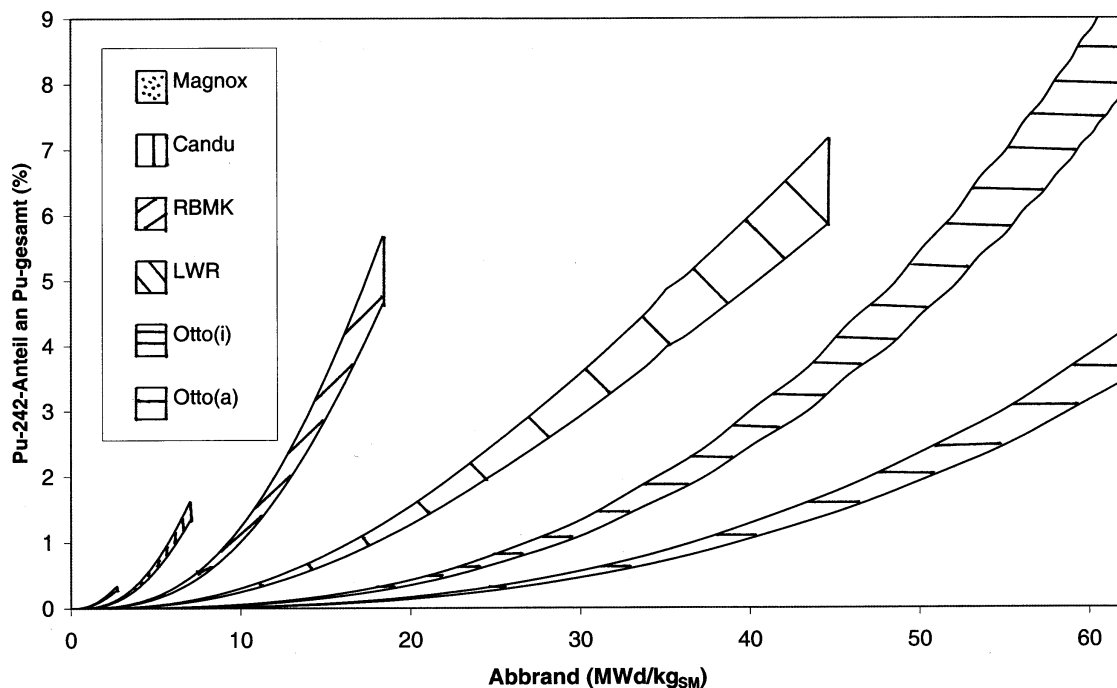


Abbildung 30: Prozentuale Pu–242–Anteile am Gesamtplutoniuminventar

konzeptspezifisch ist. Hierbei wurden einerseits Plutoniumvektoren betrachtet, die nach der geplanten Standzeit der BE im Reaktorkern vorliegen. Weiterhin wurde das zeitliche Plutoniumaufbauverhalten analysiert und bzgl. eines eindeutigen reaktorspezifischen Pu–Fingerabdrucks diskutiert.

Die Resultate des Kapitels können somit wie folgt zusammengefaßt werden:

- Der Aufbau der Plutoniumisotope ist komplex und hängt von vielen nuklearen Faktoren ab, die sich in den betrachteten thermischen Reaktorkonzepten deutlich voneinander unterscheiden.
- Der Pu–Entladevektor ist eindeutig reaktorkonzeptspezifisch. Diese Aussage gilt in erster Linie für die hier betrachteten Referenzreaktoren und ihren Standard–Natururan– bzw. LEU–Brennstoffzyklus. Dennoch kann die Ausweitung der o. g. Aussage auf die bauähnliche Konzeptbrüder der Referenzreaktoren mit gewisser Sicherheit vollzogen werden.
- Die Plutoniumentlademenge pro thermisches Gigawattjahr – ein wichtiges Kriterium für Fragen der Endlagerproblematik und Proliferationsgefahr – ist für die betrachteten Reaktorkonzepte bis zu einem Faktor 5 verschieden.

- Die in situ Nutzung von erzeugten Plutonium– und MA–Isotopen fällt vor allem aufgrund der konzeptspezifischen BE–Zielabbrände sehr unterschiedlich aus. Das hat unmittelbaren Einfluß auf die Bewertung eines Reaktorkonzeptes vor dem Hintergrund einer gewünschten Plutoniumminimierung bzw. –nutzung/umwandlung.
- Der Plutonium–*Fingerabdruck* ist nicht nur zum Entladezeitpunkt reaktorkonzeptspezifisch, sondern das Aufbauverhalten aller Pu–Isotope zusammengenommen zeigt über die gesamte Zeitspanne zwischen BE–Einsatz im Kern und der späteren BE–Entladung für jedes Reaktorkonzept eine unterschiedliche Charakteristik.

Das nächste Kapitel führt einige der o. g. Überlegungen weiter und entwickelt eine Methodik, Plutoniumvektoren unbekannter oder zweifelhafter Herkunft zu analysieren und — sofern möglich — einem bestimmten Reaktorkonzept zuzuordnen.

8 Methodik zur Identifizierung von Pu–Vektoren

Die bisherigen Erkenntnisse lassen die berechtigte Vermutung zu, daß über die Analyse des zeitabhängigen Plutoniumaufbauverhaltens in den einzelnen Reaktorkonzepten weitergehende Aussagen abgeleitet werden können, die bezüglich der Herkunftsermittlung einer beliebigen Plutoniumprobe hilfreich sind.

Hierzu ist es notwendig, in einem ersten Schritt die prozentualen Anteile der einzelnen Plutoniumisotope in der Probe festzustellen. Zweitens müssen begründete Annahmen getroffen werden über die Zeitspanne, die inzwischen seit Entladung aus dem Kern vergangen ist. Das ist vor allem entscheidend für das Plutoniumisotop-241 mit einer Halbwertszeit von 14,4 Jahren, das bereits zum Zeitpunkt der Analyse zu einem gewissen Teil zerfallen sein kann. Eine qualitative und quantitative Analyse der Probe muß also Aufschluß darüber geben, welche Mengen an Zerfallsprodukten bereits entstanden sind und ob es noch andere Isotope oder Kennzeichen gibt, die Hinweise auf Herkunft und Alter der Probe in sich bergen.

Nach diesen Vorarbeiten erhält man den rückdatierten Plutoniumvektor, der in dieser Form einer nuklearen Anlage entstammen könnte.

Nun muß versucht werden, diesen Pu–Vektor mit den verfügbaren Datensätzen über den Plutoniumaufbau in den einzelnen Reaktorkonzepten zur Deckung zu bringen. Dazu wird ein automatisiertes *Best–Fit*–Verfahren eingesetzt, mit dem für alle fünf Pu–Isotopenanteile (d. h. Koeffizienten des Pu–Vektors) die größtmögliche Übereinstimmung zwischen Probe und vermutetem, der Probe zugrunde liegendem Reaktorkonzept festgestellt wird. Der *Best–Fit* ist erreicht, wenn die Summe der relativen Abweichungen jedes Isotopenanteils zwischen Pu–Probe und Pu–Vektor des Referenzreaktors als Funktion des Abbrandwertes minimal sind. Die sich auf diese Weise für einen Reaktortyp ergebenden, minimalen, prozentualen Isotopen–Abweichungen sind ein Indikator für die Wahrscheinlichkeit, daß es sich um den Herkunftsort der Probe gehandelt haben könnte.

8.1 Anwendung des Best–Fit–Verfahrens

Da im allgemeinen Plutoniumfunde und deren Herkunftsbestimmung nicht in der frei zugänglichen, wissenschaftlichen Literatur abgehandelt werden, ist es schwierig, die hier skizzierte Theorie an realen Plutoniumproben zu verifizieren. Um die Aussagekraft der Kern–Abbrandmodelle bezüglich der Identifizierung von Plutoniumvektoren dennoch bewerten zu können, bieten sich zwei Methoden an.

- Zum einen kann der Entladevektor eines jeden Referenzreaktors mit dem zeitlichen Plutonium–Aufbauverhalten aller übrigen Kern–Abbrandmodelle verglichen

werden. Das oben beschriebene Best–Fit–Verfahren wird somit für jeden Entladevektor durchgeführt, als handelte es sich hierbei um unbekannte Pu–Proben. Eine genügend große Differenz beweist, daß der ausgewählte Entladevektor zu keiner Zeit mit dem zeitlichen Plutoniumaufbauverhalten der anderen Reaktortypen korrespondiert. Mit diesem Ausschlußverfahren lassen sich eine Vielzahl von Reaktorkonzepten als mögliche Herkunftsorte verwerfen.

- Eine zweite Möglichkeit, die o. g. Methodik zu testen, bietet sich mit Hilfe von Plutoniumvektoren bekannter Herkunft, die der Literatur entnommen werden. Auch hier wird das Best–Fit–Verfahren angewendet, und der Reaktortyp ermittelt, für den für einen bestimmten Abbrandwert die größte Übereinstimmung festgestellt wird.

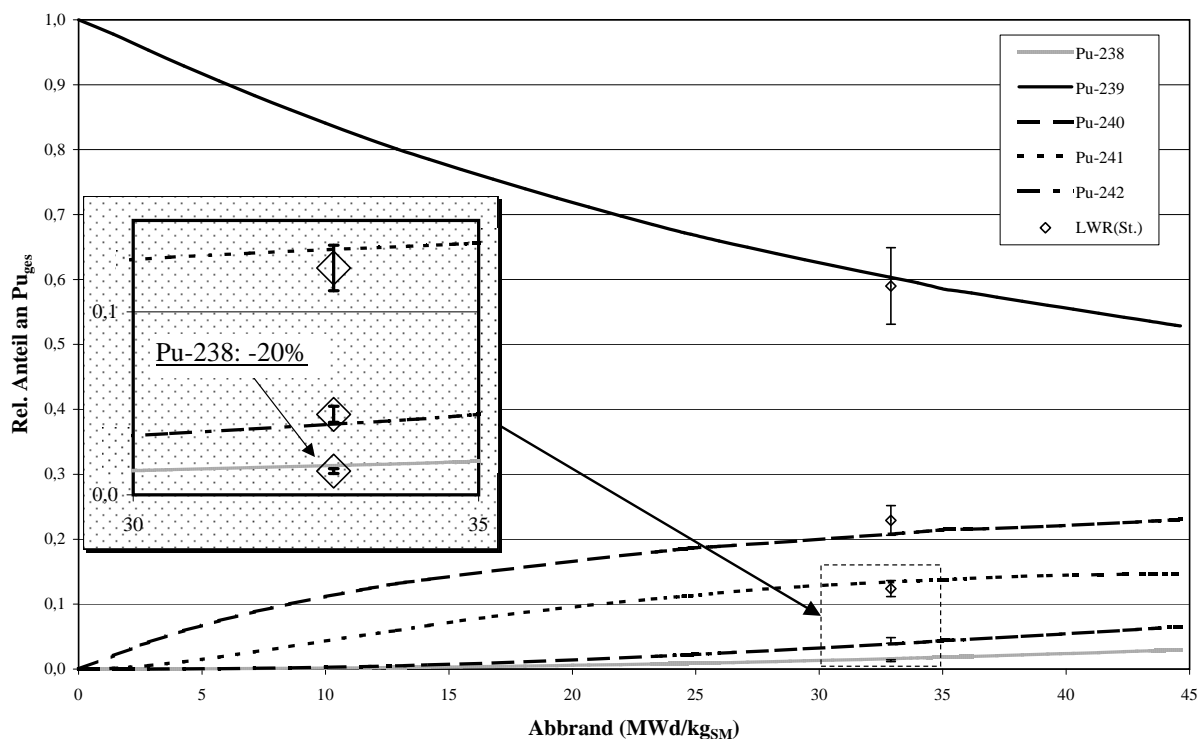


Abbildung 31: Pu–Vektor als Funktion des Abbrands beim LWR

Abbildung 31 zeigt den Plutoniumfingerabdruck des LWR–Referenzreaktors als Funktion des Abbrands. Die prozentualen Plutoniumanteile lassen das in dem vorhergehenden Kapitel diskutierte abbrandabhängige Verhalten erkennen. An der rechten Seite des Diagramms kann die prozentuale Plutonium–Zusammensetzung der LWR–Entladecharge bei einem Abbrand von knapp 45 MWd/kg_{SM} abgelesen werden.

In dem gleichen Diagramm ist das Ergebnis des Best–Fit–Verfahrens mit einem aus der Literatur entnommenen LWR–Plutoniumvektor eingetragen. Hierbei handelt es sich um einen *Standard–Plutoniumentladevektor* für einen LWR älterer Bauart. Dieser Standard–Pu–Vektor wird in einigen nuklearen Rechenprogrammen (z.B. SCALE), die nicht mit dem

hier verwendeten V.S.O.P.–System verwandt sind, als Referenzvektor verwendet [46]. Der Abbrand dieses Standard–LWR–Plutoniumvektors liegt bei ca. 35 MWd/kg_{SM}.

Die Koordinaten des LWR–Standard–Plutoniumvektors sind mit Fehlerbalken von $\pm 10\%$ beaufschlagt, um den zuvor genannten Unsicherheiten der Modellrechnungen zu entsprechen. Weiterhin wird hierdurch ein gewisser Toleranzbereich angedeutet, innerhalb dessen man von einer akzeptablen Übereinstimmung der Pu–Vektoren sprechen kann – ähnlich den Bereichsbändern in den Abbildungen 26 bis 30 des vorangegangenen Kapitels. Eine Ausschnittsvergrößerung links in den Abbildung 31 läßt die Abweichung des Standard–LWR–Vektors mit den anteilmäßig geringeren Plutoniumisotopen besser erkennen.

Das Optimierungsverfahren (Best–Fit) ergibt, daß die beste Übereinstimmung zwischen Literatur–Standard–LWR–Vektor und LWR–Kern–Abbrandmodell bei einem Abbrand von ca. 33 MWd/kg_{SM} erreicht wird. Die Übereinstimmung der Pu–Vektor–Koordinaten mit den entsprechenden Pu–Isotopenanteilen des LWR–Abbrandmodells liegt – mit Ausnahme des Pu–238 – innerhalb der angenommenen Toleranzgrenze von 10 %. Lediglich die Pu–238–Anteile für Standard–LWR–Vektor und LWR–Abbrandmodell liegen knapp 20 % auseinander (siehe Ausschnittsvergrößerung Abb. 31).

Die Anwendung des Best–Fit–Verfahrens zwischen dem Standard–LWR–Plutonium–Vektor und den übrigen Kern–Abbrandmodellen führt zu deutlich signifikanteren Abweichungen bei mehr als einem der Pu–Isotope. In Abbildung 32, in der u. a. die Best–Fit–Optimierung zwischen Standard–LWR–Pu–Vektor und OTTO–100–Kern–Abbrandmodell eingetragen ist, ist beispielsweise die deutliche Differenz bei den Pu–238– und Pu–242–Isotopen zu erkennen (Tabelle 22 weist diese Differenz zahlenmäßig aus). Mit Hilfe dieser Methodik können die meisten übrigen Reaktorkonzepte als mögliche Herkunftsorte des untersuchten Pu–Vektors eindeutig ausgeschlossen werden.

Um die Methodik des Best–Fit–Verfahrens für das Kern–Abbrandmodell des LWR zu vervollständigen, werden die entsprechenden Optimierungsverfahren mit den Entladevektoren *aller übrigen* Referenzreaktoren durchgeführt. Die Auswertung der Optimierungsrechnungen ergibt, daß sich für keinen Abbrandwert eine auch nur annähernd signifikante Übereinstimmung mit dem Pu–Entladevektor eines anderen Referenzreaktors erreichen läßt. Die Abweichungen liegen mindestens für zwei oder mehr Isotopenanteile deutlich oberhalb der geforderten 10 %–Differenz (siehe hierzu auch Anhang B).

Eine erste wichtige Aussage bezüglich der angestrebten Identifizierung von Pu–Vektoren kann somit getroffen werden:

- Für den Standard–LWR–Plutoniumvektor aus der Literatur ergibt sich nach dem Best–Fit–Verfahren eine gute Übereinstimmung mit dem berechneten Plutoni-

umaufbauverhalten des Referenz–LWR–Abbrandmodells³⁴. Weiterhin liegt sogar der bei der Optimierung ermittelte Abbrandwert von 33 MWd/kg_{SM} recht nahe bei dem realen Abbrandwert der Probe von 35 MWd/kg_{SM}. Für alle übrigen Referenzreaktor–Abbrandmodelle zeigen sich signifikante Abweichungen zu dem Plutoniumvektor der Standard–LWR–Probe. Sie können somit als Herkunftsort ausgeschlossen werden.

Nach diesem ersten Erfolg werden nun die anderen Kern–Abbrandmodelle der Referenzreaktoren anhand des gleichen Best–Fit–Verfahrens analysiert.

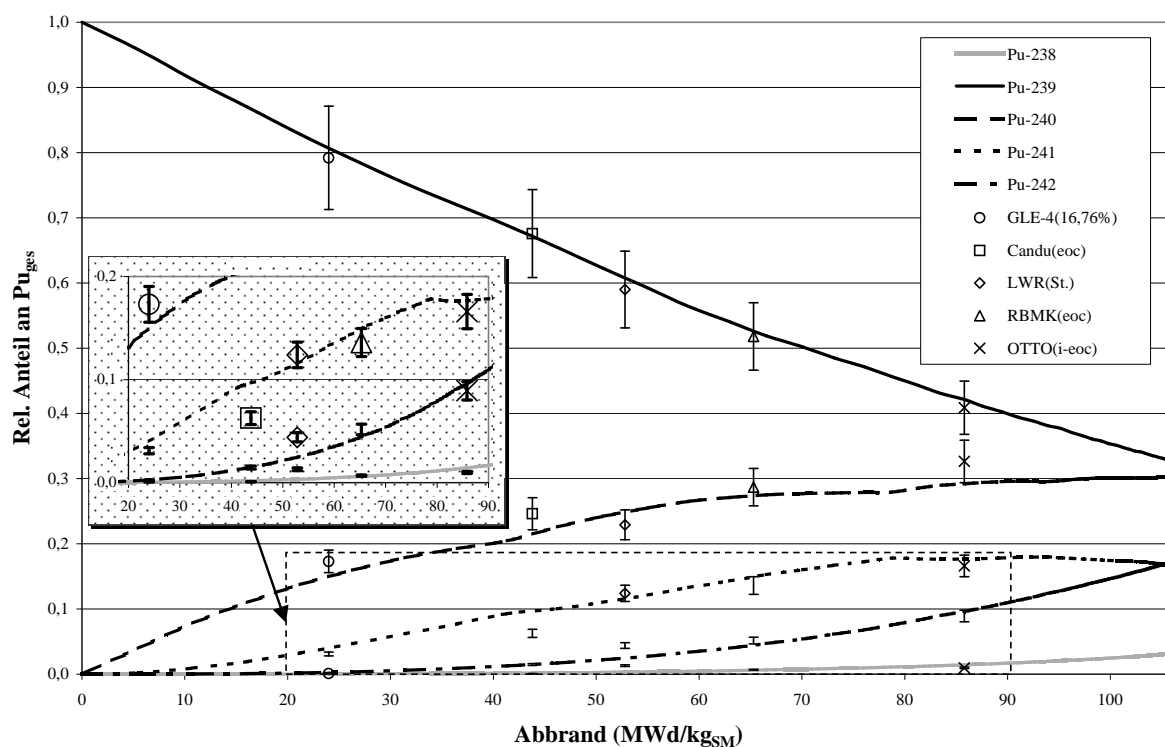


Abbildung 32: Pu–Vektor als Funktion des Abbrands beim HTR OTTO–100 (Außenkanäle)

Abbildung 32 zeigt ein Diagramm des abbrandabhängigen Pu–Vektors für den äußeren Kanal des HTR OTTO. In die Abbildung sind die Best–Fit–Ergebnisse der Plutonium–Entladevektoren drei anderer Referenzreaktoren sowie diejenigen zweier Literaturvektoren

³⁴Die Abweichung in den Pu–238–Anteilen von 20 % könnte mit gewisser Wahrscheinlichkeit mit der Charakteristik des Pu–238–Aufbaus erklärt werden. Aus dem Abschnitt 7.1 ergab sich, daß Pu–238 im LWR hauptsächlich durch den U–235–Pfad entsteht, d.h. die Absorptionsrate im U–235 ist hier der wesentliche Beitrag zum Pu–238 Aufbau. Die Absorptionsrate im U–235 ist direkt verknüpft mit der vorherrschenden Konzentration des U–235 im Brennstab. Der Standard–LWR–Plutoniumvektor repräsentiert Leichtwasserreaktoren der älteren Generation und diese Reaktoren fahren üblicherweise mit Anreicherungen um 3,3 %. Die Differenz von 20 % im Pu–238–Anteil könnte sich also durchaus auf die Differenz in den Anreicherungen zurückführen lassen, die in der gleichen Größenordnung liegt (der Referenz–LWR ist mit 4 % angereichert).

eingetragen³⁵:

- Bei dem zuvor diskutierten LWR–Standard–Plutoniumvektor ist zu erkennen, daß die Anteile der Pu–239– bis –241–Isotope innerhalb der Toleranzgrenzen denjenigen des HTR OTTO bei ca. 52 MWd/kg_{SM} entsprechen. Die Pu–238– und Pu–242–Isotope liegen jedoch deutlich oberhalb der HTR OTTO–Werte (siehe Ausschnittsvergrößerung Abb. 32).
- Auch der Pu–Vektor des Referenz–CANDU–Reaktors zeigt deutliche Abweichungen für die Plutoniumisotope Pu–238 und Pu–241. Die Ausschnittsvergrößerung im Diagramm 32 verdeutlicht die Größenordnung der Abweichungen. Tabelle 22 weiter unten im Abschnitt weist die quantitativen Zusammenhänge exakt aus.
- Als weiterer Plutoniumvektor aus der Literatur wurde ein im AVR eingesetztes Brennelement mit LEU–Brennstoff von 16,76 % Anreicherung und einem Abbrand von knapp 35 MWd/kg_{SM} untersucht. Das Brennelement trägt die Bezeichnung GLE–4 und dessen Plutoniumvektor wurde sowohl experimentell als auch theoretisch ermittelt [44]. Übereinstimmungen mit dem Plutoniumaufbau des äußeren HTR OTTO–Kanals liegen für die Plutoniumisotope Pu–239, Pu–240 und Pu–242 vor. Der Anteil des Pu–241 ist knapp 25 % niedriger als im HTR OTTO–Außenkanal, und der des Pu–238 etwa doppelt so hoch. Zur genaueren Begründung der Unterschiede wäre hier die genaue Kenntnis der Abbrandgeschichte des GLE–4 Brennelementes erforderlich. Eine Übereinstimmung mit den HTR OTTO–Brennelementen kann jedoch mit großer Wahrscheinlichkeit ausgeschlossen werden.

Gleichzeitig lassen sich jedoch in Abbildung 32 auch die Grenzen der Methodik aufzeigen. Sowohl der Entladevektor des RBMK–Referenzreaktors als auch der des inneren HTR OTTO–Kanals zeigen größtenteils eine Übereinstimmung für alle Plutoniumisotopenanteile des äußeren HTR OTTO–Kanals. Ausgenommen bleibt lediglich der Pu–238–Anteil, bei dem Abweichungen von 20 % bzw. 35 % vorliegen.

In diesen beiden letztgenannten Fällen der durchgeführten Best–Fit–Verfahren könnte also eine – tatsächlich aber nicht vorliegende – Herkunftsbeziehung zum äußeren Kanal des HTR OTTO vermutet werden. Hier müßte nun mithilfe weitergehender Analysen versucht werden, unwahrscheinliche Herkunftsbeziehungen nach dem Ausschlußprinzip zu verwerfen. So ließe etwa die Bestimmung des Abbrands der Probe sowohl für den RBMK (Standard–Entladeabbrand beträgt 18,4 MWd/kg_{SM}) als auch für ein Brennelement des inneren HTR OTTO–Kanals (= 62,5 MWd/kg_{SM}) eine sehr deutliche Differenz

³⁵Es sind hier lediglich die Entlade–Pu–Vektoren dargestellt, für die bei mehr als zwei Plutoniumisotopen eine Übereinstimmung auftritt.

zu den in den Optimierungsverfahren ermittelten Abbrandwerten erkennen (65,3 bzw. 85,8 MWd/kg_{SM}). Aufgrund dieser *einen* zusätzlichen Information könnte die oben vermutete Korrespondenz direkt ausgeschlossen werden.

Neben diesen beiden exemplarischen Auswertungen der Optimierungsverfahren finden sich im Anhang B (Abbildungen 55 – 58) die entsprechenden Diagramme für die restlichen Abbrandmodelle, deren detaillierte Diskussion diesen Abschnitt sprengen würde. In allen Diagrammen sind die Best-Fit-Ergebnisse für die Literatur- und Referenzreaktor-Pu-Entladevektoren eingetragen, sofern signifikante Übereinstimmungen für mehr als zwei Plutoniumisotope auftreten.

8.2 Synopse der Best-Fit-Ergebnisse

Pu-Vektor Ref.-Reaktor	Magnox(eoc) 2,7 MWd/kg _{SM}	CANDU(eoc) 7,0 MWd/kg _{SM}	RBMK(eoc) 18,4 MWd/kg _{SM}	OTTO(i)(eoc) 62,5 MWd/kg _{SM}	LWR(St.) 33 MWd/kg _{SM} (Literaturvektor)	AVR (GLE-4) 35 MWd/kg _{SM} (Literaturvektor)
CANDU	-20 % Pu-42 +60 % Pu-38 4,2 MWd/kg _{SM}	identisch	x	x	x	x
RBMK	-15 % Pu-41 +22 % Pu-42 4,2 MWd/kg _{SM}	+30 % Pu-42 -45 % Pu-38 9,9 MWd/kg _{SM}	identisch	x	x	x
LWR	x	x	x	x	-20 % Pu-38 32,9 MWd/kg _{SM}	x
OTTO(i)	-40 % Pu-41 -25 % Pu-42 +20 % Pu-38 20,0 MWd/kg _{SM}	+50 % Pu-42 27,4 MWd/kg _{SM}	+25 % Pu-38 53,0 MWd/kg _{SM}	x	7,5 x Pu-38 +29 % Pu-41 +77 % Pu-42 35,0 MWd/kg _{SM}	identisch
OTTO(a)	+100 % Pu-42 +50 % Pu-38 21,2 MWd/kg _{SM}	-40 % Pu-41 -55 % Pu-38 43,8 MWd/kg _{SM}	+20 % Pu-38 65,3 MWd/kg _{SM}	-35 % Pu-38 85,8 MWd/kg _{SM}	+80 % Pu-42 4 x Pu-38 52,8 MWd/kg _{SM}	2 x Pu-38 -25 % Pu-41 24 MWd/kg _{SM}

Tabelle 22: Synopse aller Ergebnisse des Best-Fit-Verfahrens

Tabelle 22 zeigt abschließend die Synopse aller durchgeführten Optimierungsrechnungen. Sämtliche Pu-Entladevektoren der Referenzreaktoren sowie die beiden Plutoniumvektoren aus der Literatur sind nach der Best-Fit-Methodik miteinander verglichen worden. Die Differenzen der Isotopenanteile sind in Prozent ausgewiesen. An der linken Seite der Tabelle sind die Referenzreaktoren aufgelistet, deren Plutoniumaufbauverhalten als Funktion des Abbrands mit Hilfe der Kern-Abbrandmodelle ermittelt wurde. Am Kopf der Tabelle sind die Test-Plutoniumvektoren inklusive Abbrandwert angegeben, mit denen das Best-Fit-Verfahren durchgeführt wurde.

In drei Fällen sind Test-Pu-Entladevektor und Herkunfts-Referenzreaktor identisch, d. h. sie entstammen der gleichen Simulationsrechnung. Ein Best-Fit ist in diesem Falle trivial.

Ein 'x' in Tabelle 22 steht symbolisch für die Tatsache, daß in der gegebenen Konstellation zwischen Test–Plutoniumvektor und Plutonium–Aufbauverhalten des Referenzreaktors für keinen Abbrandwert eine auch nur näherungsweise Übereinstimmung ermittelt werden kann. Als Bedingung für eine gewisse Übereinstimmung wird festgelegt, daß mindestens zwei Plutonium–Isotopenanteile innerhalb der geforderten 10 % Toleranz mit denen des Referenzreaktors identisch sind. Für die beiden Pu–Entladevektoren der simulierten Referenzfälle des LWR und des äußeren HTR OTTO–Kanals konnte für keinen der Test–Plutoniumvektoren dieses geforderte Übereinstimmungskriterium erfüllt werden. Aus diesem Grund fehlen in der Matrix der Tabelle 22 für diese beiden Pu–Entladevektoren die entsprechenden vertikalen Spalten.

Ist zumindest das geforderte Übereinstimmungskriterium erfüllt, so sind alle ermittelten Differenzen für Plutoniumisotope angegeben, die die nötigen 10 % Toleranzbreite überschreiten. Zusätzlich ist jeweils der Abbrandwert ausgewiesen, bei dem sich die bestmögliche Übereinstimmung der Pu–Vektoren ergibt.

Alle o. g. Konstellationen aus den Abbildungen 31 und 32 sind in der Tabelle enthalten. Die weiteren in der Tabelle angegebenen Best–Fit–Ergebnisse korrelieren mit den Best–Fit–Diagrammen aus Anhang B und können bei Interesse dort eingesehen werden.

Es fällt auf, daß es keine Konstellation gibt, für die alle fünf Plutonium–Isotopenanteile innerhalb der 10 % Toleranz liegen. Die beste Übereinstimmung wird für den bereits besprochenen LWR–Standard–Vektor aus der Literatur mit dem Referenz–LWR–Abbrandmodell erzielt.

Überraschend gute Übereinstimmungen ergeben sich allerdings auch im Fall des RBMK–Entladevektors mit den beiden Kanalzonen des HTR–OTTO. Hierbei liegen lediglich die Pu–238–Anteile um 20 bzw. 25 % zu hoch. Bei Kenntnis des Abbrandwertes des Test–Pu–Vektors ließen sich allerdings die irrtümlichen Herkunftsbeziehungen direkt verwerfen, denn der RBMK–Entladevektor besitzt einen Abbrand von weniger als 20 MWd/kg_{SM}, wohingegen die ermittelten Abbrandwerte der Best–Fit–Übereinstimmungen beide über 50 MWd/kg_{SM} liegen. Bei bekanntem Abbrand des Testvektors würde somit alleine der Pu–238–Aufbau als Funktion des Abbrands zwischen RBMK und HTR OTTO als Unterscheidungskriterium ausreichen (siehe Abb. 26).

Eine dritte gewisse Übereinstimmung ergibt sich im bereits weiter oben diskutierten Fall, bei dem der Pu–Entladevektor der inneren HTR OTTO–Kanalzone mit dem Plutonium–aufbauverhalten der äußeren Kanalzone verglichen wird (35 % Pu–238–Abweichung).

Alle anderen in Tabelle 22 eingetragenen Resultate des Best–Fit–Verfahrens weisen Abweichungen von mehr als 30 % für zwei oder mehr Isotope aus. Diese Abweichungen sind signifikant genug, daß selbst bei Berücksichtigung der Toleranzen und Rechenungenauigkeiten der verwendeten Reaktor–Simulationsprogramme ein stichhaltiges Indiz dafür bestehen bleibt, daß *keine* Verbindung zwischen Test–Plutoniumvektor und Referenzreaktor

vorliegt.

8.3 Bewertung der Methodik

Zusammenfassend ist festzustellen, daß selbst bei lediglich fünf Isotopen–Freiheitsgraden für keinen der o. g. Test–Pu–Vektoren eine Übereinstimmung innerhalb der Fehlergrenzen von 10 % erzielt wird. Dieses Ergebnis spricht für eine erfolgreiche Herkunftsermittlung nach dem Ausschlußprinzip, denn in keinem der Fälle lag eine Herkunftsbeziehung tatsächlich vor.

Allerdings wird für einige wenige Fälle eine Best–Fit–Übereinstimmung innerhalb einer Fehlermarge von 20 % erzielt. An erster Stelle ist hier die nahe Verwandtschaft des LWR–Standardvektors mit dem hier berechneten LWR der neueren Generation zu erwähnen, bei dem außerdem die entsprechenden Abbrandwerte gute Übereinstimmungen erzielen. Die beiden anderen Fälle sind problematisch in der Hinsicht, daß sie eine Beziehung zu einem Herkunftsreaktor vermuten lassen, die nicht existiert. Allerdings weisen die ermittelten Abbrandwerte erhebliche Differenzen zu den wahren Abbränden der Test–Pu–Vektoren auf. Hier bestünde also ein erfolgversprechender Ansatz, bei Zuhilfenahme anderer Indikatoren eine vermutete Korrelierung auszuschließen. Alle anderen Konstellationen führen in den Optimierungsrechnungen zu keiner signifikanten Übereinstimmung, so daß eine Herkunftsbeziehung mit großer Wahrscheinlichkeit verworfen werden kann.

Es zeigt sich, daß mit dem Optimierungsverfahren auf der — alleinigen — Grundlage der hier angelegten Referenzreaktoren–Datenbank eine eindeutige Zuordnung zu einem Herkunftsreaktor nicht in jedem Fall zum Erfolg führen wird. Die vorgestellte Methodik kann jedoch als wichtiges Werkzeug bei der Identifikation von Plutoniumvektoren fungieren und ist zweifelsfrei geeignet, um nach dem Ausschlußprinzip die Mehrheit von fraglichen Reaktorkonzepten als Herkunftsort verwerfen zu können. Wünschenswert wäre in diesem Zusammenhang eine Erweiterung der Methodik auf eine größere Zahl von implementierten Reaktorkonzepten (und –typen), um ein breiteres Spektrum der weltweit operierenden Kernreaktoren abzudecken.

9 Vergleich alternativer Brennstoffzyklen

Die in dieser Arbeit verwendeten Kern-Abbrandmodelle wurden bisher ausschließlich für den Standard-Brennstoffzyklus der fünf Referenzreaktoren verwendet. Diesem Standard-LEU-Zyklus (LEU = *Low Enriched Uranium*) lag als Brennstoff entweder Natururan oder niedrig angereichertes Uran mit einem Uran-235-Anteil von bis zu knapp 10 % (OTTO) zugrunde.

In Kapitel 7 wurden für diesen LEU-Zyklus bereits Plutonium-, MA- und Uran-235-Bilanzen diskutiert. Besonderes Augenmerk galt dem Aufbauverhalten des Plutoniums, da Plutonium bzgl. der Endlagerproblematik und der Proliferationsgefahr das bedeutendste Element darstellt und die Minoren Aktiniden fast ausschließlich über die Aufbaukette des Plutoniums entstehen.

Die Abweichung des Pu-Entladevektors zwischen komplexer Referenzreaktorsimulation und Kern-Abbrandmodell ist i. a. klein. Aus diesem Grund bietet es sich an, die bestehenden Kern-Abbrandmodelle auch für die Untersuchung alternativer Brennstoffzyklen zu nutzen³⁶. Bei den für die Analyse ausgewählten Brennstoffzyklen handelt es sich insbesondere um solche, die ein mögliches Potential im Hinblick auf eine Plutoniumreduzierung/-umwandlung und eine Minimierung des Aktinidenaufbaus besitzen. Ein Vergleich der Reaktorkonzepte mit einem einheitlichen Programmsystem ist vor diesem Hintergrund besonders interessant.

Für die Einführung eines neuen Brennstoffzyklus ist eine aufwendige Optimierung für das BE-Design notwendig. Gleiches gilt für die Anordnung der BE im Kern, den Pitch, das Kühlmittel/Moderator/Brennstoff-Verhältnis und das resultierende Kern-Temperaturprofil. Schließlich müssen Brennstoffzusammensetzung (d. h. vor allem Schwermetalleinsatz pro BE und BE-Anreicherung), Zielabbrand und -standzeit, Reaktivitätskoeffizienten sowie mögliche Verwendung stark heterogener BE-Anordnung (sog. *Feed- und Breed-Konzepte*) miteinander abgestimmt werden.

Somit ist verständlich, daß bereits die Einführung eines einzelnen neuen Brennstoffzyklus für einen einzelnen Reaktor vielfältige Berechnungen und Studien erfordert. Aus diesem Grund ist die folgende Untersuchung alternativer Brennstoffzyklen in thermischen Reaktorkonzepten darauf beschränkt, unter dem Aspekt der o. g. Bewertungszielen die Charakteristik des Transuranaufbaus und den Spaltstoffverbrauch zu analysieren.

³⁶Da die Kern-Abbrandmodelle jedoch z. T. gerade bei dem höchsten betrachteten Pu-Isotop (Pu-242, siehe Kapitel 6) die größte Differenz erkennen lassen, sollten die absoluten MA-Bilanzen für Isotope jenseits der Pu-Kette mit entsprechender Vorsicht interpretiert werden.

9.1 Randbedingungen bei der Implementierung

Die in dieser Arbeit entwickelten Kern-Abbrandmodelle werden im folgenden verwendet, um drei verschiedene alternative Brennstoffzyklen zu simulieren. Hierbei handelt es sich um einen Uran-Plutonium-Mischoxid-Zyklus und zwei Brennstoffzyklen mit Thorium als primärem Resonanzabsorber. Die entsprechenden Brennstoffzusammensetzungen werden jeweils in den fünf besprochenen Reaktortypen eingesetzt. Im einzelnen sind dies:

- MOX-Zyklus: ein Uran/Plutonium-Mischoxid-Zyklus auf der Grundlage von abgereichertem Uran und einem standardisierten LWR-Plutonium-Vektor,
- ThHEU-Zyklus: ein Thorium-Zyklus mit hochangereichertem Uran als Makeup-Spaltstoff,
- ThPu-Zyklus: ein Thorium-Zyklus mit dem o. g. standardisierten LWR-Plutonium-Vektor als Makeup-Spaltstoff.

Bei der Implementierung der drei neuen Brennstoffzyklen in die Kern-Abbrandmodelle werden folgende Randbedingungen eingehalten, um die Vergleichbarkeit der Zyklen untereinander zu gewährleisten:

- das neue Brennelement soll die gleiche Schwermetall-Atomzahldichte wie zuvor im Standard-LEU-Zyklus besitzen,
- der BE-Zielabbrand soll identisch mit dem des Standard-LEU-Zyklus sein,
- der am Ende einer Abbrandperiode berechnete Multiplikationsfaktor der Anordnung muß demjenigen des Standard-LEU-Zyklus entsprechen³⁷.

Die für den MOX- und den ThPu-Zyklus verwendete Plutonium-Zusammensetzung [45] ist in Tabelle 23 dargestellt. Bei der Auswahl eines *repräsentativen* LWR-Plutonium-Vektors ist eine gewisse Willkür unvermeidlich, da durch den im Laufe der Zeit stetig gesteigerten Zielabbrand der LWR-BE die Pu-Zusammensetzung des Entladevektors verändert wird. Weiterhin spielt die Zeitspanne zwischen Entladung aus dem Reaktor und tatsächlichem Einsatz im neuen Reaktor — nach erfolgter Rezyklierung und Verarbeitung zu neuen BE — eine Rolle, da sich der Pu-Vektor durch den radioaktiven Zerfall des Pu-241 kontinuierlich ändert.

³⁷Somit ist gewährleistet, daß die Anordnung, d. h. das den Reaktorkern repräsentierende Kern-Abbrandmodell, bis zum Ende einer Abbrandperiode kritisch gehalten werden kann.

Isotop	Pu-238	Pu-239	Pu-240	Pu-241	Pu-242
Anteil	1 %	62 %	24 %	8 %	5 %

Tabelle 23: Standardisierter Pu-Vektor für den MOX-/ThPu-Zyklus[47]

In dieser Arbeit wird ein Mittelweg gewählt und es wird eine Pu-Zusammensetzung entladener LWR-Brennelemente verwendet, die auch in anderen nuklearen Rechenprogrammen und internationalen Studien über Brennstoffkreisläufe[47] gebräuchlich ist.

Die Pu-Zusammensetzung in Tabelle 23 resultiert aus einem DWR-16x16-BE mit 35 MWd/kg_{SM} Abbrand und einer Abklingzeit von ca. drei Jahren. Das in den ThHEU-Zyklen verwendete hochangereicherte Uran hat eine Anreicherung von 93 % Uran-235. Für den MOX-Zyklus wurde in den meisten Fällen abgereichertes Uran mit einer Anreicherung von 0,2 % verwendet.

Durch das leicht unterschiedliche Atomgewicht von Thorium und Uran-238 kommt es im Fall der Thorium-Zyklen zu geringeren Schwermetallmassen pro Brennelement. Dies wiederum führt zu geringfügig unterschiedlichen Standzeiten der Brennelemente, da für alle Brennstoffzyklen ein identischer Zielabbrand (bezogen auf eine Gewichtseinheit eingesetzten Schwermetalls) gefordert wird.

Da es sich bei der Untersuchung der alternativen Brennstoffzyklen in erster Linie um eine Grundsatzstudie handelt, aus der eine Tendenz und eine generelle Vergleichbarkeit der Zyklen und Konzepte herausgearbeitet werden soll, werden hier keine Aussagen über Temperatur- oder Voidkoeffizienten der Brennelemente getroffen. Soweit erforderlich, wird jedoch einer geänderten Überschußreaktivität zu Zyklusbeginn durch eine entsprechende Regelgiftanpassung Rechnung getragen³⁸.

Die Tabellen 24 bis 27 enthalten die verwendeten Brennstoffparameter für den Standard-LEU-Zyklus sowie für die drei alternativen Brennstoffzyklen, mit denen die Vorgaben der Implementierungs-Randbedingungen erreicht werden.

Generell gelingt die Implementierung der alternativen Brennstoffzyklen in die Kern-Abbrandmodelle auf Grundlage der Standard-LEU-Zyklen problemlos. Lediglich die Gesamt-Spaltstoffanreicherung muß von Fall zu Fall angepaßt werden, da sich das Verhältnis von totalem makroskopischen Spalt- und Absorptions-Wirkungsquerschnitt bei den geänderten Nuklidkonzentrationen in den BE verschiebt.

Beim MOX-Zyklus zeigt sich, daß die auf Natururan basierenden Reaktorkonzepte (Magnox, Candu) ohne eine Erhöhung der Gesamtanreicherung auskommen, obwohl dem Brennstoff durch die gradzahligen Pu-Isotope starke Neutronenabsorber hinzugefügt werden. Der RBMK und der LWR benötigen jedoch eine erhöhte Anreicherung als Ausgleich.

³⁸Die Brennstoffzyklen müßten eigentlich anhand eines detaillierten Reaktorkernmodells optimiert und in Hinblick auf eine zu jeder Zeit sichere Regelbarkeit ausgelegt werden. Dieses umfangreiche Vorhaben ist jedoch nicht Ziel dieser Arbeit.

Anreicherung %	Magnox	Candu	RBMK	LWR	OTTO
U-235 zu Uran-total	0,71	0,71	2,0	4,0	8,66
U-235 zu SM-total	0,71	0,71	2,0	4,0	8,66
Pu-fis zu SM-total	–	–	–	–	–
Spaltstoff zu SM-total	0,71	0,71	2,0	4,0	8,66

Tabelle 24: Charakteristische Brennstoffparameter für den LEU-Zyklus

Anreicherung %	Magnox	Candu	RBMK	LWR	OTTO
U-235 zu Uran-total	0,198	0,198	0,198	0,198	7,63
U-235 zu SM-total	0,196	0,196	0,192	0,179	6,93
Pu-fis zu SM-total	0,51	0,50	1,88	6,42	6,35
Spaltstoff zu SM-total	0,70	0,70	2,07	6,60	13,29

Tabelle 25: Charakteristische Brennstoffparameter für den MOX-Zyklus

Für den ThHEU-Zyklus ist für alle Konzepte eine Erhöhung der Gesamtanreicherung erforderlich, um der geänderten totalen Absorption in den BE (vor allem durch den Resonanzabsorber Thorium) gerecht zu werden. Gleiches gilt für den Thorium-Zyklus mit Plutonium als Spaltstoff.

Im Fall des HTR OTTO zeigt sich, daß bei Einsatz von rezykliertem LWR-Plutonium der Aufbau des parasitären Plutonium-242-Isotopes die Neutronenabsorptionsbilanz bei längeren BE-Standzeiten dominiert. Das führt dazu, daß die Plutonium-Zyklen für den beim OTTO-Zyklus charakteristischen einmaligen Einsatz der Brennelementkugeln nicht den geforderten Zielabbrand erreichen können. Einzig durch die Zugabe von einer geringen Konzentration HEU im ThPu-Zyklus als Makeup-Spaltstoff kann der geforderte Zielabbrand verwirklicht werden.

Aus den gleichen Gründen gestaltet sich für das HTR OTTO-Konzept der MOX-Zyklus als problematisch. Es gelingt nur, den BE-Zielabbrand zu erreichen, wenn eine vergleichbare Urananreicherung wie im LEU-Zyklus verwendet und das LWR-Plutonium lediglich im Austausch für den ursprünglichen U-238-Anteil zugegeben wird. In diesem Fall wird der Effekt der zusätzlichen Reaktivität durch die spaltbaren Plutoniumisotope im Laufe des Abbrands durch die aus dem Plutonium entstehenden Neutronengifte gerade kompensiert. Somit kann in der Bilanz über die gesamte Standzeit der BE — im Unterschied zu den anderen Reaktorkonzepten — kein Netto-Reaktivitätsgewinn durch die Verwendung von LWR-Plutonium erzielt werden³⁹.

³⁹Abhilfe könnte hier ein reduzierter Zielabbrand oder, wie in der Arbeit von [48] gezeigt, ein Mehrfachdurchlauf der Brennelemente schaffen. Bei dem Konzept des Mehrfachdurchlaufs ist es möglich, Plutonium und Uran auf unterschiedliche Brennelemente zu verteilen und verschieden oft den HTR-Kern durchlaufen zu lassen. Bei Sortierung der einzelnen BE nach Abzug aus dem Kern können definierte BE-Zielabbrände verwirklicht werden. Mit diesem sogenannten *Feed-Breed*-Konzept kann im Mehrfachdurchlauf [48] und bei gewissen Optimierungen von HTR-Betriebsbedingungen und Brennelementzusammensetzungen sehr erfolgreich Plutonium im HTR genutzt und umgewandelt werden. Der Hochtemperatur-Kugelhaufenreaktor besitzt besonderes Potential bei der Brennstoffeinsatzplanung un-

Anreicherung %	Magnox	Candu	RBMK	LWR	OTTO
U-235 zu Uran-total	92,9	92,9	92,9	92,9	92,9
U-235 zu SM-total	1,73	1,73	2,79	4,60	8,81
Pu-fis zu SM-total	–	–	–	–	–
Spaltstoff zu SM-total	1,73	1,73	2,79	4,60	8,81

Tabelle 26: Charakteristische Brennstoffparameter für den ThHEU-Zyklus

Anreicherung %	Magnox	Candu	RBMK	LWR	OTTO
U-235 zu Uran-total	–	–	–	–	92,9
U-235 zu SM-total	–	–	–	–	2,2
Pu-fis zu SM-total	1,37	1,41	2,72	6,88	8,78
Spaltstoff zu SM-total	1,37	1,41	2,72	6,88	10,99

Tabelle 27: Charakteristische Brennstoffparameter für den ThPu-Zyklus

9.2 Ausgewählte Isotopen-Bilanzen der Brennstoffzyklen

Im folgenden werden die Uran-233/235-, Plutonium- und MA-Bilanzen, die sich bei der Simulation mithilfe der Kern-Abbrandmodelle ergeben haben, für den Standard-LEU-Brennstoffzyklus und die drei alternativen Brennstoffzyklen diskutiert⁴⁰.

9.2.1 Uran-233/235-Bilanz

Die Abbildungen 33 bis 37 stellen die Uran-233/235-Spaltstoffbilanzen der betrachteten Brennstoffzyklen zusammen. Hierbei werden für jedes Reaktorkonzept von der ursprünglich eingesetzten Menge Uran-235 (pro GW_{th}) die Anteile unterschieden, die durch Neutroneneinfang zum nächsthöheren Isotop transmutiert, in situ gespalten bzw. schließlich nach der kompletten Standzeit (und damit ungenutzt) entladen wurden.

Abbildung 33 belegt die für den LEU-Zyklus bereits angedeutete Eigenschaft der weitestgehenden in situ Nutzung des Uran-235-Spaltstoffes (siehe Kapitel 7). Eine Ausnahme bildet der Magnox-Reaktor aufgrund seines geringen Ziel-Abbrands. Zu kleinen Anteilen wird Uran-235 durch Neutroneneinfang in Uran-236 und Nachfolgeisotope umgewandelt. Die beste Brennstoffnutzung, d. h. das größte Verhältnis zwischen in situ Spaltung einerseits und Entladung und Neutroneneinfang andererseits bietet der HTR OTTO-100 Referenzreaktor.

Die Uran-235-Bilanz für den MOX-Zyklus zeigt Abbildung 34. Erwartungsgemäß ist die umgesetzte Uran-235-Menge pro thermischen Gigawattjahr deutlich kleiner als im LEU-Zyklus (siehe den Skalierungsunterschied der y-Achse zwischen Abb. 33 und Abb.

ter Mehrfachdurchlauf, was einer effizienten Plutoniumverbrennung entgegenkommt.

⁴⁰Die in Kapitel 7.2 enthaltenen Pu- und MA-Aufbauraten für den LEU-Brennstoffzyklus liefern zum Teil geringfügig unterschiedliche Zahlen als die im folgenden vorgestellten LEU-Bilanzen. Das liegt an einer geringfügigen Anpassung der Kern-Abbrandmodelle für den hier durchgeführten Vergleich der Brennstoffzyklen.

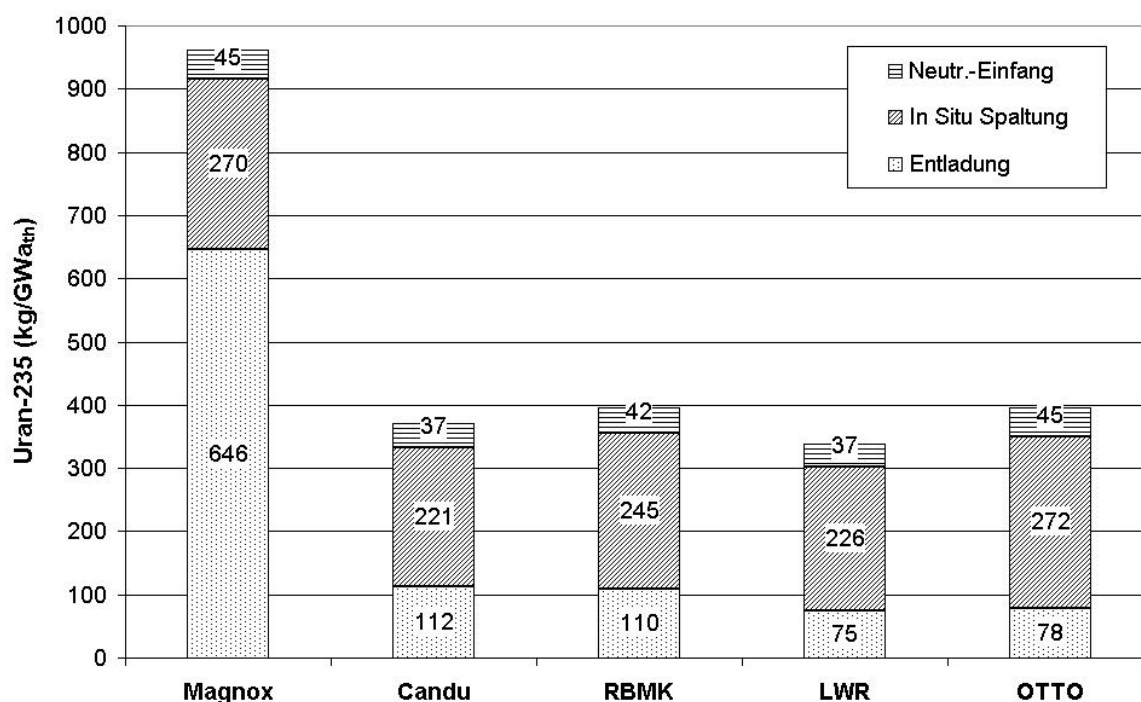


Abbildung 33: Uran-235-Bilanz (LEU)

34), da über die gesamte Zyklusdauer die Plutoniumfraktion des Spaltstoffes verstärkt an den Spaltungen teilnimmt. Je nach Differenz zum Anreicherungsgrad des Urans im LEU-Zyklus ist dieser Abfall von links nach rechts in Abbildung 34 immer stärker ausgeprägt. Ausnahme bildet hier lediglich der HTR OTTO-100, dessen MOX-Zyklus statt mit abgereicherter nur mit angereicherter Uranfraktion realisierbar ist. Damit bleibt der Uran-235-Anteil am Spaltstoff mit einem hohen Anteil an den Spaltungen dominierend.

Für den ThHEU-Zyklus müssen getrennte Bilanzen für die zwei bedeutenden Spaltstoffe ausgewiesen werden. Abbildung 35 zeigt die Uran-235-Bilanz.

Auffällig ist einerseits, daß generell für alle Reaktorkonzepte der Uran-235-Einsatz höher ausfällt als im LEU-Zyklus. Das gilt besonders für den Magnox (ca. 250 %) und ist bei dem RBMK, dem LWR und dem HTR OTTO mit unter 25 % Zunahme weit weniger ausgeprägt. Der Grund hierfür – wie auch für die allgemein höhere in situ Spaltungsrate – liegt in den im Vergleich zum Uran-238 erhöhten parasitären Eigenschaften des Thoriums als Resonanzabsorber. Deshalb ist es nötig, eine höhere Spaltstoffanreicherung im ThHEU-Zyklus zu Beginn des Zyklus einzustellen als im LEU-Zyklus (siehe Tabellen 24 und 26). Mit steigendem Ziel-Abbrand des Reaktors wird dieser Zwang immer geringer, da Uran-233 als Brutprodukt des Th-232 vermehrt an den Spaltungen beteiligt wird.

Abbildung 36 zeigt die korrespondierende Uran-233-Bilanz für den ThHEU-Zyklus. Im Vergleich zur Uran-235-Bilanz sind folgende Unterschiede signifikant:

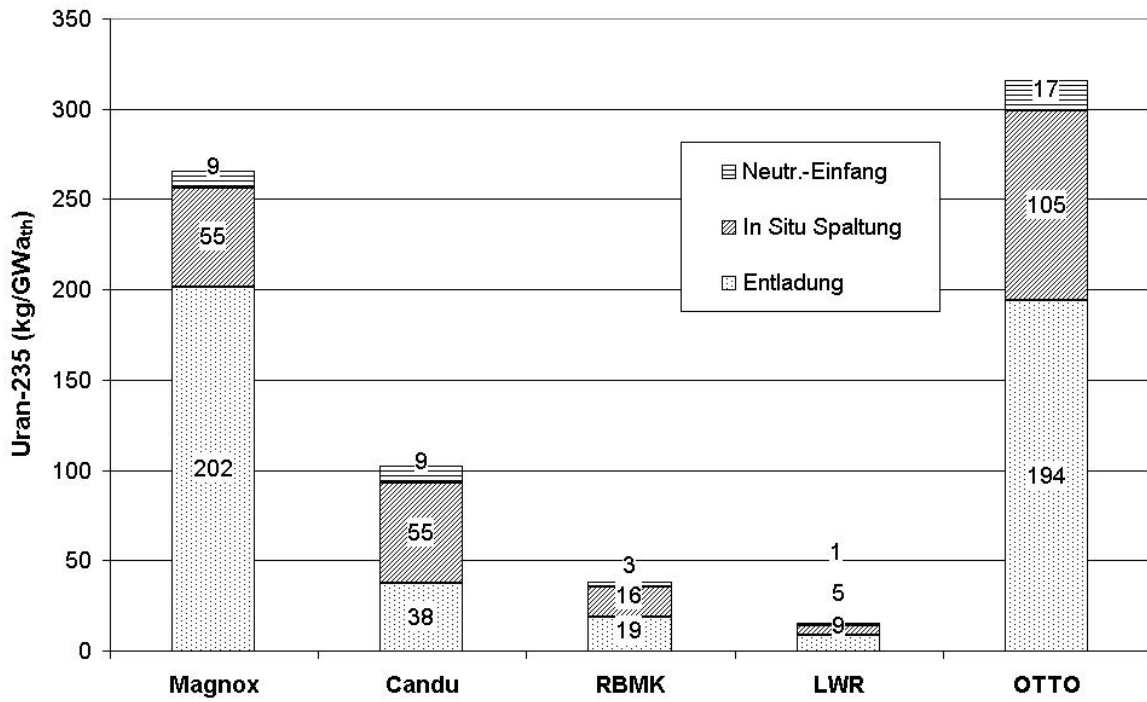


Abbildung 34: Uran-235-Bilanz (MOX)

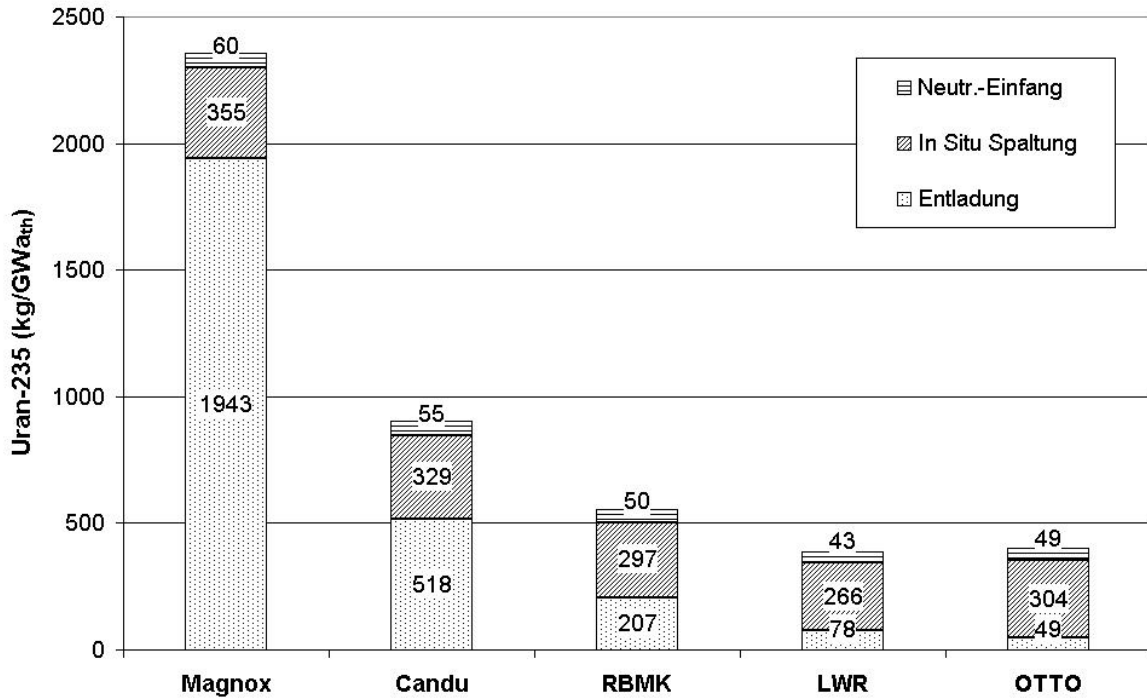


Abbildung 35: Uran-235-Bilanz (ThHEU)

- Der Anteil entladenden Spaltstoffes im Vergleich zum genutzten und umgewandelten Spaltstoff ist deutlich höher als beim Uran-235. Hier könnte somit wertvoller Spaltstoff durch Rezyklierung gewonnen werden.
- Mit zunehmendem BE-Abbrand übernimmt das Uran-233 einen Teil der Gesamtsplattungen im Brennstoff. Eine tendenzielle Ausnahme bildet nur der HTR OTTO-100, dessen frische BE eine deutlich höhere Uran-235-Splattstoffkonzentration besitzen und deshalb die Uran-235-Fraktion zu jeder Zeit den Hauptanteil an der totalen Splattrate stellt.
- Eine erheblich geringere parasitäre Neutroneneinfangrate im Uran-233 gegenüber dem Uran-235 aufgrund der besseren nuklearen Spalteigenschaften des Uran-233.

Je nach Reaktorkonzept beteiligt sich das neu gebildete Uran-233 in der Gesamtbilanz zwischen 10 % (Magnox) bis zu einem Drittel (LWR) an den Gesamtsplattungen. Der benötigte Spaltstoffeinsatz in den frischen BE ist im ThHEU-Zyklus generell höher, wird jedoch durch den hohen Anteil von Uran-233 in den entladenen BE (Rezyklierungsoption!) und durch eine sehr günstige Pu- und MA-Entladebilanz (hierzu später) mehr als ausgeglichen.

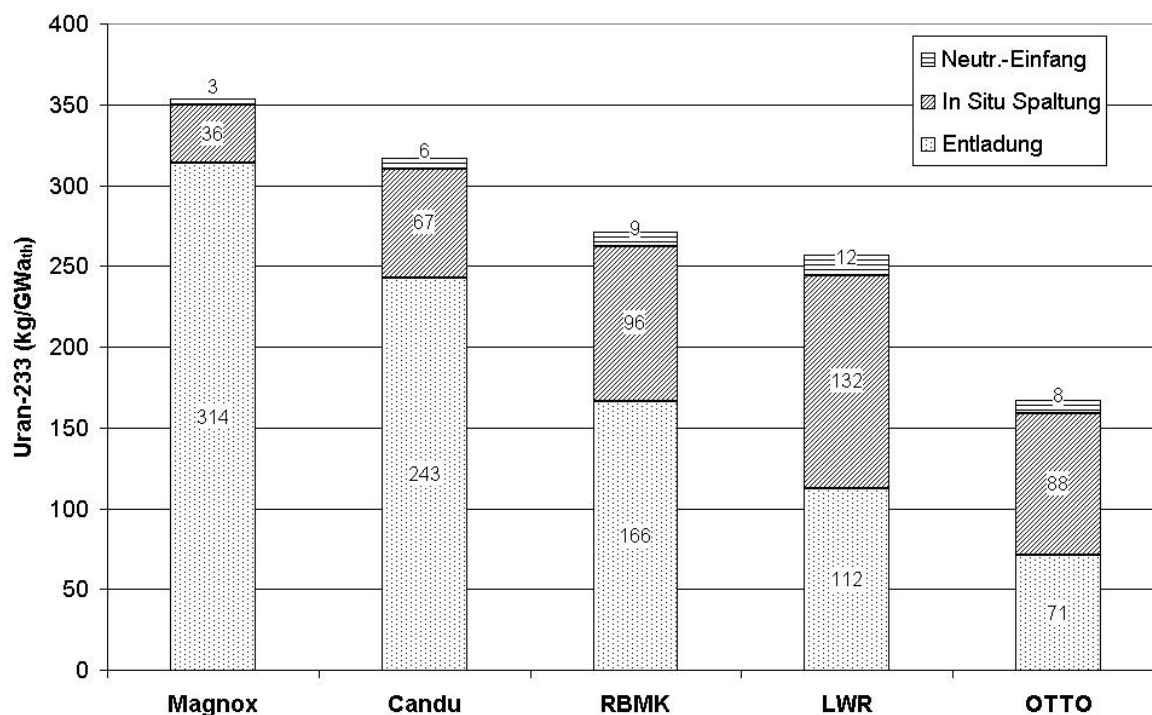


Abbildung 36: Uran-233-Bilanz (ThHEU)

Abbildung 37 zeigt die Uran-233-Bilanz für den ThPu-Zyklus. Der ThHEU-Zyklus und der ThPu-Zyklus unterscheiden sich hauptsächlich durch den verwendeten Spaltstoff in

den frischen BE. Bei ersterem handelt es sich um Uran-235 in großer Anreicherung, bei dem ThPu-Zyklus um die spaltbaren Plutoniumisotope des LWR-Pu-Vektors.

In erster Näherung muß für das Aufbauverhalten des Uran-233 in beiden Zyklen eine sehr ähnliche Charakteristik vermutet werden, denn hierfür ist vor allem die Aufbaurrate im Thorium-232 entscheidend. Diese wiederum hängt hauptsächlich von der Neutronenflußhöhe und dem Spektrum ab.

Auf den ersten Blick erstaunlich ist deshalb der Unterschied der absoluten Höhe des Uran-233-Inventars pro GW_{th} zwischen dem ThPu-Zyklus in Abbildung 37 und dem ThHEU-Zyklus in Abbildung 36. Die Uran-233-Bildung ist im ThPu-Zyklus um etwa ein Drittel geringer als im ThHEU-Zyklus. Die anteilige in situ Spaltung sowie die Transmutation durch Neutroneneinfang fällt zumeist deutlich kleiner aus als im ThHEU-Zyklus. Aus diesem Grund ist auch die Beteiligung des Uran-233-Isotops an der Gesamtsplattungsrate im ThPu-Zyklus erheblich geringer.

Besonders auffällig ist der Unterschied im Fall des RBMK. Beim RBMK liegt für beide Zyklen praktisch eine identische Spaltstoffanreicherung in den frischen BE vor (siehe Tabelle 27). Bei gleichem Zielabbrand der beiden Zyklen ist der deutliche Unterschied der Uran-233-Bilanzen beim RBMK somit offensichtlich auf das unterschiedliche Neutronenspektrum und die vollständig verschiedene Neutronenökonomie in beiden Zyklen zurückzuführen⁴¹. Dieses Fallbeispiel offenbart jedoch die Gefahr, einer verlockenden Pauschal-Logik nachzugehen, ohne sicherheitshalber die Komplexität der wahren nuklearen Zusammenhänge zu untersuchen.

Zusammenfassend ergibt sich somit das folgende Bild:

- Thorium-Brennstoffzyklen erbrüten netto Uran-233, das entweder in einem Rezyklisierungsschritt wiedergewonnen werden kann (empfehlenswert bei kleinen bis mittleren Abbränden) oder, bei größeren BE-Zielabbränden, maßgeblich zur Streckung des BE-Spaltstoffes beiträgt (HTR OTTO) und damit den BE-Zielabbrand erhöht.
- Der ThHEU-Zyklus ist — hinsichtlich der HEU-Nutzung — nur für mittlere bis hohe Zielabbrände sinnvoll, da sonst ein Großteil der ursprünglich eingesetzten Spaltstofffraktion ungenutzt in den entladenen Brennelementen verbleibt.
- Für beide Th-Zyklen ist aufgrund der vergrößerten Absorption des Thorium im thermischen Energiebereich⁴² ein deutlich höherer Spaltstoffeinsatz als für die Uran-238-Zyklen nötig.

⁴¹Hier könnte eine detaillierte Analyse des nuklearen Zusammenhangs folgen, die jedoch ein eigenes Kapitel beanspruchen und den Rahmen dieser Arbeit sprengen würde.

⁴²Im epithermischen Energiebereich absorbiert Thorium erheblich weniger als Uran-238. Das Resonanzintegral ist nämlich um das zwei- bis dreifache kleiner und damit die Thermalisierung der Neutronen deutlich besser. Zudem hat Thorium keinen signifikanten Schnellsplatt-Wirkungsquerschnitt gegenüber beispielsweise dem Uran-238, das im LWR für ca. 7 % der Spaltungen verantwortlich ist (siehe Tab. 21).

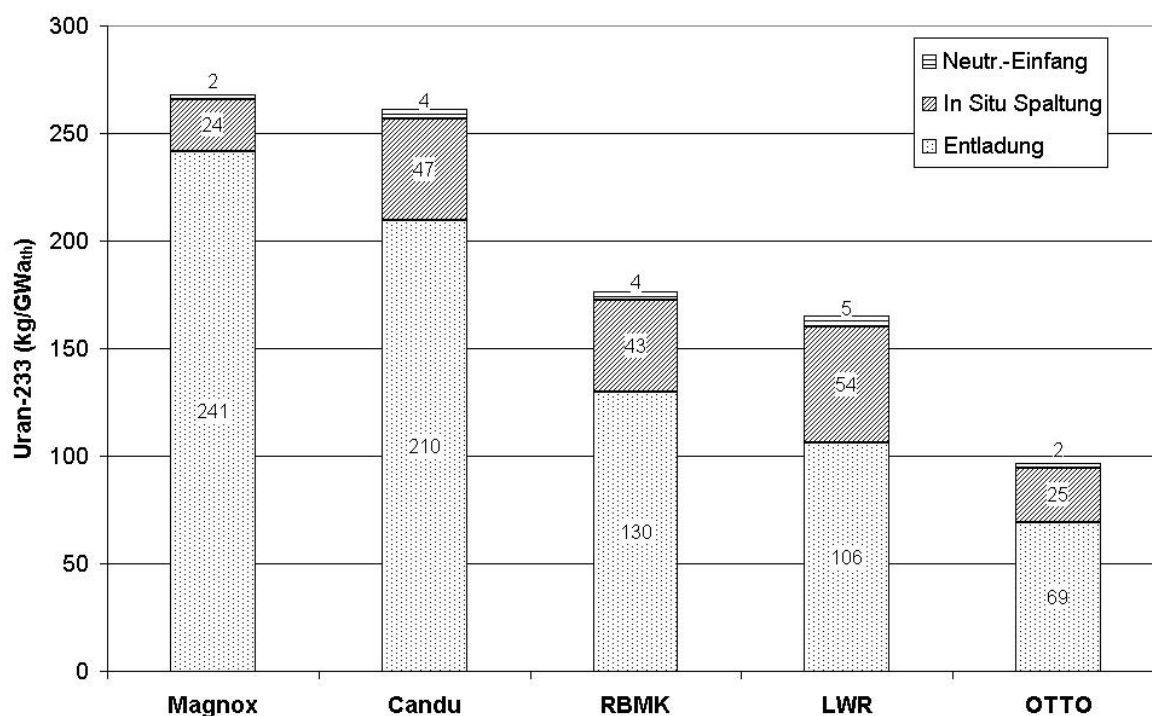


Abbildung 37: Uran-233-Bilanz (ThPu)

9.2.2 Plutonium-Bilanz

Die Abbildungen 38 bis 41 stellen die Plutonium-Bilanzen der vier untersuchten Brennstoffzyklen zusammen. Plutonium besitzt eine wichtige Schlüsselrolle unter allen neugebildeten Isotope in einem Reaktor (Transurane und Spaltprodukte). Zum einen ist es ein problematisches Element bzgl. Entlademenge und Toxizität im Hinblick auf die langen Zeiträume des zu gewährleistenden sicheren Einschlusses für die Endlagerung. Weiterhin ist es oftmals das Plutonium, das die Proliferationsgefahr für einen bestimmten Brennstoffzyklus begründet.

Aus diesen Gründen soll zum einen die Frage beantwortet werden, ob im entsprechenden Brennstoffzyklus eine gute in situ Nutzung des vorhandenen Plutoniums stattfindet. Gleichzeitig soll die Menge entladenen Plutoniums pro geleisteter Energieeinheit möglichst minimiert werden.

Der Vergleich von Plutonium Einsatz und -entlademenge ist ein direktes Maß dafür, inwieweit Plutonium generell genutzt bzw. transmutiert wird. Hierbei sind sowohl die Verhältnisse der unterschiedlichen Aufbau- und Vernichtungsraten wie auch deren absolute Größe von Bedeutung, denn letztere bestimmt die absoluten Pu-Umsatzraten.

Für einen optimierten Th-HEU-Zyklus im HTR können diese Nachteile des Thorium-Zyklus zum Teil abgefangen werden, so daß letztendlich beim HTR sogar 10–15 % weniger Uran-235-Spaltstoffbedarf verwirklicht werden kann als beim LEU-Zyklus. Beim LWR ist das allerdings nicht möglich, weil dort — im Gegensatz zum HTR — der Uran-238-Schnellspaltbonus besteht (siehe Tab. 21)[6].

Abbildung 38 zeigt die Plutoniumbilanz für den Standard-LEU-Zyklus. Zum einen fällt die schon in Kapitel 7 diskutierte Abhängigkeit der absoluten Pu-Entlademenge pro $\text{GW}_{\text{a,th}}$ vom Reaktorkonzept auf. Der HTR OTTO-100 präsentiert sich hierbei mit Abstand am günstigsten, sowohl was die Menge an entladenen Plutonium als auch was das Verhältnis von in situ Nutzung zu Entladung betrifft. Beide Eigenschaften sind sowohl eine Funktion des Zielabbrands als auch des im Reaktorkern vorherrschenden Neutronenspektrums.

Bei der in situ Nutzung ist allgemein zu beachten, daß zwar die Spaltrate der Plutoniumisotope die Transmutationsrate übersteigt, jedoch fällt unter den Begriff *Nutzung* in diesem Fall auch die Transmutation der höheren Plutoniumisotope in die MA-Fraktion des entladenen Brennstoffs — die Schattenseite hoher in situ Nutzung (dazu im nächsten Abschnitt mehr).

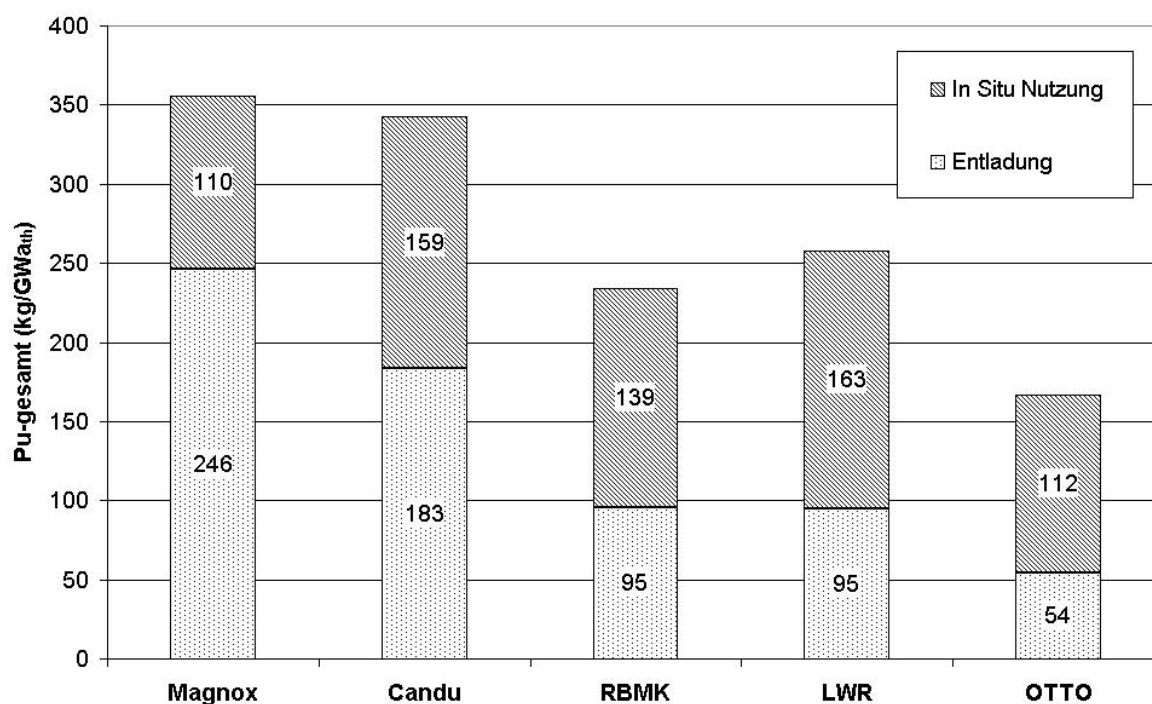


Abbildung 38: Plutonium-Bilanz (LEU)

Abbildung 39 zeigt die entsprechende Bilanz für den MOX-Zyklus. Zum einen fallen die bis knapp auf den Faktor drei unterschiedlichen Einsatzmengen pro $\text{GW}_{\text{a,th}}$ auf. Der Candu-Reaktor beispielsweise arbeitet hier sehr neutronenökonomisch. Allerdings ist auch — bedingt durch den Pu-Einsatz in den frischen BE — die insgesamt in situ umgesetzte Pu-Menge erheblich größer als im LEU-Zyklus.

Beim MOX-Einsatz steht vor allem in jüngerer Zeit weniger die Spaltstoffnutzung als vielmehr die Plutoniumvernichtung durch in situ Nutzung im Vordergrund. Hier kann

wiederum die Relative (bezogen auf die ursprüngliche Einsatzmenge) von der absoluten Vernichtung (bezogen auf die Differenz zwischen Einsatz und Entladung) unterschieden werden. Niedrig abbrennende Reaktoren wie der Magnox und der Candu besitzen hier klare Nachteile. Der RBMK weist eine um mehr als ein Drittel reduzierte Entlademenge auf (bezogen auf die Pu-Einsatzmenge), während der LWR in diesem Punkt den Spitzenplatz einnimmt.

Der HTR OTTO-100 ist nur mit einer Teil-MOX-Beladung zu betreiben (bei den vorgegebenen Randbedingungen, siehe Abschnitt 9.1 und Tabelle 25), so daß zu etwa gleichen Anteilen der niedrig angereicherte Uranbrennstoff als auch der MOX-Brennstoff gemeinsam in obige Bilanz eingehen. Würde hier die Trennung von Uran- und MOX-Brennstoff in verschiedene Kugeln vorgenommen⁴³, so könnte die ohnehin gute, relative in situ Plutoniumnutzung des OTTO weiter verbessert werden. Lediglich für die absolute Menge des vernichteten Plutoniums pro GW_{th} wird sich der in Abbildung 39 ausgewiesene Wert für den HTR OTTO-100 nicht merklich steigern.

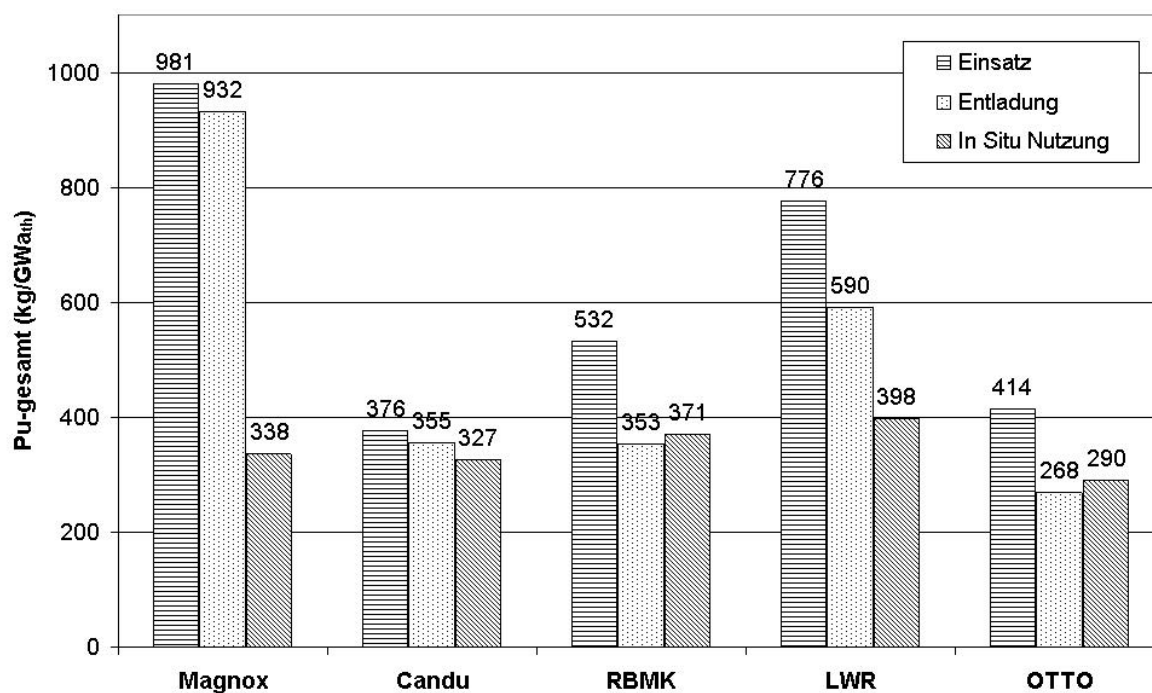


Abbildung 39: Plutonium-Bilanz (MOX)

Abbildung 40 dokumentiert einen ersten Vorteil des Thorium-Brennstoffkreislaufes mit hochangereichertem Uran: die Pu-Entlademenge pro GW_{th} liegt ca. um den Faktor 25 (!)

⁴³Aufgrund der vorher in Kapitel 5 beschriebenen Eigenschaften des OTTO-Reaktorkerns und der großen Neutronendifusionslängen mit entsprechender Beeinflussung des Spektrums über ausgedehnte Kernregionen ist bei der Trennung des Brennstoffs in zwei verschiedene Brennelemente nur eine geringfügige Änderung des Neutronenspektrums zu erwarten. Die Aufbauraten der einzelnen Nuklide sollten damit – in erster Näherung – vergleichbar ausfallen.

niedriger als in den vergleichbaren LEU–Standard–Zyklen und um mehr als zwei Größenordnungen (!) günstiger als in dem MOX–Zyklen.

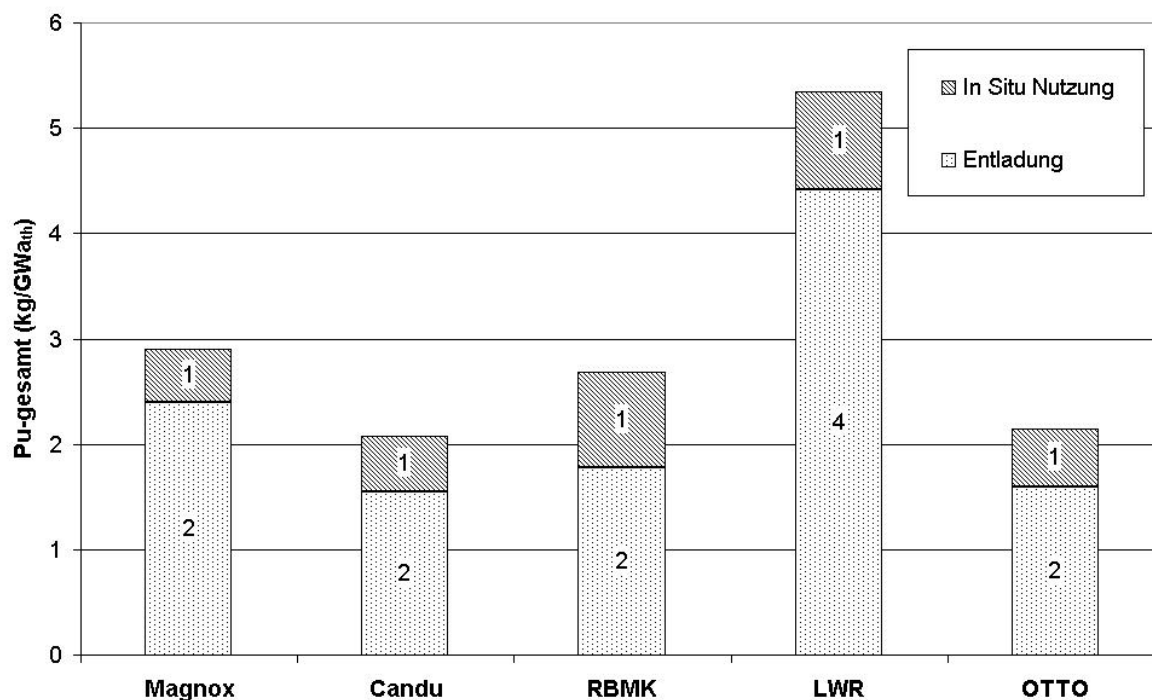


Abbildung 40: Plutonium–Bilanz (ThHEU)

Abbildung 41 veranschaulicht die Änderung für den Thorium–Zyklus, wenn anstelle des Uran–235 LWR–Plutonium als Spaltstofffraktion im Brennstoff verwendet wird. Durch den Austausch des Resonanzabsorbers (Th–232 für Uran–238) gelingt in den höher abbrennenden Konzepten die Vernichtung des Plutoniums bezogen auf die Pu–Einsatzmenge erheblich besser, denn im ThPu–Zyklus fehlt fast gänzlich das im MOX–Zyklus aufgrund der Einfangreaktionen im Uran–238 neu gebildete Plutonium. Mit dem HTR OTTO–Konzept lassen sich sogar Vernichtungsraten des eingesetzten Plutonium um mehr als 50 % erreichen – und das ungeachtet der geringen Menge HEU als Makeup–Brennstoff (siehe Tabelle 27).

Bei den niedrig abbrennenden Konzepten ist das Potential hinsichtlich der Plutoniumreduzierung im ThPu–Zyklus nicht so ausgeprägt, da eine effiziente in situ Nutzung vorhandenen Plutoniums einen gewissen integralen Neutronenfluß⁴⁴ über die BE–Lebensdauer voraussetzt.

Zusammenfassend sind somit bzgl. der Pu–Bilanzen der alternativen Brennstoffzyklen die folgenden Aussagen zu treffen:

⁴⁴und dieser ist in grober Näherung proportional zum Abbrand

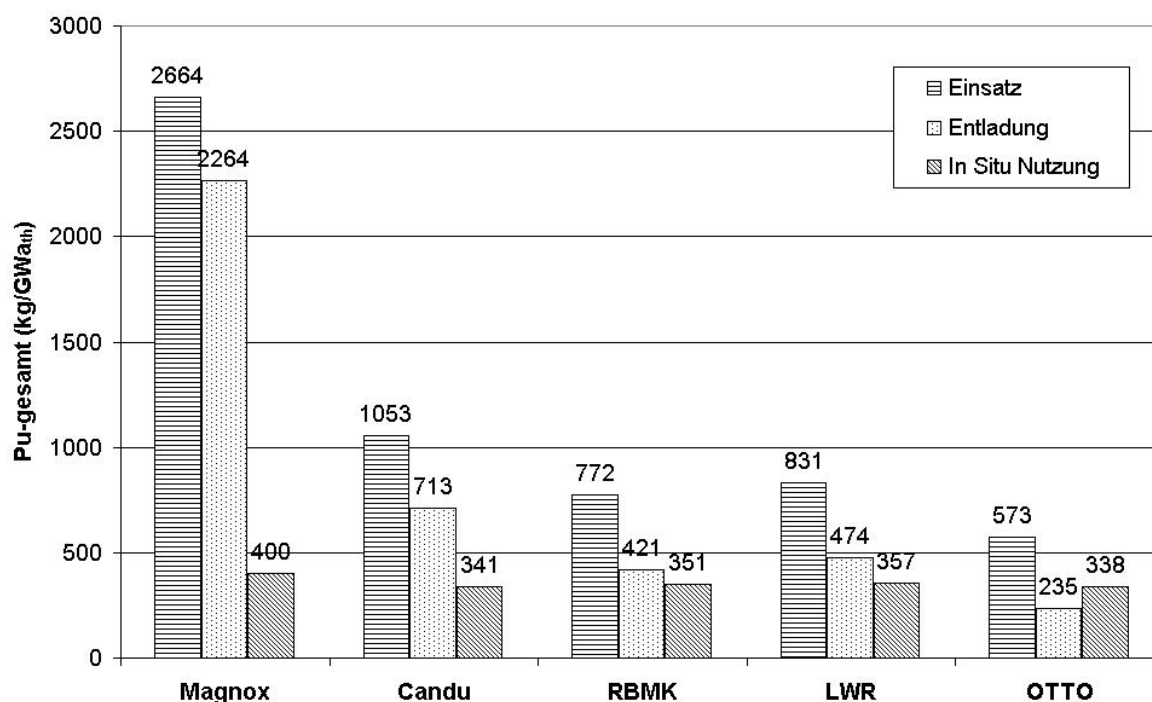


Abbildung 41: Plutonium-Bilanz (ThPu)

- Mit Hilfe des MOX-Zyklus kann Plutonium bei höheren BE-Abbränden relativ effizient genutzt und damit vernichtet werden, jedoch ist die absolute Menge entladenen Plutoniums deutlich größer als 50 % der ursprünglichen Pu-Einsatzmenge.
- Für den ThPu-Zyklus bietet sich gegenüber dem MOX-Zyklus ein insgesamt verbessertes Bild: größere Pu-Einsatzmengen bei gleichzeitig kleineren Pu-Entlademengen lassen Pu-Vernichtungsraten von über 50 % zu.
- Der ThHEU-Zyklus ist im Hinblick auf ein Pu-Minimierungsziel um ein bis zwei Größenordnungen effizienter als der heutzutage übliche LEU-Brennstoffzyklus, erzeugt jedoch Uran-233.

9.2.3 MA-Bilanz

In Bezug auf eine mögliche Proliferationsgefahr spielen die Minoren Aktiniden (MA) entladener Brennelemente eine Nebenrolle, denn die spaltbaren Isotope des MA-Vektors werden durch die nicht spaltbaren, als Neutronengifte wirkenden Isotope zumindest aufgewogen. Hinsichtlich Endlagerfragen besitzen sie jedoch sehr wohl eine große Bedeutung, denn mit ihren zum Teil großen Halbwertszeiten und oft damit verbundenen, hohen toxischen Wirkungen muß die Zeitspanne und die Qualität ihres sicheren Einschlusses gewährleistet

sein⁴⁵

Die im vorherigen Abschnitt begrüßte, hohe in situ Plutoniumnutzung eines Brennstoffzyklus wird jedoch zwangsläufig *erkauft* durch einen verstärkten Aufbau der MA.

Die Abbildungen 42 bis 45 enthalten die zu den Uran- und Plutoniumbilanzen der letzten beiden Abschnitte korrespondierenden MA-Entlademengen und -Zusammensetzungen für den LEU-Zyklus und die drei alternativen Brennstoffzyklen.

Abbildung 42 differenziert die bereits in Kapitel 7.2 vorgestellte MA-Erzeugung im Standard-LEU-Zyklus, indem die Anteile der drei wichtigsten Elemente (Curium, Americium und Neptunium) an der MA-Fraktion des Entladevektors dargestellt sind. Für alle Reaktorkonzepte ist hier der Neptuniumanteil, der fast ausschließlich auf das Np-237-Isotop zurückgeht, dominierend. Die Americium- und Curiumanteile, die erst bei erhöhtem Abbrand verzögert über die Plutonium-Mutternuklide aufgebaut werden, stellen je nach Reaktorkonzept zwischen 20 % und 30 % an der MA-Gesamtmasse.

Generell würde man einen verstärkten MA-Aufbau bei höheren BE-Zielabbränden vermuten (siehe Kapitel 7.2), und Abbildung 42 weist in der Tat das Magnox- und Candu-Konzept mit unter 2 kg MA pro GW_{th} als die Günstigsten aus. Dennoch zeigt Abbildung 42 ebenso, daß der MA-Aufbau mit steigendem Abbrand in verstärkter Weise von den neutronischen Einflußgrößen abhängt, die für jedes Reaktorkonzept grundlegend verschieden sind. Diese Beziehung wurde bereits in Kapitel 7.2 für den Pu-Aufbau festgestellt und gilt für die MA als Tochternuklide der Pu-Isotope umso mehr.

Für die höher abbrennenden Reaktorkonzepte liegt die MA-Entlademenge für den Standard-LEU-Zyklus zwischen 4 – 9 kg/ GW_{th} . Der HTR OTTO-100 produziert hierbei eine für den hohen BE-Zielabbrand äußerst geringe MA-Entlademenge.

Abbildung 43 zeigt die MA-Entladevektoren für den MOX-Zyklus. Die MA-Entlademengen pro GW_{th} sind hier um den Faktor drei bis zehn höher als im LEU-Zyklus. Curium und Americium treten als Hauptbestandteile des MA-Entladevektors auf, da der im LEU-Zyklus dominierende Neptuniumanteil nur noch einen verschwindend geringen Anteil besitzt⁴⁶. Der Nachteil des MOX-Zyklus ist somit direkt ersichtlich: trotz einer mehr oder weniger effektiven Plutoniumverbrennung hat man auf der anderen Seite eine deutlich erhöhte MA-Entlademenge gegenüber dem Standard-LEU-Zyklus.

Beim ThHEU-Zyklus (siehe Abbildung 44) ist durch den lediglich marginalen Uran-238-Anteil im HEU der Neubildung von Plutonium und damit der MA die Basis entzogen

⁴⁵Für die ganz aktuell in Deutschland diskutierten Fragen der Zwischenlagerung und des Transports abgebrannter Brennelemente ist die Charakteristik der MA auslegungsbestimmend. So dominiert beispielsweise die Spontanspaltungsrate des Cm-244-Isotopes die Neutronenquellstärke entladener LWR-BE und bestimmt damit maßgeblich die Auslegung der Neutronenabschirmung von Transport- und Lagerbehältern.

⁴⁶Np-237 wird über den Neutroneneinfang in Uran-235 gebildet, und die Uranfraktion im Brennstoff des MOX-Zyklus ist weitestgehend abgereichert.

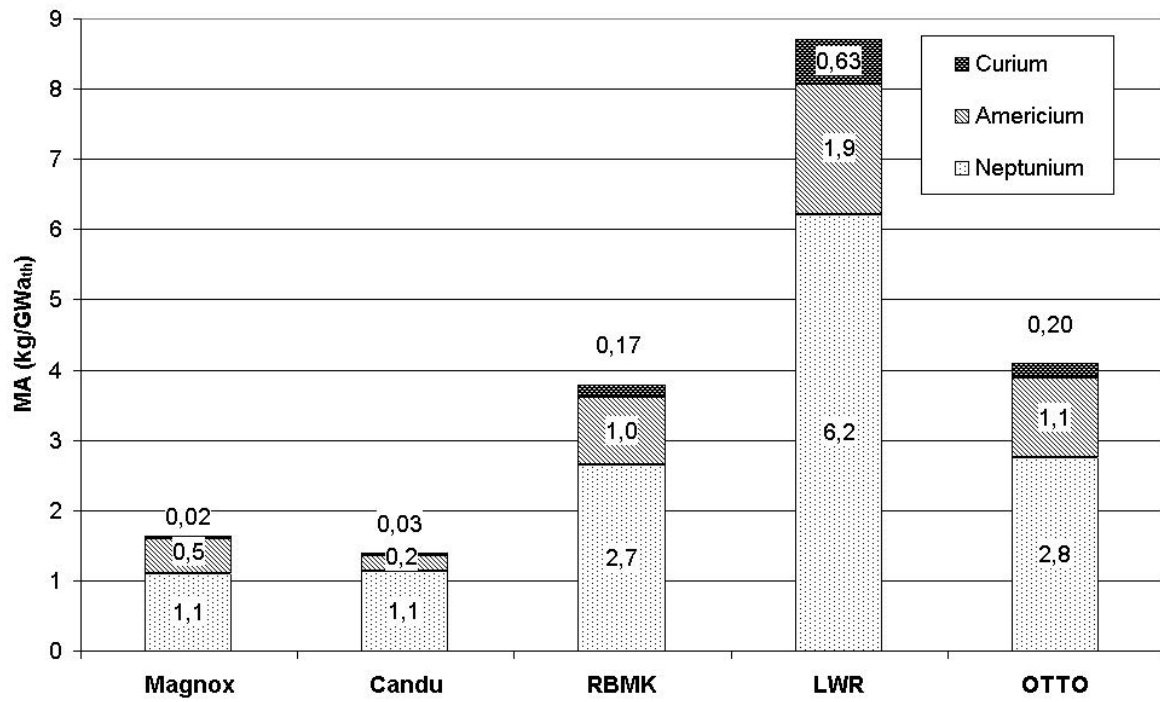


Abbildung 42: MA-Entladung (LEU)

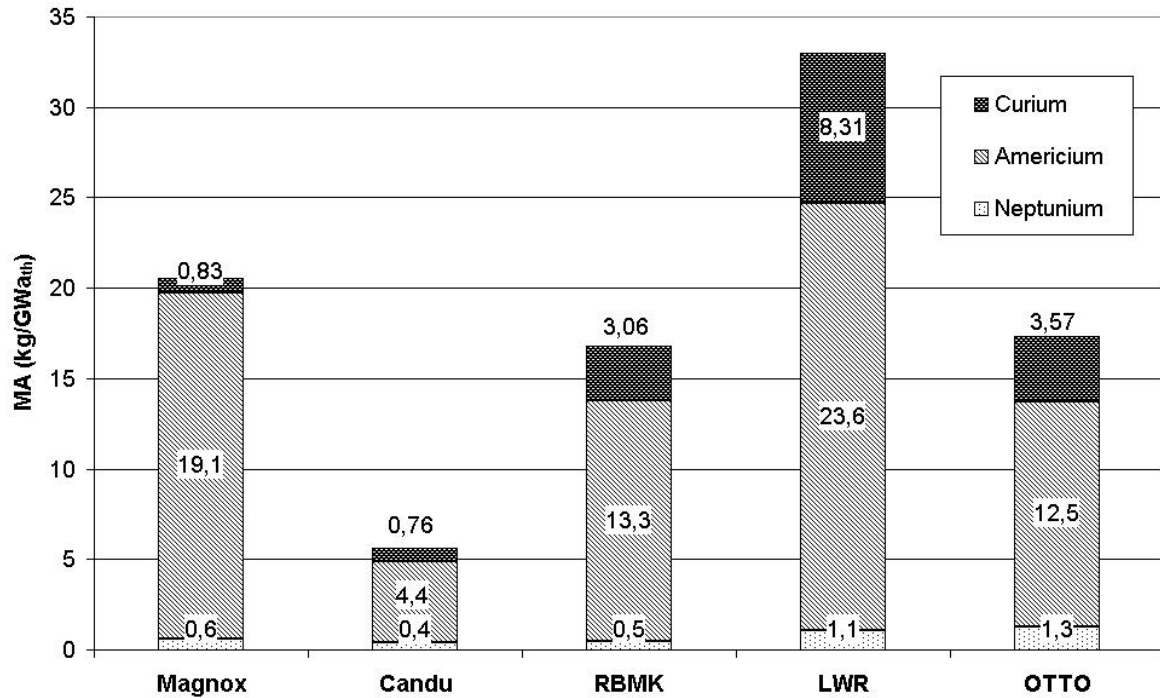


Abbildung 43: MA-Entladung (MOX)

worden. Hier wird nun aus dem Uran-235 fast ausschließlich Np-237 gebildet mit ca. 10 % erhöhter Konzentration im Vergleich zu dem LEU-Zyklus. Aus Sicht der Endlagerung bedeutet die Vermeidung von signifikanten Pu- und MA-Entlademengen beim ThHEU-Zyklus einen erheblichen Vorteil gegenüber den LEU- und MOX-Zyklen. Unter Einsatz von Wiederaufarbeitung und Rezyklierung des entladenen Brennstoffes kann sogar die bereits diskutierte, wertvolle Uran-233-Fraktion der abgebrannten BE in neuen BE verwertet werden.

Unter Proliferationsaspekten stellt der hohe Uran-233-Anteil in den entladenen BE u. U. ein Risiko dar. Ebenso ist die Verwendung von HEU aus dem gleichen Grund politisch nur mit einem großen Fragezeichen durchsetzbar, denn heutzutage führt bereits die geplante Verwendung von kleinen Mengen HEU in Forschungsreaktoren (siehe FRM-II) zu großen Diskussionen in der Öffentlichkeit.

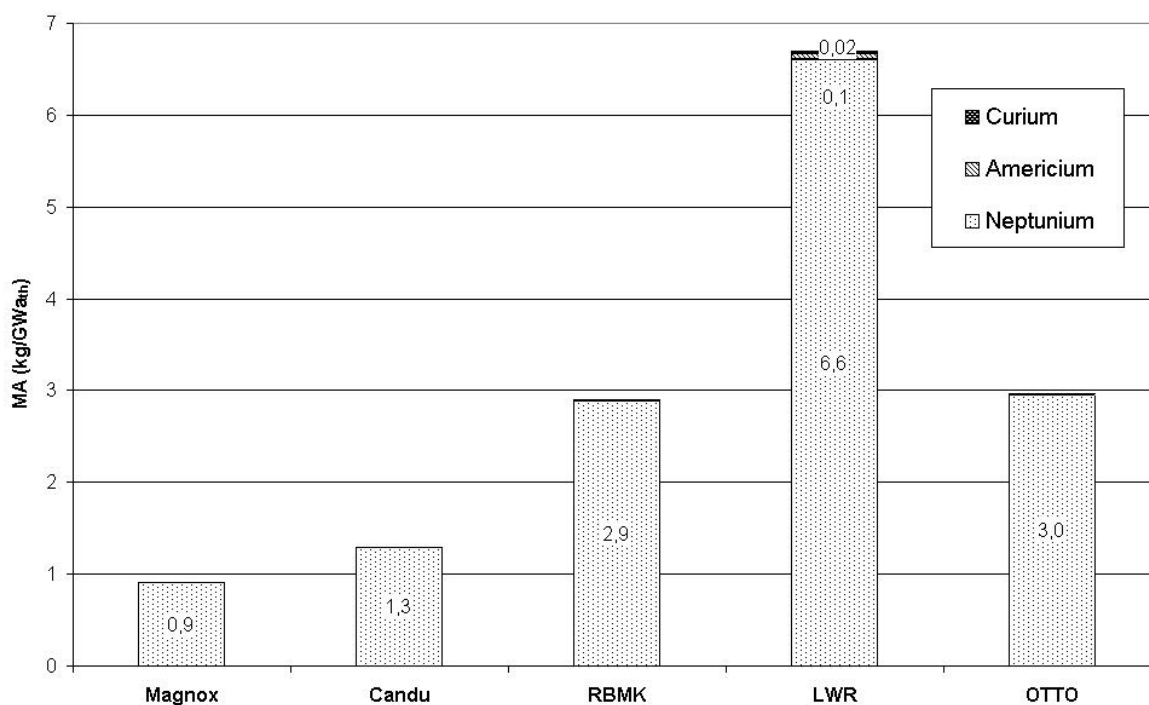


Abbildung 44: MA-Entladung (ThHEU)

Für den ThPu-Zyklus sollte für das MA-Aufbauverhalten eine dem MOX-Zyklus sehr ähnliche Charakteristik erkennbar sein. In beiden Fällen bauen sich die MA überwiegend aus der bereits bei Zyklusbeginn vorhandenen Plutoniumfraktion des Brennstoffes auf. Der Np-237-Aufbau sollte aufgrund der fehlenden Uran-235-Fraktion im ThPu-Zyklus praktisch nicht vorhanden sein.

Abbildung 45 zeigt die MA-Bilanzen für den ThPu-Zyklus. Die etwa um den Faktor Zwei größeren MA-Entlademengen für den Magnox- und den Candu-Reaktor gegenüber

ihren Pendanten im MOX-Zyklus sind ein unmittelbares Resultat der erheblich höheren Spaltstoffanreicherung (siehe Tabellen 20 und 22) und der damit verbundenen erhöhten Plutoniummenge im frischen Brennstoff. Das gleiche Argument gilt auch für die leicht gesteigerte MA-Produktion des RBMK-Reaktors. Da der LWR in beiden Zyklen praktisch mit der gleichen Anreicherung betrieben wird, ist hier ein grundsätzlicher Vergleich des ThPu- und des MOX-Zyklus einfacher zugänglich: der ThPu-Zyklus führt bei gleicher Spaltstoffanreicherung zu einem vergleichbaren MA-Aufbau bei gleichzeitiger Vermeidung des Np-237-Aufbaus — und ist damit insgesamt gegenüber dem MOX-Zyklus bevorteilt, besonders wegen seiner deutlich besseren Pu-Umsatzraten (siehe vorherigen Abschnitt).

Für den HTR OTTO-100 ist die Sachlage verwickelter, da beim MOX-Zyklus nur die Hälfte des Spaltstoffes aus dem LWR-Plutoniumvektor entstammt. Im ThPu-Zyklus des HTR OTTO gibt es andererseits einen kleinen Anteil HEU als Makeup-Spaltstoff. Dies führt zu einem, durch die Uran-235-Fraktion im Brennstoff verursachten, geringfügigen Neptuniumaufbau. Aufgrund des absolut höheren Plutoniumanteils in den frischen BE ist folglich auch der MA-Aufbau im ThPu-Zyklus entsprechend höher als im MOX-Zyklus.

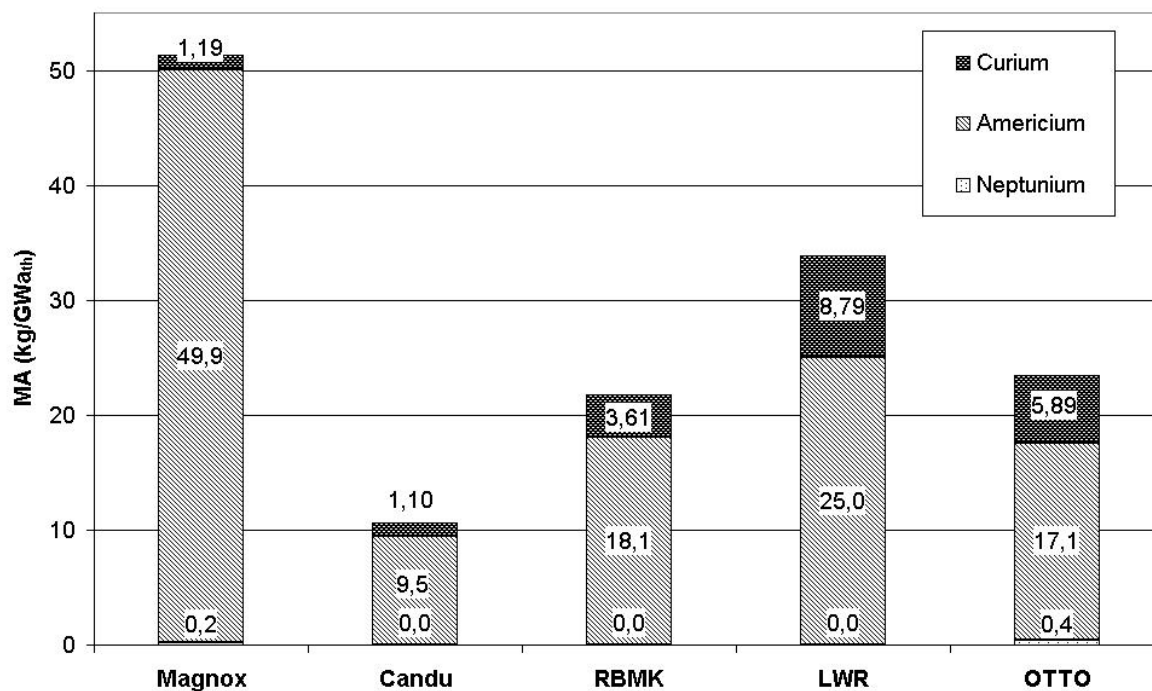


Abbildung 45: MA-Entladung (ThPu)

Insgesamt bleibt hinsichtlich der MA-Produktion folgendes festzustellen:

- Neben der Abbrandabhängigkeit des MA-Aufbauverhaltens gibt es eine deutliche Relation zu der in den Konzepten teils sehr unterschiedlichen Neutronik des Reaktorkerns.

- Die MA-Entlademenge ist in den Zyklen mit Pu-Einsatz drei bis zehn Mal höher als im korrespondierenden LEU-Zyklus.
- Die MA-Produktion im ThHEU-Zyklus ist geringfügig kleiner als im LEU-Zyklus und beschränkt sich fast ausschließlich auf Neptunium-237.
- Der HTR OTTO bietet aufgrund seiner Kernneutronik und Brennstoffeigenschaften in Verbindung mit dem hohen BE-Abbrand den Vorteil einer sehr geringen MA-Produktionsrate.

9.3 Zusammenfassung

Anhand eines einheitlichen Programmsystems (VSOP) wurde eine Simulation von vier Brennstoffzyklen für fünf unterschiedliche thermische Reaktorkonzepte durchgeführt. Hierzu wurden optimierte Kern-Abbrandmodelle der entsprechenden Reaktoren (Konzeptvertreter) verwendet, die sich für die Nachbildung des über den Kern gemittelten Schwermetallaufbaus als geeignet erwiesen haben. Auf diese Weise werden nicht nur qualitative, sondern auch absolute Angaben über die Uran-, Pu- und MA-Bilanzen der einzelnen Konzepte und Brennstoffkreisläufe ermöglicht, die eine Bewertung der auf Pu-Minimierung bzw. -Vernichtung abzielenden alternativen Brennstoffkreisläufe wie auch der Reaktorkonzepte untereinander zulassen.

Es ergibt sich, daß neben der vermuteten Abhängigkeit des Pu- und MA-Aufbauverhaltens vom BE-Abbrandwert auch die konzeptspezifische Neutronik des Reaktorkerns in gleicher Weise einen wichtigen Einfluß auf das Nuklid Aufbauverhalten ausübt.

Die wichtigsten Aussagen können wie folgt zusammengefaßt werden:

- Der PuTh-Zyklus weist in der Regel die beste Pu-Vernichtungs-Bilanz auf.
- Der ThHEU-Zyklus ist hinsichtlich des Pu- und MA-Minimierungszieles dem heutzutage üblichen LEU-Zyklen deutlich überlegen und erbrütet nebenbei neuen Spaltstoff (Uran-233, Rezyklierungsoption). Allerdings beinhaltet er sowohl in den eingesetzten Brennelementen mit hochangereichertem Uran-235 wie auch in der Entladecharge mit Uran-233 proliferationssensible Spaltstofffraktionen.
- Das OTTO-Konzept als Vertreter der graphitmoderierten Hochtemperaturreaktoren bietet durchgängig die günstigsten Eigenschaften bzgl. des Pu- und MA-Minimierungszieles sowie der Pu-Vernichtungsmöglichkeiten. Durch einen Mehrfachdurchlauf der BE-Kugeln (statt des Einfachdurchlaufes wie in der OTTO-Beladestrategie vorgesehen) könnte diese Effizienz durch die gewonnene Beladeflexibilität (Feed-Breed-Partitionen im Kern) noch gesteigert werden.

-
- Die Magnox- und Candu-Konzepte besitzen in erster Linie aufgrund ihrer vergleichsweise geringen BE-Zielabbrände zumeist deutliche Nachteile bzgl. eines Pu-Minimierungs- und -Vernichtungszieles.

10 Zusammenfassung und Diskussion der Ergebnisse

Vor dem Hintergrund des in den nächsten Jahrzehnten zu erwartenden Ausbaus weltweiter Kernenergiekapazitäten wird eine deutliche Zunahme der bereits heutzutage bestehenden radioaktiven Abfallmenge prognostiziert. Die Plutonium(Pu)– und Minoren Aktiniden(MA)–Fraktionen stellen hierbei bzgl. Endlagerungsfragen und unvermeidbarer — nationaler wie grenzüberschreitender — Materialverschiebungen den problematischsten Teil des hochaktiven Abfalls dar. Verantwortlich hierfür sind einerseits die langen Halbwertszeiten der betreffenden Nuklide und deren Radiotoxizitäten sowie die Proliferationsgefahr, die von kernwaffentauglichen Materialzusammensetzungen ausgeht.

Aus diesen Gründen muß nach Lösungen gesucht werden, die Neuproduktion von Plutonium und den Minoren Aktiniden zu minimieren, bestehende Pu–Altlasten zur Energiegewinnung zu nutzen bzw. dadurch zu reduzieren und, um den Mißbrauch von kernwaffentauglichem Material auszuschließen, Sicherheitslücken im Safeguardsystem zu schließen.

In dieser Arbeit wurden fünf wohlbekannte thermische Reaktorkonzepte hinsichtlich ihres Nuklidaufbauverhaltens (Uran, Plutonium und die Minoren Aktiniden) im Standard–LEU⁴⁷–Brennstoffzyklus sowie in drei alternativen Brennstoffzyklen untersucht. Hierzu wurde ein einheitliches Programmsystem (VSOP) genutzt, das in besonderer Weise für die Simulation von Brennstoffkreisläufen und Kernneutronik geeignet ist.

Ausgehend von bestehenden Reaktormodellen wurden für die Aufgabenstellung optimierte Kern–Abbrandmodelle entwickelt, mit deren Hilfe das über den Reaktorkern gemittelte Schwermetall–Aufbauverhalten nachgebildet werden kann. Die Aussagekraft der aus den Kern–Abbrandmodellen resultierenden Nuklidvektoren wurde anhand der bestehenden, bereits verifizierten Reaktormodelle nachgewiesen.

Mit Hilfe der Kern–Abbrandmodelle wurde das Pu–Aufbauverhalten in den fünf Reaktorkonzepten detailliert untersucht. Die dabei involvierten Zusammenhänge zwischen Kernneutronik, Brennelement(BE)–Abbrandwert und BE–Schwermetallzusammensetzung wurden herausgestellt und vor dem Hintergrund eines reaktorkonzept–spezifischen abbrandabhängigen Pu–Vektors beleuchtet.

Die Untersuchungen führten zu dem Ergebnis, daß nicht nur zum Entladezeitpunkt, sondern zu fast allen Zwischenzeitpunkten während der BE–Standzeit im Reaktorkern ein für den jeweiligen Reaktortyp charakteristischer Pu–Vektor vorliegt.

Auf der Grundlage dieser Erkenntnis wurde eine Methodik entwickelt, die einen Pu–Vektor unbekannter Herkunft auf den fraglichen Ursprung in einem der fünf thermischen Reaktorkonzepte überprüft. Die Methodik wurde sowohl mit den berechneten Entladevektoren der Kern–Abbrandmodelle als auch mit zwei Pu–Vektoren aus der Literatur erfolgreich verifiziert. Sie erlaubt, für einen unbekanntem Pu–Vektor eine Vielzahl von möglichen

⁴⁷Low Enriched Uranium

Herkunftsreaktortypen nach dem Ausschlußprinzip zu verwerfen und u. U. sogar den nuklearen Ursprungsort (d. h. Reaktorkonzept) mit gewisser Sicherheit festzustellen.

Mit Hilfe dieser Methodik könnten künftige Pu-Funde bekannter Nuklidzusammensetzung schneller identifiziert und — günstigenfalls — Sicherheitslücken im Safeguardsystem genau lokalisiert werden. Hierzu wäre es wünschenswert, eine über die fünf thermischen Reaktorkonzepte hinausgehende, nukleare Datenbank aufzubauen, um das abgedeckte Spektrum der betrachteten Reaktortypen zu erweitern.

Im letzten Kapitel dieser Arbeit wurden die Kern-Abbrandmodelle verwendet, um neben dem Standard-LEU-Zyklus drei alternative, auf Pu-Vernichtung bzw. Pu/MA-Minimierung abzielende Brennstoffzyklen (MOX⁴⁸, ThPu⁴⁹, ThHEU⁵⁰) zu untersuchen. Durch die Verwendung eines einheitlichen Programmsystems konnten neben den qualitativen auch absolute Angaben über Uran-, Pu- und MA-Entladebilanzen der Reaktorkonzepte für die einzelnen Brennstoffzyklen gewonnen und miteinander verglichen werden.

Je nach Zielrichtung (Pu-Vernichtung, Pu/MA-Minimierung, Spaltstoffausnutzung) zeigen sich für den ein oder anderen Brennstoffzyklus bzw. für bestimmte Reaktorkonzepte deutliche Vorteile. Das graphitmoderierte HTR-Konzept erweist sich durch seine charakteristische Kernneutronik, den hohen BE-Abbrand und nicht zuletzt durch seine Beladeflexibilität als in besonderem Maße für die Pu-Minimierung/-Vernichtung geeignet.

⁴⁸Mixed Oxide Fuel

⁴⁹Thorium-Plutonium

⁵⁰Thorium High Enriched Uranium

A Isotopenaufbau im LEU–Zyklus

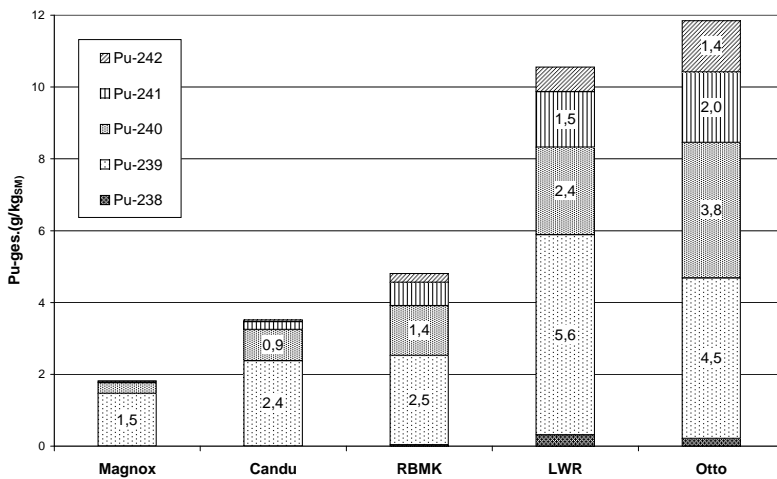


Abbildung 46: Plutonium–Zusammensetzung in den entladenen Brennelementen pro eingesetztem Kilogramm Schwermetall

Der Vergleich der Isotopen–Aufbauraten findet normiert auf die Leistungseinheit von einem Megawatt und als Funktion der BE–Standzeit statt. Zu beachten ist hierbei, daß bei der Normierung auf die Leistung die zugrunde liegende Schwermetallmenge nicht konstant ist. Mit zunehmendem Abbrand wird im allgemeinen eine größere werdende Menge Brennstoff benötigt, um die thermische Leistung des Reaktorkerns aufrechtzuerhalten. Dazu kommt – besonders beim HTR OTTO, daß sich der Neutronenfluß in älteren Brennelementen durch Umladeoperationen in Kernbereichen kleinerer Leistungsdichte beträchtlich ändern kann, so daß ihre Leistung deutlich abnimmt.

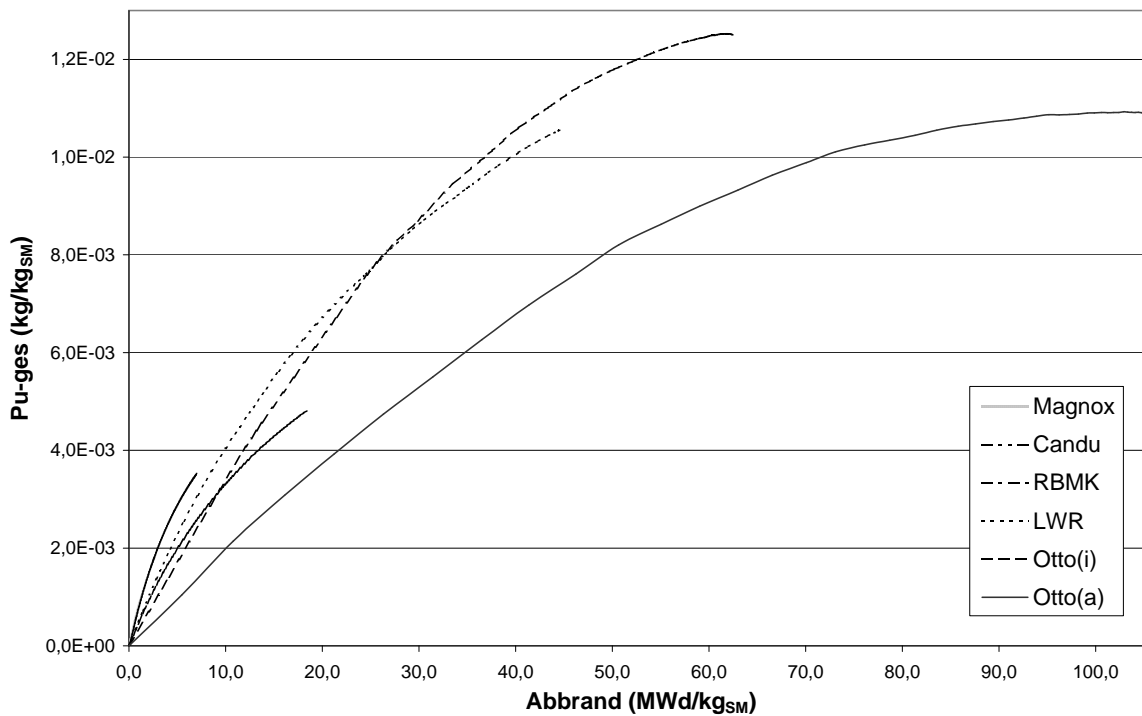


Abbildung 47: Totaler Pu–Aufbau in den Reaktorconcepten

Abbildung 46 zeigt die Plutoniummenge und –zusammensetzung der Entladecharge für

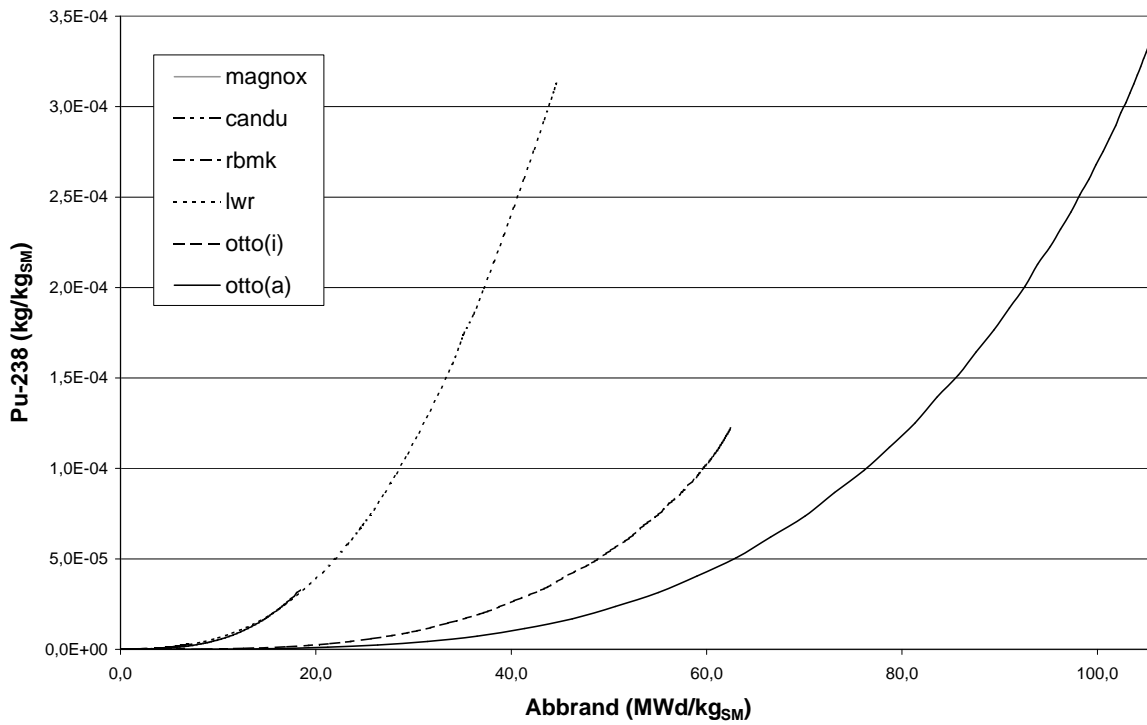


Abbildung 48: Pu-238–Aufbau in den Reaktorkonzepten

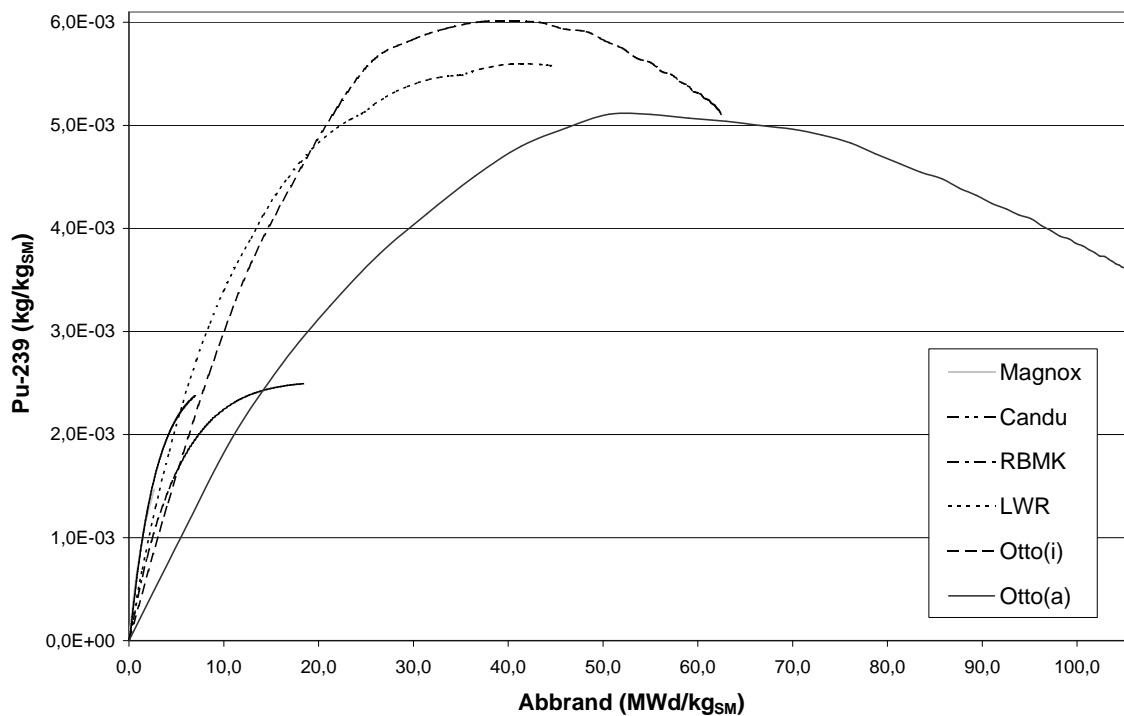


Abbildung 49: Pu-239–Aufbau in den Reaktorkonzepten

die fünf Kern–Abbrandmodelle. Die Pu–Mengenangaben im Standard–LEU–Zyklus sind jeweils bezogen auf ein in den frischen Brennelementen ursprünglich eingesetzten Kilogramm Schwermetalls. Mit anwachsendem Entladeabbrand steigt die totale Plutonium–Entlademenge von links nach rechts in der Abbildung deutlich an. Beispielsweise ergeben sich für den HTR OTTO und den LWR, als Reaktoren mit den höchsten Entladeab-

bränden, mit über 10 g/kg_{SM} mehr als fünfmal soviel Plutonium wie für den Magnox–Reaktor.

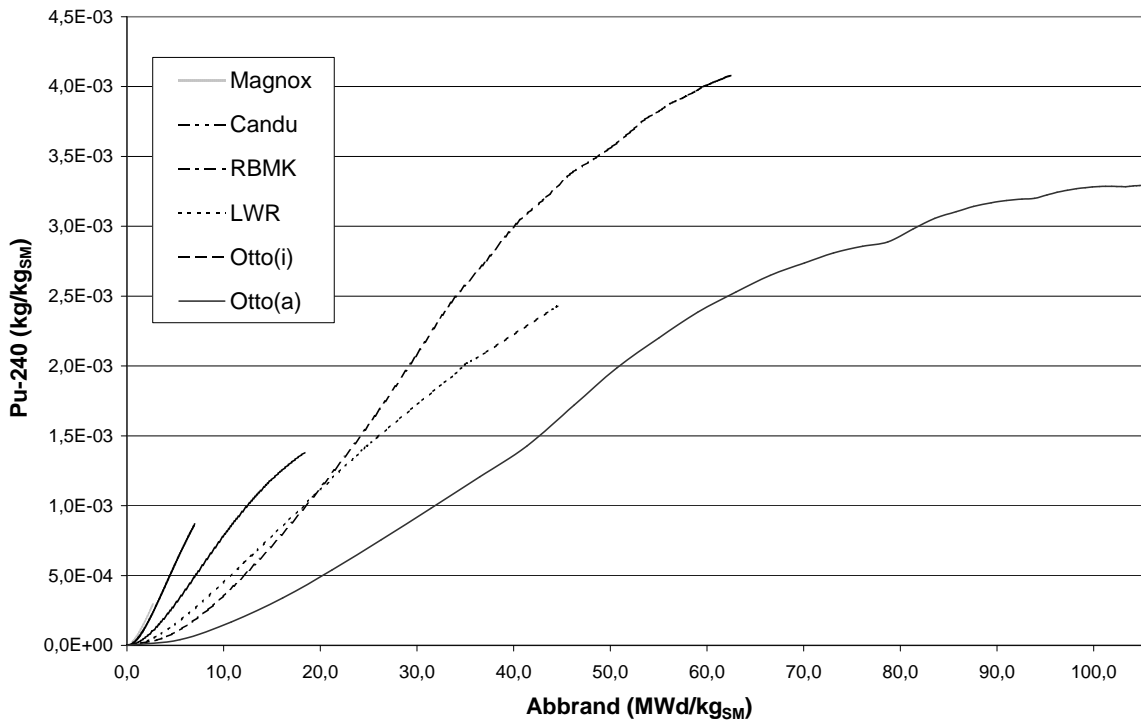


Abbildung 50: Pu-240–Aufbau in den Reaktorkonzepten

Im Folgenden wird das zeitliche Aufbauverhalten für die Plutoniumisotope Pu–238 bis Pu–242 und das Uran–235–Isotop in Ergänzung zu der in Kapitel 7.1 geführten Diskussion beschrieben. Die Abbildungen 47 bis 53 beziehen sich jeweils auf ein zu Zyklusbeginn eingesetztes Kilogramm Schwermetall. Die Diagramme stellen den Aufbau der Isotope als Funktion des BE–Abbrands dar.

Während die Darstellung für das Gesamtplutonium lediglich tendenzielle Differenzen zwischen den Konzepten als Funktion des Abbrands erkennen läßt, bietet Abbildung 48 ein anderes Bild. Der Isotopenaufbau des CANDU– und Magnox–Reaktors ist bei ihren verhältnismäßig kleinen BE–Zielabbränden in der Grafik nicht mehr auflösbar bzw. vollständig durch die anderen Reaktorkonzepte überdeckt. Gut ist jedoch die in Kapitel 7.1 angesprochene hohe Pu–238–Produktion beim LWR zu erkennen. Der äußere HTR OTTO–Kanal erreicht die gleiche Pu–238–Konzentration im BE erst für einen 250 % höheren Abbrand.

Abbildung 49 zeigt für den Pu–239–Aufbau das in den Reaktorkonzepten praktisch konforme Aufbauverhalten der Pu–239– bis Pu–242–Nuklidkette. Vor allem für die ersten Megawatttage ist ein sehr ähnlicher Pu–239–Aufbau zu erkennen. Die Unterschiede in den Konzepten werden bei den nächsten Pu–Isotopen in der Aufbaukette (Abbildungen 50 und 51) sukzessive größer, bis sie beim Pu–242 für jeden Abbrandwert bereits deutlich voneinander verschieden sind (siehe Abbildung 52).

In Abbildung 53 ist schließlich der Abbau der Uran–235–Konzentration wiedergeben. Hier

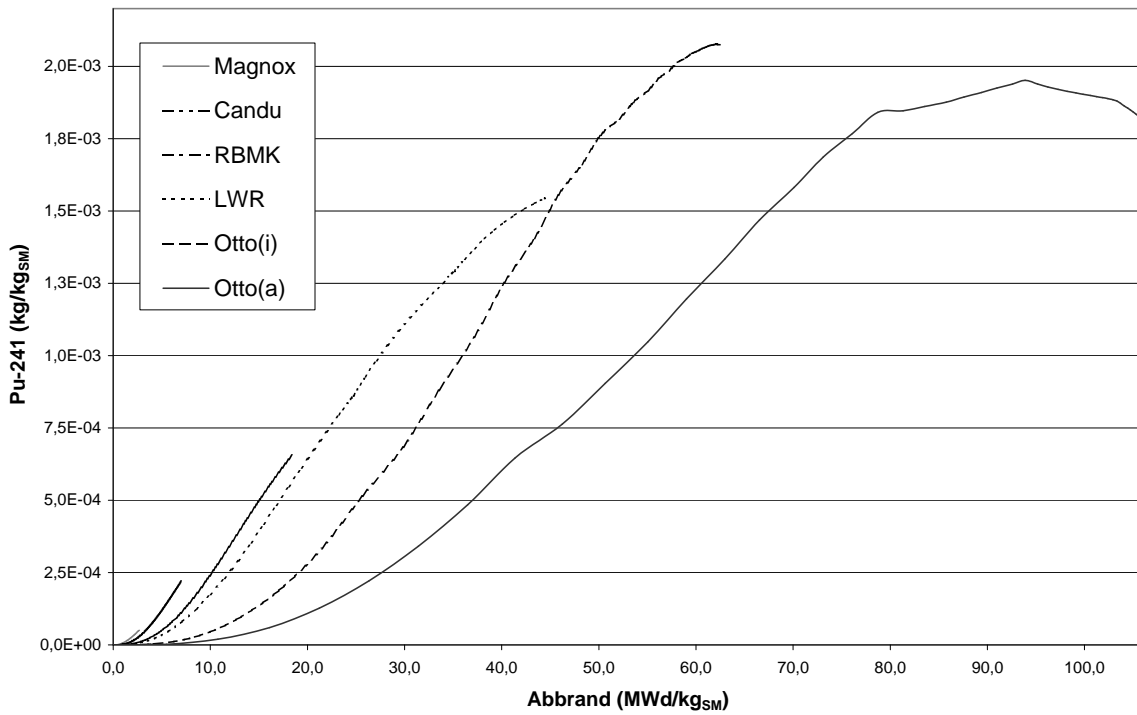


Abbildung 51: Pu-241–Aufbau in den Reaktorkonzepten

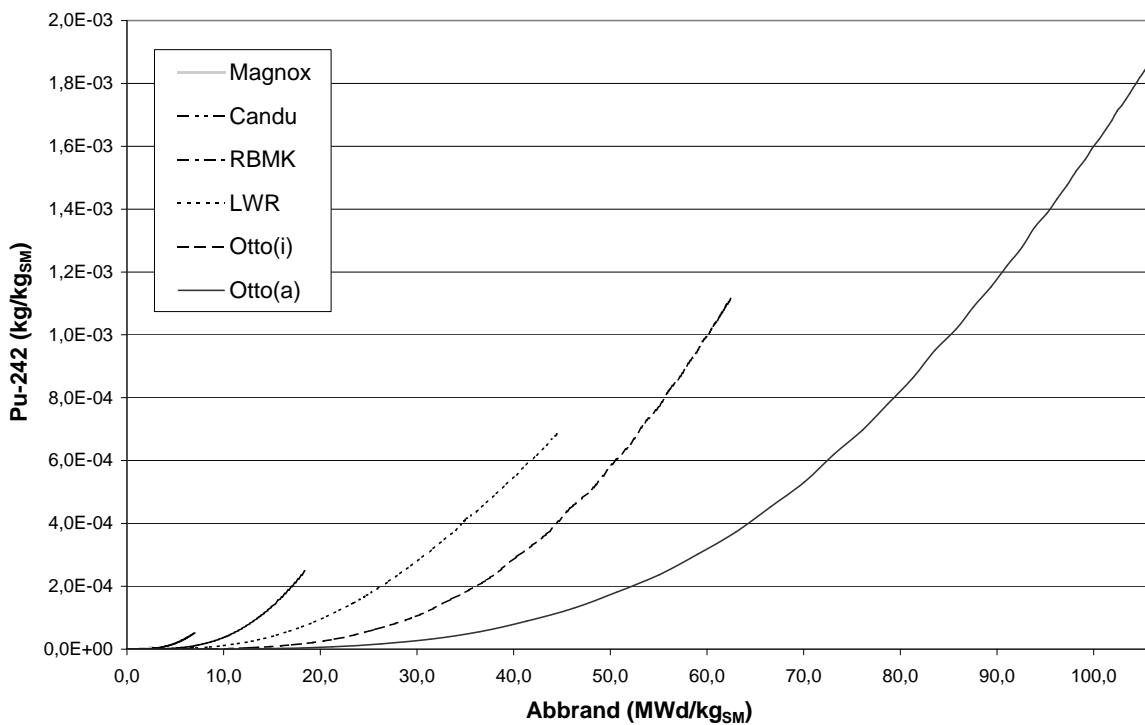


Abbildung 52: Pu-242–Aufbau in den Reaktorkonzepten

zeigen sich folgende Aspekte deutlich:

- Die Konzentration des Uran-235 nimmt fast linear mit zunehmenden BE–Abbrand ab, obwohl bei zunehmendem BE–Abbrand verstärkt die Leistungserzeugung im Kern durch die spaltbaren Plutoniumisotope erfolgt.
- Ferner ist die Uran-235–Konzentration am Zyklusbeginn für jedes Reaktorkonzept

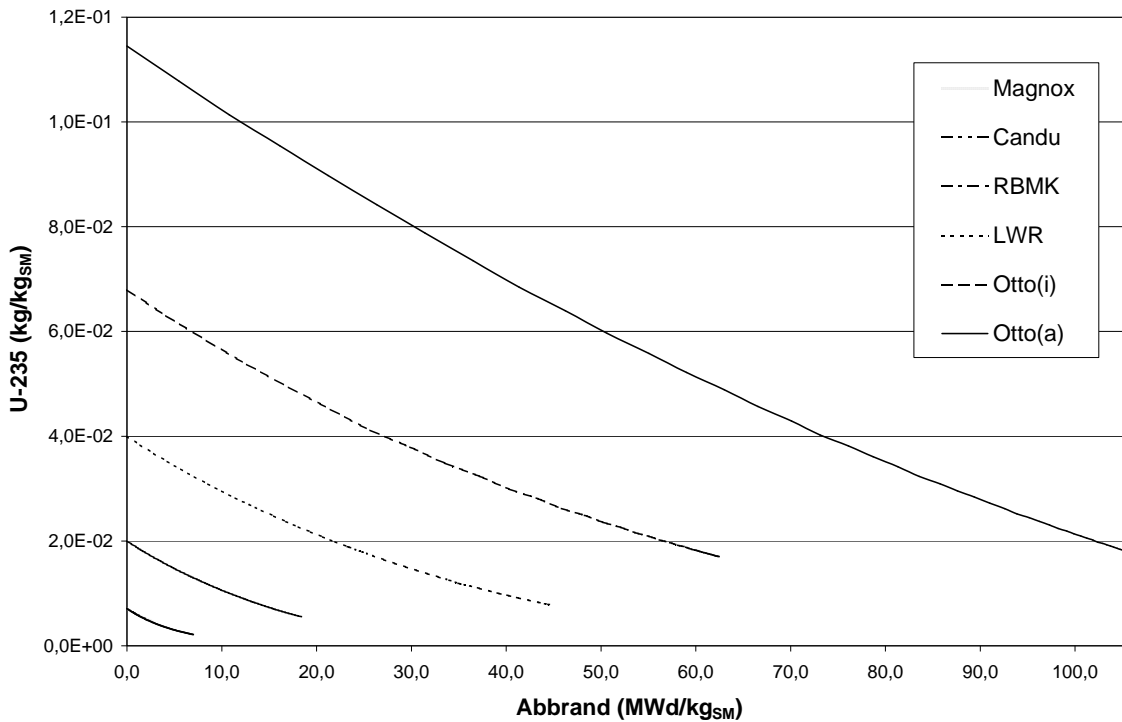


Abbildung 53: Uran-235-Abbau in den Reaktorkonzepten

sehr verschieden, und in Abhängigkeit davon wird das spaltbare Uran-235 unterschiedlich gut bis zum Zielabbrand verwertet. Dabei bleibt etwa beim HTR OTTO-100 ein Urangehalt von fast 2 % als verwertbares Spaltmaterial in den entladenen Brennelementen zurück. Das ist eine Eigenart von hoch abbrennenden Reaktorkonzepten, denn sie benötigen aufgrund der zum Zyklusende größeren Konzentrationen von parasitären Neutronenabsorbern eine höhere mittlere BE-Anreicherung für die Aufrechterhaltung der Kritikalität des Kerns.

Trotz des so unterschiedlichen Aufbauverhaltens — und damit der Verfügbarkeit — der Spaltisotope Pu-239 und Pu-241 liefert in allen Konzepten das Uran-235 den größten Anteil an den Gesamtsplattungen. Abbildung 54 weist hier sogar den am höchsten abbrennenden HTR OTTO zusammen mit dem Magnox-Reaktor als diejenigen aus, in denen Uran-235 den größten Spaltungsanteil in der Zyklusmitte innehat. Beim Magnox-Reaktor beruht dieser Anteil auf dem geringen BE-Abbrand und der Tatsache, daß im Mittel über die gesamte Zykluslänge sehr wenig Pu-239 verfügbar ist (vgl. Abbildung 49). Beim HTR OTTO hingegen ist die Konzentration des Uran-235 zu Zyklusbeginn wesentlich höher und selbst über den gesamten Zyklus gemittelt finden die Splattungen zum größten Teil im Uran-235 statt.

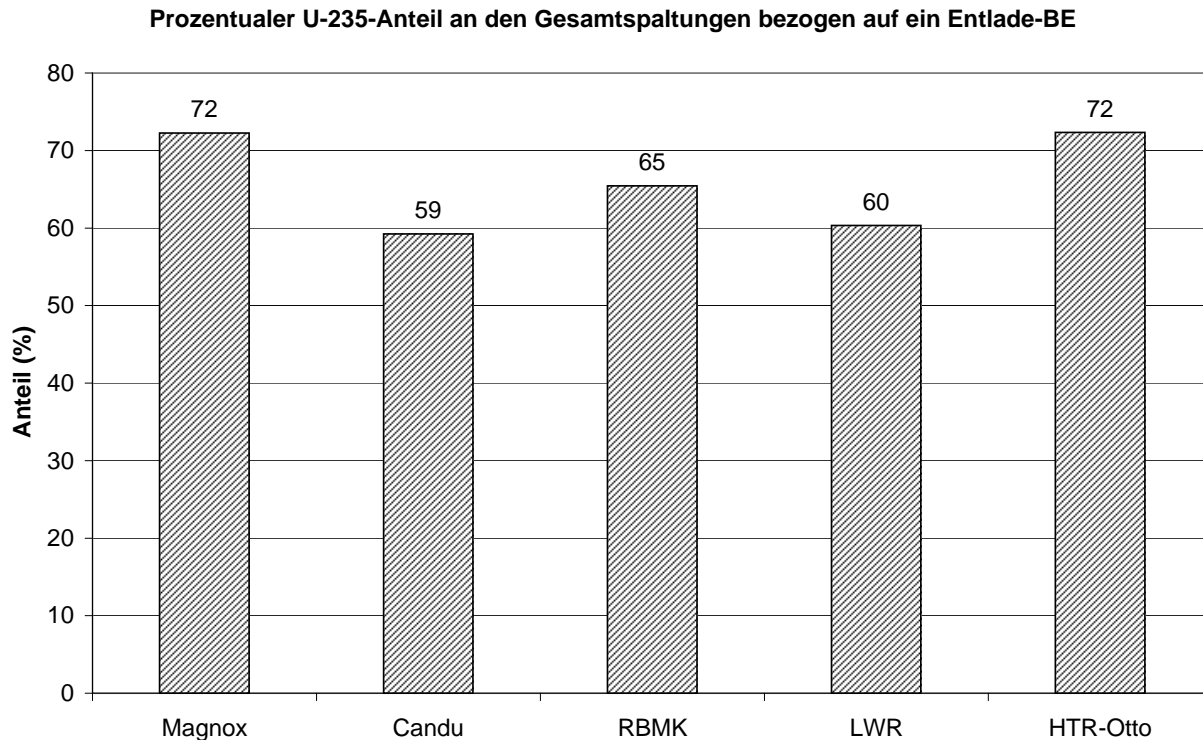


Abbildung 54: Anteil von Uran-235 an den Gesamtsplaltungen (zyklusgemittelt)

B Vervollständigung der Best–Fit–Ergebnisse

Nach den beiden exemplarischen Best–Fit–Diagrammen für den LWR und den äußeren Kanal des HTR OTTO–100 werden hier die Ergebnisse der Best–Fit–Optimierungen für die anderen Referenzreaktoren nachgereicht. Die quantitativen Angaben für alle im folgenden betrachteten Fälle finden sich in Tabelle 22 (Kapitel 8.2)⁵¹. Wie bereits in Kapitel 8 angedeutet, werden nur solche Best–Fit–Ergebnisse diskutiert, die wenigstens für zwei von fünf Pu–Isotope die geforderte 10 % Toleranz zum entsprechenden Referenz–Pu–Vektor erzielen konnten.

Abbildung 55 zeigt den prozentualen Pu–Vektor als Funktion des Abbrands für den Magnox–Reaktor. Bei dem nur kleinen Zielabbrand des Magnox–Reaktors erfolgt ein nur geringfügiger Aufbau des Pu–239 und der höheren Pu–Isotope. Es läßt sich somit kein einziger Pu–Entladevektor der übrigen Reaktoren und der Literatur mit dem Pu–Vektor des Magnox–Referenzreaktors zur Übereinstimmung bringen.

Für den CANDU–Reaktor (siehe Abbildung 56) ergibt sich ein einziges, in die engere Wahl genommenes Best–Fit–Ergebnis mit dem Entlade–Pu–Vektor des Magnox–Reaktors. Eine erste auffällige Differenz besteht jedoch in den Abbrandwerten: 2,7 MWd/kg_{SM} für den Entladevektor des Magnox–Reaktors und 4,2 MWd/kg_{SM} für das Best–Fit–Ergebnis des CANDU. Für die prozentualen Abweichungen der Isotope ist festzustellen, daß die Pu–239–, Pu–240– und Pu–241–Anteile tatsächlich innerhalb der geforderten Fehlergrenzen von 10 % liegen, der Pu–242–Anteil des Magnox–Pu–Vektors (eoc) allerdings einen 20 %

⁵¹Bei allen Diskussionen in diesem Abschnitt sei auch auf die Tabellen in Kapitel 7 verwiesen.

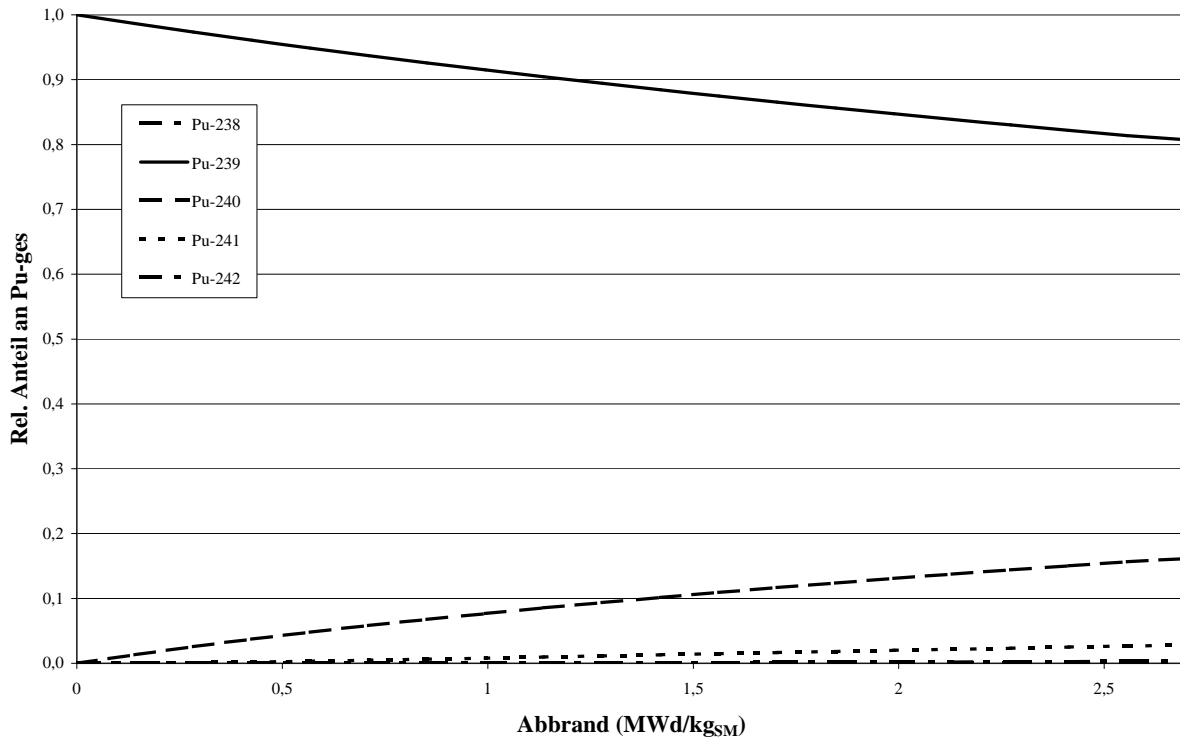


Abbildung 55: Pu-Vektor als Funktion des Abbrands beim Magnox-Reaktor

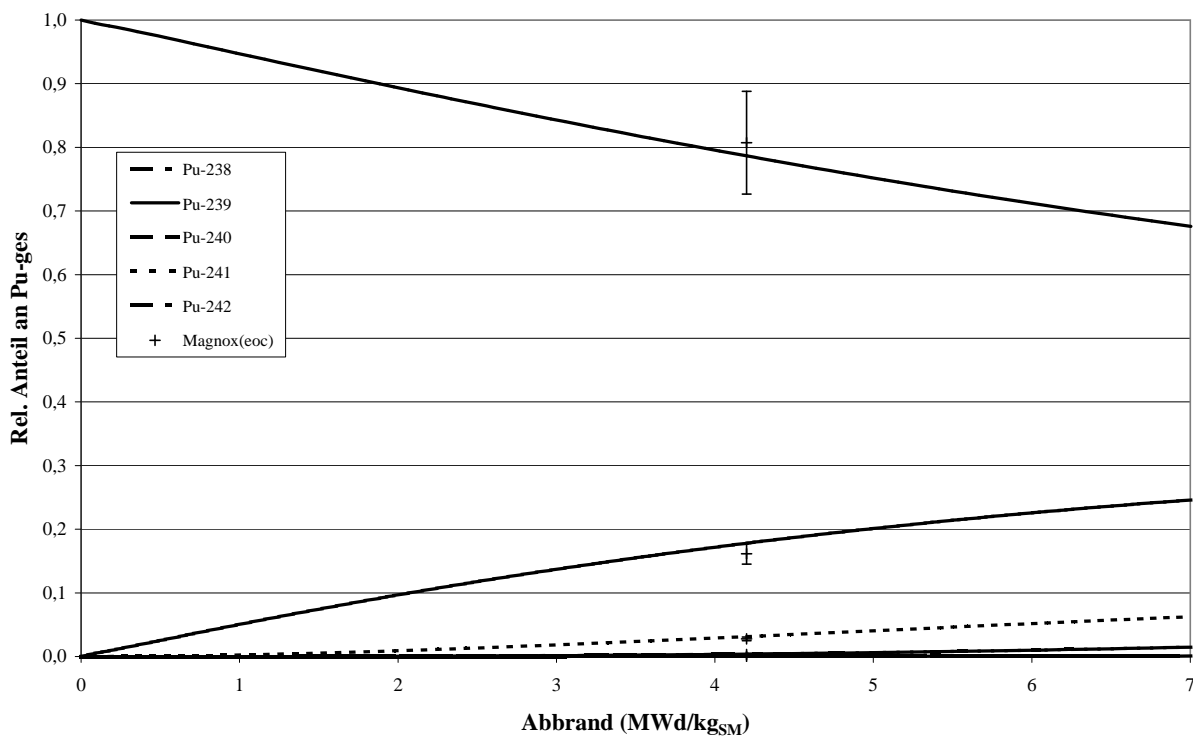


Abbildung 56: Pu-Vektor als Funktion des Abbrands beim CANDU-Reaktor

kleineren Anteil aufweist. Da sich für das verbleibende Pu-238-Isotop ein 60 % höherer Anteil gegenüber dem CANDU-Reaktor ergibt⁵², kann eine Übereinstimmung der beiden

⁵²Pu-238 baut sich im Fall des Magnox-Entladevektors höher auf, da in erster Linie die BE-Standzeit maßgeblich ist, und die ist beim Magnox- gegenüber dem CANDU-Reaktor um fast den Faktor fünf

Vektoren mit großer Wahrscheinlichkeit ausgeschlossen werden.

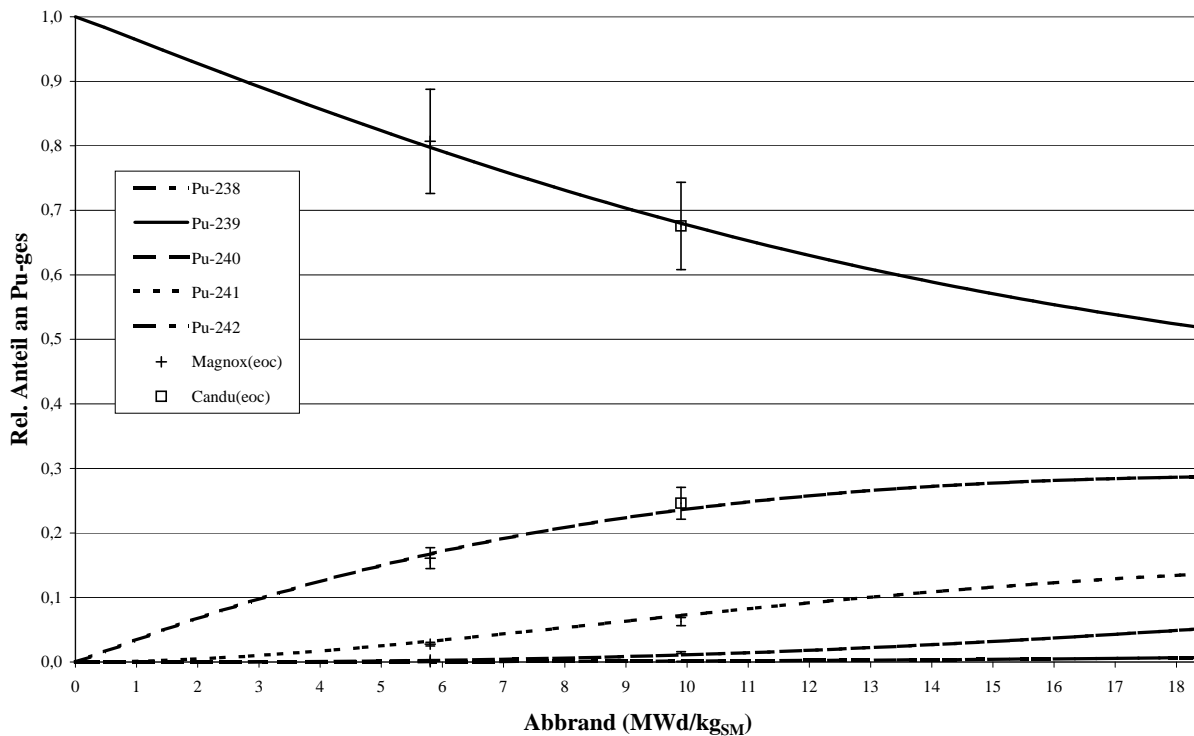


Abbildung 57: Pu–Vektor als Funktion des Abbrands beim RBMK–Reaktor

Für den RBMK–Reaktor in Abbildung 57 ergeben sich bei der Best–Fit–Optimierung gute Übereinstimmungen mit dem Magnox– und dem CANDU–Entladevektor für die Pu–239– und Pu–240–Isotope. Sie unterscheiden sich jedoch vor allem im Pu–242–Anteil, der bei beiden Entladevektoren höher als beim RBMK liegt (22 % bzw. 30 %, siehe Tabelle 22). Beim Magnox–Entladevektor ist zudem der Pu–241–Anteil um 15 % zu klein, und der durch die Optimierung ermittelte Abbrand ist mit 4,2 MWd/kg_{SM} deutlich größer als der zugrunde liegende Entladeabbrand des Referenzvektors. Für den Entladevektor liegt der Anteil des Pu–238 um 45 % zu niedrig. In beiden Fällen sind somit die Differenzen ausreichend, um eine potentielle Herkunftsbeziehung als unwahrscheinlich ausschließen zu können.

Für den inneren Kanal des HTR OTTO–100 kommen gemäß Abbildung 58 gleich vier Best–Fit–Ergebnisse in die engere Wahl:

- Für den LWR–Literaturvektor weichen die Anteile für die Isotope Pu–240 bis Pu–242 immer mehr von den Best–Fit–Ergebnissen ab. Für den Pu–238–Anteil ergibt sich schließlich eine entscheidende Abweichung um mehr als den Faktor sieben.
- Der RBMK–Entladevektor stimmt bemerkenswert gut überein. Ausnahme ist die 25 %–ige Abweichung für den Pu–238–Anteil. Dieser Fall wurde bereits in Kapitel 8.1 diskutiert.

größer. Der Pu–242–Anteil ist beim Magnox–Reaktor kleiner, da hier der Abbrandwert des Entladevektors geringer als der des CANDU ist.

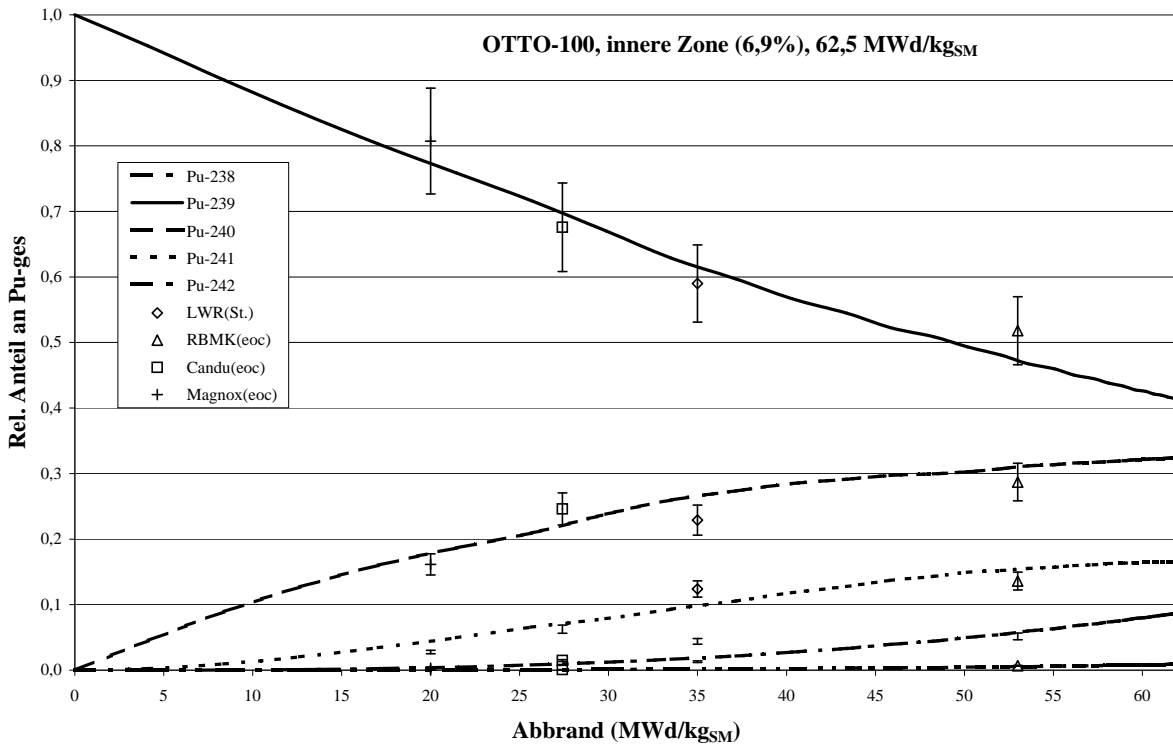


Abbildung 58: Pu-Vektor als Funktion des Abbrands beim HTR OTTO-100 (Innenkanäle)

- Der CANDU-Entladevektor zeigt ebenso eine erstaunliche Übereinstimmung, allerdings bei einem viel zu hohen Abbrand von 43,8 MWd/kg_{SM} des Best-Fit-Ergebnisvektors. Außerdem gibt es eine große Diskrepanz bei dem Pu-242-Anteilen von ca. 50 % gegenüber den Innenkanälen des HTR OTTO-100.
- Für den Magnox-Entladevektor kann eine mögliche Übereinstimmung ebenso ausgeschlossen werden, da sich bei drei Pu-Isotopen Abweichungen von mehr als 20 % ergeben und der Abbrand um den Faktor 8 zu hoch liegt.

C Die Programmserie ORIGEN / ORIGEN2 / ORIGEN–JÜL–II

Sämtliche Design– und Lizenzierungstätigkeiten im Zusammenhang mit dem Transport, der Zwischen- und der Endlagerung von abgebrannten Brennelementen sind abhängig von analytischen Voraussagen zu ihrer Isotopenzusammensetzung und zu weiteren, damit gekoppelten Eigenschaften wie Strahlungsquelle und Nachzerfallswärmeleistung. Diese Charakterisierung von entladem abgebranntem Brennstoff wird im allgemeinen mit sogenannten *point depletion/decay codes* durchgeführt, also Zerfalls– und Abbrandprogrammen, die keine räumlichen Abhängigkeiten innerhalb der Brennstoffanordnung berücksichtigen. Die Behandlung der räumlichen Abhängigkeiten kann im allgemeinen bei der Verwendung von einigen Hundert bis zu über Tausend einzelner Nuklide in den Aufbau– und Zerfallsketten der Abbrandprogramme nicht explizit berücksichtigt werden. Hierfür sind üblicherweise im Vorfeld Berechnungen mit mehrdimensionalen Transportprogrammen vonnöten.

Die vielleicht weltweit am meisten bekannten Abbrand– und Zerfallsprogramme sind diejenigen der ORIGEN–Reihe, entwickelt am Oak Ridge National Laboratory (ORNL). Sie werden vor allem benutzt, um die charakteristischen Eigenschaften des radiologischen Inventars abgebrannter Brennelemente und hochaktiven Abfalls zu bestimmen.

Der Vater dieser Programmserie, das ursprüngliche ORIGEN–Programm[72], wurde 1973 vorgestellt und diente anfänglich der Untersuchung von Brennstoffzyklen für eine weite Spanne von Reaktor– und Brennelement–Auslegungsparameter, die demzufolge für den konkreten Einzelfall nicht unbedingt sehr genaue Aussagen liefern konnte. ORIGEN gewann schnell an Popularität wegen seiner vergleichsweise einfachen und übersichtlichen Eingabe bei einer gleichzeitig sehr strukturierten und dazu ausreichend detaillierten Ausgabe. Allerdings begannen die Nutzer schon bald, das Programm für Fragestellungen einzusetzen, die eine größere Genauigkeit und die Berücksichtigung systemspezifischer Parameter verlangten, welche über das ursprüngliche ORIGEN–Programmsystem hinausgingen. Beispielsweise war zu diesem Zeitpunkt lediglich eine einzige Bibliothek für den LWR vorhanden, die keine Abbrandabhängigkeiten enthielt.

Somit wurde von der verantwortlichen Abteilung des ORNL 1975 begonnen, signifikante Verbesserungen des Codesystems sowie der zugehörigen Datenbasis durchzuführen. Das Ergebnis dieser Entwicklungen war das ORIGEN2–Programm[73], das der wissenschaftlichen Welt 1980 vorgestellt wurde. Wie das ursprüngliche ORIGEN war diese Nachfolgeversion dazu gedacht, als autarkes Abbrand– und Zerfallsprogramm, ausgestattet mit einer festen Anzahl von Bibliotheken für eine bestimmte Zahl von Reaktorkonzepten, Verwendung zu finden.

Die primäre Funktion des ORIGEN2–Programms liegt in der Berechnung der zeitabhängigen Konzentrationen und Quellterme einer grossen Zahl von Nukliden, die gleichzeitig generiert und abgebrannt werden durch Neutronen–Einfang, Spaltung, radioaktiven Zerfall, Brennstoff–Einspeisung und physikalische bzw. chemische Entnahmemechanismen.

Die Berechnungen umfassen Brennstoffbestrahlungen innerhalb eines Reaktorkerns sowie Lagerung, Transport oder auch chemische Wiederaufarbeitung von abgebrannten Brennelementen. Das Programm benutzt die sogenannte *matrix exponential method*, um den grossen Satz gekoppelter Differentialgleichungen zu lösen, die die komplexen Zusammenhänge des Aufbaus und des Zerfalls der Isotope simulieren. Um zu gewährleisten, daß die Lösung des Matrix–Gleichungssystems ausreichend genau ist, werden sehr kurzlebige Nuklide von der Matrix entfernt und deren Konzentrationen separat über die expliziten Nuklid–Zerfallsgleichungen bestimmt.

Das Programm ORIGEN–JÜL–II[39] ist in seiner grundsätzlichen Struktur eng an den originalen ORIGEN–Code angelehnt. Als nulldimensionaler Punkt–Abbrand– und Zerfallscod macht es den Gebrauch einer grossen nuklearen Datenbibliothek und kann hierdurch den Aufbau und den Zerfall von über Eintausend Isotopen beschreiben, eingeschlossen der zugehörigen nuklearen Eigenschaften wie Radioaktivität, Gamma–, Alpha– und Neutronenstrahlungsquellen, Nachzerfallswärme sowie Inhalations– und Ingestionspotentiale. Augenblicklich umfassen diese Bibliotheken Daten für mehr als 800 Spaltprodukte, 100 Schwermetallisotope und 250 leichte Elemente und Strukturmaterialien. Für die ORIGEN–JÜL–II–Version wurden diese Bibliotheken aktualisiert anhand der damals aktuellen Versionen der nuklearen Datenbanken ENDFB–IV und ENDFB–V.

Um die Abbrandabhängigkeit der effektiven Wirkungsquerschnitte nachbilden zu können, wurde das ORIGEN–JÜL–II–Programm direkt an den Reaktorsimulationscode VSOP gekoppelt. Hierdurch konnten sowohl die von ORIGEN verwendeten, für den Brennstoffabbrand wichtigsten Wirkungsquerschnitte als auch die zugehörigen Neutronenflüsse der einzelnen Abbrandbereiche nachgeführt werden. Es lag somit eine automatische Kopplung zwischen dem Abbrand– und Zerfallsprogramm und dem mehrdimensionalen Reaktorsimulationsprogramm vor, die Fluß– und Spektrumsverschiebungen innerhalb kleiner Abbrandzeitschritte nachzuführen erlaubte.

D Kopplung von VSOP97 und ORIGEN–JÜL–II

Das VSOP–Programmsystem bietet die Möglichkeit, die Neutronenflüsse, Gruppenwirkungsquerschnitte und Startnuklidkonzentrationen für jeden batch zu bestimmten Zeitpunkten als Datensätze abzulegen. Diese Datensätze sind entsprechend formatiert, um von der JÜL–II–Version des ORIGEN–Abbrandprogrammes gelesen und verarbeitet zu werden. Auf diese Weise kann das Kerngeschehen mittels ORIGEN–JÜL–II rekonstruiert werden.

Aus der Sicht eines VSOP–Anwenders bietet die Übergabe der Datensätze an ORIGEN–JÜL–II den Vorteil, die Zahl der explizit bilanzierten Nuklide auf mehr als Eintausend zu erhöhen und Brennstofftoxizität, Nachzerfallswärme, Gammaquellen und Aktivität zeitlich zu verfolgen. Bei der Kopplung an das Programmsystem VSOP wird das Abbrandprogramm ORIGEN–JÜL–II mit abbrandabhängigen Wirkungsquerschnitten für die von beiden Programmen verfolgten Nuklide versehen und kann damit — ausgehend von den gewählten zeitlichen Stützstellen — eine akkuratere Brennstoffgeschichte nachbilden.

Die von ORIGEN und VSOP ermittelten Nuklidkonzentrationen des bestrahlten Brennstoffes als Funktion des Abbrands sind damit nur zu der Übergabezeitpunkten identisch. Der Grund, der zu den Konzentrationsunterschieden von Nukliden im Entladevektor führt, ist die unterschiedliche Diskretisierung der zeitlichen Abbrandsschritte in beiden Programmen.

VSOP kennt die zeitliche Diskretisierung in große und kleine Abbrandzeitschritte. Zu jedem großen Abbrandzeitschritt kann wahlweise eine Spektrumsrechnung und/oder eine Diffusionsrechnung für den modellierten Kern durchgeführt werden. Zusätzlich findet eine Flußrenormierung statt, so daß trotz geänderter Spaltstoffkonzentrationen die eingestellte Kernleistung stabil bleibt. Die Werte für Neutronenfluß und angepaßte Wirkungsquerschnitte werden zu diesen Zeitpunkten in dem für ORIGEN–JÜL–II bestimmten Datensatz gespeichert.

Jeder große VSOP–Zeitschritt kann in eine Anzahl kleinerer Zeitschritte unterteilt werden. Zu jedem kleinen Zeitschritt findet ausschließlich die angesprochene Flußrenormierung statt. Diese führt im allgemeinen zu einer geringfügigen Erhöhung des Flusses durch die leicht abbrandreduzierten Spaltstoffkonzentrationen.

ORIGEN erhält jedoch durch VSOP keine Informationen bzgl. dieser geringen Flußrenormierungen, da zu den kleinen VSOP–Zeitschritten aus Speicherlimitierungen kein Datentransfer stattfindet. Somit ergibt sich eine Differenz für den kerngemittelten Neutronenfluß in beiden Programmen. Diese Differenz wird um so größer, je mehr kleine Zeitschritte in VSOP berücksichtigt werden.

Generell hängt die Anzahl der von VSOP berücksichtigten kleinen Zeitschritte hauptsächlich von der Rechenzeit ab, die man bereit ist, in eine Verbesserung des Ergebnisses durch diese feinere Flußdiskretisierung zu investieren. Abbildung 59 zeigt die für einen ausgewählten VSOP–Lauf (HTR OTTO) ermittelten relativen Abweichungen der

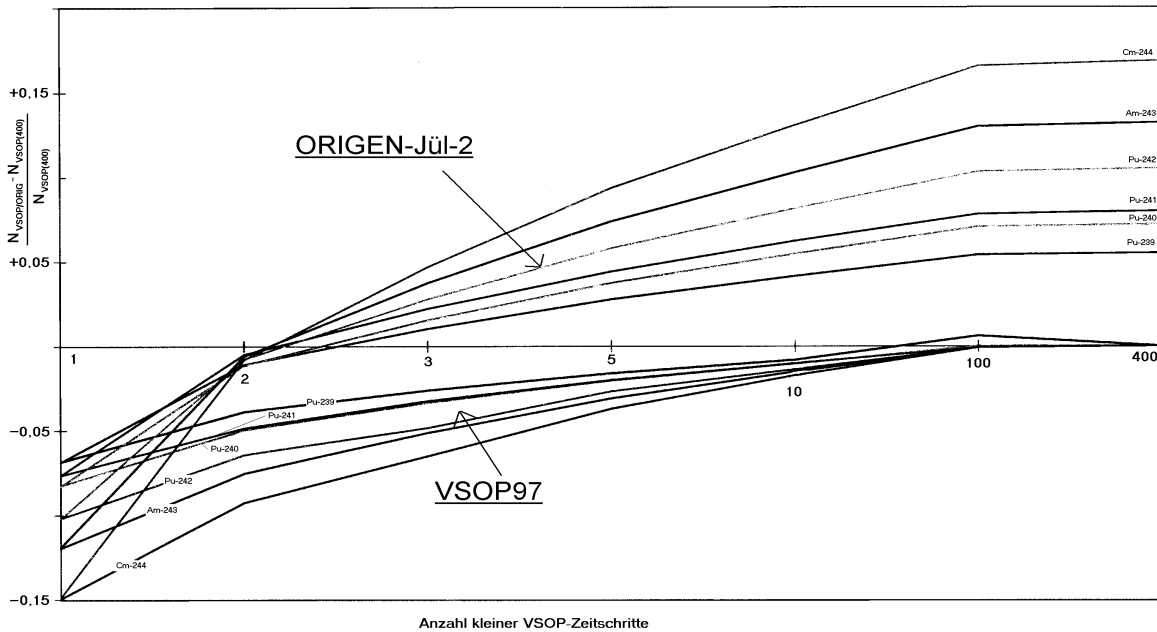


Abbildung 59: Unterschiede in der Nuklidkonzentration bei der Kopplung VSOP—ORIGIN

Konzentrationen einiger Leitaktiniden (Pu–239 bis Pu–242, Am–243 und Cm–244) von dem jeweiligen Konzentrations–Bezugswert ($N_{iVSOP(400)}$). Die Bezugswerte $N_{iVSOP(400)}$ repräsentieren diejenigen Nuklidkonzentrationen, die sich in der VSOP97–Rechnung unter Verwendung von 400 kleinen Zeitschritten ergeben, einer rechenintensiven zeitlichen Auflösung, die als quasi–kontinuierlich angesehen werden kann.

Für beide Programme sind die relativen Abweichungen von diesem Konzentrationswert in Abhängigkeit der in VSOP verwendeten kleinen Zeitschritte dargestellt. Die horizontale Zeitschrittachse ist hierbei nicht–linear und enthält Werte zwischen 1 und 400 kleinen Zeitschritten.

Man erkennt, daß sich die VSOP–Nuklidkonzentrationen asymptotisch mit steigender Anzahl kleiner Zeitschritte diesem Quasi–Grenzwert nähern und bereits bei etwa zehn verwendeten kleinen Zeitschritten weniger als zwei Prozent von diesem Wert abweichen. Die Verwendung von deutlich mehr als zehn kleinen Zeitschritten — bei unvermeidbarer Vervielfachung der Rechenzeit — steht in keinem Verhältnis zu der erreichbaren Güte der Werte für die Nuklidkonzentrationen. Man erkennt ferner in Abbildung 59, daß bei der Verwendung lediglich eines einzigen kleinen Zeitschrittes die errechneten Nuklidkonzentrationen um bis zu fünfzehn Prozent gegenüber den genaueren $N_{iVSOP(400)}$ –Werten tiefer liegen können. Die Auswahl einer bestimmten Mindestanzahl von kleinen Zeitschritten ist deshalb in Abhängigkeit der VSOP–Rechnung zu untersuchen.

Schließlich sind in der oberen Hälfte des Diagramms die relativen Abweichungen der durch ORIGIN–JÜL–II ermittelten Nuklidkonzentrationen von den $N_{iVSOP(400)}$ –Bezugswerten wiedergegeben. Man erkennt die verfahrensbedingte Übereinstimmung der Ergebnisse von VSOP und ORIGIN bei der Verwendung eines einzigen kleinen Zeitschrittes. In die-

sem speziellen Fall wird nämlich nur eine einzige Renormierung des Neutronenflusses von VSOP durchgeführt, die gleichzeitig an ORIGEN übergeben wird. Auf diese Weise wird der Abbrandvorgang identisch berechnet. Erhöht sich die Anzahl kleiner Zeitschritte in VSOP, so weichen erwartungsgemäß die Nuklidkonzentrationen beider Programme voneinander ab. ORIGEN–JÜL–II erhält jetzt lediglich die Flußinformationen zu jedem großen Zeitschritt und keine Informationen über die zwischenzeitlich, von VSOP durchgeführten Flußrenormierungen. Die relativen Abweichungen in den Nuklidkonzentrationen können bis über 15 Prozent betragen!

Alle hier präsentierten Zahlenangaben gelten nur für das genannte Fallbeispiel, aber sie verdeutlichen die Größenordnungen, die bei einer nicht sorgfältig ausgeführten Kopplung zwischen VSOP und ORIGEN auftreten können.

Da im allgemeinen VSOP–Rechnungen unter dem Aspekt der größten Genauigkeit bei vertretbarem Rechenaufwand durchgeführt werden, kann es zu ungewollten Unterschieden mit den von ORIGEN ermittelten Nuklidkonzentrationen kommen. Aus diesen Gründen müssen bei einer gewünschten Kopplung von ORIGEN–JÜL–II an VSOP stets oben genannte Aspekte berücksichtigt und die VSOP–Rechnungen – wenn möglich – so optimiert werden, daß an ORIGEN–JÜL–II ein Maximum an Flußrenormierungen übertragen wird, ohne dabei die Genauigkeit der VSOP–Simulation zu beeinflussen. Die Einteilung in große und kleine Abbrandzeitschritte in VSOP sind also stets mit Bedacht zu wählen, besonders dann, wenn eine Kopplung mit dem Abbrandcode ORIGEN–JÜL–II vorgesehen ist.

Literatur

- [1] H. Michaelis, C. Salander
Handbuch Kernenergie — Kompendium der Energiewirtschaft und Energiepolitik
VWEW-Verlag, ISBN 3-8022-0426-3, 4. Auflage
1995

- [2] Siemens-Broschüre Druckwasserreaktor
S.8
1991

- [3] Directory of Nuclear Reactors
IAEA, Vol. VII
1968

- [4] Directory of Nuclear Reactors
IAEA, Vol. IV
1962

- [5] B. A. Semenov
IAEA Bulletin
Vol. 25, No. 2
1983

- [6] E. Teuchert
private Mitteilung
1998

- [7] W.-D. Krebs, R. Holzer, F. Wunderlich
Auslegung und Einsatzplanung für fortschrittliche Nachlade-Brennelemente
atomwirtschaft, August/September, p. 442-448
1988

- [8] Konferenz über den EPR
NPI (Nuclear Power International)
1998

- [9] G. A. Sofer, G. J. Busselmann, L. J. Federico
Weiterentwicklung von DWR- und SWR-Brennelementen
atomwirtschaft, August/September, p. 449-452
1988

- [10] H. J. Dibbert, J. Huber, S. L. Winnik
Technische und wirtschaftliche Aspekte der Plutoniumrückführung
atomwirtschaft, August/September, p. 452- 454
1988
- [11] ABB PWR Fuel
ABB Atom, Broschüre, 1992
- [12] Fuel Assemblies References 1998
Siemens, Broschüre, KWU
Order No. A960001-U80-A308-V2-7600
1998
- [13] P. Ruße, R. Vollrath
Das Kernkraftwerk Emsland ist in Betrieb
atomwirtschaft, Oktober, pp.484
1988
- [14] J. Wolters, G. Breitenbach, W. Kröger
Der sowjetische Druckröhren-Siedewasserreaktor
ISR, FZ-Jülich, atomwirtschaft
1986
- [15] P. Wenzel, G. Zubka
Graphitmoderierte wassergekühlte Druckröhrenreaktoren in der UdSSR
Kernenergie, 17. Jahrgang, Heft 12
1974
- [16] B. A. Semenov
Nuclear Power in the Soviet Union
IAEA Bulletin, Vol. 25, No. 2.
1983
- [17] Neuere Erkenntnisse zum Unfall im Kernkraftwerk Tschernobyl
ISBN 3 - 923875 - 13 -4, GRS - S - 40
1986
- [18] E. Teuchert, K. A. Haas, W. Scherer, J. Singh
Rechnerische Studie zur Einleitung des Tschernobyl-Unfalles
atomwirtschaft, Februar-Ausgabe, p. 86-89
1987

- [19] H. G. Davey, J. Gawthrop, T. N. Marsham
Operating Experience at Calder Hall
UKAEA, 2nd UN Conference (1st–13th Sept.):
The technology of the gas-cooled power reactor and related subjects
1958
- [20] P. R. Gallie
Forty Years of Operation of Calder Hall
atomwirtschaft, Heft 11, p. 719–723
1996
- [21] Reactors UK
4th edition, UKAEA
1969
- [22] K. M. Wasywich
Characteristics of used CANDU fuel relevant to the Canadian nuclear fuel
waste management program
AECL-Report No. 10463
1993
- [23] D. F. Torgerson, P. G. Boczar, A. R. Dastur
CANDU fuel cycle flexibility
AECL-Report No. 11129, p.1-10
1994
- [24] Atomic Energy of Canada Limited
Data Base for a CANDU–PHW Operating on a Once–Through
Natural Uranium Cycle
INFCE/WG 8/CAN/DOC 2, Chalk River Ontario KOJ 1JO
1979
- [25] E. Teuchert
Rechnerische Simulation eines CANDU-Reaktors
interne Notiz 3-96, ISR–2, FZ–Jülich
1996
- [26] A. M. Manzer, D. Dennier, R. H. Hu, E. G. Young
CANDU 6 reactor shim operation: Fuel performance guidelines
Annual International Conference, Canadian Nuclear Association
Montreal, p. 431–438
1991

- [27] R. D. Page
Canadian Power Reactor Fuel
AECL 5609
1976
- [28] K. R. Hedges, S. K. W. Yu
Design Features of CANDU 9
atomwirtschaft, 41. Jg., Heft 11, p. 724–28
1996
- [29] A. A. Pasanen
The physics of CANDU on-power fuelling:
from design objective to Pickering demonstration
IAEA-SM-178/13
1978
- [30] R. A. Brown
Fuel Scheduling
Annual international conference 14.1h
Canadian Nuclear Association, CNA-74-TS-3, Vol 7
1974
- [31] J. C. Tait, I. Gauld, A. H. Kerr
Validation of the ORIGEN-S code for predicting radionuclide inventories
in used CANDU fuel
Journal of Nuclear Materials 223, p. 109-121
1995
- [32] K. Kugeler
Reaktortechnik I
Vorlesungsskript an der RWTH Aachen 1992
- [33] H. J. Rütten, K. A. Haas, H. Brockmann, U. Ohlig, W. Scherer
V.S.O.P.(99) Computer Code System for Reactor Physics and Fuel Cycle Simulation
Input Manual and Comments
Bericht des Forschungszentrums Jülich, Jül-xyz
ISSN 0944–2952, April 2000
- [34] H. J. Rütten, K. A. Haas, H. Brockmann, U. Ohlig, W. Scherer
V.S.O.P.(97) Computer Code System for Reactor Physics and Fuel Cycle Simulation
Input Manual and Comments
Bericht des Forschungszentrums Jülich, Jül-3522
ISSN 0944–2952, April 1998

- [35] E. Teuchert, K. A. Haas, H. J. Rütten, H. Brockmann, H. Gerwin, U. Ohlig, W. Scherer
V.S.O.P.(94) Computer Code System for Reactor Physics and Fuel Cycle Simulation
Input Manual and Comments
Bericht des Forschungszentrums Jülich, Jül-2897
April 1994
- [36] M. A. Schwarz
Auslegung und Störfallberechnung eines innovativen Druckwasserreaktors mit modifizierten Corestrukturen
Dissertation, RWTH Aachen,
1998
- [37] U. Hansen
The VSOP System Present Worth Fuel Cycle Calculation Methods and Codes, KPD
Atomic Energy Establishment Winfrith, England,
Dragon project report 915,
1975
- [38] H. J. Rütten, K. A. Haas
NAKURE – Programm zur Berechnung der Nachzerfallsleistung der Kernbrennstoffe von Hochtemperaturreaktoren mit kugelförmigen Brennelementen
Internal report KFA-ISR-IB-1/91,
Januar 1991
- [39] H. J. Rütten
The Depletion Computer Code ORIGEN-JUEL-II
Forschungszentrum Jülich, Jül-2739,
März 1993
- [40] W. Häfele
Plutoniumwirtschaft — Schlagwort oder Realität
atomwirtschaft, Mai 1988
- [41] J. van Geel, H.-J. Matzke, J. Magill
Bury or burn plutonium — the next nuclear challenge
UI 1996 Symposium Abstract,
1996
- [42] H.-J. Matzke
Analysis of Seized Nuclear Materials
Scientific and Technical Support to DG XVII

- ITU Annual Report 1995, EUR 16368,
1995
- [43] H.-J. Matzke
Identification of Nuclear Material with Unknown Irradiation History:
a Case Study
Safeguards Research and Development
ITU Annual Report 1995, EUR 16368,
1995
- [44] H. Werner
Build-up of plutonium isotopes in HTR fuel elements
A comparison between computed prediction and chemical analysis
Nuclear Engineering and Design 170, pp. 147–164,
1997
- [45] V. Arkhipov, H. J. Rütten, A. Galperin
Progress Summary of the IAEA Coordinated Research Programme on the Potential of
Th-based Fuel Cycles to Constrain Pu and to Reduce the Long-lived Waste Toxicity
9th International Conference on Emerging Nuclear Energy Systems (ICENES 98),
Tel-Aviv, Israel, June 28–July 2,
1998
- [46] I. Neuhaus
Plutoniumverbrennung mittels Thorium Einsatz im Druckwasserreaktor
Dissertation an der Fakultät für Maschinenwesen, RWTH Aachen
1999
- [47] I. Neuhaus
Neutronische Untersuchungen zur Transmutation von Transuranelementen, insbe-
sondere von Am-243 und Cm-244
Forschungszentrum Jülich GmbH, interner Bericht, KFA-ISR-IB-1/96
Januar 1996
- [48] M. Chorochev
Dissertation an der Fakultät für Maschinenwesen, RWTH Aachen
1998
- [49] A. J. Gonzalez
TIMELY ACTION: Stengthening the Safety of Radiation Sources & the Security of
Radioactive Material
IAEA Bulletin, Vol 41, No. 3
Vienna, Austria, 1999

- [50] IAEA News Briefs
October/November 2000, Volume 15, Number 4 (89), pp 1–2,
Vienna, Austria, 2000
- [51] R. Schenkel
ITU — Sicherheitsforschung für den Brennstoffkreislauf
Vortrag im Forum im Pressehaus,
Bonn, 5.7.2000
- [52] Rußland bietet sich als atomares Endlager an
Frankfurter Allgemeine Zeitung,
23.12.2000
- [53] R. Weh
SAFEGUARDS: Die neue Rolle der Nichtverbreitungsüberwachung
Atomwirtschaft, Ausgabe Oktober, pp 614–620,
2001
- [54] U. S. Looking at Ways to Enhance IAEA to Prevent Nuclear Terrorism
Nucleonics Week, Vol 42, No. 41, p 11,
11.10.2001
- [55] M. Beer, R. Güldner, E. Weber
Optimierung des Brennstoffkreislaufes für Druckwasserreaktoren
Atomwirtschaft, Ausgabe Dezember, pp 733–739,
1999
- [56] J. A. Lake
Die neue Generation von Kernkraftwerken in den USA
Vortrag im Forum im Pressehaus,
Bonn, 28.6.2001
- [57] J. Guidez
Increasing European networking around High Temperature Reactors
Nuclear Europe Worldscan, No. 7–8,
July–August 2001
- [58] NRC Staff Says Full-Scale Test Could Help Prove PBMR Safety
Nucleonics Week, Vol 42, No. 37, p 3,
13.9.2001
- [59] PLUTONIUM: Die Fakten
Analysen 22, Deutsches Atomforum E. V., ISSN 0174–3864, 3. Auflage
Juni 1996

- [60] G. Keßler, J.-I. Kim, K. Gompper
Wohin mit dem deutschen Plutonium
Atomwirtschaft, Ausgabe März, pp 156–164,
1999
- [61] A. J. Gonzalez
The Safety of Radioactive Waste Management
IAEA Bulletin, Vol 42, No. 3
Vienna, Austria, 2000
- [62] G. Heusener
Transmutation — ein alternativer Weg der Entsorgung?
Vortrag im Forum im Pressehaus,
Bonn, 21.3.2000
- [63] A. Galperin, M. Segev, M. Todosov
A Pressurized Water Reactor Plutonium Incinerator Based on Thorium Fuel and
Seed-Blanket Assembly Geometry
Nuclear Technology, Vol 132, pp 214–225, November 2000
- [64] The Cost of MOX
Nuclear Engineering International, p 12
September 2001
- [65] G. Seneviratne
Thorium Fuel for Current and Future Reactors
Nuclear News, ANS, pp 61–62,
March 2000
- [66] K. E. Duftschmid
Preventing the Next Case: Radioactive Material & Illicit Trafficking
IAEA Bulletin, Vol 41, No. 3
Vienna, Austria, 1999
- [67] Jahrbuch der Atomwirtschaft 2000
Verlagsgruppe Handblatt GmbH, Düsseldorf,
2000
- [68] H. Blix
Nuclear Energy in the 21st Century
Nuclear News, ANS, pp 34–39,
September 1997

- [69] E. L. Quinn
New Nuclear Generation — in our Lifetime
Nuclear News, ANS, pp 52–59,
October 2001
- [70] B. Wolfe
Can we save the Future World with Nuclear Energy?
Nuclear News, ANS, pp 51,
September 2001
- [71] NTI Gives IAEA Dollar 1.2–Million to Help Improve Security at Nuclear Sites
Nucleonics Week, Vol 42, No. 40, p 9,
1.11.2001
- [72] M. J. Bell
ORIGEN – The ORNL Isotope Generation and Depletion Code,
ORNL-4628, Union Carbide Corp., Oak Ridge Natl. Lab.,
Mai 1973
- [73] A. G. Croff
ORIGEN2 – A Revised and Updated Version of the Oak Ridge Isotope Generation
and Depletion Code,
ORNL-5621, Union Carbide Corp., Nucl. Div., Oak Ridge Natl. Lab.,
Juli 1980

Abbildungsverzeichnis

1	Schematisches Konzept der vorliegenden Arbeit	1
2	Skizze eines DWR-Brennstabs mit UO_2 -Tabletten [2]	20
3	Brennelement für den Konvoi-Reaktor mit 18x18-Brennstabmatrix[2]	22
4	Kernstrukturen des Bryce-2-CANDU-Reaktors [3]	25
5	Längs- und Querschnitt eines CANDU-Brennelementbündels [3]	26
6	Querschnitt durch den Calder Hall Reaktorkern [4]	29
7	Längsschnitt durch ein Calder Hall Brennelement [4]	31
8	Längsschnitt durch den Kern des RBMK-1000	33
9	Längsschnitt durch einen Kühlkanal im Kern des RBMK-1000	34
10	Querschnitt durch ein RBMK-BE-Bündel	35
11	HTR-Brennelementkugel mit Querschnitt durch ein TRISO-Brennstoffpartikel	36
12	Längsschnitt durch die Kernhälfte des HTR OTTO-100 [6]	38
13	Die Vernetzung der V.S.O.P.(97)-Programm-Module[34]	42
14	Querschnitt durch den Konvoi-Kern mit V.S.O.P.-batch-Numerierung [6] .	48
15	Aufbau des CANDU-Kernoktanten in der V.S.O.P.-Simulation	51
16	Querschnitt durch den Kühlkanal des RBMK-1000 im V.S.O.P.-Kern- Abbrandmodell	57
17	Geometrie des OTTO-100 Abbrandmodells	61
18	Die wichtigsten nuklearen Prozeßketten für den Pu- und MA-Aufbau	65
19	Zeitliche Wichtung des U-236-Pfades für den Pu-238-Aufbau in verschie- denen Reaktoren	67
20	Leistungsbezogener Uran-236-Aufbau	67
21	Leistungsbezogener Np-237-Aufbau	68
22	Leistungsbezogener Pu-238-Aufbau	69
23	Plutonium- und MA-Netto-Erzeugung pro thermisches Gigawattjahr	74
24	In situ genutzter TU-Anteil beim Aufbau von Plutonium und den MA (LEU)	75
25	Plutoniumvektor in den Entladechargen der Referenzreaktoren (LEU)	76
26	Prozentuale Pu-238-Anteile am Gesamtplutoniuminventar	78

27	Prozentuale Pu-239-Anteile am Gesamtplutoniuminventar	79
28	Prozentuale Pu-240-Anteile am Gesamtplutoniuminventar	80
29	Prozentuale Pu-241-Anteile am Gesamtplutoniuminventar	81
30	Prozentuale Pu-242-Anteile am Gesamtplutoniuminventar	82
31	Pu-Vektor als Funktion des Abbrands beim LWR	85
32	Pu-Vektor als Funktion des Abbrands beim HTR OTTO-100 (Außenkanäle)	87
33	Uran-235-Bilanz (LEU)	97
34	Uran-235-Bilanz (MOX)	98
35	Uran-235-Bilanz (ThHEU)	98
36	Uran-233-Bilanz (ThHEU)	99
37	Uran-233-Bilanz (ThPu)	101
38	Plutonium-Bilanz (LEU)	102
39	Plutonium-Bilanz (MOX)	103
40	Plutonium-Bilanz (ThHEU)	104
41	Plutonium-Bilanz (ThPu)	105
42	MA-Entladung (LEU)	107
43	MA-Entladung (MOX)	107
44	MA-Entladung (ThHEU)	108
45	MA-Entladung (ThPu)	109
46	Plutonium-Zusammensetzung in den entladenen Brennelementen pro ein- gesetztem Kilogramm Schwermetall	114
47	Totaler Pu-Aufbau in den Reaktorkonzepten	114
48	Pu-238-Aufbau in den Reaktorkonzepten	115
49	Pu-239-Aufbau in den Reaktorkonzepten	115
50	Pu-240-Aufbau in den Reaktorkonzepten	116
51	Pu-241-Aufbau in den Reaktorkonzepten	117
52	Pu-242-Aufbau in den Reaktorkonzepten	117
53	Uran-235-Abbau in den Reaktorkonzepten	118
54	Anteil von Uran-235 an den Gesamtsplutungen (zyklusgemittelt)	119
55	Pu-Vektor als Funktion des Abbrands beim Magnox-Reaktor	120
56	Pu-Vektor als Funktion des Abbrands beim CANDU-Reaktor	120

-
- 57 Pu-Vektor als Funktion des Abbrands beim RBMK-Reaktor 121
- 58 Pu-Vektor als Funktion des Abbrands beim HTR OTTO-100 (Innenkanäle) 122
- 59 Unterschiede in der Nuklidkonzentration bei der Kopplung VSOP—ORIGEN 126

Tabellenverzeichnis

1	Vergleich von Waffenplutonium und Reaktorplutonium (LWR)[60]	11
2	Charakteristika etablierter thermischer Reaktorkonzepte	19
3	Spezifische Kerndaten für den Konvoi-DWR [13]	21
4	Spezifische Brennelementdaten für den Konvoi-DWR [13]	21
5	Spezifische Kerndaten für den 600 MW _e Standard-CANDU-Reaktor [24] .	24
6	Spezifische Brennelementdaten für den 600 MW _e Standard-CANDU- Reaktor [24]	27
7	Spezifische Kerndaten für den Calder Hall Magnox-Reaktor	31
8	Spezifische Brennelementdaten für den Calder-Hall-Magnox-Reaktor . . .	31
9	Spezifische Kerndaten für den RBMK-1000 Reaktor	33
10	Spezifische Brennelementdaten für den RBMK-1000 Reaktor	35
11	Spezifische Kerndaten für den HTR OTTO-100	37
12	Spezifische Brennelementdaten für den HTR OTTO-100	37
13	Vergleich des komplexen und vereinfachten V.S.O.P.-Konvoi-Reaktormodells	50
14	Vergleich des komplexen und vereinfachten CANDU-Reaktormodells . . .	53
15	Vergleich des komplexen und vereinfachten V.S.O.P.-Calder Hall- Reaktormodells	56
16	Spezifische Daten für das RBMK-1000 V.S.O.P.-Kern-Abbrandmodell . .	58
17	Vergleich des komplexen und vereinfachten V.S.O.P.-OTTO-100- Reaktormodells	60
18	Verhältnis von thermischem zu schnellem Fluß (kerngemittelt,moc)	71
19	Kerngemittelte mikroskopische thermische Absorptions-WQS (moc)	71
20	Kerngemittelte mikroskopische schnelle Absorptions-WQS (moc)	72
21	Kerngemittelte Neutronenbilanzen der Referenzreaktoren (moc)	73
22	Synopse aller Ergebnisse des Best-Fit-Verfahrens	89
23	Standardisierter Pu-Vektor für den MOX-/ThPu-Zyklus[47]	94
24	Charakteristische Brennstoffparameter für den LEU-Zyklus	95
25	Charakteristische Brennstoffparameter für den MOX-Zyklus	95
26	Charakteristische Brennstoffparameter für den ThHEU-Zyklus	96
27	Charakteristische Brennstoffparameter für den ThPu-Zyklus	96

Danksagung

Ich möchte meinem Doktorvater Herrn Professor Kugeler danken, sowohl für die Auswahl des interessanten Promotionsthemas als auch für die prägnanten Diskussionen, die mir jedesmal erneut den Blick für das Wesentliche schärften.

Herrn Teuchert danke ich ganz herzlich für seine stets geduldige, nette und fachlich exzellente Betreuung meiner Arbeit. Er hat mir durch seinen vorgelebten Enthusiasmus für die nuklearen Rechenmethoden viel für meinen weiteren beruflichen Lebensweg mitgegeben, während ich dagegen zuviel seiner wohlverdienten Freizeit in Anspruch genommen habe.

Herrn Professor Filges möchte ich danken für das Nachsehen, daß ich mich oberhalb von einigen Millionen Elektronenvolt stets auf dünnem Eis bewegt habe.

Herrn Professor Betten danke ich für die Übernahme des Vorsitzes der Promotionskommission und für einen ersten Einblick in den Zusammenhang zwischen der Finite Elemente Methode und dem Leistungssport.

Weiterhin möchte ich ganz besonderen Dank aussprechen für:

- Herrn Professor Phlippen für seine wohlwollenden und stets positiven Beratungen in der Endphase,
- meinen lieben Freunden und Kollegen aus dem Institut und dem Lehrstuhl für ihre stets offenen Ohren und helfenden Hände,
- Astrid Kuhr für ihre kritischen Blicke auf jedes Detail meiner Arbeit, daß ich nicht rechtzeitig verstecken konnte,
- Andre Leber dafür, daß er mir kurz vor der Prüfung in thermodynamischer Hinsicht eine – wenn auch unnötige – schlaflose Nacht beschert hat.

Abschließend – aber sicher nicht an letzter Stelle liegend – gebührt ein großer Dank denen, die nach mir die größte Last tragen mussten und am meisten das Ende herbeigesehnt haben: meiner Mutter, meiner Schwester und meiner Tante.

Bildungsgang des Verfassers

Name	Benjamin Volmert
geboren am	11. Januar 1965
in	Ratingen
1975	Abschluß der Grundschule in Ratingen
1984	Abitur am Städtischen Kopernikus-Gymnasium in Ratingen
1984 – 1985	Wehrdienst im 6. Flugabwehrregiment 100, Wuppertal
1985 – 1994	Physikstudium an der RWTH Aachen mit Spezialisierung in der Kerntechnik
Mai 1994	Abschluß des Physikstudiums, Titel der Diplomarbeit: Berechnung der durch die Galaktische Kosmische Strahlung induzierten Neutronendosisleistung in der Erdatmosphäre
1994 – 1998	Stipendium des Forschungszentrums Jülich, Assistent am Institut für Sicherheitsforschung und Reaktortechnik
1997	viermonatiges Stipendium der American Nuclear Society, Reactor Analysis Division, Argonne National Laboratory, Illinois, USA
1999 – 2003	Berechnungsingenieur für nukleare Problemstellungen bei der Wissenschaftlich-Technischen Ingenieurberatung GmbH, Jülich
seit April 2003	Projektleiter bei der Nationalen Genossenschaft für die Lagerung Radioaktiver Abfälle (Nagra), Schweiz