

KFK-118

KFK-118

**KERNFORSCHUNGSZENTRUM**

**KARLSRUHE**

April 1962

*Arbeitsbericht Nr. 118*

KFK 118

Institut für Neutronenphysik und Reaktortechnik

Die Bedeutung kernphysikalischer Grundlagen bei der Auslegung  
Schneller Brutreaktoren

Wolf Häfele



KERNREAKTOR

BAU- UND BETRIEBS-GESELLSCHAFT M. B. H.

KARLSRUHE

## Die Bedeutung kernphysikalischer Grundlagen bei der Auslegung Schneller Brutreaktoren \*)

Von W. Häfele, Karlsruhe

In einem Kernreaktor wird die Tatsache ausgenutzt, daß bei einem Spaltprozeß eines schweren Isotopes, der durch ein Neutron ausgelöst wurde, mehr als ein Neutron freigesetzt wird. Dieser Umstand erlaubt, die durch die Spaltung eines ersten schweren Isotopes freigesetzten Neutronen für die Spaltung weiterer schwerer Isotope zu verwenden, so lösen die Spaltneutronen ihrerseits wieder Spaltungen aus; es kommt zur Kettenreaktion.

Ein von einem spaltbaren Isotop eingefangenes Neutron führt nicht notwendig zu einer Spaltung, es kann auch die Emission einer  $\gamma$ -Quanten bewirken. Die Wahrscheinlichkeit für das Zustandekommen des einen oder des anderen Prozesses wird durch den zum Prozeß gehörenden Wirkungsquerschnitt beschrieben. In der Reaktorthorie ist es üblich, das folgende Verhältnis einzuführen:

$$a = \sigma_{n,\gamma} / \sigma_{n,f} \quad \dots (1)$$

Ist  $\nu$  die Zahl der *pro Spaltung* frei werdenden Neutronen, so berechnet sich die Zahl der *pro Absorption* eines Neutrons frei werdenden Neutronen  $\eta$  nach:

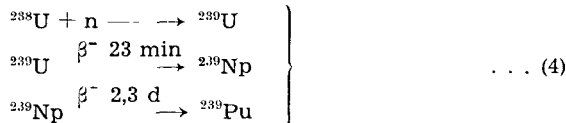
$$\eta = \nu / (1 + a) \quad \dots (2)$$

In dem für die Reaktorthorie interessanten Energiebereich ist  $\nu$  eine sich mit der Energie nur schwach ändernde Größe,  $a$  ändert sich als Funktion der Energie mitunter erheblich.

Ein von einem spaltbaren Isotop absorbiertes Neutron führt zu  $\eta$  neuen Neutronen. Davon wird 1 Neutron zur Aufrechterhaltung der Kettenreaktion benötigt. Zur Deckung der immer auftretenden Neutronenverluste stehen noch  $\eta - 1$  Neutronen zur Verfügung. Es gilt also die Neutronenbilanz:

$$\eta - 1 - (\text{Verluste}) = 0 \quad \dots (3)$$

Praktisch ist in jedem Kernreaktor  $^{238}\text{U}$  vorhanden.  $^{238}\text{U}$  ist aber von Neutronen, die eine Energie von weniger als etwa 1,4 MeV besitzen, nicht spaltbar. Vielmehr führt die in Gl. (3) unter dem Begriff Verluste subsummierte Absorption eines Neutrons in  $^{238}\text{U}$  zu folgendem Kernprozeß:



Es entsteht  $^{239}\text{Pu}$ , ein spaltbares Isotop. Das spaltbare Isotop, das in Gl. (3) zu  $\eta$  Neutronen geführt hat und verbraucht worden ist, wird also genau

\*) Niederschrift eines Hauptvortrages, der am 11. April 1962 auf der Frühjahrstagung der Nordwestdeutschen Physikalischen Gesellschaft in Bad Pyrmont gehalten wurde.

dann ersetzt, wenn pro Spaltung ein Neutron vom  $^{238}\text{U}$  absorbiert wird. Bezeichnen wir die Verluste, die nicht durch Absorption in  $^{238}\text{U}$  zustande kommen, mit einem zusätzlichen Strich, so gilt für einen Kettenreaktionsprozeß, bei dem nettomäßig kein spaltbares Material verbraucht wird, die folgende Bilanz:

$$\eta - 2 - (\text{Verluste})' = 0. \quad \dots (5)$$

Geht man nun noch einen Schritt weiter und bezeichnet die Zahl der in  $^{238}\text{U}$  absorbierten Neutronen mit B.R. (Brutrate), so gilt:

$$(\text{B.R.} - 1) = \eta - 2 - (\text{Verluste})'. \quad \dots (6)$$

Die Brutrate kann größer als 1 sein, falls  $\eta$  größer ist als zwei und die parasitären Absorptionen [= (Verluste)'] hinreichend klein sind. Wir betrachten hierzu Tab. 1:

| Energie des einfallenden Neutrons | $^{233}\text{U}$ | $^{235}\text{U}$ | $^{239}\text{Pu}$ |
|-----------------------------------|------------------|------------------|-------------------|
| thermisch ( $\sim 0,025$ eV)      | 2,28             | 2,07             | 2,10              |
| schnell (1 MeV)                   | 2,45             | 2,30             | 2,70              |

Tab. 1:  $\eta$ -Werte der spaltbaren Isotope

Es zeigt sich, daß  $\eta$  immer größer als zwei ist. Indessen ist der  $\eta$ -Wert von  $^{235}\text{U}$  nur wenig größer als zwei, so daß es nicht möglich ist, die parasitären Absorptionen klein zu halten, damit eine Brutrate größer als eins technisch realisierbar wird. Dagegen ist das für  $^{239}\text{Pu}$  und  $^{233}\text{U}$  möglich. Bei  $^{239}\text{Pu}$  ist man an die Verwendung schneller Neutronen gebunden, für  $^{233}\text{U}$  gilt eine derartige Überlegung nicht.

Ist die Brutrate größer als eins, so wird nicht nur kein spaltbares Material nettomäßig verbraucht, sondern es wird zusätzliches spaltbares Material erzeugt. Die Zeit, innerhalb derer sich der für einen Brutreaktor notwendige Einsatz an spaltbarem Material verdoppelt hat, heißt *Verdoppungszeit*.

Verbraucht wird nettomäßig bei dem von uns betrachteten Fall lediglich  $^{238}\text{U}$ . Besteht der ursprüngliche Einsatz an Spaltstoff aus Pu, so spricht man vom  $^{238}\text{U}$ -Pu-Zyklus. Neben diesem Zyklus gibt es noch den  $^{232}\text{Th}$ -U-Zyklus, bei dem primär das Isotop  $^{233}\text{U}$  den Einsatz an spaltbarem Material darstellt. Bezeichnenderweise kommen sowohl  $^{233}\text{U}$  als auch Pu in der Natur nicht vor.

Im natürlichen Uran kommen die Isotope  $^{235}\text{U}$  und  $^{238}\text{U}$  im Verhältnis 1:140 vor. Der Vorrat an spaltbarem Material erhöht sich damit sofort auf das 140fache. Damit ist der Energiebedarf für die nächsten Jahrhunderte gedeckt. Das wäre nicht der Fall, wenn nur die Spaltenergie von  $^{235}\text{U}$  ausgenutzt würde. Die nuklearen Energiereserven würden dann nur etwa 20 % der fossilen Reserven betragen. Geht man noch einen Schritt weiter und betrachtet einen asymptotischen Zustand der Menschheit, bei dem ausschließlich nukleare Energie zur Verfügung steht, so erlauben die Brutreaktoren auch die sinnvolle Aufarbeitung von Gesteinen, die nur etwa 3 ‰ Uran enthalten.

Der überwiegende Teil des auf der Erde vorhandenen Urans kommt in einer Konzentration von etwa 3 ‰ vor; das bedeutet normalerweise, daß dieses Gestein nicht abbauwürdig ist. Die für den Verhüttungsprozeß notwendige Energiemenge entspricht nämlich etwa der Energiemenge, die bei der Spaltung von 0,7 ‰ von 3 ‰, das heißt des  $^{235}\text{U}$ -Anteils des gewonnenen Urans, freigesetzt wird. Erst wenn durch Einsetzen von Brutreaktoren alles Uran,  $^{235}\text{U}$  und  $^{238}\text{U}$ , gespalten wird, wird der Abbau von Gestein mit etwa

2 11.5 + 4

3% Urangehalt sinnvoll. Dann allerdings ist der verfügbare Energievorrat auch so groß, daß er für etwa  $10^9$  Jahre ausreicht.

Sollte es in Zukunft einmal soweit kommen, daß ein Fusionsreaktor sowohl grundsätzlich als auch im technischen Maßstab funktioniert, so wären die Energiemengen, die durch Verbrennung des Deuteriums der Weltmeere in diesen Fusionsreaktoren zur Verfügung stehen, etwa gleich groß.

So interessant diese Betrachtungen sind, so bestimmen sie doch nicht unsere heutige wirtschaftlich-technische Situation. Würde man nur die obigen Betrachtungen anstellen, was unberechtigterweise häufig geschieht, so wäre die Entwicklung von Brutreaktoren nicht gerechtfertigt. Es zeigt sich aber, daß ein Brutreaktor, der im  $^{238}\text{U}$ -Pu-Zyklus arbeitet, ganz andere Vorteile hat. Ein Brutreaktor des  $^{238}\text{U}$ -Pu-Zyklus verwendet zur Spaltung schnelle Neutronen, die eine mittlere Energie von etwa 100 keV haben; deshalb heißen solche Reaktoren *Schnelle Brutreaktoren*.

Ein Schneller Brutreaktor hat die Möglichkeit, im geschlossenen Zyklus zu arbeiten. Das im Reaktor gewonnene Pu wird im Reaktor selbst wieder verbrannt, nur der Pu-Exzeß, d. h. der Brutgewinn, wird abgeführt. Das nach dem Absorptionsprozeß eines Neutrons in  $^{238}\text{U}$  entstehende Pu ist  $^{239}\text{Pu}$ . Wird dieses  $^{239}\text{Pu}$  als Spaltstoffeinsatz verwendet, so entsteht mit der Wahrscheinlichkeit  $a/(1+a)$  nach Absorption eines Neutrons  $^{240}\text{Pu}$ , das ähnlich wie  $^{238}\text{U}$  nicht unmittelbar spaltbar ist.

Man erkennt, daß das fortgesetzte Wiederverwenden des Pu in demselben Reaktor zum Aufbau eines Gemisches von  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{240}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Pu}$  und  $^{242}\text{Pu}$  führt. Wegen der Energieabhängigkeit der Wirkungsquerschnitte hängt die Zusammensetzung des sich asymptotisch einstellenden Isotopengemisches, das wir  $^{\infty}\text{Pu}$  nennen wollen, stark von dem im Reaktor vorliegenden Neutronenspektrum ab. Insbesondere wollen wir das in einem schnellen Brutreaktor sich asymptotisch einstellende Gemisch  $^{\infty}\text{Pu}_F$  nennen. Ihm wollen wir ein Isotopengemisch gegenüberstellen, das durch fortgesetztes Wiedereinsetzen von Pu in einem thermischen Reaktor sich bildet, es heiße  $^{\infty}\text{Pu}_T$ . Dieser thermische Reaktor kann natürlich kein Brüter sein, man wird ständig einen gewissen Betrag an spaltbarem Material von außen zuführen müssen. Nun stellt sich heraus:

1. in einem Schnellen Brutreaktor ist im Hinblick auf die Neutronenbilanz  $^{\infty}\text{Pu}_F$  genau so gut wie  $^{239}\text{Pu}$ .

2. In einem thermischen Reaktor ist im Hinblick auf die dort vorliegende Neutronenbilanz zufolge des vorliegenden Spektrums  $^{\infty}\text{Pu}_T$  schlechter als  $^{239}\text{Pu}$  und schlechter als  $^{235}\text{U}$ .

3.  $^{\infty}\text{Pu}_T$  in einem Schnellen Reaktor eingebracht, hat in dem dort vorliegenden Neutronenspektrum etwa den Wert von  $^{239}\text{Pu}$ . Seine Isotopenzusammensetzung ändert sich dort und läuft auf  $^{\infty}\text{Pu}_F$  hin.

Man kann alle drei Aussagen in der Feststellung zusammenfassen, daß Pu am besten in einem Schnellen Reaktor, der zum Beispiel auch ein Schneller Brutreaktor sein kann, ausgenutzt wird. Die volle Bedeutung dieses Sachverhaltes wird etwa 1970 zum Tragen kommen. Bis zu diesem Zeitpunkt werden in einem nennenswerten Umfang thermische Leistungsreaktoren in Betrieb sein, die alle Pu erzeugen, wenn auch ihre Brutrate kleiner als eins ist. Ist die Brutrate kleiner als eins, so spricht man auch von Konvertieren. weil dieser Fall meistens bei Reaktoren zutrifft, die  $^{235}\text{U}$  verbrauchen und (weniger) Pu erzeugen, es wird also Uran in Pu konvertiert. Ab 1970 werden also größere Mengen an Pu zu erwarten sein, die zwar in ihrer Isotopenzusammensetzung noch nicht  $^{\infty}\text{Pu}_T$  entsprechen, aber doch schon deutliche Anteile  $^{240}\text{Pu}$  und  $^{241}\text{Pu}$  besitzen. Diese dann zur Verfügung stehenden Pu-Vorräte werden am besten in Schnellen Reaktoren verwendet.

Im Gegensatz zum Brüten handelt es sich hierbei um einen Aspekt, der sich auf die augenblickliche wirtschaftlich-technische Situation bezieht. Da ein Brutreaktor, ganz grob gesprochen, um so billiger Strom erzeugt, je größer der anfängliche Pu-Einsatz ist und je größer die Ver Dopplungszeit ist, tendiert man heute dahin, Schnelle Reaktoren zu bauen, deren Brutrate nur wenig größer als eins ist oder die bei eins liegt und die einen großen Einsatz an Pu erfordern. Es kommen Einsätze zwischen 500 und 2 000 kg Pu in Betracht.

Nach diesen allgemeinen Betrachtungen soll auf einige, für das Verständnis wesentliche Merkmale eines Schnellen Brutreaktors hingewiesen werden.

Die Neutronen-Absorptionsquerschnitte fast aller Elemente zeigen folgendes Verhalten:

Im Gebiet zwischen etwa 10 keV und 100 keV haben sie eine deutlich erkennbare Resonanzstruktur, falls es sich um mittelschwere Kerne handelt. Bei schweren Kernen liegt das Resonanzgebiet tiefer, bei leichten höher auf der Energieskala. Unterhalb der Resonanzen liegt qualitativ ein  $1/v$ -Verhalten des Absorptionsquerschnittes vor, falls  $v$  die Neutronengeschwindigkeit ist. Oberhalb des Resonanzgebietes fällt zunächst der Absorptionsquerschnitt stärker als  $1/v$  ab. Es gilt also immer die qualitative Aussage, daß die zu  $(n, \gamma)$ -Prozessen führende Neutronenabsorption in einem Reaktor um so kleiner ist, je härter, das heißt um so energiereicher, das Neutronenspektrum ist. Jeder Leistungsreaktor benötigt für seine Konstruktion und Erstellung als technischer Apparat eine Fülle von Strukturmaterialien; meistens wird dazu Stahl verwendet. Je mehr Strukturmaterial der Reaktorkonstrukteur verwenden darf, desto leichter ist die technische Durchbildung des Reaktors und desto größer sind auch die rein technischen Möglichkeiten. Bei einem thermischen Reaktor ist wegen des hohen Absorptionsquerschnittes des Strukturmaterials dessen Verwendung stark eingeschränkt, und die technischen Möglichkeiten sind also beschränkt; die technischen Möglichkeiten bei der Auslegung des Schnellen Reaktors sind bei weitem größer.

Das gleiche gilt für den Aufbau einer parasitären Neutronenabsorption durch die mittelschweren Atomkerne, die als Spaltprodukte bei der Spaltung schwerer Kerne entstehen. Die Belastbarkeit der Brennstoffelemente im Schnellen Reaktor ist von dort her nicht begrenzt, während die Spaltproduktvergiftung in thermischen Reaktoren oft ein unangenehmes Problem ist.

Unsere Betrachtungen erwecken den Anschein, als hätte ein Schneller Reaktor nur Vorteile. Um sein grundsätzliches Problem zu verstehen, denken wir einmal nur daran, einen Schnellen Reaktor kritisch zu machen. Es genügt, eine Kugel von nur etwa 6 kg Pu in einen dicken Reflektor von Natururan zu setzen. Das Volumen des Reaktor-Cores beträgt dann nur etwa 400 cm<sup>3</sup>. Um mit thermischen Reaktoren vergleichbar zu sein, müßte man aus den 6 kg Pu etwa 6 MW Wärmeleistung abziehen, das heißt, man müßte 15 MW pro Liter Core-Volumen abzuführen in der Lage sein. Das ist unmöglich. Man muß also die Pu-Kugel auflockern und von einem Kühlmedium durchströmen lassen. Bei Verwendung von flüssigem Natrium kann man etwa 1 MW pro Liter Core-Volumen abführen, bei Verwendung einer hochgezüchteten Gaskühlung etwa 400 kW pro Liter. Die Abfuhr großer Wärmemengen aus kleinen Volumina ist das große technische Problem Schneller Brutreaktoren.

Ein ganz anderes Problem ist das der dynamischen Stabilität. Ein sicher arbeitender Reaktor muß die Eigenschaft besitzen, bei einer mit einer Leistungssteigerung verbundenen Temperatursteigerung sich selbst zu regulie-

ren, d. h., es muß ein negativer Reaktivitätskoeffizient der Temperatur vorliegen. Die Zeitspanne, die zwischen dem Freisetzen eines Neutrons im Spaltprozeß und seiner Absorption vergeht, wird häufig Neutronen-Lebensdauer genannt. Bei Schnellen Reaktoren liegt sie bei  $10^{-7}$  s. Zusammen mit der Größe der Reaktivitätsstörung bestimmt sie das dynamische Verhalten eines Reaktors. Bei Schnellen Reaktoren sind Reaktorperioden von  $10^{-2}$  bis  $10^{-5}$  s zu erwarten, innerhalb derer sich der Neutronenfluß um den Faktor  $e$  vermehrt. Der negative Temperaturkoeffizient der Reaktivität muß also hinreichend schnell wirksam sein. Bei Verwendung von metallischen Brennstoffelementen konstruiert man den Reaktor so, daß die mechanische Temperatúrausdehnung zu einer Abnahme der Reaktivität führt. Da diese Reaktivitätsrückwirkung nur um eine Zeit  $\Delta t$  verzögert wird, die durch die Schallgeschwindigkeit in den metallischen Brennstoffelementen und deren geometrische Länge charakterisiert ist, reicht dieser Effekt zur Sicherung der Stabilität aus. Moderne Schnelle Brutreaktoren müssen aber oxydische Brennstoffelemente verwenden, um den für die Erzielung eines ökonomischen Reaktorbetriebes notwendigen Abbrand von etwa 50 000 bis 100 000 MWd/to zu erreichen. Deshalb können wahrscheinlich nicht mehr metallische Ausdehnungseffekte für die Gewährleistung der dynamischen Stabilität herangezogen werden.

Die dynamische Stabilität moderner Schneller Brutreaktoren, die nicht metallische Brennstoffelemente verwenden, ist daher eines der meist diskutierten Themen der heutigen Reaktorphysik. Es scheint, daß nur der *Doppler*-Koeffizient die dynamische Stabilität gewährleisten kann. Deshalb sei über ihn etwas ausführlicher berichtet.

Wir betrachten dazu eine einzelne Resonanz eines Prozesses  $x$  (Absorption oder Spaltung) eines schweren Isotops, insbesondere  $^{238}\text{U}$  und  $^{239}\text{Pu}$ . Sie möge z. B. in einem Energiegebiet zwischen 1 keV und 10 keV bei  $E_{\text{Res}}$  zu suchen sein. Ihre natürliche Linienform wurde durch eine Ein-Niveau-*Breit-Wigner*-Formel beschrieben, die Resonanz habe die totale Halbwertsbreite  $\Gamma$ . Da sich das von uns betrachtete schwere Isotop aber in Temperaturbewegung befindet, erscheint die Resonanz nicht mit der Halbwertsbreite  $\Gamma$ , sondern mit einer Halbwertsbreite, die neben  $\Gamma$  durch die *Doppler*-Breite  $\Delta = 2\sqrt{E_{\text{Res}}} \cdot kT/A$  charakterisiert ist. Dabei ist  $A$  das Atomgewicht des schweren Isotops und  $k$  die *Boltzmann*-Konstante. Im Falle einer extremen *Doppler*-Verbreiterung folgt der Wirkungsquerschnittverlauf einer *Gauß*-Verteilung der Breite  $\Delta$ . Bei der *Doppler* verbreiteten Resonanz ändert sich die Fläche unter der Resonanzkurve nicht mit der Temperatur. Bezeichnen wir den *Doppler* verbreiterten Querschnittsverlauf mit  $\sigma_x(E, T)$ , so gilt:

$$\int_{(\text{Res})} \sigma_x(E, T) \, dE \neq f(T) . \quad \dots (7)$$

Die Reaktionsrate des durch  $\sigma$  charakterisierten Prozesses ist aber durch den folgenden Ausdruck gegeben:

$$R_x = \int \Phi(E) \cdot \sigma_x(E, T) \, dE . \quad \dots (8)$$

Für den Fluß  $\Phi(E)$  gilt die Relation:

$$\Phi(E) \cdot \sigma_{\text{tot}} = \text{const} , \quad \dots (9)$$

da die Stoßdichte in  $E$  gleich der Zahl der im Energieintervall  $E$  bis  $E+dE$  eintreffenden Neutronen sein muß. Es gilt also für die Reaktionsrate des betrachteten Prozesses  $x$

$$R_x \sim \int \frac{\sigma_x(E, T)}{\sigma_{\text{tot}}(E, T)} \, dE . \quad \dots (10)$$

Für eine Absorptionsresonanz ( $x=a$ =Absorption) in  $^{238}\text{U}$  gilt:

$$\sigma_{\text{tot}}(E,T) = \sigma_p + \sigma_a(E,T) + \sigma_{n,\text{res}}(E,T) \quad \dots (11)$$

wobei  $\sigma_n$  der energieunabhängige Streuquerschnitt (Potentialstreuung) und  $\sigma_{n,\text{res}}(E,T)$  der elastische Resonanzquerschnitt ist. Inelastische Streuung und Interferenz zwischen Potentialstreuung und Resonanzstreuung sind hierbei vernachlässigt.  $R_x$  ist somit keineswegs temperaturunabhängig. Eine Temperaturerhöhung führt zu einer Erhöhung der Reaktionsrate. Bei reinem  $^{239}\text{Pu}$  überwiegt die Spaltrate gegenüber der  $(n,\gamma)$ -Absorptionsrate, eine Temperaturerhöhung führt also zu vermehrter Spaltung, bedingt also einen positiven Temperaturkoeffizienten.  $^{238}\text{U}$  weist nur  $(n,\gamma)$ -Absorptionsprozesse auf, hat also einen negativen Temperaturkoeffizienten. Bringt man hinreichend viel  $^{238}\text{U}$  und  $^{239}\text{Pu}$  homogen vermischt als Brennstoff in einen Schnellen Reaktor ein, so wird man einen instantan wirksamen negativen Temperaturkoeffizienten haben. Die Berechnung der Größe und des Vorzeichens des Doppler-Koeffizienten ist heute eines der Hauptthemen der Reaktorphysik und stellt ein sehr schwieriges Problem dar. Denn bei  $^{239}\text{Pu}$  sind nur die ersten 20 Resonanzen (bis 52,6 eV) gemessen worden, bei  $^{238}\text{U}$  sind es etwa 100 Resonanzen (bis 1,8 keV), die bekannt sind. Bei einem mittleren Niveauabstand von 2,9 eV bei Pu sind das weniger als 1‰ aller Pu-Resonanzen, bei  $^{238}\text{U}$  ist der mittlere Niveauabstand 18,5 eV, es sind also etwa 2‰ aller auftretenden Resonanzen bekannt. Bei der heute vorliegenden Situation, bei der die meisten Resonanzparameter nicht bekannt sind, muß man Statistik betreiben, um von den bekannten Daten auf die unbekanntenen Daten extrapolieren zu können. Man muß versuchen, die erforderlichen Bestimmungsstücke aus den vorliegenden Messungen zu entnehmen; dazu benötigt man den mittleren Niveauabstand  $\bar{D}$ , die mittlere Neutronenbreite  $\bar{\Gamma}_n$ , die mittlere Strahlungsbreite  $\bar{\Gamma}_\gamma$ , die mittlere Spaltbreite  $\bar{\Gamma}_f$ .

Liegen diese Werte vor, so bedient man sich der Theorie über die Verteilung der Größen  $\Gamma_n/\bar{\Gamma}_n$ ,  $\Gamma_\gamma/\bar{\Gamma}_\gamma$ ,  $\Gamma_f/\bar{\Gamma}_f$ . Diese Größen sind nach einer Porter-Thomas-Verteilung verteilt; die Verteilungen sind aus der Statistik als  $\chi^2$ -Verteilungen bekannt. Sie lauten:

$$f(x,\nu) dx = \frac{1}{\Gamma(\nu/2)} \cdot \left(\frac{\nu}{2} \frac{x}{x}\right)^{\nu/2-1} \left[ \exp\left(-\frac{\nu}{2} \frac{x}{x}\right) \right] \cdot \frac{\nu}{2} \frac{dx}{x}, \quad \dots (12)$$

$\nu$  ist der für die Verteilung gültige Freiheitsgrad.  $\Gamma(\nu/2)$  ist der Wert der  $\Gamma$ -Funktion zum Argument  $\nu/2$

Für

$$x = \frac{\Gamma_n}{\bar{\Gamma}_n} \quad \dots (13)$$

ist  $\nu = 1$  zu wählen. Das ist anschaulich verständlich, weil nur jeweils ein Zerfallskanal des Zwischenkernes zum Grundzustand des Restkernes besteht. Aufgrund des optischen Kernmodells gilt für  $\bar{\Gamma}_n$ :

$$\bar{\Gamma}_n(l) \sim E^{l+1/2}, \quad \dots (14)$$

wobei  $l$  die Bahndrehimpulsquantenzahl des Neutrons ist.

Bei den für  $^{238}\text{U}$  und  $^{239}\text{Pu}$  in Betracht kommenden Resonanzenergien kommen 90‰ des Beitrages zum Doppler-Koeffizienten von  $l=0$ -Wellen, man verwendet also die Gesetzmäßigkeit:

$$\bar{\Gamma}_n \sim \sqrt{E}. \quad \dots (15)$$

Für die Verteilung von  $x = \Gamma_\gamma / \bar{\Gamma}_\gamma$  ist eine  $\chi^2$ -Verteilung mit sehr großem Freiheitsgrad anzuwenden, was wiederum anschaulich ist, da bei sehr zahlreichen Kernniveaus das Erreichen des Grundzustandes durch  $\gamma$ -Emission auf vielen Kanälen möglich ist. Eine solche Verteilung hat aber den Charakter einer  $\delta$ -Funktion, deswegen setzt man:

$$\Gamma_\gamma = \text{const.} \quad \dots (16)$$

Für die Größe  $x = \Gamma_f / \bar{\Gamma}_f$  sollte man eine  $\chi^2$ -Verteilung mit großem Freiheitsgrad erwarten, da es eine große Zahl von Spaltproduktpaaren gibt. Der experimentelle Befund widerspricht dem. Danach kann vielmehr  $\Gamma_f / \bar{\Gamma}_f$  durch eine  $\chi^2$ -Verteilung wiedergegeben werden, deren Freiheitsgrad zwischen 2 und 4 liegt. Das ist schwer zu verstehen und deutet auf eine starke Korrelation unter den Spaltkanälen hin. Die experimentellen Daten reichen nicht aus, um die Größe des Freiheitsgrades sauber festzulegen (es sind von 35 000 Resonanzen des  $^{239}\text{Pu}$ , wie erwähnt, nur 20 bekannt). Leider beeinflußt die für  $\Gamma_f$  anzunehmende Verteilungsfunktion den Wert des berechneten *Doppler*-Koeffizienten deutlich. Die bestehenden theoretischen Unklarheiten über die Natur des Spaltprozesses haben hier eine deutliche, sozusagen praktische Auswirkung.

Die mittlere Spaltbreite bestimmt man aus der Relation

$$\bar{\Gamma}_f(E) = \bar{\Gamma}_\gamma / a(E), \quad \dots (17)$$

wobei man bei  $a(E)$  auf Messungen zurückgreift.

Die Verteilung der mittleren Niveaubestände  $D/\bar{D}$  bei  $^{238}\text{U}$  kann ohne theoretische Begründung durch eine  $\chi^2$ -Verteilung vom Freiheitsgrad 10 wiedergegeben werden; mit guter Genauigkeit nimmt man also allgemeiner an, daß  $D$  konstant ist.

Nach dem bisher Ausgeführten ist die Anwendung statistischer Methoden für die Berechnung des *Doppler*-Koeffizienten möglich. Eine wesentliche Komplikation ergibt sich jedoch dadurch, daß die Temperatur des (oxydischen) Brennstoffes sich über den Radius eines Brennstoffelementes (bei schnellen Reaktoren 2 bis 3 mm) um etwa 1500 °C ändert.

Zur Ermittlung des *Doppler*-Koeffizienten muß also auch seine Temperaturabhängigkeit bekannt sein, was das Problem weiter verschärft. Man fragt sich, inwieweit hier Messungen helfen können. In Gl. (10) stellt  $R_r$  eine Reaktionsrate  $\sigma \cdot \Phi$  dar, der Faktor  $1/\sigma_{\text{tot}}(E, T)$  charakterisiert den Flußverlauf über eine Resonanz hinweg (mikroskopischer Flußverlauf), während  $\sigma_r(E, T)$  den für den Prozeß  $x$  typischen Wirkungsquerschnitt darstellt. Der Ausdruck  $R_r$  gilt nur für eine einzelne Resonanz; bei der Ermittlung des *Doppler*-Koeffizienten eines Reaktors muß  $R_r$  mit einem Faktor als Gewicht versehen werden, der den sich über viele Resonanzen hinweg langsam ändernden Flußverlauf (auch makroskopischer Flußverlauf genannt), berücksichtigt. Für eine geeignete experimentelle Darstellung des *Doppler*-Koeffizienten eines zu betrachtenden Reaktors müssen also drei physikalische Sachverhalte im Auge behalten werden: 1. die Darstellung des richtigen  $\sigma_r(E, T)$ , 2. die Darstellung des mikroskopischen Flußverlaufes, 3. die Darstellung des makroskopischen Flußverlaufes.

Um die physikalischen Eigenschaften eines zu untersuchenden Reaktors studieren zu können, benutzt man in der Reaktorphysik sogenannte Kritische Nullenergieanordnungen. Das sind Reaktoren, die bei so kleinem Neutronenfluß, d. h. so kleiner Leistung arbeiten, daß keine Kühlprobleme auftreten. Bei den mit Kritischen Nullenergieanordnungen durchgeführten Messungen handelt es sich also um integrale Experimente. Man betreibt solche



Nullenergieanlagen mit Leistungen, die höchstens bei 1 kW liegen. Dadurch entfällt die technische Komplikation von Leistungsreaktoren. Die Anlagen sind einfach, meistens werden sie als flexible Anlagen ausgelegt. Bei Schnellen Nullenergieanordnungen geschieht dies z. B. dadurch, daß man in geeigneten Kästen Plättchen von etwa  $5 \times 5 \times 0,15$  cm einfüllt. Die Plättchen bestehen aus angereichertem Uran, Natururan, Eisen, Natrium usw., so daß die materialmäßige Zusammensetzung eines Leistungsreaktors durch geeignetes Zusammenschichten dieser Plättchen simuliert werden kann.

Mit solchen Schnellen kritischen Nullenergieanordnungen bestimmt man z. B. die kritischen Massen als Funktion der materialmäßigen Zusammensetzung, die Brutraten von Schnellen Reaktoren unter Zuhilfenahme von Aktivierungsmessungen, das Energiespektrum durch die Bestimmung von spektral verschiedenen empfindlichen Spaltraten, den örtlichen Flußverlauf durch Sondenmessungen usw. Man hat mit einer flexiblen Nullenergieanordnung sehr viele Möglichkeiten zu Messungen, die einen kritischen Vergleich mit der Reaktortheorie ermöglichen. Die experimentelle Bestimmung des *Doppler*-Koeffizienten mit Hilfe einer solchen kritischen Nullenergieanordnung dagegen scheint ähnlich schwierig zu sein wie seine Berechnung. Man muß zur Darstellung des richtigen  $\sigma_r(E,T)$  zum Beispiel eine Materialprobe heizen, und den zufolge der Heizung auftretenden Reaktivitätseinfluß zu messen versuchen. Erste Versuche, solche Messungen zu machen, sind fehlgeschlagen, weil die Reaktivitätseffekte der thermischen Ausdehnung der beheizten Probe den *Doppler*-Effekt völlig überschattet haben. Es war nicht möglich, beide Einflüsse zu trennen.

Weiter ist zur Darstellung des richtigen mikroskopischen Flußverlaufes erforderlich, eine kritische Anordnung zu beheizen. Eventuell genügt es, nur eine Zone mit einem Radius von einer mittleren freien Weglänge zu beheizen. Das ist bisher noch nicht gemacht worden, weil es auf technische Schwierigkeiten stößt. Selbst wenn in naher Zukunft ein solches Experiment möglich sein sollte, wäre doch das mikroskopische Spektrum nicht richtig dargestellt, weil in einem Leistungsreaktor die verschiedenen Materialien verschiedene Temperaturen haben, was durch eine statische, gleichmäßige Überheizung einer Kritischen Nullenergieanordnung nicht erreichbar ist.

Das makroskopische Spektrum dagegen läßt sich in einer Kritischen Nullenergieanordnung durch geeignete Materialzusammenstellung gut für die verschiedensten interessierenden Fälle darstellen. Daher liegt es nahe, den *Doppler*-Koeffizienten dynamisch zu messen, d. h. man baut eine Anordnung, die nicht künstlich von außen, sondern nuklear beheizt wird; man baut also einen technisch einfachen Leistungsreaktor. Dort erzeugt man Leistungsexkursionen, die durch die Wirkung des *Doppler*-Koeffizienten zum Stillstand gebracht werden. Wenn man von der Wirkung verzögerter Neutronen absieht, gilt dann für die die Leistungsexkursion auslösende Reaktivitätsänderung  $\rho$ :

$$\rho < -\frac{\delta k_{\text{Doppler}}}{2} \quad \dots (18)$$

$\delta k$  ist der Reaktivitätsbeitrag, der durch die unter Reaktorbedingungen erfolgte Aufheizung und den *Doppler*-Effekt bedingt ist. Ist diese Bedingung erfüllt, kommt die Leistungsexkursion zum Stehen, d. h. der Neutronenfluß fällt auf seinen alten Wert zurück. Ein solches physikalisches Leistungsreaktor-Experiment zur Bestimmung des *Doppler*-Koeffizienten ist unabhängig von zwei Reaktorgruppen vorgeschlagen worden und wird wohl in den nächsten Jahren gemacht werden. An dem Beispiel der Bestimmung des *Doppler*-Koeffizienten eines Schnellen Reaktors ist deutlich gemacht

worden, wie sich die Kenntnis kernphysikalischer Grundlagen direkt auf die Auslegung eines Reaktors auch in rein technischer Hinsicht auswirkt.

Allgemein läßt sich sagen, daß das beim *Doppler*-Koeffizienten deutlich gewordene Verhältnis von Theorie und Experiment ganz allgemein gilt. Für viele interessierende Fragen liegen oft mehrere voneinander stark abweichende Messungen vor, so daß es Aufgabe der Theorie ist, zwischen den Messungen zu entscheiden. Häufig allerdings ist es erforderlich, mit Hilfe der Theorie weitreichende Interpolationen und Extrapolationen vorzunehmen. Das gilt insbesondere für die Bestimmung der Absorptionsquerschnitte vieler Isotope im Bereich intermediärer Energien. Die schon früher erwähnte Tendenz, bei der Auslegung moderner Leistungsbrüter oxydischen Brennstoff zu benutzen, viel Strukturmaterial zu verwenden und mit großen kritischen Massen zu arbeiten, hat zur Folge, daß das Neutronenspektrum bei etwa 100 keV seinen Mittelwert hat, während die meisten früheren Untersuchungen (Kritische Nullenergieanordnungen) auf wesentlich härtere Spektren (Mittelwert bei etwa 100 keV) konzentriert waren. Jedenfalls sind für viele Elemente, die für die technische Auslegung eines Reaktors wichtig sind, die Wirkungsquerschnitte bei etwa 100 keV schlecht bekannt. Das gilt z. B. vom Molybdän.

Molybdän ist außerordentlich temperaturbeständig, und sein Schmelzpunkt liegt weit über 2000 °C. So kommt Molybdän als Hüllmaterial für Brennstoffelemente in Betracht, wenn anstatt einer Natriumkühlung eine Heliumkühlung angewendet werden soll. Die früher erwähnten 1 MW pro Liter, die aus dem Core abzuführen sind, lassen sich bei Heliumkühlung aber nur dann abführen, wenn sehr hohe Temperaturen beim Brennstoff-Hüllmaterial verwendet werden. Die Verwendung von Molybdän könnte in technischer Hinsicht eine Heliumkühlung ermöglichen, was zweifellos eine grundsätzlich andere technische Lösung des Reaktorproblems bedeutete, als wenn man mit Natrium kühl. Nun hat aber Molybdän einen verhältnismäßig großen Absorptionsquerschnitt, der selbst in Schnellen Reaktoren empfindlich stören kann, bzw. unter Umständen die Bruterate unter eins sinken läßt. Im Gebiet um 100 keV unterscheiden sich die Messungen von *Diven* auf der einen Seite und *Staviskii* und *Schaphar* auf der anderen Seite um den Faktor drei. Nimmt man an, daß die russischen (d. h. die Messungen von *Staviskii* und *Schaphar*) richtig sind, so käme Molybdän für Schnelle Reaktoren nicht oder kaum in Betracht. Dagegen würden die Los Alamos-Werte (*Diven*) die Verwendung von Molybdän zulassen. Hier ist es nun Aufgabe der Theorie, zwischen diesen Alternativen zu entscheiden. Das geschieht fast immer unter Anwendung der statistischen Theorie der Resonanzen, die für solche Fragen zum Beispiel von *Lane* und *Lynn* verwendet wurde. Dieses Verfahren ist für die Bestimmung der nuklearen Grundlagen der Auslegung Schneller Reaktoren von allgemeiner Bedeutung. Es wurde zum Beispiel auch für die Berechnung des Molybdän-Querschnittes bei 100 keV angewendet und die Ergebnisse zeigen an, daß glücklicherweise die niedrigeren Wirkungsquerschnitte von *Diven* richtig sein dürften.

Mit Hinweisen über einige der dringend erforderlichen aber noch nicht verfügbaren nuklearen Grundlagen für die Auslegung Schneller Reaktoren soll die Darstellung abgeschlossen werden.

#### Der Verlauf der Größe $a$ bei $^{233}\text{U}$

Das Isotop  $^{233}\text{U}$  zeichnet sich dadurch aus, daß sein  $\alpha$ -Wert (Gl. 17) im Gegensatz zu  $^{235}\text{U}$  und  $^{239}\text{Pu}$  wahrscheinlich weitgehend energieunabhängig ist. Das würde grundsätzlich die Möglichkeit eröffnen, im Thorium-Uran-Zyklus

einen intermediären Brüter zu bauen, das heißt, einen Reaktor, dessen Neutronenspektrum seinen Mittelwert bei etwa 10 keV hätte. Das würde in technischer Hinsicht aus vielerlei Gründen recht attraktiv sein. Deshalb wird dieses Konzept unter dem Namen „Advanced Epithermal Thorium-Breeder-Concept“ von der amerikanischen Firma Atomics International verfolgt. Leider steht die saubere experimentelle Bestimmung des  $\alpha(E)$ -Verlaufes immer noch aus, so daß dieses sonst so attraktive Konzept nach wie vor auf schwachen Füßen steht. Es sollte bemerkt werden, daß auch  $\alpha(E)$  für  $^{239}\text{Pu}$  und  $^{241}\text{Pu}$  zur Diskussion stehen. Allerdings sind diese Werte bei  $^{239}\text{Pu}$  so weit gesichert bzw. bei  $^{241}\text{Pu}$  von so kleinem Einfluß, daß die Gültigkeit des Konzeptes eines Schnellen Brutreaktors im Uran-Pu-Zyklus davon nicht mehr berührt wird.

#### *Die Wirkungsquerschnitte der höheren Pu-Isotope*

Diese Querschnitte der höheren Pu-Isotope sind noch weitgehend unbekannt. Ihr Verlauf ist für alle Fragen wichtig, die im Zusammenhang mit dem Begriff  $^{\infty}\text{Pu}$  stehen, das heißt insbesondere, daß die genauen Wirtschaftlichkeitsbetrachtungen eines Schnellen Brutreaktors im geschlossenen Zyklus davon hochgradig beeinflusst werden.

#### *Die Resonanzparameter von $^{239}\text{Pu}$*

Die Resonanzparameter von  $^{239}\text{Pu}$  sind für die Größe des Doppler-Koeffizienten bestimmend und können sehr wohl die Sicherheitsfragen bei Schnellen Reaktoren mit oxydischem oder karbidischem Brennstoff entscheidend mitbestimmen.

#### *Die Wirkungsquerschnitte für inelastische Streuung aller schweren Isotope, insbesondere von $^{238}\text{U}$*

Diese Wirkungsquerschnitte sind primär dafür verantwortlich, daß das in einem Schnellen Reaktor vorliegende Neutronenspektrum wesentlich weicher als das Spaltspektrum ist. Denn die für Spaltneutronen überwiegende Reaktion ist die der inelastischen Streuung. Die Anwendung der statistischen Theorie zusammen mit time-of-flight-Messungen hat vor etwa einem Jahr dazu geführt, daß der Verlauf der inelastischen Streuquerschnitte für  $^{238}\text{U}$  unter 1 MeV festgelegt werden konnte. Wegen mangelnder kernspektroskopischer Informationen über die angeregten Zustände sind der Anwendung der statistischen Theorie noch deutliche Grenzen gesetzt.

#### *Der Verlauf von $r(E)$ für $^{239}\text{Pu}$ und $^{241}\text{Pu}$*

$r$  ist die Zahl der pro Spaltung freierwerdenden Neutronen, wenn diese Spaltung durch ein Neutron der Energie  $E$  ausgelöst wurde. Die Energieabhängigkeit wird meist durch folgenden Ansatz beschrieben:

$$r = r_0 + (d\nu/dE)_0 \cdot E.$$

Für  $^{235}\text{U}$  sind erst im letzten Jahr gültige Werte für  $r_0$  und  $(d\nu/dE)_0$ , vor allem durch Messungen von *Diven* in Los Alamos festgelegt worden. Es fehlen jedoch verlässliche Werte von  $(d\nu/dE)_0$  für  $^{239}\text{Pu}$  und von  $r_0$  und  $(d\nu/dE)_0$  für  $^{241}\text{Pu}$ . Die genaue Bestimmung der Neutronenbilanz und insbesondere der Brutrate hängt von diesen Größen ab.

*(n, $\gamma$ )-Querschnitte der meisten mittelschweren Isotope im keV-Gebiet*

Die (n, $\gamma$ )-Querschnitte entscheiden darüber, ob ihre Verwendung in Schnellen Brutreaktoren mit der Forderung, daß die Brutrate größer als eins sein sollte, verträglich ist. Die Verwendung mittelschwerer Isotope entscheidet sehr weitgehend über die Anwendbarkeit technischer Konzeptionen, hat also große praktische und wirtschaftliche Konsequenzen.

Die angestellten Überlegungen sollten deutlich machen, wie eng die Verknüpfung von nuklearen Grundlagen und Realisierbarkeit von technischen Konzeptionen Schneller Reaktoren ist. Sie sollten weiter zeigen, daß heute, 23 Jahre nach der Entdeckung der Kernspaltung, vitale kernphysikalische Informationen fehlen und daß deshalb eine Hilfestellung von Seiten der theoretischen und experimentellen Kernphysik erforderlich ist. Das gilt um so mehr, als der Schnelle Brutreaktor sowohl im Hinblick auf kurzfristige ökonomische Betrachtungen wie auch langfristige Überlegungen der Energieversorgung, ein ungewöhnlich attraktiver Reaktortyp zu sein scheint.

Im internationalen Gespräch der Kernphysiker und Reaktorphysiker nimmt deswegen die Kernphysik im Bereich von 0 bis 10 MeV eine viel beachtete Stellung ein, obwohl das Interesse der Physiker an grundsätzlichen Fragen mehr im Bereich der Hochenergiephysik liegt. Leider ist die Zahl der Stellen in Deutschland, die diesem Energiebereich ihre Aufmerksamkeit schenken, sehr klein.

Es trifft wohl zu, daß von der Seite der Reaktorphysik her und insbesondere von der Physik Schneller Brüter her die Kernphysik zwischen 0 und 10 MeV in neuem, bisher nicht so sehr bekanntem Lichte erscheint.