

Transmutation von Transuranen in einem gasgekühlten beschleunigergetriebenen System

Klaus Hendrik Biß

Forschungszentrum Jülich GmbH
Institut für Energie- und Klimaforschung (IEK)
Systemforschung und Technologische Entwicklung (IEK-STE)

Transmutation von Transuranen in einem gasgekühlten beschleunigergetriebenen System

Klaus Hendrik Biß

Schriften des Forschungszentrums Jülich
Reihe Energie & Umwelt / Energy & Environment

Band / Volume 217

ISSN 1866-1793

ISBN 978-3-89336-964-5

Bibliografische Information der Deutschen Nationalbibliothek.
Die Deutsche Nationalbibliothek verzeichnet diese Publikation in der
Deutschen Nationalbibliografie; detaillierte Bibliografische Daten
sind im Internet über <http://dnb.d-nb.de> abrufbar.

Herausgeber
und Vertrieb: Forschungszentrum Jülich GmbH
 Zentralbibliothek, Verlag
 52425 Jülich
 Tel.: +49 2461 61-5368
 Fax: +49 2461 61-6103
 E-Mail: zb-publikation@fz-juelich.de
 www.fz-juelich.de/zb

Umschlaggestaltung: Grafische Medien, Forschungszentrum Jülich GmbH

Druck: Grafische Medien, Forschungszentrum Jülich GmbH

Copyright: Forschungszentrum Jülich 2014

Schriften des Forschungszentrums Jülich
Reihe Energie & Umwelt / Energy & Environment, Band / Volume 217

D 82 (Diss., RWTH Aachen University, 2014)

ISSN 1866-1793

ISBN 978-3-89336-964-5

Vollständig frei verfügbar im Internet auf dem Jülicher Open Access Server (JUWEL)
unter www.fz-juelich.de/zb/juwel

Alle Rechte vorbehalten. Kein Teil des Werkes darf in irgendeiner Form (Druck, Fotokopie oder
in einem anderen Verfahren) ohne schriftliche Genehmigung des Verlages reproduziert oder
unter Verwendung elektronischer Systeme verarbeitet, vervielfältigt oder verbreitet werden.

Kurzzusammenfassung

Die friedliche Nutzung der Kernenergie mittels Leicht- und Siedewasserreaktoren ist mit einem Aufbau von langlebigem hochradioaktivem Abfall verbunden. Im Vergleich zur direkten Endlagerung bietet Partitioning und Transmutation (P&T) die Möglichkeit, diese Abfälle vorher in ihrer Menge durch Umwandlung in kurzlebige Radionuklide zu reduzieren, um das von ihnen ausgehende Gefährdungspotential bei der Endlagerung zu senken.

Unterkritische Anlagen, die durch Spallationsprozesse mit Neutronen zur Aufrechterhaltung der nuklearen Kettenreaktion versorgt werden, erlauben eine zielgerichtete Transmutation. Als unterkritische Anlage wurde in dieser Dissertation ein gasgekühltes beschleunigergetriebenes System (ADS) zur Transmutation von Transuranen modelliert, um die Minderung des Gefährdungspotentials durch einen P&T-Prozess zu bewerten. Die Simulation neutronenphysikalischer Prozesse in diesem Modell basiert auf dem Monte-Carlo Computerprogramm MCNPX.

Die Darstellung eines Gleichgewichtskerns in dem Modell erlaubt es, das Transmutations- und Betriebsverhalten für verschiedene Brennstoffvarianten in einer Magnesiumoxidmatrix zu untersuchen und eine vereinfachte Abbrandmethode zu entwickeln. Americium als Teil des Brennstoffs wirkt beim Betrieb aufgrund der Umwandlung in Plutonium stabilisierend auf den Neutronenmultiplikationsfaktor. Als Alternative zu Magnesiumoxid wurde Thoriumoxid als Matrix für den Brennstoff untersucht, um die stabilisierende Wirkung des Americiums durch die Umwandlung von Thorium in ^{233}U nachzubilden und darüber hinaus einen gleichbleibenden Betriebszyklus im späteren P&T-Prozess zu gewährleisten.

Die Berechnung der Nuklidzusammensetzung am Ende des P&T-Prozesses führt zu einer Erweiterung der mathematischen Beschreibung der Massenreduzierung (Transmutationseffizienz) um das in dem Reaktor befindliche Inventar der Transurane. Die mit der Anlage erreichte Transmutationseffizienz beträgt 98,8 %. Die Transmutationsdauer wurde mit verschiedenen Betriebsstrategien in Abhängigkeit von der Anzahl, der Leistungsgröße und der Fahrweise von Transmutationsanlagen untersucht, um den Aufwand für den P&T-Prozess in Abhängigkeit der Effizienz zu ermitteln. Es zeigt sich, dass für eine Transmutationseffizienz von 98,8 % selbst bei geringen Wiederaufbereitungsverlusten von 0,1 % eine Betriebsdauer von mehr als 338 Jahren notwendig ist. Dies liegt unter anderem an einer Wiederaufarbeitungszeit von 10 Jahren.

Der Verlauf der endlagerrelevanten Größen Radiotoxizität, Nachzerfallswärme und Aktivität für die Transurane über Endlagerzeiträume bis 1 Millionen Jahren wird für die direkte Endlagerung, nach dem P&T-Prozess und für nicht zu transmutierende Abfälle dargestellt. Bei den Abfällen handelt es sich um bereits verglaste wärmeentwickelnde Abfälle, Spaltprodukte sowie Uran, die dem P&T-Prozess nicht zugeführt werden. Anhand der verglasten Abfälle werden für die Nachzerfallswärme und die Radiotoxizität Effizienzen abgeleitet, die den zusätzlichen Beitrag der transmutierten Transurane auf dieses Niveau begrenzt. Die Effizienzen unterscheiden sich mit 96 % und 96,6 % nur geringfügig voneinander und führen zu Transmutationsdauern von 232 und 245 Jahren.

Diese Dissertation liefert auf der Grundlage des anfänglichen Gefährdungspotentials, der Simulation des Betriebs einer Transmutationsanlage, der Berechnung der Endlagermenge nach der P&T-Phase, der Entwicklung der resultierenden endlagerrelevanten Größen und der Betrachtung der Transmutationsdauer ein fundiertes Bild über den Transmutationsprozess.

Abstract

The peaceful usage of nuclear energy by light and boiling water reactors is connected with a buildup of long-lived high-level radioactive waste. Compared to the direct disposal, partitioning and transmutation (P&T) is considered as an effective way to reduce this waste in its quantity by converting it into short-lived radio nuclides. By that the long term radiotoxicity is reduced compared to direct disposal.

Subcritical systems, which are powered by spallation processes for free neutron production to maintain the nuclear chain reaction, allow a target-oriented transmutation. As a subcritical system a gas-cooled accelerator driven system (ADS) for transmutation of transuranic elements has been modeled in this thesis to evaluate the reduction of the radio toxicity by P&T. The simulation of neutron-physical processes is based on the Monte Carlo computer program MCNPX.

The development of an equilibrium core made it possible to study the transmutation and operating behavior for several fuel variations in a magnesiumoxid matrix and develop a simplified burnup method. Americium as part of the fuel has a stabilizing effect on the neutron multiplication due to its conversion into plutonium during the operation. Thorium was investigated as an alternative matrix for the fuel in order to replicate the stabilizing effect of americium by the conversion of thorium in ^{233}U . By that a consistent operating cycle in the later P&T-process is ensured.

Calculation of the nuclide composition at the end of a P&T-process leads to an expansion of the mathematical description of the mass reduction (transmutation efficiency) by the material located in the reactor. The achieved transmutation efficiency with the investigated ADS is 98.8 %. The transmutation time was examined with different operating strategies regarding the number, size and thermal power of use of transmutation facilities to determine the effort for the P&T-process depending on efficiency. It turns out that a transmutation time of more than 338 years, even at low reprocessing losses of 0.1 %, is necessary for transmutation efficiency of 98.8 %. One reason for this duration is due to a reprocessing time of 10 years.

The development of repository-relevant quantities radiotoxicity, decay heat and activity for transuranic elements on repository periods up to 1 million years is presented for direct disposal, after the P&T-process and for not transmutable assumed waste. The waste is divided into already vitrified heat-generating waste, uranium and fission products. Efficiencies for decay heat and radiotoxicity are deduced from the vitrified waste, which limits the additional contribution of transmuted transuranic elements to this level. The efficiencies differ with 96 % and 96.6 %, only slightly from each other and lead to transmutation durations of 232 and 245 years.

With the consideration of the initial hazard potential, the simulation of the operation of a transmutation system, the calculation of the final storage masses after the P&T-phase, the development of the resulting repository-relevant variables, and the consideration of the transmutation time, this thesis provides an in-depth picture of the transmutation process.

Danksagung

Mein erster Dank geht an meinen Doktorvater Prof. Dr. Bruno Thomauske. Dieser ermöglichte mir nicht nur die Promotion auf einem spannenden Themengebiet, sondern ließ mich auch an seiner breiten Berufserfahrung teilhaben. Meinem Betreuer Prof. Dr. Rahim Nabbi möchte ich für seine Unterstützung während und nach meiner Tätigkeit am Institut für nuklearen Brennstoffkreislauf (INBK) danken. Prof. Dr. Achim Stahl danke ich für sein Interesse an meiner Arbeit und die Übernahme eines Berichters.

Das kollegiale Arbeitsumfeld am INBK schaffte eine gute Arbeitsatmosphäre. Für die fachlichen Diskussionen danke ich an dieser Stelle Dr. John Kettler, Dr. Oliver Schitthelm, Dr. Peter Bourauel und Dr. Nikhil Shetty. Großer Dank geht an Stephan Rohmen für die Clusterbetreuung und zahlreichen Lehrstunden auf dem Gebiet der objektorientierten Programmierung.

Mein größter Dank geht an Gina Weßel für den Halt und die Hilfe abseits meiner Arbeit.

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
2	Grundlagen der Transmutation	3
2.1	Gefährdungspotential radioaktiver Stoffe	3
2.2	Brennstoffkreisläufe	9
2.2.1	Offener Brennstoffkreislauf	9
2.2.2	Wiederaufarbeitung	9
2.2.3	Partitioning & Transmutation (P&T)	10
2.2.4	Kombinierte Verfahren	13
2.3	Nukleare Prozesse	15
2.3.1	Kernphysikalische Grundlagen	15
2.3.2	Neutronenphysikalische Kenngrößen	21
2.4	Transmutationssysteme	25
2.4.1	Kritische Systeme	25
2.4.2	Unterkritische Systeme	26
3	Softwareprogramme	29
3.1	Monte-Carlo-Code MCNPX	30
3.2	Nukleare Daten	33
3.3	Abbrandberechnung	36
3.4	Kopplungsprogramme	38
3.5	Endlagerrelevante Größen	43
4	Modellentwicklung	45
4.1	Literaturrecherche	45
4.2	Modellbildung von AGATE	49
4.3	AGATE-Spallationstarget	51
5	Entwicklung des Betriebskonzepts	57
5.1	Testphase	57
5.1.1	Beladung mit MOX-Brennstoff	57
5.1.2	Teilbeladung mit TRU-Brennstoff	60
5.2	Betriebsphase	62
5.2.1	Referenzkern	62
5.2.2	Gleichgewichtskern	64
5.2.3	Shuffling	66
5.3	Simulation des Betriebsverhaltens	71
6	Transmutationsverhalten	77
6.1	Brennstoffkonzepte in einer Magnesiumoxidmatrix	79
6.1.1	Brennstoffvariante PuMA	79
6.1.2	Brennstoffvariante BRD	90
6.1.3	Brennstoffvariante CERMET	91
6.2	Brennstoffkonzepte in einer Thoriumoxidmatrix	93
6.2.1	Brennstoffvariante ThPuMA	94

6.2.2	Brennstoffvariante ThPu	95
6.2.3	Brennstoffvariante ThBRD	96
7	Zusammenfassung der Brennstoffuntersuchungen	99
8	P&T-Bewertung	103
8.1	Endlagerung nach einem Abbrandzyklus	103
8.2	Abgeschlossener P&T-Prozess	107
8.2.1	Nuklidzusammensetzung am Ende der P&T-Phase	107
8.2.2	Endlagerrelevante Größen	115
8.3	Dauer- und Kostenabschätzung	121
8.4	Zusammenfassung und Diskussion	129
9	Fazit	131
A	Anhang	134
A.1	Ergebnisse zum Transmutationsverhalten	134
A.2	Szenarien zur Laufzeitabschätzung	144

Worterläuterungen

α	Dopplerkoeffizient des Brennstoffs
β	Anteil der verzögerten Neutronen bei Spaltung
<i>pcm</i>	per cent mille = 10^{-5}
k_{eff}	Repräsentiert in unterkritischen Systemen den (Eigen-)Multiplikationsfaktor des Systems für Neutronen ohne Spallationsquelle
k_s	Multiplikationsfaktor der Spallationsneutronen
P&T	Partitioning und Transmutation
ADS	Accelerator Driven System
AGATE	Advanced Gas-cooled Accelerator-driven Transmutations Experiment
Brennstoffvariante BRD	MgO-Matrix mit Brennstoff nach deutschen Lagerbeständen
Brennstoffvariante CERMET	metallische Mg-Matrix mit PuMA-Brennstoff
Brennstoffvariante PuMA	Kurzform für (PuMA) O_{2-x} -MgO Brennstoff
Brennstoffvariante ThBRD	ThO ₂ -Matrix mit Brennstoff nach deutschen Lagerbeständen
Brennstoffvariante ThPu	ThO ₂ -Matrix mit Plutonium als einziges Transuran
Brennstoffvariante ThPuMA	ThO ₂ -Matrix mit PuMA-Brennstoff
EFIT	Europea Facility for Industrial Transmutation
ESNII	European Sustainable Nuclear Industry Initiative
FP	Spaltprodukte (fission products)
FR	Fast Reactor: Reaktor deren Neutronen ein schnelles Spektrum aufweisen
GCFR	Gas Cooled Fast Reactor

HLW	High Level Waste
HYPER	Hybrid Power Extraction Reactor
LBE	Blei-Wismut-Mischung Pb-Bi
LOCA	loss of coolant accident
LOHS	loss of heat sink
LOP	loss of pressure
LWR	Leichtwasserreaktor
MA	Minore Actinide. Actinide neben Uran und Plutonium. Vorrangig Americium, Neptunium und Curium
MCNPX	Monte-Carlo N-Particle eXtended
MOX	Mixed-Oxide
MYRRHA	Multi-purpose hybrid research reactor for high-tech applications
P/D	Verhältnis von Abstand der Brennstabmittelpunkte zu -durchmesser
SCS	shutdown cooling system
SFBR	Sodium Fast Breeder Reactor
SFR	Sodium-cooled Fast Reactor
SMART	Subcritical Minor Actinide Reduction through Transmutation
SWCR	Super-Critical Water-Cooled Reactor
TrR	Transmutationsrate
TRU	Transurane: Elemente mit einer höheren Ordnungszahl als Uran ($Z=92$)
ULOF	unprotected loss of flow
WAA	Wiederaufarbeitung
XT-ADS	eXperimental-ADS
ZAID	Kennzeichnung eines Isotops mit der Formel $ZAID = Z \cdot 10,000 + A \cdot 10 + M$, wobei Z die Kernladungszahl, A die Massenzahl und M der metastabile Zustand (0 für Grundzustand) ist

1 Einleitung

Die Kernspaltung wird in Deutschland seit über 50 Jahren zur Stromerzeugung genutzt. Sie ist mit einem Aufbau von langlebigen hochradioaktiven Stoffen verbunden. Die Entsorgung dieser Stoffe kann durch eine Endlagerung in tiefen, geologischen Schichten erfolgen, um die von diesen ausgehenden Gefahren von der Biosphäre fernzuhalten. Vor diesem Einlagerungsprozess kann das Gefährdungspotential durch chemische Abtrennung (Partitioning) und anschließender Umwandlung (Transmutation¹) (P&T) reduziert und dadurch die Einhaltung der Sicherheitsanforderung eines Endlagers erleichtert werden. Diese Dissertation untersucht die Umsetzung eines P&T-Prozesses mittels der gasgekühlten beschleunigergetriebenen Anlage AGATE (Advanced Gas-cooled Accelerator-driven Transmutation Experiment).

Ausgangslage

Die Zusammensetzung der hochradioaktiven langlebigen Radionuklide bestimmt das Gefährdungspotential und ist abhängig von der vorherigen Brennstoffstoffverwendung. Hier gilt es zwischen dem offenen und dem geschlossenen Brennstoffkreislauf zu unterscheiden. Beim offenen Brennstoffkreislauf werden die abgebrannten Brennelemente zur direkten Endlagerung vorbereitet und der noch enthaltene Brennstoff nicht weitergenutzt. Einen Übergang zum geschlossenen Brennstoffkreislauf stellt die Verwendung des bei der Wiederaufarbeitung gefertigten Misch-Oxid Brennstoffs (MOX-Brennstoff) aus Uran und Plutonium dar. Die Nutzung von MOX-Brennstoff erhöht den Abbrand (Spaltungsenergie [MWd] je eingesetzter Tonne Schwermetall) des anfänglichen Uranbrennstoffs und reduziert die Menge der endzulagernden Schwermetalle. Transurane mit einer höheren Ordnungszahl als die von Plutonium wie Americium und Curium werden aufgrund der neutronenphysikalischen Eigenschaften in heutigen Druck- und Siedewasserreaktoren diesen nicht als Brennstoff zugeführt. Eine Verwendung ist hingegen bei den Generation IV Reaktoren vorgesehen. Beschleunigergetriebene Systeme (accelerator driven system -ADS) erweitern diese Möglichkeiten zur effektiven Brennstoffnutzung hin zum geschlossenen Brennstoffkreislauf. Sie werden als Ergänzung zu den konventionellen Leistungsreaktoren gesehen, um die minoren Actiniden, allen voran Americium, gezielt zu vernichten.

Ohne eine zukünftige Nutzung von Leistungsreaktoren ist die verbleibende Reststoffmenge aus abgebrannten Brennelementen kein Wertstoff sondern Abfall. In einem ADS ließen sich die Transurane mit einem hohen Abbrand und mehrfacher Wiederaufarbeitung in kurzlebige Spaltprodukte umwandeln. In der Theorie wird dieser Prozess durch die Abtrennverluste bei der Wiederaufarbeitung beschränkt, weshalb die Gesamtumwandlungsrate (Transmutationseffizienz) auf 99.5 % begrenzt ist. Dies setzt einen Abbrand von 20 % je Abbrandzyklus zur Reduzierung der Wiederaufarbeitungsschritte und geringe Verlusten von 0.1 % bei der industriellen Abtrennung voraus. Unter der Annahme gleichbleibender Reaktorbedingungen und dieser beiden Größen wird die Materialzusammensetzung am Ende der P&T-Phase berechnet, um eine Bewertung des P&T-Prozesses vorzunehmen. Hieraus ergibt sich eine Reduzierung des Gefährdungspotentials um den Faktor 200.

¹Entgegen der eigentlichen Bedeutung ist hier die Spaltung gemeint und nicht ein allgemeiner Umwandlungsprozess

Zielsetzung und Vorgehensweise

Die vorliegende Dissertation analysiert einen P&T-Prozess, der mit einem ADS durchgeführt wird. Das Betriebs- und Transmutationsverhalten wird untersucht und ermöglicht die Berechnung der Materialzusammensetzung des verbliebenen Schwermetalls am Ende von P&T unter Berücksichtigung der sich ändernden Reaktorbedingungen.

In einem ADS werden die Transmutationsraten für Brennstoffkonzepte untersucht, die die Transmutation von allen Transurane vorsehen. Anhand der neutronenphysikalischen Betriebsgröße Neutronenmultiplikationsfaktor wird ein Betriebskonzept entwickelt, welches die Berechnung der Nuklidzusammensetzung am Ende der P&T-Phase unter Einbezug der Auswirkung der Brennstoffänderung auf das Transmutationsverhalten erlaubt.

Die Nuklidzusammensetzung ermöglicht einen Vergleich der endlagerrelevanten Größen Radiotoxizität, Nachzerfallswärme und Aktivität bei direkter Endlagerung zu einer nach P&T. Unter Berücksichtigung der bereits zur Endlagerung wiederaufgearbeiteten Abfälle wird die Transmutationseffizienz im Hinblick auf die Transmutationsdauer und -kosten untersucht. Die Darstellung des Gefährdungspotentials bei direkter Endlagerung, die Simulation eines ADS Betriebs sowie die Betrachtung der Transmutationseffizienz und ihrer Realisierung bilden die Grundlage zur Beurteilung von P&T.

Die Dissertation beginnt mit der Darstellung der Grundlagen in Kapitel 2, bei denen besonders auf die endlagerrelevanten Größen der wärmeentwickelnden Abfälle eingegangen wird. In Kapitel 3 wird die zur Modellierung des Systems notwendige Software vorgestellt. Die Modellierung des Kerns erfolgt mit dem Computercode MCNPX. Die Abbrandrechnungen werden mit dem Computercode ORIGEN durchgeführt, welches die notwendigen neutronenphysikalischen Ergebnisse aus MCNPX über ein Kopplungsprogramm bezieht. Die mittels dieser Programme ermittelte Stoffmenge wird mit dem Softwaremodul WASTE ausgewertet, welches zur Berechnung der endlagerrelevanten Größen im Rahmen dieser Dissertation entwickelt wurde.

In Kapitel 4 werden die für die Modellierung des neutronenrelevanten Systems notwendigen Komponenten in einer Literaturrecherche betrachtet. Im Anschluss wird der Aufbau des gasgekühlten beschleunigergetriebenen Systems, welches im Rahmen der Machbarkeitsstudie AGATE erstellt wurde, mit den wesentlichen Systemparametern festgelegt. Als zentrale Komponente der Anlage wird die neutronenphysikalische Wechselwirkung eines innovativen Spallationstargets, welches als Neutronenquelle dient, mit der Transmutationszone untersucht.

Zur Untersuchung des Betriebsverhaltens wird in Kapitel 5 zunächst das System in einer Testphase simuliert, in der aufgrund einer zeitnahen Umsetzung und fehlender Alternative MOX-Brennstoff angenommen wird. Nach der Testphase wird ein Betriebskonzept für einen Gleichgewichtskern mit einer transuranen Brennstoffvariante entwickelt. Die Simulation des Betriebs eines ADS ermöglicht eine eingehende Analyse des Transmutationsverhaltens unterschiedlicher Brennstoffvarianten in Kapitel 6. Die sich ändernden Betriebs- und Transmutationseigenschaften werden festgehalten und ein Brennstoff gesucht, welcher einen Betrieb und die Transmutation aller Transurane gewährleistet. Die Ergebnisse werden in Kapitel 7 diskutiert.

Die Erkenntnisse aus dem Betriebs- und Transmutationsverhalten werden genutzt, um in Kapitel 8 einen mit ADS einen abgeschlossenen P&T-Prozess zu berechnen und dabei die resultierende Nuklidzusammensetzung im Hinblick auf endlagerrelevante Größen eingehend zu analysieren. Die Ergebnisse erlauben einen Vergleich mit der mathematisch abgeleiteten Transmutationseffizienz. Auf Basis der Untersuchungen zur Transmutationseffizienz werden verschiedene Strategien zur Realisierung des P&T-Prozesses im Hinblick auf die Transmutationsdauer und -kosten betrachtet.

2 Grundlagen der Transmutation

Partitioning und Transmutation (P&T) ermöglicht die Reduzierung der aus der Kernenergienutzung verbliebenen langlebigen radioaktiven Stoffe. Zur Beurteilung des P&T-Verfahrens wird nicht die Masse dieser Stoffe, sondern andere endlagerrelevante Größen herangezogen. Diese sind die Aktivität und die beiden abgeleiteten Größen Radiotoxizität als Gefährdungspotential und Nachzerfallswärme, welche im Folgenden beschrieben werden. Dabei wird unter anderem das Gefährdungspotential für verschiedene Brennstoffkreisläufe betrachtet, um das P&T-Potential zu veranschaulichen. Die in den Anlagen stattfindenden nuklearen Prozesse werden für kritische und unterkritische Systeme aufgezeigt. Abschließend werden mögliche, zukünftige Transmutationssysteme vorgestellt.

2.1 Gefährdungspotential radioaktiver Stoffe

Die Nutzung der Kernenergie erzeugt radioaktive Stoffe. Zur Charakterisierung werden sie in zwei Klassen, die der wärmeerzeugenden Abfälle und der Abfälle mit vernachlässigbarer Wärmeerzeugung (verkürzt nicht wärmeentwickelnde Abfälle genannt), eingeteilt. Die Einteilung wurde beim Planfeststellungsverfahren für das Endlager Konrad zur Einhaltung des 3-Kelvin-Kriteriums getroffen. Abfälle, die nicht zur Überschreitung dieser thermischen Beeinflussung des Wirtsgesteins am Stoß (Seitenwand der Einlagerungskammer) führen, werden als "nicht wärmeentwickelnde Abfälle" bezeichnet [1, 2].

Zu der Klasse der wärmeerzeugenden Abfälle gehören weniger als 10 % des Abfallvolumens. Dieses Volumen beinhaltet jedoch 99 % der Radioaktivität [3], weshalb von diesem das größte Gefährdungspotential ausgeht.

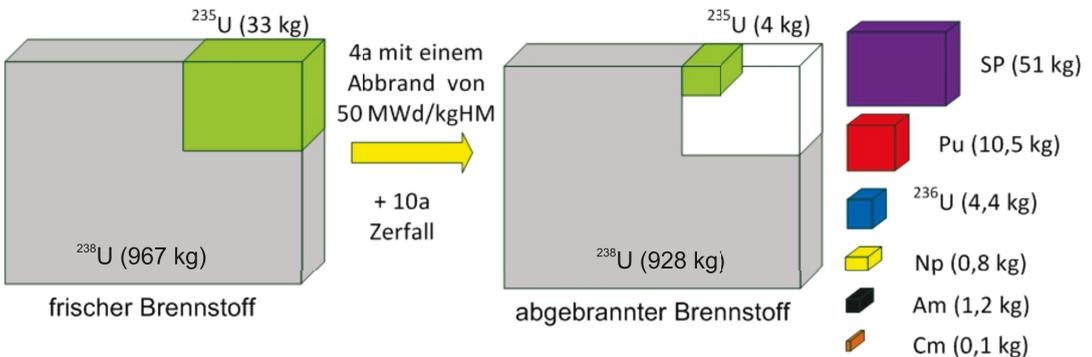


Abb. 2.1: Elementaufbau in Folge eines Abbrands von 50 MWd/kg_{HM} für frischen Uranbrennstoff

Der Aufbau von wärmeentwickelnden Stoffen ist für den Fall eines abgebrannten Uranbrennstoffs in Abbildung 2.1 dargestellt. Neben den Transuranen² entstehen durch die Spaltung der schweren Kerne Spaltprodukte. Alle Transurane sowie die meisten Spaltprodukte³ sind radioaktiv, d.h. sie

²Elemente mit einer höheren Ordnungszahl als Uran

³Durch den Neutronenüberhang findet vorwiegend ein β^- -Zerfall statt

zerfallen unter Emission einer Strahlenart (vorwiegend α, β^-) in ein anderes Nuklid. Die Aktivität A gibt die Zerfälle pro Sekunde an und ist definiert durch

$$A = \lambda \cdot N = \frac{\ln(2)}{T_{1/2}} \cdot \frac{m \cdot N_A}{M} \quad (2.1)$$

m ist die Masse [g] des Nuklids, $T_{1/2}$ die Halbwertszeit [s], λ die Zerfallskonstante [1/s], N die Anzahl der Atomkerne, M die Molare Masse [g/mol] und N_A [mol⁻¹] die Avogadrokonstante. Die Einheit für die Aktivität ist das Becquerel⁴ (Bq), welches für Zerfälle pro Sekunde steht.

Die deponierte Energie durch Wechselwirkung der ionisierenden Strahlung mit lebendem Gewebe gibt die Dosis an, die durch einen solchen Zerfall entsteht. Sie ist Maß für die Beurteilung des gesundheitlichen Risikos. Die Dosis ist nicht für jeden Zerfall gleich. Sie richtet sich nach Strahlungsart, Energie, Verweildauer im Körper und der Resorption des Organismus. Ein effektiver Dosisfaktor [4] lässt sich mit der Formel

$$D_{eff} = \sum_T W_T \cdot H_T = \sum_T W_T \cdot \sum_R W_R \cdot D_{T,R} \quad (2.2)$$

berechnen. H_T ist die Äquivalentdosis in dem Gewebe. $D_{T,R}$ gibt die gemittelte Dosis in einem Organ oder Gewebe an. W_R ist der Gewichtungsfaktor für die jeweilige Strahlung bei entsprechender Energie (Tabelle 2.1). Das Gewebe wird ebenfalls mit dem Faktor W_T gewichtet (Tabelle 2.2), da sich dieses bei der Zellteilungsrate und der Verweildauer von radioaktiven Substanzen unterscheidet, was zu einem unterschiedlichen Gesundheitsrisiko führt. Die Einheit der resultierenden effektiven Dosis ist das Sievert [Sv].

Tabelle 2.1: Wichtungsfaktoren W_R der Strahlungsart zur Berechnung der effektiven Dosis [4]

Strahlenart	Energiebereich	Wichtungsfaktoren der Strahlung W_R
Photonen	alle	1
Elektronen, Myonen	alle	1
Neutronen	< 10 keV	5
	10 keV bis 100 keV	10
	100 keV bis 2 MeV	20
	2 MeV bis 20 MeV	10
	> 20 MeV	5
Protonen, ohne Rückstoßprotonen	> 2 MeV	5
α , Spaltfragmente, schwere Kerne		20

Die Radiotoxizität R für eine radioaktive Stoffmenge kann bei Kenntnis der Nuklidzusammensetzung und der effektiven Dosisfaktoren D_{eff} mit der jeweiligen Aktivität des Nuklides A_N durch

$$R = \sum_N A_N \cdot D_{eff} \quad (2.3)$$

⁴Das Becquerel löst die frühere Einheit Curie (Ci) ab, welche die Anzahl der Zerfälle eines Gramms Radium-226 pro Sekunde angibt. Es gilt: 1Ci = 3.7 * 10¹⁰Bq

Tabelle 2.2: Wichtungsfaktoren W_T für Gewebe zur Berechnung der effektiven Dosis [4]

Gewebe oder Organ	Wichtungsfaktoren für Gewebe, W_T	Gewebe oder Organ	Wichtungsfaktor für Gewebe, W_T
Gonaden	0.20	Brust	0.05
Knochenmark	0.12	Leber	0.05
Dickdarm	0.12	Speiseröhre	0.05
Lunge	0.12	Schilddrüse	0.05
Magen	0.12	Haut	0.01
Blase	0.05	Knochenoberfläche	0.01
Übrige	0.05		

berechnet werden. D_{eff} ist zudem abhängig von der Art der Resorption in den Organismus. Es wird zwischen der Nahrungsaufnahme (Ingestion) und Einatmung (Inhalation) unterschieden. Für die Betrachtung der Radiotoxizität in einem Endlager wird die Ingestion angenommen. Diese ist von ihren Dosiswerten niedriger, aber ihr Eintreten ist, bei Freisetzung der Schadstoffe durch in das Endlager eindringendes Wasser, wahrscheinlicher.

Eine weitere Größe für die Betrachtung einer Endlagerstätte für wärmeentwickelnden Abfall ist die Wärmeentwicklung. Eine starke Erwärmung kann die isolierende Wirkung des Wirtsgesteins schädigen und somit den sicheren Einschluss der radioaktiven Stoffe aufheben. Die Nachzerfallswärme aus radioaktiven Zerfällen lässt sich mit der Formel

$$W = \sum_N A_N \cdot e_N \quad (2.4)$$

berechnen. Die Nachzerfallswärme ist, wie die Radiotoxizität, proportional zu der Aktivität des jeweiligen Nuklides A_N , bei der eine Energie e_N freigesetzt wird.

Die Aktivität ist damit die Basisgröße, aus der sich mittels weiterer Daten die Gefahr für den Menschen und die Stabilität eines Endlagers ableiten lässt. Die Aktivitätsentwicklung aus abgebrannten Brennstäben kann nach [5] (Tabelle 2.3) für Deutschland berechnet werden. Die Abfallmenge aus abgebrannten Brennstäben⁵ setzt sich aus den beiden Reaktortypen Druckwasserreaktor (PWR) und Siedewasserreaktor (BWR) sowie den Brennstofftypen Uranoxid (UOX) und Mischoxid (MOX) zusammen. Der high level waste (HLW) stellt den Anteil dar, der bereits wieder aufgearbeitet wurde⁶. Die Isotopendarstellung erlaubt die Aktivitätsberechnung und wird für die Berechnung des Isotopenvektors der Elemente für die Brennstoffvarianten genutzt. Der Verlauf der Aktivität bei Endlagerung (Abbildung 2.2) der einzelnen Elemente beinhaltet den Beitrag ihrer Zerfallsketten. Der größte Massenanteil des fast 10,000 Tonnen umfassenden radioaktiven Abfalles ist mit über 94 % das Uran. Sein Beitrag zu allen endlagerrelevanten Größen (Aktivität, Radiotoxizität und Wärmeentwicklung) ist bis hin zu einer Million Jahren vernachlässigbar. Für die ersten Jahrhunderte sind die Spaltprodukte, aufgrund ihrer relativ kurzen Halbwertszeiten, maßgeblich für die Aktivität.

Plutonium ist das Element, welches nach Abklingen der Spaltprodukte den größten Beitrag leistet.

⁵Gemeint ist die Abfallmenge unter Zugrundelegung der Novellierung des Atomgesetzes im April 2002. Seitdem gab es zwei weitreichende Änderungen (Laufzeitverlängerung - Novellierung 2010 - und beschleunigter Ausstieg - Novellierung 2011 -), die im Rahmen dieser Arbeit nicht berücksichtigt werden.

⁶Aufgrund des Wiederaufbereitungsverfahrens PUREX sind die Elemente Uran und Plutonium nur in geringen Mengen enthalten

Tabelle 2.3: Inventar [t] aus deutschen Kernkraftwerken für das Jahr 2022 [5]

Menge	PWR-UOX	PWR-MOX	BWR-UOX	BWR-MOX	Tot. Fuel	HLW
Total	5.35E+03	7.73E+02	3.47E+03	2.46E+02	9.84E+03	2.15E+02
U	5.06E+03	7.02E+02	3.31E+03	2.27E+02	9.29E+03	6.64E-01
Pu	5.17E+01	3.43E+01	3.29E+01	7.95E+00	1.27E+02	2.01E-01
Np	3.60E+00	2.34E-01	2.16E+00	4.97E-02	6.04E+00	2.94E+00
Am	4.60E+00	4.96E+00	3.48E+00	1.17E+00	1.42E+01	3.63E+00
Cm	2.30E-01	2.26E-01	1.48E-01	6.44E-02	6.69E-01	7.36E-02
FP	2.34E+02	3.04E+01	1.29E+02	9.69E+00	4.03E+02	2.08E+02
²³⁴ U	1.47E-01	1.45E-01	1.20E-01	3.30E-02	4.45E-01	3.86E-04
²³⁵ U	4.56E+01	1.85E+00	3.29E+01	7.84E-01	8.12E+01	5.22E-03
²³⁶ U	2.59E+01	3.67E-01	1.43E+01	1.79E-01	4.07E+01	2.43E-03
²³⁸ U	4.99E+03	7.00E+02	3.26E+03	2.26E+02	9.17E+03	6.56E-01
²³⁸ Pu	1.26E+00	7.56E-01	8.32E-01	2.00E-01	3.04E+00	2.25E-03
²³⁹ Pu	2.94E+01	1.62E+01	1.99E+01	2.95E+00	6.85E+01	7.64E-02
²⁴⁰ Pu	1.32E+01	1.15E+01	7.83E+00	3.08E+00	3.56E+01	1.12E-01
²⁴¹ Pu	4.30E+00	2.34E+00	2.39E+00	6.56E-01	9.69E+00	4.01E-03
²⁴² Pu	3.48E+00	3.46E+00	1.94E+00	1.06E+00	9.94E+00	6.42E-03
²³⁷ Np	3.60E+00	2.34E-01	2.16E+00	4.97E-02	6.04E+00	2.94E+00
²⁴¹ Am	3.74E+00	4.27E+00	2.94E+00	9.28E-01	1.19E+01	2.97E+00
^{242m} Am	5.31E-03	1.03E-02	1.04E-02	1.58E-03	2.76E-02	8.25E-03
²⁴³ Am	8.58E-01	6.79E-01	5.35E-01	2.46E-01	2.32E+00	6.47E-01
²⁴² Cm	3.49E-04	2.50E-05	2.58E-05	3.85E-06	4.04E-04	2.00E-05
²⁴³ Cm	2.57E-03	2.37E-03	1.76E-03	6.60E-04	7.35E-03	1.39E-03
²⁴⁴ Cm	2.09E-01	1.81E-01	1.32E-01	5.62E-02	5.78E-01	6.31E-02
²⁴⁵ Cm	1.59E-02	4.05E-02	1.26E-02	6.63E-03	7.57E-02	8.21E-03
²⁴⁶ Cm	2.12E-03	2.35E-03	1.57E-03	9.11E-04	6.95E-03	8.20E-04
¹³⁵ Cs	2.72E+00	6.06E-01	1.86E+00	1.25E-01	5.31E+00	2.16E+00
¹³⁷ Cs	6.09E+00	6.72E-01	3.08E+00	2.33E-01	1.01E+01	3.53E+00
⁹⁰ Sr	2.65E+00	1.49E-01	1.30E+00	5.37E-02	4.16E+00	1.46E+00
⁹⁹ Tc	5.21E+00	6.92E-01	2.85E+00	2.18E-01	8.97E+00	4.74E+00
¹²⁹ I	1.23E+00	2.16E-01	6.86E-01	6.53E-02	2.20E+00	1.14E+00

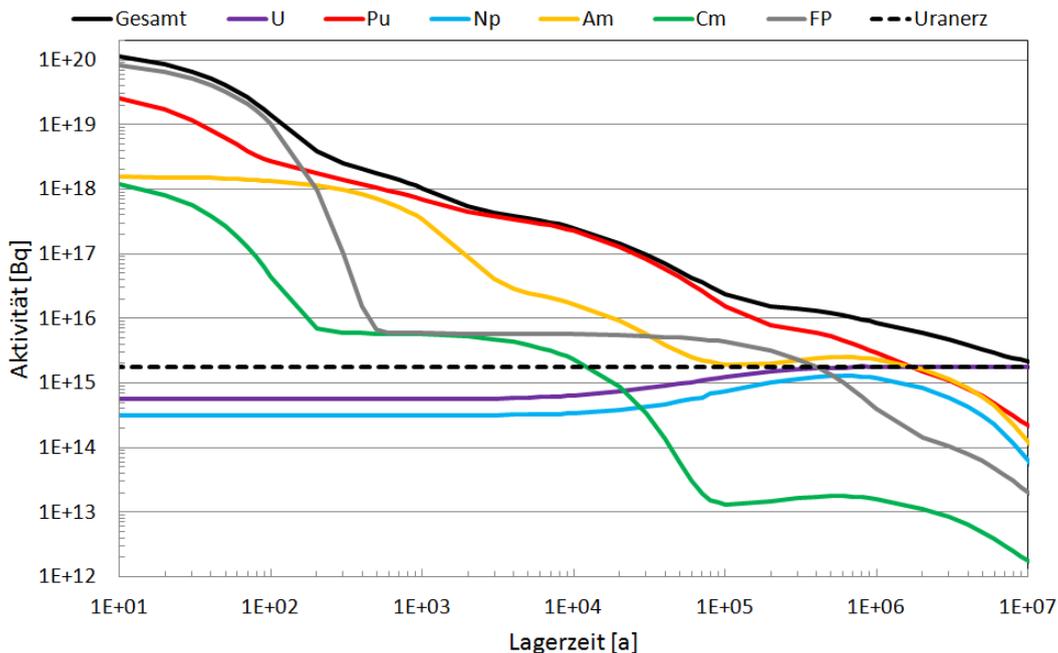


Abb. 2.2: Elementspezifischer Aktivitätsverlauf inkl. Folgeprodukte für den aus der Nutzung der Kernenergie entstandenen radioaktiven Abfall (10,000 t)

Dies liegt an dem großen Massenanteil von 86 % an der verbliebenen Restmenge ohne Uran und an den unterschiedlichen Halbwertszeiten im Plutoniumvektor. Während Uran Halbwertszeiten von 250,000 Jahren bis hin zu 4.5 Mrd. Jahren aufweist, sind diese für Plutoniumisotope wesentlich kürzer. Hinzu kommt, dass bei Plutonium die Radiotoxizität größer ist als Uran [6]. Eine vollständige Vernichtung des Plutoniums unterstellt, wäre Americium das aktivitätsbestimmende Element. Es trifft die Uranerzlinie bei etwa 100,000 Jahren und verläuft danach bis eine Millionen Jahren parallel.

Die Uranerzlinie ist eine horizontale Gerade, welche das säkulare Gleichgewicht zwischen ^{234}U und ihren Zerfallsprodukten darstellt. Das Niveau wird durch die eingesetzte Menge Uran im Reaktor bestimmt. Häufig wird die Gesamtmenge des gefördertten Uranerzes, die zur Herstellung des verwendeten Brennstoffes benötigt wird, zur Bestimmung des Niveaus unterstellt. Diese resultierende Menge ist um den Faktor 6.50 größer, als die hier angenommene, wenn von einer Tails- bzw. Brennstoffanreicherung von 0.215 % bzw. 3.5 % ausgegangen wird. Solche angehobenen Bezugslinien sind verwirrend, da nur das im Brennstoff enthaltene Uran des gefördertten Uranerzes in das Lager eingebracht und in der Lagerzeitbetrachtung miteinbezogen wird. Weiterhin gilt zu beachten, dass aus einem Schnittpunkt mit der Bezugslinie der natürliche Zustand nicht erreicht ist. Erstens ist der natürliche Zustand für ein Endlager uranfrei und zweitens ist eine Tonne technisch aufbereitetes Uran nicht mit Uranerz bezüglich der Rückhaltung der Stoffe gleichzusetzen. Zur Beurteilung eines P&T-Prozesses eignet sie sich damit nicht, dient aber als Orientierung bei der Beschreibung der elementspezifischen Kurvenverläufe.

Die Spaltprodukte scheinen nach ihrer Aktivität ebenfalls ein langfristiges hohes Gefährdungspotential darzustellen. Die Betrachtung der Radiotoxizität und Nachzerfallswärme relativiert die

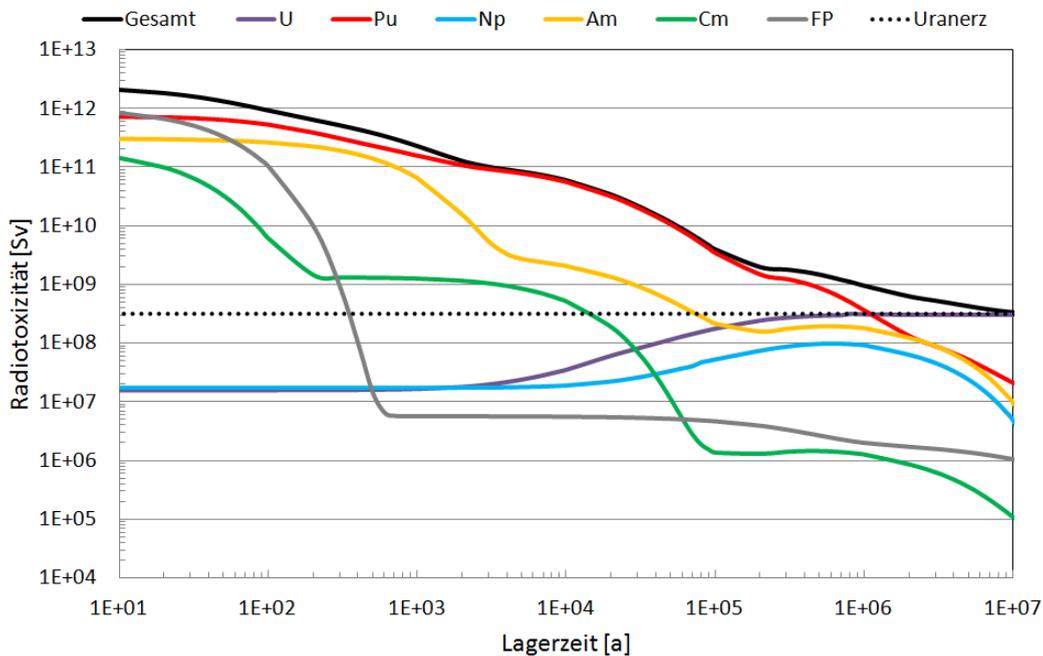


Abb. 2.3: Elementspezifischer Radiotoxizitätsverlauf inkl. Folgeprodukte für den aus der Nutzung der Kernenergie entstandenen radioaktiven Abfall (10,000 t)

hohe Aktivität. Aufgrund der geringeren Zerfallsenergie der β -Strahlung sind die beiden Größen für Zeiträume größer als 1000 Jahre kleiner als bei der Aktivität. Dies legt nahe, dass die Aktivität als Basisgröße zur Beurteilung der Endlagerrelevanz nicht ausreichend ist und die spezifischen Eigenschaften der Elemente mit einzubeziehen sind.

Die Betrachtung der Radiotoxizität zeigt für die Spaltprodukte eine wesentlich stärkere Abnahme als bei der Aktivität (Abbildung 2.3). Der Grund ist, dass die kurzlebigen Isotope ^{129}I und ^{90}Sr eine wesentlich größere Radiotoxizität aufweisen, als der Großteil der langlebigen Spaltprodukte. Diese sind gegenüber den Actiniden weniger radiotoxisch, da unter anderem der β -Zerfall eine geringe Strahlenbelastung verursacht (Tabelle 2.1).

Es ist anzumerken, dass bei der Berechnung der Radiotoxizität in dieser Arbeit der Fall eines Wassereintrags in das Endlager zugrunde liegt. Die Löslichkeit, Mobilität und Zurückhaltung der Nuklide wird bei der Berechnung des Gefährdungspotentials nicht berücksichtigt und die Actiniden stellen aufgrund der hohen spezifischen Radiotoxizität das größere Gefährdungspotential dar. Wird ein Wassereintrag ausgeschlossen und eine Freisetzung nur durch Diffusion angenommen, bilden die Spaltprodukte ^{99}Tc und ^{129}I aufgrund ihrer Mobilität das größere Gefährdungspotential [7, p.5].

Die Sicherheitsanforderung an ein Endlager besagt, dass für wahrscheinliche und weniger wahrscheinliche Entwicklungen des Endlagers die Freisetzung von Radionukliden eine zusätzliche ef-

effektive Dosis von $10 \mu\text{Sv}$ bzw. 0.1 mSv pro Jahr nicht überschreiten darf [8]. Die Reduzierung des langfristigen Gefährdungspotentials hilft durch die Verringerung der Radionuklidquelle diese Sicherheitsanforderungen für langfristige Lagerzeiträume bis einer Millionen Jahren zu erfüllen. Dabei gilt es nicht ein fest vorgegebenes Niveau wie die Uranerzlinie zu erreichen. Vielmehr ist die Wirksamkeit von Sicherheitsfunktionen des einschlusswirksamen Gebirgsbereichs sowie gegebenenfalls des Deck- und Nebengebirges relevant. Technische Barrieren wie Konditionierungsmatrix oder Endlagerbehälter sind nur für Zeiträume von Bedeutung in denen die volle Wirksamkeit der langfristig wirksamen Barrieren noch nicht gegeben ist.

2.2 Brennstoffkreisläufe

Die langfristige Radiotoxizität wird durch die Zusammensetzung des Reststoffs bestimmt. Unterschiedliche Brennstoffkreisläufe können die Zusammensetzung der Schwermetalle verändern und deren Masse verringern. Im Folgenden wird der Einfluss der Kreisläufe exemplarisch für einen Uranoxidbrennstoff mit einem Abbrand von $50 \text{ MWd/kg}_{\text{HM}}$ für den offenen Brennstoffkreislauf (OTC⁷), bei Wiederaufarbeitung und für den P&T-Kreislauf betrachtet. Die beiden letzteren nutzen den verbliebenen Brennstoff weiter, während beim OTC keine Wiederaufarbeitung stattfindet und direkt endgelagert wird. Abschließend folgt ein Überblick über verschiedene Kombinationen dieser Kreislaufkonzepte.

2.2.1 Offener Brennstoffkreislauf

Im offenen Brennstoffkreislauf werden die abgebrannten Brennelemente nicht wieder aufgearbeitet und Uran und Transurane direkt endgelagert. Die resultierende Radiotoxizität in einem Endlager nach 10 Jahren vorheriger Zwischenlagerung ist für die jeweiligen Elemente inklusive ihrer Folgeprodukte in Abbildung 2.4 dargestellt. Bei Americium und Curium werden die einzelnen Zerfallsstufen deutlich. ^{241}Am zerfällt mit einer Halbwertszeit von 432 Jahren in ^{237}Np . Nach 10 Halbwertszeiten ist die Stoffmenge auf das Tausendstel gefallen und nicht mehr die maßgebend für die Radiotoxizität. ^{243}Am bildet nun mit einer Halbwertszeit von 7370 Jahren die nächste Stufe mit dem Zerfall in ^{239}Pu . Die letzte Stufe bei Americium ist der Zerfall von dem aus ^{241}Am entstandenen Neptunium mit einer Halbwertszeit von 2.14 Mrd. Jahren. Derselbe Niveauverlauf kommt durch ähnliche Anfangsmengen für ^{237}Np und ^{241}Am zustande. Weiterhin zeigt sich, dass Plutonium aufgrund des großen Massenanteils im Vergleich zu den anderen Transuranen die Radiotoxizität bestimmt. Eine Reduzierung der Plutoniummenge zur Senkung der Radiotoxizität wird durch die Wiederaufarbeitung erreicht.

2.2.2 Wiederaufarbeitung

Die erneute Nutzung des Brennstoffes reduziert die verbleibende Restmenge. Die Wiederaufarbeitung (WAA) von Uran und Plutonium findet bereits industriell statt. In dem sogenannten PUREX-Prozess werden Abtrennungsraten von nahezu 99.9 % in industriellen Anlagen wie der UP3-Anlage

⁷Once through cycle

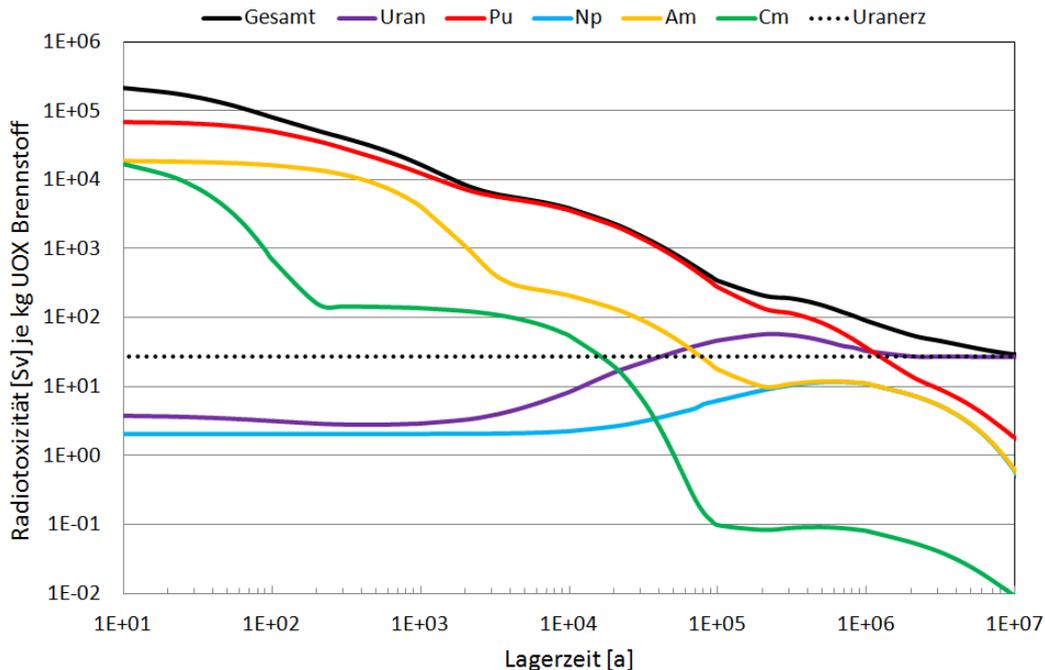


Abb. 2.4: Radiotoxizität nach Elementen einschließlich Folgeprodukte je kg Uranoxidbrennstoffes (3.95 %wt Anreicherung) bei 50 MWd/kg_{HM} Abbrand nach OTC

in La Hague erreicht. Uran kann in den Brennstoffkreislauf wieder in Form von Uranoxid oder mit Plutonium als MischOxid (MOX) zurückgeführt werden. Die Nutzung von MOX-Brennstoff reduziert im Gegensatz zu reinen Uranbrennstoffen die Menge an Plutonium. Die restlichen Actinide, die sogenannten *minoren Actiniden*, werden nicht weiter verarbeitet. Dies liegt an dem aufwendigen Wiederaufarbeitungsprozess, sowie an der Verschlechterung des Betriebsverhaltens in einem Kernreaktor.

Abbildung 2.5 zeigt die Reduzierung der Radiotoxizität für den Fall, dass einzig die *minoren Actiniden* und die Spaltprodukte am Ende des Transmutationsprozesses vorhanden sind. Es wird unterstellt, dass die Vernichtung von Uran und Plutonium zu keinem weiteren Aufbau von *minoren Actiniden* führt und sich folglich deren Massen nicht ändern. Nach 100,000 Jahren verläuft die Kurve der Summe aus den *minoren Actiniden* bis einer Millionen Jahren parallel zu der Bezugslinie des Uranerzes. Das Gefährdungspotential ist um eine Größenordnung gesunken. Eine weitere Reduzierung kann erreicht werden, wenn die *minoren Actiniden* ebenfalls abgetrennt und vernichtet werden. Dieses Ziel verfolgt der erweiterte Brennstoffkreislauf mit Partitioning & Transmutation.

2.2.3 Partitioning & Transmutation (P&T)

P&T eröffnet die Möglichkeit durch Reduzierung aller langlebigen Radionuklide nicht nur das Gefährdungspotential weiter zu senken, sondern auch die Nachzerfallswärme und das Volumen zu

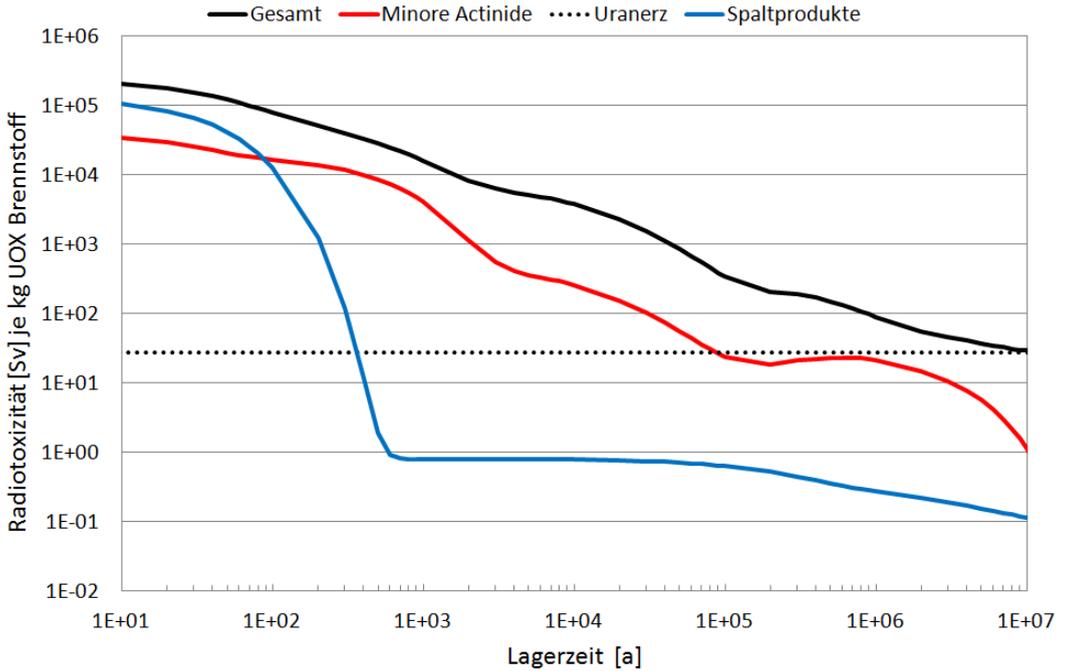


Abb. 2.5: Radiotoxizität gesamt sowie der minoren Actiniden einschließlich Folgeprodukte je kg Uranoxidbrennstoff (3.95 %wt Anreicherung) bei 50 MWd/kg_{HM} Abbrand. Uran und Plutonium werden durch die WAA vollständig verwendbar.

minimieren.

Die Betrachtung der Radiotoxizität bei der Wiederaufarbeitung hat gezeigt, dass sich die Radiotoxizität um etwa eine Größenordnung reduzieren lässt, wenn Plutonium und Uran, ohne dabei einen Aufbau anderer Actiniden zu verursachen, vollständig vernichtet werden. Bei der zusätzlichen Vernichtung der verbleibenden Actiniden sinkt das radiotoxische Gefährdungspotential im Vergleich zur direkter Endlagerung um zwei Größenordnungen. Dem Erreichen dieses Zieles liegt zugrunde, dass die Actiniden immer wieder einer kerntechnischen Anlage zugeführt werden und alle Elemente vollständig transmutiert werden können. Die Verluste bei der Wiederaufarbeitung sind ausschlaggebend für die Restmenge [9]. Rechnerisch lässt sich dieses Vorgehen durch

$$\epsilon_{PT} = \frac{\epsilon_P \cdot \epsilon_T}{1 - (1 - \epsilon_T) \cdot \epsilon_P} \quad (2.5)$$

darstellen. ϵ steht für die jeweilige Effizienz. Die Formel wird aus einer geometrischen Reihe abgeleitet, die die Massenentwicklung einer n-fachen Wiederaufarbeitung des radioaktiven Abfalls beschreibt [10]. Die Transmutationseffizienz ϵ_T spielt nur insoweit eine Rolle, dass diese die Anzahl der Wiederaufarbeitungen vorgibt bei denen es zu Abtrennverlusten ($1 - \epsilon_P$) kommt. ϵ_T ist zudem konstant und bezieht sich stets auf die im jeweiligen Zyklus eingesetzte Masse.

Als Beispiel folgt aus $\epsilon_T = 0.20$ und $\epsilon_P = 0.999$ (Abtrennungseffizienz von 99.9 %) eine Gesamteffizienz ϵ_{PT} von 0.995. Dies würde eine Reduzierung um den Faktor 200 bedeuten, falls alle Elemente

im gleichen Maß und ohne Änderung des Elementvektors transmutiert werden würden. Für den Zeitraum bis 10,000 Jahren ergibt sich nach [11] sogar der Faktor 400.

Die Anforderungen an das P&T mit Abtrennverlusten von 0.1 % sind für Uran und Plutonium bereits Stand der Technik [12]. Die Abtrennung von Curium und Americium gestaltet sich aufgrund der chemischen Ähnlichkeit dieser dreiwertigen Actiniden mit den Lanthaniden und dem ungünstigen Massenverhältnis zwischen beiden Gruppen als ein sehr anspruchsvolles und aufwendiges Verfahren [13, p. 21]. Einen Überblick über die einzelnen Abtrennverfahren wie DIAMEX und SANEX liefern [12, 14, 15].

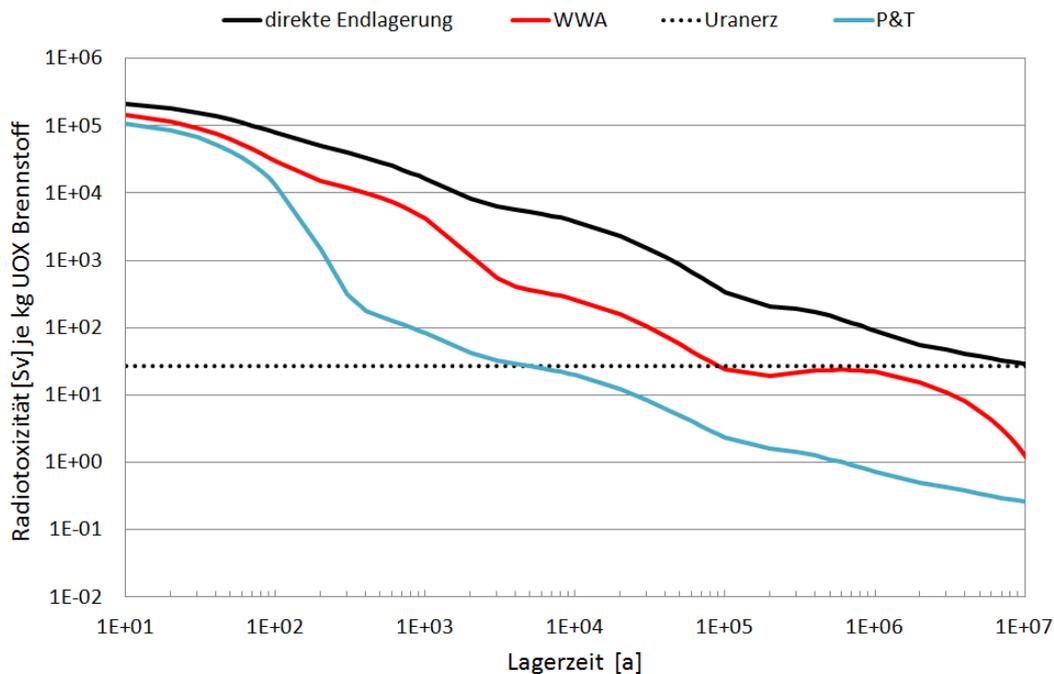


Abb. 2.6: Radiotoxizität nach Brennstoffkreislaufart (direkte Endlagerung, Wiederaufarbeitung und P&T) je kg Uranoxidbrennstoff (3.95 %wt Anreicherung) bei 50 MWd/kg_{HM} Abbrand

Der hohe Abbrand von über 200 MWd/kg_{HM} stellt entsprechende Anforderungen an das Materialverhalten. Doch selbst mit diesen hohen Abbränden würde die Reduzierung auf 1 % der Ausgangsmasse 21 Rezyklierungsschritte erfordern. Die benötigte Transmutationsdauer hängt dabei u.a. von der Anlagengröße und -anzahl sowie der Wiederaufarbeitungszeit ab und wird in Kapitel 8.3 untersucht.

Abbildung 2.6 verdeutlicht den beschriebenen Prozess bei einer Transmutationseffizienz ϵ_{PT} von 0.995. P&T erscheint damit ein vielversprechendes Verfahren, um das Gefährdungspotential dauerhaft um zwei Größenordnungen zu senken. Eine genauere Effektivitätsabschätzung von P&T ist in Kapitel 8.2.2 anhand der Ergebnisse dieser Dissertation durchgeführt worden.

2.2.4 Kombinierte Verfahren

Die vorgestellten Brennstoffkreisläufe lassen sich miteinander kombinieren (Abbildung 2.7), wobei von einem auf thermische Systeme basierenden Kraftwerkspark (LWR) hin zu einem heterogenen System aus thermischen und schnellen Systemen ausgegangen wird. Dabei bieten sich unterschiedliche Strategien zur weiteren Nutzung.

Eine Umstellung allein auf schnelle Systeme (Fast Reactor) unterstellt die Bereitschaft hoher Investitionen in den Neubau und die Entwicklung von GenIV-Reaktoren sowie die langfristige Nutzung der Kernenergie. Diese Umstellung ist nicht zu erwarten, wenn von einer hohen Rohstoffverfügbarkeit von Uran und ggf. Thorium ausgegangen wird, wodurch der Anreiz, Uran als Rohstoff durch einen geschlossenen Brennstoffkreislauf effektiv zu nutzen, verloren geht.

Das erste Schema (1) stellt in Abbildung 2.7 den Once-Through-Zyklus dar, der in Deutschland für die noch betriebenen Reaktoren den Ist-Status darstellt. Eine bessere Brennstoffnutzung ergibt sich durch höheren Abbrand der Brennelemente. Diese Strategie ist das bestehende Verfahren für Länder, die keinen Zugang zu einer Wiederaufarbeitungsanlage haben, um in abgebrannten Brennelementen enthaltenden Brennstoff wieder zur Verfügung zu stellen.

Das zweite Schema (2) beschreibt die Rückführung des Plutoniums durch Wiederaufarbeitung in den Brennstoffkreislauf in thermische Reaktorsysteme. Dieser Vorgang kann nicht beliebig oft wiederholt werden, da die Weiternutzung des Plutoniums in thermischen Systemen zu einem Aufbau von geraden, nicht spaltbaren Plutoniumisotopen führt. Der Kraftwerkspark in der Kernenergie wird von thermischen Systemen dominiert und nur langsam zu schnellen Systemen transformiert, weshalb eine Nutzung des Brennstoffs in schnellen Systemen erst am Schluss erfolgt. Weiterhin werden minore Actinide und Spaltprodukte direkt abgetrennt und für die direkte Endlagerung vorbereitet.

Der vollständig geschlossene Brennstoffkreislauf, der die minore Actiniden mit einschließt, wird im dritten Schema (3a,3b) verfolgt. Die Transurane aus der Nutzung des großflächigen LWR-Kraftwerksparks werden in einem innovativen schnellen Reaktorsystem aus Generation IV genutzt, der auch die minore Actiniden aus der Wiederaufarbeitung weiter nutzt (Schema 3a). Diese vollständige Nutzung der Actiniden (An) in einem schnellen System sorgt dafür, dass keine weiteren Transurane aufgebaut werden.

Ein geschlossener Brennstoffkreislauf mit einem heterogenen Kraftwerkspark ist damit möglich. Ist eine Umwandlung in ein rein auf schnellen Systemen basierendes Kraftwerkspark das Ziel, so ist die Strategie wie in Schema (3a) beschrieben zu verfolgen. Bei langfristiger Nutzung von thermischen Systemen wird die Nutzung von ADS favorisiert (Schema 3b), da hier weniger zusätzliche Anlagen zur Vernichtung der Transurane notwendig sind, die bei der Nutzung von LWR entstehen.

Das vierte Schema "Double Strata" (4) sieht in der ersten Phase die Verwendung der Plutoniumverbrennung aus Schema (2) vor. Der Wechsel zu schnellen Systemen erfolgt unter der Zielsetzung der Nachhaltigkeit und bestmöglicher Nutzung des zur Verfügung stehenden Rohstoffs Uran. Die in der ersten Phase erzeugten minore Actiniden werden dem System wieder zugeführt, wenn dieses einen Kraftwerkspark mit ausschließlich schnellen Reaktoren aufweist. Mit diesem Schritt erfolgt der Übergang zu einem geschlossenen Brennstoffkreislauf. Die schnellen Reaktorkonzepte weisen nur geringe Nettoverbrennungen für die minore Actiniden auf, wenn der Brennstoff für alle Abbrandzonen gleich ist. Heterogene Beladungsstrategien, die beispielsweise Brennstoff mit höherem Anreicherungsgrad in der Nähe des Reflektors vorsehen, können die Nettoverbrennung erhöhen. Ein ADS kann solch einen Brennstoff in der gesamten Transmutationszone verwenden

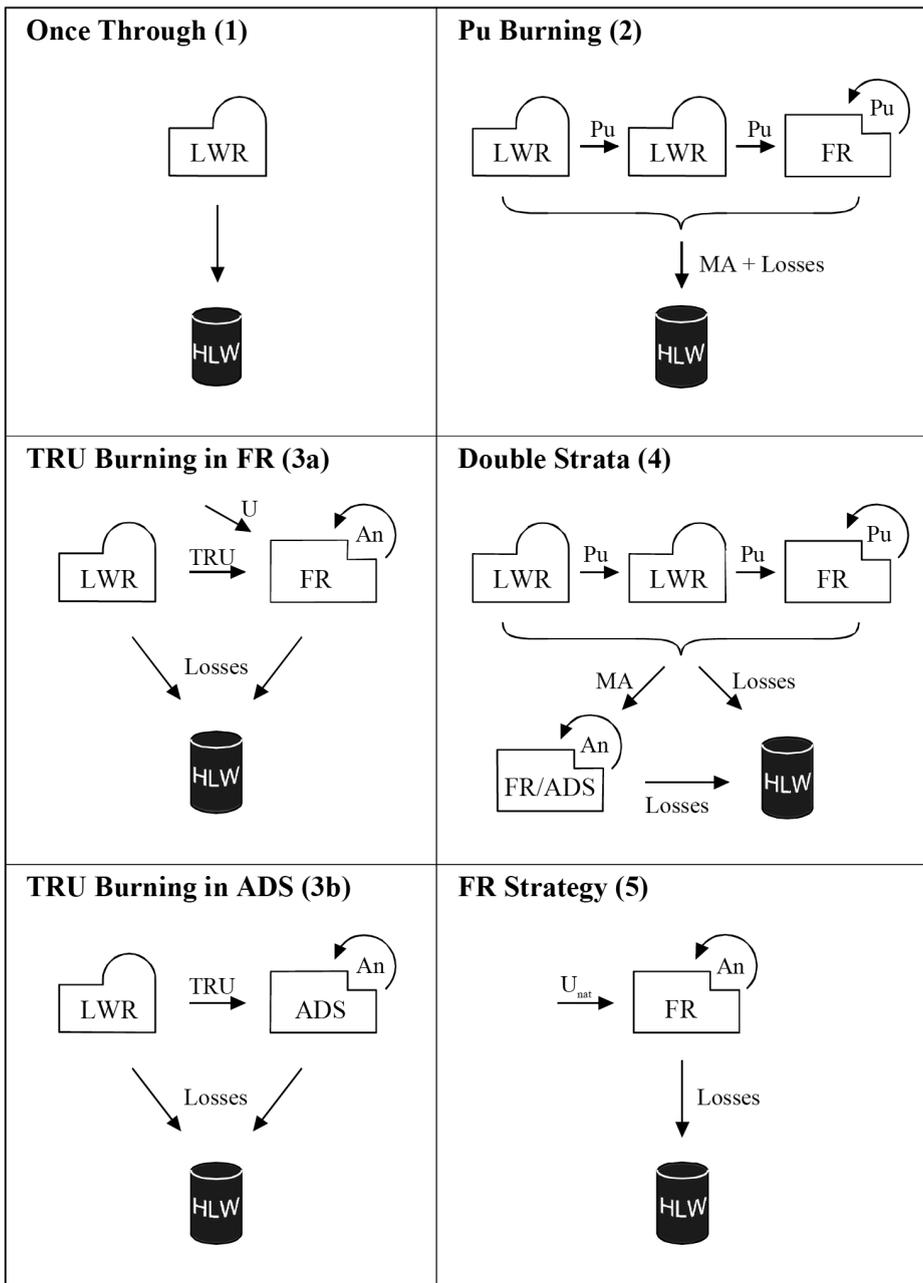


Abb. 2.7: Überblick der unterschiedlichen Brennstoffkreisläufe [16, p.57] für thermische (LWR) und schnelle (FR) Reaktorsysteme. Die Betrachtung beschränkt sich auf die Actiniden (An) unterteilt in Transurane (TRU), minore Actinide (MA), Plutonium und Uran.

und damit die in der ersten Phase erzeugten MA effektiv transmutieren. Die Dauer zur Erreichung eines in sich geschlossenen Brennstoffkreislaufes wird damit reduziert.

Der geschlossene Brennstoffkreislauf ist im fünften Schema (5) abgebildet und sieht nach erfolgreicher Umstellung des Kraftwerksparcs die direkte Nutzung von natürlichem Uran vor. Der Rohstoff Uran wird vollständig gespalten und es fallen lediglich bei der Wiederaufarbeitung entstehende Mengen und Spaltprodukte zur Endlagerung an.

Die Reduzierung der Radiotoxizität der Actiniden im Vergleich zum offenen Brennstoffkreislauf wurde in [16] für die oben genannten Strategien untersucht. Die alleinige Verbrennung des Plutoniums führt längerfristig zu einer Reduzierung um fast eine Größenordnung. Weiterführende Konzepte erreichen eine Reduzierung um zwei Größenordnungen. Die Strategien mit Einbezug der FR zeigen sogar eine noch bessere Bilanz auf. Die durchgeführten Simulationen basieren stets auf eine Abtrenneffizienz ε_P von 99.9 %.

2.3 Nukleare Prozesse

Die Modellierung und Simulation einer kerntechnischen Anlage setzt Kenntnisse über die nuklearen Prozesse und ihre Wechselwirkungen voraus. In diesem Kapitel wird zu Beginn auf grundlegende nukleare Prozesse eingegangen, um daraus Kenngrößen für komplexe Systeme abzuleiten. Neben den Größen wie Kritikalität k_{eff} , Dopplerkoeffizient α und verzögerte Neutronen β , die in kritischen Reaktorsystemen wichtige Größen darstellen, wird insbesondere auf die Größen für Spallation und deren Interaktion mit der Brennstoffzone eingegangen.

2.3.1 Kernphysikalische Grundlagen

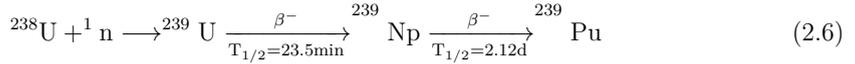
Zerfallsprozesse

Eng verknüpft mit der Kerntechnik ist der Begriff der Radioaktivität. Dieser beschreibt den Zerfall eines Atomkernes in einen anderen Kern. Für die Reaktorphysik sind α - und β -Zerfall die relevanten Zerfallsprozesse. Der α -Zerfall ist bei Atomkernen mit einer Massenzahl größer als 150 möglich. Kerne mit einer Kernladungszahl $Z \geq 84$ sind gegenüber α -Zerfall [17] instabil. Beim α -Zerfall wird ein Heliumkern abgestrahlt, welcher die Potentialbarriere des Kerns mittels des Tunneleffektes überwunden hat. Diesem Prozess liegen je nach Nuklid nur geringe Wahrscheinlichkeiten zu Grunde, weshalb es für diesen Zerfall trotz großer Nuklidmasse (z.B. ^{238}U) zu extrem langen Halbwertszeiten (z.B. 4.47 Mrd. Jahre) kommen kann. Die kinetische Energie des freigesetzten Heliumkerns liegt bei einigen MeV. Diese Energie wird sehr schnell an die umliegende Umgebung abgegeben, weshalb die Emission innerhalb eines Organismus zu erheblichen Zellschäden führt (Tabelle 2.1).

Der β^- -Zerfall beschreibt die Umwandlung eines Neutrons in ein Proton, wobei gemäß der Ladungs- und Leptonenzahlerhaltung ein Elektron und ein Neutrino emittiert werden. Diese Zerfallsart ist für kurzlebige Spaltprodukte relevant, da diese einen Überhang an Neutronen von ihren Mutterkernen mit sich führen.

Neutronenspektrum und Reaktionsraten

In einem Kernreaktor spielen beide Zerfallsprozesse bei der Betrachtung der Nachwärme eine wichtige Rolle. Die Energiefreisetzung bei der Kernspaltung, die durch Neutroneneinfang induziert wird, erfolgt hingegen durch die frei werdende Bindungsenergie­differenz von Mutterkern zu Tochterkernen und Neutronen. Sie beträgt etwa 200 MeV und geht zum Großteil auf die Spaltprodukte über. Nicht jeder Neutroneneinfang verursacht jedoch eine Spaltung. Ein parasitärer Einfang ist ebenfalls möglich und führt zum Aufbau höherer Elemente, wie am Beispiel für ^{238}U verdeutlicht wird.



Die Reaktionsrate R für einen solchen Prozess kann mittels Kenntnis des Wirkungsquerschnitts σ , der Neutronenflussverteilung ϕ und der Anzahl der entsprechenden Nuklidkerne N bestimmt werden [18, p.24]. Für den einfachen Fall, dass die Neutronen eine konstante Energie besitzen und ein gleichbleibender Fluss sowie eine gleichmäßige Verteilung der Kerne anzutreffen ist, kann R wie folgt dargestellt werden:

$$R = N \cdot \phi \cdot \sigma \quad (2.7)$$

Ein solcher Fall ist im Reaktorkern nicht anzutreffen. Das Energiespektrum weist keine monotone diskrete Energie auf und die Flussverteilung im Kern ist nicht homogen. Der unterschiedliche räumliche Fluss muss für die entsprechende Zone im Kern bestimmt werden. Die Energieabhängigkeit lässt sich über

$$R = N \cdot \int \phi(E) \cdot \sigma(E) dE \quad (2.8)$$

berücksichtigen. Dies ist auch notwendig, da die Wirkungsquerschnitte von der Energie der Neutronen abhängen (Abbildung 2.8).

Es existiert neben dem parasitären Neutroneneinfang eine Vielzahl von anderen Kernwechselwirkungen. Die Beschreibung erfolgt über umfangreiche Datenbibliotheken, welche die Wirkungsquerschnitte σ für die jeweiligen Reaktionen und Energien beinhalten.

Eine dieser Kernwechselwirkungen ist die Streuung, welche sich in elastische und inelastische Streuung einteilen lässt. Beide sind wichtige Prozesse, da die Nukleonen bei Streuung einen Teil ihrer Energie an ihre Umgebung abgeben. Inelastische Streuungen sind nur bei hohen Neutronenenergien (> 100 keV) von Bedeutung, während die elastische Streuung die effektive Thermalisierung der Neutronen ermöglicht. Diese weisen aufgrund ihrer längeren Verweilzeit nahe dem Kern einen höheren Wirkungsquerschnitt für eine Absorption auf. Die Wirkungsquerschnitte für die Kernreaktionen (n,f) , (n,γ) , $(n,2n)$ und $(n,3n)$ werden für die Abbrandrechnungen verwendet.

$(n,2n)$ und $(n,3n)$ sind erst ab Energien von einem MeV möglich, welches die Energieabhängigkeit der Wirkungsquerschnitte verdeutlicht. Im Allgemeinen sinken die Wirkungsquerschnitte für höhere Neutronenenergien, da die Aufenthaltsdauer in Kernnähe abnimmt. Zu diesem Verhalten ergeben sich aufgrund der spezifischen Anregungszustände des Kerns Resonanzen für den Neutroneneinfang. Der Wirkungsquerschnitt ist bei dieser Energie des einfallenden Neutrons stark erhöht. ^{238}U zeigt ein ausgeprägtes Resonanzverhalten im intermediären Energiebereich für (n,γ) -Reaktion und stellt damit einen guten Brutstoff für höhere Isotope wie ^{239}Pu dar (Gleichung (2.6)).

Am Beispiel von ^{241}Am (Abbildung 2.8) wird der Einfluss des schnellen Neutronenspektrums gezeigt. Die Energieskala des einfallenden Neutrons reicht vom thermischen Spektrum (etwa 1 meV)

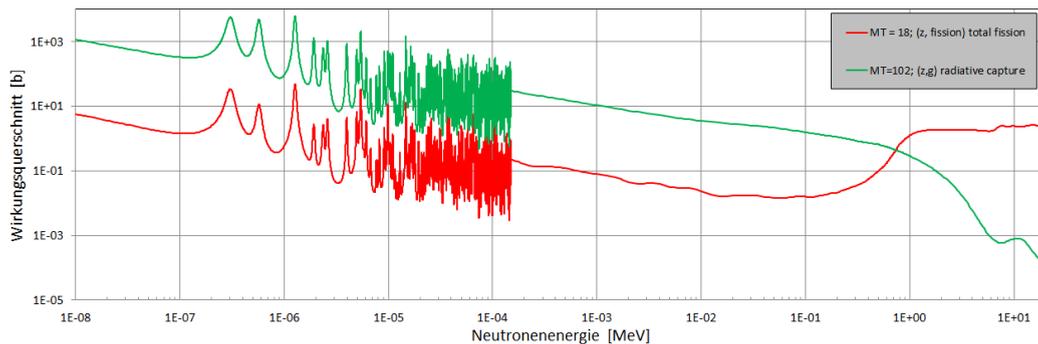


Abb. 2.8: Wirkungsquerschnitte aus ENDF/B-VII.1 bei ^{241}Am für Neutroneneinfang (n,γ) und Spaltung ($n,fission$) in Abhängigkeit der Neutronenenergie [19]

bis hin ins schnelle Spektrum (MeV-Bereich). Für Energien unterhalb von 100 keV ist der Wirkungsquerschnitt für Spaltung um zwei Größenordnungen niedriger als für den spaltfreien Neutroneneinfang. Erst ab einer Neutronenenergie von 100 keV steigt der Wirkungsquerschnitt für eine ($n, fission$)-Reaktion an, während der Wirkungsquerschnitt für einen parasitären Neutroneneinfang weiter abnimmt. Eine Neutronenabsorption im MeV-Bereich führt aufgrund des steigenden Spaltungsquerschnitts vorwiegend zu einer Spaltung. Dies liegt an der zusätzlichen Energie der Neutronen, welche die eingebrachte Energie über die kritische Kernstabilitätsgrenze hebt. Dieser Vorgang ist bei allen Isotopen zu beobachten. Er ist jedoch gerade für Isotope interessant, die wie ^{241}Am im thermischen Bereich faktisch nicht spaltbar sind.

Das Neutronenspektrum hat damit einen großen Einfluss auf das Systemverhalten und stellt ein wichtiges Entscheidungskriterium bei der Wahl von Transmutationssystemen (Kapitel 2.4) dar.

Zur Gegenüberstellung ist es einfacher sich bei Kenntnis der Neutronenenergieverteilung die Reaktionswirkungsquerschnitte, die sogenannten Eingruppenwirkungsquerschnitte, für eine Reaktion anzuschauen. Damit lassen sich unterschiedliche Systeme einfach vergleichen, wenn es um eine bestimmte Reaktionsart geht. In Abbildung 2.9 ist dies für die Spaltungswahrscheinlichkeit verschiedener Actiniden abgebildet. Hierbei wurden die Eingruppenwirkungsquerschnitte eines Leichtwasserreaktors (pwr50.lib) und eines schnellen Reaktorsystems (amopuuuc.lib) aus der Datenbibliothek ORIGEN [20] miteinander verglichen. In den entsprechenden *lib*-Dateien sind Eingruppenwirkungsquerschnitte für (n,f), (n,γ), ($n,2n$) und ($n,3n$) enthalten.

Brutstoffe wie ^{237}Np , ^{241}Am , ^{243}Am und Isotope ganzzahliger Massenzahlen, die im thermischen Spektrum quasi nicht spaltbar sind, weisen im schnellen Spektrum eine wesentlich höhere Spaltwahrscheinlichkeit auf. Im thermischen Spektrum hingegen sind die Wirkungsquerschnitte im Wert um mehrere Größenordnungen höher. Als Konsequenz ist der Neutronenfluss in einem thermischen Reaktor bei gleicher Leistung geringer, da es durch weniger Stoß- und Streuprozessen zu einer Absorption kommen kann. Bis eine Spaltung dieser Isotope erfolgt, finden vorher im Mittel mehrere Neutroneneinfänge statt, weshalb die Neutronenökonomie im schnellen Spektrum vorteilhafter ist. Dort kann eine Spaltung nach wenigen Absorptionsprozessen durch die durchgängig hohen Spaltwahrscheinlichkeiten angenommen werden. Dies sorgt dafür, dass die Kritikalität nicht allein durch die gängigen thermischen Spaltstoffe gebildet wird.

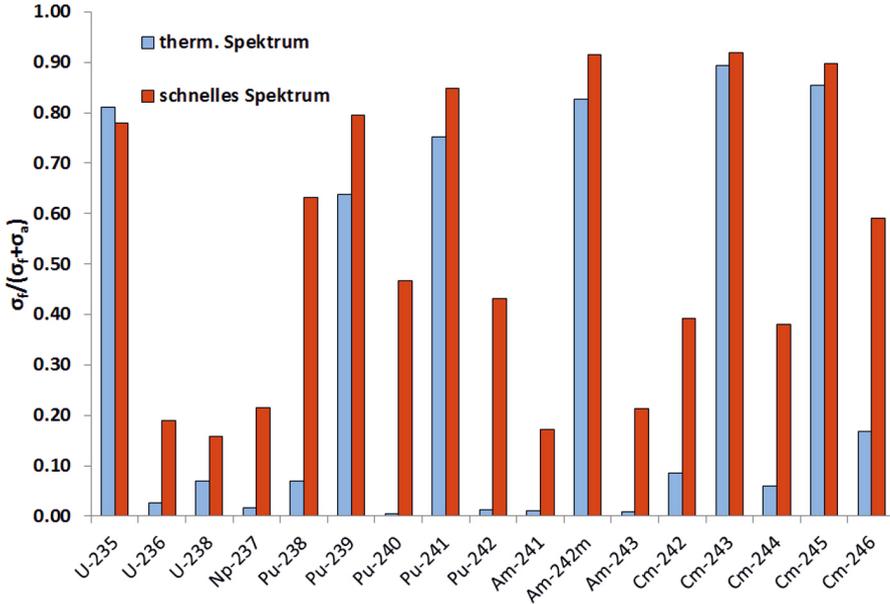


Abb. 2.9: Spaltwahrscheinlichkeit für transurane Isotope und Uran in einem thermischen und schnellen Reaktorsystem (Bibliotheken aus [20])

Gerade für eine unterkritische Anlage, deren Ziel die Actinidenvernichtung ist, ist die effektive Nutzung des Brennstoffs wichtig. Transmutationsanlagenkonzepte wie MYRRHA⁸ verbessern die Spaltungswahrscheinlichkeiten, indem sie das Neutronenspektrum durch Optimierung der Geometrie und Materialwahl härter machen. ²⁴¹Am hat in einem solchen System eine Wahrscheinlichkeit von 27 % bei Neutroneneinfang gespalten zu werden [21], statt der in Abbildung 2.9 dargestellten 17 %.

Neutronenausbeute und -vervielfachung

Die Spaltungen in der Brennstoffzone eines Reaktors sorgen für die stetige Emission freier Neutronen, die weitere Spaltungen induzieren können. Die Neutronenausbeute ν beschreibt dabei die Anzahl von Neutronen, die bei einer Spaltung im Mittel freigesetzt werden. Die Anzahl ist von der Neutronenenergie abhängig. Bei ²³⁹Pu liegt ν bei 2.87 Neutronen im thermischen und bei 3.02 Neutronen im schnellen Spektrum [22].

Für die selbstständig aufrechterhaltende Kernspaltung in einem fortlaufenden Betrieb in einem Kernreaktor muss lediglich eines dieser Neutronen zu einer weiteren Spaltung führen. Dies gewährleistet, dass die Anzahl der Neutronen in einer Generation in einem System konstant bleibt und die freigesetzten Neutronen durch Spaltung die durch Absorption und Leckagen kompensieren.

⁸Multi-purpose hybrid research reactor for high-tech applications

Es wird von einer selbsterhaltenen Kettenreaktion gesprochen.

$$k_{eff} = \frac{\text{Neutronen der Generation } (i + 1)}{\text{Neutronen der Generation } i} \quad (2.9)$$

Ist eine Kettenreaktion selbsterhaltend, so ist die Anzahl der Neutronen in der Generation i gleich der in $i+1$ und die Kritikalität k_{eff} eins. Für größere Werte als eins nimmt die Neutronenpopulation exponentiell zu. Für kleinere Werte erliegt die Kettenreaktion. Um die Eigenschaften einer Neutronengeneration in einem System zu bestimmen, bedarf es nuklearer Daten, welche die verschiedenen Reaktionen beschreiben.

Die Neutronen entstehen zu über 99 % unmittelbar nach der Spaltung. Nur ein kleiner Teil wird verzögert freigesetzt. Die Verzögerung entsteht bei einem vorausgehenden β -Zerfall eines Spaltproduktes (z.B. ^{57}Br). Die verbleibende Anregungsenergie des neuen Kerns ist so groß, dass ein Neutron emittiert werden kann, um in den Grundzustand überzugehen. Dieses Verhalten ist u.a. bei Kr- und Xe-Isotopen zu beobachten [22].

Für die Regelbarkeit eines kritisch betriebenen Reaktors ist der Anteil der verzögerten Neutronen wesentlich, um bei positiven Reaktivitätsschwankungen⁹ technisch gesteuert zu können.

In einer unterkritischen Anlage mit externer Neutronenquelle ist die Kritikalität kleiner 1, weshalb es zu keiner Überschussreaktivität kommt. Anstatt von Kritikalität wird von dem Neutronenmultiplikationsfaktor gesprochen. Eine Steuerung über die verzögerten Neutronen ist nicht möglich, da die Kettenreaktion eigenständig zum Erliegen kommt und die Reaktorleistung von den Quellneutronen festgelegt wird. Dennoch sind die verzögerten Neutronen wichtig, da sie bestimmen, wie stark sich Fluktuationen der Neutronenquelle auf die Leistungserzeugung im Reaktor auswirken. Abbildung 2.10 zeigt die Kaskade der Neutronenproduktion differenziert zwischen verzögerter und prompter Neutronenbildung. Ohne diese Unterscheidung lässt sich zunächst die Gesamtproduktion von Neutronen durch ein anfängliches Neutron mittels der geometrischen Reihe berechnen:

$$n - \text{Produktion} = \lim_{n \rightarrow \infty} \sum_{i=0}^n k_{eff}^i = \lim_{n \rightarrow \infty} \frac{1 - k_{eff}^n}{1 - k_{eff}} = \frac{1}{1 - k_{eff}} \quad (2.10)$$

Der letzte Schritt in der Gleichung folgt aus der Unterkritikalität, für die $k_{eff} < 1$ gilt. Mit der Anwendung der geometrischen Reihe kann der Anteil der verzögerten Neutronen der Gesamtproduktion wie folgt berechnet werden:

$$n_{delay} = 1 - \frac{1 - k_{eff}}{1 - k_{eff} * P_{prompt}} \quad (2.11)$$

Die Berechnung erfolgt über die Betrachtung der prompten Neutronenproduktion in Abbildung 2.10, da dies die Berechnung auf einen Pfad reduziert. Für den Nenner ergibt sich die gleiche Gesetzmäßigkeit wie in Gleichung (2.10). Es wird lediglich der Anteil der entstehenden prompten Neutronen bei einer Spaltung P_{prompt} für die Berechnung verwendet. Dies wird durch die Multiplikation mit k_{eff} erreicht. Der relative Anteil der verzögerten Neutronen ergibt sich aus der Division des Ergebnisses für die prompt erzeugten Neutronen mit dem Gesamtwert $\frac{1}{1 - k_{eff}}$ und anschließender Subtraktion von 1.

⁹Die Reaktivität ρ ist definiert als $\rho = \frac{k_{eff} - 1}{k_{eff}}$ und gibt für $k_{eff} > 1$ die Überschussreaktivität an

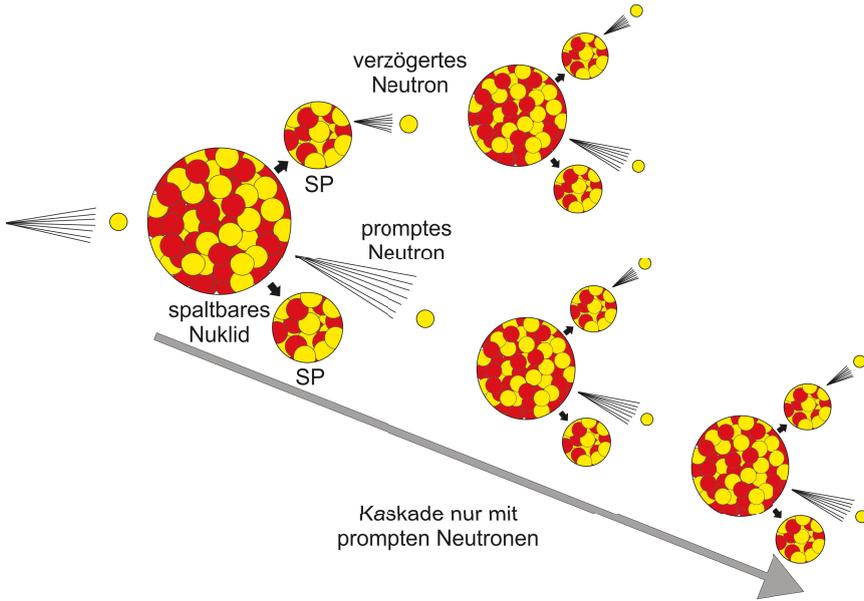


Abb. 2.10: Neutronenvervielfachung durch prompten und verzögerten Neutronen bei Kernspaltung

In Tabelle 2.4 sind die Ergebnisse einiger exemplarischer Rechnungen aufgeführt. Der Anteil von 0.65 % verzögerter Neutronen entspricht dem Wert für das spaltbare Isotop ^{235}U bei Uranbrennstoff. Für einen k_{eff} -Wert von 0.97 ergibt sich ein relativ großer Wert von 17 % für die verzögerte Gesamtproduktion. Für kleinere k_{eff} -Werte ist erkennbar, dass die verzögerten Neutronen, aufgrund der geringen effektiven Kaskadentiefe, in der Gesamtpopulation der Neutronen nur eine geringe Rolle einnehmen.

Tabelle 2.4: Exemplarische Beispiele zur Gleichung (2.11), welche die Anzahl der verzögerten Neutronen in Abhängigkeit ihrer Häufigkeit und des Multiplikationsfaktors k_{eff} auf die Neutronenpopulation für zwei unterschiedliche Brennstoffe beschreibt.

k_{eff}	Anteil verzögerter Neutronen bei Spaltung [%]	relativer Anteil [%] an der Neutronenpopulation
0.97	0.65	17.37
0.97	0.22	6.64
0.90	0.65	5.53
0.90	0.22	1.94

Nach der Betrachtung der Neutronenvervielfachung in der Brennstoffzone wird der Spallationsprozess erläutert. Dieser kann in zwei unterschiedliche Vorgänge, den Kaskaden- und den Verdampfungsprozess, eingeteilt werden [23].

Bei dem Kaskadenprozess stößt das beschleunigte Proton mit dem Nukleon im Atomkern zusammen. Dieses kann daraufhin den Kern verlassen oder seinerseits weitere Nukleonenstöße im Kern ausführen. Die angeregten Nukleonen können den Kern ebenfalls verlassen. Dabei handelt es sich

bevorzugt um Neutronen, da Protonen zur Überwindung der Coulomb-Barriere mehr Energie aufbringen müssen. Dieser Vorgang setzt sich fort bis die Energie des einzelnen Rückstoßnukleons nicht mehr zur direkten Nukleonenfreisetzung ausreicht [24]. Der Kern verbleibt in einem angeregten Zustand.

Falls dieser Zustand eine höhere Energie aufweist als die Bindungsenergie, können Partikel aus dem Kern abdampfen, wodurch eine Abregung des Kerns erfolgt. Hierbei entsteht der überwiegende Teil der Spallationsneutronen (ca. 90 %) [25, p.510].

Der Verdampfungsprozess ist dem eines Zwischenkerns sehr ähnlich und weitgehend unabhängig von der Art der Bildung. Der Grund für dieses Verhalten liegt in der langen Lebenszeit des Zwischenkerns, in der sich quasi ein statistisches Gleichgewicht einstellen kann [26]. Bei den emittierten Partikeln kann es sich außer Neutronen und Protonen auch um andere Teilchen wie α -Teilchen, Deuteronen und Pionen handeln. Dies ist stark von der Energie der beschleunigten Protonen abhängig.

Die optimale Protonenenergie zur Erzeugung von Spallationsneutronen liegt bei etwa 1.1 GeV [27]. Wegen der hohen technischen Anforderungen an die Beschleunigersysteme werden derzeit Protonenenergien von 600 MeV bis 800 MeV verwendet [28].

Die Neutronenausbeute hängt weiterhin von der Wahl des Targetmaterials und der Geometrie ab. In Kapitel 4.3 wird auf unterschiedliche Geometrie und Materialien eingegangen und die Beschleunigerkonzepte vorgestellt.

Nach der Beschreibung einzelner Neutronenreaktionen bilden diese in einem komplexen System eine bestimmte Verteilung aus. Es ergeben sich neutronenphysikalische Kenngrößen, auf die im nächsten Unterkapitel eingegangen wird.

2.3.2 Neutronenphysikalische Kenngrößen

Die Wechselwirkung der Protonen und Neutronen werden durch das System, in dem sie freigesetzt werden, geprägt. Die Wahl des Kühlmittels hat einen signifikanten Einfluss auf die Energieverteilung der Neutronen und damit auf deren Reaktionswahrscheinlichkeiten. Neutronenphysikalische Kenngrößen und Spektren bieten einen guten Zugang, um das Verhalten von komplexen Systemen und der in diesen ablaufenden Prozesse zu beschreiben.

k_{eff} ist eine solche Kenngröße und wurde in Gleichung (2.9) bereits vorgestellt. Sie ist für den Betrieb einer kritischen Anlage von zentraler Bedeutung, da ein Wert größer 1 zu einem exponentiellen Anstieg der Neutronen und damit der Leistung führt. Bereits kleinere positive Fluktuationen von k_{eff} würden zu einer positiven Reaktivität ρ führen. Die kurze Lebensdauer der prompten Neutronen (etwa 10^{-4} s bei thermischen Systemen) würde zu einem explosionsartigen Anstieg der Leistung unterhalb einer Sekunde führen.

Der Grund für den nicht exponentiellen Anstieg sind die verzögerten Neutronen. Diese sorgen, trotz ihres geringen Anteils von unter einem Prozent bei der Entstehung, für einen Anstieg der Neutronenlebensdauer in einem thermischen Leichtwasserreaktor um mehr als fünf Größenordnungen. Dem Anteil der verzögerten Neutronen, β genannt, kommt daher eine besondere Rolle in Bezug auf Leistungsfluktuationen zu.

Dieses Verhalten kann nicht unmittelbar auf unterkritische Systeme übertragen werden, da der Einfluss auf die Gesamtproduktion eine geringe Rolle spielt (Tabelle 2.4). Dies bedeutet, dass

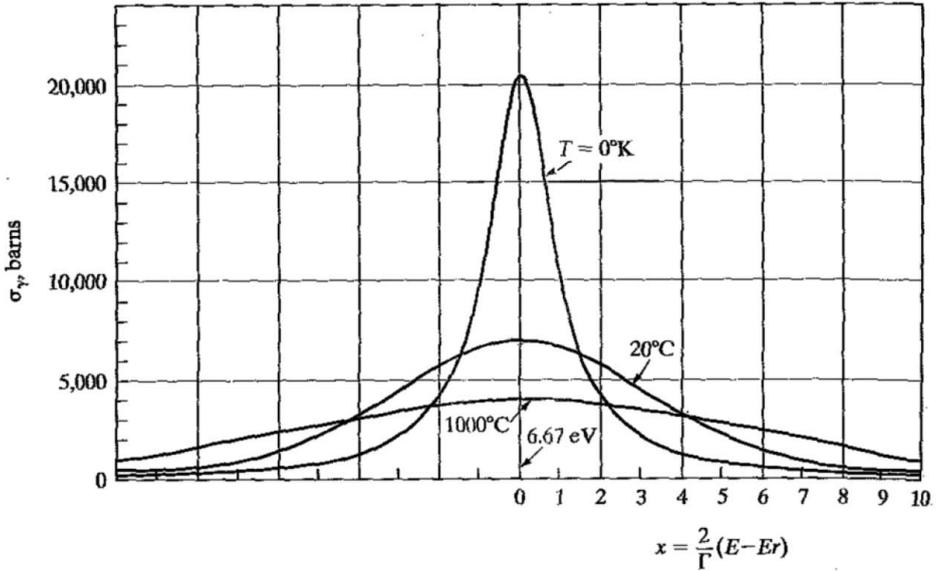


Abb. 2.11: Resonanzverbreiterung für einen Wirkungsquerschnitt bei unterschiedlicher Kerntemperatur [29]

Fluktuationen in der Neutronenquelle sich unmittelbar auf die Leistungserzeugung auswirken. Eine konstante Neutronenquelle ist daher für den Betrieb einer unterkritischen Anlage erforderlich, um thermische Schockbelastungen für die Materialien zu vermeiden.

Eine weitere Kenngröße in Bezug auf die Kritikalität ist der Dopplerkoeffizient α . Dieser beschreibt, wie in Abbildung 2.11 zu sehen, die Resonanzverbreiterung infolge einer Erhöhung der Brennstofftemperatur. Die Fläche unterhalb des Integrals bleibt dabei unverändert. Die breitere Resonanz erhöht jedoch die Reaktionswahrscheinlichkeit der Neutronen, da diese eine diskrete Energie aufweisen. Dies sorgt dafür, dass die Wahrscheinlichkeit für (n,γ) -Reaktionen zunimmt und somit die Kritikalität bei steigender Temperatur sinkt.

$$\alpha = \frac{k(T + \Delta T) - k(T)}{k(T + \Delta T) \cdot k(T) \cdot \Delta T} \quad (2.12)$$

Die Berechnung der Größe erfolgt über die Kritikalität bei zwei Temperaturen und wird in pcm/K angegeben. Ihr Wert ist abhängig von der Brennstoffzusammensetzung und dem Neutronenspektrum. Im schnellen Spektrum ist der Effekt deutlich geringer als im thermischen, da weniger Neutronen das epithermische Resonanzspektrum (Bereich zwischen thermischen und schnellen Neutronen) durchlaufen. Während im thermischen Spektrum Werte von -3 bis -2 pcm/K für gängige Brennstoffkonzepte (UOX, MOX) üblich sind, steigt dieser Wert im schnellen Spektrum auf etwa -1 pcm/K [30, 31, 32]. Eine Temperaturerhöhung des Brennstoffs führt damit zu einer schwächeren Absenkung von k_{eff} .

Der Effekt der Brennstoffzusammensetzung lässt sich an ^{241}Am verdeutlichen (Abbildung 2.12). Der größere Einfangquerschnitt bei Americium sorgt dafür, dass der Dopplereffekt der Plutoniumisotope überdeckt wird. Americiummengen von nur wenigen Prozent von der Schwermetallmassen führen zu einem deutlichen Anstieg des α -Werts. Hohe Konzentrationen, wie in einem ADS

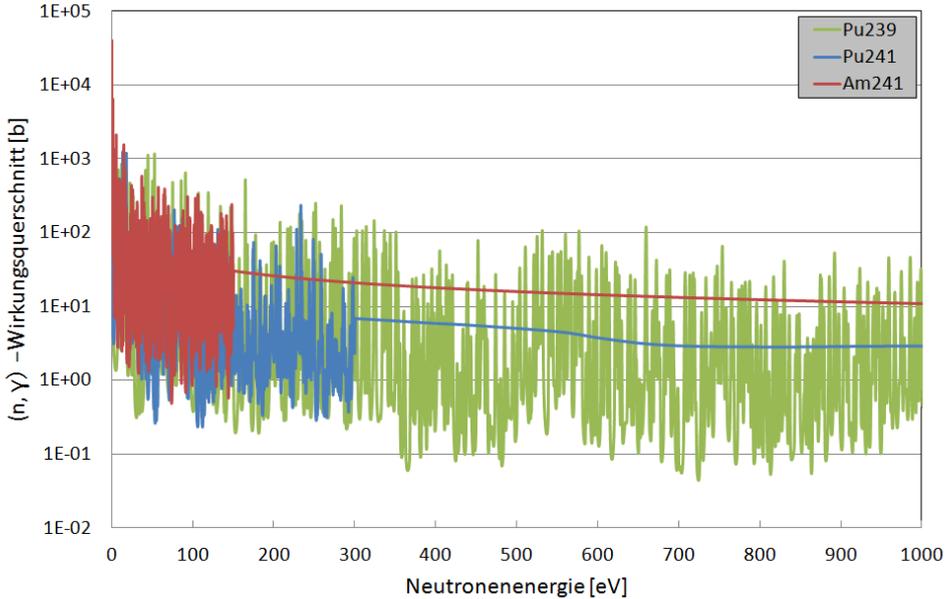


Abb. 2.12: Wirkungsquerschnitt (n,γ) für die spaltbaren Plutoniumisotope ^{239}Pu und ^{241}Pu sowie für ^{241}Am . Für ^{239}Pu liegt eine Auflösung der Resonanzen für einen größeren Neutronenenergiebereich vor.

möglich, schwächen den Effekt deutlich ab, so dass er für den Betrieb nicht mehr als passive Sicherheitseigenschaft bei Temperaturanstieg angenommen werden kann.

Einen weiteren Effekt auf die Kritikalität hat der Zustand des Kühlmittels. Dieses ändert bei Flüssigkühlmittel durch Blasenbildung bzw. Druckänderung bei Gaskühlmitteln seine Dichte. Dies hat Einfluss auf die Moderatoreigenschaften des Kühlmittels und ändert damit die Kritikalität. Die Änderung bei Druckverlust wird mit

$$VC = \frac{1}{k(p_{alt})} \frac{k(p_{neu}) - k(p_{alt})}{\Delta p} \quad (2.13)$$

beschrieben. Zur Berechnung des Voidkoeffizienten (VC) wird der Druck während des normalen Betriebs p_{alt} und für eine Änderung p_{neu} sowie deren zugehörige Kritikalität benötigt. Bei der in dieser Arbeit vorgenommenen Berechnung wurde ein Druck von 1 bar angenommen, um die Auswirkung von einem vollständigen Druckabfall zu simulieren. Liegt ein positiver Wert [pcm/bar] vor, steigt die Kritikalität bei Druckabfall. Die Neutronen werden in diesem Fall durch das Kühlmedium weniger moderiert und besitzen dadurch eine höhere Energie. Diese führt zu einem Anstieg der Spaltungswahrscheinlichkeit. Dieser Effekt kann durch die Brennstoffwahl verstärkt werden (Tabelle 7.2), wenn beispielsweise ein hoher Anteil an Americium vorliegt. Die Wirkungsquerschnitte für ^{241}Am ändern sich im Energiebereich von 100 keV bis 1 MeV signifikant. Neben der Wahl des Brennstoffs ist das Verhältnis der Raumnutzung zwischen Kühlmittel und Brennstoff ebenfalls ein wichtiger Parameter, der den Voidkoeffizienten bestimmt.

Das Spallationstarget ist als Neutronenquelle für den Betrieb einer unterkritischen Anlage eine essenzielle Komponente. Sie liefert die Neutronen, die in der Brennstoffzone durch Spaltung vervielfältigt werden. Die Gesamtzahl von Neutronen, die in einer Neutronengeneration entstehen, ergibt sich daher zu

$$n_{tot} = n_{spall} + n_{fis} \quad (2.14)$$

Die Brennstoffzone ist unterkritisch, daher ist die Kettenreaktion nicht selbsterhaltend und wird von den Spallationsneutronen bestimmt. Die Zahl der Neutronen nach i Generationen lässt sich wie folgt bestimmen.

$$\begin{aligned} n_{tot} &= n_{spall} + n_{spall} \cdot k_{eff} + n_{spall} \cdot k_{eff}^2 + n_{spall} \cdot k_{eff}^3 + \Lambda \\ &= n_{spall} \cdot \sum_{i=0}^{\infty} (k_{eff})^i \\ &= n_{spall} \cdot \frac{1}{1 - k_{eff}} = n_{spall} \cdot M \end{aligned} \quad (2.15)$$

M gibt den Multiplikationswert des Systems wieder. Er ist neben Geometrie und Brennstoffzusammensetzung auch vom Startpunkt der Spallationsneutronen abhängig. Dies stellt einen wichtigen Unterschied zu einem kritischen Reaktor dar. k_{eff} ist in einem unterkritischen System als Eigenmultiplikationsfaktor der Anordnung (Geometrie und Brennstoff) bei abgeschalteter Neutronenquelle zu verstehen. Dieser Wert gilt nicht während des Betriebs mit externer Neutronenquelle, da die Spallationsneutronen aus einer vorgegebenen Geometrie erzeugt werden (Spallationstarget) und im Allgemeinen eine höhere Neutronenenergie aufweisen als Spaltneutronen. Der Multiplikationsfaktor wird im Betrieb daher nicht mit k_{eff} , sondern mit k_s (Quellkritikalität) bezeichnet [33]. k_s kann über

$$k_s = \frac{M}{M + 1} \quad (2.16)$$

definiert werden, wenn die Neutronenvervielfachung von einer Generation zur nächsten als konstant angenommen wird. Es gilt weiterhin zu beachten, dass k_s sich auf die Vervielfachung der durch die Spallationsneutronen erzeugten Neutronen bezieht [34], während k_{eff} die Vervielfachung der Spaltneutronen (Eigenmultiplikativität) darstellt. Gleichung (2.15) ändert sich damit zu

$$n_{tot} = n_{spall} \frac{1}{1 - k_s} \cdot k_s \quad (2.17)$$

Die Neutronenanzahl wird damit durch die externe Quelle und der Verteilung der freigesetzten Spallationsneutronen bestimmt. Diese wiederum werden durch einen Protonenstrom I erzeugt. Die thermische Leistung eines Reaktors kann unter Einbezug des Protonenstroms wie folgt definiert werden:

$$P_{th} = I \cdot y(E_p) \cdot \frac{1}{\nu} \cdot \frac{k_s}{1 - k_s} \cdot E_{fis} \quad (2.18)$$

$y(E_p)$ ist die Neutronenausbeute [35] des Spallationstargets, ν die mittlere Neutronenfreisetzung je Spaltung und E_{fis} die mittlere Energiefreisetzung je Spaltungsvorgang. Die Energiedisposition im Spallationstarget ist in der Gleichung nicht berücksichtigt. Die Leistung P_{th} ist von der Quellkritikalität k_s statt von der Eigenmultiplikation k_{eff} des Systems abhängig. Der Unterschied zwischen den beiden Größen führt zu einer Leistungsänderung, die mittels der Neutroneneffizienz φ^* des Spallationstargets beschrieben werden kann.

$$\varphi^* = \frac{1}{k_{eff} - 1} \cdot \frac{\langle \mathbf{F}\phi_S \rangle}{\langle S_n \rangle} \quad (2.19)$$

\mathbf{F} ist der Spaltproduktionsoperator, ϕ_S die Neutronenflussverteilung und S_n die Quellstärke der externen Neutronen. $\langle \mathbf{F}\phi_S \rangle$ liefert folglich die totale Produktion der Neutronen durch Spaltung, während S_n die totale Produktion von Neutronen durch die externe Neutronenquelle beschreibt [36]. Der Quotient der beiden Terme beschreibt demnach die Vervielfachung eines Quellneutrons durch Spaltungen. Gleichung (2.19) kann damit in den bereits beschriebenen Größen wie folgt dargestellt werden [37]:

$$\varphi^* = \frac{(1 - k_{eff})/k_{eff}}{(1 - k_s)/k_s} \quad (2.20)$$

Werte kleiner als eins bedeuten für φ^* , dass die Eigenmultiplikation des Systems nicht optimal genutzt wird. Die durch Spallation erzeugten Neutronen gelangen nicht in ausreichendem Maße oder energetisch bereits stark abgeschwächt in die Brennstoffzone. Ein Wert größer als eins macht sich die, aus dem Spallationsprozess gewonnenen, energiereichen Neutronen zu Nutze. Dies hat eine höhere Neutronenmultiplikation zur Folge.

Die in diesem Kapitel betrachteten Größen beschreiben das Kollektivverhalten der Neutronenpopulation in einem System. Die Berechnung dieser Größen wird im Kapitel 3 anhand des Monte-Carlo Verfahrens erläutert.

2.4 Transmutationssysteme

Die Transmutation von Transuranen kann in unterschiedlichen Anlagen erfolgen. Neben der Auslegung dieser Anlage (thermisches oder schnelles Spektrum) ist die Brennstoffwahl ein wichtiges Merkmal. Im Folgenden werden die unterschiedlichen Anlagentypen kurz dargestellt und die physikalischen Aspekte eines gasgekühlten unterkritischen Systems beschrieben.

2.4.1 Kritische Systeme

Der weltweit am meisten verwendete Kernreaktor ist der thermische Leichtwasserreaktor (LWR). Die Umwandlung von Transuranen in diesem thermischen Reaktor ist nur eingeschränkt möglich. Die Spaltungswahrscheinlichkeiten in Abbildung 2.9 machen deutlich, dass lediglich ^{235}U , ^{239}Pu und ^{241}Pu spaltbares Material darstellen. Der Neutroneneinfang sorgt bei den übrigen Isotopen zum Aufbau schwererer Isotope.

Die Brennstoffwahl kann die negativen Transmutationseigenschaften in thermischen Systemen zum Teil ausgleichen. Die Beladung mit MOX statt reinem Uranoxid verringert die Plutoniummenge, anstatt sie weiter zu vergrößern. Americium und Curium werden hingegen kontinuierlich aufgebaut. Ein anderer Ansatz ist die Vermeidung von neuen transuranen Elementen. Hierzu wird Uran, welches mit ^{238}U als Brutstoff für Plutonium dient durch Thorium substituiert. Dies verhindert den Aufbau von weiteren Transuranen bei gleichzeitiger Erbrütung von spaltbarem ^{233}U . Simulationen mit Brennstoffkonzepten dieser Art untersuchen das Betriebs- und Transmutationsverhalten für LWR [30, 38].

Die geplanten Kernreaktoren der 4. Generation (Gen IV Reaktoren) arbeiten bis auf den *Super-Critical Water-Cooled Reactor* (SCWR) im schnellen Spektrum. Das gasgekühlte kritische Reaktorkonzept (GFR) dient zur Entwicklung einer Demonstrationsanlage innerhalb der European

Sustainable Nuclear Industry Initiative (ESNII) und ist Gegenstand des 7. Frameworkprogramms (FP7) der Euroatom mit dem Projektnamen GoFastR [39]. Das schnelle Spektrum verlangsamt den Aufbau transuraner Elemente, da die meisten von ihnen im schnellen Spektrum spaltbar sind. Der Brutprozess aus ^{238}U ermöglicht die bessere Nutzung des Rohstoffes Uran. Anstatt nach einem Abbrandzyklus diesen zu entsorgen und 99 % des Rohstoffes¹⁰ ungenutzt zu lassen, ermöglicht der Brutprozess aus ^{238}U eine theoretisch vollständige Nutzung des Urans. Der Übergang von thermischen zu schnellen Reaktorsystemen sowie die effektive Wiederaufarbeitung der Transurane ist Gegenstand internationaler Untersuchungen [40, 41].

Die Beimischung von minoren Actiniden wird durch die Sicherheitseigenschaften limitiert. Der Dopplerkoeffizient α und der Anteil der verzögerten Neutronen β (Kapitel 2.3.1) verschlechtern sich, sobald minore Actiniden beigemischt werden. Eine Kernbeladung bleibt je nach Anlagentyp und Beladungskonzept auf 5 bis 10 % beschränkt, um die Regelbarkeit zu gewährleisten. Eine effektive Verbrennung ist im schnellen Spektrum möglich, wenn der Kraftwerkspark der Anlagen langfristig mit GenIV-Reaktoren ergänzt wird.

2.4.2 Unterkritische Systeme

Für ein Land, welches eine langfristige Nutzung der Kernkraft ausschließt, ist ein Konzept der stetigen Reduzierung der radioaktiven Stoffe in einem modernisierten Kraftwerkspark nicht durchführbar. Weltweit gibt es mehrere beschleunigergetriebene System (accelerator driven system, ADS)-Konzepte, die sich im Hinblick auf Spallationstarget, Kühlmittel, Brennstoffwahl und Leistungsauslegung unterscheiden [42]. Zur Erhaltung der nuklearen Kettenreaktion ist eine externe Neutronenquelle notwendig. Beschleunigergetriebene Systeme ermöglichen es mittels hochenergetischer Teilchen (vorzugsweise Protonen) in einem Target Spallationsneutronen zu erzeugen und die Brennstoffzone mit den nötigen Quellneutronen zu versorgen. Der Aufbau eines solchen Anlagenkomplexes ist in Abbildung 2.13 dargestellt. Es zeigt neben dem Reaktorgebäude den Linearbeschleuniger, Büro- und Betriebsgebäude und kleinere Gebäude um das Reaktorgebäude. Diese beinhalten Experimente zur Grundlagenforschung, die betrieben werden, wenn der Protonenstrom nicht oder nur teilweise für den Transmutationsprozess benötigt wird. Bei dem Beschleuniger kann ein Zyklotron oder Linearbeschleuniger (LINAC) verwendet werden. Die Verwendung von einem LINAC wird bevorzugt, da dieser einen großen Protonenstrom liefern kann, welcher für eine industrielle Anlage notwendig ist. Zyklotronbeschleuniger sind für industrielle Anlagen mit geplanten Protonenströmen von 25 bis 40 mA nicht geeignet [43].

Im Rahmen des 6. Frameworkprogramms (FP6) sind die beiden Konzepte XT-ADS (eXperimental-ADS) und EFIT (Europea Facility for Industrial Transmutation) ausgearbeitet worden, die ein Spallationstarget aus flüssigem Metall vorsehen [13]. Während XT-ADS einen experimentellen Fokus hat, richtet sich EFIT auf die spätere industrielle Nutzung. EFIT verwendet uranfreen Brennstoff aus Plutonium und minoren Actiniden.

Als Kühlmittel wird Blei genutzt, während XT-ADS als zeitnahes Projekt aufgrund des niedrigeren Schmelzpunktes Blei-Wismuth-Eutektikum (125 °C) vorsieht, da sich ein Kühlkreislauf mit diesem technisch einfacher realisieren lässt.

Ein in der Planung hierzu weit fortgeschrittenes Forschungsvorhaben ist MYRRHA. Zu den Zielen

¹⁰Uranmenge einschließlich Tallies

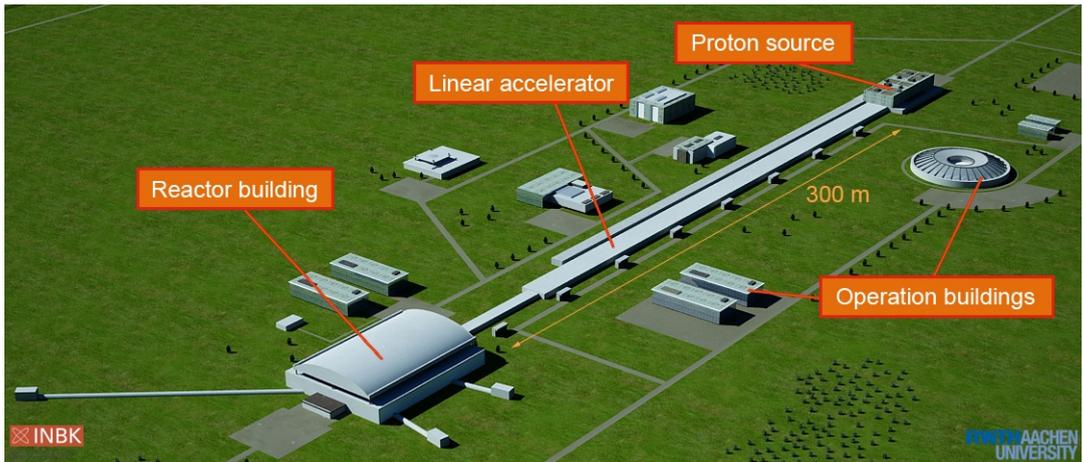


Abb. 2.13: Konzeptioneller Aufbau des AGATE-Anlagenkomplexes mit Linearbeschleuniger und Reaktorgebäude und Infrastruktur [13]

zählt es, die technische Machbarkeit eines flüssiggekühlten ADS zu demonstrieren und die Sicherheitsparameter von unterkritischen Reaktorsystemen zu erforschen.

Als weiteres Konzept ist HYPER (**H**ybrid **P**ower **E**xtraction **R**eactor) in Korea zu nennen, welches als $1,000 \text{ MW}_{\text{th}}$ konzipiert ist [44]. Als Spallationstarget wird ebenfalls ein Blei-Wismuth-Euthetikum verwendet, was auch für andere konzeptionelle unterkritische Reaktorsysteme vorgesehen ist, da es gleichzeitig als Kühlmittel für die Transmutationszone fungiert.

Die European Spallation Source (ESS) entwickelt ein solches Spallationstarget [45], das hochenergetische Spallationsneutronen für die Materialforschung erzeugt. Die Materialschädigung durch die hochenergetischen Protonen und Sekundärteilchen ist bei einem Spallationstarget von besonderem Interesse [46]. Als zentrales Bauteil wird dieses stetig weiterentwickelt [47, 48] und auch der Einfluss der Transmutationszone auf die Neutroneneffizienz untersucht [49]. In dieser Arbeit wird ein alternatives Konzept vorgestellt, welches im Rahmen der Machbarkeitsstudie AGATE erarbeitet wurde. Die konzeptionelle Ausarbeitung von AGATE (Kapitel 4.2) als gasgekühlte unterkritische Anlage erfolgt in Anlehnung an weltweiten Forschungsleistungen (Kapitel 4.1).

Alle Konzepte sehen die Verminderung von *minoren Actiniden* vor. In den USA wurde hingegen ein reiner Americium *Burner* vorgeschlagen. Das SMART Konzept (**S**ubcritical **M**inor **A**ctinide **R**eduction through **T**ransmutation) [50] konzentriert sich damit auf das Element, welches ihrer Ansicht nach den größten Einfluss auf die nukleare Abfallbehandlung hat. Np, Pu und U sollen gemeinsam abgetrennt und für spätere Brennstoffnutzung gelagert werden. Curium kann nach ausreichender Lagerzeit (65 Jahre) als Brennstoff dienen [51]. Eine gemeinsame Wiederaufarbeitung zu neuem Brennstoff mit den anderen Elementen würde zu einem erheblichen Aufwand aufgrund der Radioaktivität führen, weshalb eine separate Lagerung für diesen Zeitraum vorgeschlagen wird. Dieses letzte Konzept zeigt, dass es bei der Nutzung eines ADS unterschiedliche Brennstoffkonzepte gibt.

Als Alternative zu den flüssiggekühlten Anlagen wurden im FP5 gasgekühlte Reaktoren mit Helium bzw. CO_2 untersucht. Sie haben den Vorteil, dass im Gegensatz zu Flüssigmetall die Korrosionseffekte zu vernachlässigen sind und eine Inspektion und ein Austausch der einzelnen Anlagenkomponenten einfacher ist. Zudem ist das Neutronenspektrum härter, was eine höhere Spaltrate bei den

minoren Actiniden zur Folge hat. Nachteilig wirken sich die geringere Wärmeleitfähigkeit und der hohe Druck des Kühlmittels bei der Betrachtung von Störfällen aus. Bei der technischen Auslegung einer solchen Anlage gilt es diese auszuschließen oder ihre Auswirkungen zu vermindern.

Die Nutzung von gasgekühlten Brennstoffzonen erlaubt es auch das Spallationstargetdesign zu ändern. Ein Blocktarget emittiert die Neutronen in einem kleinen Volumen, welches die Brennstoffbeladung um das Target limitiert. Nach der Bethe-Bloch-Formel hat ein Teilchenstrahl eine definierte Eindringtiefe und Verteilung. Bei einem kontinuierlichen Targetmedium kann diese Verteilung nicht beeinflusst werden. Dies ist jedoch möglich, wenn das Target segmentiert wird und die Verteilung durch unterschiedliche Plattendicken in der Höhe homogenisiert werden kann. Dies erlaubt es einen Reaktor zu entwerfen, der auf Erfahrungen von kritisch betriebenen Reaktorkonzepten aufbaut, um dessen Transmutationsverhalten zu untersuchen.

3 Softwareprogramme

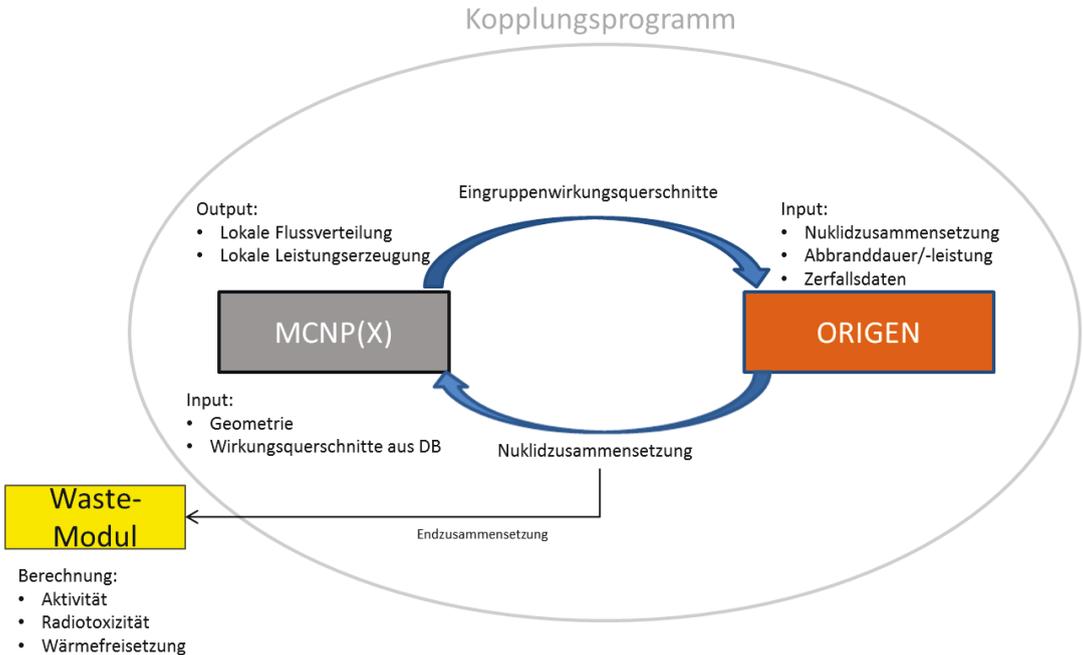


Abb. 3.1: Interaktion der verwendeten Computerprogramme zur Abbrandberechnung und Analyse

Simulationsprogramme bieten die Möglichkeit die Arbeitsweise von Transmutationsanlagen ein- und die Effizienz abzuschätzen und bereits in der Designphase eine Anlage hinsichtlich des Transmutationsverhaltens zu optimieren.

Um die physikalischen Vorgänge in einem Reaktor mit einem Modell simulieren zu können, ist unter anderem die Darstellung der Geometrie sowie die Kenntnis der Materialzusammensetzung notwendig. Dabei ist es erforderlich sowohl die physikalischen Parameter wie Neutronenfluss und Reaktionsrate, als auch die Änderungsrate für die Materialzusammensetzung zu berechnen.

Ein Programm, welches den Neutronenfluss und die Reaktionsraten berechnen kann, ist MCNPX (Monte-Carlo N-Particle eXtended)[52]. Zur Berechnung der physikalischen Vorgänge sind Datenbanken erforderlich, welche die nuklearen Reaktionen anhand experimenteller Daten oder theoretischer Modelle bereitstellen. Die Berechnung erfolgt mittels eines probabilistischen Verfahrens, aus dem durch Simulation vieler Einzelschicksale makroskopische Größen wie Eingruppenwirkungsquerschnitte berechnet werden. Das dabei simulierte System ist stationär. Das heißt, es ändert seine Materialzusammensetzung durch die simulierten Wechselwirkungen nicht. Jedes Quellteilchen sieht einen identischen Reaktor.

Die Berechnung der zeitlichen Änderung der Materialzusammensetzung erfolgt über das Abbrandprogramm ORIGEN [53], welches aus der anfänglichen Materialzusammensetzung, den Eingruppenwirkungsquerschnitten, der Leistung und der Abbranddauer eine neue Materialzusammensetzung berechnet. Diese wird MCNPX wieder zur Verfügung gestellt, um anschließend die physikalischen Größen für diesen neuen Zustand zu simulieren.

Ein Kopplungsprogramm dient als Schnittstelle, um die Ergebnisse beider Programme aufzubereiten und weiterzuleiten. Am Ende der Abbrandsimulation erfolgt die Berechnung der zeitlichen Entwicklung der endlagerrelevanten Größen Aktivität, Nachzerfallswärme und Radiotoxizität mittels des WASTE-Moduls für die gegebene Stoffzusammensetzung, um die Auswirkung des P&T-Verfahrens für Endlagerzeiträumen zu betrachten.

3.1 Monte-Carlo-Code MCNPX

Simulationen werden eingesetzt, um Fragestellungen zu lösen, die mit Experimenten zu aufwändig oder zu gefährlich sind. Der stetige Fortschritt in der Computertechnologie erlaubt es heute, immer komplexere Zusammenhänge anhand von Simulationen zu untersuchen. Reale Systeme können in ihrer Geometrie und Zusammensetzung virtuell dargestellt werden. Sie beschreiben diese jedoch nicht vollständig, da sie eine Auflösungsgrenze besitzen und Daten benutzen, die fehlerbehaftet oder den Umständen nicht entsprechen.

Die physikalischen Prozesse in einem solchen System können sowohl deterministisch als auch probabilistisch berechnet werden. Deterministische Modelle basieren auf definierten Bedingungen und Gesetzmäßigkeiten. Die Lösung ist damit identisch, wenn die Anfangsbedingungen identisch sind. Die Rechenzeit für diese explizite Lösung von aufgestellten Gleichungssystemen, welches die Anfangsbedingungen und weitere Bedingungen enthalten, steigt mit der Komplexität des abgebildeten Systems bei nichtlinearen Fragestellungen überproportional an weshalb vorzugsweise probabilistische Verfahren genutzt werden.

Probabilistische Verfahren werden in der Reaktortechnik genutzt, um aus der Kenntnis von mikroskopischen Prozessen makroskopische Größen abzuleiten. Mittels eines Zufallszahlengenerators werden mikroskopische Prozesse in großer Zahl simuliert, um aus der Verteilung dieser die makroskopischen Größen abzuleiten. Dieses Verfahren wird als Monte-Carlo-Methode bezeichnet [30]. Es liefert im Gegensatz zu dem deterministischen Verfahren nicht dieselbe Lösung, sondern eine mit einer statistischen Unsicherheit. Die Kenntnis beispielsweise der mikroskopischen Neutronenprozesse aus analytischen oder empirischen Beschreibungen erlaubt es, eine Verteilungsfunktion für die möglichen Reaktionen eines Neutrons zu ermitteln.

Das Computerprogramm MCNPX (Monte Carlo N-Particle eXtended) ist ein Transportcode für Teilchen (Neutronen, Protonen, Pionen, Photonen, ...), welches das Monte-Carlo-Verfahren benutzt, um deren Verteilung und weitere Größen in einer entsprechend modellierten Geometrie zu berechnen.

Die Einzelschicksale der Teilchen werden mittels Wirkungsquerschnittsdaten simuliert, welche die Reaktionswahrscheinlichkeiten enthalten. Abbildung 3.2 zeigt den Verlauf eines Neutrons und die resultierenden Prozesse, welche dieses verursacht. Das einfallende Neutron gelangt aus einer materialfreien Zelle (Void) in eine Zelle, die mit spaltbarem Material gefüllt ist. Dort wird das Neutron gestreut (Punkt 1) und ein Photon emittiert, welches anschließend vom Material absorbiert wird (Punkt 7). Das gestreute Neutron verursacht im Folgenden eine Spaltung (Punkt 2), dabei werden zwei Neutronen und ein Photon emittiert. Eines der Neutronen wird im Material absorbiert (Punkt 3), während das andere die Zelle verlässt (Punkt 4). Das Photon wird nochmals vom Material gestreut (Punkt 5) bevor auch dieses das Material verlässt (Punkt 6).

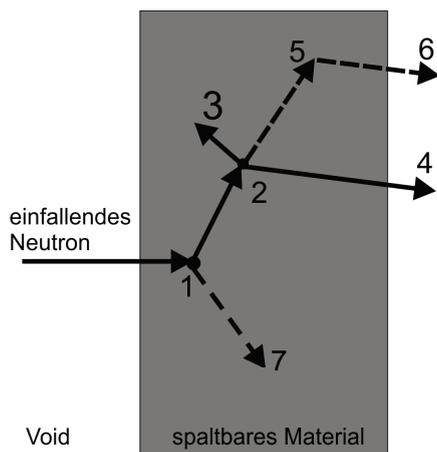


Abb. 3.2: Exemplarischer Ereignispfad für ein einfallendes Neutron in einem Block mit spaltbarem Material

Dieses Beispiel macht deutlich, wie vielseitig sich ein Neutronenschicksal entwickeln kann. Die Bestimmung von Systemkenngrößen wie die der Kritikalität benötigt je nach Grad der Auflösung der Geometrie und Materialzusammensetzung hunderttausende bis zu mehreren Millionen solcher Schicksale. Die Anzahl wird durch die Größe, Komplexität und Auflösung des modellierten Systems, sowie der angestrebten Genauigkeit bestimmt.

Die Modellierung des Systems ermöglicht die Anwendung der Monte-Carlo-Methode. Das Modell bestimmt maßgeblich die Richtigkeit des Ergebnisses, da die simulierten Größen sich stets auf dieses und nicht auf die Realität beziehen. Ein Abbild, welches die neutronenphysikalisch relevanten Komponenten in ausreichender Auflösung wiedergibt, ist eine Grundvoraussetzung für belastbare Aussagen.

Die Modellierung erfolgt bei MCNPX über eine Textdatei, die in mehreren Blöcken (sogenannte Cards) unterteilt ist. Der 1. Block (Cell Cards) enthält die Zellen aus denen das Modell zusammengesetzt ist. Die Definition einer solchen Zelle erfolgt durch Oberflächen, die im 2. Block (Surface Cards) beschrieben sind, welche die Zelle von der restlichen Geometrie abgrenzen. Zur Darstellung des Reaktorkerns werden zylindrische Oberflächen, Ebenen und hexagonale Strukturen genutzt. Der 3. und letzte Block (Data Cards) enthält die Materialkarten, Quelldefinitionen, Berechnungsverfahren und Fragestellungen (Tallies) der durchzuführenden Simulation.

Eine solche Eingabedatei wurde erstellt, um die Geometrie von AGATE zu modellieren (Abbildung 3.3). Es beinhaltet das Spallationstarget, die Brennstoffzone, den Reflektormantel, Druckbehälter und Strahlenkanal für den Protonenstrahl, sowie ein einhüllender Betonmantel. Die hexagonale Brennstoffzone besteht dabei aus mehreren ringartig angeordneten Brennelementen, welche die Brennstäbe enthalten, die mit einem Cladding versehen sind. Die Auflösung beträgt ein Zehntelmillimeter bei der Brennstabgeometrie, während das gesamte Modell im Metermaßstab liegt. Die Modellierung von kleinen Objekten (Schrauben, Rohröffnungen und Verstrebungen) wird vernachlässigt, da Ihnen kein signifikanter Effekt auf die zu untersuchenden Prozesse zugeordnet wird.

MCNPX bietet die Möglichkeit wiederkehrende Strukturen durch vorgefertigte Befehle in der Cell Card abzubilden. In sogenannten Universes kann eine Struktur, wie z.B. ein Brennstab mit umgebendem Kühlmittel, modelliert werden. Dieses Universe kann auf einer definierten Gitterstruktur in jede einzelne Gitterzelle dupliziert werden. Diese sogenannten Latticestrukturen sind in einem LWR kartesisch und für AGATE hexagonal angeordnet. Eine Verschachtelung von einem Lattice in einem anderen ist möglich. In AGATE befinden sich die Brennelemente in einem Lattice, welches die Brennstoffzone mit Reflektor darstellt. Die Brennelementstruktur ist wiederum ein Lattice, welches die einzelnen Brennstäbe mit Cladding und Kühlmittel enthält.

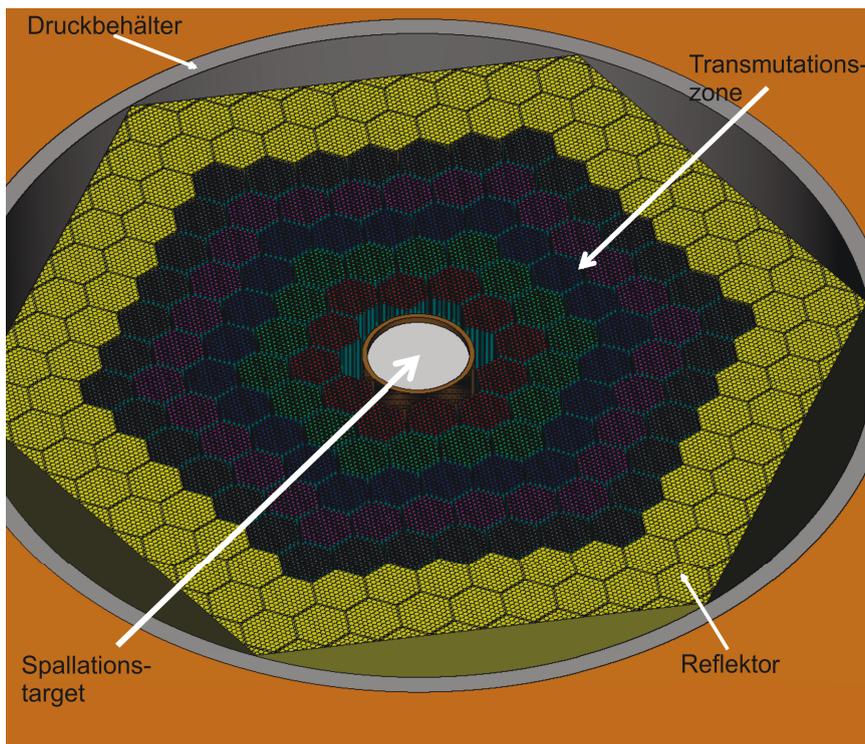


Abb. 3.3: Geometrie des ADS AGATE mittels SABRINA[54] in MCNPX. Das Spallationstarget wird umgeben von fünf Brennelementtringen und zwei Reflektorreihen gefolgt vom Reaktordruckbehälter.

Jeder Zelle, die einen Körper beschreibt, kann eine Materialkarte in MCNPX zugeordnet werden. Diese enthält die Materialkomposition, sowie den Verweis auf eine neutronenphysikalische Datenbibliothek (Kapitel 3.2). Die Dichte des Materials wird bei der Zellbeschreibung angegeben. Eine Materialkarte kann für mehrere Zellen mit ggf. unterschiedlicher Dichte verwendet werden. Mit der Geometrie und den Materialien sind alle erforderlichen Parameter für das MCNPX Modell gegeben.

Zur Berechnung muss eine Teilchenquelle (in Reaktortechnik: Neutronen) definiert werden, welche den Startpunkt der Teilchen beschreibt. Dies geschieht mittels einer *SDEF*-Karte unter dem Block

Data Cards. Sie enthält die Richtung, Energie und Verteilung der Teilchen. Nach jeder Berechnung eines Einzelschicksals wird ein neues Teilchen anhand dieser Karte erzeugt, wobei sich die Materialkarten durch die vorigen Teilchenberechnungen nicht ändern. In einem kritischen System werden keine fixierten Quellen verwendet, da jede Zelle mit spaltbarem Material eine mögliche Neutronenquelle darstellt. Die Neutronenstartpunkte werden über den *KCODE*-Befehl gesteuert, welche die Anzahl der pro Neutronengeneration simulierten Teilchen und die Anzahl der Vorlauf- und Gesamtzyklen, die berechnet werden sollen, beinhaltet. Die Vorlaufzyklen dienen dazu, dass eine anfängliche Neutronenvorgabe sich in der Modellstruktur entsprechend der lokalen Spaltstoffe verteilt. Die Neutronenverteilung am Ende eines Zyklus bestimmt die Quellneutronen für den nächsten Zyklus. Die beiden Simulationsmodi SDEF und KCODE sind zu unterscheiden, da in einem ADS beide verwendet werden, um unterschiedliche Fragestellungen zu beantworten.

Diese Fragestellungen werden über sogenannte Tallies definiert. Der Neutronenfluss in einem Brennstab oder die Leistungserzeugung in einem solchen können mit einem Simulationslauf beantwortet werden, welcher die nötigen Tallies enthält. Der Anwender des Programmes beschleunigt damit das Berechnungsverfahren indem nur Informationen zur Beantwortung der gestellten Fragen ausgewertet werden.

Neben dem Ergebnis wird in den Tallies eine relative statistische Unsicherheit der Größe angegeben. Die Kritikalität hingegen strebt nach dem Zentralen Grenzwertsatz einer Normalverteilung als Ergebnisverteilung entgegen. Das richtige Ergebnis liegt zu 68 % innerhalb der Standardabweichung σ . In dieser Arbeit wird, wenn nicht anders genannt, stets 1σ gewählt.

Die MCNP Ausgabedatei enthält neben den Ergebnissen für die verwendeten Tallies auch Standardtabellen und Zusammenfassungen. Anhand der *problem summary* in der Ausgabedatei lässt sich die Anzahl der Neutronen, die je Quellproton erzeugt werden, berechnen. Hierzu wird die Bilanz von nuklearen Interaktionen (14.04 Neutronen/Quellteilchen - 2.06 Neutronen/Quellteilchen), von (n,xn)-Reaktionen (0.964 - 0.468) und "Interaktion mittels Modellen" (0) summiert. Die Anzahl der Neutronen je Protonen S ergibt sich nach Abbildung 3.4 zu 12.47. Eine obere Grenze für die relative Ungenauigkeit liefert der Kehrwert der Wurzel der Quellteilchen. Daraus folgt in diesem Beispiel mit 600,000 Protonen eine Ungenauigkeit von 0.13 %.

3.2 Nukleare Daten

Nukleare Daten wie Wirkungsquerschnitte zur Absorption oder die Neutronenausbeute bei einer Spaltung eines Isotops sind für die Durchführung von Simulationen von elementarer Bedeutung, da eine Beschreibung der physikalischen Vorgänge nur mit diesen möglich ist. Es existieren diverse Organisationen, die solche Daten als Bibliotheken zur Verfügung stellen. Unterschiede in diesen Datenbanken und Unsicherheiten bei den Experimenten, Datenaufarbeitung und theoretischen Modellen führen bei der Anwendung zu Abweichungen, die im schnellen Spektrum und auch für Spallationsprozesse einen großen Einfluss haben.

Das *n_TOF* (neutron time-of-flight) Experiment am CERN [55] nutzt eine Spallationsquelle aus Blei, um Neutronen zur Wirkungsquerschnittsmessung mit diversen Isotopen zu erzeugen. Dabei werden bei den Actiniden gerade solche Isotope untersucht, die für zukünftige Brennstofftypen in GenIV-Reaktoren (Thorium- und TRU-Brennstoff im schnellen Spektrum) von Interesse sind.

In der ersten Phase wurden besonders die Einfangquerschnitte für ^{237}Np und ^{240}Pu mittels der Kalorimetermethode bei verhältnismäßig großen Massen (~ 1 g) bestimmt. Diese Isotope werden während des Betriebs in den derzeitigen Reaktoren erzeugt. Für zukünftige Reaktorkonzepte

```

iproblem summary
run terminated when 600000 particle histories were done.

neutron creation      tracks  weight      energy      neutron loss      tracks  weight      energy
                    (per source particle)                    (per source particle)
source               0      0.          0.          escape           8071   8.7746E-03  3.7230E-02
nucl. interaction    8423486 1.4039E+01  2.0908E+02  energy cutoff   0      0.          0.
particle decay      0      0.          0.          time cutoff     0      0.          0.
weight window      0      0.          0.          weight window   0      0.          0.
cell importance     0      0.          0.          cell importance 0      0.          0.
weight cutoff      0      8.9605E+00  9.1746E-01  weight cutoff   41516488 8.9598E+00  9.1725E-01
energy importance   0      0.          0.          energy importance 0      0.          0.
dxtran             0      0.          0.          dxtran          0      0.          0.
forced collisions   0      0.          0.          forced collisions 0      0.          0.
exp. transform     0      0.          0.          exp. transform  0      0.          0.
upscattering       0      0.          8.8484E-07  downscattering  0      0.          1.0823E+02
photonuclear       0      0.          0.          capture         0      4.1420E+01  6.4133E+00
(n,xn)             642953  9.6379E-01  1.4477E+00  loss to (n,xn)  312962  4.6797E-01  6.6111E+00
prompt fission     50187202 4.2613E+01  9.1798E+01  loss to fission 16292968 1.3753E+01  1.4562E+01
delayed fission    114921  9.6454E-02  4.7454E-02  nucl. interaction 1238073 2.0634E+00  1.6652E+02
particle decay     0      0.          0.          particle decay  0      0.          0.
tabular boundary   5219   8.6948E-03  1.5429E-01  tabular boundary 5219   8.6948E-03  1.5429E-01
tabular sampling   0      0.          0.          total           59373781 6.6682E+01  3.0344E+02
total             59373781 6.6682E+01  3.0344E+02

number of neutrons banked 42767851
neutron tracks per source particle 9.8956E+01
neutron collisions per source particle 8.3118E+03
total neutron collisions 4987051387
net multiplication 0.0000E+00 0.0000

average time of (shakes)
escape 6.2310E+06
capture 8.4530E+06
capture or escape 8.4525E+06
any termination 6.9624E+06

cutoffs
tco 1.0000E+34
eco 0.0000E+00
wc1 -5.0000E-01
wc2 -2.5000E-01

```

Abb. 3.4: Berechnung der Neutronen je Proton aus der *problem summary* in der MCNPX Ausgabedatei (relevanten Einträge sind grün markiert)

spielen die Spaltungsquerschnitte minorer Actiniden sowie Thorium und die Uranisotopenreihe $^{233-238}\text{U}$ eine wichtige Rolle. Diese werden mittels einer sogenannten *fission ionization chamber* (FIC) bei verfügbaren Massen von 10 bis 1000 mg gemessen. Der Messfehler von unter 5 % macht die Daten belast- und nutzbar für Verbesserungen an bestehenden Datenbibliotheken. Die energetischen Neutronen aus den Spallationsprozessen ermöglichen durch den hohen Fluss diese Genauigkeiten auch für das schnelle Spektrum. ^{232}Th wurde beispielsweise im Bereich von 10 keV bis 1 MeV vermessen, während für ^{233}U im epithermischen Bereich qualitative Verbesserungen (5 bis 10 %) in Form von höheren Spaltungsquerschnitten gegenüber den Datenbibliotheken ENDF/B-VII.0 und JEFF-3.1 aufgezeigt werden konnten [56]. Höhere Spaltungsquerschnitte sind ebenfalls bei ^{243}Am für Neutronenenergien über 10 MeV festzustellen [57].

In der zweiten Phase wurde die Neutronenflussstärke um das Hundertfache, die Kühlung des Spallationstargets und die Abschirmung der radioaktiven Stoffe von der Umgebung verbessert. Die Einfangquerschnitte für ^{238}U und ^{236}U sind geplant, während die Spaltungsquerschnitte für ^{240}Pu und ^{242}Pu gemessen werden sollen [58]. Ein weiterer Standort für Bestrahlungsexperimente ist Dubna. Dort wurde in dem *Energy plus Transmutation Design* die Transmutation von Transuranen und Iod untersucht [59].

Die aus den Experimenten gewonnenen Daten werden zur Nutzung aufgearbeitet. Aktuelle Datenbanken weisen für Spaltungsquerschnitte über 60,000 diskrete Werte auf. Dies wird unter anderem durch Interpolation zwischen gemessenen Wirkungsquerschnitten bei unterschiedlicher Energie erreicht [60, p.24f.]. Weiterhin sind die Wirkungsquerschnitte aus den Experimenten oft nur für die Temperatur bei der Messung (Raumtemperatur) verfügbar. Die Dopplerverbreiterung (Kapitel 2.3.2) macht eine Aufbereitung der Daten für die Nutzung zur kerntechnischen Simulation nötig.

Dies geschieht mit dem Programmpaket NJOY, welches aus bestehenden Datenbibliotheken die Wirkungsquerschnitte für eine bestimmte Temperatur berechnet. Die Bibliothek ENDF/B-VII.0 stellt bereits auf diese Weise aufbereitete Wirkungsquerschnitte für die Temperaturen 293 K, 600 K, 900 K, 1200 K und 2500 K bereit. Die Daten werden zur Anwendung durch MCNPX als ASCII-Bibliothek formatiert und zur Verfügung gestellt.

Die ENDF/B Bibliothek ist nicht die einzige Datenbibliothek. Gerade in Ländern mit einer langen Nutzung von Kernenergie haben sich Organisationen gebildet, die solche Datenbibliotheken zur Verfügung stellen. Darunter sind JENDL (Japan), JEFF (NEA Fission and Fusion File) und ENDF/B (United States und Kanada). Dabei findet ein Austausch zwischen den Organisationen statt, wie JEFF zeigt, die viele Wirkungsquerschnitte von ENDF/B in ihre Datenbank übernommen haben. Änderungen können durch neue experimentelle Daten, höhere Anforderungen der Nutzer oder Fehlerbehebungen hervorgerufen werden.

Eine Möglichkeit zur Fehlersuche bzw. Datenverbesserung ist die Validierungen der bereitgestellten Daten mit abgebrannten Brennstoffen [61, 62, 63]. Besonders die minoren Actiniden, die nur in geringem Maße während des Betriebs bei thermischen Reaktoren gebildet werden, weisen hohe Ungenauigkeiten auf. Im schnellen Spektrum beträgt die Ungenauigkeit für den Einfangquerschnitt bei ^{241}Am bis zu 40 % bei JENDL-3.3 [62]. Während bei neueren Versionen der Datenbanken bereits genauere Daten für den thermischen Bereich vorliegen [63], sind die Ungenauigkeiten im schnellen Spektrum nach wie vor hoch (Abbildung 3.5). Der Vergleich der auf diskreten Werten basierenden gängigen Bibliotheken (ENDF/B-VII, JEFF-3.1, JENDL-4) für schnelle Systeme wird genutzt, um dort Ungenauigkeiten zu identifizieren [61, 64, 65].

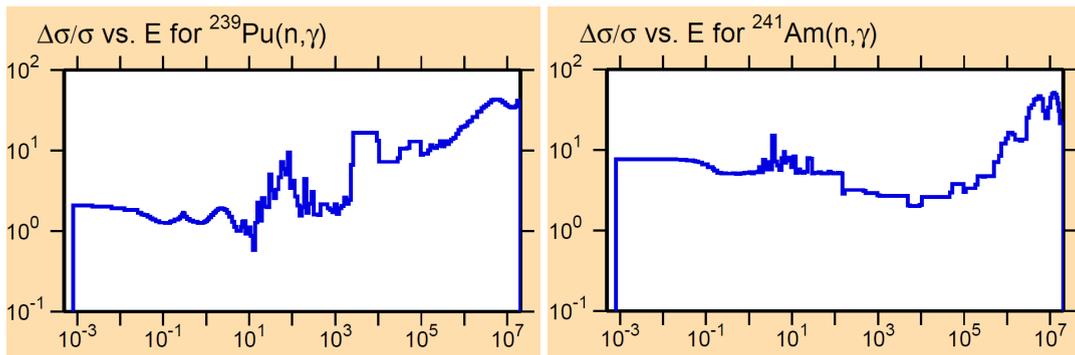


Abb. 3.5: Relative Fehler für Wirkungsquerschnitt bei (n,γ) -Reaktionen für ^{239}Pu und ^{241}Am aus der ENDF/B-VII.1

Speziell für eine Anwendung in einem ADS ist die Verbesserung der Daten wichtig, da die Wirkungsquerschnitte für hohe Neutronenenergien (> 1 MeV) eine große Ungenauigkeit aufweisen. Ab einer bestimmten Energie, meist bei 20 MeV, liegen keine experimentellen Daten mehr vor. MCNPX berechnet diese mittels des LAHET Code-System (LCS), welches den Transport und die Interaktion der Nukleonen mittels des Bertini/ISABEL-Modelles beschreibt. Dieses Modell basiert auf dem intra-nuclear cascade model (INC), welches in anderen Simulationsprogrammen wie Geant4 zur Simulationen von Hochenergieexperimenten genutzt wird. In MCNPX kann über die *phys-card* angegeben werden, bis zu welcher Energie die Interaktion mit diesem Modell und ab wann auf experimentell basierte Daten, wenn möglich, zurückgegriffen werden soll.

Die Untersuchung der Unsicherheiten für eine ADS-Anwendung wurde in [66] mittels Analyse der Kovarianz¹¹ durchgeführt und zeigt, dass neben den Spaltungs- und Einfangquerschnitten auch die Neutronenausbeute eine weitere Datengröße ist, die es zu verbessern gilt. Besonders die Isotope von Americium und Curium, die in einem thermischen Reaktor nur in geringen Mengen vorkommen, können in einem ADS einen wesentlichen Bestandteil des Brennstoffes darstellen. Die Ungenauigkeiten von inelastischer Streuung, Spaltung, parasitärem Einfang und Neutronenausbeute müssen deutlich (Faktor 3 bis 10) gesenkt werden, um Systemgrößen wie k_{eff} oder Abbrandverhalten ohne größeren systematischen Fehler simulieren zu können. Diese Ungenauigkeiten betreffen nicht nur die minoren Actinide, sondern auch Plutonium, welches als Neutronenquelle im Brennstoff verwendet wird.

Eine weitere physikalische Größe, die bei derzeit verwendeten Brennstoffkonzepten jedoch kaum eine Rolle spielt, ist der *branching ratio* von ²⁴¹Am. Anhand dieser Größe wird deutlich, dass neben genauen Daten auch die Kopplungsprogramme genau arbeiten müssen, um physikalische Effekte zu berücksichtigen. Hierauf wird in Kapitel 3.4 eingegangen.

Abschließend bleibt festzuhalten, dass nukleare Daten für die Simulationstechnik unerlässlich sind. Ungenauigkeiten in den Daten führen zu systematischen Fehlern, welche die Genauigkeit der simulierten Größen beeinflussen. Für ein Reaktordesign sind solche Fehlerquellen von Bedeutung, da beispielsweise durch einen real höheren Einfangsquerschnitt bei ²⁴¹Am mehr spaltbares Plutonium entsteht, was während des Betriebs zu einem höheren Multiplikationsfaktor führen würde als durch die Simulation prognostiziert. In dieser Arbeit geht es jedoch nicht darum ein Sicherheitsanalyse für ein Reaktor durchzuführen, sondern das Betriebs- und Transmutationsverhalten verschiedener Brennstoffe zu charakterisieren. Es gilt die Prozesse zu verstehen und nicht die Genauigkeit der Massenumsätze zu untersuchen.

In dieser Arbeit wurde die Datenbibliothek ENDF/B-VII.0 verwendet, die sich durch aufbereitete Querschnitte für unterschiedliche Temperaturen und einer hohen Auflösung des Resonanzbereiches für eine Vielzahl an Transuranen auszeichnet.

3.3 Abbrandberechnung

Die Materialveränderung für ein vorgegebenes Zeitintervall dt durch Bestrahlung mit Neutronen wird mit der gekoppelten Differenzialgleichung

$$\frac{dX_i}{dt} = \sum_{j=1}^N l_{ij} \lambda_j X_j + \phi \sum_{k=1}^N f_{ik} \sigma_k X_k - (\lambda_i + \phi \sigma_i + r_i) X_i + F_i \quad (3.1)$$

mit

X_i = Atomdichte des Nuklides i

N = Anzahl der Nuklide

l_{ij} = Anteil der Zerfallsprozesse des Nuklides j , die zum Nuklid i führen

λ_j = Zerfallskonstante des Nuklides j

ϕ = Neutronenfluss

¹¹Fehlergraphen und Kovarianzmatrizen zu einzelnen Reaktionen für die jeweiligen Elementen sind auf der Homepage <http://www.nndc.bnl.gov/endl/b7.1/covariances.html> zu finden

f_{ik} = Anteil der Neutronenabsorption anderer Nuklide k , die zur Erzeugung des Nuklides i führen

σ_k = Spektralgemittelter Wirkungsquerschnitt für Nuklid k

r_i = Kontinuierliche Entnahme des Nuklides i

F_i = Kontinuierliche Einspeisung des Nuklides i

beschrieben. Der erste Term auf der rechten Seite beschreibt die Zerfälle des Nuklids j , welches mit der Zerfallskonstante λ_j zum Nuklid i zerfällt. Dies können mehrere Isotope sein, wie an ^{237}Np gezeigt, welches durch den Zerfall von ^{241}Am und ^{237}Pu entstehen kann. Der zweite Term gibt den Aufbau des Nuklids i durch Neutroneneinfang an. Dieser Prozess ist abhängig vom spektralgemittelten Wirkungsquerschnitt σ_k und dem Anteil f_{ik} für diesen. Der dritte Term repräsentiert die Vorgänge, die zur Reduktion des Nuklids i führen. Diese sind der Zerfall des Nuklids selbst, der Neutroneneinfang, welcher zum Aufbau eines höheren Nuklids oder zur Spaltung führt, und die Entnahme aus dem System. Der letzte Term F_i steht für die mögliche kontinuierliche Einspeisung des Nuklids. Dieser Term wird beispielsweise bei Zerfallsrechnungen von abgebrannten Brennelementen benötigt, um die stetige Zufuhr von neuen Brennelementen durch den Betrieb zu berücksichtigen.

MCNPX liefert für Gleichung (3.1) die Wirkungsquerschnitte, die nach jedem Zeitschritt neu berechnet werden. Der Neutronenfluss wird zudem für die Zeitspanne dt als konstant angenommen. Die Gleichung kann mit diesen Annahmen sowie mit $r_i = F_i = 0$ als homogenes System von gewöhnlichen Differenzialgleichungen erster Ordnung mit konstanten Koeffizienten betrachtet werden [67]. Diese können dann in der Matrixnotation wie folgt geschrieben werden

$$\dot{X} = AX. \quad (3.2)$$

Die Matrix X beinhaltet über 1700 Nuklide, die sich in 130 Actinide, 850 Spaltprodukte und 720 Aktivierungsprodukte unterteilen [53, p.336] und hat daher die Dimension 1700×1700 , deren Einträge zumeist jedoch Null sind. A ist eine Transformationsmatrix, welche die zeitliche Änderung der Nuklidvektoren beschreibt. Die Lösung dieser Gleichung lautet

$$X(t) = e^{At} X(0) \quad (3.3)$$

und beschreibt die zeitliche Veränderung der Nuklidkonzentration X zum Zeitpunkt 0 nach t . Zur Lösung dieser Gleichung wird ein mehrstufiges Verfahren angewendet. Zuerst werden die Nuklide in zwei Gruppen (lang- und kurzlebige) eingeteilt. Die Unterteilung erfolgt über die *Removal Halbwertszeit*. Die Removal Halbwertszeit besteht aus der klassischen Halbwertszeit für den Zerfall sowie flussinduzierter Effekte - beispielsweise Neutroneneinfang -, die für den zu berechnenden Zeitschritt die Lebensdauer verkürzen. Das Nuklid gilt als kurzlebige, wenn die Removal Halbwertszeit weniger als ein Zehntel des zu berechnenden Zeitschrittes beträgt [30, 53].

Diese Unterteilung dient dazu, die Einträge in X zu verringern und somit die Dimension und die Komplexität der Matrix zu reduzieren. Es verbleiben nur Einträge für langlebige Nuklide und die Gleichung (3.3) kann mittels der Matrixexponentialmethode gelöst werden, während die Konzentration der kurzlebigen Nuklide durch den Gebrauch analytischer Verfahren (Bateman und Gauss-Seidel) berechnet werden. Nuklide, die zu Beginn der Berechnung vorhanden sind, werden mit der allgemeinen Form der Batemangleichung beschrieben. Kurzlebige Nuklide mit einem langlebigen Vorgänger können unter der Annahme eines Gleichgewichtszustandes ($\dot{x} = 0$) mit einem vereinfachten Gauß-Seidel-Algorithmus berechnet werden [30].

Das in Fortran geschriebene Programm ORIGEN2.2 [20] löst die gekoppelte Differentialgleichung unter Verwendung der beschriebenen Algorithmen und den Informationen über die physikalischen

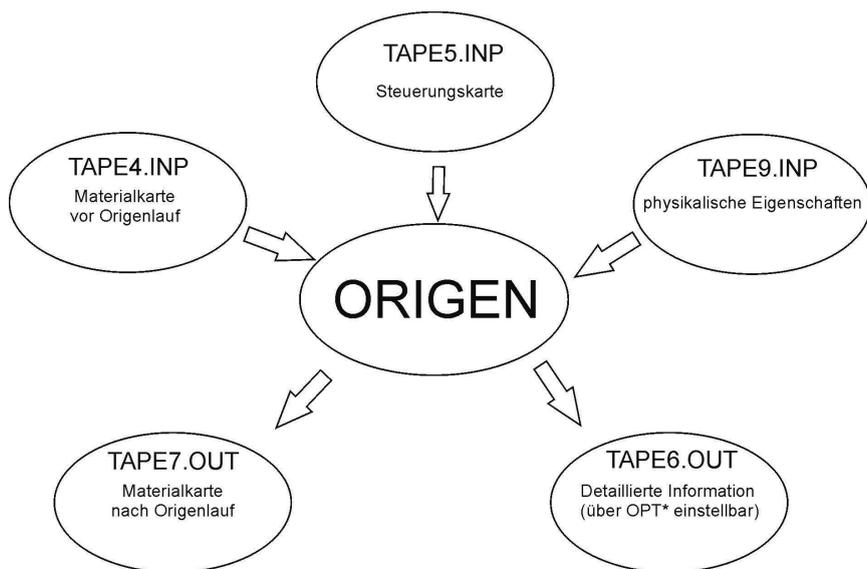


Abb. 3.6: Darstellung der wichtigsten Ein- und Ausgabedateien für ORIGIN

Größen wie Zerfallskanäle, Reaktionswahrscheinlichkeiten und freigesetzte Energie.

Die zu der Berechnung benötigten Eingaben werden über sogenannte *TAPE* Dateien dem Programm zur Verfügung gestellt (Abbildung 3.6). Die isotopenaufgelöste Materialzusammensetzung vor der Abbrandberechnung ist in der *TAPE4.INP* Datei hinterlegt. Es wird zwischen drei Gruppen unterschieden: Actinide, Spalt- und Aktivierungsprodukte. Die Wirkungsquerschnitte und die radioaktiven Zerfallskanäle und Halbwertszeiten für die Isotope sind in der *TAPE9.INP* abgelegt. Die Wirkungsquerschnitte sind dabei makroskopische Eingruppenquerschnitte und umfassen für die Actinide neben der (n,γ) - und (n,f) - auch $(n,2n)$ - und $(n,3n)$ -Reaktionen. Die Verwendung der über die Dateien zur Verfügung gestellten Daten erfolgt über die *TAPE5.INP*. Diese enthält die Abbrandschritte und jeweilige Dauer sowie die zu erzeugende Leistung bzw. den konstanten Neutronenfluss. Der Neutronenfluss besitzt keine Energieverteilung. Diese Information ist bei der Erstellung der Eingruppenquerschnitte bereits verwendet worden. Die Steuerkarte regelt neben der Abbrandhistorie auch die zu verwendenden Bibliotheken und den Umfang der Ausgabe. Neben der *TAPE7.OUT*, die die neue Materialzusammensetzung enthält, können in der *TAPE6.OUT* weitere Angaben zu den Isotopen wie Aktivität, Nachzerfallswärme, Gewicht oder spontane Spaltungen ausgeschrieben werden.

3.4 Kopplungsprogramme

Die beiden Programme ORIGIN und MCNPX benötigen Informationen vom jeweils anderen Programm, um die zeitliche Entwicklung in einem Reaktor beschreiben zu können. Den Informationsaustausch übernehmen Kopplungsprogramme wie MCBURN [30] und VESTA [68]. Diese Aufgabe ist sehr anspruchsvoll, da gerade bei innovativen Reaktor- und Brennstoffkonzepten eine Vielzahl an Informationen verarbeitet und richtig weitergegeben werden müssen. Dies wird anhand der

Berechnung des makroskopischen Wirkungsquerschnitts und der Handhabung der metastabilen Zustände bei Americium für beide Programme untersucht und anschließend wird auf die Unterschiede eingegangen. Weiterhin werden für VESTA die unterschiedlichen Berechnungsmethoden vorgestellt.

MCBurn ist ein Kopplungsprogramm, welches für LWR-Berechnungen entworfen wurde. Es bestimmt über Tallies die Reaktionsrate für die wichtigsten Spaltprodukte und die schweren Elemente, sowie die in der Materialkarte enthaltenen Isotope. VESTA stellt diese Art der Berechnung ebenfalls zur Verfügung und bietet alternativ ein weiteres, schnelleres Verfahren zur Bestimmung des makroskopischen Wirkungsquerschnittes an, welches nach dem Vergleich der beiden Programme vorgestellt wird.

Beide Programme stellen über die Reaktionsraten dem Abbrandprogramm ORIGEN die nötigen Wirkungsquerschnitte und Flussverteilungen zur Verfügung. Die makroskopischen Wirkungsquerschnitte werden in MCBurn in einem Brennelement mit reflektierenden Randbedingungen berechnet. Dies ist bei LWR Geometrie mit Wasser als Moderator ein gutes Verfahren, um nicht den gesamten Kern simulieren zu müssen.

Bei einem ADS ist dieses Verfahren nicht möglich. Die reflektierenden Randbedingungen führen zu einem überkritischen System, in dem die Spallationsneutronen keine Rolle mehr spielen. Dadurch wird das Energiespektrum nur mit den Spaltneutronen simuliert und liefert nicht die Wirkungsquerschnitte, die in einem unterkritischen Reaktor anzutreffen wären.

Um den Fehler, der durch die Vernachlässigung der Spallationsneutronen bei MCBurn entsteht, für unterkritische Systeme besser zu verstehen, wird das Neutronenspektrum in MCNPX mit KCODE und NPS Einstellung berechnet. Bei KCODE rechnet MCNPX nur mit den Spaltneutronen, da die Quellneutronen lediglich bei dem ersten Zyklus berücksichtigt werden. NPS steht für die Berechnung mittels Quellteilchen. Diese sind bei den anfänglichen Berechnungen durch ein Neutronenspektrum mittels SDEF-Karte vorgegeben, welches eine Energieverteilung der Spallationsneutronen darstellt.

In beiden Modi wurden die Spalt- und Einfangwahrscheinlichkeiten berechnet und miteinander verglichen (Tabelle 3.1). Für beinahe alle Isotope zeigen sich Unterschiede bei den Wahrscheinlichkeiten, da das Energiespektrum der Spallationsneutronen härter ist. Dies zeigt, dass die Verwendung des Programmes MCBurn nicht für unterkritische Anlagen geeignet ist, da es das ermittelte Neutronenspektrum aus einer NPS-Simulation bei einer KCODE-Simulation nicht übernimmt.

Die Wirkungsquerschnitte mussten aus diesem Grund bei MCBurn über einen Zwischenschritt bestimmt werden. In diesem wurde das Energiespektrum der Neutronen mit einer separaten MCNPX Simulation bestimmt, um es als Quellspektrum für die Wirkungsquerschnittsberechnung zu benutzen. Dies ist mit hohem Arbeitsaufwand verbunden und fehleranfällig, während solche Handgriffe bei VESTA nicht nötig sind. Das verwendete Brennelement wurde für die Wirkungsquerschnittsberechnung vollständig entfernt. Allein ein Stab mit enthaltenen Tallies für die Bestimmung der Reaktionsraten wurde modelliert. MCBurn fungiert mit dieser Einstellung somit nur noch als einfacher TAPE9-Creator ohne Abbrandsschritte selber auszuführen.

Beide Programme nutzen das durch Tallies erzeugte Energiespektrum zur Berechnung der makroskopischen Wirkungsquerschnitte. Wird dasselbe Energiespektrum verwendet, ergeben sich dennoch kleine Unterschiede, die im Folgenden näher erklärt werden sollen.

Tabelle 3.1: Generierte Wirkungsquerschnitte für (n, γ)- und (n,f)-Reaktionen im KCODE und NPS Modus

ZAID	(n, γ)		(n,f)	
	KCODE	NPS	KCODE	NPS
922350	20.76 %	19.98 %	79.16 %	79.57 %
922380	81.89 %	73.35 %	17.50 %	23.27 %
932370	75.72 %	71.66 %	24.26 %	28.01 %
942380	34.40 %	31.71 %	65.57 %	67.52 %
942390	18.68 %	17.33 %	81.30 %	82.40 %
942400	47.21 %	42.91 %	52.76 %	56.68 %
942410	13.89 %	13.38 %	86.00 %	86.32 %
942420	52.27 %	46.43 %	47.61 %	52.50 %
952410	69.46 %	66.01 %	15.94 %	18.96 %
952421	11.99 %	11.51 %	87.98 %	88.37 %
952430	50.88 %	47.81 %	10.75 %	13.07 %
962440	53.00 %	48.33 %	46.99 %	51.46 %
962450	15.33 %	14.73 %	84.65 %	85.14 %

MCBurn wurde unter MCNP5 entwickelt. In diesem Programm ist es nicht ohne weiteres möglich, die Wirkungsquerschnitte für metastabile Zustände zu übergeben. Eine Anpassung, die im Rahmen der Berechnungen für AGATE erfolgte, wurde für den fehlenden Zustand ^{242m}Am derselbe Wirkungsquerschnitt wie für ^{242}Am angenommen. Ursprünglich war keine Berechnung durch eine Tally vorhanden und der Wirkungsquerschnitt wurde aus der übergebenen Origenbibliothek übernommen. Die Genauigkeit war damit von der Wahl der Bibliothek abhängig und vom eigentlich zu berechnenden System entkoppelt. ^{242m}Am ist durch seine wesentlich längere Halbwertszeit im Vergleich zum Grundzustand das langlebigere Isotop, weshalb Datenbanken diesen Zustand als Grundzustand deklarieren. Eine Abweichung ist deswegen nicht beim metastabilen sondern beim Grundzustand (siehe Tabelle 3.2) anzutreffen, da MCBurn den Wirkungsquerschnitt für den metastabilen Zustand benutzt, während VESTA die für das Isotop richtigen verwendet.

Bei ^{244}Am wird der metastabile Zustand nicht wie bei ^{241}Am mit den Daten für den Grundzustand berechnet. Das Resultat hat eine deutliche Abweichung, da für die verwendete Bibliothek die Spaltwahrscheinlichkeit 100 % beträgt, während bei VESTA der Wert 81 % berechnet wird. Diese Abweichung wirkt sich jedoch nicht maßgeblich auf die Abbrandberechnungen aus, da ^{244}Am ein sehr kurzlebiges Nuklid ist.

Neben den Abweichungen durch die metastabilen Zustände beim Americium, kann sich bei hohem Americiumanteil im Brennstoff eine weitere durch den *branching ratio* ergeben. Dieser gibt an, ob ein Übergang von ^{241}Am nach ^{242}Am (n, γ) oder ^{242m}Am (n, γ_{meta}) stattfindet. Die Wahrscheinlichkeit hierfür wird in der ORIGEN Tape9er-lib durch einen separaten Wirkungsquerschnitt angegeben. MCBurn aktualisiert diesen Wert jedoch nicht, weshalb das Verhältnis sich unkontrolliert ändern kann. VESTA aktualisiert den Wert dahingehend, dass dieser über die Abbrandperiode konstant bleibt. Da sich das Energiespektrum mit dem Abbrand ändert, ist auch diese Methodik fehlerbehaftet, wie im Bericht [69] zu lesen ist. Der Übergang in den metastabilen Zustand oder in höhere angeregte Zustände findet nur bei einer diskreten Energie statt. Eine neuere Ver-

Tabelle 3.2: Reaktionswahrscheinlichkeit für (n, γ) und (n,f) aus MCBurn und VESTA Berechnungen bei Verwendung desselben Energiespektrums

ZAID	(n, γ)		(n,f)	
	MCBurn	VESTA	MCBurn	VESTA
922350	20.08 %	20.12 %	79.65 %	79.61 %
922380	76.10 %	76.38 %	21.15 %	20.86 %
932370	72.39 %	72.44 %	27.46 %	27.41 %
942380	32.24 %	32.25 %	67.47 %	67.45 %
942390	17.32 %	17.44 %	82.57 %	82.46 %
942400	43.09 %	43.25 %	56.67 %	56.51 %
942410	13.40 %	13.41 %	86.35 %	86.34 %
942420	47.50 %	47.57 %	51.89 %	51.81 %
942440	31.14 %	31.42 %	66.99 %	66.73 %
952410	78.36 %	78.38 %	21.57 %	21.55 %
952420	11.58 %	9.97 %	88.34 %	89.94 %
952421	11.58 %	11.57 %	88.34 %	88.35 %
952430	79.35 %	79.42 %	20.46 %	20.38 %
952440	20.47 %	20.50 %	79.29 %	79.27 %
952441	0.00 %	19.18 %	100.00 %	80.58 %

sion von VESTA soll diesen physikalischen Prozess berücksichtigen und das Verhältnis in jedem Abbrandschritt neu berechnen. Der Grundzustand zerfällt mit einer Halbwertszeit von 16 h mit einer Wahrscheinlichkeit von 83 % in Curium, welches mit einer Halbwertszeit von 163 Tagen in Plutonium zerfällt. Diese Zerfallskette hat einen stabilisierenden Effekt auf die Reaktivität. Eine Abweichung des branching ratios beeinflusst damit nicht nur die Transmutationsrate, sondern direkt den Multiplikationsfaktor k_{eff} .

Die Unterschiede in den Wirkungsquerschnitten wirken sich auf die Massenentwicklung während eines Abbrandschrittes maßgeblich aus. Die für AGATE berechnete Massenentwicklungsabweichung für MOX-Brennstoff ist in Tabelle 3.3 zu sehen. Der Massenumsatz für 360 Betriebstage und 1080 Betriebstage ist für die schweren Nuklide aufgeführt. Bei kleinerem Massenumsatz ergeben sich enorme Fehler (z.B. ^{242}Pu). Die Abweichungen beziehen sich auf die Umsätze bei VESTA, d.h. negative Werte zeigen einen geringeren Umsatz für MCBurn Berechnungen. Ein positiver Wert bedeutet folglich einen höheren Umsatz. Dieser ist besonders bei ^{243}Am und Curium festzustellen. Die Unterschiede zwischen beiden Ergebnissen werden dadurch weiter verstärkt, dass VESTA die Wirkungsquerschnitte nach einem Abbrandschritt neu berechnet und der Neutronenfluss neu bestimmt wird, während bei der Nutzung von MCBurn die Wirkungsquerschnitte aufgrund des manuellen Arbeitsaufwandes nicht angepasst werden und der Neutronenfluss konstant bleibt. Der Abbrand ändert sich dadurch ebenfalls und beträgt für MCBurn 30.55 MWd/kg und VESTA 31.70 MWd/kg.

Es bleibt festzuhalten, dass VESTA die Kopplung zwischen MCNPX und ORIGEN sehr gut löst und selbst Randaspekte, wie die sich ändernden branching ratio, mit einbezieht.

Die Steuerung des Programmes erfolgt über Befehle, die in der MCNPX-Eingabedatei zu Beginn angehängt werden. Dort werden die zu verwendenden Datenbank, die Brennstofftemperatur, die

Tabelle 3.3: Massenumsatz für einen MOX Stab in einer ADS-Anlage. Berechnung für zwei Zeitschritte mit MCBurn und VESTA

Nuklid	Massenumsatz [g] nach 360 Tagen			Massenumsatz [g] nach 1080 Tagen		
	MCBurn	Vesta	rel. Abw.	MCBurn	Vesta	rel. Abw.
U235	-1.52E-01	-1.58E-01	-3.55 %	-4.26E-01	-4.50E-01	-5.50 %
U238	-3.44E+00	-3.18E+00	8.18 %	-9.89E+00	-9.65E+00	2.52 %
Np237	1.85E-02	2.81E-02	-34.15 %	7.64E-02	1.18E-01	-35.16 %
Pu238	-1.25E-01	-1.24E-01	0.57 %	-3.47E-01	-3.63E-01	-4.34 %
Pu239	-1.77E-01	-2.69E-01	-34.29 %	-5.93E-01	-8.98E-01	-34.02 %
Pu240	2.98E-02	6.25E-02	-52.37 %	7.58E-02	1.34E-01	-43.29 %
Pu241	-1.18E+00	-1.18E+00	-0.15 %	-4.68E+00	-4.69E+00	-0.33 %
Pu242	-4.84E-04	9.95E-03	-104.87 %	-2.71E-02	-1.16E-02	132.91 %
Am241	5.70E-01	5.72E-01	-0.41 %	2.97E+00	2.98E+00	-0.29 %
Am242	2.90E-03	2.94E-03	-1.22 %	2.22E-02	2.27E-02	-2.46 %
Am243	6.09E-02	6.46E-02	-5.82 %	1.73E-01	2.29E-04	75371.75 %
Cm242	6.22E-03	5.33E-03	16.65 %	5.87E-05	5.94E-05	-1.22 %
Cm243	1.95E-05	1.86E-05	4.78 %	2.33E-04	2.29E-04	1.72 %
Cm244	2.17E-03	1.40E-03	55.24 %	1.49E-02	1.00E-02	48.90 %
Cm245	1.36E-05	9.57E-06	41.79 %	3.45E-04	2.56E-04	35.00 %

Abbrandzonen und Abbrandschritte eingegeben. Die Abbrandschritte können durch unterschiedliche Verfahren berechnet werden, auf die im Folgenden eingegangen wird.

VESTA bietet mit der "multi-group binning" Methode [68, p62ff.] zur Bestimmung der Wirkungsquerschnitte ein alternatives Verfahren zur Tally-Nutzung in MCNPX, in dem die Häufigkeit einer Reaktion bestimmt wird. Bei diesem Verfahren wird das Neutronenspektrum während eines MCNPX-Laufes über eine Tally bestimmt und anschließend dieses Spektrum genutzt, um die Wirkungsquerschnitte für die relevanten Isotope zu berechnen. Die Methode hat den Vorteil, dass nur eine Tally gebraucht wird, statt für jedes Nuklid die Reaktionsrate mittels einer eigenen Tally bestimmen zu müssen. Dies reduziert die Rechenzeit um bis zu eine Größenordnung. Zudem bietet diese Methode die Möglichkeit Neutronen mit einer Energie über 20 MeV zu berücksichtigen. Dabei werden Neutronen, die eine höhere Energie besitzen als Daten verfügbar sind, mit dem Wert für die größte Energie aus der Datenbank berücksichtigt. Die Berechnung über die Reaktionsrate berücksichtigt solche Neutronen nicht, da die Tallies keine modellbasierten Teilchen in die Statistik mit einbeziehen.

VESTA bietet neben dieser Berechnungsmethode eine weitere Option um die Abbrandberechnung zu verbessern. Die Wirkungsquerschnitte werden für einen Abbrandschritt nicht als konstant angenommen, sondern der sich ändernden Materialkarte angepasst. Dabei kann zwischen der *CORRECTOR* und *MIDDLESTEP* Option gewählt werden. Das *CORRECTOR*-Verfahren berechnet die Wirkungsquerschnitte einmal für die Startkonfiguration und berechnet aus der entstehenden Materialkarte nochmals die Wirkungsquerschnitte. Der Abbrandschritt wird mit diesen Wirkungsquerschnitten ebenfalls berechnet und das Ergebnis beider Berechnungen gemittelt. Es dient für den nächsten Abbrandschritt als Startkonfiguration. Das *MIDDLESTEP*-Verfahren teilt einen Abbrandschritt in der Hälfte und berechnet die Wirkungsquerschnitte wie gewohnt. Die Halbierung der Abbranddauer erweist sich aus mathematischer Sicht als ein effektives Verfahren um die Ge-

nauigkeit zu verbessern, da der Fehler der Abbranddauer mit der 1. Ordnung eingeht. VESTA organisiert die Datenkopplung zwischen der Abbrandrechnung in ORIGEN und der Neutroniksimulation in MCNPX und bietet dabei verschiedene Optionen, um die Berechnungen zu verbessern oder zu beschleunigen. Ein Nachteil des Programmes ist der hohe Arbeitsspeicherbedarf, der jedoch in der nächsten Version reduziert werden soll.

3.5 Endlagerrelevante Größen

Die aus dem Transmutationsprozess resultierende neue Nuklidzusammensetzung wird mittels ORIGEN über Endlagerzeiträume von mehreren Millionen Jahren berechnet. Zur Beurteilung von P&T ist die Massenabnahme nur eingeschränkt aussagekräftig, da das von der verbleibenden Masse ausgehende Gefährdungspotential und Nachzerfallswärme, welche das umgebende Wirtsgestein in seiner Funktion als Abschirmung und Schutz vor Wasser schwächen kann, nicht zwangsläufig im selben Maße abnimmt. Diese Größen werden mit einem für diese Arbeit in C++ entwickelten Programm namens WASTE-Modul (**W**ärme **A**ktivität **S**ievert **T**oxizität **E**ntwicklung) bestimmt, welches aus einer beliebigen Materialkarte die Aktivität, Nachzerfallswärme und Radiotoxizität für Säuglinge und Erwachsene berechnen kann. Diese Größen sollen ergänzend zu der reinen Massenreduktion die Frage klären, welchen Beitrag P&T im Hinblick auf die Endlagerung leisten kann. Das Modul ist so konzipiert, dass es über eine Interfaceklasse in jedes andere Programm leicht eingebunden werden kann.

Das WASTE-Modul nutzt die nuklearen Daten aus der ENDF-VII.0 Datenbank, in der neben der Halbwertszeit zur Aktivitätsberechnung auch die Energiebilanz enthalten ist. Dort sind alle Zerfallsteilchen aufgeführt und die mittlere Energie ist für jedes Zerfallsteilchen aufgetragen. Das Programm liest sämtliche Energien ein. Es ist damit prinzipiell möglich, die Energiefreisetzung durch einen bestimmten Zerfallsprozess (z.B. Gammaheating) zu bestimmen. Für die Endlagerbetrachtung wird die Summe $Q_{effective}$ benutzt. Die Abweichung vom theoretischen Wert wird ebenfalls in Form eines relativen Fehlers festgehalten. Die Neutrinoenergie, die in der Summe enthalten ist, wird aufgrund der extrem geringen Wechselwirkung mit der Erdmaterie nicht berücksichtigt. Die ENDF-Datenbank enthält keine Angaben zur Radiotoxizität, weshalb diese Daten aus der Safety Series 115 (SSE 115) bezogen werden. In dieser sind sowohl die Werte für Ingestion als auch Inhalation aus der ICRP72¹² enthalten. Bei Ingestion wird zwischen mehreren Altersstufen bis hin zum 18. Lebensjahr unterschieden. Diese Vielfalt ist für die Anwendung nicht notwendig. Es wurden daher die Werte für Säuglinge und Erwachsene genommen. Alle eingelesenen Daten werden als csv-Datei abgelegt, um jedem Nutzer einen einfachen Zugang zu den Daten zu ermöglichen.

¹²International Commission on radiological Protection

4 Modellentwicklung

Zur Untersuchung verschiedener Brennstoffkonzepte und deren Einfluss auf Reaktorparameter wird ein Modell des Transmutationssystems erstellt. Dieses Modell muss alle neutronenphysikalischen Komponenten enthalten. Bei der Wahl und Ausarbeitung dieser Komponenten wird auf umfangreiche Forschungen auf diesem Gebiet zurückgegriffen. Diese umfassen vor allem die Untersuchungen zu Brennstoffkonzepten, Wahl des Kühlmittels und der Materialien für Reaktorkomponenten (Reflektor, Cladding, Target), die im Abschnitt 4.1 zusammengefasst sind. Aus dieser Literaturrecherche wird anschließend in Abschnitt 4.2 die Geometrie und Materialwahl für das eigene Modell AGATE getroffen. Die wichtigsten Systemparameter und Geometriestrukturen werden kurz dargestellt und die Interaktion von Brennstoffzone und Spallationstarget untersucht.

4.1 Literaturrecherche

Brennstoffvarianten

Die abgebrannten Brennelemente aus den derzeit benutzten Reaktoren bestimmen den Brennstoffvektor für ein ADS. Dabei werden je nach Studie nur UOX-Brennstoff, MOX-Brennstoff oder eine Mischung beider Brennstofftypen berücksichtigt. Zudem werden unterschiedliche Abbrände und Abklingzeiten angenommen. Diese reichen von 33 MWd/kg_{HM} bis 60 MWd/kg_{HM} bzw. 5 Jahren bis 40 Jahren. Der Elementvektor wird durch diese Parameter bestimmt, während das Mischungsverhältnis des Brennstoffs, wie das Verhältnis von Plutonium zu minoreren Actiniden variabel ist. Bei Transmutation von Americium kommt es aufgrund des Zerfalls von ²⁴²Cm zur verstärkten Heliumfreisetzung. Dies sorgt für ein Anschwellen des Brennstoffs. Daher sind die Brennstoffe mit einer geringeren Dichte hergestellt, um die Spalt- und Zerfallsgase zurückzuhalten und einem Anschwellen entgegenzuwirken. Sie beträgt 70 bis 80 % der theoretischen Dichte (*TD*).

Eine weitere Größe ist das Mischungsverhältnis von MA zu Plutonium oder Uran. Das Verhältnis aus einem LWR beträgt in Abhängigkeit vom Abbrand etwa 1/100 für Pu/U und 1/1000 für MA/U. Für kritische Anlagen ist die Anreicherung der MA bei homogenen Brennstoffkonzepten aufgrund der Sicherheitseigenschaften für Dopplerkoeffizient und verzögerte Neutronen auf 2 bis 5 % beschränkt [32]. Aus diesem Grund sehen Brennstoffkonzepte in kritischen Systemen neben der homogenen Beladung Brennstoffkonzepte mit stark angereichertem (> 10 %) MA-Anteil nur an den Rändern des Kerns vor. Dort werden hohe Transmutationsraten für die eingesetzten MA erzielt und die Masse in Summe abgebaut [70, 71].

Die Transmutationsrate für einen Natrium Fast Breeder Reactor (SFBR) liegt für MA reduzierend ausgelegte Anlagen bei 12 kg/TW_eh (entspricht -290 g MWd/kg_{HM}). Die MA-Produktion in einem Druckwasserreaktor (DWR) beträgt zum Vergleich für UOX-Brennstoff 3.2 kg/TW_eh bzw. 22.5 kg/TW_eh für MOX-Brennstoff.

Die Wahl der Brennstoffzusammensetzung ist zielorientiert. Wird eine fortwährende Nutzung in schnellen Systemen erwogen, ist eine ausgeglichene Bilanz bei den MA für den Betrieb ausreichend, welches sich mit Anreicherungsgraden von 3 bis 5 % realisieren lässt. Ist die Vernichtung der MA die Vorgabe, sind Brennstoffkonzepte zu wählen, die in kritischen Anlagen nur heterogen am Rand mit Anreicherungen von 20 % genutzt werden können oder in einem ADS einen MA-Anteil bis 65 % zulassen [72].

Die Vernichtung von langlebigen Spaltprodukten (^{99}Tc , ^{129}I) kann ebenfalls in einem schnellen Reaktor realisiert werden, da auch diese Isotope für die Endlagersicherheit relevant sind [7]. Diese werden dafür nicht homogen im Kern verteilt, sondern am Rand positioniert. Das weichere Neutronenspektrum erhöht die Neutroneneinfangwahrscheinlichkeit bei weiterhin hohem Neutronenfluss. Der Einfang führt meist zu einem oder mehreren β -Zerfällen die in einem stabilen Kern enden.

Strukturmaterialien

Der mögliche hohe Anteil an MA im Brennstoff bei einem ADS stellt hohe Anforderungen an die Trägermatrix, in der dieser eingebettet ist, und an das Cladding. Beide Materialien müssen gute thermische Eigenschaften aufweisen und den hohen Neutronenflüssen und -energien im schnellen Spektrum widerstehen können ohne dabei hoch radioaktive Produkte zu bilden.

Durch das starke Aufquellen von austenitischem Stahl wird ferritischer Stahl als Claddingmaterial untersucht. Eine vielversprechende Legierung stellt HT9 dar [7, 73]. Aus der Fusionsforschung, die ähnliche Anforderungen an die plasmanahen Strukturmaterialien stellt, sind lediglich 8 Elemente (C, Si, V, Cr, Fe, Y, Ta, W) aufgeführt, die zu keiner hohen Aktivierung führen [74]. Weitere Claddingmaterialien sind daher Stahllegierungen (T91) [75] und SiC-Materialien [32, 76].

Die Trägermatrix hat die Aufgabe, die thermischen Eigenschaften wie Schmelzpunkt, Wärmeleitfähigkeit oder Stabilität bei hohen Temperaturen zu verbessern.

Im 6. Framework Programm (FP) wurden im EUROTRANS-Programm unter der Domain (AFTRA) mögliche Brennstoffkonzepte untersucht. Molybdän ist als Trägermaterial bei CERMET-Brennstoff (keramisch-metallisch) vorgesehen [77], während für CERCER-Brennstoff (keramisch-keramisch) Magnesiumoxid als Backup-Lösung verwendet wird [78]. Molybdän wird auf 93 % mit ^{92}Mo angereichert, um die Neutronenabsorption zu minimieren. Eine Alternative zu diesem Verfahren ist die Mischung von schweren und leichten Isotopen von Molybdän, da nur die mittlere Massenzahlen ($A=95-97$) ungünstige Absorptionsquerschnitte aufweisen [79]. Diese Anreicherungs-schritte machen diesen Brennstoff sehr kostenintensiv.

Im Gegensatz zu Molybdän ist Magnesiumoxid günstiger in der Herstellung und hat eine spezifisch bessere Transmutationsrate für minoren Actiniden [80]. Neben diesen beiden Trägerkonzepten sind noch Kohlenstoff- und Nitridverbindungen zu nennen, die beim Blei nicht vorrangig verfolgt werden, beim Gas Cooled Fast Reactor (GCFR) jedoch sowohl als Trägermaterial ((U,Pu)C), als auch Cladding (SiC) und Reflektor (SiC, Zr_3Si_2) genutzt werden.

Auslegungskonzepte

Es existiert eine Vielzahl von Reaktorkonzepten und entsprechenden Designs. Für diese Arbeit sind vorzugsweise solche, bei denen es sich um mit Helium gekühlte Anlagen handelt, von Interesse. Allgemeinen Anforderungen können zum Teil mit anderen Kühlkonzepten beantwortet werden.

Das mit Helium gekühlte eXperimental Accelerator Driven System (XADS) besitzt eine nominale Leistung von 80 MW_{th} und einen Multiplikationsfaktor k_{eff} von 0.97. Bei dem Brennstoff handelt es sich um MOX-Brennstoff mit einem Plutoniumanteil von 35 %. Der zylindrische Brennstab weist im Inneren einen kleineren hohlen Zylinder auf. Dies dient der Reduzierung der maximalen Brennstofftemperatur. Das 0.5 mm dicke Cladding besitzt aufgrund des großen Brennstabradius

von 5.75 mm eine große Oberfläche für die Wärmeabgabe. Das Helium strömt bei einem Druck von 60 bar und einer Temperatur von 200 °C in den Kern ein und verlässt den Kern mit einer durchschnittlichen Temperatur von 450 °C. Die Flussrate ergibt sich aus der Strömungsgeschwindigkeit und der Kühlmitteldichte trotz der geringen Dichte zu 62 kg/s.

Ein weiteres Testkonzept ist MYRRHA als 50 MW_{th}-Anlage [81]. Dabei wurde Magnesiumoxid als Trägermaterial und die Brennstoffzusammensetzung mit (Pu_{0.4} – Am_{0.5} – Cm_{0.1}) für die MA-Brennelemente gewählt. Die restlichen Brennelemente bestehen aus MOX-Brennstoff. Am Rand des Reaktors sind langlebige Spaltprodukte (LLFP) eingesetzt. Neben der Brennstoffzusammensetzung und Anordnung der Brennelemente um das Blei-Wismut-Mischung-Spallationstarget (LBE-Spallationstarget) ist eine isopenbasierte Massenbilanz für Transurane und die zeitliche Entwicklung für Pu, Am und Cm angegeben. Die Resultate dienen als Vergleich zu den in dieser Arbeit durchgeführten Berechnungen.

Die Leistungskonzepte des kritischen Reaktors GCFR [76] und des ADS EFIT weisen umfangreiche Parameterstudien auf. Neben dem Einfluss des MA-Anteils auf die Sicherheitsparameter und die Kritikalität, ist für den GCFR der weiterführende Betrieb über mehrere Zyklen untersucht worden. EFIT wurde mit LBE und mit Heliumkühlung untersucht, wobei LBE als Nutzungskonzept favorisiert wird und die Kühlung mit Helium als Backup-Lösung gilt. In den Konzepten wurden neben der Wahl des Brennstoffes und anderer Materialien auch verschiedene Kenngrößen wie k_{eff} , φ^* , P/D , β sowie Berechnungsverfahren untersucht [65, 82, 83, 84].

Das Konzept von EFIT verfolgt bei der Transmutationsausrichtung die "42;0"-Hypothese [83]. Die Zahl 42 steht dabei für den benötigten Massenumsatz in Kilogramm, um eine TW_{th} durch Spaltung mit je 200 MeV zu erzeugen. In einem ADS sollte die Massenabnahme von 42 kg ausschließlich bei den minderen Actiniden erfolgen und zu 0 kg bei Plutonium (42;0). Als Grund werden die höheren Kosten in einem ADS für ein Neutron angeführt. Während in einem kritischen System die Neutronen allein durch Spaltprozesse erzeugt werden, ist in einem ADS eine externe Neutronenquelle notwendig. Das Ziel der Vernichtung der MA ist damit auch kosteneffektiv, wenn ausschließlich diese Elemente in der Masse verringert werden. Da die minderen Actiniden auch im schnellen Spektrum vorwiegend in Plutonium transmutiert werden, sorgt dieses Konzept für eine geringe Schwankung bei k_{eff} , da stets neuer Brennstoff aus MA erzeugt wird.

Kühlmittelwahl

Zur Kühlung des im schnellen Spektrum operierenden Kerns kann auf verschiedene Kühlmittel zurückgegriffen werden. Alle sollen das Neutronenspektrum so wenig wie möglich beeinflussen. Neben Gasen (He, CO₂) ist flüssiges Natrium oder Blei in den Reaktorkonzepten für zukünftige Kernreaktoren vorgesehen.

Der Natrium-cooled Fast Reactor (SFR) ist das von Frankreich favorisierte Konzept und Gegenstand vieler Veröffentlichungen, die das Design, Abbrandverhalten oder Sicherheitseigenschaften untersucht haben [71, 85, 86]. Natrium weist entgegen Blei und der Bleimischungen Pb-Bi kein signifikantes Korrosionsproblem auf und hat bessere thermophysikalischen Eigenschaften. Zudem ist die Pumpleistung um den Faktor 4 geringer, da aufgrund der hohen elektrischen Leitfähigkeit auch elektromagnetische Pumpen verwendet werden können. Nachteilig ist die niedrige Siedetemperatur (883°C) sowie die stark exotherme Reaktion mit H₂O [87, p.24ff].

Blei besitzt diese Nachteile nicht, hat jedoch mit 327 °C im Vergleich zu 98 °C bei Natrium einen deutlich höheren Schmelzpunkt. Dies stellt wiederum hohe Anforderungen an den Kühlkreislauf

dar, um das Kühlmittel stets flüssig zu halten. Eine weitere Schwierigkeit durch das Kühlmittel ist die hohe Korrosion bei metallischen Legierungskomponenten (Nickel, Chrom und Eisen) für das Cladding.

Dieses Problem ist bei der Blei-Wismut-Mischung Pb-Bi (LBE) noch größer. Dieses Kühlmittel wird für die Testphase als Ersatz für die reine Bleikühlung vorgesehen, da der Schmelzpunkt bei lediglich 125 °C liegt. MYRRHA verwendet aus diesem Grund das LBE-Kühlmittel und nimmt die Aktivierung von Wismut zu ^{210}Po in Kauf.

Die Kühlung mit Gas erlaubt einen einfachen Wechsel der im Kern befindlichen Strukturen wie der Brennelemente oder des Spallationstargets. Die Aktivierung von Helium durch Neutronenabsorption kann vernachlässigt werden und es ist chemisch inert. Die geringe Dichte führt zu einem hohen notwendigen Druck (40 bis 120 bar) und hoher Pumpleistung im Vergleich zu Flüssigkühlmitteln. Zur Abführung der im Reaktor erzeugten Wärme sind größere P/D -Verhältnisse (*Pitch to diameter*) günstiger, um den Auswirkungen von *loss-of-pressure* (LOP) und *loss-of-flow* (LOF) Störfällen entgegenzuwirken [88]. Der vergrößerte Kühlmittelanteil erhöht jedoch auch den *cooland void worth* des Systems. In den neueren Designs für gasgekühlte Anlagen ist ein Betriebsdruck von 60-70 bar vorgesehen [32, 88]

Sicherheitsaspekte in einer gasgekühlten unterkritischen Anlage

Es wird gemeinhin angenommen, dass ADS aufgrund ihrer externen Neutronenquelle sicherer als kritische Systeme sind. Dennoch kann ein Kernschmelze per se nicht ausgeschlossen werden und es bedarf Sicherheitsvorkehrungen, damit Ereignisse nicht zu diesem Fall führen. Die bei solchen Ereignissen auftretenden Transienten werden in *protected* und *unprotected* Fälle eingeteilt. Im Falle eines Ausfalles der Umwälzpumpen und des dadurch fehlenden Kühlmittelflusses (*loss of flow-LOF*) sieht das Schutzsystem (*protected*) eine Abschaltung der Spallationsquelle vor, da ansonsten die Reaktorleistung auf einem hohen Niveau verbleibt (*unprotected*).

Eine umfangreiche Betrachtung von möglichen Störfällen ist im Rahmen europäischer (5. FP und 6. FP) und internationaler Forschungsvorhaben durchgeführt worden. Zur Bewertung wurde eine probabilistische Sicherheitsanalyse für ADS durchgeführt. Ein Bruch des Strahlenfensters oder eine starke Überhöhung der Strahlleistung sind Ereignisse, die aufgrund der mangelnden Erfahrung mit Beschleunigern in Reaktorsystemen mit einer relativ hohen Häufigkeit $0.1/(\text{reactor} \cdot \text{year})$ bewertet werden [89, p.349]. Eine Kette von Ereignissen, die zu einem Zwischenfall führt, wird je nach Häufigkeit in *design basis accident* (Störfall) oder *beyond design basis accident* (Unfall)¹³ eingeteilt.

In einer gasgekühlten Anlage sind besonders LOF, *loss of heat sink* (LOHS) und *loss of coolant* (LOC) accidents von Bedeutung. Die Eintrittswahrscheinlichkeit eines LOF-Ereignisses wird in solch einer Anlage als hoch angesehen. Die Flussrate sinkt dabei auf 5 bis 7 % [90, 91], bevor das *shutdown cooling system* (SCS) durch passive Vorrichtungen aktiv wird. Die Flussrate stabilisiert sich mit diesem System auf ein für die Kühlung der Nachzerfallswärme ausreichendes Niveau. Der Eintritt eines Kühlmitteltransienten mit Ausfall des Schutzsystems (ULOF) ist für eine gasgekühlte Anlage kritisch. Die Reaktorleistung bleibt auf hohem Niveau, da ein Absinken des Multiplikationsfaktors durch den Temperaturanstieg im Brennstab bei americiumreichen Brennstoff ausbleibt [90]. Die Temperatur des Claddings überschreitet für diesen Fall innerhalb kurzer Zeit (10 sec) [91] die Auslegungsgrenze.

¹³Eine Häufigkeit von über $1 \cdot 10^{-6}$ wird einem Störfall

Das Störfallbeherrschungskonzept der Anlage sieht eigens dafür Heliumtanks mit Gebläse vor, um eine ausreichende Durchflussrate bei niedrigem Druck aufrechtzuerhalten [92]. Für die unbeherrschten Fälle von LOC, LOF, LOHS kommt es selbst für Kerne mit geringer thermischer Leistung ($< 100 \text{ MW}_{\text{th}}$) zu dauerhaften Beschädigungen der Brennstäbe. Dies liegt im Vergleich zur LBE-Kühlung daran, dass das gasförmige Kühlmittel keine großen Wärmekapazitäten besitzt.

4.2 Modellbildung von AGATE

Eine beschleunigergetriebene Anlage bedarf einer umfangreichen Infrastruktur. Die Hauptkomponenten dieses Anlagekomplexes bilden der Beschleuniger, das Spallationstarget und die Transmutationszone. Diese Komponenten basieren weitgehend auf internationalen Untersuchungen (Abschnitt 4.1) und bilden die Rahmenbedingungen, die bei der Modellierung zu berücksichtigen sind.

Tabelle 4.1: Parameter für die Hauptkomponenten von AGATE

Parameter	Material/Wert
Beschleuniger	
Maximale Strahlleistung des Protonenbeschleunigers	6 MW
Maximaler Strahlstrom beim LINAC	10 mA
Beschleunigermodus	Dauerbetrieb (CW)
Spallationstarget	
Gesamtlänge mit Hohlräumen	120 cm
Material	Wolfram
Form	segmentiertes Target
Energiedeposition bei 6 MW Strahlleistung	4.37 MW
Kühlmittel	Helium
Transmutationszone	
Kühlmittel	Helium
Thermische Leistung	100 MW
Plutoniumanteil	$< 20 \text{ \%wt}$
Maximaler Multiplikationsfaktor k_{eff}	0.97
Hüllrohrmaterial	HT-9
Gasdruck im Reaktor	60 bar
Abstand der Brennstäbe	10 mm
Radius der Brennstofftablette	3 mm
Innenradius Hüllrohr	3.05 mm
Außenradius Hüllrohr	3.55 mm

Die Gestaltung der Hauptkomponenten im Kern wird durch die Systemparameter bestimmt (Tabelle 4.1). Die Beschleunigerkomponente wird durch die Nutzung eines Linearbeschleunigers mit einer kinetischen Energie für das Proton von 600 MeV sowie einer maximalen Strahlstromstärke

von 10 mA bei Dauerbetrieb realisiert. Der Beschleuniger wird bei der Modellierung lediglich als Protonenstrahl mit entsprechender Energie als Quelle dargestellt. Die Limitierung der Stromstärke ist bei der Untersuchung des Betriebsverhaltens ein wichtiger Parameter.

Die Eigenschaften des Spallationstargets werden durch die maximale Strahlleistung des Beschleunigers von 6 MW bestimmt. Mit 4.4 MW [13, p.40] wird ein Großteil dieser Energie durch nukleare Interaktion mit dem Spallationsmaterial in dieses abgegeben. Die Gewährleistung der Kühlbarkeit des Spallationstargets führt zu einem segmentierten Target, welches mit Helium gekühlt wird. Die Realisierung der Platten wird durch mehrere versetzte Kugellagen, die von zwei gelöcherten Platten gehalten werden, realisiert. Bei der Modellierung erfolgt die Darstellung durch entsprechend solide dünne Feststoffplatten. Eine weitere Beschreibung des Spallationstargets ist im folgenden Kapitel zu finden und befasst sich unter anderem mit der Wechselwirkung mit der Transmutationszone.

Die Transmutationszone unterliegt einer Vielzahl an Rahmenbedingungen. Die maximale thermische Leistung beträgt 100 MW_{th} und wird bei einem Druck von 60 bar mit Helium gekühlt. Die Brennstablänge beträgt 150 cm mit einem Radius von 3 mm sowie Cladding mit 0.5 mm Dicke, welches aus ferritischem Stahl HT-9 besteht. Die Anordnung der Brennstäbe und -elemente erfolgt in einer hexagonalen Struktur, da dies eine dichte Beladung gewährleistet sowie das Volumen von Strukturmaterial und Kühlmittel reduziert [76]. Der Abstand der Brennstäbe beträgt für die Testphase mit MOX-Brennstoff 10 mm. Dieser Brennstoffanteil darf einen Plutoniumanteil von maximal 20 %wt aufweisen. Der Multiplikationsfaktor k_{eff} dient als Justierungsgröße bei Anreicherung des Brennstoffs und Änderung an der Geometrie. Der maximale Wert beträgt 0.97, während der minimale Wert durch die maximale Protonenstromstärke bestimmt wird.

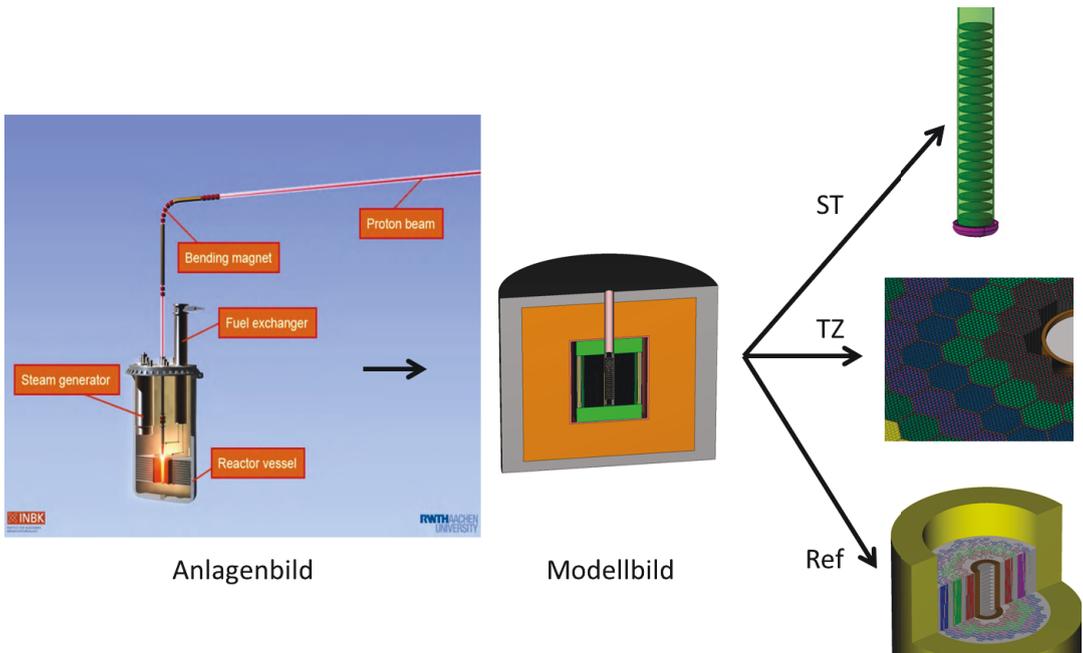


Abb. 4.1: Übergang von Abbild AGATE zu MCNP-Modell. Das Modellbild enthält die wichtigsten Komponenten (Spallationstarget *ST*, Transmutationszone *TZ* und Reflektor *Ref*) für die neutronenphysikalischen Berechnungen (Bilder aus [13, 54] und eigene).

Mit diesen Angaben kann die Modellierung des Systems erfolgen. Die geplante Anlage kann als MCNPX-Geometrie dargestellt werden, die alle relevanten Komponenten enthält (Abbildung 4.1). Das Modell lässt sich in drei Zonen einteilen: Außenbereich, Transmutationszone und Spallationstarget.

Als Außenbereich zählt der Reflektor (REF) mit dem Reaktordruckbehälter und einer zweischichtigen Betonhülle. Die äußere Betonhülle besteht aus Barytbeton und die innere aus Eisenschrotbeton mit Borzusatz¹⁴. Weiter innen liegt der Reaktordruckbehälter (RDB), gefolgt von dem Reflektor. Da der Reflektor aufgrund des niedrigen Schmelzpunktes von Blei im Betrieb durch das Kühlmittel an der Reaktorinnenwand schmelzen würde, wird der Reflektor aus Blöcken zusammengesetzt, die einen Eisenmantel besitzen. Dies wurde vereinfacht durch eine Homogenisierung des Reflektormaterials modelliert.

Nach dem Außenbereich folgt die Transmutationszone (TZ). Diese besteht aus 5 Ringen, die um das Spallationstarget angeordnet sind und 120 Brennelemente enthalten, welche eine uniforme Struktur besitzen. Ein hexagonales Brennelement besteht dabei aus 91 Brennstäben, deren Einheitszelle ebenfalls eine hexagonale Struktur besitzt. Der Abstand der Brennstäbe zueinander ist in einem hexagonalen Gitter stets gleich. Für MOX-Brennstoff wurde dieser mit 10 mm festgelegt und eine Claddingdicke von 1 mm verwendet, um die Claddingoberfläche zu erhöhen. Das resultierende P/D -Verhältnis ist mit 1.25 verhältnismäßig gering. Da Americium und Curium erst während des Betriebs entstehen, ist ein großes P/D -Verhältnis nicht notwendig, da die Nachzerfallswärme nicht signifikant von einem kritisch beladenden Reaktor abweicht. Der Kerndurchmesser beträgt 132 cm, der zu einem Höhe-zu-Durchmesser-Verhältnis (H/D -Verhältnis) von 0.88 führt.

Die Kühlung erfolgt durch Helium unter 60 bar Druck. Trotz geringer Dichte von 4.5 kg/m^3 trägt der Massenfluss 125 kg/s bei einer Ein- und Austrittstemperatur von $250 \text{ }^\circ\text{C}$ beziehungsweise $405 \text{ }^\circ\text{C}$, was eine Strömungsgeschwindigkeit von 50 m/s zur Folge hat. Umfangreiche Analysen zur Cladding- und Brennstofftemperatur wurden in [13] durchgeführt, um eine ausreichende Kühlung in allen Brennelementen sicherzustellen. Dies schließt auch eine Betrachtung der Naturzirkulation bei abgeschalteter Anlage mit ein.

Das Spallationstarget (ST) hat aufgrund der Aufrechterhaltung der Neutronenpopulation eine zentrale Rolle und wurde in einer separaten Dissertation eingehend untersucht [93]. Das Design sowie Interaktionen mit der Transmutationszone werden im Folgenden beschrieben.

4.3 AGATE-Spallationstarget

Zur Erhaltung der Neutronenpopulation in einem unterkritischen System ist eine Neutronenquelle notwendig, welche die Kettenreaktion aufrechterhält. Das speziell in der Machbarkeitsstudie zu AGATE entwickelte Spallationstarget wird im Hinblick auf die Interaktion mit der Transmutationszone untersucht. Die Güte der Quelle sowie das axiale Leistungsprofil werden für unterschiedliche Varianten betrachtet.

Eine optimale Neutronenausbeute ist abhängig von der Protonenenergie, dem verwendeten Targetmaterial und der geometrischen Anordnung. Als Protonenenergie wurden 600 MeV [94] und als

¹⁴Die Materialkarten Barytbeton (m5) und Eisenschrotbeton (m998) wurden von einem MCNP-Modell für den FRJ-2 in Jülich verwendet.

Targetmaterial Wolfram verwendet, wobei andere Materialien wie Blei und Quecksilber eine bessere Neutronenausbeute für Protonenenergien bis 1 GeV liefern (Abbildung 4.2). Wolfram bildet jedoch kaum langlebige Isotope durch Neutronenaktivierung und weist eine gute Wärmeleitfähigkeit und -beständigkeit auf. Alternativen zu der verfolgten Festtargetlösung ist die Verwendung eines Flüssigmetalltargets [95, 96], welches spezifische Vor- und Nachteile hat.

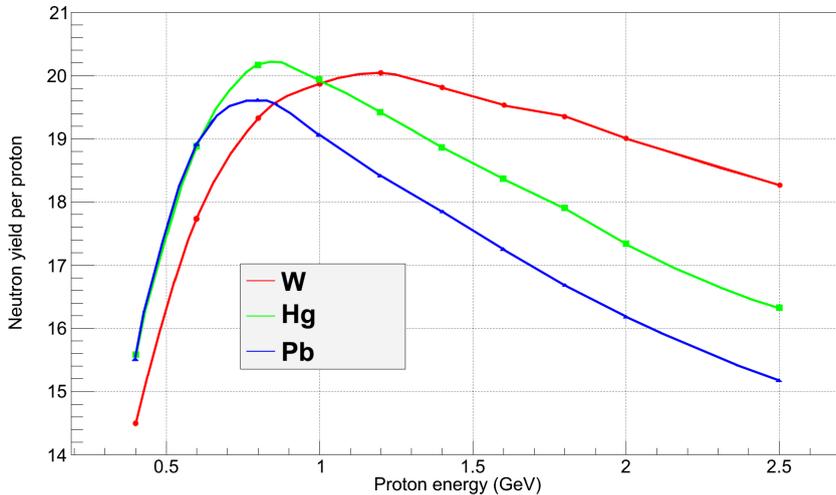


Abb. 4.2: Neutronenausbeute von Blei (Pb), Quecksilber (Hg) und Wolfram (W) normalisiert durch die Protonenenergie [93, p.51]

Zur fokussierten Lösung eines Feststofftargets aus Wolfram in AGATE wird zur Beschleunigung der Protonen ein supraleitender Linearbeschleuniger für eine kontinuierliche Strahlleistung von bis zu 6 MW verwendet. Die Verwendung eines supraleitenden Linacs stellt gerade bei der Anfahrphase eine hohe Anforderung an die Anlage dar. Als Backup-Konzept ist ein Zyklotron vorgesehen, von dem eine hohe Strahlleistung von bis zu 10 mA extrahiert werden kann [97].

Als mechanische Barriere zwischen dem im Beschleuniger herrschenden Ultrahochvakuum ($< 10^{-9}$ mbar) zum Überdruckbereich des Heliumkreislaufes (60 bar) dient das Protonenstrahlfenster. Diese muss sowohl dem genannten Druckunterschied als auch der thermischen Belastung durch Energiedeposition standhalten. Zur Minimierung des Wärmeeintrages werden Werkstoffe mit geringer Dichte verwendet und die Dicke des Fensters ebenfalls gering gehalten. Dies stellt eine extreme Anforderung dar. Designparameter und nähere Informationen zu dem Design sind in [13, p. 48] zu finden.

Der Protonenstrahl trifft nach Durchdringen des Fensters auf das Wolframtarget. Als Targetgeometrie war anfangs ein konisches Target vorgesehen, welches ein fensterloses Target ermöglicht, da es als Barriere zwischen den beiden Druckbereichen dient. Die Energiedeposition ist selbst bei optimiertem Design dieses Konzeptes zu groß, so dass das Target den thermischen Belastungen nicht standhalten würde.

Ein segmentiertes Plattentarget bietet die Möglichkeit, die Neutronenerzeugung flexibel zu gestalten. Während die totale Dicke der Platten durch die Bethe-Bloch-Formel fest vorgegeben ist, lässt

sich durch größere Plattenabstände das Target beliebig in die Länge ziehen. Für die technische Realisierung ist angedacht, die Platten durch Kugelschüttungen zu fertigen, um so eine ausreichend große Oberfläche und Wärmetransport zu gewährleisten.

Die aus den Spallationsprozessen erzeugten Neutronen bilden ein fast homogenes Neutronenfeld entlang des Targets (Abbildung 4.3). Diese Neutronen treten in Interaktion mit der Transmutationszone und lösen die ersten Spaltungen aus. Die Wahl des Targetmaterials und die Geometrie beeinflussen die Quellenneutroneneffizienz und die räumliche Leistungserzeugung im Kern.

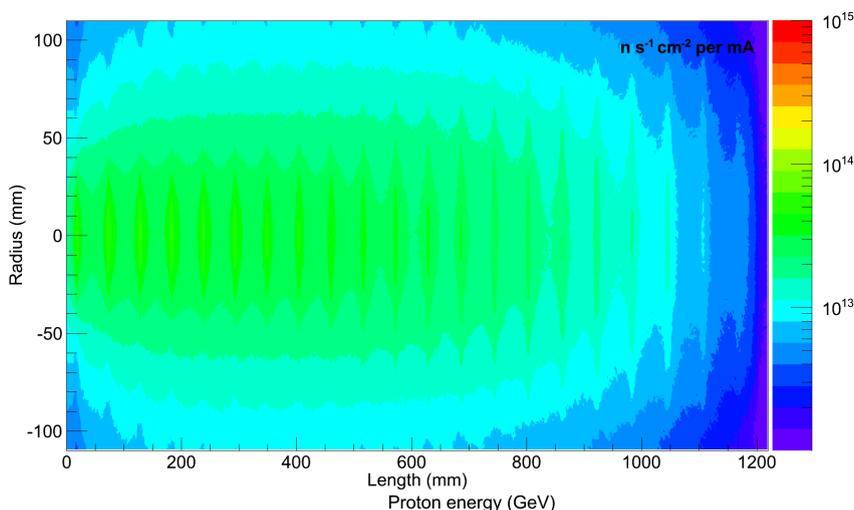


Abb. 4.3: Neutronenfluss entlang des Spallationstargets [93, p.77]

Zur Untersuchung dieses Effekts werden die Geometrie oder die Materialien verändert. Die Kernbeladung entspricht der Anfangsbeladung für den Referenzkern für PuMA-Brennstoff (siehe Kapitel 5.2.1). Für das segmentierte Targetdesign wurde die Länge in drei Stufen variiert (Abbildung 4.4a). Dabei ändert sich die Dicke der Platten nicht, sondern nur der Abstand zwischen den Platten. Neben der Basisauslegung (Länge = 120 cm) wurden die Längen 97 cm und 140 cm untersucht.

Neben der segmentierten Targetstruktur wurde ein Blocktarget aus Wolfram bzw. Blei untersucht (Abbildung 4.4b). Dies ist eine starke Vereinfachung, da die eigentlichen LBE-Targetdesigns aufwendig gestaltet sind. Die Ergebnisse der Untersuchung (Tabelle 4.2) lassen dennoch Rückschlüsse auf neutronenphysikalische Größen zu.

Die Variation des segmentierten Targets führt zu leichten Unterschieden im axialen Leistungsprofil in der Mitte der Brennstäbe (Höhe 0 cm) und am oberen Ende bei der Betrachtung des ersten Brennelementringes um das Spallationstarget (Abbildung 4.5a). Für das gekürzte Target ist die Leistungserzeugung im Zentrum größer und am niedrigsten für den oberen Brennstabbereich. Der Grund liegt darin, dass weniger zurückgestreute Neutronen den oberen Bereich erreichen, und somit die Quellenneutronenverteilung inhomogener wird. Dieser Effekt ist für den oberen Bereich beobachtbar, da die zurückgestreuten Neutronen eine breitere Winkelverteilung besitzen als die vorwärts gerichteten und somit früher in die Brennstoffzone gelangen (Abbildung 4.5b). Zudem ist der Reaktor durch den Strahlkanal oben "offen", weshalb die Leistungserzeugung für den ersten

Brennstoffring dort geringer ist als für den unteren Bereich. Eine Abweichung ist in der Protonenstromstärke für die zu erzeugende Leistung von $100 \text{ MW}_{\text{th}}$ festzustellen. Sie beträgt 7.58 mA für das gekürzte, 7.86 mA für das ursprüngliche und 7.98 mA für das längere Design (Tabelle 4.2).

Die Ergebnisse bei der Berechnung mit einem Blocktarget zeigen einen deutlichen Anstieg bei der Leistungsdichteerzeugung im Zentrum des Kerns (Abbildung 4.6) aufgrund der zentral erzeugten Neutronen. Dieses Leistungsprofil flacht ab, je weiter die Brennelemente vom Spallationstarget entfernt sind, da der Einfluss der Spallationsneutronen für diese Regionen abnimmt (Abbildung 4.7). Die Blocklänge unterscheidet sich nur in der Länge aufgrund der unterschiedlichen Eindringtiefe des Protonenstrahls.

Die Auswirkung der Materialwahl sind jedoch deutlich anhand der Quellneutroneneffizienz ϕ^* zu sehen. Blei weist mit 0.998 einen Wert von eins auf, während für das Wolframblocktarget ϕ^* auf 0.60 abfällt. Der Grund für diese deutlichen Unterschiede liegt an der höheren Absorptionsrate von Wolfram und der bei Blei möglichen (n, xn) -Reaktionen für Neutronen mit Energien größer als ein MeV. Die höhere Absorptionsrate bei Wolfram sorgt dafür, dass weniger Neutronen, die im Block erzeugt wurden, diesen auch verlassen (Tabelle 4.3 in [93, p.58]).

Die Protonenstromstärke ändert sich nur leicht, da k_{eff} steigt. Dies ist darauf zurückzuführen, dass sich sämtliche Spallationsmasse auf einen kleinen Raum konzentriert, während sie sich beim segmentierten Target über die gesamte axiale Kernlänge erstreckt. Neutronen die vorher dort absorbiert oder ungünstig in den Reflektor gestreut wurden, können nun ohne Interaktion - vom Kühlmittel abgesehen - von einer Brennstoffseite zur anderen gelangen. Das Kühlmittel spielt jedoch auch eine wesentliche Rolle. Wird statt Helium die Brennstoffzone mit Blei gekühlt steigt die Leistungsdichte im Zentrum signifikant an, da die Neutronen im Zentrum konzentriert werden. Die Quellneutroneneffizienz wird mit einem Wert von 1.15 effektiv genutzt. In der Protonenstromstärke macht sich dies jedoch nicht bemerkbar, da Blei für ein deutliches Absinken des Multiplikationsfaktors sorgt.

Die Variation des Targetdesigns und Materials zeigt deutlich, dass neben der Kühlbarkeit ebenfalls die Effizienz verbessert werden kann und dafür unterschiedliche Konzepte zur Verfügung stehen. In dieser Arbeit wird das im Hinblick auf die Kühlung ausgearbeitete segmentierte Design mit 120 cm genutzt.

Tabelle 4.2: Charakteristische Größen für das Spallationstarget in Abhängigkeit unterschiedlicher Targetdesigns und Wahl des Kühlmittels der Transmutationszone

Targetkonfiguration	k_s	k_{eff}	ϕ^*	$I \text{ [mA]}$
Pb-Block and Pb-Kühlung	0.929	0.919	1.153	7.85
Pb-Block and He-Kühlung	0.954	0.954	0.998	5.34
W-Block and He-Kühlung	0.935	0.960	0.602	7.55
seg. Target mit 140 cm	0.940	0.949	0.846	7.98
seg. Target mit 120 cm	0.941	0.949	0.862	7.86
seg. Target mit 97 cm	0.942	0.948	0.889	7.58

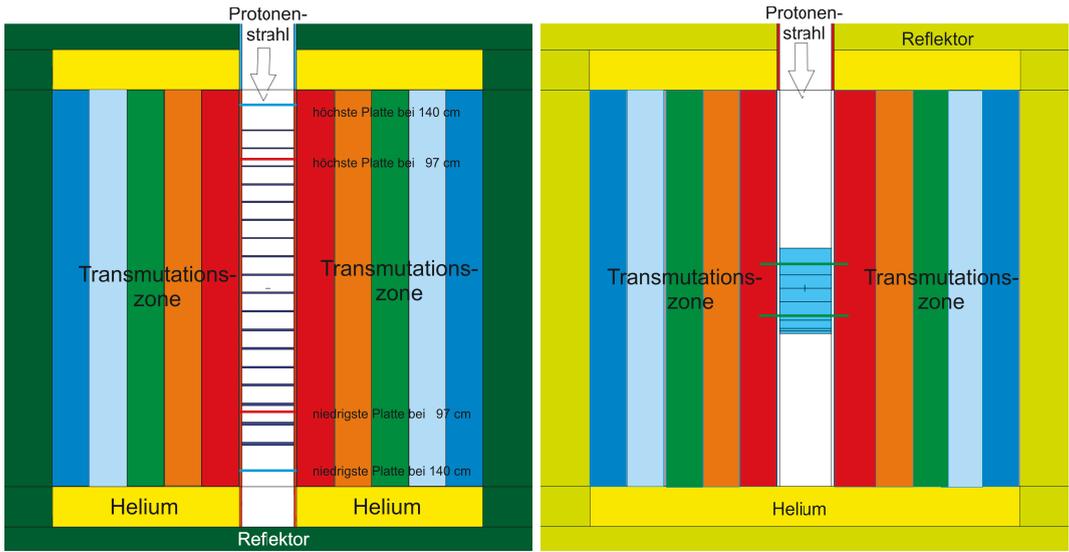
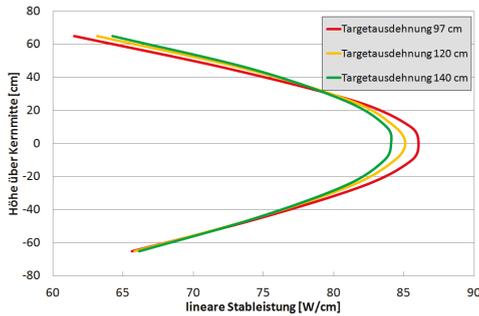
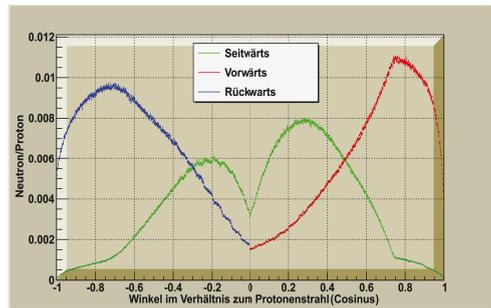


Abb. 4.4: Seitenansicht des Kerns mit unterschiedlichen Spallationsgeometrien. Die Transmutationszone teilt sich in fünf Ringe auf; für Helium Zu- und Abfuhr sind Freiräume unter- und oberhalb der Brennelemente vorhanden. Das segmentierte Target (links) weist mehrere Längen (97 cm, 120 cm und 140 cm) für das Wolframtarget auf, während das Blocktarget (rechts) für die Materialien Blei und Wolfram (grüne Striche) untersucht wird.



(a) Axial lineare Stabileistung für den ersten Brennelementring bei unterschiedlicher Targetausdehnung



(b) Winkelverteilung der Spallationsneutronen für 120 cm Targetlänge in vorwärts (rot), rückwärts (blau) und seitwärts Richtung [93]

Abb. 4.5: Ergebnisse zum segmentierten Spallationstarget

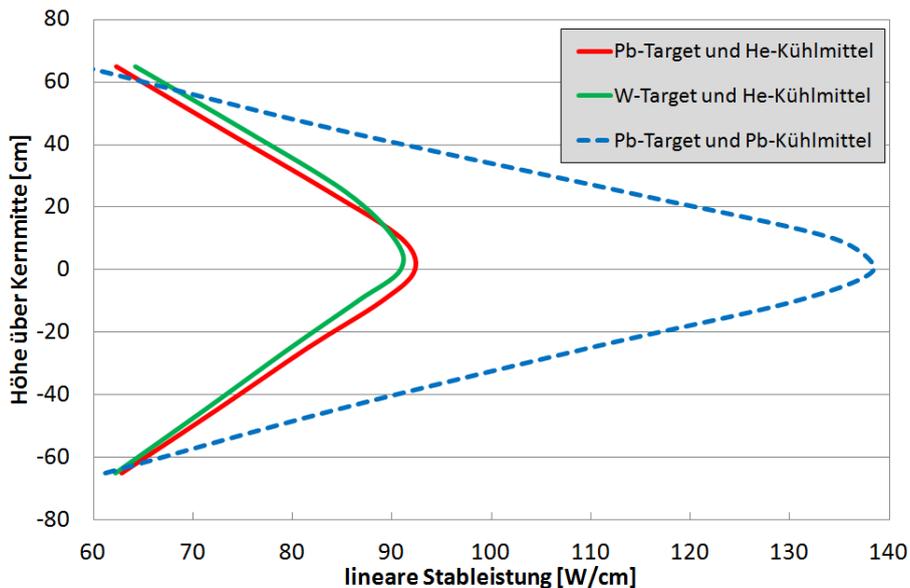


Abb. 4.6: Axiale lineare Stabileistung für den ersten Brennelementring bei Verwendung eines Blocktarget aus Wolfram oder Blei sowie Helium- und Bleikühlung der Transmutationszone

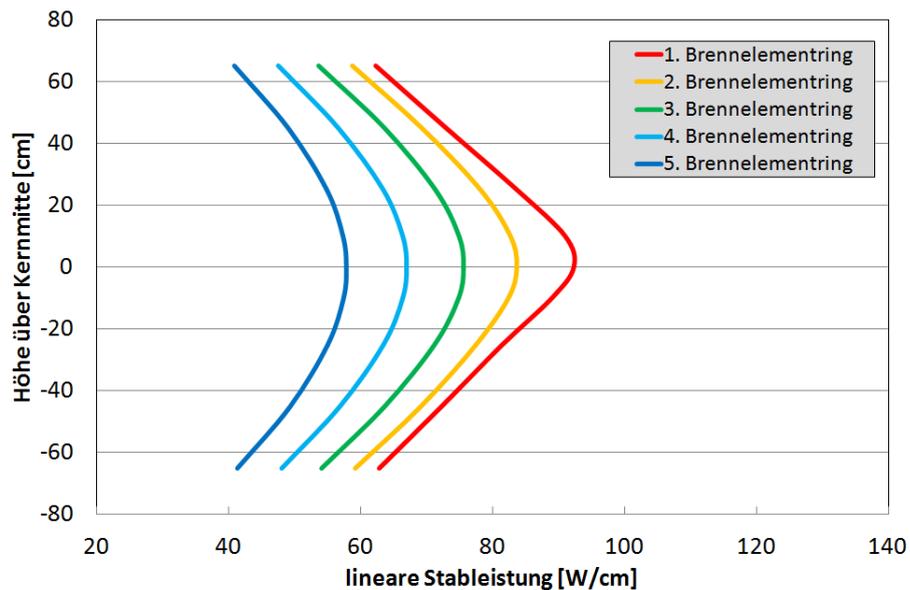


Abb. 4.7: Axiale lineare Stabileistung für die Brennelementringe um das Bleitarget bei Helimkühlung der Transmutationszone

5 Entwicklung des Betriebskonzepts

Die Untersuchung einer gasgekühlten, beschleunigergetriebenen Transmutationsanlage erfolgt in dieser Arbeit in zwei Phasen; der Test- und Betriebsphase. In der Testphase wird der neutro-physikalische Zustand bei Inbetriebnahme der Anlage mit einem Mischoxid-Brennstoff (MOX-Brennstoff) simuliert und beinhaltet ersten Abbrandrechnungen mit transuranem Brennstoff (TRU-Brennstoff) im innersten Brennelementring um das Spallationstarget. Die Betriebsphase untersucht das Verhalten innovativer Brennstoffkonzepte bei vollständiger und einheitlicher Belegung des Kerns, welche die Ausgangsbeladung für die Entwicklung des Gleichgewichtskerns ist. Hierfür wird eine simulationstechnische Strategie zur Berechnung der Abbrand- und Leistungsverteilung angewandt.

5.1 Testphase

5.1.1 Beladung mit MOX-Brennstoff

Für den Erstkern wird MOX-Brennstoff unterstellt, da ein rein transuraner Brennstoff für die zeitnahe Realisierung nicht zur Verfügung steht. Die Zeit bis zur Verfügbarkeit wird genutzt, um erste Betriebserfahrungen mit einem unterkritischen System zu sammeln. Der Anreicherungsgrad von MOX-Brennstoff ist aus Gründen der Proliferation auf 20 %wt begrenzt. Zur Herstellung der MOX-Brennelemente wurde nicht angereichertes Uran angesetzt. Das Plutonium weist einen, im thermischen Spektrum, spaltbaren Anteil von 67 %wt auf (Tabelle 5.1). Die Dichte des Brennstoffes beträgt 10.4 g/cm^3 . Der Erstkern weist mit diesem Brennstoff einen anfänglichen Multiplikationsfaktor k_{eff} von 0.972 auf. Dies stellt den maximal zulässigen Wert für die Anlage bei Beladung dar, bei dem mehrere Sachverhalte berücksichtigt werden. Diese sind die Entfernung des Spallationstargets, eine Kühlmittelleckage, ein Versagen der Brennstabshalterung sowie Handhabungsfehler, wie das falsche Versetzen von Brennelementen [98].

Tabelle 5.1: Nuklidzusammensetzung des MOX-Brennstoffs nach Element und Isotopen

Vektor	%wt
U/Pu	80.19 / 19.81
U-235/238	0.7 / 99.3
Pu-238/239/240/241/242	2.59 / 53.85 / 23.65 / 13.12 / 6.79

Die Abbrandberechnung erfolgt in Anlehnung an [81] für eine Abbrandperiode von neunzig Tagen, gefolgt von einer dreißig tägigen Wartungsphase. Der Kern wurde aus drei Abbrandzonen (Abbildung 5.1) aufgebaut und acht Zyklen simuliert. Anschließend wurde der Brennstoff im Kern 2030 Tage dem natürlichen Zerfall überlassen. Die Zonen im inneren (rot) und äußeren (grün) Bereich bestehen aus zwei Brennelementringen, während der Übergang beider Zonen mit einem Ring (blau) realisiert wird. Dies dient dazu, das Transmutationsverhalten nahe des Spallationstargets und des Reflektors getrennt zu untersuchen. Nach jedem Abbrandschritt liegt eine neue

Materialzusammensetzung in der Transmutationszone vor, für die der Multiplikationsfaktor und die Protonenstromstärke berechnet werden. Die Betrachtung des Multiplikationsfaktors zeigt, dass die Reaktivität des Kerns im Mittel um 4.43 pcm/d abnimmt, während die Protonenstromstärke entsprechend steigt (Abbildung 5.2). Die maximale Stromstärke von 10 mA wird für den 720-tägigen Betrieb nicht überschritten.

Die axiale lineare Brennstableistung zeigt die unterschiedliche Leistungserzeugung in Abhängigkeit von der Brennelementposition (Ring). Die Brennelemente am Rand weisen die geringste Stableistung auf, während die Brennelementleistung um die Spallationsneutronenquelle am Größten ist. Die mittlere Stableistung in der innersten Zone beträgt 75 W/cm und liegt damit 22.5 % über der durchschnittlichen linearen Stableistung von 61 W/cm für den gesamten Kern. Die axiale Abweichung von der gemittelten Leistung innerhalb einer Brennelementgruppe bleibt für alle Ringzonen unter 25 %.

Mit dem Leistungsprofil der Brennelemente aus der ersten Ringzone wurde die Gaskühlung der Brennelemente in der Machbarkeitsstudie von AGATE analysiert [13, p. 62ff.]. Die Berechnungen zeigen, dass mit einem Gasdruck von 60 bar und einer Strömungsgeschwindigkeit von 50 m/s eine ausreichende Kühlung der wärmsten Brennstäbe erreicht wird. Die maximale Claddingtemperatur beträgt 803 K und liegt damit unter dem Auslegungsgrenzwert von 823 K, die aus Sicherheitsgründen nicht überschritten werden darf.

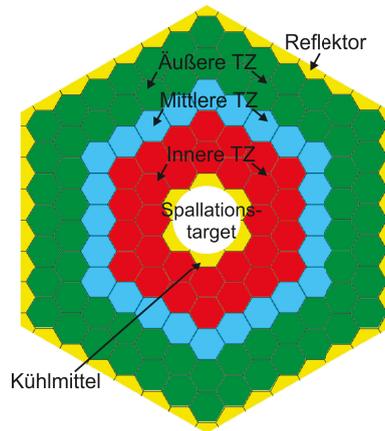


Abb. 5.1: Aufteilung der Transmutationszone in drei Ringzonen während der Testphase

Die Betrachtung des Abbrandverhaltens am Ende der Abklingzeit für den innersten Brennelementring mit dem MOX-Brennstoff zeigt eine starke Abnahme bei Uran und Plutonium, während die minoren Actiniden, die bei frischem Brennstoff nicht enthalten sind, aufgebaut werden. Der Einsatz dieses Brennstofftyps ist damit zur effektiven Reduzierung transuraner Elemente nicht geeignet. Dies wird bei einem späteren Vergleich mit innovativem Brennstoff anhand der Transmutationsrate veranschaulicht.

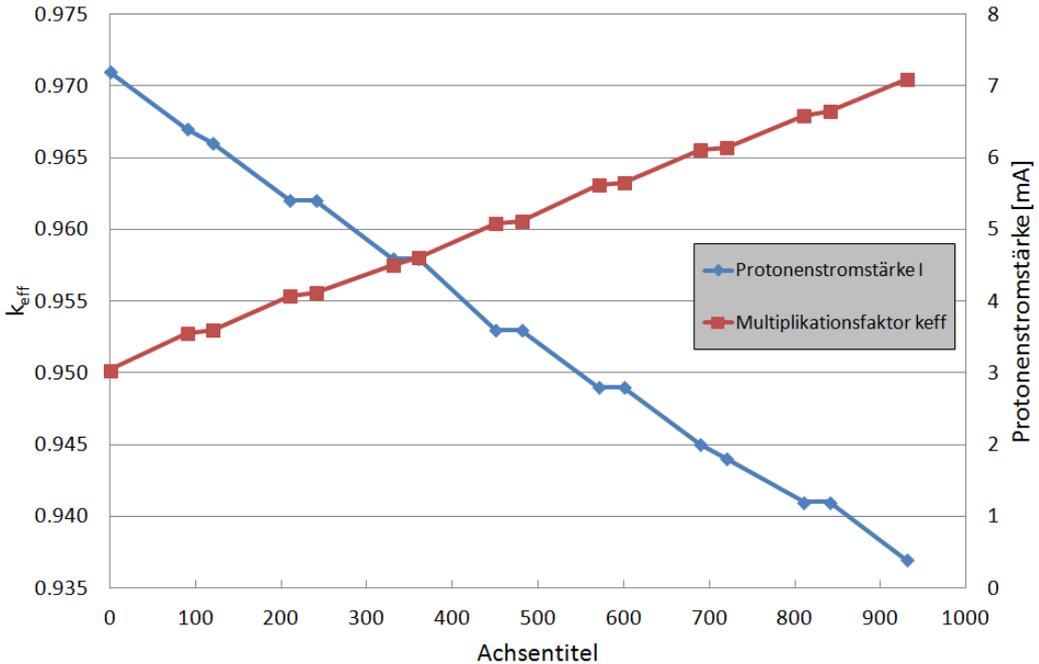


Abb. 5.2: Multiplikationsfaktor k_{eff} und Protonenstromstärke I für die Testphase mit MOX-Brennstoff

Leistungsstabilisierung durch Absorberstäbe

Der Dopplerkoeffizient α und der Anteil der verzögerten Neutronen β werden im Rahmen der Sicherheitsbetrachtung berechnet. α verbleibt während des Betriebs der unterkritischen Transmutationsanlage bei einem Wert um -0.6 pcm/K. Die über den betrachteten Zeitraum gemittelte Spaltleistung durch die verzögerten Neutronen beträgt 4.4 %. Sie ist am Ende des Abbrandzyklus in Folge des abnehmenden Multiplikationsfaktors geringer als am Anfang (siehe Beispiel in Tabelle 2.4). In einem ADS, das weit unterhalb der Kritikalität (> 3000 pcm) operiert, stellt dieser Anteil der verzögerten Leistung bereits einen sehr großen Wert dar. Fluktuationen beim Protonenstrom wirken sich zu über 95 %, selbst für den MOX-Brennstoff, quasi unmittelbar auf die Leistungserzeugung aus. Zur Vermeidung dieser unkontrollierten Leistungsfluktuationen kann folgendes Betriebsverfahren angewendet werden:

Der Beschleuniger wird bei maximaler Leistung konstant betrieben, um Leistungsspitzen zu vermeiden. Damit die in der Brennstoffzone erzeugte Leistung konstant bleibt, werden Absorberstäbe in den Reflektormantel eingefahren, um die hier vorhandenen Neutronen einzufangen (Abbildung 5.3) und auf diese Weise den Multiplikationsfaktor zu regulieren.

Das Konzept zur Steuerung der Leistung anhand von Absorberstäben wurde mit MOX-Brennstoff für die Testphase analysiert und weist eine Regelbarkeit der Kritikalität von über 2200 pcm auf [13]. Die Regelung der Leistung bei der Berechnung mit anderen Brennstofftypen erfolgte über Angleichung des Protonenstroms. Beide Konzepte setzen eine Messung der Reaktivität [99] voraus, da

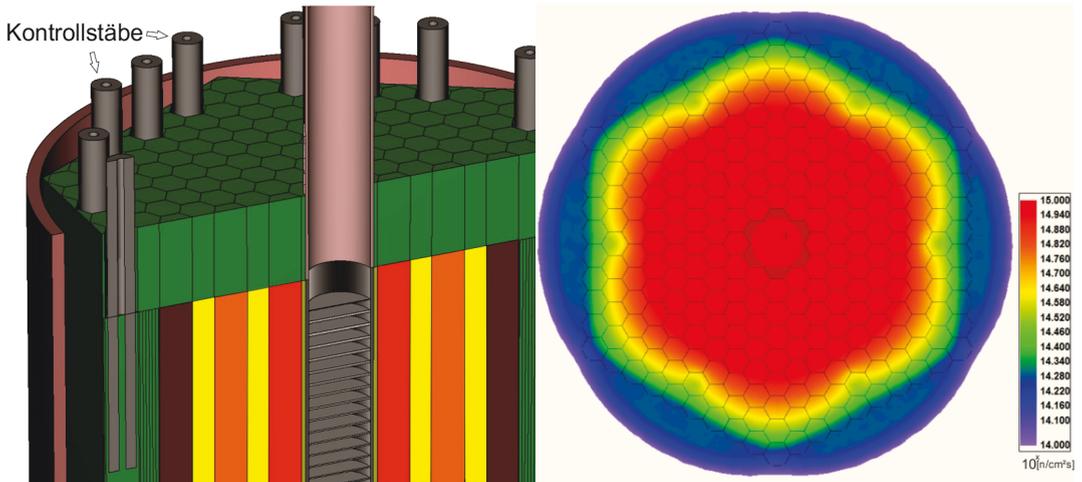


Abb. 5.3: Schräge Seitenansicht der Anlage mit Kontrollstäben im Reflektor (links) und dem resultierenden Neutronenfluss (rechts)

diese maßgeblich für die Leistungserzeugung und somit für die Einstellung des Protonenstroms bzw. der Absorberstäbe ist.

5.1.2 Teilbeladung mit TRU-Brennstoff

In diesem Abschnitt wird das Transmutationsverhalten in der Testphase für zwei TRU-Brennstoffvarianten analysiert. Dazu wird der Brennelementring um das Spallationstarget mit zwei (PuMA) $\text{O}_{2-x}\text{-MgO}$ -Zusammensetzungen in Anlehnung an EFIT [83] (BS I) und Myrrha [81] (BS II) (Tabelle 5.2) beladen und Abbrandrechnungen durchgeführt. Beide Brennstoffe sind in einer Magnesiumoxidmatrix eingebettet, welche die thermische Leitfähigkeit erhöht, die Stabilität bei hohen Temperaturen verbessert, wenig langlebigen Aktivierungsprodukte erzeugt und gleichzeitig einen relativ geringen Absorptionsquerschnitt für Neutronen aufweist.

Die Abbrandberechnung erfolgt mit gleicher Spaltleistung für die Abbrandzone, die nur aus dem innersten Brennelementring besteht. Die Abbranddauer wird von acht auf zwölf Perioden à 90 Tage erweitert, um einen längeren Betrieb zu simulieren. Die Transmutationsraten werden mit denen für MOX-Brennstoff verglichen (Tabelle 5.3). In diesem wird Plutonium transmutiert, während die Plutoniummasse bei den TRU-Brennstoffkonzepten zunimmt. Die Massenabnahme beim MOX-Brennstoff beschränkt sich hauptsächlich auf ^{241}Pu , da ^{239}Pu aus Uran fortwährend neu gebildet wird.

Die TRU-Brennstoffe unterscheiden sich aufgrund ihrer Brennstoffzusammensetzung ebenfalls voneinander. Die Transmutationsrate für Americium unterscheidet sich zwischen beiden um $65 \text{ g/GWd}_{\text{th}}$ trotz gleichen Mengenanteils. Der Grund liegt in der unterschiedlichen Isotopenzusammensetzung. BSI weist einen mit 82 %wt im Gegensatz zu BSII mit 67 %wt einen höheren Anteil an ^{241}Am auf, welches einen verhältnismäßig großen Eingruppenwirkungsquerschnitt für Neutronenabsorption besitzt. Die Transmutation von diesem Isotop wirkt sich auf die anderen

Elemente aus. Der Transmutation in ^{242}Am folgt der Zerfall in ^{238}Pu über ^{242}Cm oder durch Elektroneneinfang in ^{242}Pu . BS I zeigt bei beiden Isotopen die größere Massenzunahme, was sich für die Transmutationsrate von Uran fortsetzt, die aus dem Zerfall von ^{238}Pu resultiert (Tabelle A.1). Die Transmutationsrate für Plutonium ist dennoch geringer, da der Plutoniumanteil größer ist und damit insbesondere ^{239}Pu eine starke Abnahme aufweist.

Der Unterschied bei Curium resultiert aus dem Massenanteil von 10 %wt bei BS II und dem größeren Anteil von ^{244}Cm , welches mit einer Halbwertszeit von 18.1 Jahren während der Abklingzeit von 2030 Tagen entsprechend abnimmt (Tabelle A.2). In dieser Zeit zerfällt ^{242}Cm , welches sich durch die Transmutation von Americium gebildet hat, fast vollständig.

Diese Betrachtung zeigt, wie sich allein die Brennstoffzusammensetzung auf das Transmutationsverhalten auswirkt. Nach diesen ersten Betrachtungen wird für die Betriebsphase das Betriebsverhalten des ADS eingehend untersucht.

Tabelle 5.2: Zusammensetzung des transuranen Brennstoffes EFIT und Myrrha im innersten Brennelementring

EFIT (BS I)		%wt
Np/Pu/Am/Cm	2.09 / 45.64 / 49.98 / 2.29	
Pu-238/239/240/241/242	3.71 / 46.30 / 34.16 / 3.87 / 11.96	
Am-241/243	82.35 / 17.65	
Cm-244/245	72.38 / 27.62	
Myrrha (BS II)		%wt
Np/Pu/Am/Cm	0 / 39.78 / 50.1 / 10.11	
Pu-238/239/240/241/242	5.02 / 37.76 / 30.32 / 13.27 / 13.63	
Am-241/243	66.49 / 33.51	
Cm-244/245	89.96 / 10.04	

Tabelle 5.3: Transmutationsrate für die untersuchten Brennstoffkompositionen in der Testphase im innersten Ring nach 720 Tagen Bestrahlung und 2030 Tagen Abklingzeit

g/GWd _{th}	MOX	EFIT	Myrrha
U	-809	51	45
Np	6	16	52
Pu	-460	94	167
Am	262	-1255	-1190
Cm	1	94	-74

5.2 Betriebsphase

Für die Betriebsphase wird ausschließlich die Verwendung von uranfreiem Brennstoff unterstellt, um die Transurane signifikant zu reduzieren. Der Anstieg der Protonenstromstärke über die Auslegungsgrenze führt zu einer Anpassung des Betriebskonzepts, welches sukzessiv anhand von physikalischen Betriebsgrößen verbessert wird.

5.2.1 Referenzkern

Als Brennstofftyp wird $(\text{PuMA})\text{O}_{2-x}\text{-MgO}$, im Folgenden PuMA-Brennstoff genannt, mit einem hohen Anteil an Americium (50 %wt) ähnlich wie bei EFIT verwendet. Die Isotopenzusammensetzung der Elemente basiert dabei auf der zu erwartenden Stoffmenge für Deutschland (Tabelle 2.3). Die Veränderungen im Nuklidvektor bei einer Inbetriebnahme in 20 Jahren werden mit einer entsprechenden Lagerzeit mittels einer Zerfallsberechnung mit dem Abbrandprogramm ORIGEN bestimmt. Der Anteil von ^{241}Pu nimmt im Vergleich zu der ursprünglichen Zusammensetzung durch die relativ geringe Halbwertszeit von 18 Jahren ab, wodurch der Americiumanteil durch ^{241}Am ansteigt. Bei dem Isotopenvektor von Curium ist ein vergleichbares Resultat für ^{244}Cm festzustellen, welches in ^{240}Pu zerfällt.

Der Referenzkern wurde mit einer homogenen Beladung mit der oben genannten Brennstoffzusammensetzung gebildet. Das Mischungsverhältnis der transuranen Elemente ist an die EFIT Brennstoffzusammensetzung angelehnt (Tabelle 5.4). Die Hauptbestandteile sind Plutonium und Americium, während Neptunium und Curium nur in geringer Menge vorliegen. Die Transmutationszone wird einheitlich mit diesem Brennstofftyp beladen, wobei keines der Brennelemente zu diesem Zeitpunkt einen Abbrand aufweist.

Tabelle 5.4: Brennstoffzusammensetzung für PuMA-Brennstoff in Gewichtsprozent nach Element und Isotop

Element	%wt
Np/Pu/Am/Cm	2.1/45.1/50.4/2.4

Nuklid	%wt	Nuklid	%wt
Np237	2.08	Am241	44.42
Pu238	0.97	Am243	5.96
Pu239	25.59	Cm243	0.03
Pu240	13.44	Cm244	1.81
Pu241	1.39	Cm245	0.51
Pu242	3.76	Cm246	0.05

Für die Beladung ausschließlich mit PuMA-Brennstoff wurden die Geometrie und Materialzusammensetzung im MCNPX-Modell angepasst. Ein Grund für die Anpassung ist die höhere Nachzerfallswärme, welche durch den hohen Anteil von Americium und Curium im Brennstoff verursacht wird.

Als Konsequenz wurde der Pitch von 10 mm auf 12 mm erhöht, was zu einem Anstieg des Pitch zu Durchmesser (P/D)-Verhältnisses von 1.25 auf 1.71 führt und bei Störfällen wie "Loss of Pressure" oder "Loss of Flow" für eine bessere Ausgangssituation für entsprechende Gegenmaßnahmen sorgt [88]. Allerdings erhöht sich der VOID-Koeffizient, was sich bei Störfällen ohne Reaktorabschaltung nachteilig auswirken kann.

Eine weitere Anpassung war die Reduzierung der Claddingdicke von 1 mm auf 0.5 mm, um den Eisenanteil im Kerninneren zu minimieren und damit den Eigenmultiplikationsfaktor der Transmutationszone zu erhöhen. Diese Anpassung verkleinert die Oberfläche für den Wärmeübertrag, gewährleistet jedoch weiterhin die Aufgabe als Barriere für die Spaltgase.

Die Kühlung des Reflektors durch in diesem verlaufende Kühlrohre oder durch eine Ummantelung mit Stahl wurde in dieser Arbeit nicht weiter berücksichtigt und die Wand aus Blei modelliert. Diese Vereinfachung ist bei einer Untersuchung von Reaktorentwürfen üblich [76]. Ausgehend von diesem Reflektormaterial werden in der Masterarbeit [100] verschiedene Reflektorvariationen durchgeführt.

Weiterhin wurde für die Zu- und Abfuhr des Kühlmittels ein Freiraum unter- und oberhalb der Brennstäbe eingefügt. Dieser beträgt 20 cm für den Einlass und 15 cm für die Abfuhr des Kühlgases. Variationen der Abstände bei einem Magnesiumoxidanteil von 50 %vol zeigen, dass k_{eff} durch diesen Freiraum um 3000 pcm abnimmt. Dies liegt daran, dass sich für die Neutronen die Reflektoroberfläche vergrößert und dadurch die Wahrscheinlichkeit für eine direkte Reflektion zurück in die Brennstoffzone abnimmt.

Die Einstellung von k_{eff} erfolgt nach dieser Änderung über das Volumen des Matrixelementes (Tabelle 5.5), was bei einem Volumenanteil von 47 % der Brennstoffmatrix zu einem Wert von 0.95 führt mit dem die weiteren Rechnungen im Referenzkern durchgeführt wurden.

Tabelle 5.5: Justierung von k_{eff} über Matrixvolumen für dem Referenzkern mit PuMa-Brennstoff

Matrixanteil [%vol]	k_{eff}	Standardabweichung
50	0.91581	0.00012
48	0.93663	0.00043
47	0.94836	0.00041
45	0.97006	0.00044
40	1.02000	0.01000

Nach Anpassung der Geometrie und Einstellung des anfänglichen Multiplikationsfaktors k_{eff} wurde ein Zyklus von 1080 Tagen in 90. Tagesschritten mittels VESTA simuliert. In der Betriebsphase werden keine Wartungsintervalle innerhalb eines Abbrandzyklus unterstellt, da die Anlage als technisch ausgereift angenommen wird.

Als maßgebliche Größe für den Betrieb dient der Multiplikationsfaktor für die Spallationsneutronen k_s . Dieser nimmt im Laufe des Betriebs linear ab (Abbildung 5.4), während die Neutroneneffizienz mit einem Wert von 0.84 (± 0.02) nahezu konstant bleibt. Mit diesem konstanten Verhältnis von k_{eff} und k_s ist eine Betrachtung des Betriebsverhaltens durch die Darstellung von k_{eff} anstatt k_s möglich. Dies wird für die Auswertungen in den folgenden Kapiteln für die unterschiedlichen Brennstoffkonzepte genutzt, da bei gleicher Rechenzeit für k_{eff} eine höhere Genauigkeit erreicht wird.

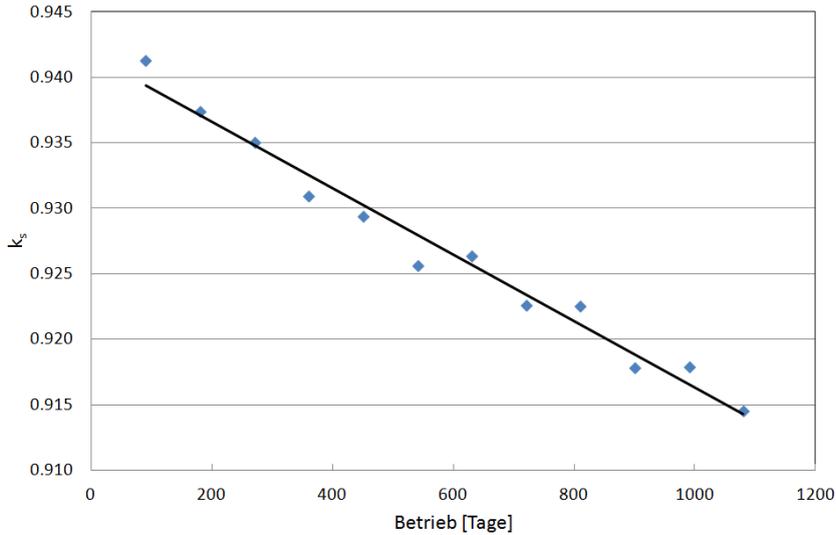


Abb. 5.4: Zeitliche Entwicklung des Neutronenmultiplikationsfaktors für Spallationsneutronen k_s für PuMA-Brennstoff in Folge des Abbrands

k_s bestimmt den erforderlichen Protonenstrom, welcher während des Betriebs stetig zunehmen muss, um die thermische Leistung des Reaktors bei 100 MW zu halten. Bei 720 Tagen überschreitet die Stromstärke den Auslegungswert des Linearbeschleunigers von 10 mA (Tabelle 4.1). Ein höherer Anfangswert für k_{eff} oder eine bereits zu diesem Zeitpunkt durchgeführte Umsetzung der Brennelemente sind Optionen, um über diesen Zeitpunkt hinaus den Betrieb aufrecht zu erhalten.

Um einen stabilen Betrieb abzubilden, wird das Betriebskonzept über die Betrachtung der Protonenstromstärke und des Multiplikationsfaktors schrittweise verbessert. Im Anschluss werden weitere Betriebseigenschaften in den unterschiedlichen Betriebskonzepten miteinander verglichen.

5.2.2 Gleichgewichtskern

Die Betrachtung des Referenzkerns mit PuMA-Brennstoff hat gezeigt, dass nach 720 Tagen ein Betrieb aufgrund der Abnahme des Multiplikationsfaktors k_{eff} nicht mehr möglich ist, da das Limit von 10 mA für die Protonenstromstärke erreicht ist. Eine Umverteilung der Brennelemente oder Neubeladung wäre nun notwendig, um eine bessere Nutzung des Brennstoffs zu erreichen und damit auch die Begrenzung der Stromstärke besser auszunutzen. Dies wird im Folgenden untersucht.

Die Brennelemente aus dem ersten Ring werden aus der Transmutationszone entnommen, so dass der erste Ring mit Brennelementen aus dem zweiten Ring beladen werden kann. Die überschüssigen Brennelemente aus dem zweiten Ring kommen in ein Lagerbecken. Die freigewordene zweite Ringzone kann nun mit Brennelementen aus der dritten beladen werden. Dieser Prozess setzt sich fort bis alle Brennelemente versetzt wurden und der äußerste Ring leer ist. Dieser wird mit neuen

Brennelementen beladen, die ein Matrixvolumen von 44 % statt 47 % besitzen. Der höhere Anteil von spaltbarem Material gewährleistet das im späteren Gleichgewichtszustand der Multiplikationsfaktor in einem ausreichende Maß vorliegt und als Folge die Protonenstromstärke das Limit innerhalb der Systemgrenzen nicht überschreitet.

Mit jeder Neubeladung nach 720 Tagen (eine Zyklenlänge) steigt der Multiplikationsfaktor im Vergleich zum vorigen Zyklus bis nach fünf Austauschzyklen der Kern nur noch mit der neuen Brennstoffzusammensetzung beladen ist.

Diese Phase stellt die Einschwingphase des Systems dar (Abbildung 5.5). Die erste Beladung mit angereichertem Brennstoff im äußersten Ring führt zu einer Erhöhung von k_{eff} um 1125 pcm. Die weitere Beladung sorgt dafür, dass diese Brennelemente mit dem höheren Brennstoffanteil näher an das Spallationstarget gelangen. Die Reaktivität steigt dadurch bei Nachbeladung im zweiten Schritt um 1752 pcm und erhöht sich bei den drei Letzten auf ca. 2000 pcm.

Die nötige Protonenstromstärke sinkt durch den steigenden Wert für k_{eff} . Die maximale Stromstärke von 10 mA wird in den ersten 3 Zyklen noch überschritten. Dies kann als zulässig angenommen werden, wenn die Betriebsdauer mit 10 mA verlängert wird bis die Brennelemente denselben Abbrandzustand erreicht haben wie bei normaler Betriebslänge mit überhöhter Protonenstromstärke. Nach der Einschwingphase ist der alte Brennelementtyp vollständig ersetzt. Der Abbrand dieser Brennelemente unterscheidet sich aufgrund der unterschiedlichen Verweilzeit im Kern zum Teil erheblich von denen, die in allen 5 Zyklen einen Ring weiter nach innen versetzt werden. Die Brennelemente, die am Anfang beispielsweise im ersten Ring waren, wurden nur einen statt fünf Zyklen bestrahlt. Eine weitere Behandlung dieser Brennelemente wird nicht vorgenommen, da diese lediglich zur Etablierung des Gleichgewichtszustandes benötigt wurden.

Die zweite Phase des Kerns stellt den Gleichgewichtszustand dar. Der Zuwachs des Multiplikationsfaktors k_{eff} fällt nach der vollständigen Beladung mit den angereicherten Brennelementen auf 1200 pcm (± 100 pcm). Dies hat zur Folge, dass der Betrieb mit einer Zyklenlänge von 540 Tagen gewählt wird, um den Verringerung des Multiplikationsfaktors durch Neubeladung wieder auszugleichen. Die Protonenstromstärke I und der Multiplikationsfaktor k_{eff} bleiben mit dieser Strategie in einem festen Bereich von 5.9 mA bis 8.3 mA bzw. 0.948 bis 0.960. Die Schwermetallmasse weist in diesem Betriebsmodus nach Durchlauf aller Ringzonen einen Abbrand von etwa 125 MWd/kg_{HM} auf.

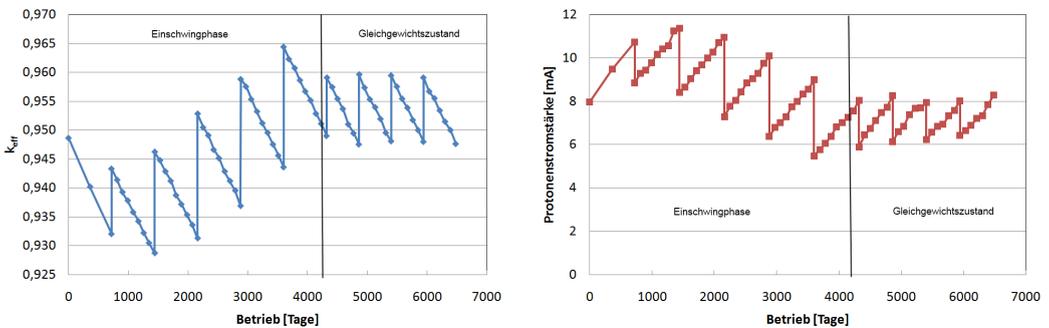


Abb. 5.5: Multiplikationsfaktor k_{eff} und Protonenstromstärke I bei Nachbeladung mit neuem TRU-Brennstoff für die Einschwingphase und den Gleichgewichtszustand

5.2.3 Shuffling

Die fortwährende Beladung mit 36 neuen Brennelementen in die äußerste Ringzone führt dazu, dass in jedem Zyklus $24 \left(\frac{6 \text{ Brennelemente}}{\text{Ringzone}} \cdot 4 \text{ Ringzonen} \right)$ Brennelemente in ein Lagerbecken ausgelagert werden ohne wieder in den Kern eingesetzt zu werden. Ziel dieses Abschnittes ist es, eine Beladungsstrategie zu entwickeln, in der alle Brennelemente einen vergleichbaren Abbrand aufweisen und ein stabiler Betrieb erreicht wird.

Im Folgenden werden zwei Shufflingsstrategien vorgestellt. Die erste Strategie *Beta* basiert darauf Brennelemente, die ausgelagert wurden, dem Kern später wieder zuzuführen, um für alle Brennelemente einen Abbrand von 125 MWd/kg_{HM} zu erreichen. Die zweite Strategie *Mix* sieht die Vermeidung einer Brennelementansammlung im Lagerbecken vor.

Bevor die beiden Strategien vorgestellt werden, ist es sinnvoll, die Positionen der Brennelemente und deren Anzahl zu beschreiben. Die Transmutationszone weist, wie in Abbildung 5.1 zu sehen, fünf Ringe um das Spallationstarget auf. Diese werden von innen nach außen mit Zone 1 (Z1) bis Zone 5 (Z5) nummeriert. Der äußerste Ring Z5 fasst 36 Brennelemente, während die Anzahl der Brennelemente je Ring näher an das Spallationstarget um 6 abnimmt (siehe Tabelle 5.6).

Tabelle 5.6: Zonen von 1 bis 5 mit entsprechender Anzahl an Brennelementen

Zone	5	4	3	2	1
Anzahl Brennelemente	36	30	24	18	12

Sufflingsroutine Beta

Die Shufflingsstrategie *Beta* nutzt die bei dem Umsetzverfahren anfallenden 6 Brennelemente je Ringzone (ausgenommen Z1) zur späteren Verwendung. Die Historie der Brennelemente wird anhand der Zonen erfasst. Ein Brennelement, welches bereits in der in Z5 und Z4 einen Abbrandzyklus vollzogen hat, weist die Kennzeichnung N2 auf. Der Buchstabe N steht für den normalen Abbrandzyklus und die Ziffer 2 für die Anzahl der Zyklen mit den Positionen Z5 und Z4, kurz (5,4). Auf diese Weise können alle Abbrandstufen in Kurzform dargestellt werden (siehe Tabelle 5.7).

Die Shufflingsmethode *Beta* basiert auf der Idee, dass aus dem Kern eine Zeitlang Brennelemente

Tabelle 5.7: Historienbezeichnung zu den Verweilpositionen der Brennelemente

Nummuklatur	Verweilpositionen Z	Nummuklatur	Verweilpositionen Z
N1	(5)	A	(5,5)
N2	(5,4)	B	(5,4,4)
N3	(5,4,3)	C	(5,4,3,3)
N4	(5,4,3,2)	D	(5,4,3,2,2)
N5	(5,4,3,2,1)	E	(5,4,3,2,1)

im Lagerbecken ausgelagert werden und zu einem späteren Zeitpunkt dem Kern wieder hinzugefügt werden, um denselben Abbrand zu erreichen wie die durchgängig bestrahlten. Die vorgestellte

Strategie sieht vor, zonenweise Brennelemente aus dem Lagerbecken wieder in den Kern zurückzuführen, um die Lagerbestände zu reduzieren. Beginnend mit der innersten Zone werden die Brennelemente in Z5, Z4, Z3 und Z2 auf ihren Positionen belassen und im innersten Ring die freien Plätze mit Brennelementen mit der Abbrandhistorie N4 aus dem Lager nachbeladen. Am Ende von diesem Zyklus sind 108 Brennelemente nicht verschoben worden, während 12 Brennelemente aus dem Lagerbecken entnommen wurden.

Die Kennzeichnung mit dem Buchstaben N ist nun nicht mehr zulässig, weshalb neue Kennzeichen für die Historie der Brennelemente benutzt werden (Tabelle 5.7). Die Verweildauer der Brennelemente in den äußeren 4 Ringzonen (A-D) wird durch eine Wiederholung der Zone beschrieben. Die beiden Gruppierungen D und E werden nach diesem Abbrandschritt aus dem Kern genommen. Der nächste Schritt würde eine aufwendige Neupositionierung der verbliebenen und im Lager befindlichen Brennelemente nach sich ziehen. Randbedingung dafür wäre die Aufrechterhaltung des Multiplikationsfaktors und die Gewährleistung eines vergleichbaren Endabbrands. Dies gestaltet sich im Rahmen dieser Arbeit als eine zu aufwendige Aufgabe, die zur Untersuchung des Transmutationsverhaltens nicht notwendig ist.

Shufflingsroutine Mix

Ein anderer Ansatz ist es keine Brennelemente in einem Lagerbecken erst einlagern zu müssen. Diese Strategie wird mit der Shufflingmethode *Mix* umgesetzt (Abbildung 5.6). Um dies leichter zu realisieren, wird als Kompromiss der Abbrand der Brennelemente von ca. 125 MWd/kg_{HM} auf 100 MWd/kg_{HM} reduziert. Dies führt zu einer Reduzierung der Verweildauer der Brennelemente von 5 auf 4 Zyklen. Damit kann die innerste Ringzone mit Brennelementen beladen werden, die bei der Versetzung sonst übrig bleiben und ins Zwischenlager müssten. Das Prinzip, die Brennelemente von außen nach innen zu verrücken, wird beibehalten. Durch das Fassungsvermögen der zweiten Ringzone von 18 Brennelementen können nur diese Anzahl von Brennelementen von außen nach innen verschoben werden. Dies stellt den Abbrandpfad I dar. 6 weitere Brennelemente können von Z5 bis Z3 verrückt werden. Aufgrund der bereits genutzten Kapazität in Z2 werden diese nach Z1 umgesetzt und weisen damit ebenfalls 4 Abbrandzyklen auf (Abbrandpfad II).

Die ausbleibenden Brennelemente, die aus Z5 und Z4 übrigbleiben, werden in mehrere Zonen umgesetzt. Aus Z4 gelangen 6 Brennelemente in Z1. Um 4 Abbrandzyklen zu vollziehen, verbleiben diese zwei Abbrandzyklen im innersten Ring (Abbrandpfad III). Gleichzeitig werden nach jedem Zyklus drei Brennelemente aus Z4 in Z5 zurückgesetzt. Da nur alle zwei Zyklen Brennelemente von Z4 in Z1 umgesetzt werden, ist diese Umsetzstrategie dauerhaft möglich. Lediglich am Anfang der Routine werden 9 Brennelemente benötigt. Die fehlenden drei Brennelemente für den Start der Shufflingroutine könnte beispielsweise mit Brennelementen aus der Einschwingphase erfolgen. Die übriggebliebenen Brennelemente aus Z5 verbleiben in dieser Zone. Damit wird die äußerste Zone (Z5) mit 27 statt 36 Brennelementen beladen. Die Materialkarten der drei unterschiedlichen Brennelementehistorien werden homogenisiert, da der Abbrand in einer Ringauflösung durchgeführt wird. Diesem Zugang stehen 18 Brennelemententnahmen aus dem Abbrandpfad I, 6 aus Abbrandpfad II und im Mittel 3 aus Abbrandpfaden III gegenüber. Damit ist eine Balance zwischen abgehenden und hinzukommenden Brennelementen erreicht.

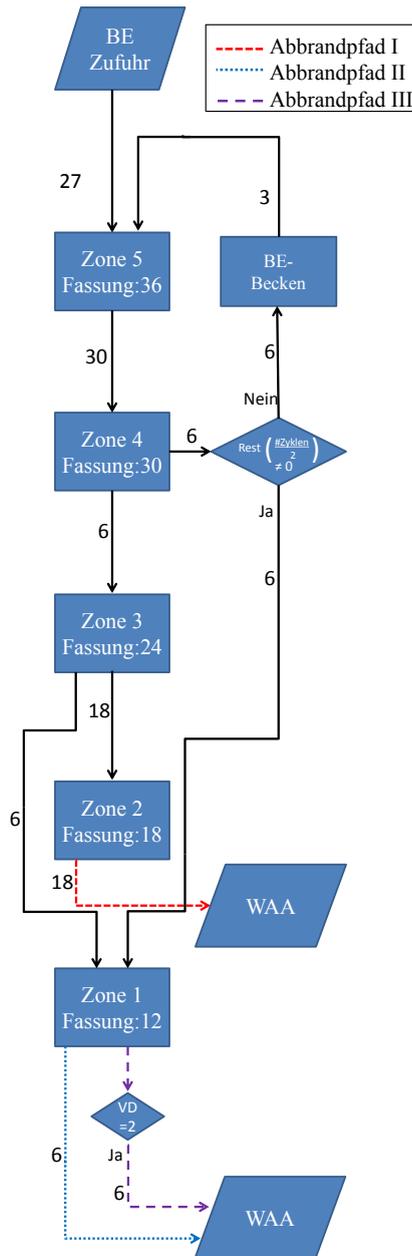


Abb. 5.6: Ablaufdiagramm für die Shufflingmethode "Mix". Die Ziffern stehen für die Anzahl der Brennelemente. Für den Abbrandpfad III ergeben sich je nach Zyklusstand unterschiedliche Versetzungen der Brennelemente, da die Verweildauer (VD) in Z1 zwei Zyklen beträgt. In Z5 verbleiben 6 Brennelemente in dieser Zone.

Simulation mit der Routine Mix

Dem Beladungsverfahren folgend werden die Brennelemente in die entsprechenden Zonen eingesetzt. Die unterschiedlichen Materialkarten werden als Vereinfachung zu einer neuen Brennelementgruppe zusammengefügt. Der Verlauf der Betriebsgrößen k_{eff} und I zeigt, dass eine Shufflingsperiode von 2 Abbrandzyklen durch die unterschiedlichen Versetzungsroutrinen entsteht (Abbildung 5.7). Bei Verbleib der Brennelemente aus Z4 im ersten Ring nach einem Abbrandzyklus und Beladung mit 6 Brennelementen aus Z3 steigt der Multiplikationsfaktor nur um 850 pcm, während dieser bei der Entnahme aller Brennelemente des ersten Ringes um 1100 pcm steigt. Dem gegenüber steht die gleichmäßige Abnahme von 1120 pcm je Zyklus. Die Protonenstromstärke steigt dementsprechend von 7.7 mA im ersten Zyklus auf 8.6 mA im zweiten. Nach mehreren Zyklen würde die Protonenstromstärke damit die 10 mA überschreiten, sodass das Konzept noch verbessert werden muss.

Als eine mögliche Option wurde die Homogenisierung des ersten Ringes aufgehoben, um die beiden unterschiedlichen Brennelemente separat zu simulieren. Dies erscheint insofern sinnvoll, als dass durch die Mittelung beider Materialkarten der Brennstoff im ersten Ring durch den höheren Abbrand von Z3 reduziert wird. Die Shufflingroutine *Mix advanced* wurde mit dieser veränderten Auflösung (Abbildung 5.8) erneut berechnet, wobei die Brennelemente symmetrisch verteilt wurden.

Der Vergleich von k_{eff} (Abbildung 5.9) zeigt keine signifikante Abweichung. Das Alternieren der Brennelementposition im innersten Ring hat ebenfalls keinen messbaren Einfluss. Es bleibt festzuhalten, dass die Berücksichtigung verschiedener Brennelementgruppen im 1. Ring bei der Simulation zu keiner Verlängerung der Betriebsdauer führt.

Eine weitere, einfachere Möglichkeit ist die Reduzierung der Zyklenlänge. Während zwei Shufflingsperioden nimmt k_{eff} Netto um 403 pcm ab. Die Abnahme ist für die Zyklen nahezu konstant, so dass durch eine Kürzung der Abbranddauer um 195 Tage bei zwei Shufflingsperioden die Abnahme ausgeglichen werden kann. Dies entspricht einer Reduzierung der Abbrandtage um 8.65 % und somit einem Endabbrand von 90 MWd/kg_{HM}.

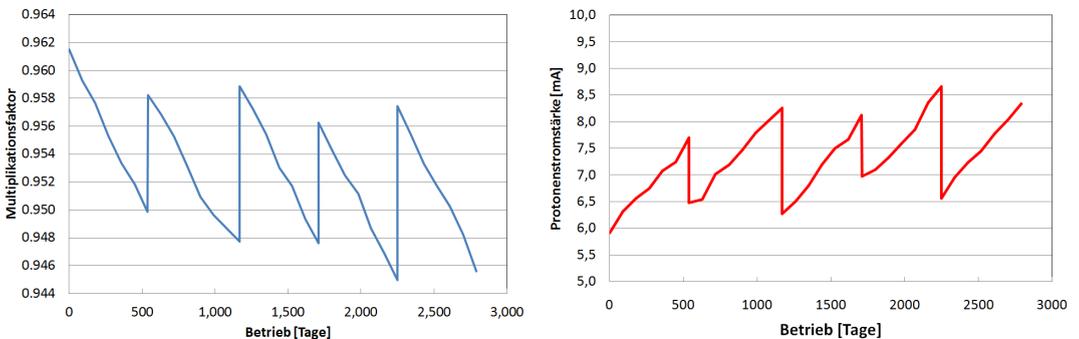


Abb. 5.7: Multiplikationsfaktor k_{eff} und Protonenstromstärke I für die untersuchte Shufflingsperiode. Eine Shufflingsperiode besteht aus 2 Zyklen, die durch den unterschiedlichen Anstieg bzw. Abfall bei Nachbeladung zu erkennen sind.

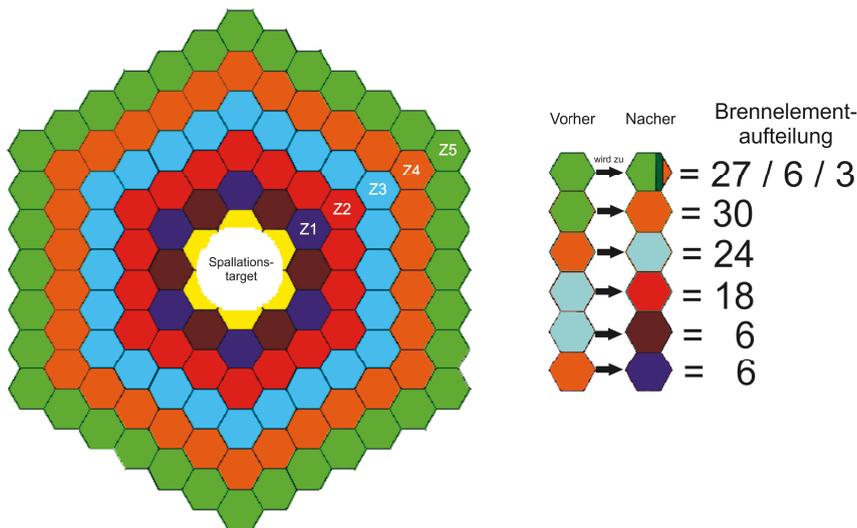


Abb. 5.8: Umsetzplan der Brennelemente für die Shufflingsroutine "Mix advanced". In Gegensatz zur Routine "Mix" wird der innerste Ring Z1 nicht mit einer homogenen Materialkarte aus Z3 und Z4 gemittelt, sondern die Materialkarten der Brennelemente separat belassen.

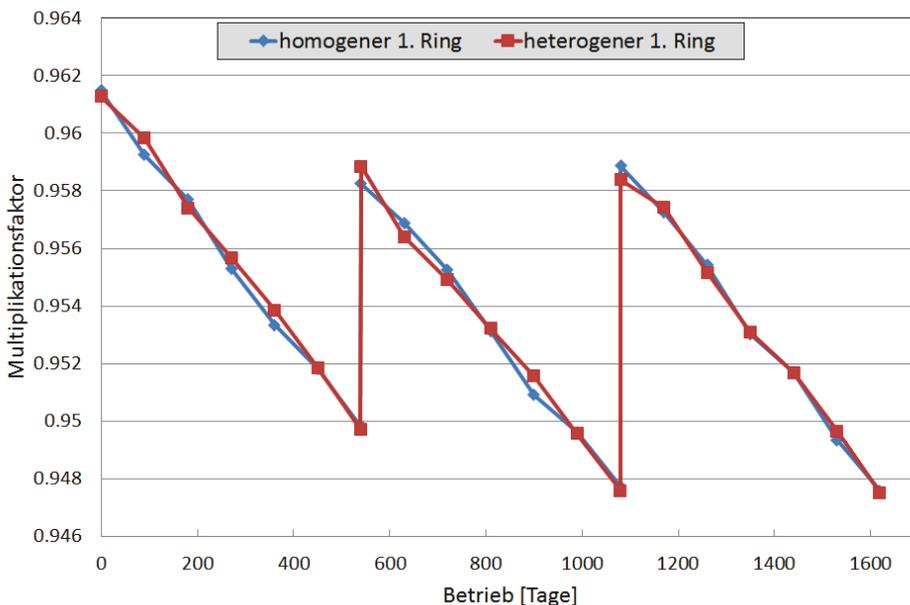


Abb. 5.9: Multiplikationsfaktor k_{eff} bei einer homogenen und heterogenen Beladung des 1. Brennelementenrings

5.3 Simulation des Betriebsverhaltens

Die Untersuchung des Brennstoffs erfolgt über die Berechnung und Auswertung mehrerer betriebsphysikalischer Größen. Diese sind neben dem Multiplikationsfaktor k_{eff} und der Protonenstromstärke I die Neutroneneffizienz φ^* , der Dopplerkoeffizient α und die aus den verzögerten Neutronen β erzeugte Leistung P_d ¹⁵. Die Parameter werden für den PuMA-Brennstoff für das Betriebskonzept Gleichgewichtskern und Shuffling untersucht.

Ein Vergleich der Änderung des Multiplikationsfaktors k_{eff} wird genutzt, um das Betriebsverhalten für die unterschiedlichen Betriebskonzepte zu untersuchen. Die Änderung von k_{eff} wird in pcm/d angegeben, wobei d für einen Tag Betrieb mit 100 MW_{th} steht. Die Protonenstromstärke I wird nicht explizit untersucht, da diese von k_s abhängig ist und bei konstanter Neutroneneffizienz φ^* wiederum von der Änderungsrate von k_{eff} bestimmt wird.

Die Abnahme von k_{eff} und der Wert für φ^* erfolgt für den PuMA-Brennstoff für alle drei Betriebskonzepte (Tabelle 5.8). Beide Größen sind für den Gleichgewichtskern und beim Shuffling nahezu identisch. Der Referenzkern weist hingegen eine höhere Abnahme als auch Neutroneneffizienz auf. Dies liegt zum einen an der unterschiedlichen Abbrandentwicklung der Brennelemente als auch an dem höheren Magnesiumvolumen im Brennstab.

Tabelle 5.8: k_{eff} -Änderung und Neutroneneffizienzfaktor φ^* für PuMA-Brennstoff in Abhängigkeit vom Betriebsmodus

Betriebsmodus	Abnahme k_{eff} [pcm/d]	Neutroneneffizienz φ^*
Referenzkern	-2.23	0.844
Gleichgewichtskern	-2.14	0.828
Shuffling	-2.12	0.830

Im Referenzkern haben alle Brennelemente zu Beginn dieselbe Brennstoffzusammensetzung und werden im Betrieb nicht versetzt. Durch die zentrale Neutronenquelle ist der Neutronenfluss im Zentrum am größten. Dies ist für alle Betriebskonzepte der Fall, wie am Gleichgewichtskern zu sehen ist (Abbildung 5.10). Der Brennstoff weist in der innersten Zone folglich einen stärkeren Abbrand auf, wobei die Masse der spaltbaren Isotope in Z1 beim Referenzkern schneller abnimmt als bei den anderen Betriebskonzepten. Die Stableistung für den 1. Brennelementring ist im Vergleich zu diesen entsprechend höher (Tabelle 5.9). Dieses Abbrandverhalten sorgt für die höhere Abnahme von k_{eff} .

Die Betriebskonzepte Gleichgewichtskern und Shuffling senken die maximale lineare Stableistung (Abbildung 5.11). Im Gleichgewichtskern ist dies am Stärksten der Fall, da die Brennelemente im innersten Ring bereits einen hohen Abbrand aufweisen, während die dahinter liegenden Brennelemente durch die stetige Nachbeladung "frischer" sind. Beim Shufflingkonzept ist zwischen zwei Abbrandzyklen zu unterscheiden, da das Versetzungsschema sich aus zwei Zyklen zusammensetzt. Im ersten gelangen Brennelemente aus Z4 mit geringem Abbrand nach Z1, was eine höhere lineare Stableistung zur Folge hat als im zweiten Zyklus. In diesem werden die Brennelemente nicht ausgetauscht und ihre Stableistung sinkt.

Der Neutronenfluss steigt während eines Zyklus um 2 % bis 4 % aufgrund des Abbrands an (Tabelle 5.10). Die durch den steigenden Protonenstrom erzeugten Spallationsneutronen werden vom

¹⁵Index d steht für delayed

umliegenden Brennstoff absorbiert, so dass ihre Wirkung im ersten Ring am größten und der Neutronenflussanstieg entsprechend erhöht ist. Beim Referenzkern ist wie bei der Stableistung ein stärkerer Anstieg im Vergleich zu den beiden anderen Betriebsmodi festzustellen.

Die höhere Neutroneneffizienz im Referenzkern folgt aus der niedrigeren Brennstoffdichte aufgrund des höheren Magnesiumanteils. Die Neutronen aus dem Spallationsprozess dringen aufgrund der geringeren Brennstoffdichte tiefer in die Transmutationszone ein. Neutronen aus dort stattfindenden Kernspaltungen weisen aufgrund des umgebenen Spaltmaterials eine höhere Spaltwahrscheinlichkeit auf als direkt am Spallationstarget, welches selbst aus nicht spaltbarem Material besteht.

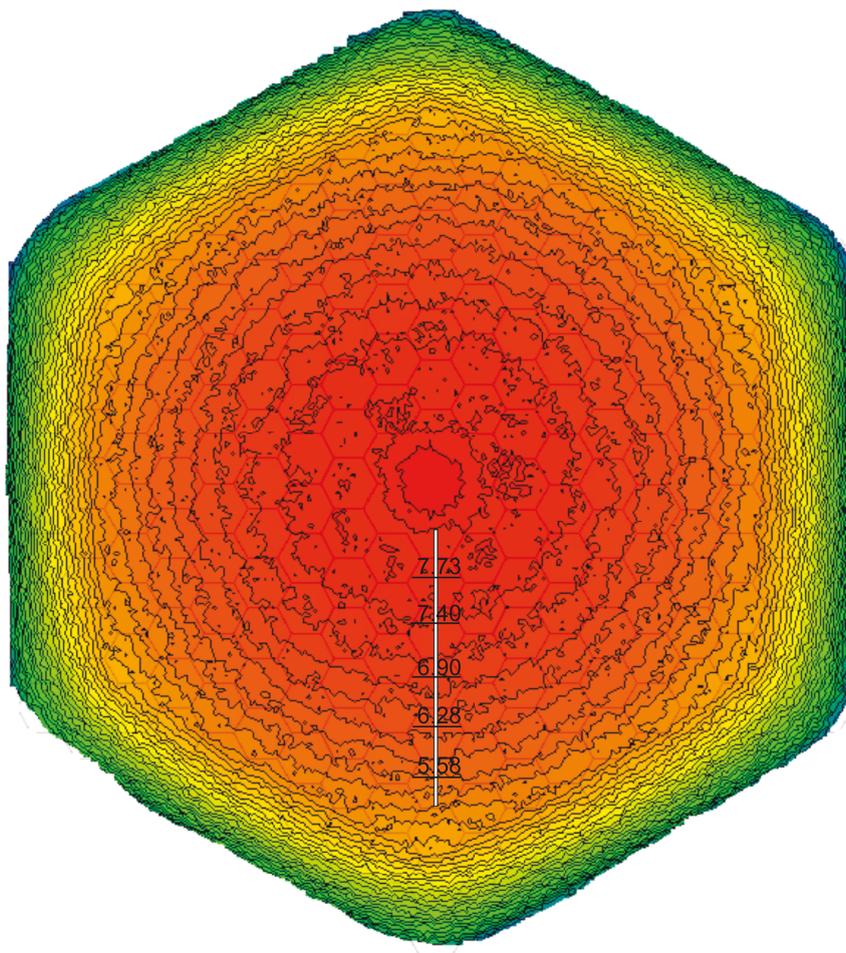


Abb. 5.10: Neutronenflussverteilung $[10^{14} \frac{n}{cm^2s}]$ im Gleichgewichtskern am Anfang des Zyklus (BOC)

Tabelle 5.9: Lineare Stableistung [W/cm] bei PuMA-Brennstoff in Abhängigkeit des Betriebsmodus. Shuffling 1 kennzeichnet dabei den 1. Zyklus der aus zwei Zyklen bestehenden Shufflingsperiode

Betriebsmodus	Z1	Z2	Z3	Z4	Z5
Referenzkern	74.8	71.0	65.4	58.5	50.7
Gleichgewichtskern	69.3	68.3	65.0	59.8	53.1
Shuffling 1	71.6	68.7	64.7	59.3	52.7
Shuffling 2	70.5	68.5	64.9	59.6	52.9

Tabelle 5.10: Zeitliche Entwicklung des Neutronenflusses in den Betriebsmodi für die jeweiligen Zonen zum Beginn des Zyklus (BOC) und am Ende des Zyklus (EOC)

Betriebsmodus	Zeitpunkt	Neutronenfluss [n/cm ² s] in Zone				
		Z1	Z2	Z3	Z4	Z5
Referenzkern	BOC	7.94E+14	7.57E+14	7.02E+14	6.36E+14	5.64E+14
	EOC	8.30E+14	7.81E+14	7.21E+14	6.52E+14	5.78E+14
Gleichgewichtskern	BOC	7.73E+14	7.40E+14	6.90E+14	6.28E+14	5.58E+14
	EOC	8.00E+14	7.61E+14	7.07E+14	6.43E+14	5.71E+14
Shuffling1	BOC	7.72E+14	7.39E+14	6.89E+14	6.27E+14	5.57E+14
	EOC	7.99E+14	7.60E+14	7.06E+14	6.41E+14	5.69E+14
Shuffling2	BOC	7.79E+14	7.44E+14	6.94E+14	6.30E+14	5.60E+14
	EOC	8.07E+14	7.66E+14	7.09E+14	6.44E+14	5.72E+14

Die Annahme einer konstanten Neutroneneffizienz φ^* wird durch den parallelen Verlauf des Multiplikationsfaktors der Spallationsneutronen k_s und des Eigenmultiplikationsfaktors des Systems k_{eff} für den Gleichgewichtskern (Abbildung 5.12) verdeutlicht. Die statistische Betrachtung der ermittelten Werte für φ^* (Abbildung 5.13a) über alle simulierten Gleichgewichtskernzyklen ergibt eine Normalverteilung. Der Wert kann für den Betrieb mit gleicher Nachbeladung als konstant angenommen werden. Die statistische Ungenauigkeit in den Abbildungen für k_s und φ^* ergeben sich aus einer Fehlerabschätzung mit $\frac{1}{\sqrt{N}}$ für k_s . Bei der Fehlerabschätzung steht N für die Anzahl der berechneten Quellteilchen (Protonen), die Spallationsneutronen erzeugen, die wiederum im Kern gemäß dem Multiplikationsfaktor k_s vervielfacht werden. Die Anzahl N ist dabei mit 60,000 Protonen im Vergleich zu 9 Millionen Quellneutronen in der KCODE-Berechnung (Quellenbeschreibung der Neutronen für kritische Anlagen, siehe Kapitel 3.1) gering, weshalb die Fluktuationen für k_s größer sind. Der Grund für die geringe Anzahl an Protonen liegt an der hohen Anzahl der resultierenden Spallationsneutronen, die nicht nur mit der Transmutationszone wechselwirken. MCNPX berechnet jedes Neutronenschicksal, weshalb die Rechenzeit entsprechend ansteigt.

Eine weitere Betriebsgröße ist der Anteil der verzögerten Neutronen. Die Betrachtung der resultierenden verzögerten Leistung für die Einschwing- und Gleichgewichtsphase beim Gleichgewichtskern zeigt den geringen Anteil von unter 5 % an der Gesamtleistung (Abbildung 5.13b). Die zeitlichen Änderungen beruhen auf der Abnahme von k_s . Ein kleinerer Multiplikationsfaktor sorgt gemäß Gleichung (2.11) für eine geringere Anzahl an verzögerten Neutronen, da die Kaskadentiefe für die Neutronenvervielfachung niedriger ist.

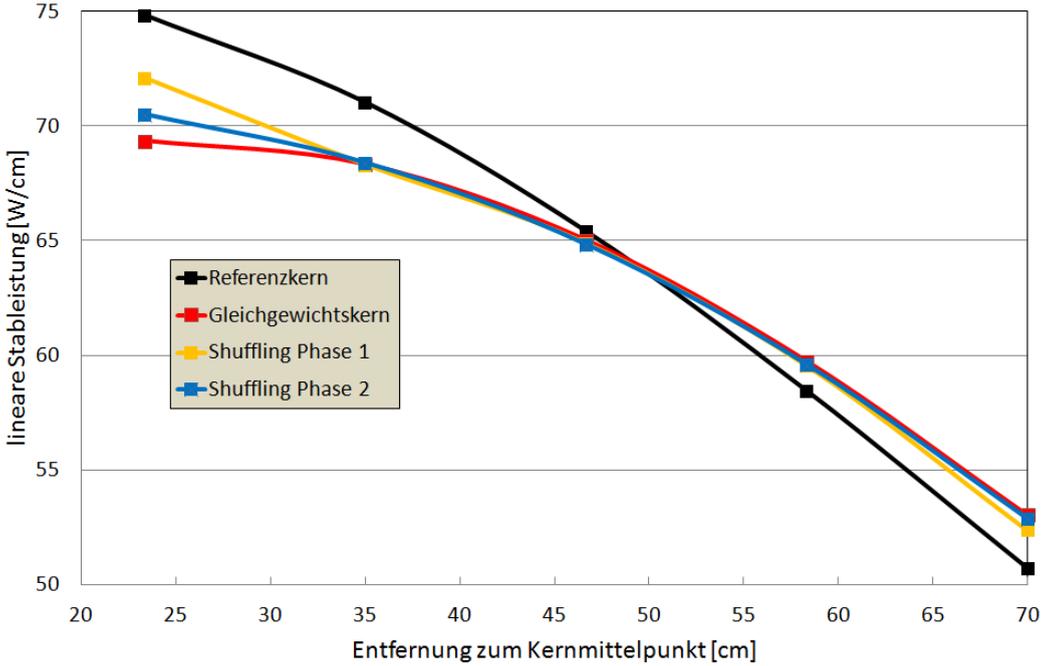


Abb. 5.11: Radialer Verlauf für die unterschiedlichen Betriebsmodi bei PuMa-Brennstoff. Die Shufflingsphase wird dabei in zwei Zyklen unterteilt; Entfernung Mittel aus kurzer und langer Entfernung im hexagonalen Brennelement

In kritischen Reaktoren stellt der Dopplerkoeffizient α eine wesentliche Betriebsgröße bei der Betrachtung neuer Brennstoffkonzepte dar. Der hohe Americiumanteil im PuMA-Brennstoff sorgt dafür, dass der Effekt der Resonanzverbreiterung bei den spaltbaren Isotopen überdeckt wird, was einen geringen Wert von -0.08 pcm/K zur Folge hat. Die Abnahme von ^{241}Am während des Betriebs hat keinen positiven Effekt, da die Masse mit 50 %wt zu groß ist. Allein die Beladung mit 10 % beim Gas cooled fast reactor (GCFR) führt zu einem Anstieg von -0.9 pcm/K auf -0.4 pcm/K [32]. Die statistische Ungenauigkeit ist aufgrund der geringen Differenz der Multiplikationsfaktoren und der relativ gesehenen hohen Standardabweichung bei der KCODE-Berechnung groß.

$$\Delta\alpha = \sqrt{\left(\frac{1}{k_1^2} \frac{\Delta k_1}{\Delta T}\right)^2 + \left(\frac{1}{k_2^2} \frac{\Delta k_2}{\Delta T}\right)^2} \quad (5.1)$$

Die Fehlerberechnung $\Delta\alpha$ führt bei einer Standardabweichung von 10 pcm bis 15 pcm für k_{eff} zu einer Ungenauigkeit von etwa 0.1 pcm/K für den Doppler-Koeffizienten α . Dies ist ein, für die Berechnung dieser Größe, bereits sehr geringe Abweichung. In thermischen Systemen liegt der Wert, abhängig vom Brennstoff, zwischen -3 bis -2 pcm/K. Die Varianzrechnung zum gemittelten Wert aus allen berechneten Punkten ergibt eine Standardabweichung von 0.06 pcm/K. Eine Reduzierung dieser Ungenauigkeit durch eine bessere Statistik erscheint zur Beurteilung der durchgeführten Untersuchungen nicht erforderlich. Für eine Halbierung der Ungenauigkeit wäre eine Vervielfachung der Rechenzeit nötig. Der gemittelte α -Wert von 0.08 pcm/K hat aufgrund der Ungenauigkeit

von 0.06 pcm/K keine Aussagekraft. Er bestätigt lediglich den Einfluss von Americium, welcher bewirkt, dass mit keiner nennenswerten Reduzierung des Multiplikationsfaktors bei Erhöhung der Brennstofftemperatur infolge des Dopplereffekts zu rechnen ist.

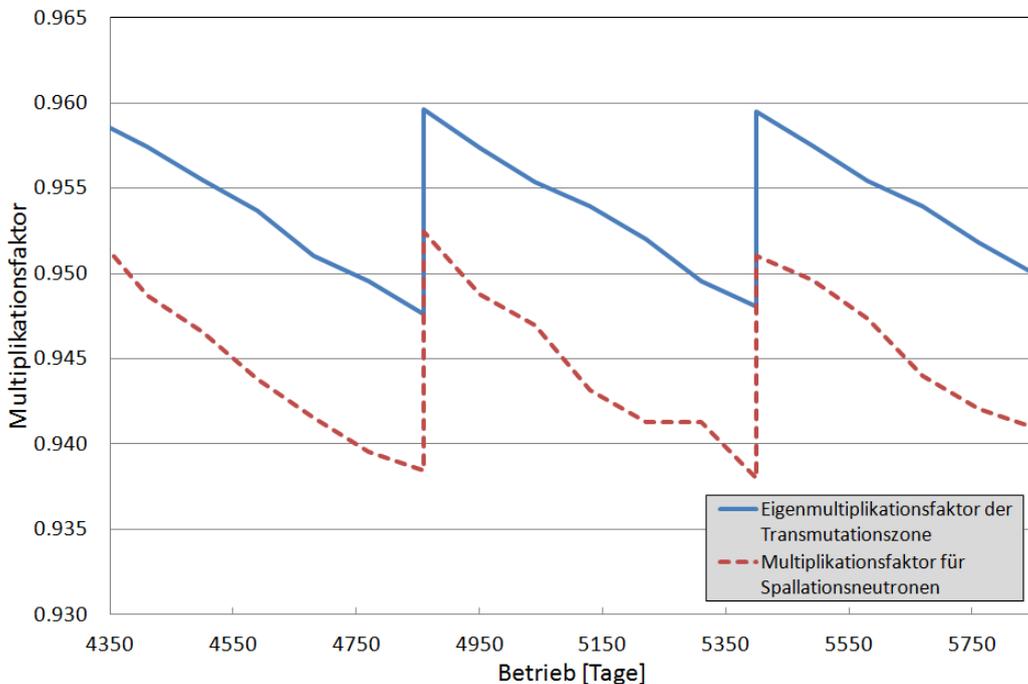


Abb. 5.12: k_s und k_{eff} für das Betriebskonzept Gleichgewichtskern bei PuMA-Brennstoff

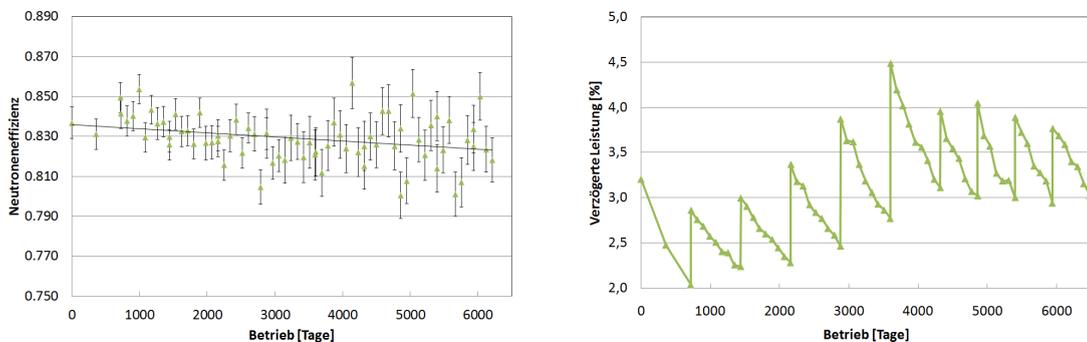


Abb. 5.13: Neutroneneffizienz φ^* (links) und verzögerter Leistung P_d (rechts) in Abhängigkeit vom Betrieb für die Einschwingphase und den Gleichgewichtskern für PuMa-Brennstoff

6 Transmutationsverhalten

Das Transmutationsverhalten transuraner Brennstoffe ist wesentlich für den Partitioning und Transmutations Prozess (P&T-Prozess). Eine eingehende Analyse der Massenänderung wird für den PuMA-Brennstoff anhand der erarbeiteten Betriebsmodi vorgenommen und ein vereinfachtes Abbrandverfahren abgeleitet. Mit diesem wird das Verhalten von Brennstoffvarianten internationaler und nationaler Entsorgungskonzepte untersucht. Die Brennstoffkonzepte in Anlehnung an internationalen Studien basiert auf einer Magnesiumomxidmatrix, während das hier gewählte Brennstoffkonzept eine Thoriumomxidmatrix verwendet.

Transmutationsrate

Die Transmutationsrate $[g/GWd_{th}]$ ist ein Maß¹⁶ für die Massenumwandlung eines Elements pro erzeugtem GWd_{th} . Sie dient zur Beurteilung mit welcher Rate Elemente in Abhängigkeit vom Abbrand abnehmen. Die Berechnung der Transmutationsrate kann mittels verschiedener Bezugspunkte erfolgen.

$$TrR_{(t_i,t)} = \frac{(m_{t_i} - m_t)}{(t_i - t) \cdot P_{th}} \quad (6.1)$$

Der Bezugspunkt t zur Bildung der Zeitdifferenz $\Delta d = t_i - t$ bestimmt maßgeblich die Massendifferenz $\Delta m = m_{t_i} - m_t$ und führt zu unterschiedlichen Raten zum Zeitpunkt t_i ; wie die Berechnung mit verschiedenen Bezugspunkten zeigt (Abbildung 6.1). Die Bezugspunkte sind: Abbrandbeginn nach Beladung ($t=0$ d), Gleichgewichtszustand für ^{242}Cm ($t=1080$ d) und der vorige Abbrandzeitschritt ($t=t_{i-1}$). Bei den Abbrandrechnungen beträgt die Dauer eines Abbrandsschritts 90 Tage.

Der Vergleich der mit diesen Punkten berechneten Transmutationsraten (TrR) für die Referenzkernrechnungen zum PuMA-Brennstoff zeigen deutliche Unterschiede. Bei Curium und Plutonium weichen die Transmutationsraten mit $t=0$ d und $t=t_{i-1}$ vom Gleichgewichtspunkt $t=1080$ d ab. Der Grund für diese Abweichung liegt bei den zu diesem Zeitpunkt ($t=0$ in beiden Fällen) fehlenden Anfangsmassen von kurzlebigen Isotopen. Die Masse von ^{242}Cm ist null, während sie im Betrieb bis 1080 Tagen ansteigt und danach langsam sinkt. Die Differenzbildung mit $m_t=0$ sorgt für einen großen Wert, der erst im längeren Betrieb aufgrund der größer werdenden erzeugten Energie P_{th} an Bedeutung verliert. Wird ein Zeitpunkt ($t=1080$ d) gewählt, in dem ein Gleichgewicht vorliegt, ist die anfängliche Einschwingphase wesentlich kürzer. Die Transmutationsrate für den Zeitpunkt $t_i=1080$ d wird aus mathematischen Gründen auf null gesetzt.

Beim Bezugspunkt $t=t_{i-1}$ werden die Ergebnisse der Simulationen für die aufeinanderfolgenden Abbrandzeitpunkte miteinander verglichen. Die Referenzkernberechnung zeigt bei Betrieb von mehr als 5 Jahren mit diesem Bezugspunkt eine Abnahme der Transmutationsrate für Americium durch die geringer werdende Menge. Dies hat direkten Einfluss auf die TrR für Plutonium, die nun vom Betrag her ansteigt, da weniger neues Plutonium über ^{242}Cm entsteht.

Der Bezugspunkt $t=0$ d ist sinnvoll, wenn die Transmutationsrate nach einer ausreichenden Abklingzeit gebildet wird, in der die Zwischenkerne weitgehend zerfallen sind. Dieser wird daher bei der Bilanz nach Beendigung der Bestrahlung verwendet. Für das Transmutationsverhalten während des Betriebs wird der Bezugspunkt $t=t_{i-1}$ gewählt.

¹⁶Eine hohe Transmutationsrate bedeutet einen hohen negativen Massenumsatz

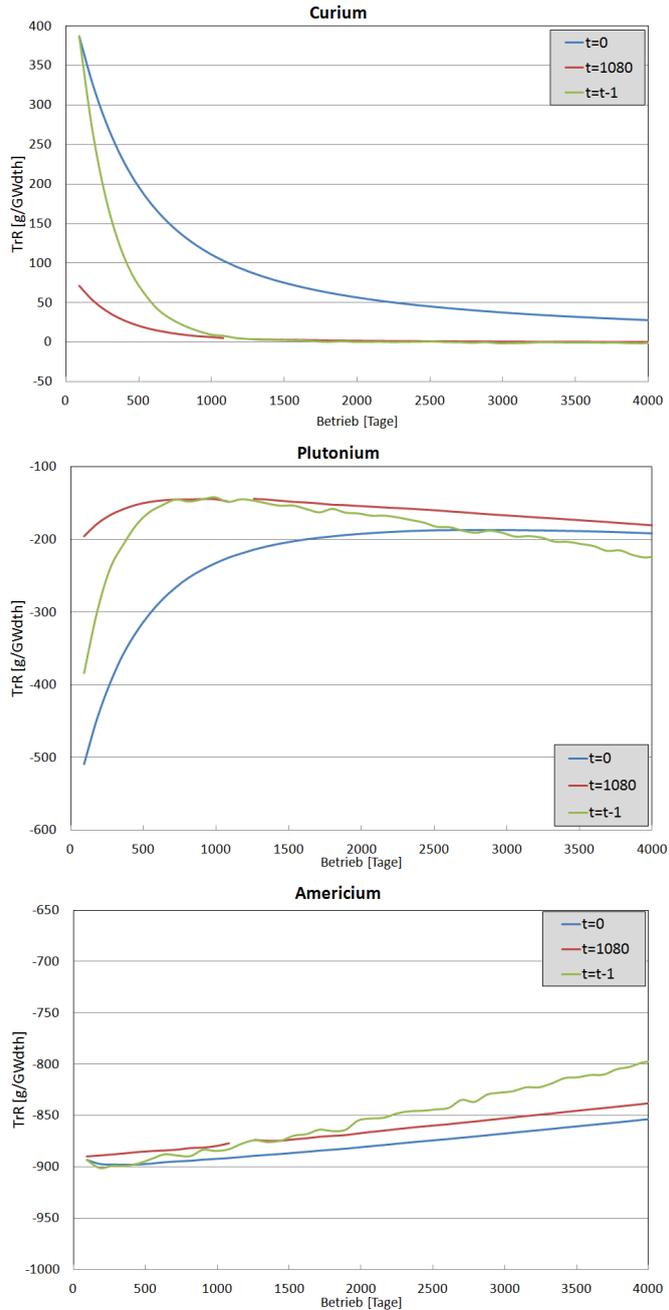


Abb. 6.1: Transmutationsrate für unterschiedliche Bezugspunkte t für die Elemente Pu, Am und Cm anhand der Referenzkernberechnung mit dem PuMA-Brennstoff. Der Wert zum Zeitpunkt $t = t_i = 1080$ d wurde aufgrund der Division durch null frei gelassen.

6.1 Brennstoffkonzepte in einer Magnesiumoxidmatrix

Der bisher angenommene Brennstoff $(\text{PuMA})\text{O}_{2-x}\text{-MgO}$, kurz PuMA-Brennstoff, beinhaltet neben dem eigentlichen Brennstoff zusätzlich Magnesiumoxid. Dieses dient als Matrix, in der die Transurane eingebettet sind. Sie verbessert die Stabilität des Brennstoffs bei hohen Temperaturen und erhöht die thermische Leitfähigkeit.

Zunächst wird das Transmutationsverhalten des PuMA-Brennstoffs (Tabelle 5.4) für alle Betriebsmodi aus Kapitel 5.2 verglichen. Mit den gewonnen Erkenntnissen erfolgt die Entwicklung eines Abbrandverfahrens, mit dem weitere Brennstoffvarianten untersucht werden. Dabei handelt es sich zum einen um ein angepasstes Brennstoffkonzept zur Transmutation allein deutscher Reststoffmengen und zum anderen um die Änderung von Magnesiumoxid zu reinem Magnesium als Trägermatrix.

6.1.1 Brennstoffvariante PuMA

In diesem Kapitel werden die Transmutationsraten für den Referenzkern, den Gleichgewichts- und Shufflingfall (siehe Betriebskonzepte Kapitel 5.2) während des Betriebes angegeben und miteinander verglichen. Anschließend folgt eine Darstellung der Abbrandzustände und eine Massenbilanz unmittelbar nach der Abschaltung und nach einer Abklingzeit von 10 Jahren.

Transmutationsrate in den Betriebsmodi

Die Transmutationsraten (TrR) für die unterschiedlichen Betriebskonzepte werden für den innersten Ring (Z1) und den äußersten Ring (Z5) sowie für den gesamten Kern (Total) ausgewertet (Abbildungen 6.2, 6.3, 6.4). Die Unterschiede und Gemeinsamkeiten bezüglich der Massenänderungen werden im Folgenden erläutert.

Die Transmutationsrate für alle relevanten Actiniden ist für den Gleichgewichtskern (GGK) in allen drei Abbildungen im obersten linken Bild angegeben. Die wiederkehrenden Muster durch stetige Neubeladung sind gut erkennbar und ändern sich durch den zyklischen Brennelementwechsel nicht.

Die Transmutationsrate der Elemente wird in den weiteren fünf Bildern für die unterschiedliche Betriebsphasen Referenzkern, Gleichgewichtskern und Shuffling gezeigt. Für Uran, Plutonium und Curium verlaufen die Werte für Referenzkern und Gleichgewichtskern bei dem ersten Zyklus (0-540 Tage) in Z5 identisch (Abbildungen 6.2). Dies liegt an der gleichen Brennstoffzusammensetzung (frischer Brennstoff) in dieser Zone. Beim Shufflingsbetrieb verbleiben teilabgebrannte Brennelemente im äußersten Ring, weshalb bereits Isotope wie ^{242}Cm , die erst im Betrieb gebildet werden, vorliegen. Dies bewirkt, dass im Shufflingsbetrieb mehr Plutonium und Uran durch Zerfall gebildet werden und dementsprechend die Transmutationsraten niedriger sind. Die Transmutationsrate für Americium ist ebenfalls niedriger, da der Anteil im Vergleich zum frischen Brennstoff bereits abgenommen hat. Dieser Effekt ist jedoch gering, so dass die Transmutationsrate mit $-930 \text{ g/GWd}_{\text{th}}$ auf sehr hohem Niveau verbleibt und verdeutlicht, dass nach wie vor hauptsächlich Americium im Brennstoff umgewandelt wird.

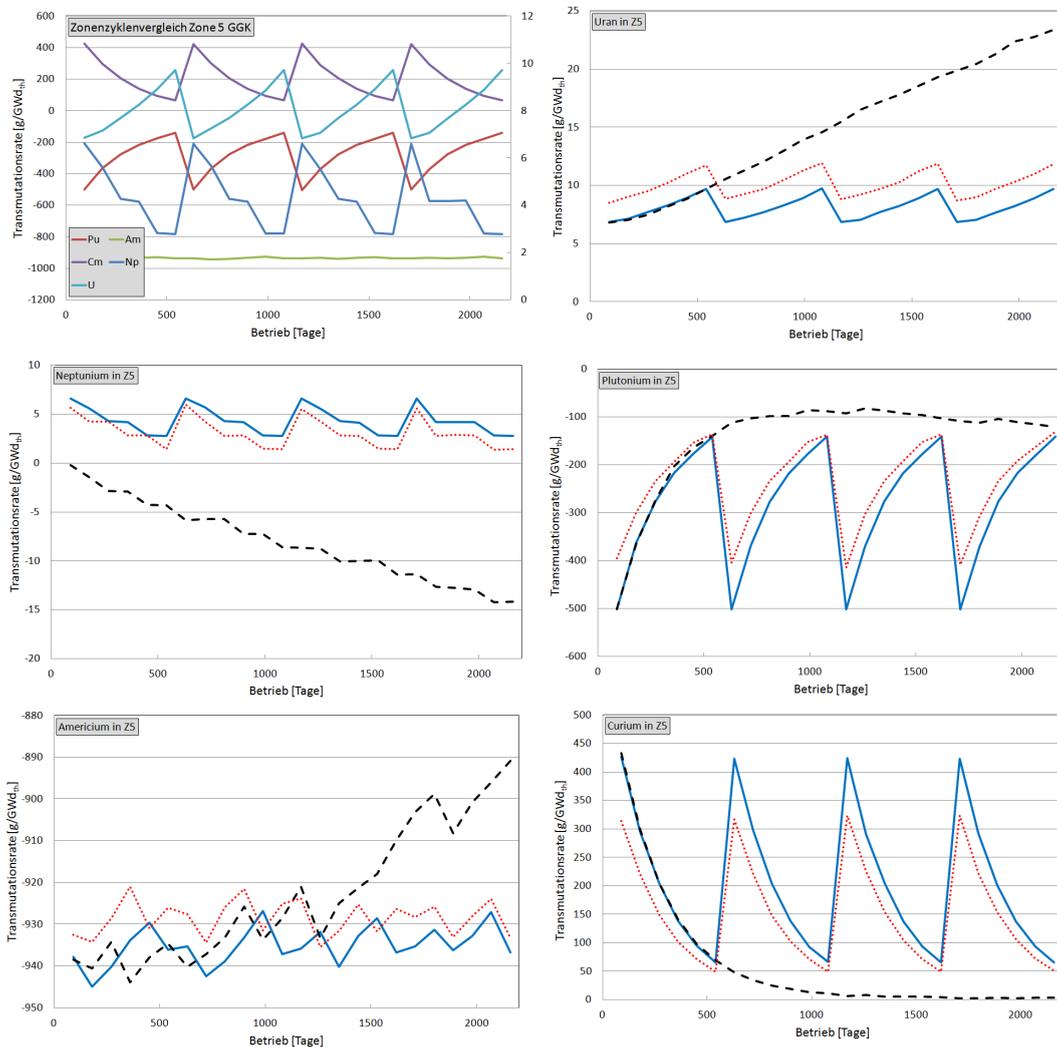


Abb. 6.2: Transmutationsrate der Elemente während des Betriebs im äußersten Ring Z5 bei unterschiedlichen Betriebsarten (Referenzkern (Striche), Gleichgewichtskern (Linie), Shuffling (Punkte)) für PuMA-Brennstoff. Die Abbildung oben links zeigt die Transmutationsraten der Elemente über mehrere Zyklen im Gleichgewichtskern (Neptunium und Uran rechte y-Achse). Die restlichen Darstellungen zeigen die Transmutationsrate der jeweiligen Elemente an.

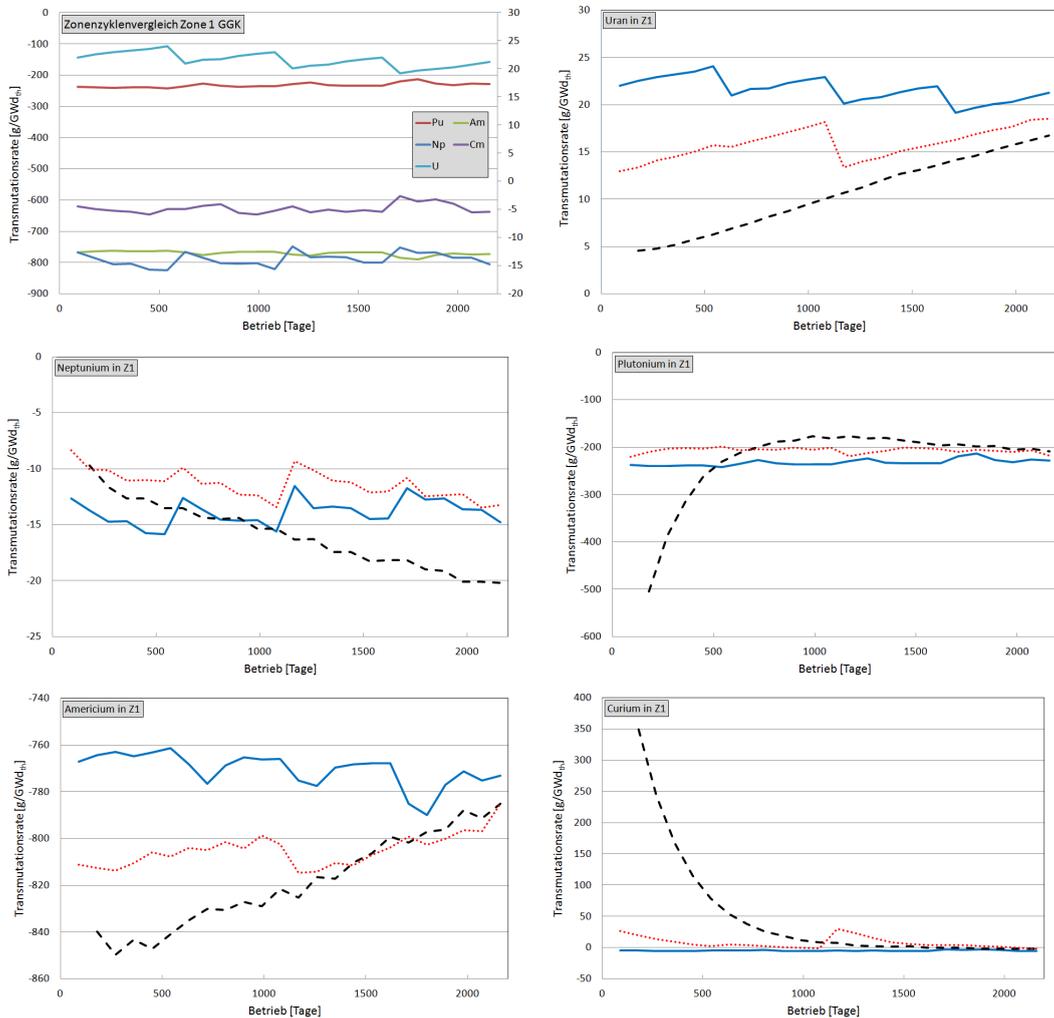


Abb. 6.3: Transmutationsrate der Elemente während des Betriebs im äußersten Ring Z1 bei unterschiedlichen Betriebsarten (Referenzkern (Striche), Gleichgewichtskern (Linie), Shuffling (Punkte)) für PuMA-Brennstoff. Die Abbildung oben links zeigt die Transmutationsraten der Elemente über mehrere Zyklen im Gleichgewichtskern (Curium, Neptunium und Uran rechte y-Achse). Die restlichen Darstellungen zeigen die Transmutationsrate der jeweiligen Elemente an.

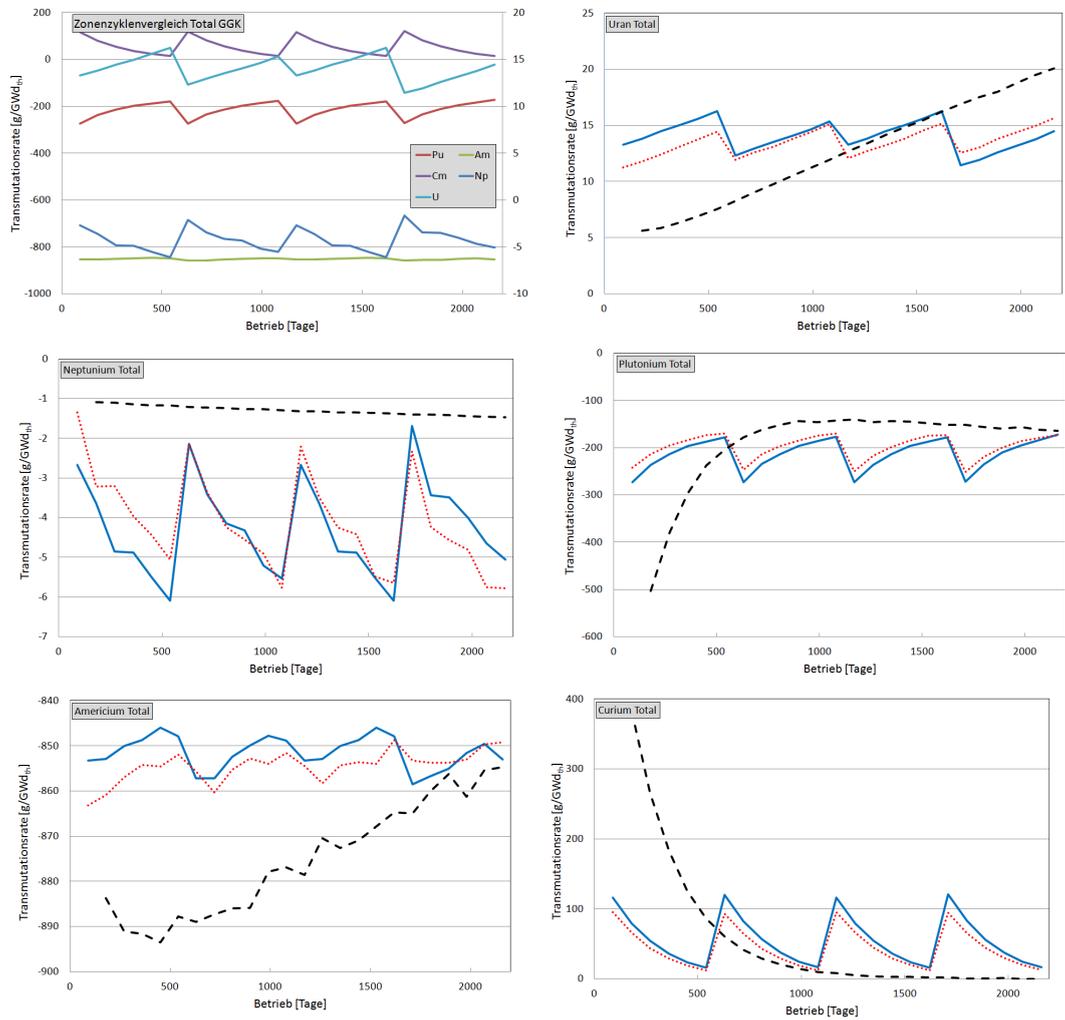


Abb. 6.4: Transmutationsrate der Elemente während des Betriebs für den gesamten Kern bei unterschiedlichen Betriebsarten (Referenzkern (Striche), Gleichgewichtskern (Linie), Shuffling (Punkte)) für PuMA-Brennstoff. Die Abbildung oben links zeigt die Transmutationsraten der Elemente über mehrere Zyklen im Gleichgewichtskern (Neptunium und Uran rechte y-Achse). Die restlichen Darstellungen zeigen die Transmutationsrate der jeweiligen Elemente an.

Die einzige Inkonsistenz liegt bei der Transmutationsrate für Neptunium, die für den Gleichgewichtskern und den Shufflingbetrieb einen ähnlichen Verlauf hat, während für die Referenzkernrechnung die Transmutationsrate stetig steigt.

Im weiteren Verlauf ist die Transmutationsrate für den Referenzkern von den anderen beiden Kurven entkoppelt, da in diesem Betriebsmodus keine wiederkehrende Neubeladung vorgenommen wird. Die Transmutationsrate für Curium strebt im Referenzkern gegen null und Plutonium stabilisiert sich bei etwa $-100 \text{ g/GWd}_{\text{th}}$.

Im innersten Ring Z1 zeigen alle drei Betriebsarten gleich zu Beginn deutliche Unterschiede (Abbildung 6.3). Während der Referenzkern mit frischem Brennstoff startet, weisen die Brennelemente in den beiden anderen Betriebsarten bereits einen Abbrand auf.

Die Transmutationsrate für Curium zeigt die Periodenlänge von 1080 Tagen (zwei Zyklen je 540 Tage) beim Shuffling. Im ersten Zyklus werden Brennelemente aus Z4 nach Z1 versetzt (siehe Betriebskonzept Shuffling Abbildung 5.6). Der Abbrand dieser Brennelemente ist geringer und der Gleichgewichtszustand für Curium ist noch nicht erreicht. Im zweiten Zyklus werden nur die Brennelemente, die aus Z3 stammen, entnommen und neu aus Z3 beladen. Ein Anstieg ist erst wieder zu verzeichnen, wenn Brennelemente aus Z4 versetzt werden.

Die Betriebsmodi Shuffling und der Gleichgewichtskern besitzen einen ähnlichen Verlauf für Americium und Plutonium. Das Niveau unterscheidet sich aufgrund einer um einen Zyklus längeren Verweildauer der Brennelemente im Gleichgewichtskern. Die Transmutationsrate für Americium ist dadurch für diesen Betriebsmodus geringer und für Plutonium folglich höher, was sich auf den Uranaufbau auswirkt.

Die Transmutationsraten für den Referenzkern gleichen sich erst im späteren Betrieb (ab 1080 Tagen) an die beiden anderen Kurven an, wenn die Bestrahlungsdauer bzw. der Abbrand der Brennelemente einen vergleichbaren Wert im Kern aufweist.

Die Betrachtung der Transmutationsrate für den gesamten Kern zeigt für den Gleichgewichtskern und Shuffling trotz unterschiedlicher Abbrandniveaus keine nennenswerten Abweichungen (Abbildung 6.4). Dies liegt auch darin begründet, dass nur 12 der 120 Brennelemente im Gleichgewichtskern den hohen Abbrand in Z1 aufweisen und der Effekt verhältnismäßig gering bleibt. Dieser geringe Unterschied ist ein interessanter Aspekt, da sich die Transmutationsraten für den wirtschaftlichen Betrieb (Shuffling) mit dem aus simulationstechnischer Hinsicht einfacheren Gleichgewichtskern-Verfahren beschreiben lässt.

Massenbilanz in den Betriebsmodi

Die graphische Betrachtung führt zu der Fragestellung, ob sich das Transmutationsverhalten des Shufflingkerns ggf. nicht nur mit dem Gleichgewichtskern, sondern auch mit dem Referenzkern beschreiben lässt. Dies ist im Hinblick auf weitere Transmutationsberechnungen von besonderer Bedeutung und wird im Folgenden eingehend untersucht.

Das zeitliche Verhalten der Referenzkurve für die verschiedenen Zonen zeigt, dass die Transmutationsrate in einer Brennelementzone vergleichbar ist, wenn die entsprechende Bestrahlungsdauer derer im Gleichgewichtskern entspricht.

Um den Massenumsatz im Shufflingsbetrieb mit den anderen Betriebsmoden abzubilden, müssen die Massenbilanzen der unterschiedlichen Abbrandpfade beim Shuffling (Abbildung 5.6) mit diesen Moden reproduziert werden können. Während für den Gleichgewichtskern und für das Shufflingverfahren hierzu die Massenänderungen in den jeweiligen Zonen berechnet und aufsummiert werden, werden aus der Referenzkernberechnung zwei alternative Werte ermittelt.

Beim ersten Berechnungsverfahren wurden die Massendifferenzen je Zone bei 1080 Tagen Betrieb betrachtet. Dies ist der Zeitpunkt, bei dem ^{242}Cm sein Gleichgewicht erreicht hat. Im zweiten wurde die Erkenntnis aus der Betrachtung der Transmutationsraten verwendet, dass nach entsprechenden Zeiten die Transmutationsrate des Referenzkerns mit der des Shuffling vergleichbar sind. In Z4 wird beispielsweise die Massendifferenz von 540 Tagen zu 1080 Tagen im Referenzkern gebildet, um denselben Abbrand wie im Gleichgewichtskern zu simulieren. Die Ergebnisse für die unterschiedlichen Abbrandpfade I, II, III sind in den Tabellen 6.1, 6.2, 6.3 aufgelistet. Die Betrachtung von ^{242}Cm und ^{238}Pu zeigt, dass die Berechnung mittels der Massendaten aus dem Referenzkern für den Zeitpunkt 1080 Tage kein zielführendes Verfahren darstellt, da die Massenbilanz eine negative Masse für ^{242}Cm aufweist. Grund dafür ist das die Konzentration dieses Isotops bei 1080 Tagen nahe ihrem Maximum ist und eine Bildung der Differenz der Masse zwischen zwei Abbrandzeitpunkten somit zu keinem Aufbau dieses Isotops führt. Die Berechnung mit der zeitlich angepassten Betriebsdauer liefert hingegen eine gute Übereinstimmung mit den Ergebnissen der Gleichgewichtskern und Shufflingsberechnungen.

Der Unterschied zwischen den Abbrandpfaden wird in Tabelle 6.4 anhand des Abbrandes eines Brennstabes in relativer Massenänderung zum Anfangszustand dargestellt. Aufgrund der höheren Leistung nahe dem Spallationstarget ist die Massenabnahme für den Abbrandpfad III um 2.75 % höher als für Abbrandpfad I. Dieser Effekt wird durch die Bildung der Abbrandpfade und entsprechender Gewichtung nach Anzahl der Brennelemente berücksichtigt.

Es zeigt sich, dass die Shufflingroutine nicht nur eine Brennelementansammlung im Lagerbecken vermeidet, sondern auch einen vergleichbaren Abbrand für alle eingesetzten Brennelemente von etwa 100 MWd/kg_{HM} gewährleistet.

Tabelle 6.1: Massenzusammensetzung für einen PuMA-Brennstab zu Beginn und bei Entnahme in einem ADS in Abhängigkeit des Abbrandpfades I für verschiedene Brennstoffmodi.

Isotope	Ladekonfi- -guration [g]	Referenzkern 1080 Tagen [g]	Referenzkern verschiedene Zeitintervalle [g]	GGK [g]	Shuffling [g]
	206.23	186.02	186.11	186.04	186.09
Am	103.89	86.59	86.59	86.72	86.80
Am241	91.60	73.88	73.74	73.86	73.99
Am242m	0.00	2.01	2.12	2.10	2.06
Am243	12.29	10.70	10.72	10.76	10.74
Cm	4.93	4.99	5.89	5.89	5.66
Cm242	0.00	-0.04	0.86	0.94	0.71
Cm243	0.06	0.06	0.06	0.05	0.06
Cm244	3.72	3.86	3.87	3.80	3.80
Cm245	1.05	0.97	0.96	0.96	0.96
Cm246	0.10	0.13	0.13	0.13	0.13
Np	4.29	4.02	4.05	4.20	4.20
Np237	4.29	4.02	4.05	4.20	4.20
Pu	93.11	90.12	89.32	88.94	89.15
Pu238	1.99	9.59	8.92	8.65	8.78
Pu239	52.76	41.85	41.68	41.67	41.77
Pu240	27.72	27.16	27.21	27.19	27.18
Pu241	2.88	2.59	2.55	2.51	2.51
Pu242	7.76	8.93	8.95	8.92	8.91
U	0.00	0.30	0.26	0.28	0.28
U234	0.00	0.27	0.23	0.25	0.25

Tabelle 6.2: Massenzusammensetzung für einen PuMA-Brennstab zu Beginn und bei Entnahme in einem ADS in Abhängigkeit des Abbrandpfades II für verschiedene Brennstoffmodi.

Isotope	Ladekonfi- -guration [g]	Referenzkern 1080 Tagen [g]	Referenzkern verschiedene Zeitintervalle [g]	GGK [g]	Shuffling [g]
	206.23	185.62	185.63	185.95	185.83
Am	103.89	86.33	86.41	86.81	86.56
Am241	91.60	73.62	73.65	74.02	73.71
Am242m	0.00	2.02	2.04	2.01	2.11
Am243	12.29	10.69	10.71	10.78	10.73
Cm	4.93	4.99	5.88	5.87	5.74
Cm242	0.00	-0.04	0.86	0.93	0.78
Cm243	0.06	0.06	0.06	0.05	0.05
Cm244	3.72	3.86	3.86	3.79	3.81
Cm245	1.05	0.96	0.96	0.96	0.96
Cm246	0.10	0.13	0.13	0.13	0.13
Np	4.29	4.00	4.02	4.19	4.19
Np237	4.29	4.00	4.02	4.18	4.19
Pu	93.11	90.00	89.04	88.79	89.06
Pu238	1.99	9.65	8.73	8.41	8.86
Pu239	52.76	41.68	41.71	41.84	41.58
Pu240	27.72	27.13	27.12	27.13	27.18
Pu241	2.88	2.59	2.56	2.52	2.51
Pu242	7.76	8.93	8.92	8.89	8.93
U	0.00	0.30	0.28	0.30	0.25
U234	0.00	0.28	0.25	0.27	0.01

Tabelle 6.3: Massenzusammensetzung für einen PuMA-Brennstab zu Beginn und bei Entnahme in einem ADS in Abhängigkeit des Abbrandpfades III für verschiedene Brennstoffmodi.

Isotope	Ladekonfi- -guration [g]	Referenzkern 1080 Tagen [g]	Referenzkern verschiedene Zeitintervalle [g]	GGK [g]	Shuffling [g]
	206.23	184.72	184.70	185.48	185.19
Am	103.89	85.76	86.02	86.74	86.11
Am241	91.60	73.06	73.43	74.11	73.29
Am242m	0.00	2.05	1.89	1.85	2.12
Am243	12.29	10.65	10.70	10.79	10.68
Cm	4.93	4.99	5.86	5.83	5.82
Cm242	0.00	-0.05	0.85	0.90	0.85
Cm243	0.06	0.06	0.06	0.05	0.05
Cm244	3.72	3.87	3.85	3.78	3.82
Cm245	1.05	0.96	0.97	0.96	0.95
Cm246	0.10	0.13	0.13	0.13	0.13
Np	4.29	3.97	3.96	4.14	4.16
Np237	4.29	3.97	3.96	4.13	4.16
Pu	93.11	89.69	88.53	88.42	88.82
Pu238	1.99	9.79	8.39	8.00	8.88
Pu239	52.76	41.32	41.71	42.02	41.34
Pu240	27.72	27.04	26.97	27.01	27.12
Pu241	2.88	2.59	2.59	2.55	2.53
Pu242	7.76	8.94	8.87	8.83	8.94
U	0.00	0.31	0.32	0.34	0.28
U234	0.00	0.28	0.29	0.31	0.25

Tabelle 6.4: Massenänderung [%] für den Gleichgewichtskern für die Abbrandpfade I, II und III unmittelbar nach Abschaltung für PuMA-Brennstoff

	Abbrandpfad			Abbrandpfad			
	I	II	III	I	II	III	
Actinide	-9.79	-9.83	-10.06				
Np	-2.00	-2.44	-3.54	Am	-16.53	-16.44	-16.50
Np237	-2.08	-2.53	-3.63	Am241	-19.37	-19.20	-19.10
Pu	-4.48	-4.64	-5.04	Am243	-12.48	-12.31	-12.22
Pu238	333.92	321.96	301.59	Cm	19.41	19.01	18.26
Pu239	-21.02	-20.71	-20.36	Cm243	-12.73	-12.45	-12.00
Pu240	-1.93	-2.15	-2.59	Cm244	2.10	1.93	1.60
Pu241	-12.80	-12.30	-11.23	Cm245	-8.97	-8.80	-8.62
Pu242	15.02	14.59	13.84	Cm246	36.51	35.86	35.22

Vergleich der Massenbilanz mit direkter Endlagerung

Zum Abschluss wird die Massenzusammensetzung, welche für verschiedene Abbrandpfade berechnet wurde, mit der des unbehandelten Brennstoffs (direkte Endlagerung) für eine Kernbeladung verglichen. Eine Abklingzeit von 10 Jahren sorgt dafür, dass alle kurzlebigen Zwischenprodukte zerfallen und eine Aussage über das Transmutationsverhalten je Element getroffen werden kann. Die Zerfallszeit für den unbehandelten Brennstoff beträgt 16 Jahre, um die Nutzungsdauer des Brennstoffs im Kern von 6 Jahren mit zu berücksichtigen.

In Tabelle 6.5 sind die Massen der verschiedenen Transurane und die Masse von ^{234}U für die direkte Endlagerung und bei einmaligem Zyklus in dem ADS mit anschließender Abklingzeit dargestellt. Bei einer Gesamtbeladung von 2 Tonnen Brennstoff nimmt Uran in dem ADS um 7 kg und Curium um 5 kg zu. Demgegenüber nimmt Neptunium um 12 kg, Plutonium um 35 kg und Americium um 163 kg ab.

Diese Ab-/Zunahme des jeweiligen Elementes ist nicht auf die einzelnen Isotope übertragbar wie das Beispiel an ^{238}Pu zeigt. Dieses Isotop weist eine relative Zunahme von 400 % auf, während die Gesamtmasse von Plutonium um 4 % abnimmt. Circa 75 kg ^{238}Pu wurden in der Anlage erzeugt, wovon ein Teil bereits in ^{234}U zerfallen ist. Die beiden größten Massenänderungen finden sich bei ^{241}Am und ^{239}Pu . Während bei Americium mindestens 2/3 der Massenabnahme von 167 kg durch Transmutation in andere Actinidenisotope erfolgt, nimmt ^{239}Pu effektiv durch Spaltung und Absorption um 108 kg ab. Der Anstieg bei Curium ist hauptsächlich auf den Aufbau von ^{244}Cm durch Neutroneneinfang in ^{243}Am zurückzuführen.

Die relative Veränderung unmittelbar nach Abschaltung (Tabelle 6.4) zeigt für ^{244}Cm lediglich eine Zunahme von etwa 2 % im Vergleich zu den bei der Bilanz aufgezeigten 28 % (Tabelle 6.5). Dies zeigt die Bedeutung des Vergleichs mit der direkt endgelagerten Masse unter Berücksichtigung der Zerfallszeit. Die Masse nimmt dort aufgrund der Halbwertszeit von 18 Jahren für ^{244}Cm ab, während der Zerfallsprozess im Betrieb durch die Neubildung durch Neutroneneinfang kompensiert wird.

Diese deutlichen Unterschiede beim Vergleich der Anfangskonfigurationen mit und ohne Zerfall spielt vorwiegend bei Isotopen mit einer Halbwertszeit eine Rolle, die im Bereich der betrachteten

16 Jahre liegen oder Zerfallsprodukte von diesen sind. ^{241}Pu ist ebenfalls ein solches Isotop, an dem sich der Unterschied zwischen reinem Zerfall und Neubildung unter Bestrahlung zeigt. Es wird während des Betriebs abgebaut (-12.5 %). Dennoch ist im Vergleich zum reinen Zerfall die Masse um 2 kg größer, welche sich durch Kernumwandlungsprozesse im Betrieb bildet.

Im Vergleich zu der Gesamtmasse der in Deutschland endzulagernden Restmenge nimmt die Americiummasse bei einmaligem Abbrand bereits um ein Hundertstel ab, was am hohen Americiumanteil im Brennstoff liegt. Es wären nur 20 komplette Neubeladungen möglich, wenn der abgebrannte Brennstoff nicht wiederaufbereitet würde, wohingegen bei Plutonium über hundert Beladungen möglich wären. Dies macht deutlich, dass der gewählte Brennstoff ein Americiumumwandler ist. Die Änderung des Brennstoffs im Hinblick auf die gleichmäßige Reduzierung aller Transurane wird in den weiterführenden Brennstoffkonzepten untersucht, um alle im vergleichbaren Maße zu vernichten.

Tabelle 6.5: Massenvergleich [kg] zwischen direkter Endlagerung nach 16 Jahren Abklingzeit und einem Zyklus in einem ADS für PuMA-Brennstoff bei einer Abklingzeit von 10 Jahren.

Isotope	direkte Endlagerung	Einmaliger Zyklus in ADS	Zunahme [kg]	rel. Änderung [%]
U234	2.29	9.51	7.22	315.91
Np237	64.80	52.62	-12.18	-18.80
Pu	913.66	878.12	-35.54	-3.89
Pu238	17.26	86.47	69.21	400.95
Pu239	518.59	410.40	-108.19	-20.86
Pu240	288.48	278.30	-10.18	-3.53
Pu241	13.09	15.28	2.19	16.72
Pu242	76.23	87.67	11.44	15.00
Am	1012.64	849.26	-163.38	-16.13
Am241	892.05	724.30	-167.75	-18.81
Am242m	0.00	19.26	19.26	
Am243	120.59	105.70	-14.89	-12.35
Cm	31.51	36.61	5.10	16.19
Cm242	0.00	0.05	0.05	
Cm243	0.42	0.42	0.00	1.12
Cm244	19.83	25.45	5.62	28.32
Cm245	10.31	9.40	-0.91	-8.85
Cm246	0.95	1.29	0.34	36.33
Total	2026.53	1827.00	-199.53	-9.85

6.1.2 Brennstoffvariante BRD

Die Abbrandberechnungen für den PuMA-Brennstoff haben gezeigt, dass bei alleiniger Nutzung eines ADS zur Verminderung der Restmenge hochradioaktiver Stoffe Plutonium im Verhältnis zu Americium nur im geringen Maße reduziert wird. Die Anpassung des Brennstofftyps für dieses Szenario sieht einen wesentlich höheren Plutoniumanteil vor, um die Restmenge in Deutschland (BRD¹⁷) nach ihrem mengenmäßigen Vorkommen zu transmutieren.

Der unterstellte BRD-Brennstoff (Tabelle 6.6) besteht mit 86 %wt vorwiegend aus Plutonium, während sich der Rest gleichmäßig auf Neptunium und Americium verteilt. Curium wird aufgrund der geringen Masse nicht berücksichtigt. Der Referenzkern wird mit dem Magnesiumvolumen von 70 % auf einen k_{eff} von 0.95 eingestellt und eine Abbrandrechnung durchgeführt.

Tabelle 6.6: Brennstoffzusammensetzung für BRD-Brennstoff nach Element und Isotop

Element		%wt	
Np/Pu/Am/Cm		7/86/7/0	

Nuklid	%wt	Nuklid	%wt
Np237	6.98	Pu241	2.65
Pu238	1.84	Pu242	7.15
Pu239	48.66	Am241	6.30
Pu240	25.57	Am243	0.85

Die Betrachtung des Multiplikationsfaktors und der dementsprechend benötigten Protonenstromstärke I für den Referenzkern zeigt die zeitliche Ab- und Zunahme dieser beiden Größen (Abbildung 6.5). Statt der Abnahme von 2.2 pcm/d für den PuMA-Brennstoff (Tabelle 5.8) beträgt diese mit 7.3 pcm/d für k_{eff} mehr als das Dreifache. Dies hat eine schnelle Entfernung vom Betriebszustand ($I < 10$ mA) zur Folge.

Der Abbrandpfad III weist mit einer Massenabnahme von 21.5 g/Brennstab im Vergleich zu den beiden anderen Abbrandpfaden einen höheren Abbrand auf (Tabelle A.3). Dies ergibt sich aus der Tatsache, dass die Brennelemente zwei Zyklen im innersten Ring verbleiben, dessen lineare Stableistung besonders im Referenzkern höher ist als in den anderen Ringen (Abbildung 5.11). Im Abbrandpfad I gleichen sich die Abweichungen des Referenzkerns zum Gleichgewichtskern und Shuffling aus, da die Brennelemente jeweils einen Zyklus in den Zonen Z5 bis Z2 verbleiben. Dieser Pfad simuliert den Abbrand von 18 der 27 Brennelemente und bestimmt die Abbrandbilanz. Die Abweichung der gespaltenen Masse ist im Vergleich zum PuMA-Brennstoff mit 1 kg (198.4 kg statt 199.5 kg) gering.

Die Abbrandrechnung wird wie für den PuMA-Brennstoff ausgewertet. Nach der Entnahme der Brennelemente folgen eine Abklingzeit von 10 Jahren und anschließend ein Vergleich des eingesetzten Brennstoffs mit dem der direkten Endlagerung. Der Abbrand ist aufgrund der geringeren Schwermetallmasse (1072 kg statt 2027 kg) mit 190 MWd/kg_{HM} fast doppelt so groß, wie für den PuMA-Brennstoff.

¹⁷Auf die Abkürzung DE wurde aufgrund der Verwechslungsgefahr mit direkter Endlagerung verzichtet.

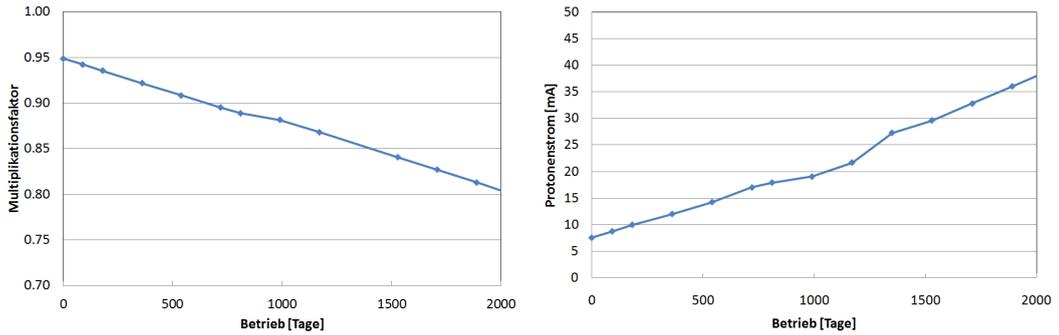


Abb. 6.5: k_{eff} (links) und der Protonenstromstärke I (rechts) im Betrieb für BRD-Brennstoff bei der Referenzkernberechnung

Die Auswertung des untersuchten Brennstoffs (Tabelle A.4) zeigt, dass dieser weniger Americium als der PuMA-Brennstoff enthält, weshalb auch weniger Plutonium neu gebildet wird. Die Masse sinkt im Vergleich zu den 35 kg beim PuMA-Brennstoff (4 %) um über 164 kg (18 %). Eine Zunahme ist bei ^{241}Pu (5 kg) und ^{238}Pu (19 kg) festzustellen. Die Isotope ^{242}Pu und ^{240}Pu nehmen mit 5.5 kg und 6 kg im Vergleich zu ^{239}Pu mit 177 kg nur in geringem Maße ab. Aufgrund des höheren Massenanteils von Neptunium im BRD-Brennstoff ist die Umwandlungsrate mit 25 kg doppelt so groß wie beim PuMA-Brennstoff. Die Massenabnahme für ^{241}Am ist aufgrund der geringeren Anfangsmasse mit 20 kg gering. Alle höheren Isotope werden im Bestrahlungsverlauf aufgebaut, da Curium nicht zu Beginn im Brennstoff enthalten ist.

Die Brennstoffänderung hat nicht nur Folgen auf das Betriebs- und Transmutationsverhalten der Anlage. Der Dopplerkoeffizient α verbessert sich während des Betriebs von anfänglich -0.28 pcm/K auf -0.45 pcm/K durch die Massenreduzierung des Americiumanteils, dessen Effekt dadurch abgeschwächt wird. Im Hinblick auf die passive Sicherheit ist der BRD-Brennstoff damit günstiger als der PuMA-Brennstoff und weist zudem mit einer Neutroneneffizienz φ^* von $0.864 (\pm 0.008)$ einen leicht höheren Wert auf.

Der BRD-Brennstoff eignet sich aufgrund der starken Abnahme des Multiplikationsfaktors nicht für das erarbeitete ADS-Konzept, weil eine höhere Protonenstromstärke benötigt wird, die über der Auslegungsgrenze liegt. Dennoch bleiben die positiven Auswirkungen des Brennstofftyps beim Dopplerkoeffizient und der Neutroneneffizienz festzuhalten.

6.1.3 Brennstoffvariante CERMET

Im Folgenden wird eine weitere Brennstoffvariation untersucht. Statt einem keramischen Brennstofftyp und einer keramischen Matrix (kurz CERCER) wird eine metallische Legierung als Matrix unterstellt. Der PuMa-Brennstoff wird daher im folgenden CERMET-Brennstoff genannt.

Die Verwendung einer solchen metallischen Legierung verbessert vor allem die Thermohydraulik. Die Matrix weist eine höhere Wärmeleitfähigkeit als keramischer Feststoff auf, weshalb die

Wärme besser abgeführt werden kann und hohe Brennstofftemperaturen vermieden werden. Der nachteilige Aspekt des Brennstoffs ist der niedrigere Schmelzpunkt was angesichts des niedrigen Claddingschmelzpunktes (823 K) keine große Rolle spielt, da eine Einhaltung der Grenztemperatur beim Cladding eine ausreichende Wärmeabfuhr aus dem Brennstoff impliziert. Die besseren thermohydraulischen Eigenschaften ermöglichen eine Reduzierung des P/D-Verhältnisses, was eine zusätzliche Optimierung am Kerndesign ermöglicht.

Die Brennstoffzusammensetzung wurde für den untersuchten Fall basiert auf dem PuMA-Brennstoff (Tabelle 6.7). Die Matrix wurde zum direkten Vergleich durch reines Magnesium statt Molybdän (^{92}Mo angereichert) ersetzt. Letzteres ist aufgrund des besseren Transmutationsverhaltens die empfohlene Matrix bei EFIT für ein ADS, auch wenn dieser in der Herstellung mit höherem technischen Aufwand und Kosten als beim Magnesiumoxid verbunden ist [78].

Tabelle 6.7: Brennstoffzusammensetzung des CERMET-Brennstoffs nach Element und Isotop

Element	%wt
Np/Pu/Am/Cm	2.1/45.1/50.4/2.4

Nuklid	%wt	Nuklid	%wt
Np237	2.08	Am241	44.41
Pu238	0.97	Am243	5.96
Pu239	25.59	Cm243	0.03
Pu240	13.44	Cm244	1.81
Pu241	1.39	Cm245	0.51
Pu242	3.76	Cm246	0.05

Die Transmutationsrate für Americium liegt im Mittel $72 \text{ g/MW} d_{th}$ unter der für den untersuchten Brennstoff mit einer Magnesiumoxidmatrix, kurz CERCER-Brennstoff genannt. Dies hat unmittelbare Auswirkungen auf den Plutoniumumsatz, der, aufgrund der geringeren Brutrate, höher liegt (Abbildung 6.6). Der Multiplikationsfaktor sinkt als Konsequenz mit 2.61 pcm/d um 17 % schneller als beim CERCER-Brennstoff. Dieser Effekt und die schwächere Transmutationsrate können jedoch durch Änderung der Brennstabgeometrie und Erhöhung des Verhältnisses von MA/Pu kompensiert werden [80]. Eine solche Optimierung wurde in dieser Arbeit nicht vorgenommen, da die Erfassung des Effekts der Geometrie und der minoren Actiniden weitere umfassende Untersuchungen erfordert, die unter anderem den Aspekt der Sicherheit (Nachzerfallswärme) und Brennstoffstabilität (Swelling, Herstellungsanforderungen) betreffen.

Die Bilanz (Tabelle A.5) zeigt - wie bei der Transmutationsrate bereits beschrieben - eine schwächere Abnahme von Americium und folglich ein stärkerer Rückgang bei Plutonium. Dieser Effekt schließt auch diejenigen Isotope mit ein, die nicht direkt durch Umwandlungspfade von Americium betroffen sind. Sie werden während des Betriebs langsamer aufgebaut.

Die Abweichungen der Systemgrößen Neutroneneffizienz φ^* und Dopplerkoeffizient α sind mit 0.819 und -0.08 pcm/K im Rahmen der statistischen Genauigkeit der Simulation für den PuMA-Brennstoff unverändert.

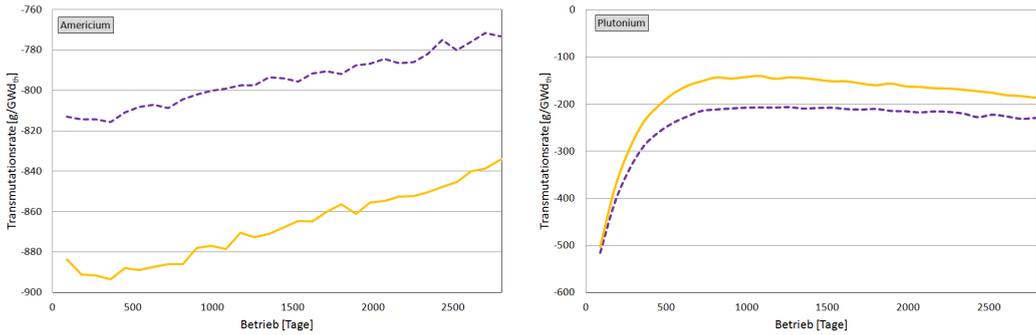


Abb. 6.6: Transmutationsrate während des Betriebs für den gesamten Kern bei Americium und Plutonium für Referenzkernberechnung bei CERCER (durchgezogene Linie) und CER-MET (gestrichelte Linie) Brennstoff

6.2 Brennstoffkonzepte in einer Thoriumoxidmatrix

Die Abbrandberechnungen mit Brennstoff mit Magnesiumoxid als Trägermatrix zeigen, dass ein Betrieb nur mit hohem Americiumanteil sinnvoll ist, um die Abnahme der Reaktivität durch den Abbrand auszugleichen (Kapitel 6.1). Ein ADS fungiert mit einem solchen Brennstoff als MA-Burner, da neben Americium noch Neptunium und Curium dem Brennstoff zugeführt werden können, während Plutonium als Neutronenquelle dient. Ist das Ziel die Vernichtung des gesamten Restbestandes des hochradioaktiven Abfalls aus deutschen Kernkraftwerken, stellt sich die Frage, welches Brennstoffkonzept hierfür geeignet ist. Thorium als Matrix bietet die Möglichkeit, sowohl die minoren Actiniden als auch Plutonium in großem Maße in einem Abbrandzyklus zu vernichten und die Reaktivitätsverluste durch ^{233}U -Aufbau während des Betriebs auszugleichen. Am Ende bleiben eine geringe TRU-Masse und das durch Transmutation erzeugte Uran übrig, welches als Brennstoff für Kernkraftwerke genutzt werden kann. Neben dem Transmutationsaspekt sind die günstigen thermohydraulischen Eigenschaften wie Schmelzpunkt und Wärmeleitfähigkeit zu nennen, die mit Uranoxid vergleichbar sind. Zudem ist Thoriumoxid sehr resistent gegenüber Strahlenschäden, was einen hohen Abbrand zulässt. Die Verwendung dieses Brennstofftyps in LWR sind in einschlägigen Arbeiten in Detail untersucht worden, wobei positive Betriebs- und Sicherheitsverhalten festgestellt wurden [30].

In diesem Kapitel werden mittels verschiedener Brennstoffvarianten die Charakteristiken des Brennstoffs mit Thoriumoxid als Trägermatrix getestet und mit einem geeigneten Brennstoffkonzept die Frage der Transmutation für die Gesamtmenge der Transurane untersucht. Zum Vergleich mit den bisherigen Brennstoffkonzepten wird als erste Variante die PuMA-Zusammensetzung verwendet. Die darauffolgende Betrachtung eines Brennstoffs ausschließlich mit Plutonium zeigt im Vergleich die mögliche Spannweite der Reaktivitätsabnahme durch und ohne Nutzung von Americium. Nach diesen beiden Konzepten wird über die Erhöhung von Americium ein Brennstofftyp ermittelt, welcher eine Reaktivitätsabnahme von maximal 2.2 pcm/d aufweist, um einen ähnlichen Betriebsablauf wie für den PuMA-Brennstoff sicherzustellen.

6.2.1 Brennstoffvariante ThPuMA

Die Verwendung von Thorium als Matrixmaterial hat eine Veränderung der Schwermetallzusammensetzung zur Folge (Tabelle 6.8). Es stellt mit über 40 %wt den größten Anteil dar und lässt die Schwermetallmasse des bisherigen Brennstoffkonzepts von 2072 kg auf 3600 kg ansteigen. Die Berechnungen wurden, wie bei den Brennstoffvarianten Pu und BRD mit einer Magnesiumoxidmatrix im Referenzkern, durchgeführt. Die wichtigsten Ergebnisse werden im Folgenden beschrieben und bei der Bewertung der Brennstofftypen zusammengefasst. Die Transmutationsbilanz und Abbrandpfade sind im Anhang aufgelistet (Tabelle A.6, A.7).

Tabelle 6.8: Brennstoffzusammensetzung des ThPuMA-Brennstoffs nach Element und Isotop

Element	%wt
Th/Np/Pu/Am/Cm	41.6/1.2/26.4/29.4/1.4

Nuklid	%wt	Nuklid	%wt
Th232	41.61	Am241	25.93
Np237	1.21	Am243	3.48
Pu238	0.56	Cm243	0.02
Pu239	14.94	Cm244	1.05
Pu240	7.85	Cm245	0.30
Pu241	0.81	Cm246	0.03
Pu242	2.20		

Das vorhandene ^{232}Th führt während des Betriebs durch Neutroneneinfang zur Erzeugung von ^{233}U . Dies ändert sowohl die Betriebseigenschaften als auch das Transmutationsverhalten gegenüber thoriumfreien Brennstoff. Die Abnahme von k_{eff} steigt auf nur -0.88 pcm/d, wodurch eine Betriebsdauer des Reaktors im Hinblick auf die Protonenstromstärke von einem gesamten Brennstoffzyklus (ca. 6 Jahre) möglich wäre, ohne die Brennelemente zu wechseln.

Die Verwendung von Thorium hat zur Folge, dass die Transmutationsrate für TRU sinkt und Uran aufgebaut wird. Die Transmutationsrate sinkt auf -976 g/GWd_{th} und -765 g/GWd_{th} für TRU bzw. MA, während Uran aus Thorium mit 201 g/GWd_{th} erbrütet wird (Tabelle 6.9). Aus diesen Raten kann nicht abgeleitet werden, wie die Beiträge der einzelnen Spaltisotope zur Gesamtleistung sind, da die Transmutationsrate für Uran sowohl ^{233}U als auch ^{234}U beinhaltet. Die Differenz (Tabelle A.6) aus Thorium und ^{233}U zuzüglich Protactinium (700 g) legt nahe, dass etwa 5 % der erzeugten Energie aus der Spaltung von Thorium erbrütetem Uran kommen und damit 95 % der Spaltungen im TRU-Brennstoff erfolgen. Dies ist auf die noch geringen Mengen des spaltbaren Urans (34 kg am Ende des Zyklus) im Vergleich zu ^{239}Pu (435 kg) zurückzuführen.

Das vorhandene Uran im Brennstoff verbessert die passiven Sicherheitseigenschaften nur gering, da der Anteil an der Spaltung mit 5 % gering ist. Bei einer weiteren Nutzung des abgebrannten Brennstoffs und einer Beimischung von ^{233}U zur Aufrechterhaltung des Multiplikationsfaktors und der stetigen Verringerung der Americiummenge werden die Systemeigenschaften zunehmend von ^{233}U beeinflusst werden.

Tabelle 6.9: Transmutationsrate für ThPuMA-Brennstoff als Ergebnis der Referenzkernberechnungen nach 10 Jahren Abklingzeit

Element	g/GWd _{th}	Element	g/GWd _{th}
Th	-227	Pu	-211
U	201	Am	-730
Np	-54	Cm	19
Elementgruppe	g/GWd _{th}	Elementgruppe	g/GWd _{th}
TRU	-976	MA	-765

6.2.2 Brennstoffvariante ThPu

Zur größtmöglichen Transmutations- und Vernichtungsrate von Plutonium wird dieses als alleiniges transuranes Element in die Thoriumoxidmatrix eingebettet (Tabelle 6.10). In diesem Sonderfall verbessern sich die Sicherheitseigenschaften des Systems aufgrund der Abwesenheit von Americium. Die Abnahme von k_{eff} wird im Vergleich zur Magnesiumoxidmatrix um die Hälfte geringer. Dennoch wäre ein Betrieb unter dem für Mg/PuMA-Brennstoff erarbeiteten Betriebskonzept mit Brennelementshuffling nicht möglich. Eine Anreicherung mit MA zur Dämpfung der Abnahme sowie zur Vernichtung dieser Elemente wird daher in Kapitel 6.2.3 untersucht.

Tabelle 6.10: Brennstoffzusammensetzung für ThPu-Brennstoff

Element	%wt		
Th/Pu	70/30		

Nuklid	%wt	Nuklid	%wt
Th232	69.91	Pu240	8.96
Pu238	0.64	Pu241	0.93
Pu239	17.05	Pu242	2.51

In der betrachteten Brennstoffvariante ist Plutonium das einzige Transuran in der Thoriumoxidmatrix. MA sind in diesem Brennstofftyp nicht enthalten und werden erst im Betrieb erzeugt, wodurch es zu Beginn nicht zur Neubildung von Plutonium durch Transmutation von Americium kommt. Der hohe Anteil von Thorium führt zu einer deutlichen Erhöhung von ^{233}U auf 81 kg am Ende des Betriebs. Dadurch sinkt k_{eff} nur um 3.1 pcm/d, während die Abnahme bei Magnesiumoxid als Trägermaterial ohne Thorium und mit geringem Americiumanteil bei 7.0 pcm/d liegt. Der Dopplerkoeffizient α verbessert sich von -0.08 auf -0.88 pcm/K, da Americium den Effekt der Resonanzverbreiterung der spaltbaren Isotope nicht mehr kompensiert.

Der Anteil der verzögerten Neutronen nimmt ebenfalls zu, wodurch die Leistung der verzögerten Neutronen P_d von 4.3 % auf 5.4 % ansteigt. Dieser Wert ist immer noch gering, da die Anlage trotz einer Vergleichsweise hohen Neutroneneffizienz von 0.89 weit unterhalb der Kritikalität arbeitet. Die Leistung wird weiterhin vorwiegend durch Plutonium erzeugt. Im Gegensatz zum ThPuMA-Brennstoff steigt die durch Uran erzeugte Leistung auf über 11 %. Die Transmutationsrate für

Uran (Tabelle 6.11) deutet zudem mit 419 g/GWd_{th} auf eine höhere Uranerzeugung hin. Die Betrachtung der Massenbilanz nach 10 Jahren Abklingzeit (Tabelle A.8) zeigt, dass trotz der intensiveren Nutzung von Uran keine höheren Uranisotope aufgebaut werden, womit auch der Aufbau neuer Transurane vermieden wird.

Tabelle 6.11: Transmutationsrate für ThPu-Brennstoff anhand Referenzkernberechnungen nach 10 Jahren Abklingzeit

Element	g/GWd _{th}	Element	g/GWd _{th}
Th	-540	Pu	-909
U	419	Am	26
Np	0	Cm	1
Elementgruppe	g/GWd _{th}	Elementgruppe	g/GWd _{th}
TRU	-882	MA	27

6.2.3 Brennstoffvariante ThBRD

Nach der Betrachtung des Sonderfalles mit alleiniger Verwendung von Plutonium, wird im Folgenden die Brennstoffvariante mit unterschiedlicher MA-Anreicherung untersucht. Ausgangspunkt ist die Beladung zur gleichmäßigen Vernichtung aller Elemente, die in Deutschland nach dem Abschalten der Kernkraftwerke vorhanden sind. Der Elementvektor basiert auf dem PuMA-Brennstoff, wobei der Curiumanteil vernachlässigt wurde. Eine Abweichung von diesem Brennstoffkonzept wird vorgenommen, um den Reaktivitätsverlust basierend auf Tabelle 5.8 auf -2.20 pcm/d zu begrenzen.

Tabelle 6.12: Brennstoffzusammensetzung [%wt] für thoriumbasierten Brennstoff

Brennstoff	Element			
	Th	Np	Pu	Am
ThBRD1	61	2	33	4
ThBRD2	57	2	32	9
ThBRD3	55	2	31	12

Die Anreicherung mit MA erfolgt anfangs mit dem Ziel alle Transurane gleichmäßig abzubrennen. Bei zu hoher Reaktivitätsabnahme wird der Anteil von Americium stetig erhöht bis ein ausreichender Wert (unter -2.20 pcm/d) erreicht wird. Die erste Brennstoffvariante ThBRD1 (Tabelle 6.12) weist mit 4 %wt einen Americiumanteil auf, der in einem kritischen Reaktor noch möglich wäre.

Die Betrachtung der Betriebsparameter (Tabelle 6.13) zeigt mit -2.97 pcm/d eine zu hohe Abnahme der Reaktivität, weshalb die Anreicherung auf 9 %wt erhöht wird (ThBRD2). Dies senkt die Abnahme der Reaktivität auf -2.40 pcm/d und führt zu einer weiteren Anhebung auf 12 %wt, die mit -2.09 pcm/d einen Betrieb mit dem ausgearbeiteten Betriebskonzept ermöglicht.

Mit der Brennstoffwahl THBRD3 könnten eine 100-MW_{th}-Anlagen mit derselben Brennstoffzusammensetzung ca. 50-mal beladen werden, ohne dass eine Wiederaufarbeitung zur Herstellung von neuem Brennstoff nötig wäre (Tabelle 6.14). Das Plutonium reicht für weitere 50 Beladungen aus, sodass das Ziel der gleichmäßigen Reduzierung nicht erreicht wird. Im Vergleich zum Mg/PuMA-Brennstoff bei dem nur 20 Beladungen mit Americium möglich waren, ist eine längere Nutzung des Brennstoffkonzeptes um das Zweieinhalbfache erreicht worden.

Die weitere Nutzung des abgebrannten Brennstoffs verändert die Elementvektoren und ändert somit die Betriebseigenschaften. Durch die Abnahme von Americium würde selbst mit dem ThBRD3-Brennstoff die Reaktivitätsabnahme den Grenzwert aus einer reinen Plutoniumbeladung erreichen. Änderungen der Brennstoffzusammensetzung, der Geometrie der Transmutationszone oder der Protonenstromstärke könnten diesem Effekt entgegenwirken. Die Option einer positiven Veränderung der Brennstoffzusammensetzung ist durch die festgelegte Restmenge nicht gegeben, weshalb nur die Änderung der Geometrie oder die Erhöhung der Beschleunigerleistung in Frage kommen. Für die Bewertung des Brennstoffkonzeptes wird eine vereinfachte Weiternutzung des Brennstoffs unterstellt, wobei ein Weiterbetrieb durch die Erhöhung der Beschleunigerleistung angenommen wird und die verbliebene Restmenge, die nach P&T übrig bleibt, in ihrer Zusammensetzung bzw. Beschaffenheit untersucht werden kann (Kapitel 8).

Tabelle 6.13: Betriebsparameter für thoriumbasierten Brennstoff

Brennstoff	Abnahme	Doppler- koeffizient	std	verzögerte Leistung	Neutronen- effizienz	Fehler
	pcm/d	pcm/K		%		
ThBRD1	-2.97	-0.40	0.02	5.2	0.867	0.021
ThBRD2	-2.40	-0.25	0.04	5.0	0.862	0.019
ThBRD3	-2.09	-0.22	0.02	4.9	0.866	0.010

Tabelle 6.14: Anzahl der möglichen Wiederbeladungen ohne Wiederaufarbeitung aus der Restmenge im Jahr 2042 für unterschiedliche Brennstoffvarianten auf Thoriumbasis

Element	Brennstoff	ThBRD1	ThBRD2	ThBRD3
	Pu	101	104	106
Np	93	85	81	
Am	138	63	48	

7 Zusammenfassung der Brennstoffuntersuchungen

Bei den verschiedenen Brennstoffvarianten wurde untersucht, welche die gleichmäßige Transmutation aller Transurane gewährleistet und gleichzeitig einen Betrieb der Anlage ermöglicht. Die Analysen des Betriebs- und Transmutationsverhaltens der in Kapitel 6 untersuchten Brennstoffvarianten sind in den Tabellen 7.1 und 7.2 wiedergegeben und wird im Folgendem zusammengefasst.

Zu Beginn wurde der Brennstoff PuMA untersucht, der sich an der Zusammensetzung an EFIT orientiert. Das Konzept der EFIT-Anlage sieht einen $^{42;0}$ -Ansatz vor, welcher das Ziel hat kein Plutonium (0), sondern ausschließlich die minoren Actiniden (42) zu vernichten. Die Zahl steht dabei für die Masse von 42 kg, die gespalten wird, um thermisch eine Energie von einer Terawattstunde (TW_{th}) zu erzeugen. Bei den minoren Actiniden handelt es sich vorwiegend um Americium, welches einen Massenanteil von etwa 50 %wt am Brennstoff aufweist. Als Folge dieses Konzepts und des Reaktordesigns schwankt der Multiplikationsfaktor bei EFIT nur leicht (200 pcm), da über Americium stetig neues Plutonium erzeugt wird.

Weiterhin werden bei der Untersuchung des Brennstoffs oft nur Transmutationsraten für Elemente unmittelbar nach der Bestrahlungszeit angegeben. Ein Vergleich der Transmutationsrate kann nur erfolgen, wenn eine Isotopendarstellung zu diesem Zeitpunkt vorliegt, um Zerfallsrechnungen durchzuführen, um die kurzlebigen Schwermetalle einem Element zuzuordnen. Dies ist für das ADS Konzept Myrrha und für den Natrium Fast Breeder Reactor (SFBR) möglich. Beide Brennstoffe wurden 10 Jahre gelagert und anschließend die Transmutationsraten mit der ursprünglichen Zusammensetzung verglichen, welche ebenfalls eine Zerfallszeit von 10 Jahre plus jeweiliger Betriebsdauer aufweist. Damit ist eine Vergleichsbasis der verschiedenen Konzepte im Hinblick auf ihre Transmutationseigenschaften gegeben.

Die Transmutationsrate für Myrrha, die dem Konzept von EFIT ähnelt, zeigt mit einer Transmutationsrate von -1106 g/GWd_{th} für Americium deutlich, dass es sich bei diesem Konzept um einen Americiumwandler handelt. Der Vergleich mit dem BRD-Brennstoffen, bei denen der Americiumanteil variiert, deutet darauf hin, dass eine Umwandlung in Plutonium vorliegt. Während für den BRD3-Brennstoff mit 12 %wt Americium die Transmutationsrate für Plutonium -563 g/GWd_{th} beträgt, ist sie beim BRD1-Brennstoff mit 4 %wt auf -765 g/GWd_{th} gestiegen. Ein klareres Bild über die Plutoniumnutzung liefert die Transmutationsrate während des Betriebs zu Beginn des Brennstoffeinsatzes. Für PuMA-Brennstoff in einer Magnesiumoxidmatrix beträgt sie -400 g/GWd_{th} und sinkt während des Betriebs auf bis zu -150 g/GWd_{th} durch Americiumtransmutation an.

Ein anderer Brennstoff mit einer hohen Transmutationsrate ist Uranoxid mit -1237 g/GWd_{th} für Uran. Ein Brennstoff, der eine ausgewogenere Transmutation der Actiniden erlaubt, wird im schnellen Natrium-gekühlten Reaktor (SFBR) angenommen. Dieses Brennstoffkonzept zeigt, dass mit einem MA-Anteil von unter 4 % der Aufbau von Transuranen trotz uranbasiertem Brennstoff möglich ist.

Die Transmutationsraten für transurane Elemente ist geeignet, um verschiedene Brennstoffkonzepte im Hinblick auf ihre Effizienz mit einander zu vergleichen. Zur detaillierten Analyse ist die Isotopenbetrachtung sinnvoll, um den Verlauf des Transmutationsprozesses im Einzelnen zu verfolgen und darüber hinaus festzustellen, welches Element zur Spaltung beiträgt und welches nur in ein anderes Actinid umgewandelt wird.

Tabelle 7.1: Transmutationsraten [g/GWd_{th}] für Brennstoffvarianten nach 10 Jahren Abklingzeit im Überblick. Uranoxid bei 50 MWd/kg_{HM}-Abbrand und 3.95 % Anreicherung

Brennstofftypen	Th	Pa	U	Np	Pu	Am	Cm	TRU	MA
Magnesium									
PuMA	0	0	36	-61	-178	-819	26	-1032	-854
BRD	0	0	10	-124	-828	-71	10	-1012	-184
CERMET	0	0	31	-56	-224	-770	20	-1030	-806
Thorium									
Pu	-540	9	419	1	-909	26	1	-882	27
PuMA	-228	3	200	-54	-212	-730	19	-976	-765
BRD1	-387	6	313	-67	-765	-96	7	-921	-156
BRD2	-351	6	284	-74	-639	-233	14	-932	-293
BRD3	-345	5	268	-76	-563	-300	17	-923	-359
Andere Berechnungen									
UOX	0	0	-1237	15	207	12	2	237	29
Myrrha [81]	0	0	27	-24	-51	-1106	154	-1027	-976
SFBR [86]	0	0	-607	-23	-310	-62	5	-393	-80

Maßstab für die Transmutationseffizienz eines Brennstoffkonzepts ist die Umwandlungsrate für die einzelnen Transurane nach ihrem Anteil an der Gesamtmenge. Dies führt zu einer geringeren Americiummenge als bei dem EFIT Konzept, da bei diesem ein hoher Anteil an Americium für den Aufbau neuen Plutoniums vorgesehen ist. Dadurch wird die Plutoniumabnahme im Vergleich zum EFIT-Konzept im geringeren Maße kompensiert und der Multiplikationsfaktor fällt für den BRD-Brennstoff in einer Magnesiummatrix um 7.30 pcm/d statt 2.23 pcm/d. Das in Kapitel 5 mit dem PuMA-Brennstoff erarbeitete Betriebskonzept ist damit nicht mehr anwendbar, da die Limitierung der Protonenstromstärke den Abbrandzyklus verkürzt.

Die Nutzung einer ThO₂- statt einer MgO-Matrix wirkt der Abnahme von k_{eff} durch Bildung von ²³³U während des Betriebs entgegen. Die Reaktivitätsabnahme beim Abbrand von PuMA-Brennstoff mit Thorium ist bedeutend geringer als beim Brennstoff mit einer Magnesiummatrix (0.88 pcm/d statt 2.23 pcm/d). Das andere Extrem bildet die Verwendung ausschließlich von Plutonium mit Thorium als Matrix. Selbst bei diesem Brennstoff beträgt die Abnahme nur 3.1 pcm/d. Eine geeignete Brennstoffvariante wird mit einem Americiumanteil von 12 %wt gewählt, weil damit die Protonenstromstärke auf 10 mA begrenzt bleibt.

Nachteilig wirkt sich die Verwendung von Thorium auf die Transmutationsraten von den Transuranen aus. Diese liegt für die BRD-Brennstoffe nur noch bei -930 g/GWd_{th} statt den -1030 g/GWd_{th}, welche sich für den PuMA-Brennstoff in einer Magnesiumoxidmatrix realisieren lässt.

Neben der Abnahme des Multiplikationsfaktors k_{eff} und den Transmutationsraten werden die Sicherheitsparameter wie der Dopplerkoeffizient, die Leistung verzögerter Neutronen sowie der VOID-Koeffizient berechnet. Dabei zeigt sich, dass die verzögerte Leistung für alle Brennstoffvarianten mit maximal 5.4 % gering ist. Demgegenüber beträgt dieser Wert 8.8 % beim MOX-Brennstoff bei einem k_{eff} -Wert von 0.968 nach Angaben aus [101].

Der VOID-Koeffizient wird vom Anteil des Americiums am Brennstoff bestimmt, da dieses Element sensibel auf das härtere Neutronenspektrum reagiert (Abbildung 2.8), und somit zu einem

Anstieg der Spaltwahrscheinlichkeit und damit zur Erhöhung von k_{eff} führt.

Der Dopplerkoeffizient ist aufgrund des hohen Americiumanteils effektiv für PuMA-Brennstoff nicht vorhanden. Für den reinen Plutoniumbrennstoff ist der Wert vergleichbar mit dem eines GCFR [32]. Die Höhe der Neutroneneffizienz verdeutlicht für alle Brennstoffvarianten mit einem Wert von 0.819 bis 0.893, dass die Quellneutronen nicht effektiv genutzt werden. Demgegenüber liegt die Neutroneneffizienz sowohl für das Blei- als auch Helium-gekühlte Konzept in [101] mit 0.986 bzw. 1.212 mit einem LBE-Target höher. Das industrielle Anlagenkonzept EFIT weist hingegen mit 0.52 eine sehr geringe Neutroneneffizienz auf, was unter anderem dem großen Targetradius zugeschrieben wird. Der benötigte Neutronenstrom von 13.4 mA ist daher trotz eines Multiplikationsfaktors k_{eff} von 0.974 sehr hoch. Der mit der Anlage realisierte maximale Abbrand beträgt 100 MWd/kg_{HM} für die Anfangsphase und ist mit den eigenen Ergebnissen vergleichbar.

Der Vergleich mit einer metallischen Trägermatrix, realisiert durch eine sauerstofffreie Magnesiumverbindung, weist eine Abnahme der Americiumumwandlung auf, sowie eine, der daraus resultierenden schwächeren Erzeugung von Plutonium folgend, stärkere Abnahme des Multiplikationsfaktors durch Abbrand auf 2.6 pcm/d. Die geringere Transmutationsrate für Americium kommt aufgrund einer höheren Spaltwahrscheinlichkeiten zustande, die aus dem Fehlen von Sauerstoff als Moderator resultiert und damit das Neutronenspektrum härter belässt.

Tabelle 7.2: Betriebsparametern des ADS für die untersuchten Brennstoffvarianten

Brennstoff	Abnahme k_{eff}	Doppler- koeffizient	std	verzögerte Leistung	Neutronen- effizienz	Fehler	VOID
	pcm/d	pcm/K		%			pcm/bar
Magnesium							
PuMA	-2.23	-0.08	0.06	3.8	0.827	0.012	24
BRD	-7.30	-0.38	0.07	4.6	0.866	0.005	2
CERMET	-2.61	-0.07	0.02	3.8	0.819	0.010	24
Thorium							
Pu	-3.10	-0.88	0.05	5.4	0.893	0.005	4
PuMA	-0.88	-0.08	0.04	4.3	0.846	0.012	24
BRD1	-2.97	-0.40	0.02	5.2	0.867	0.021	9
BRD2	-2.40	-0.25	0.04	5.0	0.862	0.019	12
BRD3	-2.09	-0.22	0.02	4.9	0.866	0.010	15

Zusammenfassend ist festzuhalten, dass sich die Brennstoffvarianten im hier untersuchten ADS unterschiedlich verhalten, woraus sich unterschiedliche Anwendungen ergeben. Ein PuMA-Brennstoff dient der Umwandlung von Americium und ist nicht nachhaltig, wenn nicht ständig ausreichend neue Mengen an diesem nachbeladen werden. In einem Brennstoffkreislauf wie 3b (Abbildung 2.7), in dem minore Actinide aus der Brennstoffnutzung in einem LWR mittels eines ADS transmutiert werden, ist dies ein langfristiges Betriebskonzept.

Ohne die weitere Nutzung der Kernenergie zur Stromerzeugung und einem nationalen Entsorgungskonzept sollte die verwendete Brennstoffvariante in einer Anlage langfristig wieder einsetzbar sein, um keine Änderungen an der Anlage vornehmen zu müssen. Brennstoffvarianten, die sich nach dem vorhandenen Lagerbestand orientieren, weisen jedoch eine schnellere Abnahme des Multiplikationsfaktors auf. Dies kann durch einen höheren Protonenstrom ausgeglichen werden,

stellt aber höhere Anforderungen an die Leistungsfähigkeit der Linearbeschleuniger und an das Wärmeabfuhrkonzept des Spallationstargets. Die Verwendung von Thorium ermöglicht einen Betrieb ohne eine starke Erhöhung des Protonenstroms. Damit ist eine Möglichkeit geboten, eine betriebsgünstige Brennstoffvariante zu entwickeln. Auf der anderen Seite wird durch die Nutzung von Thorium ^{233}U erbrütet, welches die Langzeitgefährdung auch im Hinblick auf die Proliferationseigenschaften bei einer Lagerung erhöht. Die Verwendung in ausländischen Anlagen wäre eine geeignete Option, damit ein auf Thorium basiertes Brennstoffkonzept das Ziel der Reduzierung des Gefährdungspotentials erreicht (siehe Kapitel 8.2.2).

8 P&T-Bewertung

In Kapitel 5 und 6 wurde das Betriebs- und Transmutationsverhalten von AGATE für unterschiedliche Brennstoffvarianten untersucht. Diese Untersuchungen geben jedoch keinen Aufschluss über das zeitliche Verhalten der endlagerrelevanten Größen (Nachzerfallswärme, Radiotoxizität und Aktivität). In diesem Kapitel wird die zeitliche Entwicklung dieser Größen betrachtet, um die Transmutationseffizienz ϵ_{PT} zu beurteilen.

Zur Berechnung der zeitlichen Entwicklung der endlagerrelevanten Größen ist die Kenntnis der Nuklidzusammensetzung am Ende der P&T-Phase erforderlich. Diese Kenntnis ist notwendig, da die vorhandenen Isotope nicht im gleichen Maße transmutiert werden.

Die Auswirkung der nicht gleichmäßigen Transmutation der Isotope auf die endlagerrelevanten Größen wird anhand des ThBRD3-Brennstoffs (Tabelle 6.12) bei einmaligem Abbrand verdeutlicht. Die Auswirkung bei einem abgeschlossenen P&T-Prozess setzt die Ermittlung der Nuklidzusammensetzung am Ende dieses voraus. Hierzu werden die letzten Zyklen des ADS simuliert und die resultierenden Massenverläufe dargestellt. Die berechnete Restmenge wird mit der ursprünglichen Endlagermenge aufgelistet. Anhand der Betrachtung der endlagerrelevanten Größen werden die formale Beschreibung sowie mögliche Effizienzziele des P&T-Prozesses diskutiert.

Der Abschluss der P&T-Analyse erfolgt mit einer Betrachtung der Transmutationskosten und -dauer für unterschiedliche Szenarien und Transmutationseffizienzen.

8.1 Endlagerung nach einem Abbrandzyklus

Die Betrachtung des Massenumsatzes der Actiniden zur Beurteilung der Transmutationseffizienz stellt eine Vereinfachung dar, da die Isotope nicht im gleichen Maße transmutiert werden. Eine proportionale Abnahme der endlagerrelevanten Größen gemäß dem Massenumsatz ist nicht zu erwarten. Dies wird am Beispiel des einmaligen Abbrands von ThBRD3-Brennstoff im Folgenden dargestellt.

Die Massenbilanz (Tabelle A.11) von ThBRD3-Brennstoff nach einem Abbrandzyklus mit 10 Jahren Abklingzeit zeigt eine Abnahme der transuranen Masse um 12 % auf 88 % der Ausgangsmasse. Im Vergleich zu einer direkten Endlagerung hat dies keine gleichmäßige Reduzierung der endlagerrelevanten Größen um 12 % zur Folge. Die alleinige Betrachtung der Transurane in Abbildung 8.1 zeigt einen deutlichen Anstieg aller Größen (Nachzerfallswärme, Aktivität und Radiotoxizität) in den ersten Jahrhunderten. In der Abbildung wird das Verhältnis zwischen der aus der verbliebenden Schwermetallmasse abgeleiteten Größen zu denen aus der direkten Endlagerung der ursprünglichen Schwermetallmasse gebildet. Der Anstieg zu Beginn liegt am Zerfall von kurzlebigen Actiniden wie ^{242}Cm oder ^{238}Pu . Nach 300 Jahren wird das Niveau der direkten Endlagerung unterschritten und sinkt nach 1,000 Jahren Lagerzeit auf 0.86 für alle drei Größen ab. Das Niveau steigt daraufhin langsam wieder an und übersteigt das Niveau der direkten Endlagerung bei 20,000 Jahren für die Aktivität, 30,000 Jahren für die Nachzerfallswärme und 60,000 Jahren für die Radiotoxizität. Bei 200,000 Jahren erreichen alle Größen ihr Maximum, welches für die Nachzerfallswärme und Aktivität um den Faktor 1.85 und für die Radiotoxizität um den Faktor 2.01 über dem der direkten Endlagerung liegt.

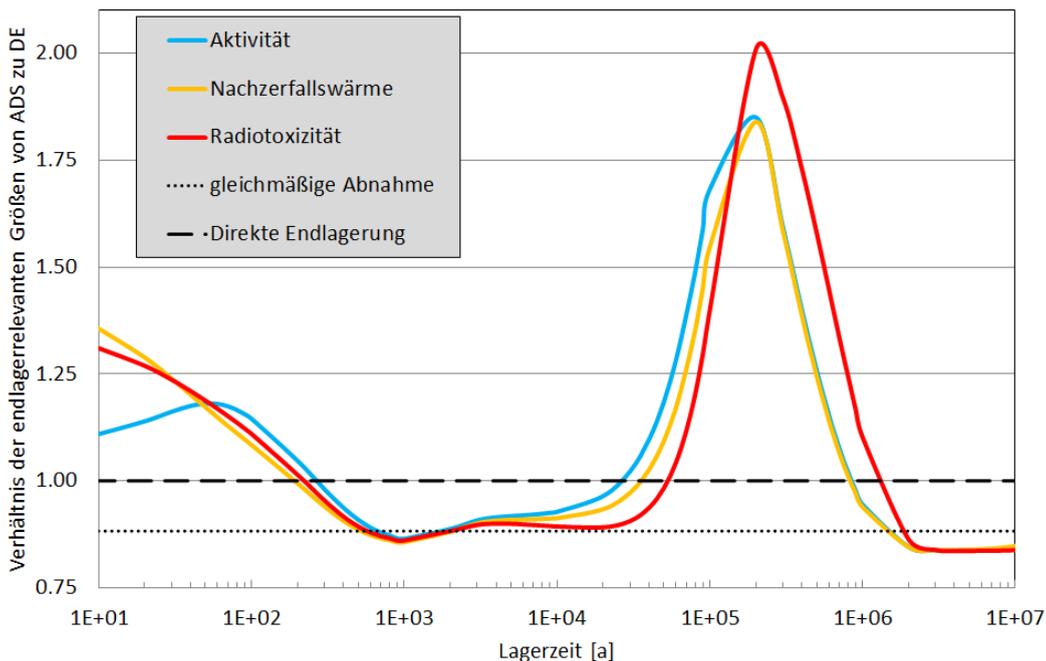


Abb. 8.1: Verhältnis der aus der Schwermetallmasse abgeleiteten endlagerrelevanter Größen von ThBRD3-Brennstoff nach einem Abbrandzyklus zu direkter Endlagerung (DE) für Transurane mit Folgeprodukten. Die gleichmäßige Abnahme (gestrichelte Linie) stellt die Reduzierung der Schwermetallmasse durch den Abbrand dar.

Erläuterung des Peaks

Das hohe Niveau bei 200,000 Jahren Lagerzeit wird maßgeblich durch das Isotop ^{238}Pu verursacht, welches durch die Transmutation von ^{241}Am gebildet wird und in ^{234}U zerfällt. Dieses bildet mit dem direkten Folgeisotop ^{230}Th ein temporäres Gleichgewicht, dessen Aktivitätsmaximum sich nach Gleichung (2.1) aus dem Maximum der Masse N_2 (^{230}Th) ergibt. Die Konzentration von N_2 zum Zeitpunkt t kann durch den Ausdruck

$$N_2(t) = \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} \cdot N_{01} e^{-\lambda_1 t} \cdot (1 - \exp^{-(\lambda_2 - \lambda_1)t}) + N_{02} \cdot e^{-(\lambda_2 t)} \quad (8.1)$$

beschrieben werden, wobei die Anfangsmasse N_{02} Null ist. Der Ausdruck $N_{01} e^{-\lambda_1 t}$ repräsentiert die zeitliche Abnahme der Anfangsmasse von ^{234}U . Für die Zerfallskonstanten gilt $\lambda_2 > \lambda_1$. Die Ableitung der Gleichung und Auflösung nach t

$$t = \frac{\ln\left(\frac{\lambda_2}{\lambda_1}\right)}{(\lambda_2 - \lambda_1)} \quad (8.2)$$

ergibt ein Maximum bei 185,000 Jahre. Diese Lösung gilt nur, wenn kein ^{234}U durch andere Zerfallsprodukte gebildet wird. Die Neubildung durch ^{238}Pu verschiebt das Maximum aufgrund der

relativ kurzen Halbwertszeit von 88 Jahren nur unwesentlich, da nach 10 Halbwertszeiten das Isotop als vollständig zerfallen angenommen werden kann, was 877 Jahren entspricht. Die Folgeprodukte bilden mit ^{230}Th ein säkulares Gleichgewicht, da die Halbwertszeiten wesentlich geringer sind. Für ein säkulares Gleichgewicht gilt, dass die Aktivität der Folgeprodukte gleich dem von ^{230}Th ist, woraus die Abnahme der Aktivität nach dem Konzentrationsmaximum von ^{230}Th folgt. Die Radiotoxizität ist bei 200,000 Jahren stärker erhöht als die Nachzerfallswärme und Aktivität. Dies liegt unter anderem am Folgeprodukt ^{210}Po , welches bei der direkten Endlagerung aufgrund der geringeren Anfangsmasse von ^{238}Pu einen kleineren Beitrag liefert. Die effektive Dosis für ^{210}Po hat sich von 0.24 auf 1.2 $\mu\text{Sv/Bq}$ [ICRP68/72] bei der Dosisbewertung erhöht, wodurch dieser Effekt verstärkt wird.

Ohne ^{238}Pu zu Beginn der Lagerung ergäbe sich immer noch ein Radiotoxizitätsniveau auf dem der direkten Endlagerung ohne eine maßgebliche Reduzierung. Dies liegt daran, dass die Masse von ^{242}Pu ($T_{1/2} = 375,000$ Jahre) im abgebranntem Brennstoff gegenüber der direkten Endlagerung erhöht ist. Die höhere Lagermenge ergibt sich aus Neutroneneinfang von ^{241}Pu und Elektroneneinfang bei ^{242}Am .

Die Transmutation von Americium in ^{238}Pu und ^{242}Pu sorgt dafür, dass langlebige Zwischennuklide wie ^{235}U , ^{236}U , ^{238}U oder ^{237}Np umgangen werden und damit eine Freisetzung der Radiotoxizität und Nachzerfallswärme auf endlagerrelevante Zeiträume (< 1 Million Jahre) anstatt auf spätere Zeiträume erfolgt. Dies wird bei der Betrachtung für Zeiträume über 1 Million Jahre ersichtlich, wo das Niveau auf einem niedrigeren Niveau als bei einer gleichmäßigen Abnahme verbleibt.

Kumulierte Wärmedeposition

Die Betrachtung der kumulierten Nachzerfallswärme an das umliegende Wirtsgestein für den bestrahlten Brennstoff in einem ADS zeigt, dass die Überhöhung zu Beginn der Endlagerung erst nach 700 Jahren auf das Niveau einer direkten Endlagerung fällt¹⁸. Bis 20,000 Jahren kommt es zu einer Reduzierung um 6 % gegenüber einer direkten Endlagerung. Das Ziel einer Wärmereduzierung wird damit für diesen Zeitraum bei einmaliger Bestrahlung in einer Transmutationsanlage erreicht.

Durch den Zerfall von ^{234}U und den Folgeprodukten erfolgt danach ein Anstieg der Nachzerfallswärme und die kumulierte Menge verbleibt von 300,000 bis 1 Million Jahre auf einem Niveau, welches 10 % über dem einer direkten Endlagerung liegt.

Sowohl bei der direkten Endlagerung als auch bei der weiteren Bestrahlung in einem ADS bleibt bei der Nachzerfallswärme über einen Zeitraum von 1 Millionen Jahren festzuhalten, dass über 30 % der Nachzerfallswärme in den ersten 10,000 Jahren freigesetzt wird.

Radiotoxizität nach Isotopen

Durch den Transmutationsprozess verändern sich die Elementvektoren und es entstehen Isotope, wie ^{238}Pu , die im thermischen Betrieb nur im geringen Maße gebildet werden. Um den Einfluss einzelner Isotope zu bewerten, wurde die Entwicklung der Radiotoxizität für ausgewählte Isotope untersucht und in Abbildung 8.2 dargestellt. Isotope wie ^{238}Pu , ^{242}Cm oder ^{244}Cm mit verhältnismäßig kurzen Halbwertszeiten sind nicht aufgeführt, da diese in eines der aufgelisteten Isotope

¹⁸durch die Aufsummierung kommt es zu Abweichung gegenüber der Abbildung 8.1

zerfallen und deckungsgleich weiter verlaufen. Isotope mit sehr geringer Radiotoxizität und/oder sehr langen Halbwertszeiten wie ^{235}U , ^{238}U sind ebenfalls nicht aufgeführt.

Es ist erkennbar, dass ^{234}U mit seiner Halbwertszeit von 245,000 Jahren in dem Zeitraum von 100,000 bis 600,000 Jahren alle anderen Isotope außer ^{233}U um mehr als eine Größenordnung übersteigt. Weiterhin ist ^{245}Cm stets unter den Isotopen mit hoher radiologischer Belastung zu finden. Beide Isotope spielen bei der radioaktiven Abfallmenge von 10,000 t aus der Nutzung der Kernenergie allerdings mit 450 kg und 75 kg nur eine untergeordnete Rolle.

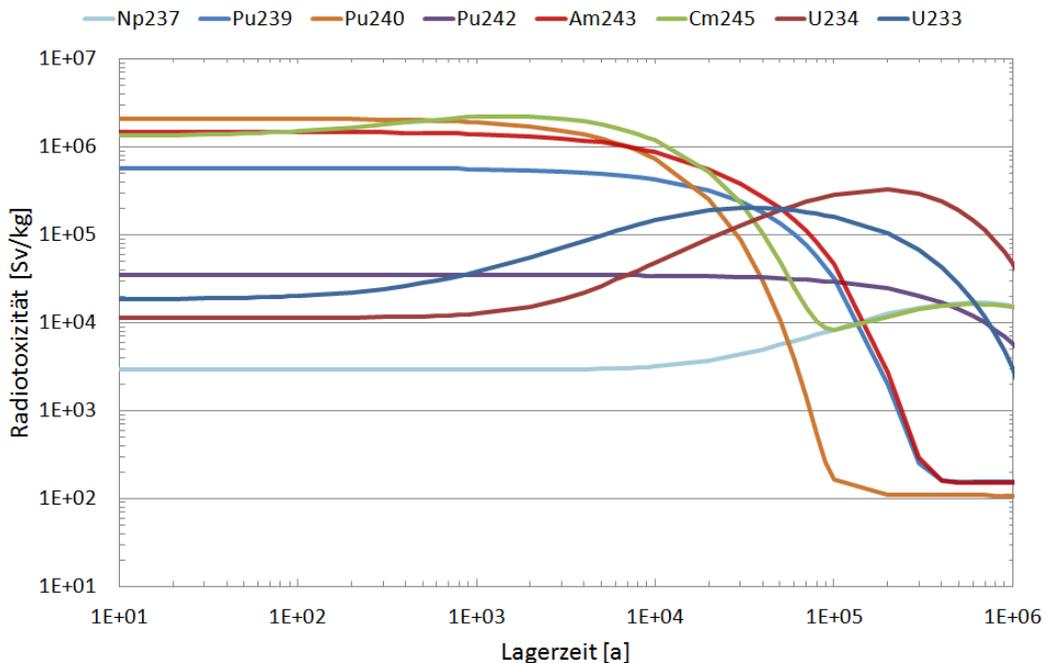


Abb. 8.2: Radiotoxizität verschiedener Isotope von je einem Kilogramm und dessen Folgeprodukte für Lagerzeiträume bis 1 Million Jahre

8.2 Abgeschlossener P&T-Prozess

Zur Potentialabschätzung von P&T ist die Nuklidzusammensetzung nach abgeschlossener Transmutationsphase erforderlich, um den zeitlichen Verlauf der endlagerrelevanten Größen zu berechnen. Zur Bestimmung der Zusammensetzung wird ein Anlagenbetrieb betrachtet, in dem die letzten Transurane vernichtet werden. Dies erlaubt es den Großteil der übriggebliebenen Mengenzusammensetzung zu bestimmen und die Entwicklung der endlagerrelevanten Größen für Endlagerzeiträume zu bewerten.

8.2.1 Nuklidzusammensetzung am Ende der P&T-Phase

Zur Berechnung der Nuklidzusammensetzung am Ende der P&T-Phase wird die Brennstoffvariante ThBRD0 mit Thorium als Trägermaterial unterstellt. Der ThBRD0-Brennstoff weist ein Mischungsverhältnis auf, das es erlaubt alle Transurane aus der Nutzung der Kernenergie bis 2022 im gleichen Maße ohne Rücksicht auf den Betriebsverlauf wieder zu beladen. Der abgebrannte Brennstoff wird aufgearbeitet und die durch den Abbrand reduzierte Transuranenmasse durch die vorhandenen Restbeständen wieder ausgeglichen, wobei der weitere Zerfall der radioaktiven Isotope nicht berücksichtigt wird. Es wird lediglich einmalig eine Lagerzeit von 20 Jahre berechnet, um die Inbetriebnahme im Jahr 2042 abzubilden. Der Betrieb wird solange fortgeführt bis keine Restbestände mehr vorhanden sind.

Abbildung der Endphase des Anlagenbetriebs

Die Brennstoffzusammensetzung bei der letzten Nachbeladung abzubilden ohne dabei die gesamte P&T-Dauer simulieren zu müssen, wird erreicht indem die der Abbrandzustand zum Zeitpunkt der Stilllegung der Anlage simuliert wird. Dafür wird die Massenentwicklung der Transurane von einer einzigen ThBRD0-Beladung verfolgt (Abbildung 8.3). Die Schwermetallmasse nimmt mit jedem Zyklus stetig ab und der Kern muss mit neuem Brennstoff nachbeladen werden. Diese Nachbeladung erfolgt mit Thorium und Uran. Es wird angenommen, dass das Abbrandverhalten bei einer Beladung mit Thorium und Uran dasselbe ist wie bei einer Beladung mit Transuranen. Auf diese Weise kann die Massenentwicklung der ThBRD0-Beladung verfolgt werden ohne dass sich die Nachbeladung mit dieser Menge vermischt. Die einzige Ausnahme bildet der Zerfall in ^{234}U , welches auch durch eine (n,γ) -Reaktion von ^{233}U entsteht. Die Menge ist bei den Transuranen im Vergleich sehr gering, so dass dieser Effekt sich nicht signifikant auf die spätere Betrachtung der endlagerrelevanten Größen auswirkt.

Auf diese Weise werden 10 Abbrandzyklen mit dem Referenzkernkonzept (Kapitel 5.2.1) simuliert und die Abnahme der gesamten TRU-Menge errechnet. Diese nimmt mit jedem Zyklus weiter ab und beträgt bei einer Endlagerung nach 10 Zyklen nur noch 30 % der Gesamtbeladung des Kerns ausmachen (Tabelle 8.1).

Mit der Berechnung der Abnahme der gesamten TRU-Masse kann der Massenanteil einer Nachbeladung (Massendifferenz durch Abbrand) verfolgt werden, um die Gewichtung jeder Nachbeladung zu ermitteln. Die Abbrandberechnungen starten mit 100 % Transurane. Bei jeder folgenden Nachbeladung wird ein Thorium-Uran-Gemisch verwendet. Durch die geringer werdende TRU-Masse

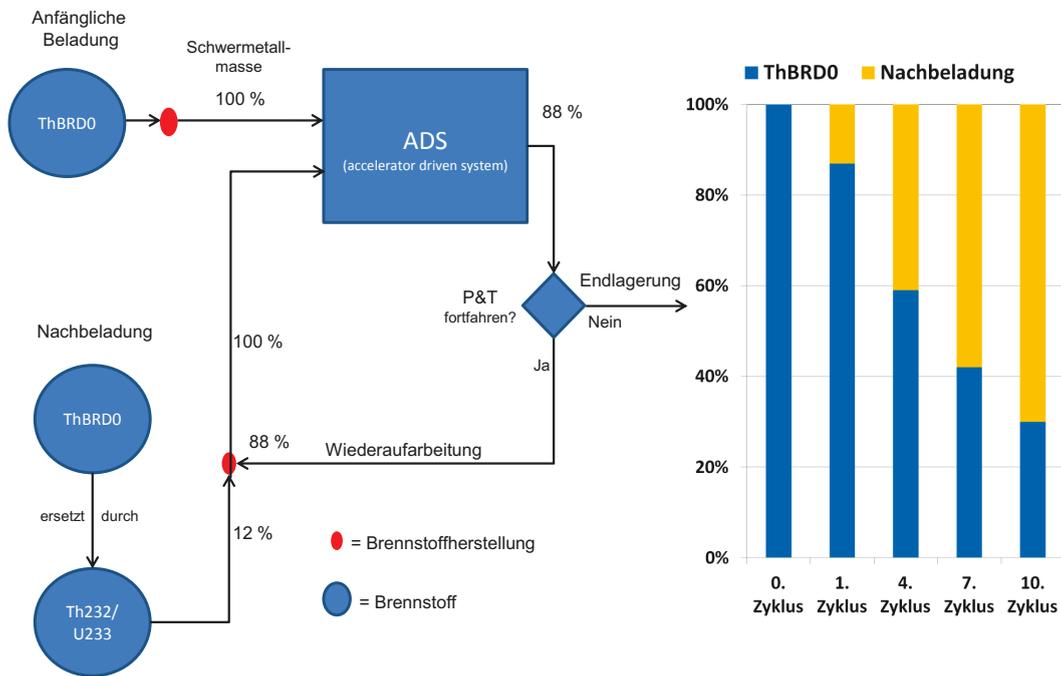


Abb. 8.3: Schema zur Massenentwicklung einer ThBRD0-Beladung in einem ADS bei mehrmaliger Rezyklierung. Die Brennstoffherstellung bei der Wiederaufarbeitung erfolgt bei der Simulation durch ein Th232/U233-Gemisch anstatt aus Lagerbeständen mit Transuranen. Dies dient der klaren Separation von Nachbeladung und anfänglicher Brennstoffmenge. Der Anteil der Anfangsbeladung(ThBRD0) nimmt mit jedem Zyklus ab und stellt damit einen immer geringeren Teil bei Beendigung des Transmutationsprozesses dar.

wird deren Abnahme je Abbrandzyklus geringer und sinkt von anfänglich 12.9% im 1. Zyklus auf 3.4 % im 10. ab. Auf diese Weise kann die Massenabnahme einer anfänglich vollständigen Kernbeladung in Abhängigkeit der Anzahl der Abbrandzyklen dargestellt werden (Tabelle 8.1). Eine Masse, die bereits zehn Zyklen im Reaktor durchlaufen hat, besitzt noch 30.4 % ihrer TRU-Anfangsmasse. Eine Nachbeladung von 12.9 % macht nach 10 Zyklen 3.9 % der gesamten Beladung aus. Mit 10 Abbrandzyklen kann durch Aufsummierung aller Massenanteile über 82 % einer TRU-Beladung abgebildet werden. Die jeweiligen Gewichtungsfaktoren werden auf eins normiert und für die anschließende Massenberechnung verwendet.

Tabelle 8.1: Ermittlung der Brennstoffzusammensetzung bei der letzten Beladung mit ThBRD0-Brennstoff. Dargestellt ist die Massenabnahme einer vollständigen Kernbeladung mit der Anzahl der Abbrandzyklen. Zudem wird der Massenanteil einer Nachbeladung (12.9 %) verfolgt und die Summe von 10 Nachbeladungen auf 100 % normiert.

Abbrand- zyklus	Massenverbleib der TRU [%]	Abnahme je Zyklus [%]	Massen- anteil [%]	Normiert [%]
0	100	0.00	12.9	15.8
1	87.1	12.9	11.2	13.8
2	76.3	10.8	9.8	12.1
3	67.2	9.1	8.7	10.6
4	59.4	7.8	7.7	9.4
5	52.7	6.7	6.8	8.3
6	46.9	5.8	6.1	7.4
7	41.9	5.0	5.4	6.6
8	37.6	4.3	4.9	5.9
9	33.8	3.8	4.4	5.3
10	30.4	3.4	3.9	4.8
		Σ	82	100

Weiterer Betrieb mit Thorium als Brennstoff

Zur Berechnung der Massenzusammensetzung der TRU-Menge in einem Reaktor wurde bei der Nachbeladung ^{232}Th und ^{233}U unterstellt, obwohl dies in der Realität mit Transuranen erfolgen würde. Erst wenn keine Transurane mehr zur Verfügung stehen, würde im realen Betrieb das Thorium-Uran-Gemisch verwendet werden, um die Transurane zu substituieren. Dabei wird das Verhältnis von Thorium zu ^{233}U so gewählt, dass der anfängliche Multiplikationsfaktor 0.97 beträgt.

Die Nachbeladung mit Thorium und Uran erfolgt solange bis bei einem Abbrandzyklus weniger als 50 % des Abbrands auf die Vernichtung der Transurane zurückzuführen ist. Da ab diesem Zeitpunkt vorrangig der Ersatzbrennstoff aus Thorium und Uran vernichtet wird, wird ein Betrieb als nicht mehr zweckmäßig angenommen. Dieser Zeitpunkt kann aus den durchgeführten 10 Abbrandzyklen bestimmt werden und es zeigt sich, dass bereits nach 5. Abbrandzyklen die Anlage ihren Betrieb als Transmutationsystem einstellt.

Massenentwicklung nach Abbrandzyklen

Es werden fünf weitere Abbrandzyklen mit Thorium-Uran-Gemisch durchgeführt, um die Masse der Transurane weiter zu reduzieren. Damit ergeben sich 15 Abbrandzyklen, die mit einem Thorium-Uran-Gemisch nachbeladen werden. Der Massenverlauf für jedes Element und dessen Isotope wird im Folgenden betrachtet (Abbildung 8.4, 8.5).

Protactinium und Curium sind die beiden einzigen Elemente deren Masse durch Neutroneneinfang mit der Zeit zunimmt. ^{231}Pa mit einer Halbwertszeit von über 32,000 Jahren wird dabei stetig

aufgebaut, während ^{233}Pa als ein Zwischenprodukt über einen β^- -Zerfall kontinuierlich in Uran umgewandelt wird. Trotz der kurzen Halbwertszeit von 27 Tagen ist der Verlauf streng monoton steigend, da zur Berechnung der Abbrandzyklen keine Wiederaufarbeitungszeit berücksichtigt wurde. Der durchgängig angenommene Betrieb ist auch bei ^{242}Cm zu beobachten. Dem einmaligen Anstieg im ersten 1. Zyklus folgt der stetige Rückgang aufgrund der gleichzeitigen Abnahme des Brutisotopes ^{241}Am . Die höheren Curiumisotope werden hingegen aufgebaut, wobei ^{244}Cm den größten Anteil darstellt.

Der Verlauf von Uran zeigt die Beladung mit ^{233}U nach jedem Zyklus. In den ersten drei Zyklen reicht die Neubildung durch Thorium aus, um die Masse des Isotops zu halten oder steigen zu lassen. Erst ab dem 4. Zyklus findet eine Nettoabnahme des eingesetzten Brennstoffes statt. Am Ende des 15. Abbrandzyklus beträgt die Massenabnahme von ^{233}U 99.5 % der im Zyklus zugeführten Masse. Zu diesem Zeitpunkt wird über 85 % der Spaltenergie durch Uran erzeugt. Durch die hohe Spaltwahrscheinlichkeit von ^{235}U werden höhere Isotope nur in geringem Maß aufgebaut. Daher sind nur die Isotope ^{233}U und ^{234}U für die Endlagerbetrachtung von Bedeutung.

Plutonium stellt zu Beginn mit beinahe 1.2 Tonnen den Hauptteil der Transurane dar. Die starke Abnahme von ^{239}Pu gerade zu Beginn der Abbrandrechnung wird durch die Nachbeladung mit Uran ausgeglichen. Bis auf ^{238}Pu nehmen alle Isotope ab. Im Betrieb steigt die Masse für dieses Isotop mehrere Zyklen lang an und nimmt nach Durchlauf eines Maximums wieder ab. Am Ende erreicht die Masse das nahezu gleiche Niveau wie zu Beginn (Abbildung 8.4). Der negative Einfluss auf die Endlagerung im Bereich von einigen hunderttausend Jahren, der von diesem Isotop ausgeht (Abbildung 8.1), wird damit im Vergleich zur direkten Endlagerung nicht abgemildert. Der relative Massenanteil von ^{238}Pu im Plutonium steigt von 2.15 % (Beginn 1. Zyklus) auf 9.85 % (Ende 15. Zyklus), da die anderen Isotope abnehmen.

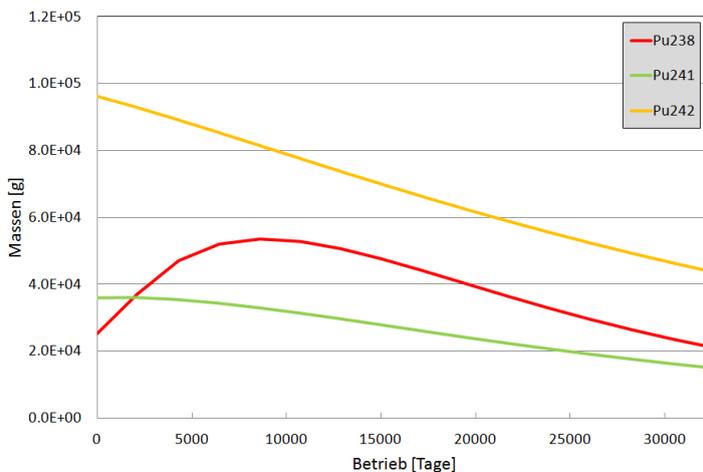


Abb. 8.4: Massenentwicklung für Plutoniumisotope mit geringem relativem Anteil für 15 Abbrandzyklen bei ThBRD0-Brennstoff mit gleichbleibender Schwermetallmasse durch Nachbeladung allein mit ^{232}Th und ^{233}U .

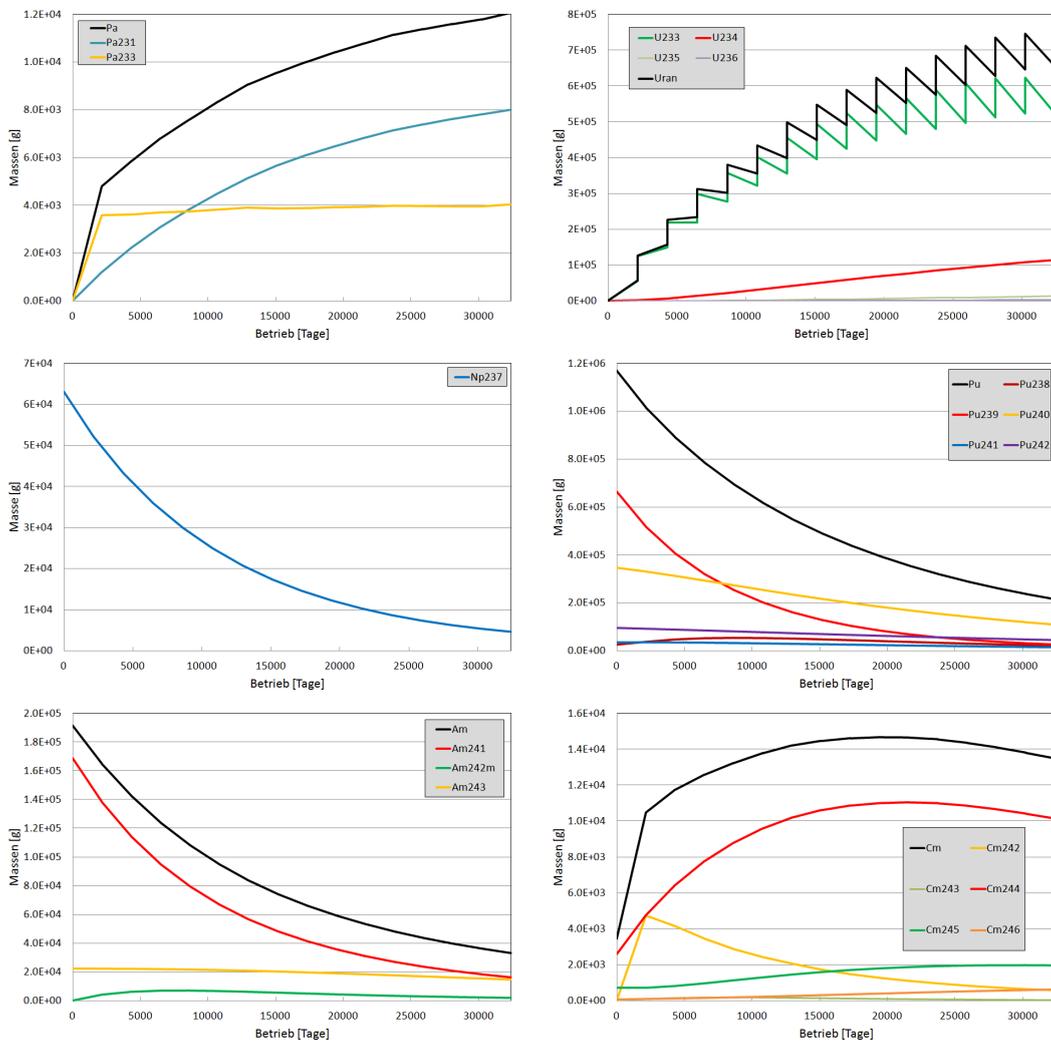


Abb. 8.5: Massenentwicklung einer anfänglichen Kernbeladung mit ThBRD0-Brennstoff bei 15 Abbrandzyklen à 2160 Tage. Die gesplante Schwermetallmasse wird durch Nachbeladung mit ^{232}Th und ^{233}U ersetzt.

Inventar nach Stilllegung

Mittels der Gewichtung der Anfangsmasse (Tabelle 8.1) kann die Zusammensetzung am Ende des 5. Abbrandzyklus nach der letzten Beladung mit TRU-Brennstoff berechnet werden (Tabelle 8.2). Dabei wird die Differenz der Massen nach 5 Abbrandzyklen gebildet und aufsummiert. Für die Masse, die bereits 10 Abbrandzyklen bei der letzten Beladung mit TRU-Brennstoff durchlaufen hat, wird die Differenz mit der Masse nach 15 Abbrandzyklen gebildet und mit 0.048 gewichtet. Die resultierende Schwermetallmasse, die dem Reaktor entnommen wird, beträgt 3.76 Tonnen. Der Großteil mit 2.20 Tonnen bildet Thorium, gefolgt von 1.01 Tonnen Transurane und 550 kg Uran. Beim Uran ist die Nachbeladung von insgesamt 380 kg ^{233}U bei der Wiederaufarbeitung enthalten, die den Multiplikationsfaktor nach jedem Zyklus wieder auf 0.97 anhebt.

Aufgrund der Nachbeladung mit ^{233}U nach jedem Abbrandzyklus und der Bildung während des Betriebs ist beim Uran die größte Zunahme zu verzeichnen. Die Menge an Curium nimmt ebenfalls zu, wobei 80 % der Zunahme durch das relativ kurzlebige Isotop ^{243}Cm gebildet werden. Die größte mengenmäßige Abnahme ist beim Plutonium festzustellen. Der Plutoniumvektor ändert sich im Vergleich zur ursprünglichen Zusammensetzung trotz mehrerer Abbrandzyklen nur leicht. Der relative Anteil von ^{239}Pu fällt von 56.80 % auf 52.75 %, während alle anderen zunehmen. Die minoren Actiniden Neptunium und Americium werden ebenfalls weiter reduziert.

Zu dieser im Reaktor verbliebenen Menge kommt die Menge aus den zahlreichen Wiederaufarbeitungsprozessen hinzu. Die Wiederaufbereitungsverluste wurden für alle Actiniden mit 0.1 % angenommen. Mit einer Abnahme von 12.9 % der Transurane je Abbrandzyklus und 103 komplett möglichen Neubeladungen ergeben sich $(\frac{103}{0.129})$ 800 Aufbereitungen und 5 weitere für die letzten Zyklen, die mehr Uran enthalten (Tabelle 8.3). Dies entspricht einer zusätzlichen Menge von 80 % der Restbeladung.

Die Aufsummierung aller verbleibenden Restmengen ergibt die Nuklidzusammensetzung nach P&T. Im Unterschied zur Betrachtung der Massenänderung bei den Brennstoffkonzepten in Kapitel 6 wird bei der Betrachtung keine zeitliche Anpassung vorgenommen. Die Masse bei den unterschiedlichen Zeitpunkten erfolgten Wiederaufarbeitungen sowie die Vergleichsmasse vor P&T bleiben zeitlich unverändert. Der Grund liegt in der offenen Handhabung des Transmutationsprozesses. Die Anzahl und Größe der Anlagen bestimmen die Dauer von P&T, welche sich von mehreren Jahrzehnten bis einigen tausend Jahren erstrecken kann. Im Falle einer 100-MW_{th}-Anlage wären 800 Beladungen notwendig, woraus sich eine reine Betriebsdauer von über 4725 Jahren ergeben würde (siehe Kapitel 8.3). Eine Betrachtung der Transmutationsdauer wird daher in Kapitel 8.3 vorgenommen.

Massenbilanz des P&T-Prozesses

Der Vergleich der Massenbilanz der Transurane bei direkter Endlagerung im Jahr 2042 und nach der P&T-Phase zeigt, dass die meisten Isotope auf 1 % ihrer Anfangsmasse reduziert werden können. Die Isotope von Curium bilden eine Ausnahme, da die Anfangsmenge gering ist und durch die Transmutation von Americium neues Curium während des Betriebs gebildet wird. Diese geringere Abnahme von nur 95 % gegenüber 99 % bei den anderen Elementen (Tabelle 8.4) wirkt sich aufgrund der geringen Masse des Curiums nicht nennenswert auf die gesamte Massenabnahme aus. Weitere erhöhte relative Restmengen sind bei ^{242m}Am und ^{238}Pu festzustellen, die durch die Transmutation von ^{241}Am verstärkt gebildet werden (Tabelle 8.5).

Tabelle 8.2: Beladungsinventar der Anlage nach letztem Abbrand mit ThBRD0-Beladung und am Ende des darauffolgenden 5. Abbrandzyklus bei Nachbeladung mit $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$ -Gemisch. Die Massenzunahme (negatives Vorzeichen) für ^{233}U wird durch Nachbeladung hervorgerufen.

	Abnahme [g]	Anfangsmasse [g] Beginn 1.Zyklus	Endmasse [g] 5.Zyklus
Actinid			
Am	5.72E+04	1.92E+05	1.34E+05
Am241	5.47E+04	1.69E+05	1.14E+05
Am242m	1.67E+02	2.44E+02	7.76E+01
Am243	2.32E+03	2.25E+04	2.02E+04
Cm	-3.78E+03	3.45E+03	7.23E+03
Cm243	1.01E+01	4.38E+01	3.37E+01
Cm244	-3.01E+03	2.60E+03	5.61E+03
Cm245	-5.65E+02	7.32E+02	1.30E+03
Cm246	-1.97E+02	6.71E+01	2.64E+02
Cm247	-2.25E+01	0.00E+00	2.25E+01
Cm248	-1.65E+00	0.00E+00	1.65E+00
Np	2.13E+04	6.31E+04	4.18E+04
Np237	2.13E+04	6.31E+04	4.18E+04
Pa	-3.67E+03	0.00E+00	3.67E+03
Pa231	-2.92E+03	0.00E+00	2.92E+03
Pa233	-7.50E+02	0.00E+00	7.50E+02
Pu	3.41E+05	1.17E+06	8.27E+05
Pu238	2.31E+03	2.51E+04	2.28E+04
Pu239	2.27E+05	6.64E+05	4.36E+05
Pu240	8.61E+04	3.48E+05	2.61E+05
Pu241	7.42E+03	3.58E+04	2.84E+04
Pu242	1.83E+04	9.63E+04	7.80E+04
Uran*	-1.76E+05	0.00E+00	5.52E+05
U233*	-5.06E+05	0.00E+00	5.06E+05
U234	-4.07E+04	0.00E+00	4.07E+04
U235	-4.32E+03	0.00E+00	4.32E+03
U236	-8.85E+02	0.00E+00	8.85E+02

Tabelle 8.3: Abtrennverluste [g] durch Wiederaufarbeitung von ThBRD0-Brennstoff für 800 Wiederaufarbeitungen und 5 Wiederaufarbeitungen bei finalem Endbetrieb ausschließlich mit Uran/Thorium-Nachbeladung.

	TRU-WAA	Endbetrieb-WAA		TRU-WAA	Endbetrieb-WAA
Actinides	2.70E+06	1.69E+04			
Am	9.24E+04	5.34E+02	Pa	6.76E+03	3.91E+01
Am241	6.93E+04	4.01E+02	Pa231	3.50E+03	2.02E+01
Am242	1.20E+01	6.94E-02	Pa233	3.26E+03	1.89E+01
Am242m	4.82E+03	2.79E+01	Pu	5.86E+05	3.39E+03
Am243	1.83E+04	1.06E+02	Pu238	3.96E+04	2.29E+02
Cm	1.13E+04	6.52E+01	Pu239	2.27E+05	1.31E+03
Cm242	2.47E+03	1.43E+01	Pu240	2.25E+05	1.30E+03
Cm243	1.24E+02	7.18E-01	Pu241	2.67E+04	1.55E+02
Cm244	7.38E+03	4.27E+01	Pu242	6.77E+04	3.92E+02
Cm245	1.08E+03	6.26E+00	U233	4.46E+04	1.38E+03
Cm246	2.00E+02	1.16E+00	U234	1.58E+03	1.56E+02
Cm247	1.58E+01	9.12E-02	U235	5.37E+01	1.22E+01
Np	2.57E+04	1.48E+02	U236	5.74E+01	2.56E+00
Np237	2.56E+04	1.48E+02	Uran	4.64E+04	1.56E+03

Tabelle 8.4: Elementmassen [g] bei direkter Endlagerung im Jahr 2042 und nach P&T

	Vor P&T	Nach P&T	rel. Restmenge [%]
Np	6.52E+06	6.76E+04	1.04
Pu	1.21E+08	1.42E+06	1.18
Am	1.97E+07	2.27E+05	1.15
Cm	3.56E+05	1.60E+04	4.51

Tabelle 8.5: Massen bei direkter Endlagerung im Jahr 2042 und nach P&T

	Vor P&T[g]	Nach P&T[g]	Restmenge [%]		Vor P&T[g]	Nach P&T[g]	Restmenge [%]
Pu238	2.60E+06	6.27E+04	2.41 %	Am241	1.74E+07	1.84E+05	1.06 %
Pu239	6.85E+07	6.65E+05	0.97 %	Am242m	2.52E+04	4.93E+03	19.56 %
Pu240	3.58E+07	4.88E+05	1.36 %	Am243	2.32E+06	3.85E+04	1.66 %
Pu241	3.70E+06	5.53E+04	1.49 %	Cm243	4.52E+03	1.58E+02	3.51 %
Pu242	9.94E+06	1.46E+05	1.47 %	Cm244	2.69E+05	1.30E+04	4.85 %
Np237	6.52E+06	6.76E+04	1.04 %	Cm245	7.56E+04	2.39E+03	3.16 %
				Cm246	6.93E+03	4.66E+02	6.72 %

8.2.2 Endlagerrelevante Größen

Mit dem Vorliegen der Massenzusammensetzung am Ende der P&T-Phase aus dem vorigen Abschnitt werden die Verläufe der endlagerrelevanten Größen (Aktivität, Nachzerfallswärme und Radiotoxizität) für Endlagerzeiträume betrachtet. Angefangen über den Vergleich mit einer gleichmäßigen Transmutation aller Isotope, über die formale Beschreibung der Transmutationseffizienz, wird am Ende der Verlauf der endlagerrelevanten Größen bei P&T mit der bei direkten Endlagerung sowie mit bereits verglasten Abfällen verglichen.

Vergleich mit gleichmäßiger Transmutation

Die Masse der Transurane wurde durch P&T in einer 100 MW_{th}-Anlage auf etwa ein Hundertstel reduziert. Zur Beurteilung der Effizienz von P&T werden die endlagerrelevanten Größen betrachtet. Als Referenz zu den eigenen Ergebnissen dient eine gleichmäßige Transmutationsannahme aller Actiniden (einschließlich Uran) mit einer Effizienz von 99.2 % (Abbildung 8.6). Die Referenzkurve resultiert aus Gleichung (2.5) bei einer Transmutationseffizienz ϵ_T von 0.128 und einer Partitioningeffizienz ϵ_P von 0.999.

Für alle drei Größen ist ein ähnlicher Verlauf in den ersten Tausend Jahren in der doppelt logarithmischen Darstellung zur Referenzkurve mit einem höheren Niveau festzustellen (Abbildung 8.6). Erst bei späteren Zeiträumen steigen die mit dem ADS Konzept berechneten Kurve gegenüber der Referenzkurve an, um nach 2 Millionen Jahren das Niveau der Referenzkurve zu unterschreiten. Der Grund für den Anstieg der punktierten Kurve liegt am Isotope ^{233}U mit einer Halbwertszeit von 160,000 Jahren. Die Entstehung während des Betriebs mit ThBRD0-Brennstoff wird im Rahmen der Abtrennverluste bei der Wiederaufarbeitung nach Tabelle 8.3 berücksichtigt und das abgetrennte Uran in Kernkraftwerken im Ausland als Brennstoff unterstellt. Die punktierte Linie weist daher nur den Einfluss der Wiederaufarbeitungsverluste durch eine Thoriummatrix auf. Der Effekt des Urans macht deutlich, dass das Konzept mit thoriumbasiertem Brennstoff nur dann zu einer Reduzierung der endlagerrelevanten Größen führt, wenn das abgetrennte Uran in konventionellen Kernkraftwerken vollständig weiter verwendet wird.

Das Absinken der im ADS Konzept erarbeiteten Kurven unterhalb der Referenzkurve mit 99.2 % weist auf die Abwesenheit von ^{238}U hin, welches bei 1 Million Jahre den Verlauf der endlagerrelevanten Größen durch den Zerfall in ^{234}U bestimmt (Kapitel 2.1).

Die Betrachtung der Radiotoxizität nach Elementen für die endzulagernde Menge in Abbildung 8.7 zeigt, dass Americium und Plutonium nach wie vor die Elemente mit dem größten Beitrag sind, was an ihrem großen Massenanteil von über 95 % an den Transuranen begründet liegt. Die Entwicklung, nicht das Niveau, ähnelt dem aus Abbildung 2.3 bei direkter Endlagerung. Dies liegt daran, dass sich die Elemente im vergleichbaren Maße auf 1 % reduziert haben und die Änderungen im Isotopenvektor der Elemente in der doppelt logarithmischen Darstellung augenscheinlich nur schwer festzustellen sind.

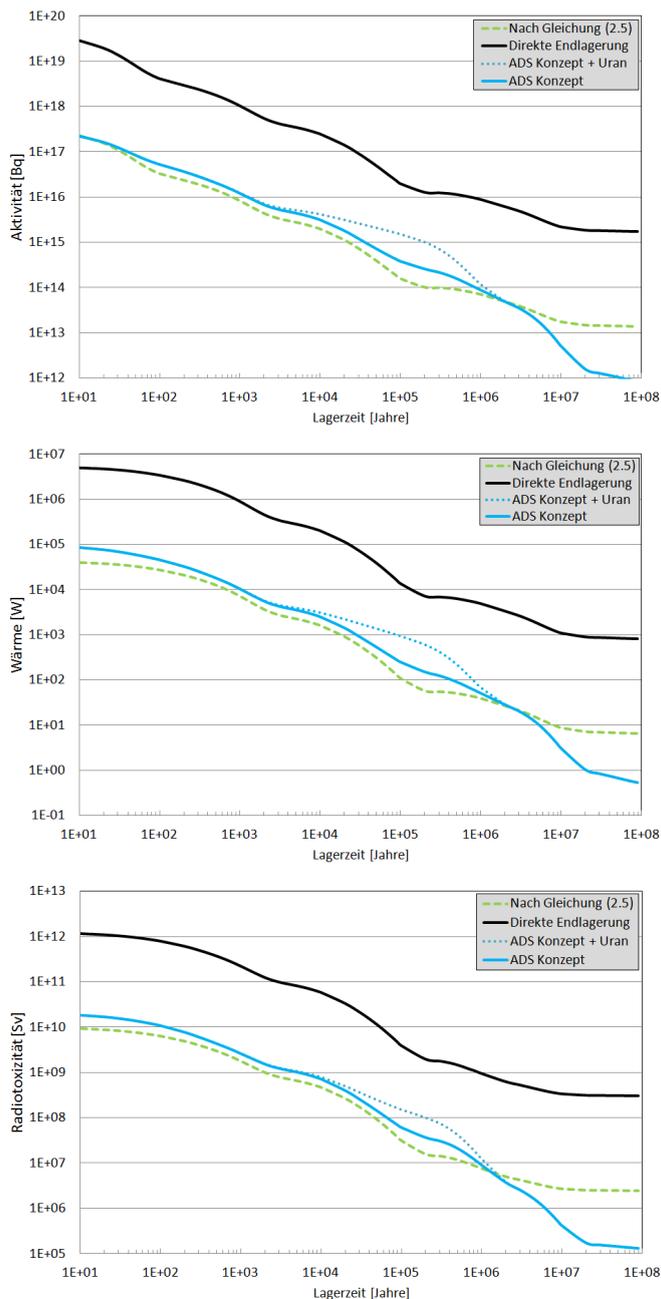


Abb. 8.6: Endlagerrelevante Größen bei gleichmäßiger Reduzierung um 99.2 % aller Actiniden nach Gleichung (2.5) und bei der Nutzung des ADS Konzepts für die Transurane sowie bei direkter Endlagerung. Die punktierte Linie beim ADS Konzept berücksichtigt die Abtrennverluste von Uran.

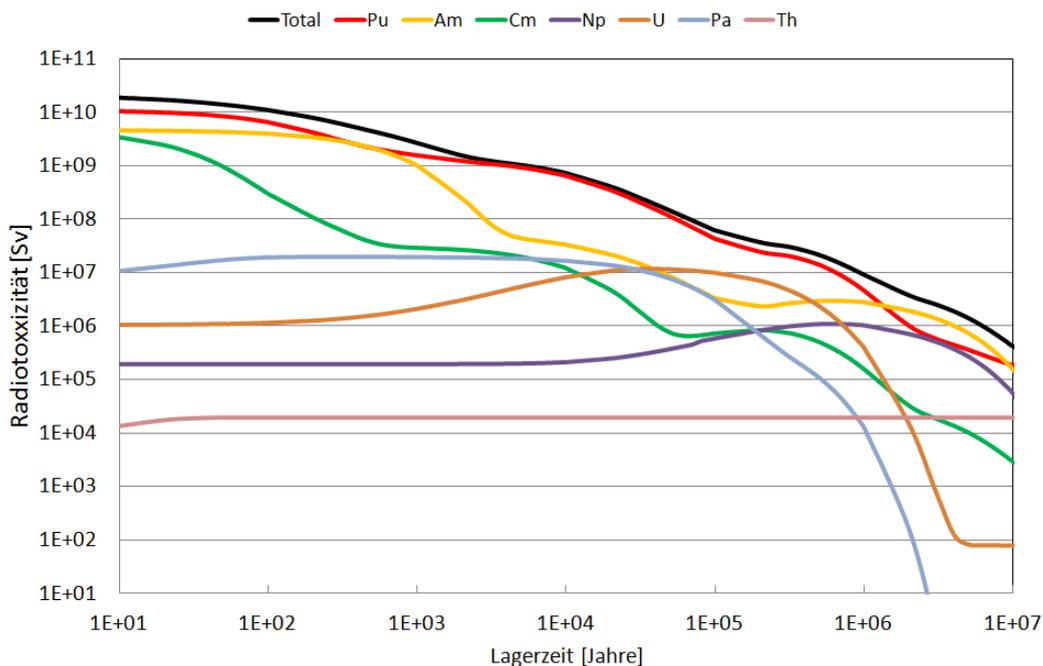


Abb. 8.7: Radiotoxizität nach Elementen und deren Zerfallsprodukten nach P&T

Formale Beschreibung der Massenreduktion

Eine genauere Betrachtung der Zahlenwerte von Abbildung 8.6 zeigt für die Nachzerfallswärme und Radiotoxizität eine Abweichung am Anfang von der Referenzkurve mit 99.2 % Transmutation aufgrund kurzlebiger Isotope durch den Transmutationsprozess um mehr als den Faktor 2. Selbst nach dem Abklingen dieser verläuft die Kurve die nächsten 10,000 Jahre nahezu konstant mit dem Faktor 1.5 über dem Niveau der Referenzkurve. Der Grund ist in der Gleichung (2.5) zu finden. Diese geht bei der Restmenge einzig von Wiederaufarbeitungsverlusten aus, da die anfängliche Masse wieder und wieder der Anlage zugeführt wird bis sie vollständig vernichtet ist. Die Nachbeladung mit neuem Brennstoff wird dabei nicht berücksichtigt, da ein ausreichend langer Betrieb unterstellt wird, um die anfängliche Masse zu transmutieren. Es wird keine Restmenge aus der Kernbeladung angenommen.

Die Restmenge in dem Reaktor ist eine nicht zu unterschätzende Größe, vor allem, wenn sehr geringe Partitioningverluste von 0.1 % angenommen werden. Die verbleibenden Restmenge R nach dem P&T-Prozess ergibt sich damit zu:

$$R = \frac{1 - x}{1 + n(x + p - xp)} + \frac{n(1 - x)p}{1 + n(x + p - xp)} \quad (8.3)$$

Dabei steht n für die Anzahl der Rezyklierungen (entspricht Abbrandzyklen minus eins), x für den Abbrand (entspricht ϵ_T) und p für die Partitioningverluste (entspricht $1 - \epsilon_P$). Es werden wie

in Gleichung (2.5) konstante Betriebsbedingungen vorausgesetzt. Am Ende jedes Zyklus muss die transmutierte Schwermetallmasse ersetzt werden. Dies wird im ersten Term beschrieben. Die Masse der Nachbeladung wird durch den Ausdruck $(1 - x) * (1 - p)$ wiedergegeben. Der Zähler des ersten Terms steht für die Restmenge im Reaktor, während der Nenner die Gesamtmenge der im Reaktor eingebrachten Masse darstellt. Die Wiederaufbereitungsverluste werden lediglich als zusätzliche Füllmenge mitberücksichtigt. Eine große Anzahl von Abbrandzyklen sorgt für eine stetige Abnahme dieses Terms, da die Menge im Reaktor im Vergleich zu der eingesetzten Masse immer geringer wird.

Der zweite Term gibt die Wiederaufbereitungsverluste nach jedem Abbrandzyklus wieder. Der Nenner ist mit dem ersten Term identisch. Der Zähler gibt die Restmenge durch Partitioning an und ist daher abhängig von der Anzahl der Wiederaufbereitungen. Im Unterschied zu ϵ_P wird die gesamte Masse des Kerns dafür herangezogen. Dieser Verlustterm konvergiert für genügend große n gegen $\frac{(1-x)p}{x+p-xp}$. Der Wert wird mit einer Abweichung von 1 % für $\epsilon_T = 0.129$ und $\epsilon_P = 0.01$ erst nach 100,000 Abbrandzyklen erreicht. Im Gegensatz dazu konvergiert Gleichung (2.5) mit dieser Genauigkeit bereits für 67 Zyklen. Dies wird anhand der Gleichung (8.4) deutlich.

$$(1 - \epsilon_{PT})M = M(1 - \epsilon_P) + M\epsilon_P(1 - \epsilon_T)(1 - \epsilon_P) + M\epsilon_P^2(1 - \epsilon_T)^2(1 - \epsilon_P) + \dots \quad (8.4)$$

Die Masse M wird mit jedem Transmutationsschritt um die Faktoren $(1 - \epsilon_T)$ und ϵ_P kleiner. Die Terme lassen sich in eine geometrische Reihe zusammenfassen und die Umformung nach ϵ_{PT} ergibt Gleichung (2.5). Die Gleichung verdeutlicht, dass nur die Anfangsmasse M verfolgt wird. Diese Annahme ist gerechtfertigt, wenn von einem endlosen Weiterbetrieb der Anlage ausgegangen wird und alle Nachbeladungen ebenfalls dieselbe Anzahl an Zyklen sehen.

Diskussion unterschiedlicher Effizienz

Die kumulierte Nachzerfallswärme über einen Zeitraum von 2 Millionen Jahren zeigt ebenfalls, dass die Reduzierung nicht dem ϵ_{PT} von 99.2 % entspricht. Für den Zeitraum bis 2000 Jahre ergibt sich eine Reduzierung in der Nachzerfallswärme um 98.9 %, wobei der zusätzliche Wärmebeitrag der Spaltprodukte nicht berücksichtigt wird. Für einen Zeitraum von 300,000 Jahren, in dem die Uranzerfälle einen erhöhten Verlauf im Vergleich zu der gleichmäßigen Abnahme verursachen, liegt die kumulierte Wärmemenge nur um 97.7 % niedriger als bei einer direkten Endlagerung und sinkt in den nächsten Jahrtausenden leicht auf 97.4 % ab. Die Änderung des Wertes über den betrachteten Zeitraum verdeutlicht, dass die Materialveränderung zum ursprünglichen Elementvektor ebenfalls Einfluss auf die betrachteten Größen zur Folge hat.

Die Berechnung der Massenabnahme nach Gleichung (8.3) ergibt eine Transmutationseffizienz von 98.5 %, für deren Berechnung die Anzahl der Zyklen, die Abtrennverluste und der Abbrand je Zyklus benötigt werden. Die Abnahme ist gegenüber der aus Tabelle 8.4 folgenden 98.8 % um 0.3% geringer. Grund für diese Abweichung sind die fünf weiteren Abbrandzyklen, nachdem alle Transurane aus den Lagerbeständen aufgebraucht sind. Dadurch reduziert sich die Restmenge der Transurane aus der letzten Reaktorbeladung, welche maßgeblich für den Unterschied zu 99.2 % verantwortlich ist. Nach Gleichung (2.5) folgt demnach eine Abnahme um den Faktor 130, während mit der Berücksichtigung der Restbeladung nur eine Abnahme um den Faktor 67 erreicht wird. Die fünf weiteren Zyklen erhöhen diesen auf 87. Dies zeigt, dass eine Berücksichtigung der Restbeladung zwingend erforderlich ist, um die maximale Massenreduktion abzuschätzen.

Diese Faktoren sind nicht zeitunabhängig. Wie bei dem Vergleich mit einem Abbrandzyklus in einem ADS zur direkten Endlagerung gesehen, können sich die Höhe und der zeitliche Verlauf der Isotopenvektoren ändern. Die Transmutationseffizienz von 98,8 % sinkt bei der Wiederaufarbeitung mit der Uranberücksichtigung (gepunktete Kurve in Abbildung 8.6) auf etwa 96 % bei der Radiotoxizität für den Zeitraum zwischen 100,000 bis 400,000 Jahren. Dieser Effizienzverlust von 3,8 % sinkt, wenn die Uranverluste bei der Wiederaufarbeitung herausgerechnet werden, auf 0,5 %-Punkte.

Vergleich mit direkter Endlagerung und anderen Verläufen

Zur Beurteilung des Potentials von P&T werden neben der Berücksichtigung der im Reaktor verbleibenden Restmenge auch die bereits wiederaufgearbeiteten Abfälle (HLW) und das vorhandene Uran mit einbezogen. Bei der Wiederaufarbeitung ist bereits ein Teil der minoren Actiniden verglast worden. Werden diese Stoffe für die Transmutation als nicht zugänglich angenommen, bilden diese ein Niveau, welches durch Transmutation der restlichen Transurane Menge nicht unterschritten werden kann.

Das Uran in einem ADS zu vernichten, stellt keine Option dar, da sich die transmutierende Masse mehr als versechzigfachen würde. Konzepte, die eine Transmutation des Urans unterstellen, gehen von einer langfristigen Nutzung der Kernenergie aus. In schnellen Reaktoren wird das Uran genutzt, um Plutonium zu erbrüten und dieses als Brennstoff weiter zu nutzen.

Wird von einer weiteren Nutzung der Kernenergie abgesehen, wird das Uran endgelagert. Mit 4,5 Milliarden Jahren Halbwertszeit von ^{238}U bildet dieses ein säkulares Gleichgewicht mit den Folgeprodukten und die Aktivität der Zerfallsprodukte verbleibt auf einem niedrigen Niveau verglichen zu den Transuranen. Eine Transmutation zur Reduzierung der Strahlenbelastung erscheint unter diesem Aspekt und der enormen Masse als nicht notwendig bzw. praktikabel.

Das Uran und der verglaste Abfall bilden zusammen mit den Spaltprodukten (FP) Mindestniveaus, die durch P&T in einem ADS nicht verringert werden können. Die Verläufe der Nachzerfallswärme und Radiotoxizität zeigen, dass das in dieser Arbeit erarbeitete ADS 100 MW-Konzept unterhalb oder gleich des Niveaus von HLW bleibt und ab 60,000 Jahren das Niveau von Uran unterschreitet. Die Spaltprodukte liegen nur in den ersten Jahrhunderten über der durch P&T resultierenden Kurve (Abbildung 8.8). Wird das Niveau durch Uran als gegeben betrachtet, stellt eine 100-MW_{th}-Anlage eine ausreichende Größe dar, um die Minimierung des Gefährdungspotentials zu erreichen. Sollte eine weitere Minimierung aus anderen (z.B. politischen) Gründen gewünscht sein, so lässt sich dies durch Anlagen mit kleinerer Leistung realisieren, da die Beladungsmenge abnimmt. Wird bei dem Anlagenkonzept auf einen hohen Multiplikationsfaktor verzichtet, kann eine beliebige Beladungsmenge realisiert werden. In diesem Konzept sind die Transurane direkt im Spallations-target oder in unmittelbarer Nähe verteilt. Die Transmutation erfolgt hierbei vorwiegend aus den Spallationsneutronen, wodurch der Multiplikationsfaktor in diesem Konzept nicht die dominante Rolle einnimmt. Dieses reaktorfreie Konzept eignet sich damit nur zur Transmutation kleinerer Mengen, da der Massenumsatz entsprechend gering ist.

Die Betrachtung der kumulierten Wärmedesposition und Radiotoxizität wird genutzt, um den Gesamtbetrag bis zu einem Zeitpunkt mit dem des Mindestniveaus zu vergleichen. Um die einseitige Berücksichtigung der Spaltprodukte herauszunehmen, werden die ersten 300 Jahre auf dem Niveau bei 400 Jahren angenommen. Es zeigt sich, dass für Endlagerzeiträume bis eine Million Jahre die Nachzerfallswärme von den Transuranen nach P&T maximal 30 % des Mindestniveaus entspricht.

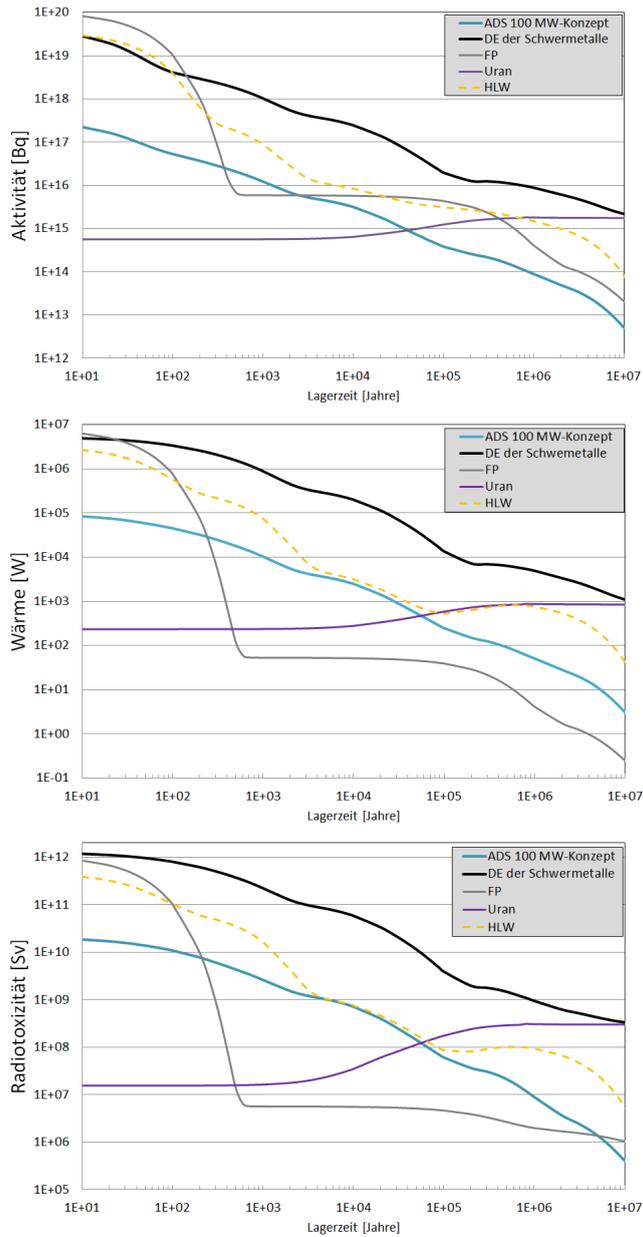


Abb. 8.8: Endlagerrelevanten Größen bei der Nutzung des ADS-Konzepts mit einer Effizienz von 98.8 % sowie für die Niveaus, die aus den Mengen von Uran, Spaltprodukten und bereits wiederaufgearbeiteten Brennstoff und der direkten Endlagerung der Schwermetalle resultieren.

Bei der Radiotoxizität beträgt der Wert maximal 35 %. Daraus ergeben sich niedrigere Effizienz für den P&T-Prozess von 96.0 % bzw. 96.6 %, wenn der kumulierte Beitrag dem des Mindestniveaus entspricht. Der Effekt auf die Transmutationsdauer wird im Folgenden beschrieben.

8.3 Dauer- und Kostenabschätzung

In dieser Arbeit wurde das Transmutationsverhalten verschiedener Brennstoffvarianten simuliert und der Effekt auf endlagerrelevante Größen bei einer Transmutation in einer $100\text{-MW}_{\text{th}}$ -Anlage berechnet. Als Abschluss dieser Untersuchungen werden in diesem Kapitel die Transmutationsdauer und -kosten in Abhängigkeit von der Transmutationseffizienz ϵ_{PT} , der Anlagenleistung und der Wiederaufarbeitungszeit betrachtet. Die Untersuchungen basieren dabei auf allgemeinen Annahmen ohne das Betriebs- und Transmutationsverhalten im Speziellen zu berücksichtigen. Die Betrachtung erfolgt schrittweise um einzelne Optionen einzuführen, welche die Komplexität steigert.

Im ersten Schritt wird nur eine Anlage ohne Betrachtung der Wiederaufarbeitungszeit betrieben, bis die Restmenge aufgebraucht ist und nur die Restbeladung der Transurane verbleibt. Dabei werden drei unterschiedliche Anlagenleistungen untersucht.

Im zweiten Schritt werden Anlagen mit unterschiedlicher Leistung nacheinander betrieben. Zuerst erfolgt die Transmutation in der Anlage mit der höchsten Leistung. Ist eine Beladung aufgrund nicht ausreichendem Brennstoffs nicht mehr möglich wird mit der nächst kleineren Anlage weiter transmutiert. Die Wiederaufarbeitungszeit wird weiterhin nicht berücksichtigt.

Erst im dritten Schritt wird diese miteinbezogen und die Option untersucht mehrere Anlagen parallel zu betreiben. Im vierten Schritt wird keine Anlagenanzahl betrachtet, sondern eine zu Anfang installierte thermische Leistung, die regelbar ist. Die Transmutationsdauer wird bei unterschiedlicher installierter Leistung und Wiederaufarbeitungszeit untersucht, um den Einfluss beider Größen in einem regelbaren Kraftwerkspark zu analysieren.

Spezifikation der Anlagen

Bei den folgenden Rechnungen handelt es sich um allgemeine Annahmen (Tabelle 8.7), die nicht auf den Ergebnissen dieser Arbeit basieren. Das Betriebsverhalten, wie die Entwicklung des Multiplikationsfaktors und das Transmutationsverhalten in Abhängigkeit der Brennstoffzusammensetzung, wird nicht berücksichtigt. Die Beladung eines Reaktors ergibt sich aus der thermischen Leistung, der Zykluslänge und dem Abbrand.

Die Wahl der höchsten Anlagenleistung erfolgt in Anlehnung an derzeitige konventionellen Anlagen. Zur Umsetzung einer hohen P&T-Effizienz werden kleinere Anlagen mit einer geringeren Inventarbeladung betrachtet. Daraus ergeben sich drei Anlagentypen A, B und C mit $4000\text{ MW}_{\text{th}}$, $1000\text{ MW}_{\text{th}}$ und $300\text{ MW}_{\text{th}}$. Aus dieser Leistung berechnet sich unter Berücksichtigung der Verfügbarkeit der Anlage und der Zykluslänge mit der Faustformel 1 Gramm gespaltenes Schwermetall gleich 1 MWd_{th} die entsprechenden Beladung für die jeweilige Anlage.

Die Anlagen werden als technisch ausgereift angenommen. Sie weisen eine Verfügbarkeit von 85 % auf und besitzen eine technische Lebensdauer von 40 Jahren. Während eines Zyklus wird ein Abbrand von 20 % des eingesetzten Inventars erreicht.

Zur Abschätzung des Eigenbedarfs der Anlagentypen ist die benötigte gemittelte Leistung für den Beschleuniger eine entscheidende Größe. Aus Gleichung (2.18) geht hervor, dass diese proportional zu $\frac{1-k_s}{k_s}$ ist. Der hohe Abbrand hat daher einen entsprechenden Protonenstrom zur Folge, da der Multiplikationsfaktor im Verlauf des langen Abbrandzyklus abnimmt. Basierend auf den Ergebnissen aus den Simulationsberechnungen mit ThBRD0-Brennstoff wird für eine 100 MW_{th}-Anlage im Mittel ein eingehender Protonenstrom von 10 mA bei einer Neutroneneffizienz φ^* von 0.88 benötigt. Mit der Protonenenergie von 600 MeV ergibt sich eine Strahlleistung P_{Beam} von 6 MW. Dieser Bedarf wird für die entsprechende Anlagenleistung linear skaliert. Dabei muss die Neutroneneffizienz φ^* berücksichtigt werden, die sich je nach Anlagenauslegung unterscheidet. Die industrielle Anlagenkonzept EFIT [83] weist eine Neutroneneffizienz von 0.52, die experimentelle Anlagen XADS [101] einen Wert von 1.21 auf. Daher wurde eine sinkende Neutroneneffizienz bei steigender Anlagenleistung angenommen. Dies führt zu einer Steigerung der Strahlleistung P_{Beam} um den Faktor $\frac{\varphi^*}{0.88}$. Zusätzlich zu dem Energiebedarf des Beschleunigers kommt der Eigenbedarf durch die übrigen technischen Anlagen hinzu, der mit 7 % der Eigenleistung der Anlage veranschlagt wird. Zur Vereinfachung wurde der Eigenbedarf für alle Anlagen auf 50 % geschätzt, da andere Einflüsse nicht berücksichtigt werden und die Neutroneneffizienzen eigene Annahmen sind.

Tabelle 8.6: Eigenbedarf (EB) der Anlage durch Beschleuniger und restliche technische Anlagen.

Anlage	φ^*	P_{Beam} [MW]	P_{th} [MW]	η_{AC} [%]	$\eta_{elek.}$ [%]	EB _{Accelerator} [%]	EB _{Rest} [%]	EB _{Gesamt} [%]
Typ A	0.70	302	4000	0.5	0.33	0.46	0.07	0.53
Typ B	0.80	66	1000	0.5	0.33	0.40	0.07	0.47
Typ C	0.88	18	300	0.5	0.33	0.36	0.07	0.43

Die folgenden Szenarien haben vorrangig das Ziel die Dauer für den Transmutationsprozess abzuschätzen. Die Kostenabschätzung dient lediglich zur Feststellung der Größenordnung, in dem sich ein nationales Transmutationskonzept bewegen würde. Es werden beispielsweise weder Kapitalkosten berücksichtigt noch werden Kosten und Erträge, die in der Zukunft liegen, diskontiert. Dies beruht auf der Simplifizierung, dass Inflation, interner Zinssatz und Kapitalzins gleich sind. Eine Reduzierung der Baukosten durch Lerneffekte und technologischen Fortschritt sowie F&E-Kosten werden ebenfalls nicht berücksichtigt.

Der erzielte durchschnittliche Erlös einer verkauften MWh wird mit 50 € angenommen. Die Investitionen und Rückbaukosten sind abhängig von der Leistungsauslegung. Die Brennstoffkosten mit Wiederaufarbeitungs- und Fertigungskosten werden mit 1.26 €/ct/kWh angenommen, was dem Zweifachen¹⁹ bei einem Once Through Cycle entspricht [102]. Die Mehrkosten entstehen durch das chemisch aufwendige Abtrennverfahren und die schwer abzuschirmende Neutronenstrahlung.

¹⁹Wert ergibt sich aus dem Bericht mit einem Umrechnungsfaktor von 1€=1.25 USD

Tabelle 8.7: Technische und ökonomische Daten zu P&T-Anlagen. Neben den technischen Daten zur Berechnung des Massenumsatzes werden ökonomische Annahmen für die jeweiligen Anlagentypen A, B und C getroffen.

Anlagentyp	A	B	C
Wirkungsgrad [%]	← 33 →		
Verfügbarkeit [%]	← 85 →		
gemittelter Stromerlös [€/MWh]	← 50 →		
Abbrand je Zyklus [%]	← 20 →		
Partitioningverluste [%]	← 0 →		
Zyklendauer [a]	← 4 →		
technische Lebensdauer [a]	← 40 →		
Leistung [MW _{th}]	4000	1000	300
Beladung [kg]	24820	6205	1862
Eigenverbrauch [%]	50	50	50
Investition [Mrd. €]	7.0	2.0	1.0
Rückbaukosten je Anlage [Mrd. €]	1.05	0.30	0.15
Betriebskosten nach Investment [%]	← 6 →		
Wiederaufarbeitung			
Abtrennung von Uran und FP [Mrd. €]	6		
Brennstoffkosten [€ct/kWh]	1.26		

1. Schritt

Im ersten Schritt wird der P&T-Prozess mit einer einzigen Anlage betrachtet. Dabei wird die Transmutationseffizienz, die Betriebsdauer der Anlage bei unbegrenzter Lebensdauer dieser und die Anzahl der Wiederaufarbeitungszyklen untersucht.

Die Betriebsdauer einer Anlage wird maßgeblich durch deren Leistungsauslegung bestimmt. Es wird zwischen drei Anlagentypen unterschieden. Anlagentyp A weist mit 4000 MW_{th} die höchste thermischen Leistung auf. Die Beladungsmenge beträgt aufgrund des Abbrandzieles von 20 % 24,820 kg. 26 Betriebszyklen sind mit einer zu transmutierenden Gesamtmasse von 150 t möglich. Danach reicht die verbliebene Menge nicht mehr aus, um die Anlage vollständig zu beladen. Mit einer Zyklendauer von 4 Jahren ergibt sich eine Gesamtbetriebszeit der Anlage von 104 Jahren.

Die Anlagentypen B und C mit einer geringeren Leistung können aufgrund ihrer kleineren Beladungsmenge länger betrieben werden. Dabei nimmt die Anzahl der Abbrandzyklen proportional zum Verhältnis von höherer zur geringeren Anlagenleistung zu. Zusätzlich kann in der kleineren Anlage ein Teil der Restbeladung einer größeren Anlage transmutiert werden, wodurch weitere Abbrandzyklen möglich sind.

Die Transmutationseffizienz für alle Anlagentypen wird mit (ϵ_{PT}^{max}) und ohne (ϵ_{PT}) Partitioningverlusten angegeben. Durch die große Restbeladungsmenge im Anlagentyp A weist dieses Szenario X_A nur eine Effizienz von 85.9 % bzw. 86.2 % auf. Die Verluste durch die Wiederaufarbeitung machen sich bei diesem Anlagentyp kaum bemerkbar. Für die kleineren Anlagentypen nimmt die Mengendifferenz stetig zu. In Anlagentyp B liegt die verbliebene Menge mit Partitioningverlusten

um 12 % höher als ohne. Dieser Unterschied steigt auf 40 % für den kleinsten Anlagentyp C. Der Fokus der Untersuchung betrifft die Betriebsdauer und mögliche Strategien zur Anlagenanzahl und Fahrweise. Daher wurden die Partitioningverluste in den beiden folgenden Schritten vernachlässigt. Im 4. Schritt werden die Verluste zusammen mit der Wiederaufarbeitungszeit und der Regelbarkeit der Anlage wieder berücksichtigt.

Tabelle 8.8: Transmutation mit nur einem Anlagentyp ohne Wiederaufarbeitungszeit. Die Transmutationseffizienz und -dauer werden mit (ϵ_{PT}^{max}) und ohne (ϵ_{PT}) Wiederaufarbeitungsverluste in Abhängigkeit der Anlagenleistung betrachtet.

Szenario	Anlagenleistung [MW _{th}]	ϵ_{PT}	ϵ_{PT}^{max} [%]	Betriebsdauer [a]	Anzahl an Abbrandzyklen
X _A	4000	85.9	86.2	104	26
X _B	1000	96.3	96.7	456	116
X _C	300	98.6	99.0	1564	397

2. Schritt

Im zweiten Schritt werden die einzelnen Anlagentypen A,B,C nacheinander betrieben und die technischen Daten aus Tabelle 8.7 in die Betrachtung miteinbezogen. Die Anlage mit der höchsten Leistung (Typ A) läuft solange bis eine Neubeladung aufgrund der Massenabnahme des zur Verfügung stehenden Brennstoffs nicht mehr möglich ist (Szenario X_A). Die Restbeladung wird in dem nächst kleineren Anlagentyp B verwendet. Die Anlage kann sofort betrieben werden, da sie mit einer geringeren Beladung arbeitet. Diese Anlage wird solange weiter betrieben bis eine volle Beladung auch dort nicht mehr möglich ist (Szenario X_{AB} und X_{ABC}). Die Wiederaufarbeitungszeit wird weiterhin nicht berücksichtigt.

Bei alleiniger Verwendung des Anlagentyps A (Szenario X_A) ergibt sich eine Betriebsdauer von über 100 Jahre. Durch die Lebensdauer von 40 Jahren folgt der Bau von drei solcher Anlagen. Die Transmutationseffizienz beträgt 87 %.

Als zweite Anlage wird B in Betrieb genommen, welche die Transmutationseffizienz nach 44 Jahren auf 97 % erhöht (Szenario X_{AB}). Mit dem dritten Anlagentyp wird nach weiteren 32 Jahren die Effizienz auf 99 % verbessert (Szenario X_{ABC}). Dieser Wert liegt nahe an dem theoretische Maximum von 99.5 % (bei $\epsilon_P = 0.1$ % und $\epsilon_T = 20$ %). Die nötige Transmutationsdauer für 99 % beläuft sich ohne eine Wiederaufarbeitungszeit auf mehr als 176 Jahre (Tabelle 8.9). Neben der Transmutationseffizienz ϵ_{PT}^{max} und der Betriebsdauer werden die Kosten für die Transmutation aufgeführt. Die Wiederaufarbeitungskosten von Uran und Spaltprodukten wird im Szenario X_A mit 6 Mrd. € berücksichtigt (Kennzeichnung *).

3. Schritt

Im dritten Schritt werden drei Szenarien für die Transmutationsdauer untersucht, wobei eine Wiederaufarbeitungszeit von 10 Jahren (Tabelle 8.10) berücksichtigt wird. Die beiden Szenarien *SingKon* und *SingBreak* verfolgen die Strategie nur eine Anlage zu jedem Zeitpunkt (Single) zu benutzen. Sie unterscheiden sich nur hinsichtlich der Wiederaufarbeitungszeit in einer kontinuierlichen

Tabelle 8.9: Transmutationsszenarien ohne Wiederaufarbeitungszeit und ohne -verluste. Neben der Transmutationseffizienz ϵ_{PT}^{max} und der Betriebsdauer werden die Kosten für die Transmutation aufgeführt. Die Wiederaufarbeitungskosten von Uran und Spaltprodukten wird im Szenario X_A mit 6 Mrd. € berücksichtigt (Kennzeichnung *).

Szenario	ϵ_{PT}^{max}	Anzahl Zyklen	Betriebsdauer [a]	Transmutationskosten [Mrd. €]
X_A	0.865	25	100	45*
X_{AB}	0.966	36	144	60
X_{ABC}	0.990	44	176	66

(Kon) Transmutation oder mit Pausen (Break). Szenario *MultiKon* verfolgt den Ansatz bei dem mit mehreren Anlagen des mittleren Typs B angefangen wird, um bei Stilllegung einer Anlage einen Rückgang des Massenumsatzes von 25 % anstatt 75 % zu erreichen und dabei kontinuierlich zu transmutieren.

In Szenario *SingKon* wird zu einer kleineren Anlage gewechselt, sobald keine Neubeladung mehr mit den Lagerbeständen möglich ist. Die Mengen, die sich noch in der Wiederaufarbeitung befinden, können nicht genutzt werden. Diese Menge ergibt sich aus der Zyklenlänge, dem Abbrand je Zyklus und der Wiederaufarbeitungszeit zum Zweifachen des Beladungsinventars. Ein kleinerer Anlagentyp benötigt diese Menge am Anfang nicht, weshalb der Übergang zu dieser Anlage ohne Zeitverzögerung erfolgt (Tabelle A.12). Die resultierende Betriebsdauer für die Anlage des Typs A beträgt 59 Jahre, für B 188 Jahre und für C 142 Jahre.

Die summierte Betriebsdauer beträgt 390 Jahre und umfasst den Betrieb von insgesamt 11 Anlagen in dieser Zeit. Der zeitliche Aufwand lässt sich reduzieren, wenn eine geringere Transmutationseffizienz angenommen wird. In Anlehnung an die Betrachtung der endlagerrelevanten Größen (Abbildung 8.8) wird die Effizienz auf 90 % beschränkt, was zu einer Verkürzung von 100 Jahren führt und die Einsparung von 3 Anlagen des Typs C zur Folge hat.

Eine Angleichung der Effizienz auf 86 % an Szenario *MultiKon* führt zu einer Betriebsdauer von 237 Jahren und den völligen Verzicht auf den Anlagentyp C.

In Szenario *SingBreak* wird bei Erreichung der Betriebsgrenze aufgrund von Brennstoffnachschub eine Betriebsunterbrechung von 10 Jahren vorgenommen, während dessen die abgebrannten Brennelemente vollständig wiederaufgearbeitet werden. Ziel ist es, die Anlage mit der höchsten Leistung länger nutzen zu können, um einen höheren Massenumsatz je Jahr zu erreichen. Die im Anschluss an die Unterbrechung folgende Betriebsdauer beträgt jedoch weniger als 10 Jahre und beläuft sich nach der letzten Betriebsunterbrechung nur auf 4 Jahre (Tabelle A.13). Diese Strategie erscheint anhand der Anlagenzahl von je zwei des Typs A und B sowie der Gesamttransmutationsdauer von 245 Jahren bei ϵ_{PT} von 90 % bzw. 205 Jahren bei ϵ_{PT} von 86 % dennoch als sinnvoll. Die Betriebsunterbrechungen führen zu keiner Verringerung des Betriebslebenszyklus der Anlagen, da in dieser Zeit umfangreiche Wartungsarbeiten durchgeführt werden können, deren Kosten mit 50 % der Betriebskosten je Jahr geschätzt werden.

In Szenario *MultiKon* wird nur der Anlagentyp B verwendet und zu Anfang die Gesamtleistung einer Anlage des Typs A durch den Bau von vier solcher Anlagen substituiert. Kann das Inventar nicht mehr vollständig aus den Lagerbeständen beladen werden, wird eine Anlage dauerhaft abgeschaltet, während bei den restlichen Anlagen der Betrieb fortgeführt wird. Über einen Zeitraum

von 166 Jahren werden auf diese Weise 10 Anlagen benötigt und eine Transmutationseffizienz von 86 % erreicht (Tabelle A.14). ϵ_{PT} entspricht Szenario X_A , da die Wiederaufarbeitungsmenge und die Restmenge im Reaktor der Anlage B der Restmenge im Reaktor einer Anlage A entsprechen.

Tabelle 8.10: Transmutationsszenarien unter Berücksichtigung der Wiederaufarbeitung (10 Jahre). In den Szenarien wird zwischen parallelem (Multi) und alleinigem Betrieb (Single) von Anlagen unterschieden. Weiterhin wird zwischen einem kontinuierlichen (Kon) und einem pausierbaren Betrieb (Break) unterschieden.

Szenario	ϵ_{PT}^{max}	Betriebsdauer Typ A/B/C	Betriebs- pause [a]	Gesamt- dauer [a]	benötigte Anlagen Typ A/B/C/ Σ	Kosten [Mrd. €]
SingKon	96 %	59/188/142	0	390	2/5/4/11	80
	90 %	59/188/42	0	290	2/5/1/8	76
	86 %	59/178/0	0	237	2/5/0/7	67
SingBreak	90 %	84/81/0	60/20/0	245	2/2/0/4	73
	86 %	84/61/0	60/0/0	205	2/2/0/4	70
Szenario	ϵ_{PT}^{max}	Betriebsdauer [a] B1/B2/B3/B4	Betriebs- pause [a]	Gesamt- dauer [a]	benötigte Anlagen B1/B2/B3/B4/ Σ	Kosten [Mrd. €]
MultiKon	86 %	47/83/116/166	0	166	1/2/3/4/10	66

4. Schritt

Im vierten Schritt wird das Konzept *MultiKon* aus dem 3. Schritt weiter verfeinert. Die Anlagen sind in ihrer Leistung regelbar und zu Anfang wird eine installierte Leistung von 16 GW_{th} angesetzt, die durch vier Anlagen des Typs A realisiert werden. Weiterhin wird der Einfluss der Wiederaufarbeitungszeit auf die Transmutationsdauer betrachtet.

Zu Beginn der Untersuchungen wird die maximale Transmutationseffizienz in Abhängigkeit der Mindestleistung der Anlage betrachtet. Diese Mindestleistung ist einmal 1000 MW_{th} sowie 1 MW_{th} und stellen gleichzeitig die Leistungsregelung dar. Eine Anlage mit einer Mindestleistung von 1000 MW_{th} kann mit 1000 MW_{th}, 2000 MW_{th} oder 3000 MW_{th} Teillast gefahren werden. Ob geringere Mindestleistungen in einer Anlage Typ A oder durch neue, kleinere Anlagen realisiert werden, wird nicht näher betrachtet. Der Vergleich mit dem Szenario *MultiKon* aus dem 3. Schritt zeigt, dass bei einer Mindestleistung von 1000 MW_{th} bei einer gleichen Kapazität von 4 GW_{th} eine Reduzierung von 166 Jahren auf 159 Jahre erfolgt. Dies resultiert aus der Möglichkeit eine Anlage nicht nur in der Leistung zu reduzieren, sondern diese auch wieder erhöhen zu können. Wird eine feine Regelbarkeit von 1 MW_{th} unterstellt und eine Kapazität von 16 GW_{th} angenommen, sinkt die Dauer auf 137 Jahre.

Die Auslastung des Anlagenparks sinkt in den ersten Jahren auf 20 % aufgrund der begrenzten Lagerbestände ab. Diese können die in der Wiederaufarbeitung befindlichen Bestände nicht überbrücken. Erst in den folgenden Jahren, in denen der Brennstoff aus der Wiederaufarbeitung zur Verfügung steht, steigt die Auslastung des Anlagenparks auf 40-50 % an, um danach abzunehmen.

Nach 40 Jahren wird nur noch eine Anlage ausgelastet, während die restlichen Anlagen aufgrund fehlender Beladung dauerhaft still stehen. Eine anfängliche installierte Leistung von 8 GW_{th} ist ausreichend, da eine größere Kapazität aufgrund der begrenzten Inventarmasse nicht oder nur für ein paar wenige Jahre genutzt werden kann.

Die Transmutationseffizienz in Abhängigkeit der Transmutationsdauer ist in Abbildung 8.9 dargestellt. Dabei werden als Erweiterung zu Schritt 3 auch die Partitioningverluste bei der Wiederaufarbeitung und die Wiederaufarbeitungszeit berücksichtigt. Bei der Transmutationseffizienz wurden drei Werte untersucht. Die beiden niedrigeren Effizienzen resultieren aus der Betrachtung des Mindestniveaus der endlagerrelevanten Größen in Kapitel 8.2.2 Seite 119. und die höchste aus dem P&T-Prozess mit der in dieser Arbeit durchgeführten Anlage.

Zusätzlich zu dem abgebildeten Szenario wurde der Einfluss der Wiederaufarbeitungszeit für diese Effizienzen untersucht (Tabelle 8.11). Der Einfluss beträgt selbst bei der niedrigsten Effizienz von 96 % drei Jahrzehnte wenn die Wiederaufarbeitungszeit von 10 auf 8 Jahre reduziert wird. Die Ergebnisse zeigen auch, wie groß der Einfluss der Randbedingungen auf die Transmutationsdauer ist. Weitere Randbedingungen sind der Abbrand je Zyklus und die Wiederaufarbeitungsverluste.

Tabelle 8.11: Transmutationsdauer in Abhängigkeit der Transmutationseffizienz und Wiederaufarbeitungszeit

Wiederaufarbeitungszeit [Jahre]	Transmutationsdauer [Jahre] nach Effizienz		
	98.8 %	96.6 %	96.0 %
15	440	318	302
10	338	245	232
8	295	214	203
5	234	170	162

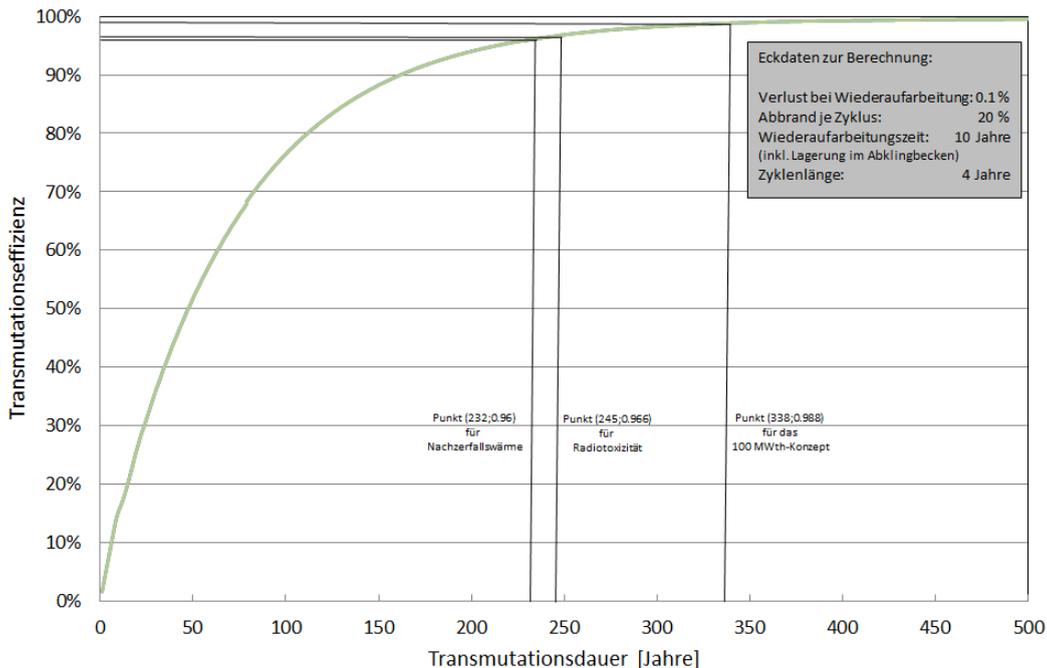


Abb. 8.9: Transmutationseffizienz in Abhängigkeit der Transmutationsdauer. Die Punkte für die Nachzerfallswärme und Radiotoxizität ergeben sich aus den kumulierten Beiträgen der verglasten Abfälle (siehe Kapitel 8.2.2 Seite 116ff.), die mit dieser Effizienz nicht überschritten werden.

8.4 Zusammenfassung und Diskussion

In Kapitel 8 wurde die Materialzusammensetzung nach Ende des mit ADS durchgeführten P&T-Prozesses berechnet, um die Transmutationseffizienz anhand der endlagerrelevanten Größen zu bestimmen.

Dass nicht nur die prozentuale Massenabnahme sondern auch die Zusammensetzung der Restmasse wichtig ist, zeigt die Betrachtung der endlagerrelevanten Größen bei einmaligem Abbrand von ThBRD3-Brennstoff. Der Anteil von 12 %wt Americium am Brennstoff sorgt dafür, dass bei der Bestrahlung infolge der Transmutation von ^{241}Am die beiden Plutoniumisotope ^{238}Pu und ^{242}Pu entstehen. Diese Isotope sorgen für einen Anstieg der endlagerrelevanten Größen um den Faktor 2 gegenüber der direkten Endlagerung bei einer Endlagerzeit um 200,000 Jahren.

Ob dieses Verhalten anhält, wird durch die Berechnung der Massenentwicklung am Ende der P&T-Phase untersucht. Hierzu werden die letzten Schritte eines P&T-Prozesses simuliert. Eine Simulation des kompletten Prozesses ist nicht notwendig, da durch den Abbrand die verbleibende Restmenge einer Beladung nach einigen Zyklen soweit abgenommen hat, dass ihr Anteil an der Restmenge vernachlässigbar ist. Durch Simulation der letzten 10 Abbrandzyklen werden 82 % der Restmenge des Inventars abgebildet. Zur Verfolgung der Massenentwicklung wurde bei der Nachbeladung thoriumbasierter Uranbrennstoff verwendet, da es eine Separation zwischen der ursprünglichen Beladung (TRU) und neuer (Th/U) ermöglicht. Würde tatsächlich diese Brennstoffmatrix eingesetzt, hätte dies die Bildung von ^{233}U zur Folge. Dieses müsste als Brennstoff in einem konventionellen Kernkraftwerk vollständig abgebrannt werden, um die Transmutationseffizienz nicht zu beeinflussen und darüber hinaus die Proliferationssicherheit des Brennstoffkreislaufes zu erhöhen.

Die Transmutation von Transuranen wurde für fünf weitere Zyklen berechnet, um die Effizienz zu erhöhen. Hierzu wurde thoriumbasierter Uranbrennstoff verwendet, um durch den Brutvorgang neuen Brennstoff zur Aufrechterhaltung des Betriebs bereitzustellen. Die anfängliche Masse der Transurane lässt sich mit dem erarbeiteten System nach Tabelle 8.5 um 98.83 % reduzieren. Werden die letzten fünf Zyklen außer Acht gelassen, ergibt sich eine Transmutationseffizienz von 98.50 %. Im Unterschied dazu ergibt sich nach Gleichung (2.5) eine Effizienz von 99.23 %, da bei dieser Gleichung die verbliebene Restmenge im Reaktor nicht berücksichtigt wird. Die Realisierung einer hohen Effizienz ist damit nicht nur von den Abtrennverlusten sondern auch von der letzten Anlagenleistung, die für einen P&T-Prozess eingesetzt wird, abhängig.

Die Betrachtung der endlagerrelevanten Größen aus der Restmenge für die berechnete Transmutationseffizienz von 98.8 % verdeutlicht den negativen Einfluss von ^{233}U auf die Radiotoxizität und Nachzerfallswärme. Nach Abzug des Uranbeitrags wird der Verlauf mit denen der Spaltprodukten, des Urans und der bereits verglasten wärmeentwickelnden Abfällen aus der Nutzung der Kernenergie verglichen. Dabei fungieren die verglasten Abfälle als Mindestniveau für ein Endlager, wenn angenommen wird, dass diese nicht für ein Transmutationsprozess wiederaufgearbeitet werden. Der durch diese Stoffe zugeführten Wärmebelastung muss ein Endlager standhalten. Die aus P&T-Prozess berechneten Verläufe bei einer Transmutationseffizienz von 98.83 % wurden mit dem Mindestniveau verglichen und zeigen, dass sie unterhalb dieses verbleiben. Wird der kumulierte Beitrag aus der Nachzerfallswärme oder der Radiotoxizität über einen endlagerrelevanten Zeitraum von 1 Million Jahre genommen ist eine Effizienz von 96 % bzw. 96.6 % ausreichen damit zu keinem Zeitpunkt der Betrag größer als der des kumulierten Mindestniveaus wird.

Unter der Annahme, dass ein Abbrand von 20 % erreicht wird, wurden mehrere Szenarien mit drei möglichen Anlagenleistungen berechnet. Mit dem Szenario MultiKon lässt sich eine Effizienz von 86 % bei der Gesamtdauer von 166 Jahren realisieren. Zur Minimierung der Transmutationsdauer wurde das Konzept mit einer regelbaren Anlagenleistung erweitert. Dies führt zu einer Reduzierung auf 159 Jahre. Für die Effizienz aus dem P&T-Prozess und den beiden aus dem Vergleich mit dem Mindestniveau wurden zudem verschiedene Wiederaufarbeitungszeiten und die Wiederaufarbeitungsverluste berücksichtigt. Zur Umsetzung des P&T-Prozesses mit einer Effizienz von 98.83 % beläuft sich die Transmutationsdauer auf 313 Jahre. Wird nur eine Effizienz von 96 % angestrebt verkürzt sich die Dauer um 179 Jahre.

Angesichts dieser langen Zeiträume ist eine genauere Betrachtung der zu transmutierenden Transurane notwendig. Was wird zu welchem Zeitpunkt, wie oft und bis zu welcher Effizienz transmutiert. Curium kann beispielsweise erst zwischengelagert werden, um das ^{244}Cm zerfallen zu lassen und danach erst zu verwenden. Wie schnell kann Plutonium umgewandelt werden, damit der Zuwachs von ^{241}Am aus dem Zerfall von ^{241}Pu begrenzt wird. Zur Beantwortung dieser Fragestellungen ist sowohl eine funktionierende Reaktormodell, welches das Transmutationsverhalten in Abhängigkeit der sich ändernden Brennstoffzusammensetzung berücksichtigt als auch die Kenntnis über einen zeitlichen Ablaufplan mit einem entsprechenden Brennstoffmanagement notwendig. Diese Dissertation liefert anhand des Betriebskonzepts und den thoriumbasierten Brennstoffvarianten eine Grundlage für ein weiterführendes Modell. Zudem zeigt die Betrachtung der Transmutationsdauer, welche Parameter welche Reduzierung erlauben.

9 Fazit

In der vorliegenden Arbeit wurde der Prozess von Partitioning und Transmutation (P&T) mit einem gasgekühlten beschleunigergetriebenen System (ADS) mit einem detaillierten Simulationsmodell untersucht. Das modellierte System ermöglicht es, die Auswirkungen unterschiedlicher Brennstoffvarianten auf das Transmutations- und Betriebsverhalten zu bestimmen und mit den daraus gewonnenen Erkenntnissen eine Simulation der gesamten P&T-Phase durchzuführen. Die berechnete Materialzusammensetzung am Ende des Anlagenbetriebs ermöglicht die Bewertung des P&T-Prozesses anhand der Transmutationseffizienz und der endlagerrelevanten Größen sowie an der Betrachtung der Transmutationsdauer und -kosten.

Die Entwicklung eines Computermodells des Transmutationssystems erfordert die Nutzung etablierter Programme. Neben MCNPX zur Berechnung der stationären neutronenphysikalischen Eigenschaften im Kern und ORIGEN für die Berechnung der zeitlichen Änderung des Brennstoffs bedarf es eines geeigneten Kopplungsprogrammes für beide Programme. Das Kopplungsprogramm VESTA wurde gewählt, da es sowohl für kritische als auch unterkritische Systeme entwickelt worden ist und für alle transurane Elemente, im Besonderen für Americium, spezifische physikalische Eigenschaften für die Berechnung der Eingruppenwirkungsquerschnitte berücksichtigt.

Umfangreiche Simulationen des Betriebsverhaltens des Systems mit dem $(\text{PuMA})\text{O}_{2-x}$ -Brennstoff in einer Magnesiumoxidmatrix führte zu einem Gleichgewichtskern, der den gleichmäßigen Abbrand der Brennelemente gewährleistet. Die Verfügbarkeit eines solchen Kerns machte Abbrandberechnungen anhand eines simulationstechnisch reduzierten Modells möglich, mit dem zahlreiche Brennstoffvarianten untersucht werden konnten. Dabei zeigte sich, dass Americium im Brennstoff durch Neutroneneinfang vorwiegend in Plutonium umgewandelt wird. Dies bewirkt, dass bei entsprechend hohem Americiumanteil (50 %wt) und angepasster Geometrie der Multiplikationsfaktor stabil bleibt. Hohe Transmutationsraten für Americium bedeuten damit keinesfalls eine hohe Spaltungsrate dieses Elementes.

Die Ergebnisse verdeutlichen, dass ein solches Konzept nur langfristig anwendbar ist, wenn ausreichend neues Americium zukünftig zur Verfügung steht. Dies ist nicht der Fall, wenn die Beladung mit wiederaufgearbeitetem Brennstoff erfolgt. Dieser Effekt lässt sich bei unterschiedlicher Anreicherung mit Americium demonstrieren. Bei einer Reduzierung des Brennstoffanteils von 50.0 %wt auf 7.0 %wt ist eine Erhöhung des abbrandbedingten Reaktivitätsverlustes von - 2.2 pcm/d auf -7.3 pcm/d zu verzeichnen. Dies verkürzt die Zyklenlänge und senkt den Abbrand. Eine mögliche Gegenmaßnahme ist die Verwendung eines thoriumbasierten Brennstoffs, um während des Betriebs für ausreichend Neubildung von spaltbarem Material zu sorgen. Das erbrütete Uran ließe sich nach der Nutzung von den anderen Actiniden abtrennen und in konventionellen Kernkraftwerken im Ausland weiterverwenden.

Das Transmutationsverhalten der untersuchten Brennstoffvarianten wurde nach einer Abklingzeit von 10 Jahren verglichen, welches die Unterschiede bei der Anreicherung mit Americium verdeutlicht. Für eine genauere Betrachtung wurde der Brennstoff mit der direkten Endlagerung verglichen, um die Massenabnahme auf den reinen Bestrahlungsprozess zurückzuführen. Die Ergebnisse zeigen, dass neben ^{238}Pu und ^{242}Pu auch ^{241}Pu aufgebaut wird.

Auf der Grundlage der gewonnenen Erkenntnisse mit Thorium als Trägermatrix wurden die letzten Abbrandzyklen des ADS simuliert. Die Ergebnisse zeigen, dass die resultierende Materialzusammensetzung eine niedrigere Effizienz aufweist als nach gängigen Abschätzungen angenommen wird. Der Grund dafür ist, dass die im Reaktor befindliche Masse in anderen Studien bislang nicht berücksichtigt wurde. Dies basiert auf der Annahme, dass die Kernenergie langfristig genutzt wird und damit die im Kern befindliche Masse Teil des abgeschlossenen Brennstoffkreislaufes ist. Diese Annahme ist nur bedingt zutreffend und die mathematische Beschreibung muss mit der Brennstoffentladung der letzten Anlage erweitert werden, um die größtmögliche Transmutationseffizienz zu ermitteln.

Ein weiteres Ergebnis der vorliegenden Arbeit ist die Bewertung von P&T anhand des Verlaufs der endlagerrelevanten Größen wie die Aktivität und Nachzerfallswärmeleistung. Die Simulationen zeigen, dass die Abnahme der Größen nicht gleichmäßig erfolgt, da sich die Nuklidzusammensetzung durch P&T im Vergleich zur direkten Endlagerung ändert. Untersuchungen zu Beginn der P&T-Phase zeigen, dass bei einem einmaligen Betriebszyklus infolge der Umwandlung von Americium in Plutonium das Gefährdungspotential der Transurane für Endlagerzeiträume bei 200,000 Jahren gegenüber der direkten Endlagerung signifikant erhöht ist. Der Aufbau der dafür verantwortlichen Plutoniumisotope ^{238}Pu und ^{242}Pu wird erst in fortlaufenden Transmutationszyklen im Vergleich zur direkten Endlagerung reduziert. Dies macht deutlich, dass P&T ein langfristiger Prozess ist und bis zum Ende durchgeführt werden muss, um eine signifikante Reduzierung der endlagerrelevanten Größen gegenüber der direkten Endlagerung zu erreichen.

Die Transmutationseffizienz beeinflusst die Dauer des P&T-Prozesses im erheblichen Maße. Mit der in dieser Arbeit modellierten System wurde eine Effizienz von 98.8 % erreicht. Zur Realisierung dieser Effizienz unter der Annahme von 20 % Abbrand je Zyklus, 0.1 % Partitioningverluste bei der Wiederaufarbeitung und 10 Jahren Wiederaufarbeitungszeit ergibt sich bei flexibler Anlagenleistung und ausreichender Anlagenkapazität eine Transmutationsdauer von 338 Jahren.

Auf Basis der bereits verglasten Abfälle aus der Wiederaufarbeitung wurde für die Nachzerfallswärme und Radiotoxizität eine Transmutationseffizienz hergeleitet. Der aus dem verglasten Abfall resultierende Verlauf für die Nachzerfallswärme und Radiotoxizität stellt dabei das Mindestniveau bei einer Endlagerung dar, wenn der Abfall nicht wiederaufbereitet wird. Der kumulierte Beitrag aus der aus einer P&T-Prozess resultierenden endzulagernden Restmenge darf zu keinem Endlagerungszeitpunkt den der verglasten Abfälle überschreiten, um einen zusätzlichen Beitrag auf dasselbe Niveau zu begrenzen. Für den Wärmeeintrag in ein Endlager ergibt sich mit dieser Annahme eine Effizienz von 96 % und bei der Radiotoxizität von 96.6 % mit einer Transmutationsdauer von 232 und 245 Jahren.

Ausblick

Die Berechnung der Transmutationsdauer in Abhängigkeit der endlagerrelevanten Größen zeigt, wie wichtig die Beschreibung des gesamten P&T-Prozesses ist. Die sich ändernde Brennstoffzusammensetzung wird durch den Betrieb, aber auch durch die Umsetzung des Prozesses bestimmt. Soll die Transmutationsdauer minimiert werden, ist ein paralleler Verlauf von Anlagen erforderlich. Als Folge werden die anfänglichen Radionuklide schneller transmutiert und Zerfallsprodukte wie ^{241}Am entstehen in einem geringeren Umfang, wenn das ^{241}Pu schnellstmöglich abgebrannt wird. Mit einer Festlegung der Anlagenleistung und flexibler Fahrweise solcher Anlagen kann das Transmutationssystem weiter verbessert werden, um den Abbrand zu maximieren. Aufgrund der Wechselwirkung der neutronenphysikalischen und thermodynamischen Vorgänge gilt es auch das erarbeitete Betriebskonzept mit einer ausführlichen Betrachtung der thermohydraulischen Auslegung zu koppeln. Für diese Untersuchungen ist eine Auflösung der Leistungsverteilung auf Stab- statt Brennelementebene notwendig, was aufgrund des hohen Rechenaufwandes numerische und programmtechnische Optimierung erfordert.

Weiterhin ist es für die zeitliche Entwicklung der Radionuklidzusammensetzung wichtig, Wiederaufarbeitung und Partitioningverluste differenziert zu erfassen. Hinzu kommt die Abbildung der Unsicherheit des Transmutationsprozesses während des Betriebs. Im schnellen Neutronenspektrum weisen die nuklearen Daten, die zur Berechnung der Wirkungsquerschnitte für Abbrand und Transmutation verwendet werden, zum Teil noch große Unsicherheiten auf. Weitere Simulationen sind daher stets Aufgabe des Verbesserungsprozesses, sobald sich signifikante Änderungen bei aktuellen Datenbanken ergeben, um das Transmutationsverhalten des jeweiligen Systems genauer zu erfassen.

A Anhang

A.1 Ergebnisse zum Transmutationsverhalten

In diesem Anhang sind die Ergebnisse zu den unterschiedlichen Brennstoffkonzepten aufgelistet. Neben der Massenbilanz für EFIT und Myrrha ähnlichen Brennstoff in der Testphase sind nur Ergebnisse aufgelistet, die mit Hilfe des Referenzkern ermittelten Abbrands berechnet wurden.

Tabelle A.1: Massenbilanz von BSI bei Abbrandrechnungen in der Testphase

	BOC [g]	EOC [g]	Abnahme [g]		BOC [g]	EOC [g]	Abnahme [g]
Np	3.32	3.51	0.19	Am	79.58	64.34	-15.24
Np237	3.32E+00	3.51E+00	1.95E-01	Am241	6.55E+01	5.16E+01	-1.40E+00
Pu	72.67	73.81	1.14	Am242		1.68E+00	1.68E+00
Pu238	2.70E+00	9.68E+00	6.98E+00	Am243	1.40E+01	1.11E+01	-2.95E+00
Pu239	3.37E+01	2.71E+01	-6.60E+00	Cm	3.64	4.78	1.14
Pu240	2.48E+01	2.52E+01	3.84E-01	Cm243		2.36E-02	2.36E-02
Pu241	2.81E+00	2.03E+00	-7.83E-01	Cm244	2.64E+00	3.76E+00	1.13E+00
Pu242	8.69E+00	9.85E+00	1.15E+00	Cm245	1.01E+00	9.42E-01	-6.44E-02

Tabelle A.2: Massenbilanz von BSII bei Abbrandrechnungen in der Testphase

	BOC [g]	EOC [g]	Abnahme [g]		BOC [g]	EOC [g]	Abnahme [g]
Np	0	0.63	0.63	Am	79.19	64.72	-14.47
Np237		6.34E-01	6.34E-01	Am241	5.26E+01	4.28E+01	-9.81E+00
Pu	62.87	64.9	2.03	Am242m		1.38E+00	1.38E+00
Pu238	3.16E+00	8.38E+00	5.23E+00	Am243	2.65E+01	2.05E+01	-6.05E+00
Pu239	2.37E+01	1.91E+01	-4.65E+00	Cm	15.99	15.1	-0.9
Pu240	1.91E+01	2.33E+01	4.26E+00	Cm243		2.10E-02	2.10E-02
Pu241	8.34E+00	4.50E+00	-3.84E+00	Cm244	1.44E+01	1.29E+01	-1.44E+00
Pu242	8.57E+00	9.60E+00	1.03E+00	Cm245	1.61E+00	2.03E+00	4.28E-01

Tabelle A.3: Abbrand für die unterschiedlichen Abbrandpfade anhand von Referenzkernberechnungen für BRD-Brennstoff

Ladekonfiguration	Abbrandpfad I	Abbrandpfad II	Abbrandpfad III	
Actinides	109.14	89.19	88.61	87.62
Am	7.80	6.71	6.65	6.54
Am241	6.88	5.19	5.16	5.10
Am242m	0.00	0.29	0.27	0.24
Am243	0.92	1.22	1.21	1.21
Cm	0.00	0.43	0.44	0.47
Cm242	0.00	0.15	0.14	0.14
Cm243	0.00	0.01	0.01	0.01
Cm244	0.00	0.26	0.27	0.29
Cm245	0.00	0.02	0.02	0.03
Np	7.62	5.24	5.22	5.19
Np237	7.62	5.23	5.22	5.18
Pu	93.72	76.66	76.14	75.26
Pu238	2.01	3.93	3.80	3.59
Pu239	53.11	35.10	35.07	34.97
Pu240	27.90	27.33	27.02	26.52
Pu241	2.89	3.05	3.04	3.05
Pu242	7.81	7.25	7.21	7.13
U	0.00	0.16	0.16	0.16
U234	0.00	0.13	0.13	0.13
U235	0.00	0.01	0.01	0.01
U236	0.00	0.02	0.02	0.02

Tabelle A.4: Massenvergleich [kg] zwischen direkter Endlagerung und nach einem Zyklus in einem ADS für BRD-Brennstoff. Die Massen entsprechen der in einem Zyklus eingesetzten Brennstoffmenge, wobei eine Abklingzeit von 10 Jahren und für die direkte Endlagerung 16 Jahre angenommen wurden.

	direkte Endlagerung	Einmaliger Zyklus in ADS	Zunahme [kg]	rel. Änderung [%]
U234	2.30	4.21	1.90	82.68
Np237	76.79	52.24	-24.55	-31.97
Pu	902.55	738.34	-164.21	-18.19
Pu238	17.38	36.48	19.10	109.91
Pu239	521.54	344.70	-176.84	-33.91
Pu240	273.74	267.60	-6.14	-2.24
Pu241	13.17	18.49	5.32	40.40
Pu242	76.72	71.07	-5.65	-7.37
Am	90.04	75.98	-14.06	-15.62
Am241	80.98	61.39	-19.59	-24.19
Am242m	0.00	2.63	2.63	
Am243	9.06	11.96	2.90	32.04
Cm	0.00	2.04	2.04	
Cm242	0.00	0.01	0.01	
Cm243	0.00	0.05	0.05	
Cm244	0.00	1.79	1.79	
Cm245	0.00	0.18	0.18	
Cm246	0.00	0.01	0.01	
Total	1071.91	873.50	-198.41	-18.51

Tabelle A.5: Massenvergleich [kg] zwischen direkter Endlagerung und nach einem Zyklus in einem ADS für CERMET-Brennstoff. Die Massen entsprechen der in einem Zyklus eingesetzten Brennstoffmenge, wobei eine Abklingzeit von 10 Jahren und für die direkte Endlagerung 16 Jahre angenommen wurden.

	direkte Endlagerung	Einmaliger Zyklus in ADS	Zunahme [kg]	rel. Änderung [%]
U233	0.00	0.00	0.00	82.21
U234	2.17	8.42	6.25	288.61
U235	0.22	0.21	-0.01	-6.28
U236	0.44	0.42	-0.02	-5.10
U238	0.00	0.00	0.00	-29.25
Np237	61.36	50.09	-11.27	-18.37
Pu	864.90	819.99	-44.91	-5.19
Pu238	16.35	77.97	61.62	376.79
Pu239	490.95	386.10	-104.85	-21.36
Pu240	273.06	260.20	-12.86	-4.71
Pu241	12.39	13.98	1.59	12.81
Pu242	72.14	81.74	9.60	13.30
Am	958.77	804.20	-154.57	-16.12
Am241	844.65	687.30	-157.35	-18.63
Am242m	0.00	17.39	17.39	
Am243	114.12	99.51	-14.61	-12.80
Cm	29.83	33.75	3.92	13.14
Cm242	0.39	0.38	-0.02	-3.83
Cm243	18.77	23.37	4.60	24.48
Cm244	9.77	8.77	-0.99	-10.19
Cm245	0.90	1.19	0.30	33.01
Cm246	0.00	0.04	0.04	
Total	1918.80	1718.00	-200.80	-10.46

Tabelle A.6: Massenvergleich [kg] zwischen direkter Endlagerung und nach einem Zyklus in einem ADS für ThPuMA-Brennstoff. Die Massen entsprechen der in einem Zyklus eingesetzten Brennstoffmenge, wobei eine Abklingzeit von 10 Jahren und für die direkte Endlagerung 16 Jahre angenommen wurden.

	direkte Endlagerung	Einmaliger Zyklus in ADS	Zunahme [kg]	rel. Änderung [%]
Th232	1498.00	1452.00	-46.00	-3.07
U	3.10	43.77	40.67	1310.74
U233	0.00	33.90	33.90	
U234	2.37	9.17	6.80	286.55
U235	0.24	0.24	-0.01	-3.57
U236	0.49	0.47	-0.02	-4.33
Np237	67.22	56.37	-10.85	-16.14
Pu	947.84	905.16	-42.68	-4.50
Pu238	17.91	78.86	60.95	340.31
Pu239	538.00	434.70	-103.30	-19.20
Pu240	299.30	287.70	-11.60	-3.88
Pu241	13.57	15.07	1.50	11.05
Pu242	79.06	88.83	9.77	12.36
Am	1050.70	885.70	-165.00	-15.70
Am241	925.60	774.40	-151.20	-16.34
Am243	125.10	111.30	-13.80	-11.03
Cm	32.68	36.47	3.79	11.59
Cm243	0.43	0.40	-0.03	-6.95
Cm244	20.57	25.13	4.56	22.17
Cm245	10.70	9.66	-1.04	-9.69
Cm246	0.98	1.28	0.30	30.09
Total	3600	3397.77	-202.23	-5.62

Tabelle A.7: Abbrand für die unterschiedlichen Abbrandpfade für ThPuMA-Brennstoff anhand von Referenzkernberechnungen

Ladekonfiguration	Abbrandpfad I	Abbrandpfad II	Abbrandpfad III
Actinides	366.35	345.95	345.06
Am	107.76	92.35	92.03
Am241	95.01	79.13	78.98
Am242m	0.00	1.88	1.71
Am243	12.75	11.33	11.33
Cm	5.12	5.65	5.64
Cm242	0.00	0.73	0.72
Cm243	0.06	0.05	0.05
Cm244	3.86	3.75	3.75
Cm245	1.09	0.98	0.98
Cm246	0.10	0.13	0.13
Np	4.45	4.50	4.43
Np237	4.45	4.50	4.43
Pa	0.00	0.15	0.18
Pu	96.58	91.85	91.32
Pu238	2.07	7.97	7.59
Pu239	54.73	44.21	44.26
Pu240	28.76	28.17	27.98
Pu241	2.98	2.47	2.52
Pu242	8.04	9.03	8.98
Th232	152.45	147.75	147.77
U	0.00	3.70	3.69
U233	0.00	3.39	3.30
U234	0.00	0.27	0.35
U235	0.00	0.01	0.01
U236	0.00	0.02	0.02

Tabelle A.8: Massenvergleich [kg] zwischen direkter Endlagerung und nach einem Zyklus in einem ADS für ThPu-Brennstoff. Die Massen entsprechen der in einem Zyklus eingesetzten Brennstoffmenge, wobei eine Abklingzeit von 10 Jahren und für die direkte Endlagerung 16 Jahre angenommen wurden.

	direkte Endlagerung	Einmaliger Zyklus in ADS	Zunahme [kg]	rel. Änderung [%]
Th232	2497.00	2390.00	-107.00	-4.29
U	3.50	86.57	83.07	2375.06
U233	0.00	81.42	81.42	
U234	2.69	4.37	1.68	62.51
U235	0.28	0.28	0.00	0.07
U236	0.53	0.51	-0.03	-5.12
Np237	0.25	0.31	0.06	25.21
Pu	1053.04	872.89	-180.15	-17.11
Pu238	20.28	16.28	-4.00	-19.72
Pu239	608.50	451.30	-157.20	-25.83
Pu240	319.40	304.60	-14.80	-4.63
Pu241	15.36	18.40	3.04	19.79
Pu242	89.50	82.31	-7.19	-8.03
Am	17.56	22.65	5.09	28.98
Am241	17.56	18.72	1.16	6.61
Am242m	0.00	0.15	0.15	
Am243	0.00	3.78	3.78	
Cm	0.00	0.24	0.24	
Cm242	0.00	0.00	0.00	
Cm243	0.00	0.00	0.00	
Cm244	0.00	0.23	0.23	
Cm245	0.00	0.01	0.01	
Total	3571.01	3372.77	-198.24	-5.55

Tabelle A.9: Massenvergleich [kg] zwischen direkter Endlagerung und nach einem Zyklus in einem ADS für ThBRD1-Brennstoff. Die Massen entsprechen der in einem Zyklus eingesetzten Brennstoffmenge, wobei eine Abklingzeit von 10 Jahren und für die direkte Endlagerung 16 Jahre angenommen wurden.

	direkte Endlagerung	Einmaliger Zyklus in ADS	Zunahme [kg]	rel. Änderung [%]
Th232	2175.00	2097.00	-78.00	-3.59
U	3.86	66.89	63.03	1631.65
U233	0.00	60.46	60.46	
U234	2.97	5.58	2.61	88.00
U235	0.30	0.29	-0.02	-5.48
U236	0.59	0.56	-0.03	-4.36
Np237	73.15	59.66	-13.49	-18.44
Pu	1163.34	1009.21	-154.13	-13.25
Pu238	22.39	35.74	13.35	59.62
Pu239	672.30	522.10	-150.20	-22.34
Pu240	352.80	337.40	-15.40	-4.37
Pu241	16.97	19.60	2.63	15.50
Pu242	98.88	94.37	-4.51	-4.56
Am	159.07	139.67	-19.41	-12.20
Am241	142.20	119.00	-23.20	-16.32
Am242m	0.00	3.00	3.00	
Am243	16.87	17.67	0.80	4.74
Cm	0.00	1.44	1.44	
Cm242	0.00	0.01	0.01	
Cm243	0.00	0.02	0.02	
Cm244	0.00	1.34	1.34	
Cm245	0.00	0.07	0.07	
Total	3574.71	3373.23	-201.48	-5.64

Tabelle A.10: Massenvergleich [kg] zwischen direkter Endlagerung und nach einem Zyklus in einem ADS für ThBRD2-Brennstoff. Die Massen entsprechen der in einem Zyklus eingesetzten Brennstoffmenge, wobei eine Abklingzeit von 10 Jahren und für die direkte Endlagerung 16 Jahre angenommen wurden.

	direkte Endlagerung	Einmaliger Zyklus in ADS	Zunahme [kg]	rel. Änderung [%]
Th232	2033.00	1962.00	-71.00	-3.49
U	3.76	61.32	57.56	1531.91
U233	0.00	53.99	53.99	
U234	2.89	6.50	3.62	125.37
U235	0.30	0.28	-0.02	-5.20
U236	0.57	0.55	-0.02	-4.26
Np237	84.04	69.08	-14.96	-17.80
Pu	1131.53	1002.14	-129.39	-11.43
Pu238	21.78	46.81	25.03	114.92
Pu239	653.90	512.90	-141.00	-21.56
Pu240	343.20	328.80	-14.40	-4.20
Pu241	16.50	18.85	2.35	14.24
Pu242	96.15	94.78	-1.37	-1.42
Am	326.59	279.53	-47.06	-14.41
Am241	289.40	238.50	-50.90	-17.59
Am242m	0.00	6.14	6.14	
Am243	37.19	34.89	-2.30	-6.18
Cm	0.00	2.76	2.76	
Cm242	0.00	0.01	0.01	
Cm243	0.00	0.04	0.04	
Cm244	0.00	2.58	2.58	
Cm245	0.00	0.13	0.13	
Total	3579.51	3377.13	-202.38	-5.65

Tabelle A.11: Massenvergleich [kg] zwischen direkter Endlagerung und nach einem Zyklus in einem ADS für ThBRD3-Brennstoff. Die Massen entsprechen der in einem Zyklus eingesetzten Brennstoffmenge, wobei eine Abklingzeit von 10 Jahren und für die direkte Endlagerung 16 Jahre angenommen wurden.

	direkte Endlagerung	Einmaliger Zyklus in ADS	Zunahme [kg]	rel. Änderung [%]
Th232	1962.00	1891.00	-71.00	-3.62
U	3.67	58.88	55.21	1504.15
U233	0.00	51.06	51.06	
U234	2.82	7.00	4.18	148.33
U235	0.29	0.28	-0.01	-4.77
U236	0.56	0.54	-0.02	-4.15
Np237	89.78	74.04	-15.74	-17.53
Pu	1105.45	989.50	-115.95	-10.49
Pu238	21.27	52.52	31.25	146.92
Pu239	638.90	503.00	-135.90	-21.27
Pu240	335.20	321.40	-13.80	-4.12
Pu241	16.13	18.33	2.20	13.64
Pu242	93.95	94.25	0.30	0.32
Am	421.27	359.60	-61.67	-14.64
Am241	372.60	307.10	-65.50	-17.58
Am242m	0.00	7.83	7.83	
Am243	48.67	44.67	-4.00	-8.22
Cm	0.00	3.47	3.47	
Cm242	0.00	0.02	0.02	
Cm243	0.00	0.04	0.04	
Cm244	0.00	3.25	3.25	
Cm245	0.00	0.16	0.16	
Total	3581.91	3376.08	-205.83	-5.75

A.2 Szenarien zur Laufzeitabschätzung

Tabelle A.12: Auszug aus Berechnungstabelle zu Szenario *SingKon*, in dem nur eine Anlage kontinuierlich betrieben wird.

Betriebs- jahre [a]	Lager [t]	Inventar [t]	in WAA [t]	Vernichtet [t]	ϵ_{PT} [%]
	150				
0	125	25			
1	119	25	5	1	0.83
...
59	2	25	50	73	48.77
59*	21	6	50	73	48.77
60	24	6	46	73	48.98
...
247	0	6	12	131	87.42
247*	5	2	12	131	87.42
248	5	2	12	131	87.48
...
389	0	2	4	144	96.16

* kennzeichnet den Wechsel zu einem Anlagentyp mit kleinerem Inventar

Tabelle A.13: Auszug aus Berechnungstabelle zu Szenario *SingBreak*, in dem eine Anlage betrieben wird und die Wiederaufarbeitung (WWA) langjährige Betriebspausen() verursacht.

Betriebs- jahre [a]	Lager [t]	Inventar [t]	in WAA [t]	Vernichtet [t]	ϵ_{PT} [%]
	150				
0	125	25			
1	119	25	5	1	0.83
...
59	2	25	50	73	48.77
69()	52	25	0	73	48.77
70	46	25	5	74	49.60
...
108	1	25	25	99	66.13
118()	25	25	0	100	66.96
119	19	25	5	102	67.79
120	12	25	10	103	68.61
121	6	25	15	104	69.44
131()	20	25	0	105	70.27
132	14	25	5	107	71.09
133	7	25	10	108	71.92
134	1	25	15	109	72.75
144(*)	34	6	0	109	72.95
...
205	3	6	12	128	85.56
...
246	2	6	6	135	90.31

* kennzeichnet den Wechsel zu einem Anlagentyp mit kleinerem Inventar

Tabelle A.14: Auszug aus Berechnungstabelle zu Szenario *MultiKon*, in dem mehrere kontinuierlich Anlage betrieben werden.

Betriebs- jahre [a]	Lager [t]	Inventar [t]	in WAA [t]	Vernichtet [t]	ϵ_{PT} [%]
	150	0	0	0	0.0
0	125	25	0	0	0.0
1	119	25	5	1	0.8
2	113	25	10	3	1.7
...
83	2	19	37	92	61.5
83*	8	12	37	92	61.5
84	9	12	36	93	61.9
...
165	4	6	12	128	85.3
166	3	6	12	128	85.5

* kennzeichnet die Stilllegung einer Anlage wegen zu geringer Lagermenge

Abbildungsverzeichnis

2.1	Elementaufbau bei Abbrand von 50 MWd/kg _{HM}	3
2.2	Elementspezifischer Aktivitätsverlauf für den deutschen radioaktiven Abfall	7
2.3	Elementspezifischer Radiotoxizitätsverlauf für den deutschen radioaktiven Abfall	8
2.4	Radiotoxizität nach Elementen nach OTC	10
2.5	Radiotoxizität gesamt sowie nach Elementen nach WAA	11
2.6	Radiotoxizität nach Elementen nach Brennstoffkreislaufart	12
2.7	Überblick der unterschiedlichen Brennstoffkreisläufe	14
2.8	Wirkungsquerschnitte bei ²⁴¹ Am in Abhängigkeit der Neutronenenergie	17
2.9	Spaltwahrscheinlichkeit im thermischen und schnellen Reaktorsystem	18
2.10	Neutronenvervielfachung in prompte und verzögerte Neutronenfreisetzung	20
2.11	Resonanzverbreiterung bei unterschiedlicher Kerntemperatur	22
2.12	Wirkungsquerschnitt (n,γ) für ²³⁹ Pu, ²⁴¹ Pu und ²⁴¹ Am	23
2.13	Konzeptioneller Aufbau des AGATE-Anlagenkomplexes	27
3.1	Interaktion der verwendeten Computerprogramme	29
3.2	Exemplarischer Ereignisfad für ein Neutronschicksal	31
3.3	Geometrie des ADS AGATE	32
3.4	Berechnung der Neutronen je Proton	34
3.5	Relative Fehler für Wirkungsquerschnitt bei (n,γ)-Reaktionen	35
3.6	Wichtigsten Ein- und Ausgabedateien für ORIGEN	38
4.1	Übergang von Abbild AGATE zu MCNP-Modell	50
4.2	Neutronenausbeute von Blei, Quecksilber und Wolfram (normalisiert)	52
4.3	Neutronenfluss entlang des Spallationstargets	53
4.4	Seitenansicht des Kerns mit unterschiedlichen Spallationsgeometrien	55
4.5	Ergebnisse zum segmentierten Spallationstarget	55
4.6	Axiale lineare Stableistung bei Blocktarget 2/2	56
4.7	Axiale lineare Stableistung bei Blocktarget 1/2	56
5.1	Zonenaufteilung in der Testphase	58
5.2	Multiplikationsfaktor und Protonenstromstärke für die Testphase mit MOX-Brennstoff	59
5.3	Reflektor mit Kontrollstäben und resultierendem Neutronenfluss	60
5.4	k_s für PuMA-Brennstoff im Betriebskonzept	64
5.5	Multiplikationsfaktor und Protonenstromstärke im Gleichgewichtskern	65
5.6	Ablaufdiagramm für die Shufflingmethode "Mix"	68
5.7	Multiplikationsfaktor und der Protonenstromstärke für Shufflingperioden	69
5.8	Umsetzplan für Shufflingsmethode "Mix advanced"	70
5.9	Multiplikationsfaktor bei homogenem und heterogenem Beladung des 1.Rings	70
5.10	Neutronenflussverteilung im Gleichgewichtskern	72
5.11	Radialer Verlauf für Betriebsmodi bei PuMa-Brennstoff	74
5.12	k_s und k_{eff} für das Betriebskonzept Gleichgewichtskern bei PuMA-Brennstoff	75
5.13	φ^* und P_d im Gleichgewichtskern für PuMA-Brennstoff	75
6.1	Transmutationsrate für unterschiedliche Bezugspunkte	78
6.2	Transmutationsrate in Z5 bei PuMA-Brennstoff während des Betriebs	80
6.3	Transmutationsrate in Z1 bei PuMA-Brennstoff während des Betriebs	81
6.4	Transmutationsrate für gesamten Kern bei PuMA-Brennstoff während des Betriebs	82
6.5	k_{eff} und I für BRD-Brennstoff	91

6.6	Transmutationsrate für Am und Pu bei CERCER und CERMET Brennstoff während des Betriebs	93
8.1	Endlagerrelevante Größen nach einmaligem Abbrandzyklus	104
8.2	Radiotoxizität verschiedener Isotope von je einem Kilogramm	106
8.3	Schema zur Massenentwicklung einer ThBRD0-Beladung	108
8.4	Massenentwicklung für Pu-Isotope mit geringem Anteil bei ThBRD0-Brennstoff .	110
8.5	Massenentwicklung bei ThBRD0-Brennstoff	111
8.6	Endlagerrelevante Größen mit P&T	116
8.7	Radiotoxizität nach Elementen und deren Zerfallsprodukten nach P&T	117
8.8	Endlagerrelevanten Größen unterschiedlicher Transmutationseffizienz	120
8.9	Transmutationseffizienz und -dauer	128

Tabellenverzeichnis

2.1	Wichtungsfaktoren W_R der Strahlungsart zur Berechnung der effektiven Dosis . . .	4
2.2	Wichtungsfaktoren W_T für Gewebe zur Berechnung der effektiven Dosis	5
2.3	Inventar aus deutschen Kernkraftwerken für das Jahr 2022	6
2.4	Beispiele zum Anteil der verzögerten Neutronen an der Population	20
3.1	Generierte Wirkungsquerschnitte im KCODE und NPS Modus	40
3.2	Reaktionswahrscheinlichkeiten aus MCBurn und VESTA Berechnungen	41
3.3	Massenumsatz für einen MOX Stab in einer ADS Anlage	42
4.1	Parameter für die Hauptkomponenten von AGATE	49
4.2	Charakteristische Größen für das Spallationstarget bei Variationen	54
5.1	Nuklidzusammensetzung des MOX-Brennstoffs	57
5.2	Brennstoffzusammensetzung Myrrha und EFIT	61
5.3	Transmutationsraten in der Testphase	61
5.4	Brennstoffzusammensetzung für PuMA-Brennstoff	62
5.5	k_{eff} Justierung für PuMa-Brennstoff	63
5.6	Zonennummerierung und Brennelementanzahl	66
5.7	Historienbezeichnung der Brennelemente	66
5.8	k_{eff} -Änderung und φ^* für PuMA-Brennstoff in Abhängigkeit vom Betriebsmodus	71
5.9	Lineare Stableistung bei PuMA-Brennstoff in Abhängigkeit des Betriebsmodus . .	73
5.10	Zeitliche Entwicklung des Neutronenflusses in den Betriebsmodi	73
6.1	Abbrandpfad I für PuMA-Brennstoff	85
6.2	Abbrandpfad II für PuMA-Brennstoff	86
6.3	Abbrandpfad III für PuMA-Brennstoff	87
6.4	Massenänderung für den Gleichgewichtskern bei PuMA-Brennstoff	88
6.5	Massenvergleich bei DE und einem Zyklus in einem ADS für PuMA-Brennstoff . .	89
6.6	Brennstoffzusammensetzung für BRD-Brennstoff	90
6.7	Brennstoffzusammensetzung des CERMET-Brennstoffs	92
6.8	Brennstoffzusammensetzung des ThPuMA-Brennstoffs	94
6.9	Transmutationsrate für ThPuMA-Brennstoff	95
6.10	Brennstoffzusammensetzung für ThPu-Brennstoff	95
6.11	Transmutationsrate für ThPu-Brennstoff	96
6.12	Brennstoffzusammensetzung für thoriumbasierten Brennstoff	96
6.13	Betriebsparameter für thoriumbasierten Brennstoff	97
6.14	Anzahl der möglichen Wiederbeladungen für Brennstoffvarianten auf Thoriumbasis	97
7.1	Transmutationsraten der untersuchten Brennstoffvarianten	100
7.2	Betriebsparametern der untersuchten Brennstoffvarianten	101
8.1	Ermittlung der Brennstoffzusammensetzung bei mehrmaliger Rezyklierung	109
8.2	Beladungsinventar für ThBRD0-Brennstoff	113
8.3	Abtrennverluste durch Wiederaufarbeitung bei ThBRD0-Brennstoff	114
8.4	Elementmasse nach P&T	114
8.5	Masse bei direkter Endlagerung und nach P&T	114
8.6	Eigenbedarf (EB) der Anlage durch Beschleuniger und restliche technische Anlagen.	122
8.7	Technische und ökonomische Daten zu P&T-Anlagen	123
8.8	Transmutation mit nur einem Anlagetyp ohne Wiederaufarbeitungszeit	124
8.9	Transmutationsszenarien ohne Wiederaufarbeitungszeit	125
8.10	Transmutationsszenarien mit Wiederaufarbeitung	126

8.11	Transmutationsdauer in Abhängigkeit der Transmutationseffizienz und Wiederaufarbeitungszeit	127
A.1	Massenbilanz von BSI bei Abbrandrechnungen in der Testphase	134
A.2	Massenbilanz von BSII bei Abbrandrechnungen in der Testphase	134
A.3	Abbrand für BRD-Brennstoff	135
A.4	Massenvergleich bei DE und nach einem Zyklus in einem ADS für BRD-Brennstoff	136
A.5	Massenvergleich bei DE und nach einem Zyklus in einem ADS für CERMET-Brennstoff	137
A.6	Massenvergleich bei DE und nach einem Zyklus in einem ADS für ThPuMA-Brennstoff	138
A.7	Abbrand für ThPuMA-Brennstoff	139
A.8	Massenvergleich bei DE und nach einem Zyklus in einem ADS für ThPu-Brennstoff	140
A.9	Massenvergleich bei DE und nach einem Zyklus in einem ADS für ThBRD1-Brennstoff	141
A.10	Massenvergleich bei DE und nach einem Zyklus in einem ADS für ThBRD2-Brennstoff	142
A.11	Massenvergleich bei DE und nach einem Zyklus in einem ADS für ThBRD3-Brennstoff	143
A.12	Szenario <i>SingKon</i> zur Laufzeitabschätzung	144
A.13	Szenario <i>SingBreak</i> zur Laufzeitabschätzung	145
A.14	Szenario <i>MultiKon</i> zur Laufzeitabschätzung	146

Literatur

- [1] P. Brennecke. *Anforderung an endzulagernde radioaktive Abfälle (Endlagerungsbedingungen, Stand: Oktober 2010) -Endlager Konrad-*. SE-IB-29/08-REV-1. Bundesamt für Strahlenschutz, 2010.
- [2] Bundesamt für Strahlenschutz. Planfeststellungsbeschluss für die Errichtung und den Betrieb des Bergwerkes Konrad in Salzgitter, Mai 2002.
- [3] Bundesamt für Strahlenschutz. *Dezentrale Zwischenlager*. Mareis Druck GmbH, 2008.
- [4] *International Basic Safety Standards for Protection against Ionizing Radiation and for the Safety of Radioation Sources*. Safety Series 115. IAEA, 2003.
- [5] Nuclear Fuel Cycle Transition Scenario Studies. *Nuclear Science*, NEA No. 6194:p. 39–54, 2009. ISBN 978-92-64-99068-5.
- [6] International Commission for Radiological Protection. Age-dependent doses to members of the public from intake of radionuclides: Part 5, compilation of ingestion and inhalation dose coefficients. *Annals of the ICRP, Pergamon Press*, 72, 1996.
- [7] G. Tuyle, M. Todosow, M. Geiger, A. Aronson, and H. Takahashi. Accelerator-driven sub-critical target concept for transmutation of nuclear wastes. *Nuclear Technology*, 101:p. 1–17, 1993.
- [8] Naturschutz und Reaktorsicherheit Bundesministerium für Umwelt. Sicherheitsanforderungen an die Endlagerung wärmeentwickelnder radioaktiver Abfälle. 30. September 2010.
- [9] M. Salvatores, A. Zaetta, C. Girad, M. Delpesch, I. Slessarev, and J. Tommasi. Nuclear Waste Transmutation. *Appl. Radiat. Isot.*, 46(6/7):p. 681–687, 1995. 0969-8043/95.
- [10] J. J. Magill, V. Berthou, D. Haas, J. Galy, R. Schenkel, H.-W. Wiese, G. Heusener, J. Tommasi, and G. Youinou. Impact limits of partitioning and transmutation scenarios on the radiotoxicity of actinides in radioactive waste. *Nuclear Energy*, 42(5):p. 263–277, 2003.
- [11] M. Delpesch, J. Tommasi, J. Zaetta, M. Salvatores, H. Mouney, and G. Vambenepe, editors. *The Am and Cm transmutation - physics and feasibility*. GLOBAL, Proceedings of the International Conference on Future Nuclear Systems, 1999.
- [12] Actinide and fission product partitioning and transmutation - status and assessment report. *OECD-NEA*, 1999.
- [13] J. Kettler and M. Heuters, editors. *Konzept einer gasgekühlten beschleunigergetriebenen Transmutationsanlage*. Verlag Zillekens, 2011.
- [14] J. N. Mathur, M. S. Murali, and K. L. Nash. Actinide partitioning, a review. *Solvent Extr. Ion Exch.*, 19(3):p. 257–390, 2001.
- [15] K. L. Nash, C. Madic, J. N. Mathur, and J. Lacquement. The chemistry of the actinide and transactinide elements. *Springer Netherlands*, Third Edition:chapter 24, 2006.

- [16] *Accelerator-driven Systems (ADS) and Fast Reactors (FR) in Advanced Nuclear Fuel Cycles*. Nuclear Energy Agency Organisation for Economic Co-Operation and Development, 2002.
- [17] T. Mayer-Kuckuk. *Physik der Atomkerne*. ISBN 3-519-13021-1. Teubner Studienbücher, 1974.
- [18] J. Lilley. *Nuclear Physics, Principles and Applications*. ISBN 0-471-97935-X. John Wiley & Sons, Ltd, 2004.
- [19] N. Soppera. Java-based nuclear information software, <http://www.nea.fr/janis>.
- [20] A. G. Croff. *ORIGEN2 - A Revised and Updated Version of the Oak Ridge Isotope Generation and Depletion Code*. ORNL-5621, Oak Ridge National Laboratory, USA, 1980.
- [21] D. Raedt, B. Verboomen, Th. Aoust, H. Abderrahim, E. Malambu, and L. H. Baetslé. Transmutation and Incineration of MAs in LWRs, MTRs and ADSs. *Workshop Proceedings, Chester, United Kingdom*, pages 445–460, 2001.
- [22] A. Ziegler. *Lehrbuch der Reaktortechnik, Band 1*. Springer-Verlag, 1983.
- [23] B. Shen, S. Ping, and M. Merker. *Spallation nuclear reactions and their applications / edited by B. S. P. Shen and M. Merker*. D. Reidel Pub. Co., Dordrecht, Holland, 1976.
- [24] A. Wattenberg. *Nuclear Reactions at high energies, Handbuch der Physik, Bd. 40*. 40.
- [25] G.S. Bauer. Physics and technology of spallation neutron sources. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 463(3):p. 505 – 543, 2001. Accelerator driven systems.
- [26] R. Nabbi. Die physikalischen Grundlagen der Spallation und ihre möglichen Anwendungen in der Nukleartechnik. *KFA-IRE-IB-20/79*, 1979.
- [27] N. Watanabe. Neutronics of pulsed spallation neutron sources. *Reports on Progress in Physics*, 66(3):p. 339, 2003.
- [28] G.S. Bauer, M. Salvatores, and G. Heusener. MEGAPIE, a 1 MW Pilot Experiment for a Liquid Metal Spallation Target. *Journal of Nuclear Materials*, 296:p. 11–33, 2001.
- [29] J. R. Lamarsh and A. J. Baratta. *Introduction to Nuclear Engineering*. ISBN 0-201-82498-1. Prentice Hall, 2001.
- [30] O. Schitthelm. *Untersuchungen zum Sicherheits- und Transmutationsverhalten innovativer Brennstoffe für Leichtwasserreaktoren*. PhD thesis, RWTH Aachen, 2011.
- [31] C. W. Lau, C. Demazière, H. Nylén, and U. Sandberg. Innovative use of thorium in lwr fuel assemblies. Number 11349, cheuk@nephy.chalmers.se, 2011. Proceedings of ICAPP.
- [32] W.F.G. van Rooijen and J.L. Kloosterman. Closed Fuel Cycle and Minor Actinide Multirecycling in a Gas-Cooled Fast Reactor. *Hindawi Publishing Corporation*, Article ID 282365, 2009.
- [33] S. Tittelbach. *Konzept eines unterkritischen Transmutationssystems mit schnellem Neutronenspektrum und flüssigem Brennstoff*. PhD thesis, Forschungszentrum Jülich, 2002.

- [34] H. Nifenecker, S. David, J.M. Loiseaux, and O. Mephan. Basics of accelerator driven sub-critical reactors. *Elsevier*, 463:p. 428–467, 2001.
- [35] T. Schilling. *Neutronenphysikalische und Thermohydraulische Untersuchung zur Spaltstoffproduktion mit Spallationsreaktionen*. PhD thesis, RWTH Aachen, 1985.
- [36] P. Seltborg, J. Wallenius, K. Tuček, and W. Gudowski. Definition and application of proton source efficiency in accelerator-driven systems. *Nuclear Science and Engineering*, 145:p. 309–399, 2003.
- [37] *Spallation Neutron Source Effects in a Sub-Critical System*. KTH, Kungliga Tekniska högskolan, 2001.
- [38] T. Bodewig. *Optimierte Umwandlung von Plutonium und Americium in Druckwasserreaktoren*. PhD thesis, RWTH Aachen, Institut für Sicherheitsforschung und Reaktortechnik, 2004.
- [39] R. Stainsby, J. C. Garnier, P. Guedeney, K. Mikityuk, T. Mizuno, C. Poette, M. Pouchon, M. Rini, J. Somers, and E. Tournon. The Generation IV Gas-cooled Fast Reactor. 11321, pages 238–244. Proceedings of ICAPP, 2011.
- [40] H. Safa, P. Dumaz, J. F. Luciani, L. Buiron, B. Fontaine, and J. P. Grouiller. Is it worth to Start Fast Reactors Using Uranium Fuels? 11418, pages 2205–2211. Proceedings of ICAPP, 2011.
- [41] C. Poinssot, D. Warin, C. Rostaing, and M. Masson. Enhancing the sustainability of nuclear energy by increasing the efficiency of actinide recycling processes. Overview of the major guidelines. 11384, pages 2197–2204. Proceedings of ICAPP, 2011.
- [42] P. A. Gokhale, S. Deokattey, and V. Kumar. Accelerator driven system (ADS) for energy production and waste transmutation: International trends in R&D. *Nuclear Energy*, 48:p. 91–102, 2006.
- [43] *A European roadmap for developing accelerator driven systems for nuclear waste incineration*. Isbn: 88-8286-008-6 edition, 2001.
- [44] W. S. Park and et. al. HYPER (Hybrid Power Extraction Reactor): A system for clean nuclear energy. *Nuclear Engineering and Design*, 199:p. 155–165, 2000.
- [45] B. Weinhorst, U. Fischer, A. G. Class, and J. Fetzer. Neutronic Analyses of the European Spallation Source Target Design Option META:LIC. Proceedings of KTG, 2012.
- [46] S. Guan-Yu, C. Xiang, G. Han-Yang, and C. Xu. Designing Safety into a High-power Neutron Spallation Source. 11293, pages 799–809. Proceedings of ICAPP, 2011.
- [47] S. Panebianco, P. Beauvais, O. Bringer, S. Chabod, F. Chartier, E. Dupont, A. Letourneau, P. Lotrus, L. Oriol, and F. Molinie. Neutronic performances of the megapie target. *International Conference on Nuclear Data for Science and Technology*, 2007.
- [48] K. Samec and Y. Kadi. Designing Safety into a High-power Neutron Spallation Source. 11143, pages 789–794. Proceedings of ICAPP, 2011.

- [49] P. Seltborg and J. Wallenius. Proton source efficiency for heterogeneous distribution of actinides in the core of an accelerator-driven-system. *Nuclear science and engineering*, 154:p. 202–214, 2006.
- [50] J. Wang and W. Chou. Beam dynamics newsletter no. 49, 2009.
- [51] R. Kimura, T. Akamatsu, and T. Yoshida. Study of specific burn up of curium in thermal reactors. Number Papar 11044, pages 2114–2120. ICAPP, May 2011.
- [52] *MCNPX 2.6.0 Manual (LA-CP-07-1473, April, 2008)*.
- [53] A. G. Croff. Origen2: A versatile computer code for calculating the nuclide composition and characteristics of nuclear materials. *Nuclear Technology*, 62:p. 335–352, 1983.
- [54] *SABRINA - Visualization in support of MCNP*.
- [55] D. Cano-Ott. *Cross-section measurements of minor actinides at the n_TOF-PH2 experiment at Cern*. Nuclear Energy Agency Organisation for Economic Co-Operation and Development, 2010.
- [56] N. Colonna, U. Abbondanno, and et al. Neutron cross-sections for the next generation reactors: New data from n_TOF. *Applied Radiation and Isotopes*, 68:p. 643–646, 2010.
- [57] F. Belloni, M. Calviani, and et al. Measurement of the neutron-induced fission cross-section of ^{243}Am relative to ^{235}U from 0.5 to 20 MeV. *The European Physical Journal A*, 47, 2011.
- [58] N. Colonna, S. Andriamonje, and et al. Neutron measurement for advanced nuclear systems: The n_TOF project at CERN. *Nuclear Instruments & Methods in Physics Research B*, 269:p. 3251–3257, 2011.
- [59] J. Adam and et al. Transmutation of ^{129}I , ^{237}Np , ^{238}Pu , ^{239}Pu and ^{241}Am using neutrons produced in the target-blanket system Energy plus Transmutation by relativistic protons. *Pramana - journal of physics*, 68:p. 201–212, 2007.
- [60] A. Trkow, M. Herman, and D.A. Brown. *ENDF-6 Formats Manual*. National Nuclear Data Center Brookhaven National Laboratory, Upton, NY 11973-5000, 2011.
- [61] A. Herrera-Martínez. *Transmutation of Nuclear Waste in Accelerator-Driven Systems*. PhD thesis, Department of Engineering University of Cambridge, 2004.
- [62] T. Hazama, editor. *Adjustment of ^{241}Am Cross Section with Monju Reactor Physics Data*. ICAPP2011, 2011.
- [63] *JEFF3.1.1 validation of the fuel inventory calculation for high burn-up PWR fuel (up to 85 GWd/t) with the ALIX experiment*. ICAPP2011, 2011.
- [64] A. Hogenbirk, R. K. Meulekamp, and et. al. Uncertainty evaluation of the nuclear design of pds-xads.
- [65] G. Glinatsis, C. Artili, C. Petrovich, and M. Sarotto. Reactivity coefficients and uncertainty evaluations on the EFIt core neutron design. *International Conference on Reactor Physics, Nuclear Power*, 2008.

- [66] M. Salvatores. *Nuclear data for advanced fuel cycles*. Tenth Information Exchange Meeting. Nuclear Energy Agency Organisation for Economic Co-Operation and Development, 2010.
- [67] J. Coenen. Bestimmung des Nuklidvektors und der Aktivitätsverteilung für den Forschungsreaktor FRJ-2 mit Hilfe des numerischen Rechenprogramms ORIGEN-2. Master's thesis, Fachhochschule Aachen, 2007.
- [68] W. Haeck. *VESTA User's Manual - Version 2.0.0*. IRSN DSU/SEC/T/2008-331 - Index A, Institut de Radioprotection et de Surete Nucleaire, France (2009), 2009.
- [69] W. Haeck, B. Cochet, and L. Aguiar. Isomeric Branching Ratio Treatment for Neutron-Induced Reactions. *Reactor Physics: General-II*, pages 693–695, 2010.
- [70] F. Varaine, L. Buiron, L. Boucher, D. Verrier, and S. Massara. Study of minor actinide transmutation in sodium fast reactor depleted uranium radial blanket. *10th Information Exchange Meeting*, 2008.
- [71] S. Pérez-Martin, F. Martin-Fuertes, and F. Álvarez Velarde. Minor Actinides Transmutation Strategies in Sodium Fast Reactors. Number 11419, pages p 544–550. Proceedings of ICAPP, 2011.
- [72] M. Salvatores, C. Chabert, C. Fazio, R. Hill, Y. Penelieu, I. Slessarevz, and W. Yang. Fuel cycle analysis of TRU or MA burner fast reactors with variable conversion ratio using a new algorithm at equilibrium. *Nuclear Engineering and Design*, 239:p. 2160–2168, 2009.
- [73] NEA No. 5419, editor. *Fuels and Materials for Transmutation*. ISBN 92-64-01066-1. Nuclear Energy Agency Organisation for Economic Co-Operation and Development, 2005.
- [74] R. Forrest. DEMO and the Route to Fusion Power. fire.pppl.gov/eu_demo_Stork_FZK%20.pdf, 2009. 3rd Karlsruhe Intl School on Fusion Technology.
- [75] A. Almazouzi and et al. Characterization of the newly produced T91- fuel cladding tubes. <http://www.sckcen.be/nl/content/download/5633/71938/file>.
- [76] W.F.G van Rooijen. Gas-cooled fast reactor: A historical overview and future outlook. *Science and Technology of Nuclear Installations*, ID 965757:11, 2009.
- [77] W. Maschek, X.-N. Chen, and et al. ADS for Transmutation: Fuel Development, Design and Safety. *Progress in Nuclear Energy*, 50:p. 333–340, 2008.
- [78] X.-N. Chen and et al. Parametric studies of an EFIT core with CERMET fuel. *Actinide and Fission Product Partitioning and Transmutation Tenth Information Exchange Meeting*, 2008.
- [79] K. Bakker, F. C. Klaasen, R. P. C. Schram, A. Hogenbirk, and R. K. Meulekamp. The use of Molybdenum-Based Ceramic-Metal (CerMet) Fuel for the Actinide Management in LWRs. *Nuclear Technology*, 146:p. 325–331, 2004.
- [80] W. Maschek, C. Artioli, and X. Chen. Design saefty and fuel developments for the EFIT accelerator-driven system with CERCER and CERMET cores. *Actinide and Fission Product Partitioning and Transmutation Tenth Information Exchange Meeting*, pages 387–399, 2008.

- [81] E. Malambu, W. Haeck, V. Sobolev, and H. Ait Abderrahim. MA and LLFP Transmutation Performance assessment in the Myrrha small-scale ADS. http://www.oecd-nea.org/pt/docs/iem/lasvegas04/11_Session_V/S5_02.pdf 16.07.2012.
- [82] P. Richard, G. Rimpault, J. F. Pignatel, B. Giraud, M. Schikorr, and R. Stainsby. Pre-Conceptual Design of a Helium-Colled ADS: He-EFIT. http://www.oecd-nea.org/science/hpa5/Presentations/IV-1_Richard.pdf (17-07-2012), 2007. Presentation.
- [83] C. Artioli, X.-N. Chen, F. Gabrielli, G. Glinatsis, P. Liu, W. Maschek, C. Petrovich, A. Rineiski, M. Sarotto, and M. Schikorr. Minor actinide transmutation in ADS: the EFIT core design. *International conference on the Physics of Reactors "Nuclear Power: A Sustainable Resource"*, September 2008.
- [84] C. Artioli, H. Ait Abderrahim, G. Glinatsis, L. Mansani, C. Petrovich, M. Sarotto, and M. Schikorr. Optimization of the Minor Actinides Transmutation in ADS: The European Facility for Industrial Transmutation EFIT-Pb Concept. 2007.
- [85] S. Ohki and et al. Design study of minor-actinide-bearing oxide fuel core for homogeneous TRU recycling fast reactor system. *10th Information Exchange Meeting*, pages 401–409, 2008.
- [86] H. Song and et al. Core performance and safety implications of TRU burning: Medium to large fast reactor core concepts. *10th Information Exchange Meeting*, 2008.
- [87] H.-M. Unger. *Wärmetechnische Untersuchung eines Transmutationssystems mit flüssigem Brennstoff*. PhD thesis, Forschungszentrum Jülich, 2004.
- [88] D. Westlén and J. Wallenius. Neutronic and safety aspects of a gas-cooled subcritical core for minor actinide transmutation. *Nuclear Technology*, 154:p. 41–51, 2005.
- [89] Nuclear Energy Agency. *Investigation of safety for accelerator-driven system*, NEA no. 6897. Nuclear Science, 2010.
- [90] K. Mikityuk, P. Coddington, E. Bubelis, and R. Chawla. Comparison of the transient behavior of LBE-and gas-cooled experimental accelerator-driven systems. *Nuclear Engineering and Design*, 236:p. 2452–2473, 2006.
- [91] M. Schikorr and et. al. Results of transient analyses of the lbe - and he - cooled pds-xads design (80mwth).
- [92] B. Giraud. Preliminary design study of an experimental acceleraor driven system overall description of the gas-cooled system.
- [93] N. V. Shetty. *Study of Particle Transport in a High Power Spallation Target for an Accelerator-Driven Transmutation System*. PhD thesis, RWTH Aachen University, 2012.
- [94] N. V. Shetty. Calculation of Spallation and Activation Products in the ESS Target. Master's thesis, Fachhochschule Aachen, 2010.
- [95] C. Jansen and P.-W. Phippen. *Protonfenster und Flüssigmetalltarget für eine beschleunigergetriebene Transmutationsanlage*. Jül-3152. Forschungszentrum Jülich GmbH - Zentralbibliothek, Dezember 1995.

- [96] Status Report of OECD. Accelerator and Spallation Target Technologies for ADS Applications. *NEA*, 5421, 2005.
- [97] J. Grillenberger and M. Seidel. Cyclotron based high intensity proton accelerator. *Beam Dynamics Newsletter*, 49:p. 61–72, August 2006.
- [98] G. Rimpault. Safety coefficients and sub-criticality levels EFIT and XT-ADS. <http://web.mit.edu/fusion-fission/WorkshopTalks/Rimpault.ppt>, Stand 18.8.2013.
- [99] M. Fernández-Ordóñez and et al. Reactivity monitoring of the YALINA subcritical assembly using beam trips and current-to-flux experiments. *10th Information Exchange Meeting*, pages 357–365, 2008.
- [100] L. Götz. Einfluss des Strukturmaterials auf das neutronenphysikalische Verhalten einer gasgekühlten beschleunigergetriebenen Transmutationsanlage. Master’s thesis, RWTH Aachen University, 2012.
- [101] S. Pelloni. Static analysis of the pds-xads lbe and gas-cooled concepts. *Nuclear Energy*, 32:p. 13–28, 2005.
- [102] W. Ko and F. Gao. Economic Analysis of Different Nuclear Fuel Cycle Options. *Science and Technology of Nuclear Installations*, page 10, 2012.

Band / Volume 204

Effect of Composition, Microstructure and Component Thickness on the Oxidation Behaviour of Laves Phase Strengthened Interconnect Steel for Solid Oxide Fuel Cells (SOFC)

C. Asensio Jimenez (2014), 210 pp

ISBN: 978-3-89336-935-5

Band / Volume 205

Airborne VOC measurements on board the Zeppelin NT during the PEGASOS campaigns in 2012 deploying the improved Fast-GC-MSD System

J. Jäger (2014), VIII, 182 pp

ISBN: 978-3-89336-936-2

Band / Volume 206

Pulvermetallurgische Funktionsbauteile aus NiTi- und NiTi-X Legierungspulvern

M. Bitzer (2014), III, 144 pp

ISBN: 978-3-89336-937-9

Band / Volume 207

Zinkoxid: Einfluss von Dotierung und Legierungen auf elektro-optische Eigenschaften, auf das Ätzverhalten und auf die Tempnachbehandlung

M. Warzecha (2014), 8, vii, 170 pp

ISBN: 978-3-89336-938-6

Band / Volume 208

SGSreco - Radiologische Charakterisierung von Abfallfässern durch Segmentierte γ -Scan Messungen

T. H. Krings (2014), ix, 181, XI

ISBN: 978-3-89336-945-4

Band / Volume 209

Kühlkonzepte für Hochtemperatur-Polymerelektrolyt-Brennstoffzellen-Stacks

J. Supra (2014), III, 191 pp

ISBN: 978-3-89336-946-1

Band / Volume 210

Eigenschaften des Phosphorsäure-Polybenzimidazol-Systems in Hochtemperatur-Polymerelektrolyt-Brennstoffzellen

A. Majerus (2014), viii, 141 pp

ISBN: 978-3-89336-947-8

Band / Volume 211

Study on the Complex Li-N-H Hydrogen Storage System

L. Du (2014), I, 132 pp

ISBN: 978-3-89336-952-2

Band / Volume 212

**Transport and Retention of Stabilized Silver Nanoparticles
in Porous Media**

Y. Liang (2014), IV, 109 pp

ISBN: 978-3-89336-957-7

Band / Volume 213

**Effizienzoptimierte CO₂-Abtrennung in IGCC-Kraftwerken
mittels Wassergas-Shift-Membranreaktoren**

S. T. Schiebahn (2014), XXII, 203 pp

ISBN: 978-3-89336-958-4

Band / Volume 214

**Lebensdauer und Schädigungsentwicklung martensitischer Stähle für
Niederdruck-Dampfturbinenschaufeln bei Ermüdungsbeanspruchung
im VHCF-Bereich**

S. Kovacs (2014), IV, 140 pp

ISBN: 978-3-89336-959-1

Band / Volume 215

Micro- and Macro- Mechanical Testing of Transparent MgAl₂O₄ Spinel

O. Tokariev (2014), X, 99 pp

ISBN: 978-3-89336-960-7

Band / Volume 216

**Potentiale des Strommanagements zur Reduzierung
des spezifischen Energiebedarfs von Pkw**

T. Grube (2014), IX, 255 pp

ISBN: 978-3-89336-961-4

Band / Volume 217

**Transmutation von Transuranen in einem gasgekühlten
beschleunigergetriebenen System**

K. H. Biß (2014), IV, 157 pp

ISBN: 978-3-89336-964-5

Weitere **Schriften des Verlags im Forschungszentrum Jülich** unter
<http://wwwzb1.fz-juelich.de/verlagextern1/index.asp>

Energie & Umwelt / Energy & Environment
Band / Volume 217
ISBN 978-3-89336-964-5

