



Institut für Sicherheitsforschung
und Reaktortechnik

***Actinidenumwandlung in thermischen
unterkritischen Systemen***

Michael Piontek

Actinidenumwandlung in thermischen unterkritischen Systemen

Michael Piontek

Berichte des Forschungszentrums Jülich ; 3886

ISSN 0944-2952

Institut für Sicherheitsforschung und Reaktortechnik Jül-3886

D 82 (Diss., Aachen, RWTH, 2001)

Zu beziehen durch: Forschungszentrum Jülich GmbH · Zentralbibliothek

52425 Jülich · Bundesrepublik Deutschland

☎ 02461/61-5220 · Telefax: 02461/61-6103 · e-mail: zb-publikation@fz-juelich.de

Actinidenumwandlung in thermischen unterkritischen Systemen

von
Michael Piontek

Kurzfassung

Die Kernenergie stellt in den industrialisierten Wirtschaftsräumen ein wichtiges Energiesystem zur Elektrizitätserzeugung dar. Voraussetzung für eine weitere intensive Nutzung der Kernenergie ist eine nachweisbare Umweltverträglichkeit dieses Energiesystems. Ein Weg zur nachweisbaren Umweltverträglichkeit hinsichtlich der Endlagerung, basiert auf geforderte Abschlußzeiten für den radioaktiven Abfall von der Biosphäre in der Größenordnung von ca. 1000 Jahren, da für diesen Zeitraum eine technische Barriere möglich erscheint. Dieser Forderung kann nur durch eine drastische Toxizitätsreduzierung der Actiniden/ Transurane entsprochen werden. Um diese Toxizitätsreduzierung zu erzielen bedarf es einer Abtrennung (Partitioning) und kernphysikalischen Umwandlung (Transmutation) der Actiniden.

In dieser Arbeit wurde der Grundgedanke eines thermischen unterkritischen Systems mit flüssigem Blei als Brennstoffträger und Kühlmedium zur Transmutation aufgegriffen und weiterentwickelt. Durch Einführung einer kontinuierlichen Brennstoffbeladung und Spaltstoffextraktion konnte eine Brennstoffanordnung mit extrem geringen Actinidenanteilen im flüssigen Blei erreicht werden. Hierbei kann die unterkritische Anlage über den gesamten angestrebten Betriebszeitraum mit nahezu konstant hohem Multiplikationsfaktor betrieben werden. Bei vergleichbaren offenen Fragestellungen zum Anlagenkonzept bietet die optimierte Jülicher ADS Anlage das mit Abstand beste Leistungsbild im Vergleich zu anderen Transmutationskonzepten.

Für diese Anlage wurde ein Gesamtkonzept entworfen und hinsichtlich der Toxizität bilanziert. Es zeigt sich, daß ein einmaliger Einsatz der Actiniden in der Transmutationsanlage die Toxizität nicht wesentlich senken kann. Die Zwischenlagerung und mehrmalige Reimplementierung des Curiums erweist sich als geeignetes Mittel, um die eingesetzte TRU-Masse letztlich zu vernichten. Gleichzeitig konnte gezeigt werden, dass eine drastische Reduzierung der Gesamtoxizität a priori aber nur durch den Einsatz von Plutonium- Minor Actinide Brennstoffen erfolgen kann, da ansonsten die endzulagernden Minor Actinides der WAA-Verluste/Abfälle die Toxizität bestimmen.

Werden die Betriebsverluste der dargelegten Anlage unter 0,1% optimiert und die Abtrenngüte der Minor Actinides von 99,9% (Partitioning) weiter verbessert, erscheint eine Umwandlung und Toxizitätsreduzierung radioaktiver Schwermetalle auf das Niveau von frischem angereicherten Uran nach ca. 1000 Jahren mit der hier entwickelten und vorgestellten optimierten unterkritischen thermischen Jülicher Transmutationsanlage möglich.

Transmutation of Actinides in thermal subcritical Systems

by
Michael Piontek

Abstract

The nuclear energy plays an important role in the power production of industrialised economies. A plausible environmental compatibility will, however, be a prerequisite for a further intensive use of the nuclear energy.

One approach for a plausible environmental compatibility in terms of the disposal is based on a necessary enclosure time for the radioactive waste from the biosphere in the order of 1,000 years. In fact, a technical barrier seems possible for this time scale.

Such demand can only be met by a drastic reduction of the toxic potential of the actinides and transuranium elements, respectively. In order to accomplish such reduction a separation (partitioning) and nuclear transformation (transmutation) is necessary.

This doctoral dissertation is based on the general concept of a thermal subcritical system using liquid lead as the carrier of the actinides as well as coolant. Through the introduction of a continuous charging with fuel as well as a continuous extraction of the specific fission products a fuel composition with an extremely low concentration of actinides in the liquid lead could be achieved. By this, the subcritical system can be maintained at an almost constant and high multiplication factor throughout the operation time. Compared to other unsolved problems concerning the concept of the system the optimised Jülicher Acceleration Driven System shows a far better performance than other transmutation concepts.

For the system hereunder a general concept has been designed also striking a balance on toxicity. It has been shown that a one through operation mode of the highly radioactive actinides in the transmutation system can not reduce the toxicity significantly. The intermediate storage and repeated implementation of curium appears to be the adequate approach to eventually destroy the employed actinides. Simultaneously, it could be shown that a significant reduction of the toxic potential is a priori only possible through the utilisation of plutonium and minor actinide as fuel. Otherwise the disposal of the reprocessing waste determines the toxicity.

Provided the operating losses of the transmutation plant can be brought below 0.1 % and the separation ratio of the minor actinides of currently 99.9 % can be improved, a transmutation and reduction of the toxicity of the radioactive actinides to the level of freshly enriched uranium after 1,000 years seems well possible with this kind of subcritical thermal system developed and described hereunder.

Vorwort

Die vorliegende Arbeit wurde am Institut für Sicherheitsforschung und Reaktortechnik im Forschungszentrum Jülich durchgeführt.

Meinen besonderen Dank richte ich an Herrn Prof. Dr.-Ing. P.W. Phlippen für die interessante Aufgabenstellung und die stete Diskussionsbereitschaft. Herrn Prof. Dr.-Ing. P.W. Phlippen, Privatdozent an der RWTH-Aachen, danke ich darüber hinaus für die Übernahme des Referates. Den Herren Prof. Dr.-Ing. K. Kugeler sowie Prof. Dr. rer. nat. R. Odoj danke ich für ihre Unterstützung und die Übernahme des Korreferates.

Bei allen meinen Kolleginnen und Kollegen des Instituts für Sicherheitsforschung und Reaktortechnik des FZ Jülich bedanke ich mich für die gute Zusammenarbeit, die unzähligen Hinweise und Anregungen sowie für das angenehme Arbeitsklima. Insbesondere möchte ich mich namentlich bei I. Neuhaus, S. Tittelbach, S. Struth, T. Bodewig und M. Kugeler für Ihre fachliche und freundschaftliche Unterstützung bedanken. Ebenfalls danke ich für die vielen interdisziplinären Hinweise und Diskussionen mit Dr.-Ing. F. Grauer und Dr.-Ing. A. Hoeren.

Mein besonderer Dank gilt meinen Eltern und meiner Frau.

Inhaltsverzeichnis

Inhaltsverzeichnis.....	I
Abbildungsverzeichnis	III
Tabellenverzeichnis.....	VII
Nomenklatur	VIII
1 Einleitung	1
2 Gefährdungspotential radioaktiver Abfälle	5
2.1 Charakterisierung des radioaktiven Gefährdungspotentiales	6
2.2 Möglichkeiten der Entsorgung hochaktiver Abfälle.....	8
2.2.1 Direkte Endlagerung	9
2.2.2 Wiederaufarbeitung.....	10
2.2.3 Partitioning und Transmutation	11
3 Systemvorschläge zur Transmutation	13
3.1 Transmutation in Reaktoren	14
3.1.1 Leichtwasserreaktor	14
3.1.2 Hochtemperaturreaktor	15
3.1.3 Schnelle Reaktoren	16
3.2 Unterkritische Transmutationsanlagen	17
3.2.1 Grundlagen und Aufbau	18
3.2.2 Bisherige Systemstudien	20
4 Brennstoffbetrachtungen für das Jülicher Konzept.....	31
4.1 Grundkonzept des Systems	31
4.1.1 Grundaufbau der Anlage	32
4.1.2 Brennstoffzusammensetzungen	34
4.2 Kritikalitätsberechnungen für verschiedene Brennstoffe	36
4.3 Sedimentationsverhalten.....	41
4.3.1 Berechnungsverfahren zur Sedimentation	42
4.3.2 Sedimentationsverhalten eines PuMA70/30-Th 1:1 Brennstoffes.....	42
4.4 Schlußfolgerungen	44
5 Batchbetrieb mit Brennstoffsuspensionen.....	45
5.1 Vergleich von 1-D und 3-D Berechnungen	45
5.2 Auswahl von Brennstoffen für den Batch Modus	47
5.3 Abbrandverhalten im Batch Modus	49
5.4 Bewertung des Batch Modus für das Jülicher Konzept.....	51

6 Betrieb mit kontinuierlicher Beschickung und Extraktion	53
6.1 Multiplikationsfaktor von Brennstoffen niedriger TRU Konzentration.....	55
6.2 Abbrandverhalten von Brennstoffen im kontinuierlichem Betrieb	57
6.2.1 Thorium basierte Brennstoffe	57
6.2.2 Reine Pu und PuMA Brennstoffe.....	59
6.3 Schlußfolgerungen für einen kontinuierlichen Betrieb.....	63
7 Charakteristika der optimierten Jülicher ADS Anlage	65
7.1 Optimierung des Betriebsverhaltens.....	65
7.1.1 Spaltproduktextraktion	65
7.2.2 TRU-Zugabemodus.....	69
7.2 Abbrandverhalten des optimierten Jülicher Systems.....	70
7.2.1 Plutonium/ Minor Actinide Brennstoff im Betriebszyklus	71
7.2.2 Reiner Plutonium Brennstoff im Betriebszyklus	76
7.2.3 Vergleich von Pu und PuMA Brennstoff	83
7.3 Nukleares Sicherheitsverhalten	88
7.3.1 Reaktivitätsänderung / Brennstofftemperaturkoeffizient α_B	89
7.3.2 Kritikalitätssprung durch Extraktionsstörfall.....	94
7.4 Nachwärmeproduktion	96
7.5 Bewertung und Vergleich der Anlage mit anderen Transmutationskonzepten	98
8 Integrale Toxizitätsreduzierung für die Gesamtstrategie	103
8.1 Gesamtstrategie der Jülicher ADS Anlage	103
8.2 Massenbilanzierung der Jülicher ADS Anlage im Gesamtkonzept.....	106
8.3 Toxizitätsbilanzierung der Jülicher ADS Anlage.....	114
9 Fazit und Ausblick	125
Literaturverzeichnis.....	129
Anhang	135
A Aufbau und Zerfallswege der Transurane.....	135
B Entwicklung der Grenzwerte für radiotoxische Gefährdungspotentiale.....	136
C Daten zu ADS Transmutationsanlagen.....	137
D Grundlagen zur Brennstoff- und Blanketberechnung	139
E Löslichkeit von Thorium in flüssigem Blei	148
F BURNUP Steuermodul	149
G Kenndaten verschiedener Transmutationsanlagen.....	151
H Aussagen zum Toxizitätsverlauf	152

Abbildungsverzeichnis

- Abb. 1.1:** Vergleich der Leistungsfähigkeit verschiedener Transmutationssysteme.
- Abb. 2.1:** Begriffsbestimmung von Actiniden, Transurane und Minor Actinides sowie deren Eigenschaften als Reinelemente.
- Abb. 2.2:** Verläufe des Gefährdungspotentiales von Spaltprodukten und Actiniden.
- Abb. 2.3:** Gefährdungspotential für abgebrannten DWR Brennstoff nach ICRP-61.
- Abb. 2.4:** Barrierekonzept der Endlagerung.
- Abb. 2.5:** Jährliche Entlademenge eines 1300 MW_{el} DWR und entsprechende in der WAA erzeugte Fraktionen.
- Abb. 2.6:** Gefährdungspotential der Actinide aus abgebrannten DWR Brennstoffen nach ICRP-61 (Ingestion) mit und ohne Pu-Abtrennung.
- Abb. 2.7:** Gefährdungspotential endgelagerter Actinidenabfälle aus abgebrannten DWR-Brennstoff nach ICRP-61 (Ingestion) für unterschiedliche Verlustraten [Gew.-%] in der Abtrenntechnik.
- Abb. 3.1:** Beschleunigergetriebene Transmutationsanlage mit ihren wesentlichen Elementen.
- Abb. 3.2:** Spallationsprozeß in skizzierter Darstellung.
- Abb. 3.3:** Gliederung unterkritischer Systeme nach Charakteristika.
- Abb. 3.4:** Allgemeine Darstellung des Energieverstärkers (EA).
- Abb. 3.5:** FEA Anlagenkomplex in der Plutoniumvernichtung.
- Abb. 3.6:** Relative Zusammensetzung des FEA Brennstoffs nach Rubbia zum Zyklusbeginn. 100% entsprechen im Mittel 10 t.
- Abb. 3.7:** JAERI-MS Konzept.
- Abb. 3.8:** Extraktionssystem des JAERI-MS Konzeptes.
- Abb. 3.9:** ITEP Entwurf eines Systems mit schneller und thermischer Zone.
- Abb. 3.10:** Grundaufbau der ATW Komponenten.
- Abb. 3.11:** Konzept einer thermischen 1500 MW_{th} ATW Anlage.
- Abb. 3.12:** Jülicher Konzept einer subkritischen Transmutationsanlage.
- Abb. 3.13:** Querschnitt durch eine Target/Blanket -Einheit.
- Abb. 3.14:** Aufbau einer Zelle.
- Abb. 3.15:** Gesamtbilanz der Jülicher Studie nach /LIZ 97/.
- Abb. 4.1:** Prinzipdarstellung des Jülicher Transmutationssystems zur TRU Umwandlung.
- Abb. 4.2:** Anordnung von Target, Blanket und Wärmetauscher für das Jülicher System im Vertikalschnitt.
- Abb. 4.3:** k_{∞} im Blanket in Abhängigkeit der Pu Spaltstoffkonzentration und dem Pitch für einen Brennstoffinnenrohrdurchmesser von 3 cm und 5 cm.
- Abb. 4.4:** k_{∞} im Blanket in Abhängigkeit der PuMA89/11 TRU-Konzentration und dem Pitch für einen Brennstoffinnenrohrdurchmesser von 3 cm und 5 cm.
- Abb. 4.5:** k_{∞} im Blanket in Abhängigkeit der PuMA80/20 TRU-Konzentration und dem Pitch für einen Brennstoffinnenrohrdurchmesser von 3 cm und 5 cm.
- Abb. 4.6:** k_{∞} im Blanket in Abhängigkeit der PuMA70/30 TRU-Konzentration und dem Pitch für einen Brennstoffinnenrohrdurchmesser von 3 cm und 5 cm.
- Abb. 4.7:** k_{∞} im Blanket in Abhängigkeit des Moderationsverhältnisses bei einer Spaltstoffbeladung von 1% Pu für unterschiedliche Brennstabdurchmesser.

- Abb. 4.8a-d:** k_{∞} im Blanket in Abhängigkeit des Pu-Th Verhältnisses bei unterschiedlichen Spaltstoffkonzentrationen und Pitch für ein Hüllrohrdurchmesser von 3 cm.
a: Links oben Pu-Th 1:1. **b:** Rechts oben Pu-Th 1:3
c: Links unten Pu-Th 1:5. **d:** Rechts unten Pu-Th 1:7.
- Abb. 4.9:** k_{∞} im Blanket für einen PuMA70/30-Th 1:1 und 1:3 Brennstoff bei unterschiedlichen TRU-Konzentrationen und Pitch bei einem Rohrdurchmesser von 3 cm.
- Abb. 4.10:** Entwicklung des k_{∞} Wertes in Abhängigkeit der Ausgangsspaltstoffkonzentrationen an Transuranen und dem Sedimentationsverlauf für ein PuMA70/30 – Th 1:1 Brennstoff bei $d = 3$ cm und $t = 8$ cm.
- Abb. 5.1:** Geometrie der 3-D Rechnung in X – Z Richtung.
- Abb. 5.2:** Vergleich der 1-D (SAS2H) und 3-D (KENO-V und MORSE) Berechnungen.
- Abb. 5.3:** k_{∞} für eine Gruppe von ausgesuchten Suspensionsbrennstoffen (SAS2H; 1-D).
- Abb. 5.4:** Coreinventar und Nuklidabbrand für 5%PuMA89/11-Th 1:2 t8 Brennstoff.
- Abb. 5.5:** Coreinventar und Nuklidabbrand für 3%Pu-Th 1:3 t7 Brennstoff.
- Abb. 6.1:** Jülicher Konzept mit kontinuierlicher Beschickung und Extraktion.
- Abb. 6.2:** Spaltstoffzugabevariationen für einen 0,1%Pu-Th 1:3 t = 5,95 cm Brennstoff.
- Abb. 6.3:** Vergleich des k_{∞} Wertes für ausgewählte Brennstoffarten mit geringen (<0,5%) TRU Anteil.
- Abb. 6.4:** Inventar/ Umsatz nach einem Abbrand von 1 GW_{th,a} für 0,1%Pu-Th 1:3 t5,95.
- Abb. 6.5:** Inventar/ Umsatz nach einem Abbrand von 1 GW_{th,a} für 0,1%PuMA89/11-Th 1:9 t6,95.
- Abb. 6.6:** Inventar/ Umsatz nach einem Abbrand von 1 GW_{th,a} für 0,15%PuMA70/30-Th 1:3 t8.
- Abb. 6.7:** k_{∞} in Abhängigkeit vom Pitch t für einen niedrigst konzentrierten Brennstoff mit 0,05%PuMA89/11.
- Abb. 6.8:** Vergleich des k_{∞} Wertes für einen 0,05%Pu Brennstoff bei einem Pitch von $t = 7,1$ cm und $t = 8$ cm bei gleichem Operationsmodus.
- Abb. 6.9:** Inventar/ Umsatz nach einem Abbrand von 1 GW_{th,a} für 0,05%Pu t8.
- Abb. 6.10:** Inventar/ Umsatz nach einem Abbrand von 1 GW_{th,a} für 0,05%PuMA89/11 t8.
- Abb. 6.11:** Inventar/ Umsatz nach einem Abbrand von 1 GW_{th,a} für 0,1%PuMA70/30 t8.
- Abb. 7.1:** Quantitatives Auftreten von Spaltprodukten (in Molen) bei einem Abbrand von 3 Jahren für ein 0,05%PuMA89/11 Brennstoff ohne jegliche Extraktionen.
- Abb. 7.2:** Qualitative Bewertung von Spaltprodukten bei einem Abbrand von 3 Jahren für ein 0,05%PuMA89/11 Brennstoff ohne jegliche Extraktion bei $T = 773$ K.
- Abb. 7.3:** Vergleich der k_{∞} -Werte für ein 0,05%PuMA89/11 und 0,05%Pu Brennstoff mit unterschiedlicher Extraktion von Spaltprodukten bei einem Abbrand von 3 Jahren.
- Abb. 7.4:** k_{∞} -Werte für unterschiedliche TRU-Zugabemodi am Beispiel eines 0,05%PuMA89/11 Brennstoffs.
- Abb. 7.5:** Kerninventar und Umsatz nach einem Abbrand von 3 GW_{th,a} für das 0,05%PuMA89/11 Brennstoffsystem.
- Abb. 7.6:** Inventarmasse an TRU während eines Abbrands von 3 GW_{th,a} für das 0,05%PuMA89/11 Brennstoffsystem.
- Abb. 7.7:** Umsatzraten während eines Abbrands von 3 GW_{th,a} für das 0,05%PuMA89/11 Brennstoffsystem.
- Abb. 7.8:** TRU Zusammensetzung während eines Abbrands von 3 GW_{th,a} für das 0,05%PuMA89/11 Brennstoffsystem.
- Abb. 7.9:** Pu Vektorentwicklung während eines Abbrands von 3 GW_{th,a} für das 0,05%PuMA89/11 Brennstoffsystem.

- Abb. 7.10:** Veränderung des Cm Vektors während eines Abbrands von 3 GW_{th} für das 0,05%PuMA89/11 Brennstoffsystem.
- Abb. 7.11:** Neutronenflußverlauf während eines Abbrands von 3 GW_{th} für 0,05%PuMA89/11 Brennstoff.
- Abb. 7.12:** Kerninventar und Umsatz nach einem Abbrand von 3 GW_{th} für das 0,05%Pu Brennstoffsystem.
- Abb. 7.13:** Inventar während eines Abbrands von 3 GW_{th} für das 0,05%Pu Brennstoffsystem.
- Abb. 7.14:** Umsatzraten während eines Abbrands von 3 GW_{th} für das 0,05%Pu Brennstoffsystem.
- Abb. 7.15:** TRU Zusammensetzung während eines Abbrands von 3 GW_{th} für das 0,05%Pu Brennstoffsystem.
- Abb. 7.16:** Veränderung des Pu Vektors während eines Abbrands von 3 GW_{th} für das 0,05%Pu Brennstoffsystem.
- Abb. 7.17:** Veränderung des Cm Vektors während eines Abbrands von 3 GW_{th} für das 0,05%Pu Brennstoffsystem.
- Abb. 7.18:** Neutronenflußverlauf während eines Abbrands von 3 GW_{th} für das 0,05%Pu Brennstoffsystem.
- Abb. 7.19:** Pu Vergleich bei BOB und EOB nach einem Abbrand von 3 Jahren für reinen Pu- sowie PuMA Brennstoff.
- Abb. 7.20:** Inventarvergleich der TRU für Pu und PuMA Brennstoffe zum BOB und EOB nach 3 GW_{th} Abbrand.
- Abb. 7.21:** Temperatur- und Dichteinfluß des Brennstoffs auf die Kritikalität bei dem PuMA Brennstoff nach $t = 3$ Jahren Abbrand.
- Abb. 7.22:** Absolute Reaktivitätsänderung des PuMA Brennstoffs infolge einer Temperatur- und Dichteänderung in Bezug auf den Betriebszustand für unterschiedliche Abbrandsituationen.
- Abb. 7.23:** Absolute Reaktivitätsänderung des Pu Brennstoffs infolge einer Temperatur- und Dichteänderung in Bezug auf den Betriebszustand für unterschiedliche Abbrandsituationen.
- Abb. 7.24:** Reaktivitätskoeffizient α bzw. Brennstofftemperaturkoeffizient α_B [nile/K] des Pu und PuMA Brennstoffs für unterschiedliche Abbrandsituationen für eine geringen Temperaturerhöhung der Betriebstemperatur.
- Abb. 7.25:** Kritikalitätssprung als Folge einer vollständigen Extraktion aller Spaltprodukten aus dem PuMA Brennstoff nach einem Abbrand von 3 Jahren.
- Abb. 7.26:** Kritikalitätssprung als Folge einer vollständigen Extraktion aller Spaltprodukten aus dem Pu Brennstoff nach einem Abbrand von 3 Jahren.
- Abb. 7.27:** Relative Nachwärmeleistung für das PuMA Brennstoffsystem zu verschiedenen Betriebszeiten.
- Abb. 7.28:** Relative Nachwärmeleistung für das PuMA Brennstoffsystem zu verschiedenen Betriebszeiten.
- Abb. 7.29:** Gesamtbilanz der optimierten Jülicher ADS Anlage für den PuMA- und Pu-Brennstoff.
- Abb. 7.30:** Vergleich der Leistungsfähigkeit verschiedener Transmutationssysteme mit der optimierten Jülicher ADS Anlage.
- Abb. 8.1:** Gesamtstrategie für den Betrieb der Jülicher ADS Transmutationsanlage.
- Abb. 8.2:** Einbindung der Gesamtstrategie für den Betrieb der Jülicher ADS in den Uran Kernbrennstoffkreislauf.
- Abb. 8.3:** Massenbilanzierung der ADS Anlage mit 640 MW_{th} für eine Betriebszeit von drei Jahren für den Pu basierten Brennstoff über mehrere Zyklen.

- Abb. 8.4:** Massenbilanzierung der ADS Anlage mit 640 MW_{th} für eine Betriebszeit von drei Jahren für den PuMA basierten Brennstoff über mehrere Zyklen.
- Abb. 8.5:** Einflußgrößen der Stoffströme auf die Gesamtoxität der Actinide des Pu Brennstoffs nach dem ersten Betriebszyklus.
- Abb. 8.6:** Integrale Toxizitätsbilanz der Actinide unterschiedlicher Betriebszyklen des Pu Brennstoffsystems.
- Abb. 8.7:** Toxizitätszusammensetzung des 13ten Betriebszyklus nach Transuranen für Pu Brennstoff.
- Abb. 8.8:** Endzulagerndes Toxizitätspotential der Actiniden bei einem langfristigem Betrieb der ADS Anlage (>120 a) mit mehrmaliger Cm Reimplementierung für das Pu Brennstoffsystem.
- Abb. 8.9:** Einflußgrößen der Stoffströme auf die Gesamtoxität der Actinide des PuMA Brennstoffs nach dem ersten Betriebszyklus.
- Abb. 8.10:** Integrale Toxizitätsbilanz der Actinide unterschiedlicher Betriebszyklen des PuMA Brennstoffs.
- Abb. 8.11:** Toxizitätszusammensetzung des 13ten Betriebszyklus nach Transuranen für PuMA Brennstoff.
- Abb. 8.12:** Endzulagerndes Toxizitätspotential der Actiniden bei einem langfristigem Betrieb der ADS Anlage (>120 a) mit mehrmaliger Cm Reimplementierung für das PuMA Brennstoffsystem.
-
- Abb. A 1.1:** Aufbau- und Zerfallswege der Transurane.
- Abb. C 1.1:** Gesamtmassenstrom für das integrale FEA Konzept.
- Abb. D 1.1:** Programmflußschema des Steuermoduls CSAS1X.
- Abb. D 1.2:** Programmflußschema des Steuermoduls SAS2H.
- Abb. D 2.1:** k_{∞} im Blanket in Abhängigkeit der Pu Spaltstoffkonzentration und dem Pitch für einen Brennstoffinnenrohrdurchmesser von $d = 7$ cm.
- Abb. D 2.2:** k_{∞} im Blanket in Abhängigkeit der Pu Spaltstoffkonzentration und dem Pitch für einen Brennstoffinnenrohrdurchmesser von $d = 9$ cm.
- Abb. D 2.3:** k_{∞} im Blanket in Abhängigkeit der Pu Spaltstoffkonzentration und dem Pitch für einen Brennstoffinnenrohrdurchmesser von $d = 10$ cm.
- Abb. D 2.4:** k_{∞} im Blanket in Abhängigkeit der Pu Spaltstoffkonzentration und dem Pitch für einen Brennstoffinnenrohrdurchmesser von $d = 12$ cm.
- Abb. D 3.1:** Skizzierung des Sedimentationsverfahrens.
- Abb. D 4.1:** Entwicklung des k_{∞} Wertes in Abhängigkeit der Ausgangskonzentrationen an Transuranen und dem Sedimentationsverlauf für ein PuMA70/30 Brennstoff bei $d = 3$ cm und $t = 7$ cm
- Abb. D 4.2:** Entwicklung des k_{∞} Wertes in Abhängigkeit der Ausgangskonzentrationen an Transuranen und dem Sedimentationsverlauf für Pu–Th Brennstoffe bei $d = 3$ cm und $t = 6$ cm.
- Abb. D 4.3:** Entwicklung des k_{∞} Wertes in Abhängigkeit der Ausgangskonzentrationen an Transuranen und dem Sedimentationsverlauf für Pu–Th Brennstoffe bei $d = 5$ cm und $t = 8$ cm.
- Abb. F 1.1:** Steuermodul BURNUP.
- Abb. F 1.2:** Zugabemodus für TRU am Beispiel von Pu und Am Nukliden.
- Abb. F 1.3:** Extraktionsmodus für Spaltprodukte am Beispiel von Xe und Sm Nukliden.

- Abb. H 1.1:** Einflußgrößen der Stoffströme auf die Gesamtoxität der Actinide des Pu Brennstoffsystems nach dem dritten Zyklus im „Black Box“ System.
- Abb. H 1.2:** Gesamtoxität der Actinide des Pu-Brennstoffes im „Black Box“ System für mehrere Betriebszyklen.
- Abb. H 2.1:** Einbindung der Gesamtstrategie für den Betrieb der Jülicher ADS in den Uran und Th-MOX Kernbrennstoffkreislauf.
- Abb. H 2.2:** Kerninventar und Umsatz nach einem Abbrand von 3 GW_{th}a für den des Pu Th-MOX (90,2% / 9,8%) Brennstoffes.
- Abb. H 2.3:** Toxizitätsvergleich des Th-MOX Pu Brennstoffes mit reinem Pu Brennstoff.

Tabellenverzeichnis

- Tab. 2.1:** Langlebige Spaltprodukte und Actinide im hochaktiven Abfall eines DWR je t_{SM}.
- Tab. 2.2:** ALI Werte, Grenzwerte und Gefährdungspotential langlebiger Radionuklide für Ingestion.
- Tab. 3.1:** Relative Zusammensetzung des verwendeten TRU Abfalls.
- Tab. 4.1:** Prozentuale Zusammensetzung [Gew. %] der verwendeten Spaltnuklidvektoren.
- Tab. 4.2:** Temperaturen der Materialzonen in der Einheitszelle.
- Tab. 5.1:** Systemcharakteristika für einen Batch Betrieb.
- Tab. 6.1:** Kenndaten des Berechnungssystems.
- Tab. 7.1:** Kenndaten der optimierten Jülicher ADS Anlage.
- Tab. 8.1:** Tatsächlich vorhandene Anteile der Primärmasse von 1000 kg Pu zu jedem Zyklus in kg.
- Tab. 8.2:** Tatsächlich vorhandene Anteile der Primärmasse von 1000 kg PuMA zu jedem Zyklus in kg
- Tab. B 1.1:** Vergleichende Zusammenstellung der durch Ingestion aufzunehmenden Aktivität.
- Tab. C 2.1:** Kenndaten des ITEP Systems.
- Tab. E 1.1:** Löslichkeitsverhalten von Thorium in flüssigem Blei.
- Tab. G 1.1:** Leistungskennndaten einiger Transmutationsanlagen.
- Tab. H 2.1:** Nuklidvektor des abgebrannten Th-MOX Brennstoffs bei einem Abbrand von 60 GWd/t_{SM}.

Nomenklatur

Abkürzungen

a	Gesamtkonzentration an Spaltstoff
a	Jahr
Abb.	Abbildung
ABC	Accelerator Based Conversion
Ac	Actinium
ADEP	Accelerator Driven Energy Production
ADS	Accelerator Driven System
ADTT	Accelerator Driven Transmutation Technologie
ALI	Annual Limit of Intake
ALMR	Advanced Liquid Metal Reactor
Am	Americium
ARS	Actinide Recycle System
at	Atom
ATW	Accelerator Driven Transmutation of Nuclear Waste
b	Barn
Ba	Barium
BOB	Begin of Burn
Bq	Becquerel
CADRA	Consommation d'Actinides et de Déchets dans les Réacteurs Avancés
CAPRA	Combustion Améliorée du Plutonium dans les Réacteurs Avancés
Ce	Cer
CFR	Code of Federal Regulations
Cm	Curium
CO ₂	Kohlendioxid
Cs	Caesium
d	day
d	Durchmesser
d _{1/2}	Halbwertszeit
D	Dimension
DWR	Druckwasserreaktor
EA	Energy Amplifier
efpd	effectiv full power day
EFR	European Fast Reactor
el	elektrisch
EOB	End of Burn
eV	Elektronenvolt

FEA	Fast Energy Amplifier
g	Gramm
Ges.	Gesamt
Gew.	Gewicht
GW	Giga Watt
HAW	Hochaktive Abfälle
HTGR	High Temperature Gascooled Reactor
HTR	Hochtemperaturreaktor
IAEA	International Atomic Energy Association
ICRP	International Commission on Radiological Protection
IFR	Integral Fast Reaktor
Ini	Initial
ITEP	Institut für Theoretische und Experimentelle Physik
J	Jahre
J	Jod
JAERI	Japan Atomic Energy Research Institute
k	Multiplikationsfaktor
Kap.	Kapitel
Koeff.	Koeffizient
Konz.	Konzentration
krit.	Kritisch
Kühl.	Kühlung
LANL	Los Alamos National Laboratory
LAW	Low Active Waste
LINAC	Linear Accelerator
LMFBR	Liquid Metal Fast Breeder Reactor
Lösl.	Löslichkeit
LWR	Leichtwasserreaktor
MA	Minor Actinides
MAW	Middle Active Waste
MF	Metal Fuel
m_k	kritische Masse
Mo	Molybdän
MOX	Mischoxid
MS	Molten Salt
MSBR	Molten Salt Breeder Reactor
MV	Moderationsverhältnis
MW	Mega Watt
n	Neutron
Nd	Neodym
Np	Neptunium
p	Proton

Pa	Protactinium
Pb	Blei
Pd	Palladium
Prod.	Produktion
Pu	Plutonium
PUREX	Plutonium Uranium Recovery by Extraction
PWR	Pressurized Water Reactor (Druckwasserreaktor)
rel.	relativ
Rh	Rhodium
Ru	Ruthenium
Sb	Antimon
SKE	Steinkohleeinheit
Sm	Samarium
SM	Schwermetall
SNR	Schneller natriumgekühlter Reaktor
Sr	Strontium
Sv	Sievert
SWR	Siedewasserreaktor
t	Pitch
t	Tonne (1000 kg)
$T_{1/2}$	Halbwertszeit
Tab.	Tabelle
Te	Tellur
Temp.	Temperatur
th	thermisch
Th	Thorium
TOX	Toxizität
TRTh	Trans-Thorium
TRU	Transurane
U	Uran
Vgl.	Vergleich
WAA	Wiederaufarbeitungsanlage
Xe	Xenon
y	Year
Y	Yttrium
z	Spaltstoffzusammensetzung
Z	Zyklus
Z1	Erster Zyklus

Formelzeichen

a	Gesamtkonzentration an Spaltstoff	[%]
E	Energie	[eV]
I	Stromstärke des Beschleunigers	[A]
k_{∞}	Multiplikationsfaktor in unendlicher Anordnung	[]
k_{eff}	Effektiver Multiplikationsfaktor	[]
k_{inf}	Multiplikationsfaktor in unendlicher Anordnung	[]
m	Masse	[kg]
n	Neutron	[]
P_{el}	Elektrische Leistung	[MW]
P_{th}	Thermische Leistung	[MW]
T	Temperatur	[°C; K]
z	Spaltstoffzusammensetzung	[%]
Δ	Differenz	[]
Φ	Neutronenfluß	[n/(s*cm ²)]
Φ_{schnell}	Neutronenfluß mit schnellem Spektrum	[n/(s*cm ²)]
$\Phi_{\text{akk.;Grenzwert schnell}}$	Akkumulierter Grenzwert für den schnellen Neutronenfluß	[n/(s*cm ²)]
$\Phi_{\text{schnell}}^{\text{max}}$	Maximaler schneller Neutronenfluß	[n/(s*cm ²)]
α	Reaktivitätskoeffizient	[]
α	Verhältnis von Spaltung zu Absorption	[]
α	α Zerfall	[]
α_{B}	Reaktivitätskoeffizient des Brennstoffs	[]
β^-	β^- Zerfall	[]
ε	ε Reaktion (Elektroneneinfang)	[]
γ	Gamma Quant	[]
γ	γ Zerfall	[]
η	Neutronenausbeute	[]
η	Wirkungsgrad	[%]
ν	Durchschnittliche Anzahl Neutronen pro Spaltung	[]
ρ	Dichte	[g/cm ³]
σ	Mikroskopischer Wirkungsquerschnitt	[barn]
σ_{f}	Mikroskopischer Wirkungsquerschnitt für Spaltung	[barn]
$\sigma_{\text{n},\gamma}$	Mikroskopischer Wirkungsquerschnitt für n, γ Reaktion	[barn]

1 Einleitung

Der Mensch setzt seit Jahrtausenden Energie ein, um die Bedingungen seines Lebens zu verbessern und seinen Lebensstandard zu steigern /BUN 92/. Bis ins 19te Jahrhundert wurde die benötigte Energie zum Großteil durch den Energieträger Holz aufgebracht. Der mit zunehmender Industrialisierung und anwachsender Weltbevölkerung steigende Energieverbrauch wurde durch die im großen Umfang einsetzende Förderung von fossilen Energieträgern gedeckt. Ab den 50er Jahren des 20sten Jahrhunderts wird durch die Nutzung von Leistungsreaktoren zur Stromerzeugung ein neuer Energieträger zur Deckung des steigenden Strombedarfs erschlossen /BUN₂ 92/. Die Vorteile (hohe Energiedichte, Verfügbarkeit, geringe Transportkosten, lange zeitliche Lagerfähigkeit, etc.) des neuen Energieträgers führten nach der Einführung konkurrenzfähiger Kernkraftwerke zu einem massiven Ausbau der Kernenergie in den 70er Jahren. In den 80er Jahren wandelte sich die Situation. Der Zubau an Kernkraftwerken stagnierte und wurde zudem durch eine zunehmende Akzeptanzkrise geprägt, die ihren vorläufigen Höhepunkt nach der Reaktorkatastrophe in Tschernobyl 1986 erreichte.

Heutzutage stellt die Kernenergie für alle kernenergienutzenden Länder ein wichtiges Energiesystem der Elektrizitätswirtschaft dar /BMW_{i1} 99/. So betrug beispielsweise der Kernenergieanteil an der Bruttostromerzeugung 1998 in der Bundesrepublik Deutschland 30% /BMW_{i2} 99/. Die Bedeutung der Kernenergie wird in der Zukunft noch wachsen, da mit steigender Weltbevölkerung auch der Weltenergieverbrauch nach einer Studie des Weltenergierates bis zum Jahr 2020 auf ca. 20 Mrd. t SKE/a ansteigen wird /VDI 99/. Gleichzeitig gebietet die CO₂-Problematik und die Freisetzung sog. Treibhausgase einen beschränkten Einsatz fossiler Energieträger /BMW_i 98/. Voraussetzung für eine weitere Nutzung der Kernenergie ist eine nachweisbare Umweltverträglichkeit dieses Energiesystems. Eine Schlüsselrolle spielt dabei die Entsorgung der hochradioaktiven Abfallstoffe, die ein enormes Langzeitgefährdungspotential aufgrund der langlebigen Transuranelemente besitzen. Bei heutigen Entsorgungsstrategien wird geologischen Formationen für mehrere hunderttausend Jahre eine aktive Sicherheitsfunktion zugewiesen. Diese Zeiträume stellen eine neue Dimension der menschlichen Einflußnahme auf die Biosphäre dar und begründen in vielen Ländern die vorhandene Akzeptanzkrise in der Bevölkerung.

Seit den 90er Jahren werden zunehmend Konzepte von Transmutationsanlagen erstellt, um eine Alternative zu den bisherigen Entsorgungsstrategien zu erschließen. Ziel einer Transmutation ist es, langlebige Transuranelemente, meist als Actinide bezeichnet, in kurzlebige bzw. stabile Kerne umzuwandeln. Hierdurch wird es prinzipiell möglich, das Toxizitätspotential hochaktiver Abfälle drastisch zu vermindern und eine Endlagerung auf beispielsweise 1000 Jahre zu begrenzen und einen technisch sichergestellten Einschluß für diesen Zeitraum zu ermöglichen. Zudem bietet sich die Möglichkeit das langzeit-toxische und politisch sensitive Waffenplutonium zu zerstören, indem es gespalten und so energetisch genutzt wird. Zusammen mit „katastrophenfreien“ Reaktortechniken könnte ein neues Maß an Umweltverträglichkeit für die Kernenergie erreicht werden, wodurch eine erneute Akzeptanz und eine weitere Nutzung der Kernenergie begründet wäre.

Ob eine bedeutende Toxizitätsreduzierung durch Actinidenumwandlung mittels einer thermischen unterkritischen Transmutationsanlage mit flüssigem Blei als Brennstoffträger erreicht werden kann, ist Gegenstand dieser Arbeit. Die bisherige technische Realisierung der Transmutationsidee orientierte sich fast ausschließlich an bestehenden kritischen Reaktoranlagen, da diese sowohl das benötigte Neutronenspektrum bereitstellen, als auch einen umfangreichen technischen Hintergrund aufweisen. Erst durch die Weiterentwicklung leistungsstarker Protonenbeschleunigern gelangen auch Ideen zu unterkritischen Transmutationsanlagen in den Bereich der Realisierbarkeit und geraten zunehmend in den Blickpunkt des Interesses. Da das einschränkende Kriterium der Kritikalität wegfällt, können gänzlich neue Systeme zum Einsatz kommen. Dementsprechend existiert eine Vielzahl von Konzepten, die sich durch ihren Aufbau, der Brennstoffart, dem benutzten Neutronenspektrum, etc. unterscheiden. Dennoch kann keines dieser Konzepte eine drastische TRU-Vernichtung und Toxizitätsreduzierung für sich verbuchen. Wie in **Abb. 1.1** anhand der Kriterien des TRU-Umsatzes pro GW_{th} und des Verhältnisses der Umsatzrate zum Endinventar dargelegt wird, zeigt bis dato keines der dargestellten Konzepte einen entscheidenden Durchbruch in der Frage der Beseitigung hochaktiver Transurane.

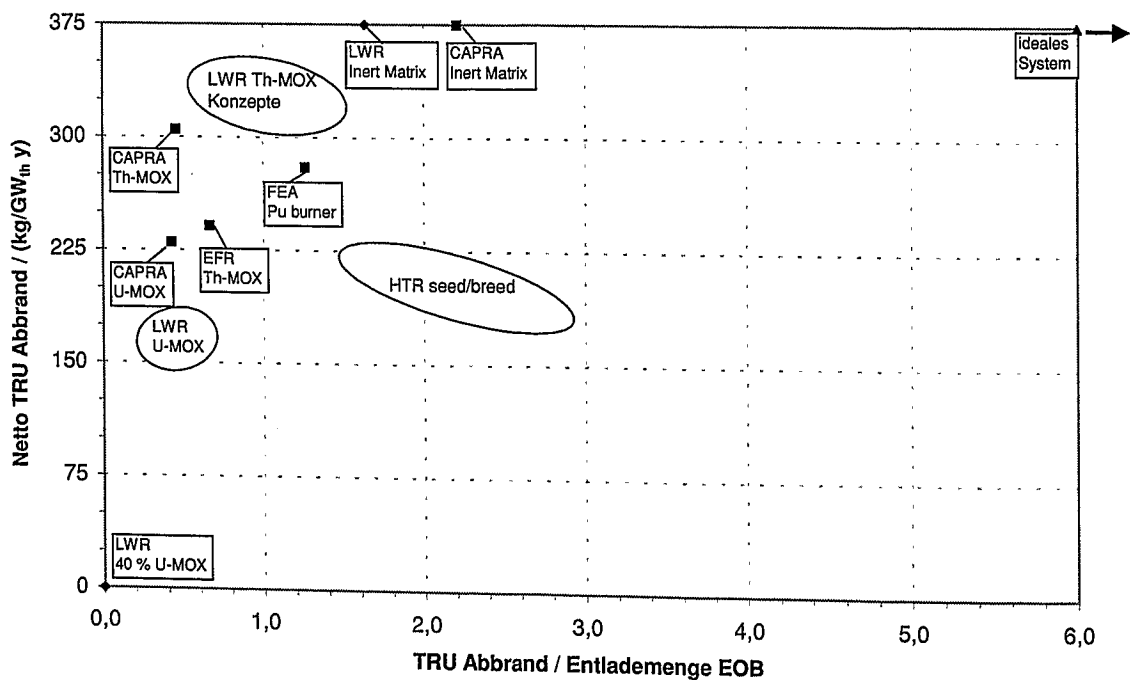


Abb. 1.1: Vergleich der Leistungsfähigkeit verschiedener Transmutationssysteme.
(LWR Konzepte /GRU 98/; LWR Th-MOX Zyklus /NEU₁ 99/; CAPRA
und EFR Konzepte /GRU 98/; HTR /RÜT 98/; FEA System /RUB 95/.

Eine herausragende Grundidee, die sich gänzlich von bisherigen Anlagen unterscheidet und das Potential besitzt, eine drastische TRU-Vernichtung und Toxizitätsreduzierung bei geringem TRU-Inventar zu erreichen, besteht im Einsatz von flüssigem Brennstoff. Dies ermöglicht sowohl eine kontinuierliche Zufuhr an Transuranen, als auch eine Extraktion von Spaltstoffen. Zusätzlich kann der flüssige Brennstoff als Kühlmedium eingesetzt werden. Beide

Faktoren begünstigen die Umsetzung eines Beschleuniger getriebenen Systems, da die Anforderungen an den Linearbeschleuniger deutlich verringert werden können. Zu dieser Grundidee existieren erste Realisierungsansätze /LIZ 97/ und thermodynamische sowie thermohydraulische Auslegungen /LYP 96/, doch konnte das Potential einer unterkritischen Anlage mit flüssigem Blei als Brennstoffträger noch nicht adäquat umgesetzt werden.

Durch eine Ausarbeitung und Optimierung der Grundidee einer thermischen unterkritischen Transmutationsanlage mit flüssigem Blei als Brennstoffträger gilt es zu klären, ob eine drastische Toxizitätsreduzierung anhand solch einer Anlage möglich ist. Die Transmutationsanlage wird hierbei primär als System zur Toxizitätsreduzierung des nuklearen Abfalles angesehen und dementsprechend ausgelegt. Die Betrachtung beschränkt sich dabei im wesentlichen auf die neutronenphysikalische Auslegung und dem TRU-Abbrandverhalten. Das Erreichen der Zielsetzung hinsichtlich der Toxizitätsreduzierung wird anhand des Gesamtkonzeptes für den Einsatz der thermischen unterkritischen Transmutationsanlage erörtert.

Die Arbeit selbst beginnt mit einer Darstellung des Gefährdungspotentiales radioaktiver Abfälle. So wird das radioaktive Gefährdungspotential charakterisiert und anschließend werden die Möglichkeiten der Entsorgung aufgezeigt. Dabei wird zwischen der direkten Endlagerung, der Wiederaufarbeitung und dem Partitioning und Transmutation unterschieden. Als Konsequenz wird ein Profil für die gewünschte kurze Abschlußzeit der Abfallstoffe erstellt.

Kapitel 3 behandelt ausgearbeitete Systemvorschläge zur Transmutation um einen Einblick in den Stand der Forschung zu geben. Hier bietet sich eine Unterteilung in kritische und subkritische Transmutationsanlagen an. Während bei den kritischen Systemen direkt auf Leichtwasserreaktorsysteme und schnelle Reaktorsysteme eingegangen wird, werden bei den subkritischen Transmutationsanlagen zunächst die Grundlagen und der Aufbau benannt und erläutert. Als bedeutende Beispiele werden die Konzepte einer thermischen ATW Anlage aus dem LANL und das Cerner Konzept einer schnellen ADS Anlage detailliert vorgestellt. Ein besonderes Augenmerk wird auf die bisherige Umsetzung der Grundidee einer thermischen unterkritischen Transmutationsanlage mit flüssigem Blei als Actinidenträger gelegt.

Kapitel 4 beschäftigt sich mit den Grundlagen des Jülicher Konzeptes einer thermischen unterkritischen Transmutationsanlage mit flüssigem Blei als Kühlmittel und Trägermedium der Transurane. Neben dem Grundaufbau der Transmutationsanlage stehen insbesondere die möglichen Blei-TRU Brennstoffe als zentraler Punkt eines flüssigen Systems und die daraus resultierenden Risiken (Sedimentation) im Blickpunkt des Interesses. Darauf aufbauend werden verschiedene neuartige Brennstoffe entwickelt und diskutiert.

Eine erste Abschätzung der Leistungsfähigkeit des Konzeptes erfolgt durch die Betrachtung eines ingenieurtechnisch einfacher umzusetzenden Batchbetriebs der Anlage in Kapitel 5. Dabei wird bei diesem Betriebsverfahren auf eine kontinuierliche Zuführung von frischem Transuranen und einer kontinuierlichen Extraktion von Spaltprodukten verzichtet.

Kapitel 6 erörtert explizit den Betrieb mit kontinuierlicher Spaltproduktextraktion und TRU-Zuführung. Dabei wird von einem einjährigem Dauerbetrieb ausgegangen, um die verschiedenen Brennstoffe in Form einer Systemstudie bewerten zu können. Als Beurteilungskriterien werden das Abbrandverhalten der Brennstoffe, das entstehende Inventar und der Multiplikationsfaktor der Anlage herangezogen. Die geeigneten Brennstoffkandidaten aus diesem Vergleich werden in der optimierten Jülicher ADS Anlage über einen Abbrandzeitraum von drei Jahren analysiert.

In Kapitel 7 wird der Grundgedanke einer thermischen unterkritischen Transmutationsanlage mit flüssigem Blei als Actinidenträger konsequent umgesetzt. Dementsprechend wird eine optimierte Transmutationsanlage zur Vernichtung von TRU bzw. Actiniden ausgearbeitet. Bei der Optimierung der Anlage wird sowohl Art und Umfang der Spaltproduktextraktion, der Aufbau von Cm als auch die kontinuierliche TRU-Zuführung berücksichtigt, da die TRU Zuführung maßgebend für den Multiplikationsfaktor und das Anlageninventar ist. Eine erste Prüfung der nuklearen Sicherheit anhand des Reaktivitätskoeffizienten und der Möglichkeit eines Kritikalitätssprungs beleuchten das spezifische Sicherheitsverhalten des Brennstoffs bzw. der Anlage. Die wesentlichen Charakteristika der optimierten Transmutationsanlage wie Abbrandverhalten, TRU-Inventaraufbau während des Abbrands, sowie Verlauf des Multiplikationsfaktors und des Neutronenflusses werden detailliert dargelegt. Ein Vergleich anhand der erzielten TRU-Vernichtung mit denen alternativer Systeme und Anlagen beschließen Kapitel 7.

Um das Leistungsvermögen der Einzelanlage hinsichtlich der gewünschten Toxizitätsreduzierung beurteilen zu können, muß zunächst ein Gesamtkonzept erstellt werden. Dies geschieht in Kapitel 8. Anhand des Gesamtkonzeptes kann die Transmutationsanlage über mehrere Betriebszyklen bilanziert werden. Eine Massenbilanz, in der der zugeführte Pu- bzw. PuMA-Brennstoff, der andernfalls endgelagert werden müßte, mit einbezogen wird, dient als Ausgangspunkt für die Toxizitätsbilanzierung. Ebenso werden die auftretenden Verlustströme mit berücksichtigt, um letztlich die verbleibende Gesamtoxizität berechnen zu können, die in ein Endlager eingebracht werden muß. Erst ein Vergleich mit dem Toxizitätsniveau von frischem Uranbrennstoff ermöglicht die qualitative Beurteilung der Resttoxizität.

Ein Fazit und Ausblick in Kapitel 9 über die Möglichkeiten der optimierten Jülicher Transmutationsanlage bilden den Abschluß. Dementsprechend erfolgt hier eine Bewertung, ob und unter welchen Rahmenbedingungen die dargelegte optimierte unterkritische thermische Transmutationsanlage mit flüssigem Blei als Actinidenträger in der Lage ist, einen entscheidenden Beitrag zur Entsorgung von hochaktiven Transuranen zu leisten.

2 Gefährdungspotential radioaktiver Abfälle

Die Akzeptanz der Kernenergie hängt im wesentlichen vom sicheren Umgang mit radioaktiven Stoffen und deren Abschluß von der Biosphäre ab. Um einen Einblick in die Gesamthematik der Entsorgung radioaktiver Abfälle aus kerntechnischen Anlagen zu geben, wird zu Beginn das Gefährdungspotential radioaktiver Abfälle qualifiziert und quantifiziert. Dabei wird auf die Menge und Art des radioaktiven Abfalls eingegangen, der durch die Nutzung in Kernkraftwerken erzeugt wird. Um ein Gefährdungspotential bestimmen zu können, werden die radioaktiven Abfallstoffe mit den Richtlinien der International Commission on Radiological Protection (ICRP) in Beziehung gesetzt. Im weiteren Verlauf wird auf die Möglichkeiten der Entsorgung radioaktiver Abfälle eingegangen. Dabei werden die heute praktikierbaren Wege der direkten Endlagerung und Wiederaufarbeitung charakterisiert sowie auf das Prinzip des Partitioning und Transmutation eingegangen. Alle Verfahren werden bezüglich der angestrebten Verringerung des Gefährdungspotentials verglichen.

Vorab bietet sich eine Begriffsbestimmung der Actiniden, Transurane (TRU), und Minor Actinides (MA) an. Als Actinide werden zunächst alle Elemente oberhalb der Ordnungszahl 89 bezeichnet. Im Zusammenhang mit radioaktiven Abfällen wird der Begriff Actiniden aber meist, insbesondere im englischsprachigen Raum, auf den Bereich der Elemente ab einer Ordnungszahl von 92 bezogen. Minor Actinides (MA) bezeichnen die in hochaktiven Abfällen weniger häufig vorkommenden Actinide, und werden fast ausschließlich mit den Elementen Np, Am, und Cm gleichgesetzt. In Bezug auf einen Thorium-Zyklus kommt noch das Element Pa hinzu. Der Begriff der Transurane (TRU) bezeichnet alle Elemente oberhalb der Ordnungszahl 92. Die entsprechende Nuklidtafel mit den Aufbauwegen findet sich in Anhang A. **Abb. 2.1** verdeutlicht diesen Zusammenhang und benennt einige Eigenschaften der reinen Elemente.

Ordnungszahl	89	90	91	92	93	94	95	96
Element	Ac	Th	Pa	U	Np	Pu	Am	Cm
Rel. Atommasse	227	232,03	231,03	238,02	237,04	244	243	247
Dichte [g/cm ³]		11,724	15,7	18,97	20,48	19,73	13,67	13,51
Schmelzpunkt [°C]	1050	1755	1568	1132	639	639,5	1173	1350
Siedepunkt [°C]	3200	4800	4200	3900	3900	3200	2600	-
Normalpotential [ln-HClO ₄] M/M ³⁺	Keine Angabe	Keine Angabe	Keine Angabe	-1,789	-1,856	-2,031	-2,320	-2,31

Abb. 2.1: Begriffsbestimmung von Actinide, Transurane und Minor Actinides sowie deren Eigenschaften als Reinmetalle /HOL 85/.

2.1 Charakterisierung des radiologischen Gefährdungspotentiales

Ausgangspunkt aller nachfolgenden Betrachtungen ist die friedliche Nutzung der Kernenergie, welche fast ausschließlich bei der Stromerzeugung ihren Anwendungsbereich findet. Die in den Kernkraftwerken entstehenden Abfälle können je nach ihrem Aktivitätsinventar in schwach-, mittel- und hochaktive Abfälle unterteilt werden. Eine Schlüsselposition halten dabei die hochaktiven Abfälle (HAW) inne, da diese für Jahrhunderttausende von der Biosphäre ferngehalten werden müssen. Diese treten im wesentlichen als entladene Brennelemente eines Kernkraftwerkes, welche 99% der Aktivität verursachen bzw. verglaste Abfallstoffe nach der Wiederaufarbeitung auf /VOL 94/. 1998 wurde die Kernenergie weltweit in 437 Kernreaktoren mit einer installierten Leistung von ca. 351,8 GW_{el} zur Stromerzeugung eingesetzt /JAH 98/. Die erzeugte Strommenge zog die Produktion von ca. 9000 t Schwermetall (SM) in Form von abgebrannten Brennelementen nach sich /BAE 92/. Bis zum Jahr 2010 wird mit einer kumulierten Gesamtmenge an abgebrannten Kernbrennstoffen aus zivilen Leistungsreaktoren von 316250 t Schwermetall gerechnet /ALB 93/. Zusätzlich fällt noch ca. 100 t waffengrädiges Plutonium und ca. 1500 t hoch angereichertes Uran aus den Kernwaffenarsenalen der Atomkräfte an. Die Masse der abgebrannten Brennelemente aus militärischer Nutzung können nicht konkret angegeben werden und bleiben bei der Betrachtung der Gesamtmenge an SM außen vor.

Um das Gefährdungspotential genauer qualifizieren zu können, werden die in einem Druckwasserreaktor (DWR) erzeugten langlebigen Spaltprodukte und Actiniden in **Tab. 2.1** aufgeführt und näher betrachtet. Die exemplarische Darstellung der hochaktiven abgebrannten Brennelemente eines Druckwasserreaktors mit 1300 MW_{el} erfolgt nach einer Abklingzeit von

Tab. 2.1: Langlebige Spaltprodukte und Actinide im hochaktiven Abfall eines DWR je t_{SM} /JAN₀ 95/.

Isotop	$T_{1/2}$ (a)	Masse (g)
Tc - 99	210000	847
I - 129	$1,57 \cdot 10^7$	188
Np - 237	$2,14 \cdot 10^6$	456
Pu - 238	87,8	151
Pu - 239	24110	5605
Pu - 240	6550	2328
Pu - 241	14,4	855
Pu - 242	376300	492
Am - 241	433	551
Am - 242m	141	0,7
Am - 243	7370	84
Cm - 244	18,1	16,6
Cm - 245	8500	0,9
Summe	-	11575,2

10 Jahren und einem Abbrand von 35 MWd/kg Schwermetall. Die Betrachtung eines so spezifizierten Druckwasserreaktors kann dabei als symptomatisch angesehen werden, da die Zusammensetzung nur geringfügig von der eines Siedewasserreaktors abweicht, beide Reaktorlinien aber ca. 83% aller betriebenen Kernreaktoren repräsentieren /PIO 96/. Es fällt sofort auf, daß allein das Plutonium-239 Isotop ca. 48,4% der Masse stellt. Wird die Summe der je t Schwermetall anfallenden langlebigen Spaltprodukte und Actinide mit der Gesamtsumme der anfallenden hochaktiven Schwermetalle multipliziert, so ergibt sich ein Gesamtmasse an langlebigen Spaltprodukten und Actiniden von weltweit ca. 104 t/a .

Tab. 2.2: ALI Werte, Grenzwerte und Gefährdungspotential langlebiger Radionuklide für Ingestion.

Isotop	ALI [Bq/a]	ICRP 61 [Bq/Sv]	10 CFR 20 [Bq/Sv]	ICRP 68 [Bq/Sv]	Gefähr- dungspot. [Sv/g]
Tc - 99	$3 \cdot 10^7$	$1,5 \cdot 10^9$	$1,9 \cdot 10^9$	$1,6 \cdot 10^9$	$4,1 \cdot 10^{-1}$
I - 129	$2 \cdot 10^5$	$1 \cdot 10^7$	$4,4 \cdot 10^5$	$9,1 \cdot 10^6$	$7,2 \cdot 10^{-1}$
U - 234	$7 \cdot 10^5$	$3,5 \cdot 10^7$	$2,2 \cdot 10^8$	$2,0 \cdot 10^7$	$1,1 \cdot 10^1$
U - 235	$7 \cdot 10^5$	$3,5 \cdot 10^7$	$2,2 \cdot 10^8$	$2,1 \cdot 10^7$	$3,8 \cdot 10^{-3}$
U - 236	$7 \cdot 10^5$	$3,5 \cdot 10^7$	$2,2 \cdot 10^8$	$2,1 \cdot 10^7$	$1,1 \cdot 10^{-1}$
U - 238	$8 \cdot 10^4$	$4 \cdot 10^7$	$3 \cdot 10^8$	$2,2 \cdot 10^7$	$5,6 \cdot 10^{-4}$
Np - 237	$3 \cdot 10^4$	$1,5 \cdot 10^6$	$2,2 \cdot 10^7$	$9,1 \cdot 10^6$	$2,9 \cdot 10^0$
Pu - 238	$4 \cdot 10^4$	$2 \cdot 10^6$	$3,7 \cdot 10^7$	$4,4 \cdot 10^6$	$1,5 \cdot 10^5$
Pu - 239	$4 \cdot 10^4$	$2 \cdot 10^6$	$3,7 \cdot 10^7$	$4 \cdot 10^6$	$5,7 \cdot 10^2$
Pu - 240	$4 \cdot 10^4$	$2 \cdot 10^6$	$3,7 \cdot 10^7$	$4 \cdot 10^6$	$2,1 \cdot 10^3$
Pu - 241	$2 \cdot 10^4$	$1 \cdot 10^8$	$1,5 \cdot 10^9$	$2,1 \cdot 10^8$	$1,8 \cdot 10^4$
Pu - 242	$4 \cdot 10^4$	$2 \cdot 10^6$	$3,7 \cdot 10^7$	$4,2 \cdot 10^6$	$3,5 \cdot 10^1$
Am - 241	$3 \cdot 10^4$	$1,5 \cdot 10^6$	$3 \cdot 10^7$	$5 \cdot 10^6$	$2,5 \cdot 10^4$
Am - 243	$3 \cdot 10^4$	$1,5 \cdot 10^6$	$3 \cdot 10^7$	$5 \cdot 10^6$	$1,5 \cdot 10^3$
Cm - 243	$5 \cdot 10^4$	$2,5 \cdot 10^6$	$3,7 \cdot 10^7$	$6,7 \cdot 10^6$	$2,8 \cdot 10^5$
Cm - 244	$6 \cdot 10^4$	$3 \cdot 10^6$	$5,2 \cdot 10^7$	$8,3 \cdot 10^6$	$3,6 \cdot 10^5$

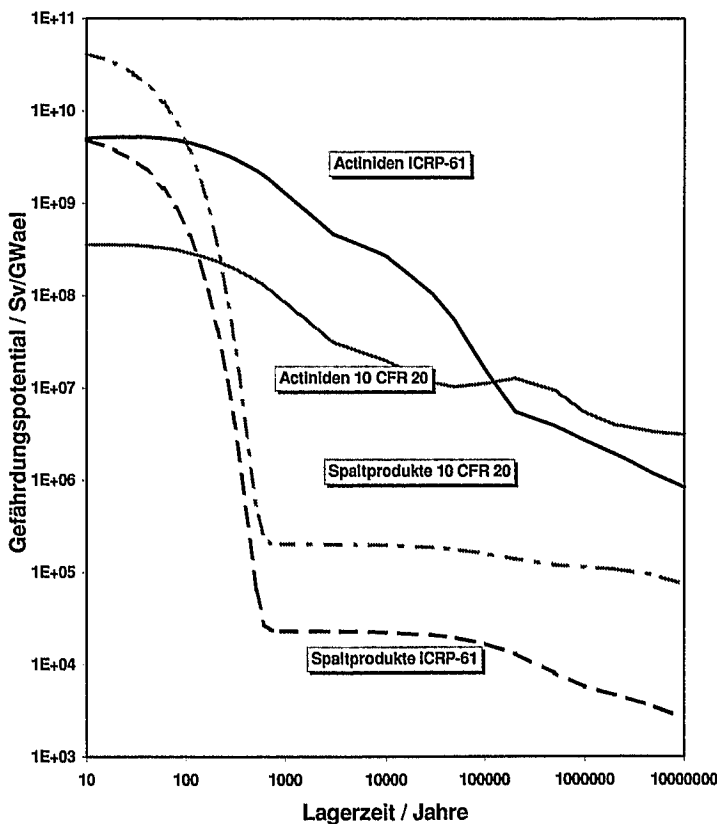


Abb. 2.2: Verläufe des Gefährdungspotentiales von Spaltprodukten und Actiniden /PHL₁ 95/.

Das Gefährdungspotential eines radioaktiven Stoffes basiert aber nicht direkt auf der Halbwertszeit des Stoffes, sondern auf seiner Toxizität. Als Basis zur Berechnung des Gefährdungspotentiales radio-toxischer Stoffe dienen in neueren Empfehlungen Grenzwerte der zulässigen jährlichen Aktivitätsauf-nahme für beruflich strahlenexponierte Perso-nen über den Ingestions-pfad /PHL₁ 95/. Diese Grenzwerte werden als sogenannte ALI-Werte (Annual Limit of Intake) bezeichnet. Als Richtlinien für diese Grenzwerte haben sich die Empfehlungen der International Commission on Radiological Protection (ICRP) etabliert. Teilweise werden auch die älteren im Code of Federal Regula-tions (CFR) festgelegten Grenzwerte weiter verwen-det. Im Zuge der Auswertung neuer Daten unterlagen die Empfehlun-gen der ICRP einem drastischen Wandel. Dies wird in **Tab.2.2** angedeutet, wo die neuen ALI-Werte und die auf Bq/Sv umge-rechneten Empfehlungen ICRP-61 von 1991 und ICRP-68 von 1998 für langlebige Radionuklide aufgeführt werden. Bezug nehmend auf eine vorge-schlagene Vereinfachung wird das resultierende

Gefährdungspotential nicht mehr in Form einer notwendigen Wasserverdünnung angegeben, sondern in Form einer effektiven Dosis / PHL_1 95/. Eine ausführlichere Entwicklung der Grenzwerte wird in Anhang B dargestellt. Werden die geänderten Richtlinien am Beispiel der ICRP-61 und der 10 CFR 20 bzw. das daraus resultierende Gefährdungspotential über der Zeitachse aufgetragen (**Abb. 2.2**), so wird deutlich, daß die Actiniden quasi von Beginn an das Gefährdungspotential bestimmen / PHL_2 95/. Die Stellung der Spaltprodukte verliert hingegen an Bedeutung. Aus dieser Tatsache heraus fällt den Actiniden eine entscheidende Rolle zu, wenn das Gefährdungspotential beherrscht bzw. sogar verringert werden soll.

2.2 Möglichkeiten der Entsorgung hochradioaktiver Abfälle

Im Prinzip stehen drei verschiedene Möglichkeiten an Entsorgungswegen hochaktiver Abfälle zur Verfügung. Die letztliche Entsorgung ist ähnlich, doch unterscheiden sich die Wege der direkten Endlagerung, der Wiederaufarbeitung und des Partitioning mit Transmutation bis zu diesem Punkt enorm. Alle Verfahren beeinflussen die Toxizität und können durch ihre Einflußnahme auf das Gefährdungspotential charakterisiert und verglichen werden. Als Ausgangsbasis dient das Gefährdungspotential der abgebrannten Brennelemente eines 1300 MW_{el} Druckwasserreaktors (vgl. **Tab. 2.1**). **Abb. 2.3** zeigt die aufsummierten Gefährdungspotentiale für die drei Isotopengruppen der Actinide, der Spaltprodukte und des

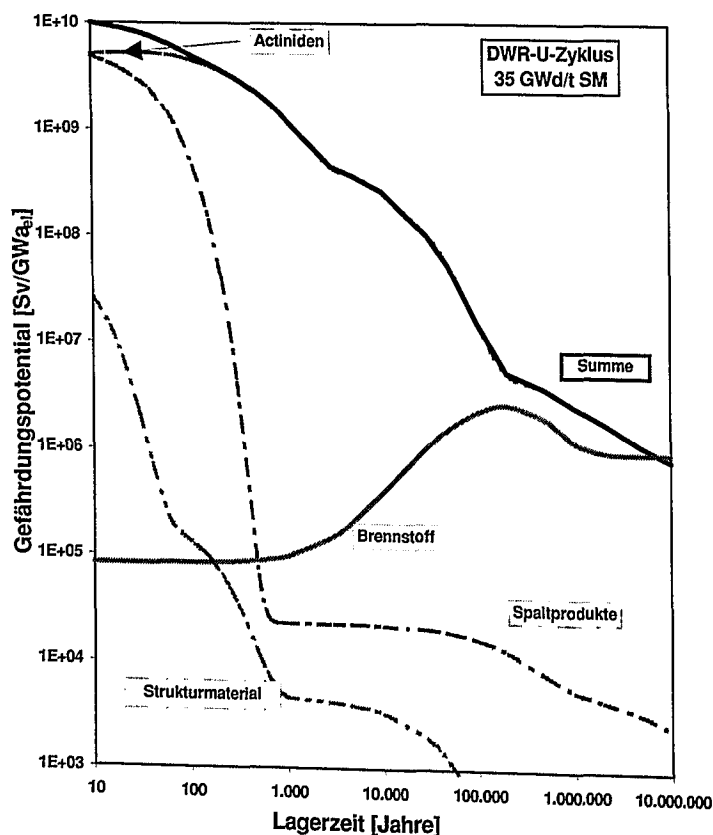


Abb. 2.3: Gefährdungspotential für abgebrannten DWR Brennstoff nach ICRP-61 (Ingestion) / PHL_1 95/.

Strukturmaterials über der Zeit nach der ICRP-61 Richtlinie. Im Sinne einer Bilanzierung des Gefährdungspotentials sind die Abfälle mit dem in den Reaktor eingesetzten Brennstoff zu vergleichen. Eine Erhöhung des natürlichen Gefährdungspotentials tritt erst durch die Nutzung in Reaktoren ein. Somit unterliegt nur die Nutzung in Reaktoren, jedoch nicht die Existenz des unverbrauchten Brennstoffs dem menschlichen Entscheidungsspielraum. Deutlich wird, daß die hochaktiven Abfälle insgesamt für mehrere hunderttausend Jahre von der Biosphäre abgeschirmt werden müssen, bevor sie wieder auf das Gefährdungspotential natürlichen Urans abklingen.

2.2.1 Direkte Endlagerung

Der Weg zur direkten Endlagerung beginnt wie der Weg der Wiederaufarbeitung mit der Entladung der abgebrannten Brennstoffe und anschließenden Lagerung im Kompaktlager (Naßlager), welches sich im Reaktorgebäude befindet. Dort werden die Brennelemente für mehrere Jahre gelagert, bis die Nachzerfallswärme soweit abgesunken ist, daß luftgekühlte Transportbehälter genutzt werden können /VOL₂ 94/. Dann erfolgt der Weitertransport in ein Zwischenlager. Der Transport erfolgt zum Beispiel in einem CASTOR-Behälter, der anschließend auch zur Zwischenlagerung verwendet werden kann. Dabei wird die noch vorhandene Nachzerfallswärme durch Wärmestrahlung und Naturkonvektion abgeführt. Die Zwischenlagerung erfolgt für einige Jahrzehnte, bevor die Brennstäbe schließlich konditioniert, in einen Endlagerbehälter umgelagert und in eine geologisch stabile Formation eingelagert werden. Der langfristige Einschluß der hochaktiven Stoffe wird durch das Konzept von mehreren Barrieren angestrebt. **Abb.2.4** zeigt die einzelnen Barrieren auf. Die ersten drei Barrieren (Pellet, Hüllrohr, Behälter) werden als „ingenieurtechnische“ Barrieren bezeichnet. Für diese kann aufgrund der angewendeten Fertigungstechniken und Qualitätssicherungen eine Lebensdauer von ca. 1000 Jahren garantiert werden /NEU 96/. Die langfristige Sicherstellung (>1000 Jahre) des Abschlusses von der Biosphäre erfolgt durch die geologische Formation. Als geeignete Gesteine werden heute hauptsächlich Granit, Tuff, Steinsalz und Ton angesehen.

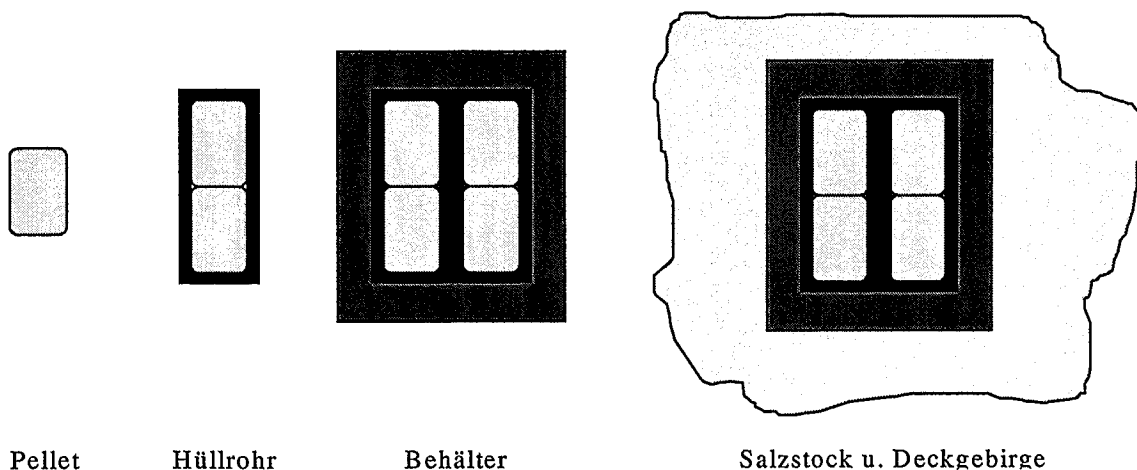


Abb. 2.4: Barrierekonzept der Endlagerung.

Das Gefährdungspotential der direkten Endlagerung entspricht dem des unbehandelten, abgebrannten Brennstoffs (vgl. **Abb. 2.3**). Dabei bestimmen die Actiniden bzw. Transuranelemente, explizit das Plutonium, faktisch von Beginn an das Gefährdungspotential. Dieses erreicht erst nach mehreren Millionen Jahren das Vergleichsniveau des frischen Brennstoffs. Die Spaltprodukte hingegen erreichen schon nach ca. 800 Jahren das Vergleichsniveau und können daher bei weiteren Betrachtungen außen vor gelassen werden.

2.2.2 Wiederaufarbeitung

Die Wiederaufarbeitung beginnt, nachdem die abgebrannten Brennelemente einige Jahre im Zwischenlager positioniert waren. Im ersten Schritt werden die Brennstäbe aufgesägt und das Strukturmaterial vom Brennstoff getrennt (Head – End). Der eigentliche Kernbrennstoff wird anschließend nach dem sogenannten Purex-Verfahren weiterbehandelt. Dabei wird der Brennstoff in heißer Salpetersäure aufgelöst und durch chemische Verfahren in die drei Komponenten Uran, Plutonium und Spaltprodukte/Actinide separiert /KUG 92/. Die Abtrennraten für Uran und Plutonium betragen dabei ca. 99,9%. Die hochaktiven und wärmeentwickelnden Spaltprodukte und Actinide werden zwischengelagert, während Uran und Plutonium in Form von Mischoxid (MOX)-Brennelementen erneut dem Kernbrennstoffkreislauf zugeführt werden. Letztlich werden die Spaltprodukte/Actinide speziell konditioniert und in ein Endlager eingebracht. Somit beinhaltet der Begriff Wiederaufarbeitung nur die Abtrennung von Plutonium und Uran. Die hochaktiven Elemente wie z.B. die Minor Actinides (Neptunium, Americium und Curium) gelangen komplett als Wiederaufarbeitungsverluste (WAA-Verluste) in den Abfallstoffstrom und stehen somit für eine weitergehende Verwendung/ Umwandlung nicht zur Verfügung.

Eine mengenmäßige Betrachtung des Abfallstromes in einer Wiederaufarbeitungsanlage (WAA) für den Jahresbetrieb eines 1300 MW_{el} Druckwasserreaktors zeigt **Abb. 2.5**. Neben der Abtrennung von Plutonium und Uran, ist insbesondere die immense Volumenreduktion der hochaktiven Abfälle (HAW > 10⁴Ci/m³) zu beachten. Die 5 m³ HAW enthalten die im Reaktor erzeugten Spaltprodukte, weniger als 1% U und Pu, sowie die höheren Transurane wie Americium (Am) und Curium (Cm). Weiterhin stehen ca. 300 kg Plutonium zur weiteren Nutzung in MOX-Brennelementen an.

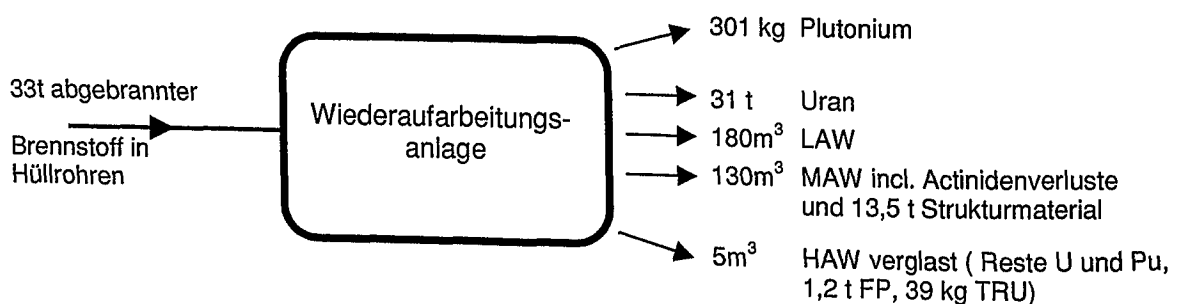


Abb. 2.5: Jährliche Entlademenge eines 1300 MW_{el} DWR und entsprechende in der WAA erzeugte Fraktionen /KUG 92/.

Wird das integrale Gefährdungspotential (Summe der Wiederaufarbeitungsabfälle, der ersetzten Uranfraktion und des abgebrannten Brennstoffs) von MOX-Brennelementen betrachtet, so stellt dies keine signifikante Verringerung des Gefährdungspotentiales im Vergleich zur direkten Endlagerung dar. Daher besteht bei den heutigen Brennstoffzyklen keine Möglichkeit der Gefährdungsminimierung. Werden hingegen in einer Wiederaufarbeitungs-

anlage die Actinide nach heutigen Abtrennmöglichkeiten separiert und gehen diese nicht in die Endlagerung ein, sondern nur der verbleibende Brennstoff, so ergibt sich eine Verringerung des Gefährdungspotentiales. **Abb. 2.6** verdeutlicht dies, indem das Gefährdungspotential der Actiniden, des Strukturmaterials sowie der Spaltprodukte aus abgebrannten DWR-

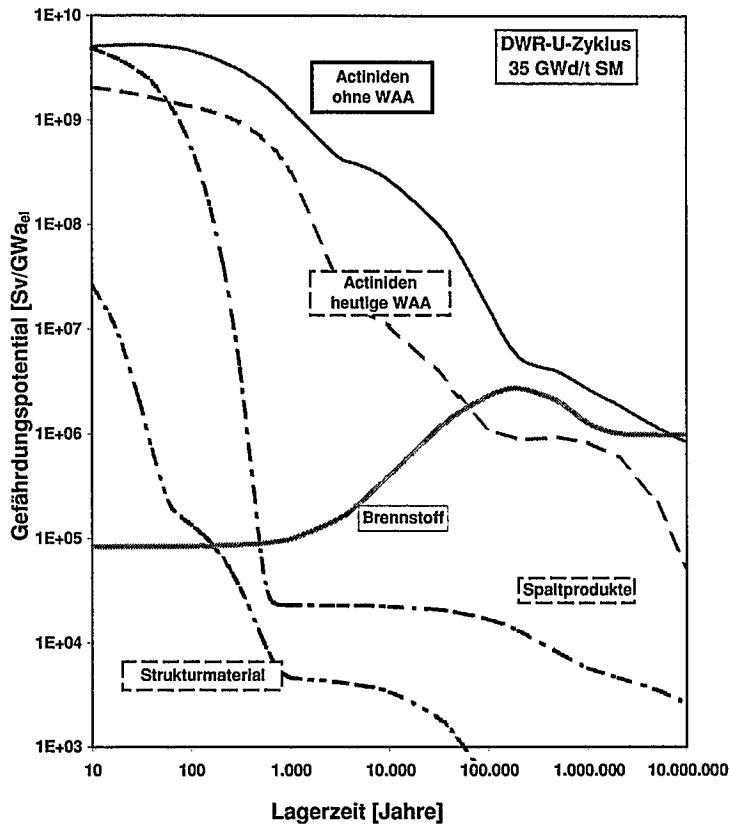


Abb. 2.6: Gefährdungspotential der Actinide aus abgebrannten DWR-Brennstoffen nach ICRP-61 (Ingestion) mit und ohne Pu-Abtrennung /GLO 95/.

Brennelementen bei einer direkten Endlagerung (ohne Actinidenabtrennung) und einer Pu-Abtrennung im Rahmen einer Wiederaufarbeitung über der Zeit dargestellt wird. Nach der Abtrennung wird das Vergleichsniveau wesentlich früher erreicht. Dennoch handelt es sich aber um Zeiträume von Zehntausenden von Jahren, die einen geologischen Einschluß erfordern.

Somit bleiben Kritikpunkte an einer Endlagerung für geologische Zeiträume weiterhin vorhanden, da den Gesteinsformationen im Endlager eine aktive Sicherheitsfunktion abverlangt wird.

2.2.3 Partitioning und Transmutation

Bei dem Konzept des Partitionings (Abtrennung) und Transmutation (Umwandlung) steht nicht nur der sichere Einschluß des bestehenden Gefährdungspotentiales im Vordergrund, wie bei den bisherigen Endlagerungsansätzen, sondern es wird eine Reduktion des Langzeitgefährdungspotentiales auf technisch beherrschbare Zeiträume (1000-2000 Jahre) angestrebt. Um diese Zielsetzung zu erreichen, bedarf es der Abtrennung der Transurane, die das Gefährdungspotential dominieren, sowie einiger langlebiger Spaltprodukte aus dem hochaktiven Abfall und der anschließenden Umwandlung (Transmutation) in kurzlebige Nuklide. Somit unterscheidet sich das Partitioning nicht nur in der qualitativen Abtrenngüte von der Wiederaufarbeitung, sondern insbesondere hinsichtlich der abzutrennenden Elemente. Sind dies bei der Wiederaufarbeitung nur Plutonium und Uran, so beinhaltet das Partitioning auch die Abtrennung der Minor Actinides wie Neptunium, Americium und Curium. Somit existiert prinzipiell erst nach einem Partitioning die Möglichkeit die Minor Actinides gezielt umzu-

wandeln. Erst wenn diese Elemente verfügbar sind und somit dem endzulagerndem Abfallstrom zunächst entzogen wurden, können diese auch umgewandelt werden.

Kann zum Beispiel eine Abtrenntechnik angewandt werden, die mit Verlusten von 0,01 Gew.% Plutonium, sowie 0,1 Gew.% Uran, Neptunium Americium und Curium arbeitet, so wird ein Unterschreiten des Vergleichsniveaus durch den verbleibenden DWR-Abfall nach ca. 2000 Jahren erreicht. Der Verlauf des verbleibenden Gefährdungspotentiales wird in **Abb. 2.7** den bisherigen Entsorgungsmöglichkeiten bzw. Abtrennraten gegenübergestellt.

Mit solch beschriebener Abtrenntechnik (Partitioning) wäre ein gesicherter Einschluß durch „ingenieurtechnische“ Barrieren möglich. Die geologische Langzeitstabilität der Gesteinsformation ist somit nicht mehr relevant. Der Transmutation kommt dabei die Aufgabe zu, die abgetrennten langlebigen, hochaktiven Transurane, insbesondere Plutonium; sowie Minor Actinides (Cm, Am) und Spaltprodukte in kurzlebige Nuklide umzuwandeln. Dies bedeutet, daß die Nuklide entweder durch Neutroneneinfang in schwerere, oder durch neutronen-induzierte Spaltung in leichtere Nuklide umgewandelt werden.

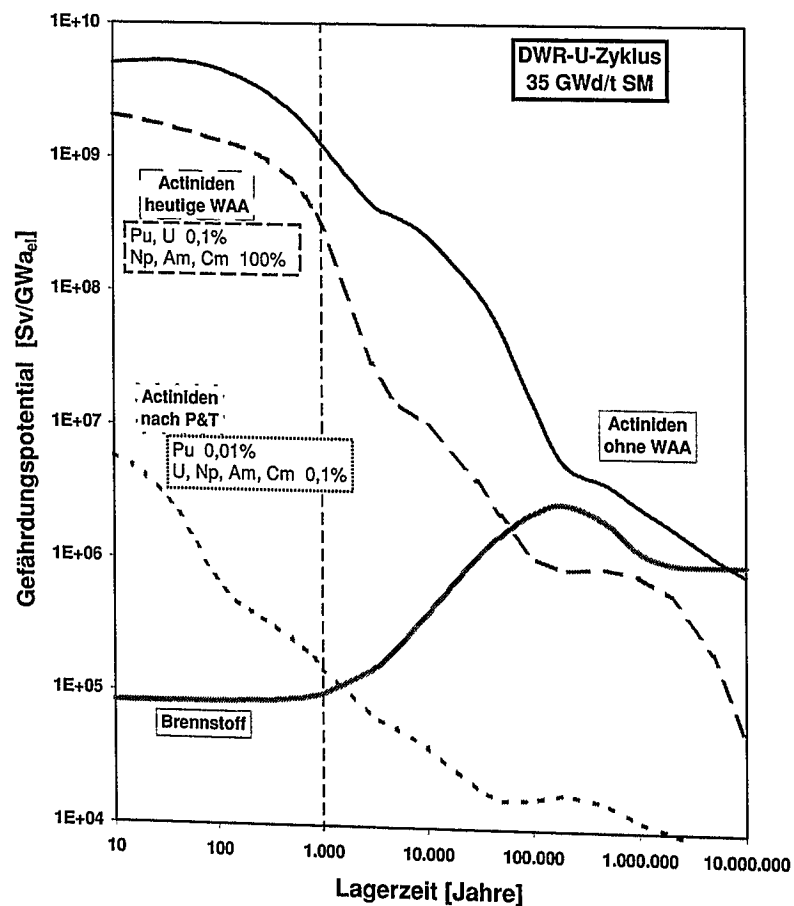


Abb. 2.7: Gefährdungspotential endgelagerter Actinidenabfälle aus abgebrannten DWR-Brennstoff nach ICRP-61 (Ingestion) für unterschiedliche Verlustraten [Gew.-%] in der Abtrenntechnik /PHL₁ 95/.

3 Systemvorschläge zur Transmutation

Bei den Vorschlägen zur Reduzierung der erforderlichen Abschlußzeiten von hochradioaktiven Stoffen können prinzipiell zwei Wege beschritten werden. Zum einen kann die neu entstehende Menge an Actiniden verringert werden und zum anderen können die in Leistungsreaktoren entstandenen Actinide nachträglich umgewandelt werden. Dementsprechend zeichnen sich international zwei Zielrichtungen ab.

- Entwicklung und Einführung von alternativen Brennstoffträgern für den Urankreislauf, wie zum Beispiel Thorium basierte Brennstoffe oder sogenannter Inertmatrizen, für Leistungsreaktoren, bei denen kaum langlebige Transurane aufgebaut werden. Werden diese neuen Brennstoffe im MOX-Kreislauf eingesetzt, wäre ein TRU Verbrauch von bis zu 375 kg je GW_{th}a in einem Reaktor möglich.
- Entwicklung und Integration einer Transmutationsanlage in den Brennstoffkreislauf, mit der Zielsetzung bereits vorhandene Transuranmengen zu reduzieren.

Eine Transmutation von Actiniden und Spaltprodukten läßt sich in verschiedenen Anlagen realisieren. Im besonderen Blickpunkt des Interesses stehen dabei fünf ausgearbeitete Studien zur Transmutation, die nachfolgend charakterisiert werden. Dies sind auf der Seite der kritischen Systeme der MOX und Thorium-MOX Einsatz in Leichtwasser- und Hochtemperaturreaktoren sowie die Anwendung eines schnellen kritischen Cores wie im CAPRA/CADRA Projekt. Im subkritischen Bereich wird ein besonderes Augenmerk auf die thermische ATW Anlage von Bowman et al. des Los Alamos National Laboratory und die schnelle FEA Anlage der Forschungsgruppe um Rubbia et al. gelegt. Eine umfassende Übersicht weltweiter Aktivitäten und Vorschläge vermitteln /MAT et al. 94/ und /ADT 99/.

Ein bedeutendes Charakteristika für die Systeme stellt die Art des gewählten Neutronenspektrums dar. Bei einem thermischen Neutronenspektrum können die großen Wirkungsquerschnitte der TRU Isotope ausgenutzt werden /PFE 95/. In der praktischen Anwendung schlägt sich dieser Vorteil meist in einem sehr geringen Inventar an TRU in einer Anlage aus. Allerdings führen die Neutronen nicht immer zu einer direkten Spaltung, sondern gerade die MA wie z.B. Curium sind nur sehr schwer im thermischen Spektrum spaltbar. Diese Isotope werden durch einen Neutroneneinfang in höhere Isotope überführt, welche dann meist thermisch spaltbar sind. Als Indikator kann auch der ungünstige ($\ll 1$) α - Wert (Gl. 3.1)

$$\text{Gl. 3.1} \quad \alpha = \sigma_f / (\sigma_f + \sigma_{n,\gamma})$$

einiger MA Isotope angesehen werden, der direkt ein Verhältnis von Spaltung zu Einfang widerspiegelt /KUG 94/. In einem schnellen Spektrum verschiebt sich dieser α - Wert mit zunehmender Energie bei allen Actiniden unabhängig vom Isotop Richtung 1 /BAE 93/. Diesem günstigen Verhältnis von Spaltung zu Einfang stehen allerdings die sehr kleinen absoluten Wirkungsquerschnitte von wenigen Barn gegenüber. Als Konsequenz führen Anlagen mit einem schnellen Neutronenspektrum zu großen TRU Inventaren, um einen adäquaten Umsatz zu erzielen. Als ein qualitatives Vergleichskriterium für Transmutationsanlagen hat

sich in den letzten Jahren die Masse der verbrauchten, also gespaltenen TRU je GW_{th} a erwiesen. Anhand dieser Kennzahl kann eine erste Einschätzung der Transmutationsrate erfolgen, ohne die jeweiligen systembedingten Wirkungsgrade zu berücksichtigen bzw. zu kennen.

3.1 Transmutation in Reaktoren

Als kritische Transmutationsanlage werden Systeme bezeichnet, in denen ohne externe Neutronenquellen eine stabile Kettenreaktion ($k_{\text{eff}} = 1$) abläuft und aufrecht erhalten werden kann. Aus praktischen Erwägungen heraus bieten sich daher zunächst bestehende bzw. in Betrieb befindliche Kernkraftwerke an, um dort, durch spezielle Modifikation des Systems, Transurane umzuwandeln bzw. die Erzeugung der ungewünschten Actiniden im Vorfeld zu vermeiden. Eine Studie über die Transmutation in Candu (D_2O) Reaktoren wird bei /LEE / vorgestellt. Die weitere Betrachtung beschränkt sich auf die Reaktortypen LWR, HTR und SNR.

3.1.1 Leichtwasserreaktor

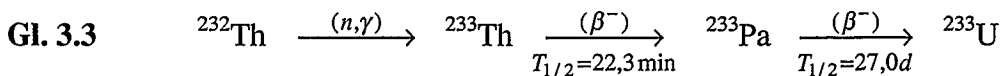
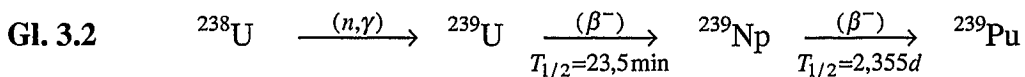
Weltweit wurden die meisten Erfahrungen mit Leichtwasserreaktoren gesammelt, so daß eine mögliche Nutzung dieses Reaktorsystems zur Transmutation naheliegt. So existieren eine Vielzahl von Vorschlägen, um durch Veränderungen der Brennstoffzusammensetzung eine Erhöhung der Umsatzrate an Transuranelementen zu erreichen. Als Beispiel sei das Konzept von JAERI (Japan Atomic Energy Research Institute) genannt. Es sieht vor, in einem nur leicht modifizierten Druckwasserreaktor bei einer erhöhten Anreicherung des Urans, 3% Np-237 dem Brennstoff homogen beizumischen /MAT et al. 94/.

Als eine praktikable Vorgehensweise hat sich der Einsatz von Uran-Plutonium Mischoxid (MOX) Brennelementen erwiesen. Bei einer einmaligen Rezyklierung hat sich aber herausgestellt, daß das Gefährdungspotential nicht abnimmt, sondern zunächst sogar ansteigt /PHL₂ 95/. Im Sinne einer Reduktion des Gefährdungspotentiales durch Partitioning und Transmutation wären eine Vielzahl von Rezyklierungen notwendig. Bedingt durch technische Probleme bei der Brennelementherstellung sind heute aber maximal vier Rezyklierungen als möglich anzusehen. Somit bleibt der Gesamtnutzen im Sinne der Transmutation sehr fraglich /LYP₁ 96/. Sollten dennoch weitergehende Rezyklierungen angestrebt werden, müßten zusätzlich noch die Fragen der Reaktordynamik, der Radiolyse der wässrigen Extraktionsmittel in der WAA sowie der längeren Zwischenlagerung und der daraus resultierenden Veränderung der Pu Fraktion (Aufbaus von Americium-241 aus Plutonium-241) geklärt werden. Daher müssen auch die zukünftigen Möglichkeiten der bisherigen MOX-Brennelemente in Bezug auf eine bedeutende Gefährdungspotentialminimierung negativ beurteilt werden. Für eine Uranrezyklierung gelten ähnliche Grundsätze, da auch hier die notwendige Anzahl von Rezyklierungen aus vergleichbaren Gründen nicht durchgeführt werden kann.

Andere Studien schlagen den kompletten Austausch von Brennstäben vor, so daß einige Brennstäbe mit Plutonium und einem geringen Anteil von MA in einer Inertmatrix bestückt werden. Konkrete Berechnungen wurden beispielsweise bereits für Americium Brennstäbe

durchgeführt /MAL et al. 95/. Diese Brennstäbe dienen dann zur Transmutation und können an eine gewünschte Stelle des vorhandenen Neutronenspektrums plaziert werden. Um allerdings die angestrebte Transmutationsrate zu erreichen, müssen diese Brennstäbe mehr als 10-mal rezykliert werden /LYP₁ 96/. Dabei treten die schon von der MOX-Fertigung bekannten Probleme auf, so daß auch dies keine Lösung des Problems bringt.

Als prinzipielle Möglichkeit der verringerten Transuranproduktion wird der Einsatz des **Thorium-Uran**-Brennstoffkreislaufes diskutiert. Da bei der Nutzung von Uran basierten Brennstoffen die Plutoniumproduktion im wesentlichen aus parasitären Neutronenabsorptionen innerhalb des ²³⁸U erfolgt, bietet sich die Substitution des Uran-238 durch ein anderes Nuklid an. Als solches Nuklid bietet sich das Thorium-232 an, wobei das natürliche Thorium fast zu 100% aus diesem Isotop besteht, da es ähnliche neutronenphysikalische Eigenschaften aufweist wie ²³⁸U. Wie beim reinen Uranzyklus würde auch beim Thorium-Uranzyklus zunächst ²³⁵U als thermisch gut spaltbares Nuklid zugesetzt werden müssen, um die Kritikalität zu sichern. Statt des ²³⁹Pu, wie beim reinen Uranbrennstoff, wird bei der Verwendung des Thorium basierten Brennstoffes ²³³U erzeugt. Die entsprechenden (n, γ) Reaktionsketten werden in Gl. 3.2 (U – Pu) und Gl. 3.3 (Th – U) dargelegt.



Dementsprechend fallen beim Thoriumzyklus auch keine höheren Actinide wie Am und Cm an. Untersuchungen hierzu finden sich in /KLO 99/. Bei der Verwendung von Thorium mit hoch angereichertem Uran als Spaltstoff wird somit die weitere Produktion von Plutonium in Leistungsreaktoren unterbunden. Kommt an Stelle des ²³⁵U Plutonium als Spaltstofffraktion zum Einsatz, so können mittels eines **Th-MOX**-Brennstoffes Transurane durch Spaltung vernichtet werden, ohne neue zu erbrüten. Dies wäre ein realer Nettokonsum an TRU und wird mit 335 kg pro GW_{th}a angegeben /NEU₁ 99/. Somit kann die Einführung des Thoriumkreislaufes sowohl als Möglichkeit der Vermeidung des Aufbaues von Transuranen, als auch mittels des Th-MOX-Brennstoffes zur Vernichtung bestehender Plutoniummengen angesehen werden. Eine umfangreiche Studie über den Einsatz des Thorium-Brennstoffkreislaufes für den Typ des Druckwasserreaktors liegt vor und kann als sehr positiv angesehen werden /NEU₂ 99/. Auch für den Thoriumzyklus gilt hingegen die einschränkende Tatsache, daß eine höhere Anzahl von Rezyklierungen des Brennstoffes, welche zur Lösung des Toxizitätsproblems nötig wäre, nicht möglich erscheint.

3.1.2 Hochtemperaturreaktor

Der Hochtemperaturreaktor bietet den Vorteil, daß dieser mit einem hohen Anteil an Uran-Thorium Brennelementen betrieben werden kann. So werden mit dem Hochtemperaturreaktor, der ein Teil seines Spaltstoffes (Uran-233) selbst erzeugt, sehr hohe Abbrände von ca. 80 MWd/kg erreicht. Hinsichtlich des Gefährdungspotentials für die Transuranelemente ist der

Verlauf gegenüber dem DWR TRU Gefährdungspotential um den Faktor zwei verringert /PHL₁ 95/. Dies ist mit der grundsätzlich zu beobachtenden spezifisch geringeren TRU-Produktion mit steigendem Abbrand zu erklären. Somit besteht der signifikante Vorteil des Hochtemperaturreaktors im wesentlichen in seiner höheren nuklearen Sicherheit und weniger in seiner Eignung zur TRU Reduzierung.

Weitergehend kann in einem Hochtemperaturreaktor auch mit Plutonium angereicherter Brennstoff eingesetzt werden. Dabei sind die Plutonium Abbrandraten ähnlich hoch wie die eines schnellen Reaktorsystems /HUG 95/. Innerhalb einer kompletten Brennstoffstandzeit könnten bis zu 75% des Plutoniums abgebrannt werden. Für einen solch ausgelegten HTR wird eine Abbrandrate von 225kg TRU je GW_{th}a angenommen /RÜT 98/. Weitergehende Reduktionen erfordern aber zwangsläufig Rezyklierungen des Brennstoffs. Hierzu bedarf es allerdings intensiver Forschungsarbeiten, da bisher nur geringe Erfahrungen mit der Aufarbeitung von „coated particles“ vorliegen.

3.1.3 Schnelle Reaktoren

Ein schnelles Reaktorsystem bietet gegenüber einem thermischen System den großen Vorteil, daß ein effektiver Umsatz von Transuranelementen erreicht werden kann. Daher ist das Konzept schneller kritischer Transmutationsanlagen Gegenstand vieler Studien /INT 95/. In Europa wird dieser Gedanke z.B. seit vielen Jahren in Form des **CAPRA** (Combustion Améliorée du Plutonium dans les Réacteurs Avancés) Programmes verfolgt. Die Auslegung des Cores soll auch die Transmutation von Minor Actinides erlauben. Diesem Betrachtungspunkt wird in dem zusätzlichem Programm **CADRA** (Consommation d'Actinides et de Déchets dans les Réacteurs Avancés) Aufmerksamkeit gewidmet /COS 98/. Als Brennstoff wird ein Uran-Plutonium-Dioxid (UPuO₂) vorgesehen. Angestrebt wird eine Anreicherung mit 45% Pu, was einem Gesamtinventar von ca. 9 t entsprechen würde. Als CADRA Anlage wären 1 t Np und 1,5 t Am als Target im Core enthalten /SAL 98/. Die Abbrandrate solch einer Anlage wird für einen U-Pu-MOX Brennstoff mit 230 kg TRU pro GW_{th}a angegeben. Sollte es möglich sein auch bei diesem System Thorium als Brennstoffbasis einzusetzen und ein Th-Pu-MOX Brennstoff zu nutzen, so könnte die Rate auf 305 kg TRU je GW_{th}a erhöht werden /GRU 98/.

Wird die Brennstoffgestaltung betrachtet, so hat sich neben den oxidischen Brennstoffen wie im CAPRA Programm auch der Gedanke des metallischen Brennstoffes wie im IFR (Integral Fast Reactor) bzw. ALMR (Advanced Liquid Metal Reactor) etabliert. Die japanische Variante, die Transurane in einer Nitridmatrix einzubetten /MAT et al. 94/ soll hier nicht näher betrachtet werden. Aufgrund der guten Erfahrungen mit Oxidelementen in Wasserreaktoren hat sich auch für den schnellen Reaktor mit Natriumkühlung der Oxidbrennstoff durchgesetzt /ZIE 85/. Vorteilhaft ist, daß mit dem etablierten PUREX-Verfahren hinlängliche Erfahrungen zur Rezyklierung oxidischer Brennstoffe bestehen. So befinden sich Pelletproben mit einem maximalen Anteil an Plutonium von 50% im Bestrahlungstest /RIM et al. 98/. Zur Vermeidung des Aufbaus höherer Actinide aus dem Uran-238 richten sich die weiteren Bestrebungen auf eine Reduzierung dieses Stoffes z.B. durch Thorium-232 bzw. den Ersatz durch eine

Inertmatrix. Bestrahlungsversuche mit innovativen oxidischen Brennstoffen konnten mit dem Reaktor Superphenix/Frankreich durchgeführt werden /SAL et al. 93/. Gegenüber oxidischen Brennstoffen weisen metallische Brennstoffe (U, Re, Zr) eine wesentlich höhere Brutrate in einem schnellen System auf /ZIE 85/. Die Ursache für dieses Verhalten liegt in der Ausprägung eines wesentlich härteren Neutronenspektrums, da keine moderierenden Sauerstoffatome vorliegen. So bilden metallische Brennstoffe hinsichtlich einer reinen TRU Vernichtung keine Alternative zu den oxidischen Brennstoffen. Nur im Hinblick auf eine gewünschte Kombination von TRU Vernichtung und Erzeugung von Spaltstoffen (U-233) bieten sich metallische Brennstoffe an.

Diesen Weg greift die Konzeption einer Transmutationsanlage auf Basis eines Flüssigmetallreaktors auf. In den 70er Jahren wurde bereits im Rahmen eines Integral Fast Reactor (IFR) Programmes solch ein System erstellt. Zu diesem Zeitpunkt wurde auch das pyrometallurgische Aufbereitungssystem (Actinide Recycle System ARS) entwickelt, womit metallische Brennstoffe wiederaufbereitet werden können /EHR 95/. Somit sieht das Gesamtsystem den Einsatz von metallischen Brennstoffen in einem Advanced Liquid Metal Reactor (ALMR) und die pyrometallische Aufbereitung (ARS) vor. Im Rahmen von Untersuchungen konnte gezeigt werden, daß das Sicherheitsverhalten des Reaktorsystemes wesentlich günstiger zu beurteilen ist, als ein vergleichbarer Reaktor mit oxidischen Brennstoffen /WAD 88/. Studien in Bezug zur Transmutation führten zu dem Ergebnis, daß in einem modifizierten IFR Kern die Transuranmengen gegenüber einer direkten Endlagerung auf 0,32% reduziert werden könnten /LYP₂ 96/.

Da der Erfahrungshintergrund für schnelle Reaktorsysteme nur begrenzt ist, müssen gegenüber thermischen Reaktorsystemen noch umfangreichere Forschungs- und Entwicklungsarbeiten geleistet werden. So bilden insbesondere die Reaktordynamik und das Sicherheitsverhalten schneller Systeme je nach Auslegung große Problemstellungen (steigen des Dopplerkoeffizienten; positiver Dampfblasenkoeffizient) /JAN 95/. Verschärft werden die Probleme durch die Tatsache, daß, wie z.B. im CAPRA/CADRA Projekt, thermalisierte Inselbereiche geschaffen werden müßten, um auch langlebige Spaltprodukte wie Technetium-99 oder Jod-129 in größeren Mengen umzuwandeln, da diese Nuklide sehr geringe Einfangsquerschnitte im schnellen Bereich aufweisen.

3.2 Unterkritische Transmutationsanlagen

Eine Alternative zu kritischen Systemen bilden die subkritischen Transmutationsanlagen, bei denen die Aufrechterhaltung des Neutronenflusses durch externe Quellneutronen garantiert wird. Diese Anlagen sind technisch sehr aufwendig, und es existieren noch keine praktischen Erfahrungen, doch weisen subkritische Anlagen verschiedene sicherheitstechnische Vorteile (insbesondere hinsichtlich von Kritikalitätsstörfällen) auf, so daß es mehrere internationale Konzepte für solche Systeme gibt. Die Grundidee einer unterkritischen Transmutationsanlage bzw. eines unterkritischen Reaktors wurde bereits in den Anfangsjahren der Reaktorentwicklung aufgeworfen, doch wurden erst in den letzten Jahren so deutliche Fortschritte auf dem

Gebiet der Teilchenbeschleuniger erreicht, daß die Idee in den Bereich einer technischen Realisierung rückte. Im folgenden werden zunächst Grundlagen und Aufbau solcher Anlagen skizziert, bevor explizit auf die bekanntesten Systemstudien eingegangen wird. Dabei stehen insbesondere die ATW Anlage von Bowman et al. aus dem LANL und das Konzept eines schnellen Systems um Rubbia et al. aus Cern im Mittelpunkt des Interesses, da für diese Konzepte ausgearbeitete Systemstudien vorliegen. Zwar existieren insbesondere aus dem LANL aktuellere Entwürfe, doch handelt es sich hierbei meist um Skizzen, die hinsichtlich einer Anlagencharakterisierung nicht sehr aussagekräftig sind.

3.2.1 Grundlagen und Aufbau

Die wesentlichen Bauteile einer subkritischen Transmutationsanlage sind ein leistungsstarker Beschleuniger für Protonen, ein Target aus schweren Atomkernen, welches in der Lage ist, eine hohe Anzahl von Spallationsneutronen zu erzeugen, und ein umgebendes Blanket, in dem die zu transmutierenden Stoffe eingebettet sind. **Abb. 3.1** verdeutlicht die Anordnung. Der Linearbeschleuniger erzeugt einen kontinuierlichen Protonenstrahl mit einer Energie von ca. 1,6 GeV bei einer Stromstärke von 25 mA. Dieser Protonenstrahl muß gegebenenfalls um 90° umgelenkt werden, um ihn dem Target zuführen zu können. Für den Übergang des Protonenstrahls in das Target wird ein Protonenfenster benötigt, welches eine Vielzahl von Anforderungen erfüllen muß. Dieses Anforderungsprofil wurde exemplarisch untersucht und zugleich eine Lösung für die erforderlichen Spezifikationen skizziert /JAN 95/.

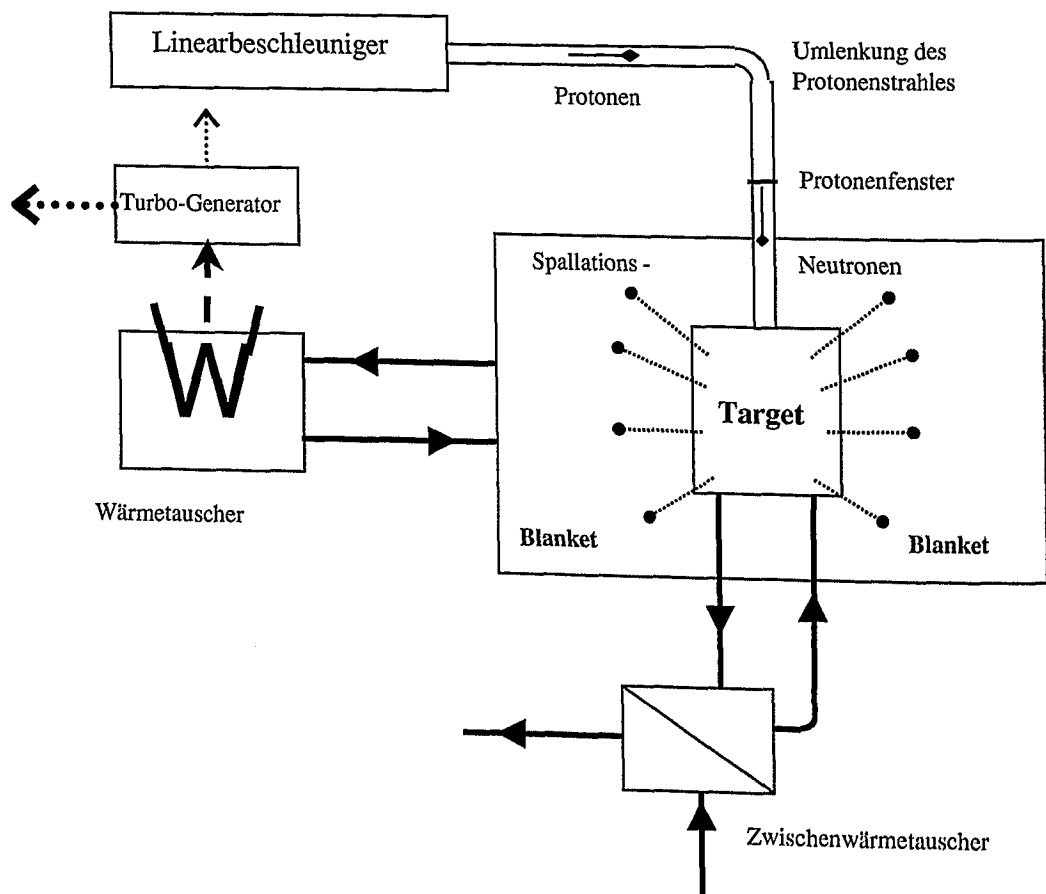


Abb. 3.1: Beschleunigergetriebene Transmutationsanlage mit ihren wesentlichen Elementen.

Innerhalb des Targetmaterials, das aus einem Material mit hoher Massenzahl bestehen sollte, wie zum Beispiel Wolfram, Blei oder Uran, kommt es zu einem Spallationsprozeß. **Abb. 3.2** illustriert den Prozeß der Spallation. Hochenergetische Primärteilchen (Protonen, Deuteronen etc. von einigen 100 MeV) dringen in den Kern ein und lösen eine intranukleare Kaskade aus. Der hochangeregte Kern gibt dabei seine Energie durch Abdampfen von Nukleonen ab. Bei den Nukleonen handelt es sich um Neutronen, sofern es sich um schwerere Kerne handelt. Abhängig von der Energie des Primärteilchens z.B. eines Protons und dem Targetmaterial werden im Mittel zwischen 30 und 50 Neutronen abgedampft /JAN₂ 95/. Weitere Spallationsneutronen können als Kaskade durch hochangeregte, abgedampfte Neutronen erzeugt werden. Bei sehr hohen Massenzahlen des angeregten Kerns steigt die Wahrscheinlichkeit einer Spaltung. Diese zieht wiederum ein Abdampfen von Neutronen aus den Spaltprodukten nach sich.

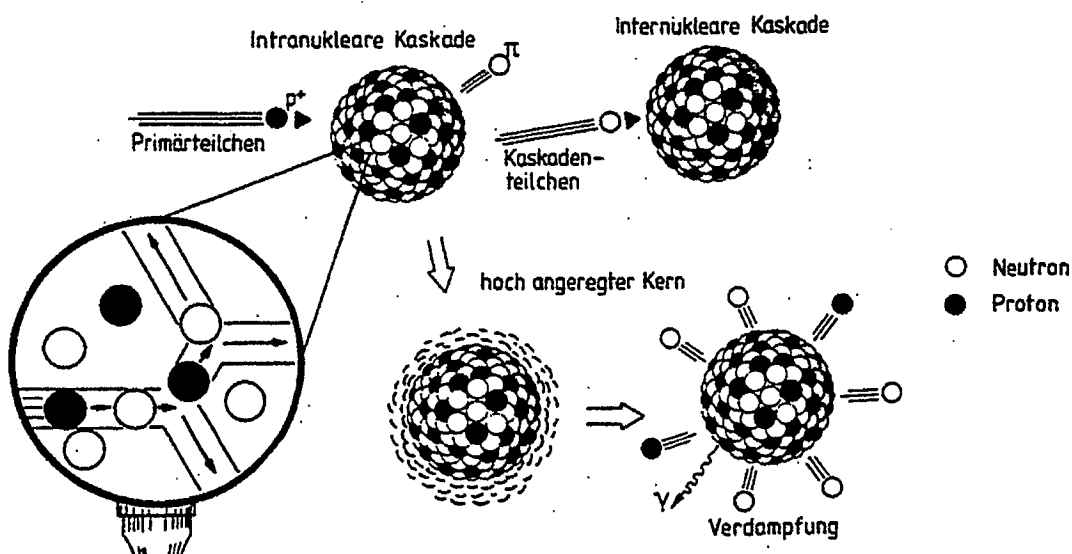


Abb. 3.2: Spallationsprozeß in skizzierter Darstellung /BAU et al. 81/.

Eine Sonderstellung nehmen Konzepte ein bei denen der Protonenstrahl direkt das Blanket trifft. Dies ist zum Beispiel beim JAERI-MS (Molten Salt) oder PHOENIX Konzept der Fall. Eine bestimmte Anzahl der erzeugten Neutronen fließen über die Targetsystemgrenze in das Blanket hinein. Diese Anzahl sollte naturgemäß möglichst hoch sein, um einen ausreichenden Neutronenfluß zur Transmutation bereitzustellen. Neben der Optimierung der Neutronenausbeute stellt auch die Wärmeabfuhr aus dem Target ein großes Problemfeld dar. So wird das Targetmaterial eine Wärmemenge von ca. 50% der induzierten Energie aufnehmen und weiterleiten müssen. Eine Kühlung des Targets ist bei Beschleunigeranlagen hoher Leistung somit unausweichlich. Innerhalb des Blankets werden die Transurane und/oder langlebigen Spaltprodukte durch Spalt- oder Einfangsreaktionen transmutiert. Die dabei auftretende Wärme wird ebenfalls über einen Wärmetauscher abgeführt. Somit kann mittels eines Generators Strom produziert werden, der zum Betrieb des Linearbeschleuniger dient dessen Überschuß abgegeben wird. Voraussetzung für diesen Energiegewinn ist aber ein Multiplikationsfaktor k_{eff} von mindestens 0,75 innerhalb der Blanketstruktur /LYP₃ 96/. Da gegenwärtig eine Reihe von unterkritischen Systemen untersucht werden, folgt eine Skizzierung der charakteristischen Vertreter der einzelnen Systeme.

3.2.2 Bisherige Systemstudien

Bei den subkritischen Systemen existieren wie bei den kritischen Systemen eine Vielzahl von Systemvariablen, die unterschiedlich ausgelegt werden können. Einzige Gemeinsamkeit bleibt der Protonenbeschleuniger, wobei auch hier zwischen Linear- und Zirkularbeschleuniger unterschieden werden kann. Wichtige Merkmale von unterkritischen Transmutationsanlagen, wie auch von Reaktoren, sind das verwendete Neutronenspektrum und die Brennstoffform. Daher bietet sich eine Untergliederung der Systeme nach diesen Charakteristika an. **Abb. 3.3** ordnet jeder einzelnen Gruppe eine typische Systemstudie zu, wobei der Gedanke der Toxizitätsreduzierung bzw. nuklearen Abfallbeseitigung als Kriterium im Vordergrund steht. Dementsprechend finden hier bekannte unterkritische Konzepte zur primären Stromerzeugung und/oder dem Erbrüten von Spaltstoff (z.B. das ADEP Projekt) keine Berücksichtigung.

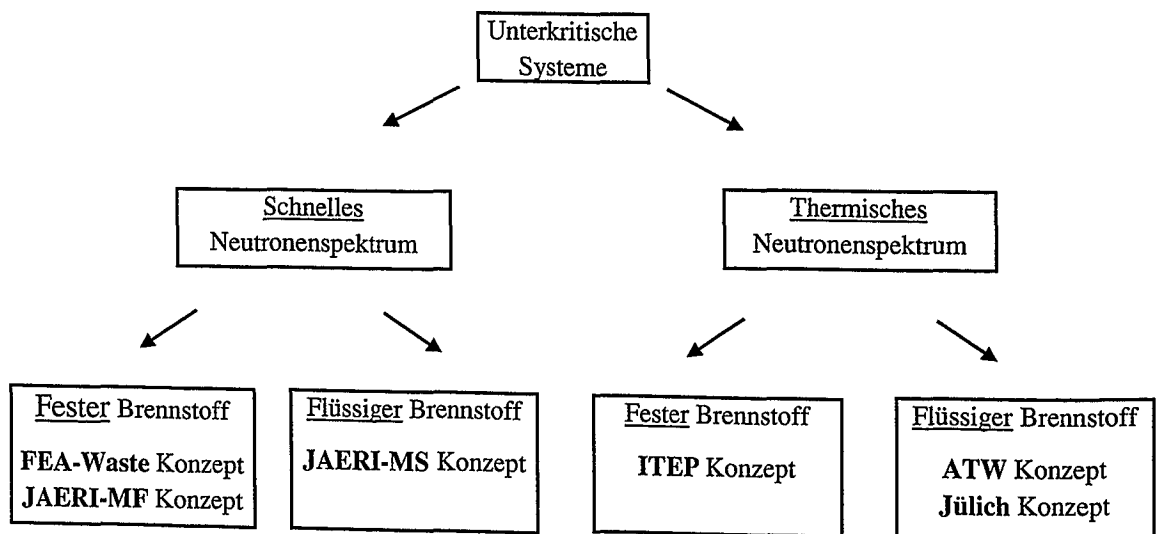


Abb. 3.3: Gliederung unterkritischer Systeme nach Charakteristika.

Als Beispiele für Systeme mit einem schnellen Neutronenspektrum und festem Brennstoff können das Cerner FEA-Waste (Fast Energy Amplifier für „Waste Incineration“) Konzept und die JAERI MF (Metall Fuel) Studien benannt werden. Insbesondere die Cerner Studie erlangte eine hohe Aufmerksamkeit und wird dementsprechend genauer dargestellt. Für das Konzept mit flüssigen Brennstoffen im schnellen Neutronenspektrum wird die JAERI MS (Molten Salt) Studie herangezogen. Als Zwitter zwischen schnellem und thermischem Spektrum existiert die ITEP Idee eines unterkritischen Reaktors, der sowohl eine ausgeprägte schnelle Zone, als auch eine thermische Zone mit festem Brennstoff aufweist. Als bekanntester Vertreter für thermische Systeme mit flüssigem Brennstoff dient die ATW (Accelerator Driven Transmutation of Nuclear Waste) Studie des Los Alamos National Laboratory (LANL). Sie steht im direkten Vergleich zu dem in dieser Arbeit weiterentwickelten Konzept des Jülicher Transmutationssystems.

Fast Energy Amplifier (FEA)

Eine Arbeitsgruppe unter Rubbia entwickelte in Cern mehrere unterkritische Systeme auf Thorium-Basis, die unter dem Begriff des „Energieverstärkers“ (Energy Amplifier, EA) weitreichende Beachtung erlangten. Der bedeutendste Vertreter dieser Konzepte ist das schnelle bleigekühlte System (F-EA). Hierzu wurden Mitte der 90er Jahre mehrere Studien veröffentlicht, die auch heute noch Gegenstand der Betrachtung sind /RUB et al. 93; RUB et al. 94/. 1995 wurde das Konzept in /RUB₂ et al. 95; /RUB₃ et al. 95/ konkretisiert. Zentraler Kern des Konzeptes ist der Energy Amplifier, wie er in Abb. 3.4 dargestellt wird.

Ein wesentlicher Gesichtspunkt dieser Anlage sollte seine Multifunktionalität sein, so daß die Anlage sowohl zur Stromerzeugung im Sinne eines Leistungsreaktors, als auch zur Vernichtung von hochaktiven TRU eingesetzt werden kann. Die unterschiedliche Zielsetzung sollte nur durch einen geänderten Brennstoff realisiert werden. Im Bezug auf die Plutoniumverbrennung soll in dieser Anlage ein Thorium-Plutonium Brennstoff verbrannt (im Gegensatz zu einem Th-U Brennstoff als Leistungs-

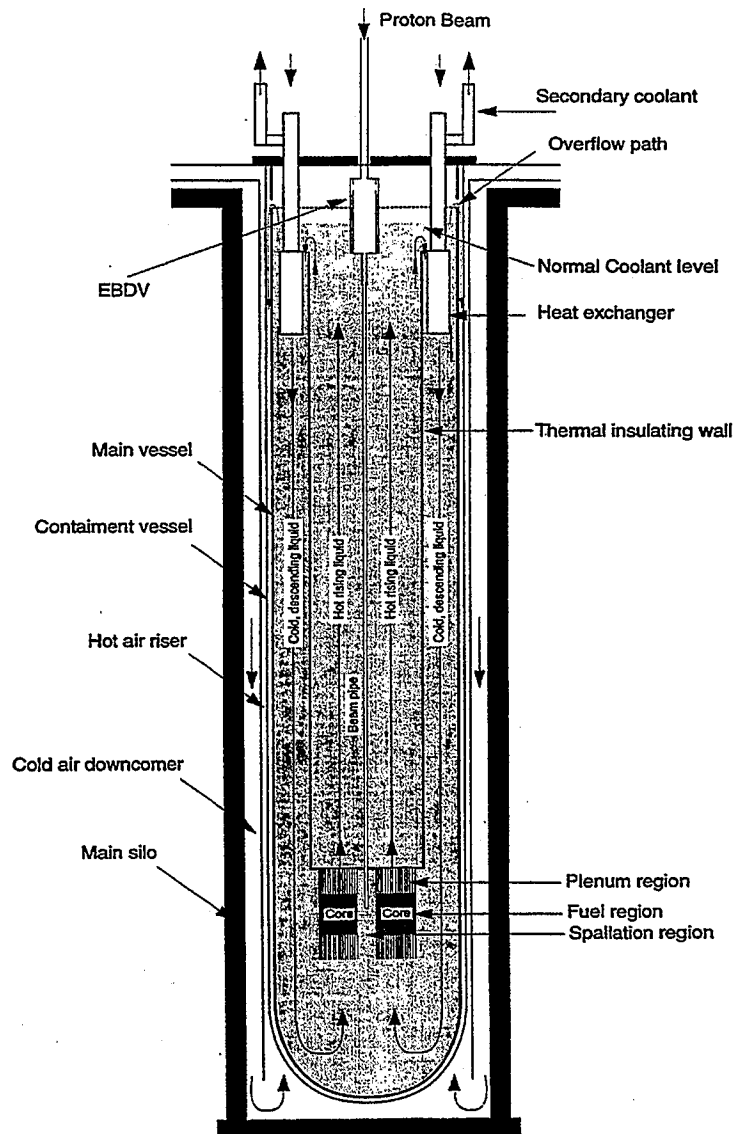


Abb. 3.4: Allgemeine Darstellung des Energieverstärkers (EA) /RUB₂ et al. 95/.

reaktor) und gleichzeitig Uran-233 erbrütet werden. Dies wird durch ein zwei Zonen Core unterstützt, wobei in der ersten Zone der Th-Pu Brennstoff mit eine Masse von ca. 28,41 t und in der zweiten Zone ein reines Brüter Core mit 5,6 t Th zum Einsatz kommt. Dabei liegen beide Stoffe als Oxide vor. Mit einer Leistungsdichte im inneren Bereich von 523 MW/m^3 , was zu einer Brennstofftemperatur von 908°C führt, liefert die Anlage eine thermische Leistung von $1500 \text{ MW}_{\text{th}}$ und eine elektrische Leistung von $675 \text{ MW}_{\text{el}}$. Dabei wird während des Betriebs von einem Multiplikationsfaktor von $k_{\text{eff}} = 0,98$ ausgegangen /RUB₄ et al. 95/. Ge- kühlt wird das System mit flüssigem Blei mittels Naturumlauf. Das Blei wärmt sich dabei von 400°C auf 600°C auf, wobei es mit einer mittleren Geschwindigkeit von $1,5 \text{ m/s}$ durch das Core fließen soll. Ein Cyclotronbeschleuniger liefert 1 GeV Protonen bei einer mittleren

Stromstärke von $I = 12,5 \text{ mA}$. Dieser Protonenstrahl trifft durch ein Wolfram Protonenfenster in das Target, welches als flüssiges Bleitarget ausgelegt und identisch mit dem Kühlmittel ist. Ein Betriebsstoffzyklus erstreckt sich über 5 Jahre, womit innerhalb dieser Zeit bei einem Abbrand von 120 GWd pro t SM innerhalb eines Jahres 420 kg Plutonium umgesetzt werden /RUB₃ et al. 95/. Eingegliedert wird der Energieverstärker in einen Gesamtkomplex der in Abb. 3.5 schematisch charakterisiert wird. Anhang C 1 beschreibt den Gesamtmassenstrom für das integrale Konzept des FEA zur Plutoniumvernichtung.

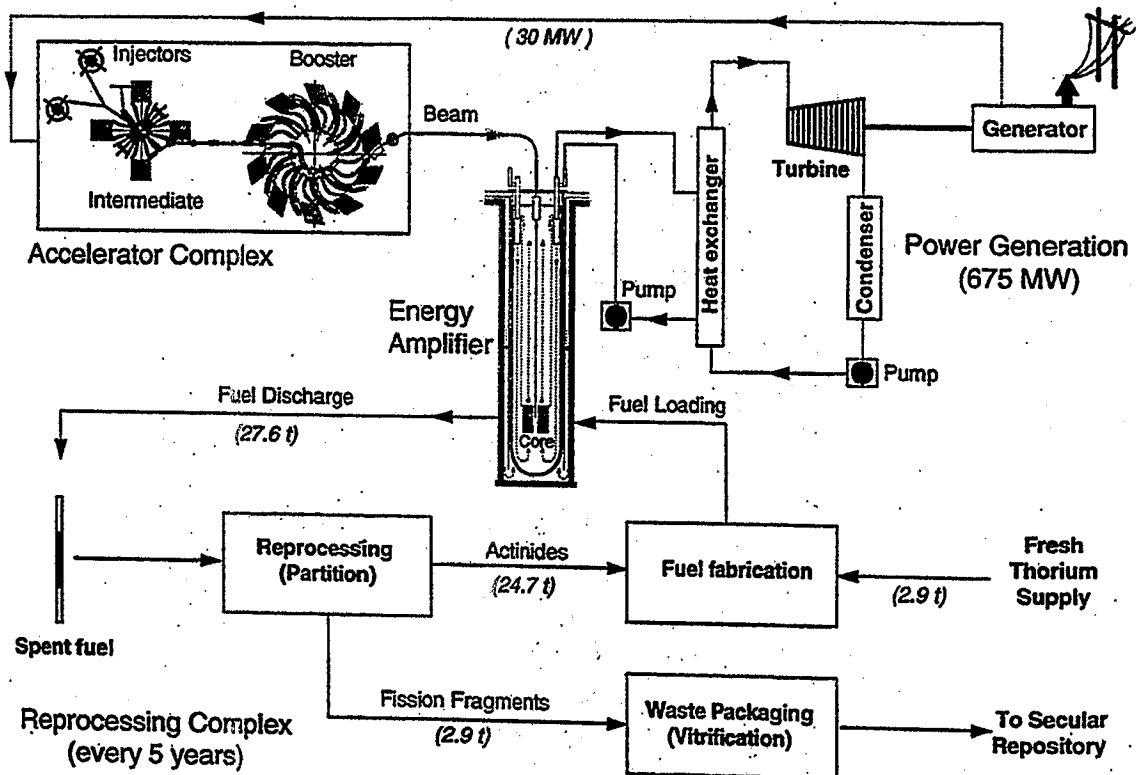


Abb. 3.5: FEA Anlagenkomplex in der Plutoniumvernichtung /RUB₂ et al. 95/.

Diese erste Auslegung hinsichtlich einer Plutoniumvernichtung mittels des FEA von 1995 weist jedoch eine Vielzahl von offenen Fragen bzw. Unklarheiten (z.B. Sicherheitsrelevanz des hohen Pu Inventars von mindestens 5600 kg ; die Bedeutung der Spaltprodukte für den Multiplikationsfaktor; reicht der U-233 Aufbau, um den k-Faktor zu stabilisieren; bleibt die Pu Umsatzrate trotz hohem U-233 Anteiles konstant bei 420 kg/a) auf.

Eine spezifischere Darstellung des Energy Amplifiers als ein Mittel zur TRU Verbrennung (FEA-Waste Incinerator) wurde 1997 veröffentlicht und stellt den aktuellen Stand des FEA Konzeptes dar /RUB 97/. Hierbei wurde der FEA gegenüber dem 95ger Konzept in wesentlichen Punkten geändert.

- Der Thorium basierte Brennstoff besteht nicht mehr aus Oxidverbindungen sondern liegt in metallischer Form vor. Dementsprechend wird ein Pyro-Reprocessing für die Wiederaufarbeitung angestrebt.

- Das Core wurde verkleinert, eine reine Brüterzone fiel weg und die Brennstoffmasse wurde auf ca. 10 t im Mittel verringert.
- Die Brennstabgeometrie wurde verändert, das hohe Plenum wurde verringert.
- Die Zykluszeit wird auf 2 Jahre verringert.

Diese Änderungen zeigen deutliche Auswirkungen auf alle anderen Systemparameter wie z.B. der Leistungsdichte im Core, die sich von 523 MW/m^3 auf 176 MW/m^3 absenkt. Als Multiplikationsfaktor während des Betriebes wird ein nominaler Wert von 0,97 angegeben. Wie

Tab. 3.1: Relative Zusammensetzung des verwendeten TRU Abfalls.

Nuklid	Relative Konzentration [%]
Np-237	5,36
Pu-238	1,641
Pu-239	51,499
Pu-240	21,358
Pu-241	6,614
Pu-242	4,968
Am-241	7,382
Am-243	0,98244
Cm-244	0,169

auch in den vorhergehenden Studien wird auch hier an das Einbringen der langlebigen Spaltprodukte in spezielle Corebereiche gedacht. Ausgangspunkt der TRU Betrachtungen sind die abgebrannten Brennelemente eines spanischen LWR nach 15 Jahren Abklingzeit. Die relative Zusammensetzung der wesentlichen Nuklide kann anhand der **Tab. 3.1** angegeben werden.

Im Mittel soll das Core aus 70% ^{232}Th und 30% TRU bestehen, welches nach 2 Jahren komplett entladen wird. **Abb. 3.6** zeigt die prozentuale Zusammensetzung des Brennstoffes jeweils zu Beginn eines Zyklus nach Elementen gruppiert. Deutlich wird, daß weder

die relative Zusammensetzung noch die absolute Gesamtmasse des Brennstoffes konstant

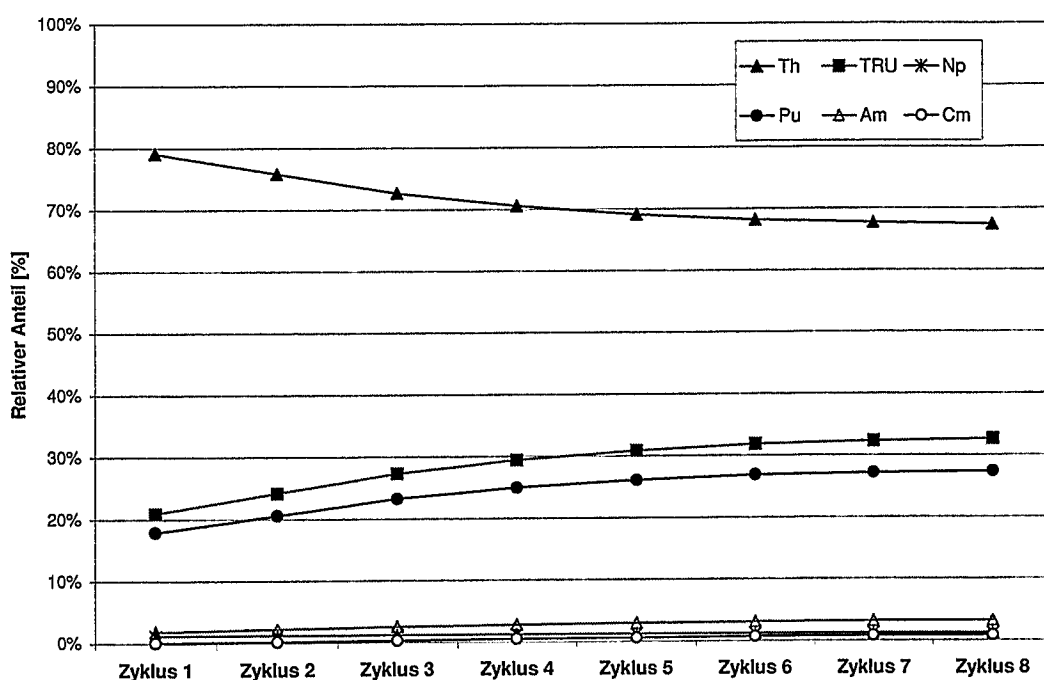


Abb. 3.6: Relative Zusammensetzung des FEA Brennstoffs nach Rubbia zum Zyklusbeginn. 100% entsprechen im Mittel 10 t.

bleibt. Diese verringert sich von 11,9 t auf 9,1 t. Die Abbrandrate wird mit 402 kg TRU pro Jahr angegeben. Nach dem Entladen erfolgt eine Wiederaufarbeitung der Stoffe und ein Verschnitt mit frischen TRU, um dann in einem neuen Brennstoffzyklus eingesetzt zu werden. Die Gesamtmasse an Pu beträgt innerhalb der Zyklen über 2000 kg. Die Gesamtlebensdauer des FEA wird mit 60 Jahren angenommen.

JAERI Molten Salt (MS) Konzept

Ein weiteres Konzept mit schnellem Neutronenspektrum aber auf Basis flüssigen Brennstoffes in Form einer Salzschnmelze (Molten Salt) als Transuranträger ist der JAERI-MS Entwurf. Dabei trifft der Protonenstrahl mit einer Energie von 1,5 GeV und 25 mA nach dem Protonenfenster nicht auf ein separates Target, sondern direkt auf die transuranhaltige Chlorsalzschnmelze, die sich dabei von 550 °C auf 650 °C aufheizt. Die Schnmelze wird mittels Pumpen durch das System zu den im Core befindlichen Wärmetauschern gepumpt, wo die Wärme abgeführt wird. Das Gesamtinventar an Transuranen beträgt für die spezifizierte Schnmelze ($\text{NaCl-MACl}_3\text{-PuCl}_3$) 5400 kg im Kreislauf. Dies führt zu einer Leistungserzeugung von 800 MW_{th}. Abb. 3.7 verdeutlicht die Grundzüge des Konzeptes.

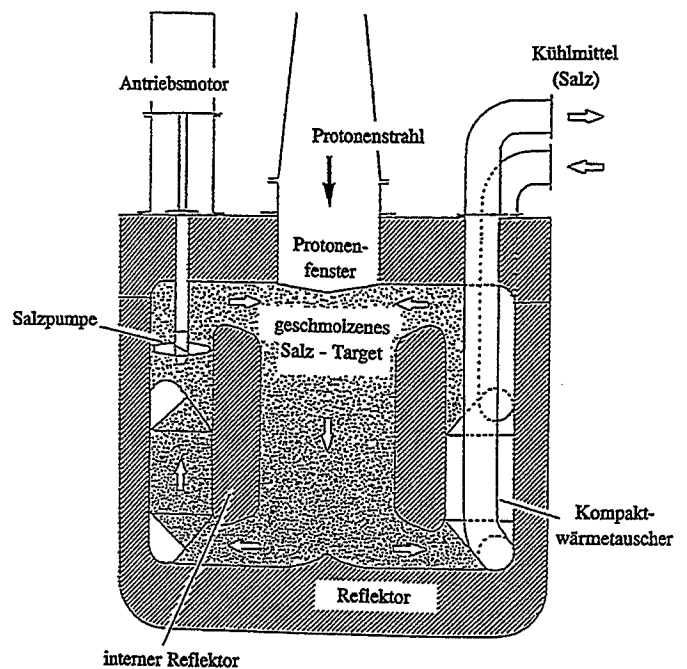


Abb. 3.7: JAERI-MS Konzept /KAT et al. 92/.

Die Salzschnmelze fungiert als Trägermaterial und wird aus neutronendynamischen Gründen aus Chlorsalzen bestehen. Dies garantiert ein möglichst hartes Neutronenspektrum. Als grundlegende Zusammensetzung wird sowohl eine $\text{NaCl-MACl}_3\text{-PuCl}_3$ als auch eine $\text{PbCl}_2\text{-MACl}_3\text{-PuCl}_3$ Lösung vorgesehen. So steht eine Transmutation von Minor Actinides (MA) also Neptunium, Americium und Curium im Vordergrund. Plutonium wird aus neutronenökonomischen Gesichtspunkten heraus zugegeben und dient im wesentlichen der Stabilisierung des Multiplikationsfaktors. Bei der

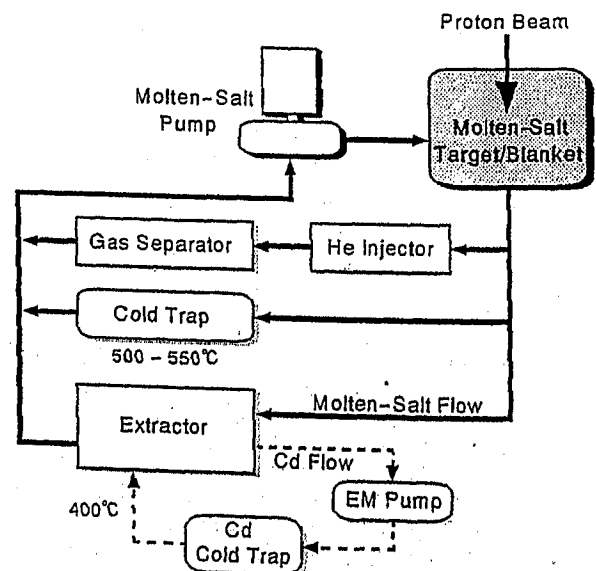


Abb. 3.8: Extraktionssystem des JAERI-MS Konzeptes /TAK 97/.

NaCl-MaCl₃-PuCl₃ Schmelze kann dieser mit $k_{\text{eff}} = 0,92$ veranschlagt werden /KAT et al. 92/. Der Neutronenfluß erreicht einen maximalen Wert von $\Phi = 1 \cdot 10^{15} \text{ n}/(\text{cm}^2 \cdot \text{s})$. Die Umsatzrate für die betrachtete Schmelze wird mit 250 kg Transuranen pro Jahr angegeben. Die maximale Leistungsdichte in der Target/Blanket-Region wird mit $1660 \text{ MW}/\text{m}^3$, die durchschnittliche mit $310 \text{ MW}/\text{m}^3$ abgeschätzt. Diese Systemparameter können nur durch eine kontinuierliche Reinigung des Salzes sichergestellt werden, das somit ein zentrales Element des Konzeptes darstellt. In Abb. 3.8 wird die prinzipielle Vorgehensweise der kontinuierlichen Separation dargestellt. So durchfließt die Salzschnmelze verschiedene Baugruppen außerhalb des Cores, um die gewünschten Spaltprodukte zu extrahieren /TAK 97/. Als Problemstellung wird der Umgang mit der Salzschnmelzentechnologie (z.B. Korrosion) genannt, da hierfür nur geringe Erfahrungswerte vorliegen.

ITEP Konzept

Als unterkritisches System, welches sowohl ein schnelles als auch ein thermisches Neutronspektrum mit festem Brennstoff aufweist, wurde vom „Institut für Theoretische und Experimentelle Physik“ (ITEP) in Moskau ein zwei Zonen Konzept entworfen. Abb. 3.9 verdeutlicht diesen Entwurf. Der Bereich des schnellen Spektrums befindet sich zentral im Kern in einem separaten Behälter. Dort endet der Protonenstrahl und erzeugt in einer flüssigen Blei

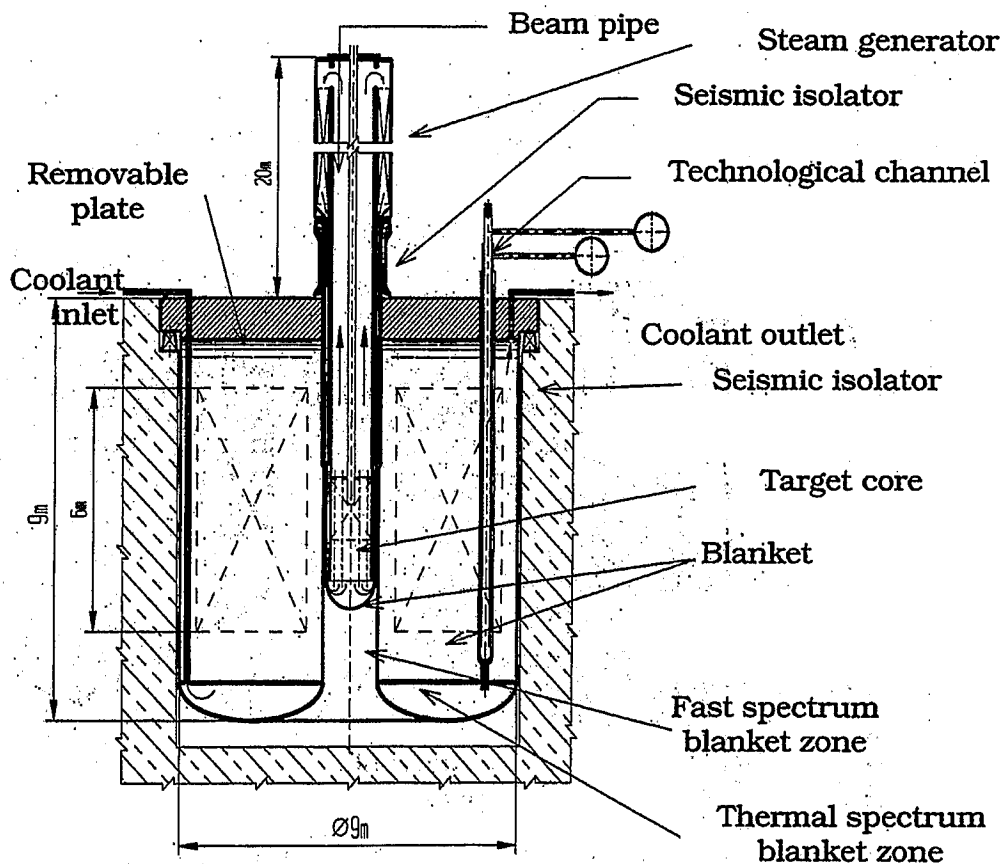


Abb. 3.9: ITEP Entwurf eines Systems mit schneller und thermischer Zone /SHV₁ et al. 97/.

Wismut Lösung die Spallationsneutronen. Umschlossen ist dieser Bereich durch eine Brennstoffanordnung von 5958 Brennstäben mit einem Thorium Plutonium Oxidgemisch /SHV₁ et al. 97/. Innerhalb dieses inneren Kessels wird eine thermische Leistung von 300 MW_{th} erzeugt, welche durch Naturkonvektion der Blei Wismut Legierung an die Wärmetauscher abgegeben wird.

Die thermische Zone mit dem Hauptanteil der oxidischen Th-Pu Brennelemente umschließt in einem doppelwandigem Behälter die zentrale Zone. Im Unterschied zum schnellen Bereich erfolgt innerhalb dieser Anordnung die Moderation und Kühlung mit Schwerwasser (D₂O). Dort wird eine thermische Leistung von 2000 MW_{th} erzeugt, was zur Folge hat, daß ein D₂O-Kühlwassermassenstrom von 13,89 t bei einem Druck von 110 MPa umgewälzt werden muß. Das Gesamtsystem soll bei einem Multiplikationsfaktor von 0,99 betrieben werden und weist ein Gesamtinventar von 130 t Schwermetall auf, wobei 7,8 t waffengrädiges Plutonium sind und der restliche Anteil aus Thorium besteht /SHV₂ et al. 97/. Da es sich bei diesem Entwurf primär um ein System zur Vernichtung des Waffenplutoniums handelt, soll hier nicht weiter darauf eingegangen werden. Weitere Spezifikationen werden zum Teil im Anhang C 2 aufgeführt oder können in dem IAEA Status Bericht von 1997 nachgeschlagen werden.

ATW

Bekanntester Vertreter eines Systems mit thermischen Neutronen und flüssigem Brennstoff ist das Accelerator Transmutation of Waste (ATW) Konzept des Los Alamos National Laboratory (LANL). Dieses Konzept wurde zu Beginn der 90er Jahre vorgestellt. Es stellte eine von drei Varianten des Accelerator-Driven Transmutation Technologie (ADTT) Projektes dar und hatte die Transmutation bzw. Umsetzung des hochradioaktiven Abfalles zum Inhalt. Die Variante des ADEP (Accelerator-Driven Energy Production) Projektes, welche primär der Energieerzeugung als neuer Leistungsreaktor dienen sollte, sowie das ABC (Accelerator-Based Conversion) Projekt, das die Vernichtung des Waffenplutoniums zur Zielsetzung hat,

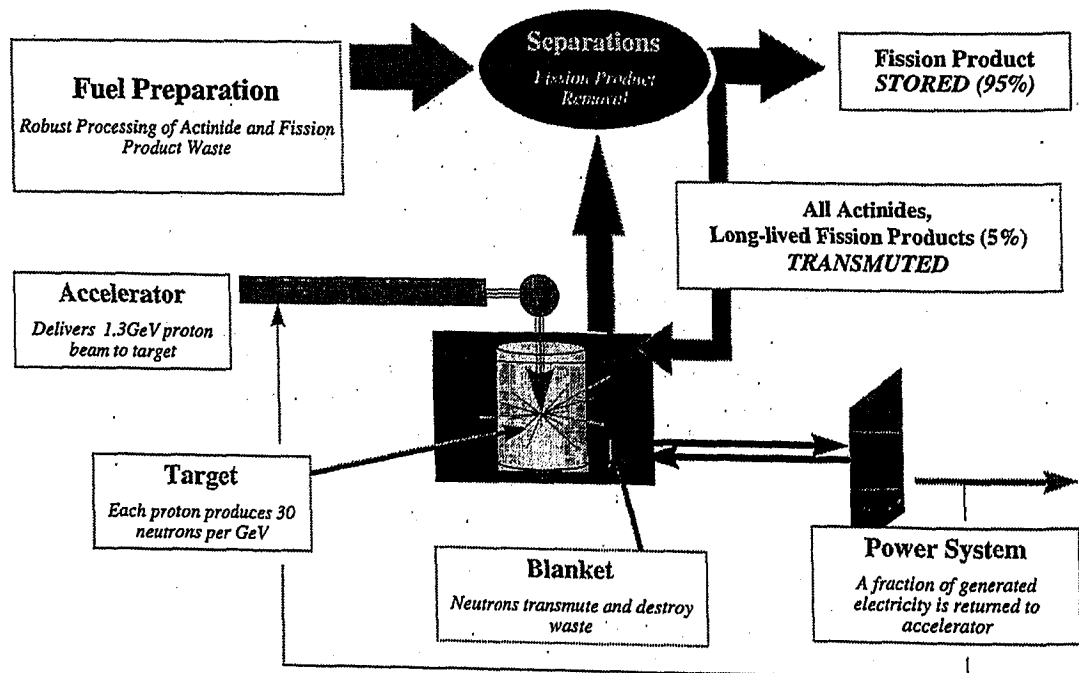


Abb. 3.10: Grundaufbau der ATW Komponenten /VEN₁ 97/.

sollen innerhalb dieser Betrachtung außen vor bleiben. Gleichwohl gibt es für alle drei Varianten des ADTT Systems gleiche Einzelkomponenten wie z.B. den Beschleuniger oder das Target /BOW 97/. **Abb. 3.10** verdeutlicht das Zusammenwirken der einzelnen Systemkomponenten des ATW Konzeptes /VEN₁ 97/. Zentrale Elemente sind der Beschleuniger, ein flüssiges Metall Target, welches die Spallationsneutronen bereitstellt und das Blanket. Bei dem Blanket handelt es sich um ein graphitmoderiertes System, welches mit Brennstoffrohren durchzogen ist. Innerhalb dieser Rohre wird die flüssige Brennstoffmasse hindurch gepumpt. Basis ist ein geschmolzenes Salz, LiF-BeF₂ Eutektikum, welches als Spaltstoffträger fungiert und ca. 0,06% (TRU)F₄ Fluorid enthält. Das geschmolzene Salz bzw. der Brennstoff weist innerhalb des Blanket eine Temperatur von 600°C bis 700°C auf und zeichnet sich dabei besonders hinsichtlich seiner Kompatibilität mit Graphit aus.

Eine entscheidende Komponente ist die kontinuierliche Abtrennung von Spaltprodukten während des Betriebes. Ein Ansatzpunkt hierzu war die Separation mittels Zentrifugen. Dadurch sollte es möglich sein, den Multiplikationswert auf 0,95 zu halten /VEN₂ 97/. In einer Grundversion des ATW Konzeptes sollte die thermische Leistung 500 MW_{th} und der Umsatz an TRU 180 kg pro Jahr betragen /BOW 91/. Dieses Grundkonzept dient als Ausgangspunkt für spätere Betrachtungen. Zwar kamen sehr schnell größere Konzepte auf, die eine thermische Leistung von 1500 MW_{th}, **Abb. 3.11** zeigt solch einen Entwurf, und später sogar von 3000 MW_{th} vorsahen, doch wurden diese Ausführungen nicht detailliert und letztlich wurde das prinzipielle Konzept eines thermischen ATW auf Salzschnmelzenbasis nicht weiter verfolgt /SCH 98/. In Erwartung geringerer technischer Probleme und einer höheren TRU Umsatzrate werden seit Ende der 90er Jahre schnelle Systeme mit festem Brennstoff und flüssigem Blei als Kühlmittel angedacht und skizziert /BRO et al. 98/. Dabei handelt es sich jedoch um Grundideen die nicht detailliert ausgearbeitet wurden. Dementsprechend finden sie in diesem Zusammenhang noch keine Resonanz.

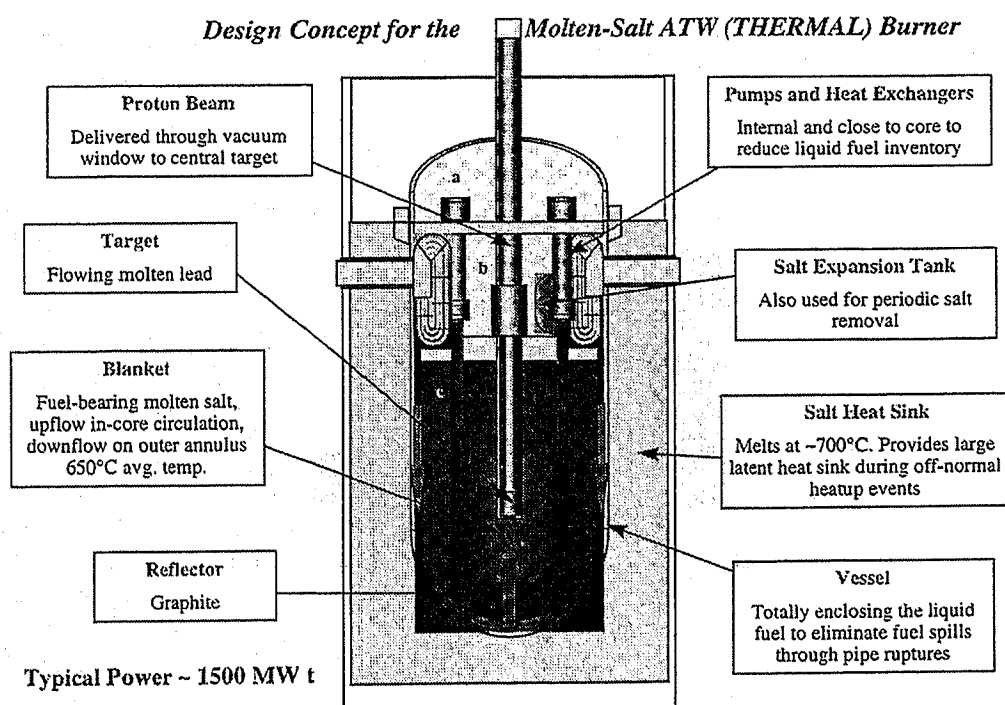


Abb. 3.11: Konzept einer thermischen 1500 MW_{th} ATW Anlage /VEN₃ 97/.

Das Jülicher Konzept

Ein alternatives Konzept für eine subkritische Transmutationsanlage mit einem thermischen Neutronenspektrum und flüssigem Brennstoff ist die in Jülich entwickelte Studie (im weiteren Verlauf **Jülich Studie** genannt). Diese Studie basiert auf der Grundidee flüssiges Blei als Actinidenträger und somit als Brennstoff aber auch als Kühlmittel einzusetzen und stellt eine Anlage vor, die sowohl für die Transmutation langlebiger Radionuklide als auch für die Energieproduktion mittels eines Thoriumzyklus geeignet ist /LIZ₁ 97/. Anhand der Abbildung **Abb. 3.12** werden die Grundzüge dieser Konzeption erläutert. Der Protonenbeschleuniger

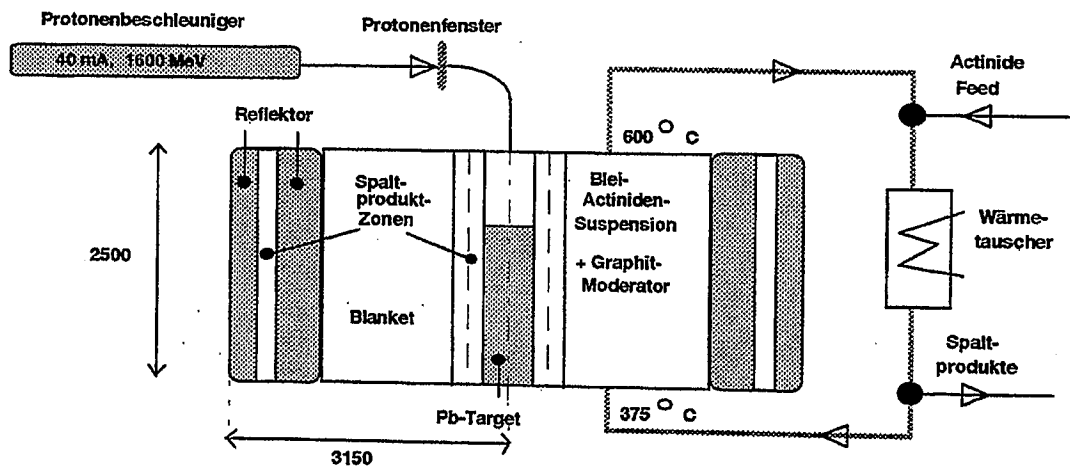


Abb. 3.12: Jülicher Konzept einer subkritischen Transmutationsanlage /LIZ₁ 97/.

liefert Protonen mit einer Energie von 1,6 GeV und einer Stromstärke von bis zu 40 mA. Der Protonenstrahl trifft auf ein Bleitarget und löst dort die gewünschten Spallationsprozesse aus. Die Neutronen treten über in das Blanket und die in das Target induzierte Wärme wird mittels Wärmeleitung ebenfalls in das Blanket geleitet. Das Blanket besteht aus einem konzentrisch um das Target angeordneten Graphitmoderator. Es unterteilt sich dabei in eine „Spaltprodukt-Region“ (z.B. für Tc-99) sowie einer „Actiniden-Region“ und thermalisiert das Neutronen-

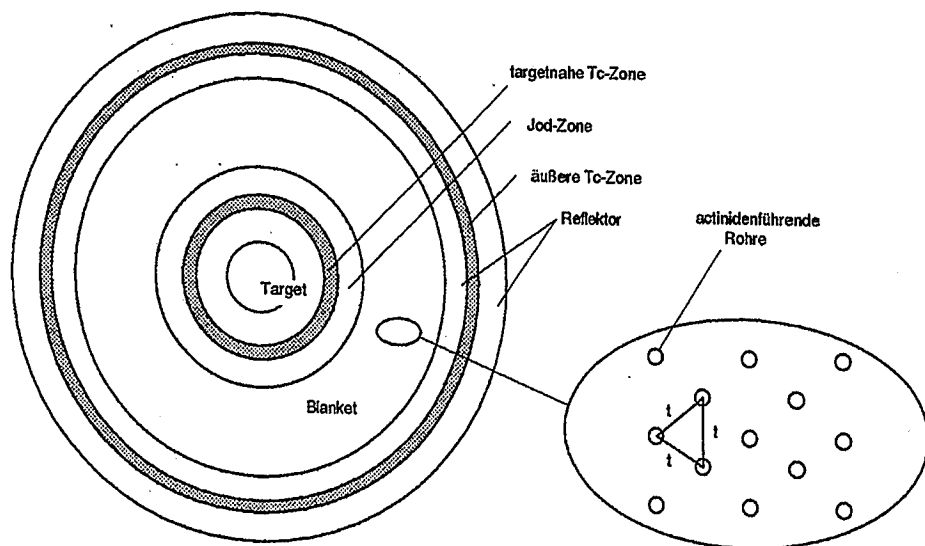


Abb. 3.13: Querschnitt durch eine Target/Blanket -Einheit.

spektrum. Hierbei weist die Actiniden-Region vier unterschiedliche Spektralzonen auf. Innerhalb des Blankets sind die Brennstoffhüllrohre aus Zirkaloy in Dreiecksform senkrecht im Graphit angeordnet. Abbildungen **Abb. 3.13** und **Abb. 3.14** veranschaulichen diese Anordnung bzw. Konstruktion. Innerhalb dieser Rohre wird eine flüssige, mit Transuranen beladene, Bleischmelze geführt, die sowohl den Transuranen als Trägermaterial als auch dem Gesamtsystem als Kühlmittel dient. Daher sind Kühlmittelaustrittstemperaturen von 600°C möglich, die einen Wirkungsgrad der Anlage η_{th} von ca. 40% gewährleisten /LIZ et al. 94/. Unter der Berücksichtigung des Eigenverbrauches des Beschleunigers beträgt der zu erwartende Wirkungsgrad η_{el} ca. 30%. Die Wärmeabfuhr erfolgt dabei in externen Wärmetauschern. Die Verwendung eines flüssigen Brennstoffs ermöglicht eine Entnahme von Spaltprodukten bzw. Zugabe von „frischen“ Transuranen als Spaltstoff. Dies wirkt sich sehr positiv auf die Stabilisierung des Multiplikationsfaktors aus. Dementsprechend ist eine chem. Trenneinheit dem Bleikreislauf angeschlossen.

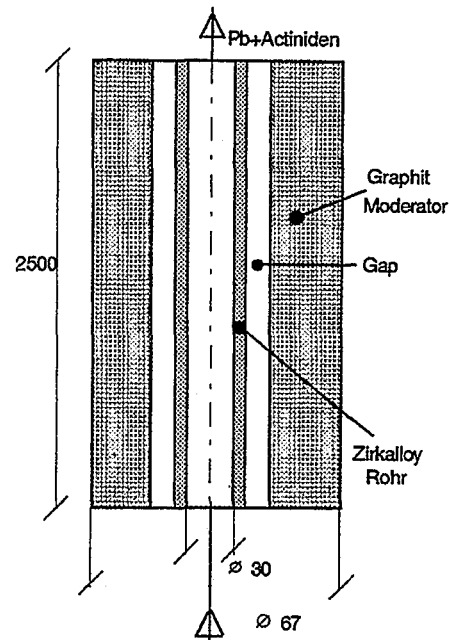


Abb. 3.14: Aufbau einer Zelle.

Bei einer Actinidenkonzentration von 1,2 Gew.% im Blei beträgt das Blanketinventar an TRU zum Zyklusbeginn 1030 kg. Die Zykluslänge beträgt 60 Tage und führt zu einer TRU Abnahme von ca. 86,3 kg innerhalb dieses Zeitraumes. Der Multiplikationsfaktor fällt während dieser Zeit von $k_{\text{eff}} = 0,95$ um 1 nile auf $k_{\text{eff}} = 0,94$. Dementsprechend steigt der benötigte Protonenstrom von 25mA auf 30 mA am Ende des Betriebszyklus an. Berechnungen zum Neutronenspektrum führen zu einer Graphitstandzeit des Moderators von 4 Jahren und zu thermischen Neutronenflüssen von $\Phi_{\text{th}} = 4 \cdot 10^{14} \text{ n}/(\text{cm}^2 \cdot \text{s})$ /LIZ₁ 97/.

Für die Kühlung der Anlage wurden zwei Entwürfe erarbeitet /LYP 96/. Zum einen besteht die Möglichkeit die produzierte Wärme außerhalb des Blankets, also extern über ein Einkreiskühlsystem, oder aber intern, innerhalb des Blankets, über ein Zweikreissystem abzuführen. Bei einem Einkreiskühlsystem wird die Blei-Actiniden Suspension direkt zu den Wärmetauschern geführt, die aufgrund der enormen Strahlenbelastung und möglichst kurzer Wege im Inneren des Anlagengebäudes untergebracht sein müssen. Dementsprechend dient die Suspension sowohl als Actinidenträger, als auch als Wärmeträger zu den Wärmetauschern. Dort wird die Wärme über einen konventionellen Dampfkreislauf zur Turbine geleitet. Wesentlicher Aspekt des Kreislaufs ist die Tatsache, dass es sich um eine technisch sehr einfache Form der Wärmeabfuhr handelt, die nicht die Neutronik innerhalb des Blankets beeinflusst. Nachteilig wirkt sich jedoch die räumliche Verteilung hochaktiver Stoffe in der Anlage und die Erhöhung der Brennstoffmasse um den Faktor 4 gegenüber dem reinen Coreinventar aus. Dementsprechend erhöht sich der Aufwand des Strahlenschutzes im Anlagenaufbau und

die Problematik der Proliferation von Pu gewinnt mit zunehmender Pu Masse an Gewicht. Die Auslegung als Zweikreiskühlsystem weist diesen Nachteil der Inventarerhöhung an Brennstoffmasse nicht auf. Das aktivierte Blei-TRU Gemisch verläßt nicht den Bereich des Blankets, sondern gibt seine Wärme innerhalb an einen reinen Bleikühlkreislauf ab. Dementsprechend muß der Spalt zwischen Brennstoffhüllrohr, der das flüssige Blei-Actiniden Gemisch enthält, und dem Graphitmoderator von 3 mm auf 6 mm erweitert werden, damit dieser Raum von flüssigem nicht aktiven Blei mit dem notwendigem Kühlungsmassenstrom durchströmt werden kann / LYP₆ 96/. Hierbei besteht die Möglichkeit die interne Kühlung als Zwangs- oder Naturkonvektion auszulegen. Der reine Bleikühlkreislauf überträgt dann wiederum seine Wärme über einen Wärmetauscher an den Sekundärkreis. Der Vorteil, daß nur das reine Kerninventar als Blei-TRU Gemisch ausgelegt wird und dementsprechend eine um 75% geringere TRU Masse im Vergleich zum Einkreisssystem benötigt wird, sowie der örtliche Einschluß des hochaktiven Inventars auf den Bereich der Blankets, wird mit dem Nachteil erkaufte, daß sich gegenüber dem Einkreisssystem das Neutronenspektrum verändert, da eine, wenn auch geringe, Umkonstruktion des Blankets erforderlich ist.

Wird das Gesamtsystem bilanziert (Abb. 3.15), so wird ein jährlicher TRU Umsatz von 525 kg bei einer Anlagenleistung von 1300 MW_{el} erreicht. Der Energiebedarf des Beschleunigers kann bei einem Wirkungsgrad von 50% mit 80 MW_{el} angegeben werden, so daß netto 440 MW_{el} dem Netz zugeführt werden können. Das Gesamtinventar an TRU inklusive des Kühlkreislaufes beträgt zum Zyklusbeginn 4120 kg. Das Inventar an zu transmutierenden Spaltprodukten kann mit 2800 kg Tc-99 und 365 kg J-129 angegeben werden. Existiert für die Actiniden mit 525 kg eine Umsatzrate von 12,7%, gemessen zum eingesetzten Inventar, so ergibt sich mit 57 kg (50 kg Tc, 7 kg J) jährlicher Umsatzrate für die zu transmutierenden Spaltprodukte ein Verhältnis von 1,8%.

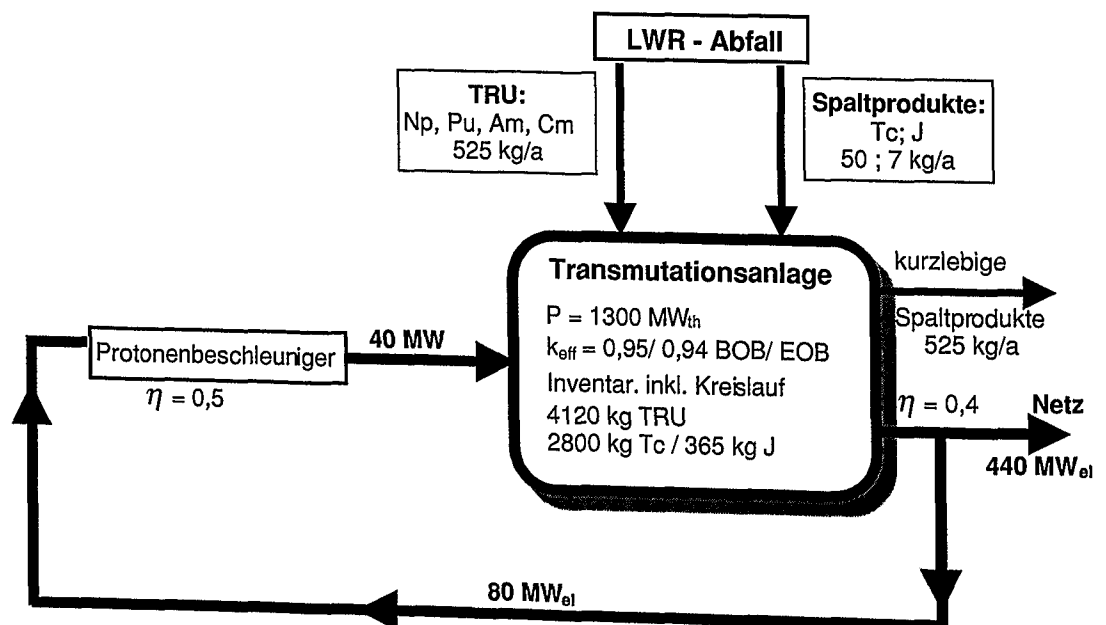


Abb. 3.15: Gesamtbilanz der Jülicher Studie nach /LIZ 97/.

4 Brennstoffbetrachtungen für das Jülicher Konzept

Das Jülicher Konzept eines thermischen Transmutationssystemes mit flüssigem Blei als Brennstoffträger soll hinsichtlich seiner Eignung zur Abfallvernichtung von Transuranen untersucht bzw. optimiert werden. Im Gegensatz zur neutronischen Basisauslegung /LIZ 97/ rückt bei diesen Betrachtungen der Gedanke zur Umwandlung von langlebigen Spaltprodukten wie Jod-129 und Technetium-99 ebenso in den Hintergrund wie der prinzipielle Gedanke, das System als Leistungsreaktor zur Stromerzeugung zu nutzen, bzw. über den Thorium-Uran Zyklus Spaltstoff zu erbrüten. Nichtsdestotrotz bleiben die bisherigen technischen Gedanken und Basisauslegungen zum System /LYP 96/ gültig. Insbesondere die Grundidee eines flüssigen Brennstoffs in Form einer Blei-TRU Suspension, der die Möglichkeit eröffnet kontinuierlich frischen Brennstoff zuzuführen und Neutronengifte wie die Spaltprodukte zu extrahieren, erweist sich als sehr positiv. Als direkte Konsequenz kann die Anforderung an den Protonenbeschleuniger bedeutend gesenkt werden. Die offenen Fragen des Systems wie z.B. das Risiko einer Sedimentation des flüssigen Brennstoffs im Falle eines Pumpenstillstandes und das daraus entstehende Kritikalitätsstörfallpotential, das hohe TRU Inventar mit dem Hintergrund der Proliferation, die Löslichkeit von Transuranen in Blei, etc. stellen zwar berechnete Kritikpunkte dar, doch rechtfertigt das positive Gesamtanlagenkonzept eines flüssigen Brennstoffs geradezu die Evaluierung dieser Fragestellungen.

Mit dem Hintergrund der offenen Fragen aus den bisherigen Untersuchungen zur Jülicher ADS Anlage (Kap. 3.2.2) und durch die Ausrichtung des Systems auf die ausschließliche Nutzung als Transurantransmuter bedarf es hinsichtlich des Blankets und des Brennstoffes einer angepaßten Auslegung, die es zu analysieren und auf eine TRU-Vernichtung bei geringem Inventar zu optimieren gilt. Naturgemäß kommt dem Brennstoff hinsichtlich seiner Zusammensetzung eine entscheidende Rolle zu. Die Zusammensetzung kann sich dabei hinsichtlich der eigentlichen TRU-Zusammensetzung z und hinsichtlich der Gesamtkonzentration a an Transuranen innerhalb des Trägerfluides Blei verändern. So gilt es zunächst zu klären, welche Brennstoffe in welchem Moderationsverhältnis ein unterkritisches Grundverhalten aufweisen, wobei die Unterkritikalität nicht mehr als max. 5 nile betragen sollte, um die Anforderungen an den Protonenbeschleuniger zu begrenzen. Nur diese Brennstoffe erscheinen aus der Fülle der Kombinationsmöglichkeiten als geeignet, näher untersucht zu werden.

Das weitere Vorgehen untergliedert sich in drei Schritte. Im ersten Schritt werden die Rahmendaten spezifiziert, welche das System beschreiben und die Variationsmöglichkeiten hinsichtlich der Brennstoffkombination und des Moderationsverhältnisses aufgezeigt. Im zweiten Schritt erfolgt eine erste neutronenphysikalische Berechnung, um einen möglichen Multiplikationsfaktor k_{∞} zu bestimmen. Im dritten Schritt werden die gewonnenen Brennstoff- und Moderationskombinationen hinsichtlich ihres Sedimentationsverhaltens geprüft. Die Berechnungen zum Multiplikationsfaktor erfolgen mittels des SCALE 4.2 Programmpakets und dem Steuermodul CSAS1X, wohingegen die Änderung des Eigenwertes während des Sedimentierens anhand des KENO-V Moduls nachvollzogen wird /ORN 93/. Alle Berechnungen stützen sich auf Wirkungsquerschnittsdaten der JEFF 2.2 Bibliothek. Die einzelnen Programmodule werden im Anhang D 1 beschrieben.

4.1 Grundkonzept des Systems

Der Grundaufbau des Systems kann in zwei Gruppen aufgeteilt werden. Zum einen handelt es sich um die Anlagenkomponenten wie Protonenbeschleuniger, Protonenfenster, Target, Blanket mit entsprechendem Kühlsystem und Reflektor und zum anderen um den flüssigen Brennstoff. In Anlehnung an die bisherigen Studien (vgl. Kap. 3.2.2) kann ein Großteil der Anlagenkomponenten wie Protonenbeschleuniger, Protonenfenster und Target übernommen werden. Ebenso sind die Ideen zum Kühlsystem des Blankets zu übernehmen, da sie sowohl eine Einkreis- als auch Zweikreisvariante abdecken. Das Blanket und der Brennstoff müssen neu ausgelegt werden. Ebenso gilt es die chem. Abtrenneinrichtung für Spaltprodukte zu verifizieren, sowie Art und Umfang der Einspeisung von frischem TRU-Gemisch zu definieren. Die beiden letztgenannten Punkte können naturgemäß erst dann beurteilt werden, wenn der Brennstoff für das System festgelegt ist.

4.1.1 Grundaufbau der Anlage

Im Unterschied zur bisherigen Studie (vgl. Abb. 3.12) wird eine vereinfachte Anlage zu Grunde gelegt, welche in **Abb. 4.1** illustriert wird, um die Brennstoffbetrachtungen durchzuführen. Die zentralen Elemente wie Protonenbeschleuniger, Protonenfenster und Bleitarget bleiben erhalten, doch das Blanket und der Graphitreflektor werden umgestaltet. Die Spaltproduktzonen entfallen und die Dreiecksanordnung der Brennstoffrohre innerhalb des Graphitblankets ist hinsichtlich seines Abstandes zueinander (Pitch) nicht festgelegt. Die Auswahl eines Kühlsystems steht nicht im Vordergrund der Betrachtungen und dementsprechend werden beide möglichen Varianten (Einkreis- und Zweikreisystem) offen gehalten. Die neutronenphysikalischen Betrachtungen gehen zwar von einem Einkreisystem aus, doch stellt dies keine bindende Vorentscheidung für dieses Kühlverfahren dar, da die gewonnenen Ergebnisse, aufgrund des sehr geringen Einflusses des Kühlmittels Blei auf die Neutronik, leicht auf ein Zweikreisystem unter Beibehaltung des Moderationsverhältnisses übertragen werden kann. Die Betrachtung einer kontinuierlichen Actinidenzufuhr und Spaltproduktextraktion bleibt ebenso außen vor, da sie zum jetzigen Zeitpunkt keine Relevanz besitzt. Die

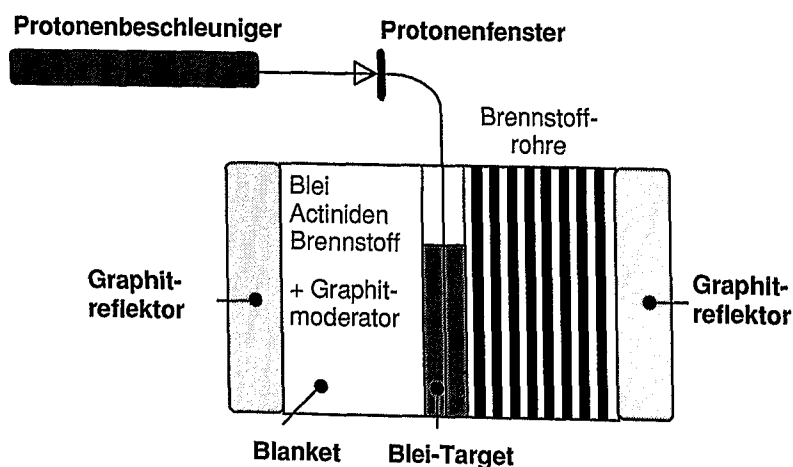


Abb. 4.1: Prinzipdarstellung des Jülicher Transmutationssystems zur TRU Umwandlung.

äußeren Abmessungen der Hauptkomponenten stellen eine feste Größe dar. Das zentrale Target hat einen Durchmesser von 1 m. Es wird vom Blanket umschlossen, welches einen Durchmesser von 4 m aufweist. Der Graphitreflektor besitzt radial und axial eine Dicke von 1 m und schließt das System ab. Die Höhe des Blankets beträgt 2,5 m. Somit stehen $29,45 \text{ m}^3$ Blanketvolumen zur Verfügung. Innerhalb dieses Volumens wird der flüssige Brennstoff, mit Blei als Trägermaterial der Actiniden, durch senkrecht angeordnete Rohre hindurchgepumpt. Die Thermalisierung der Neutronen erfolgt durch die Graphitstruktur des Blankets. Ausgehend von den thermohydraulischen Basisberechnungen von /LYP 96/ kann die Prinzipdarstellung mit den gegebenen geometrischen Randbedingungen in einen ersten Entwurfes für ein Einkreiskühlsystem umgesetzt werden. **Abb. 4.2** zeigt diesen Coreentwurf mit den wesentlichen Elementen im Vertikalschnitt, wobei nur zwei der sechs Wärmetauscher angedeutet werden. Das TRU-Blei Gemisch wird von oben nach unten durch das Core gepumpt. Am Coreaustritt gelangt das Gemisch in Sammelrohre. Die Primärpumpen sind zwischen Coreaustritt und Wärmetauschereintritt angeordnet. Nachdem das Blei-TRU Ge-

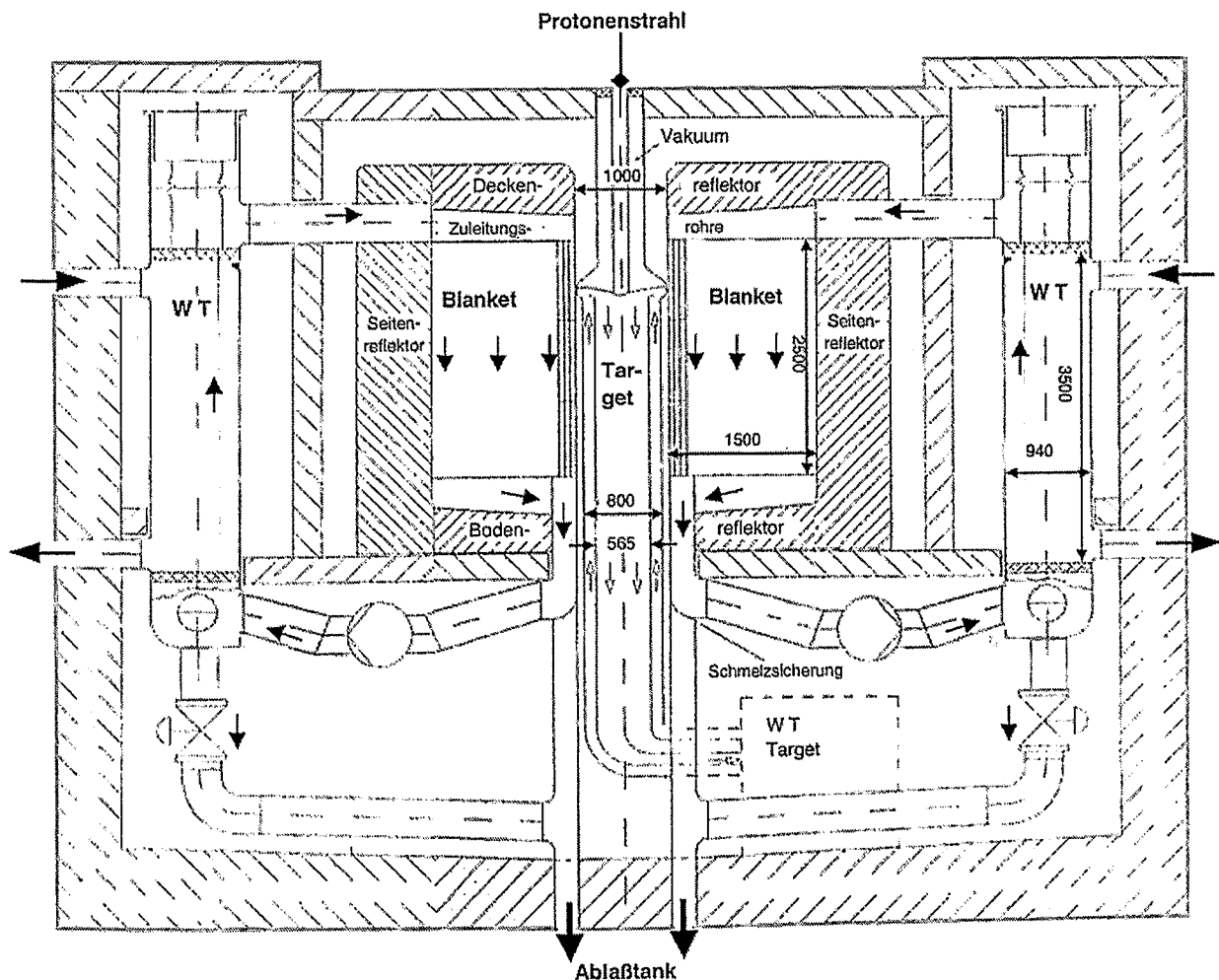


Abb. 4.2: Anordnung von Target, Blanket und Wärmetauscher für das Jülicher System im Vertikalschnitt.

misch seine Wärme an einem Sekundärkreislauf abgegeben hat wird es dem oberen Corebereich wieder zugeführt. Als Coreeintrittstemperatur werden 375 °C und als Coreaustrittstemperatur 600°C veranschlagt. Für den Fall eines Störfalls existiert am Coreaustritt eine Schmelzsicherung als passives Abschaltssystem.

Da eine erste Analyse des neutronischen Verhaltens mittels des Eigenwertes ohne Festlegung der unendlich ausgedehnten multiplizierenden Anordnung (k_{∞}) vorgenommen werden soll, ist es unerlässlich eine Einheitszelle zu definieren. Diese Einheitszelle wird in **Abb. 3.14** skizziert und ermöglicht eine zeitlich vertretbare numerische Simulation von verschiedenen Brennstoffanordnungen. Dabei bleibt aber der Neutronenstromverlust durch Leckagen an der Zellgrenze unberücksichtigt. Hinsichtlich einer ersten Bewertung von verschiedenen Brennstoffen ist dieses Vorgehen jedoch akzeptabel. Die Einheitszelle selbst besteht aus vier Elementen. Im Zentrum befindet sich das flüssige Blei mit den Actiniden. Es wird durch ein Hüllrohr aus Zirkaloy gepumpt, welches eine Dicke von 3 mm aufweist. Wohlwissend, daß aus Korrosionsgründen eine Zirkaloy Legierung oder aber z.B. Stahl als Basismaterial verwendet werden muß, erscheint die neutronenphysikalische Berechnung mit reinem Zirkaloy als sinnvoll, da eine Differenz des Multiplikationsfaktors zwischen Zirkaloy und z.B. OSS Stahl als Rohrmaterial als konstante Absenkung der Multiplikation zu Buche schlagen würde, welche man leicht berücksichtigen kann. Ein Spalt von 3 mm trennt das Brennstoffrohr vom umgebenden Graphitmoderator. In den folgenden Untersuchungen sind nur die Materialstärken des Brennstoffrohres, die Anordnung der Brennstoffrohre in Form einer Dreiecksanordnung zueinander und der Spalt zwischen Brennstoffrohr und Graphit fixiert, wogegen der Innenrohrdurchmesser und auch die Graphitdicke der Einheitszelle eine Funktion des zu wählenden Rohrdurchmessers d und des Moderationsverhältnisses bzw. Pitches t darstellt. Den Einfluß dieser Parameter gilt es im weiteren Verlauf zu quantifizieren.

4.1.2 Brennstoffzusammensetzungen

Der verwendete Brennstoff besteht aus zwei Komponenten. Zum einen dem flüssigem Blei, welches als Trägermaterial fungiert, und zum anderem den umzuwandelnden Elementen, welche in oxidischer Form vorliegen (TRU-O₂). Die eigentliche Zusammensetzung orientiert sich an den beiden Faktoren Nuklidvektor aus den abgebrannten Brennelementen von Leichtwasserreaktoren und Unterkritikalität. Als Eingangsnuklidvektoren können zunächst zwei Basiszusammensetzungen angenommen werden. Dies ist zum einen der reine Pu-Vektor des abgebrannten Brennstoffs aus einem 1300 MW_{el} DWR Reaktors nach 35 MWd/kg SM Abbrand und einer Abklingzeit von 10 Jahren sowie ein Plutonium-Minor-Actinide Gemisch (PuMA). In **Tab. 4.1** sind die entsprechenden Nuklidvektoren dargestellt. Wie sich zeigt, besteht das PuMA Gemisch aus ca. 89% Pu und 11% im abgebrannten Brennstoff vorliegende MA. (Im weiteren Verlauf wird diese Zusammensetzung mit PuMA89/11 abgekürzt). Um die bereits vorhanden Abfallmengen an Minor Actinides zu verringern, wird auch die Möglichkeit in Betracht gezogen, den Plutoniumanteil der Transurane zu verringern und den Minor Actinide Anteil zu erhöhen. So werden auch TRU-Gemische mit 80% Pu und 20% Minor Actinides (PuMA80/20 abgekürzt) und 70% Pu und 30% Minor Actinides (PuMA70/30 abgekürzt) in die Betrachtungen mit eingebunden.

Tab. 4.1: Prozentuale Zusammensetzung [Gew. %] der verwendeten Spaltnuklidvektoren.

Nuklid	Pu-Vektor	PuMA89/11	PuMA80/20	PuMA70/30
Pu-238	1,35%	1,20%	1,08%	0,95%
Pu-239	62,03%	55,21%	49,62%	43,42%
Pu-240	24,08%	21,43%	19,26%	16,86%
Pu-241	7,94%	7,07%	6,35%	5,56%
Pu-242	4,60%	4,09%	3,68%	3,22%
Np-237	-	4,43%	8,06%	12,08%
Am-241	-	5,47%	9,395%	14,93%
Am-243	-	0,92%	1,67%	2,50%
Cm-243	-	0,004%	0,008%	0,012%
Cm-244	-	0,17%	0,32%	0,48%

Da nicht nur die TRU-Zusammensetzung z das Eigenwertverhalten beeinflusst, sondern die Konzentration der TRU im Trägerfluid Blei entscheidend ist, besteht auch hier zunächst eine weite Bandbreite möglicher Zusammensetzungen. Dementsprechend bedarf es immer einer Konzentrationskennung a an TRU, um den Brennstoff vollständig zu beschreiben. Eine zusätzliche Kennzahleinführung ist dann von Nöten, wenn ein weiterer Stoff z.B. Thorium in den Brennstoff integriert werden soll. Durch solch eine Kennung wird immer ein Vielfaches der TRU-Menge als Thoriummenge angegeben, z.B. enthält der Brennstoff 2%PuMA70/30-Th 1:3 insgesamt zwei Prozent TRU. Diese zwei Prozent teilen sich zu 70% in Pu, also 1,4% Pu im Brennstoff absolut gesehen, und zu 30% in MA, 0,6% MA im Brennstoff absolut betrachtet, auf. Hinzu kommt ein Thoriumanteil, der das dreifache der Gesamt TRU Masse im Brennstoff beträgt, also 6% in diesem Fall.

Gerade in Bezug auf die Verteilung der TRU im Trägermaterial Blei stellt sich die Frage, ob eine wirkliche Lösung, eine kolloide Lösung oder eine Dispersion bzw. Suspension erreicht werden kann. Diese drei Möglichkeiten können wie folgt charakterisiert werden /ULL 87/:

- Wirkliche Lösungen bestehen aus gelösten Partikeln mit Durchmessern von ca. 0,1 nm, was die Größenordnung der freien Moleküle widerspiegelt. Es resultiert eine physikalisch homogene Flüssigkeit.
- Kolloide Lösungen (Schwebstoffe) sind Partikel mit Durchmessern zwischen 10 und 100 nm. Kolloide Lösungen in Wasser sind klar und nur bezüglich einiger Eigenschaften inhomogen (Tyndall Effekt). Die Teilchen laufen im allgemeinen durch einen Papierfilter aber nicht durch eine Membran.
- Dispersion bilden sich mit weiter zunehmenden Teilchendurchmesser. Es sind mindestens zwei Phasen vorhanden und es erfolgt eine meßbare Absetzbewegung im Schwerfeld (Sedimentation). Das disperse System wird im allgemeinen als Suspension bezeichnet, wenn feste und flüssige Phasen parallel existieren.

Diese Fragestellung besitzt insbesondere hinsichtlich des Sicherheitsverhaltens im Falle eines Pumpenstillstandes eine entscheidende Rolle. Liegt eine wirkliche Lösung oder eine kolloide

Lösung vor, kommt es nicht zur Sedimentation. Liegt jedoch eine Dispersion/ Suspension vor, so muß von einer Sedimentation ausgegangen werden; dies hat Rückwirkungen auf das Sicherheitsverhalten des Systems. Dementsprechend bieten sich zwei Wege an. Zum einen die Wahl eines gering mit Transuranen beladenen Brennstoffsystems, wo von einer chemischen Lösung gesprochen werden kann, oder aber eines Brennstoffes mit hohem TRU-Anteil, welcher jedoch über alle Konzentrationsbereiche unterkritisch bleiben muß, da von einer Aufkonzentration des TRU-Inventars im Falle einer Sedimentation ausgegangen werden muß.

Diese enorme Bandbreite an Variationsmöglichkeiten gilt es nun hinsichtlich des Eigenwertes der Einheitszelle zu beschreiben, um sicher betreibbare Brennstoffsysteme auszuwählen. Gleichzeitig müssen die Ergebnisse mit den geometrischen Daten wie Brennstoffrohrdurchmesser und Pitch verknüpft werden. Im Bereich der Brennstoffe findet das reale Löslichkeitsverhalten von Pu, den Minor Actinides Np, Am und Cm sowie von Th zunächst keine Berücksichtigung, da es für die hier angestellten Überlegungen von sekundärer Bedeutung ist.

4.2 Kritikalitätsberechnungen für verschiedene Brennstoffe

Im weiteren Verlauf sollen die angesprochenen Variationsmöglichkeiten Brennstoffhüllrohrdurchmesser d , Abstand der Rohre zueinander (Pitch) t , TRU-Zusammensetzung z , TRU-Konzentration im Trägerfluid a und Thoriumanteil im Trägerfluid hinsichtlich ihrer Multiplikation durch eine Geometrie und Brennstoffstudie anhand der Einheitszelle geprüft werden. Um dies zeitlich effektiv durchführen zu können, wird das SCALE Programm mit dem Modul CSAS1X verwendet. Dieses Modul berechnet den k_{∞} -Wert der beschriebenen Einheitszelle, wobei die adäquaten resonanzabgeschirmten Wirkungsquerschnitte verwendet werden.

Als weitere feste Randbedingungen der Berechnung sind die Temperaturen des Systems anzugeben (Tab. 4.2). Der Brennstoff, das Hüllrohr sowie der Spalt sollen eine Temperatur von 773 K aufweisen, wohingegen beim Graphitmoderator von einer Temperatur von 600 K

Tab. 4.2: Temperaturen der Materialzonen in der Einheitszelle.

Stoffzone	Mittlere Temperatur
Brennstoff	773 K
Hüllrohr	773 K
Spalt	773 K
Graphit	600 K

ausgegangen wird. Ausgangspunkt soll zunächst der reine Pu-Vektor sein. Dieser Spaltstoffvektor wurde hinsichtlich seiner Konzentration im Blei und dem Abstand der Brennstoffrohre zueinander variiert. Die Bandbreite der Konzentrationen reichen dabei von 0,5% bis 70% (im Falle einer Sedimentation, da 70% die dichteste Kugelpackung darstellt) und die Pitchva-

riation t von 5 cm bis 45 cm. Zusätzlich wurden die Rohrdurchmesser d verändert. Abb. 4.3 zeigt das Ergebnis einer Eigenwertberechnung beispielhaft für ein Rohrdurchmesser d von 3 cm und 5 cm. Es wird sofort ersichtlich, daß nur ein sehr eng begrenzter Konzentrations- und Moderationsbereich von bis zu ca. 1,35 % Pu Anteil bei einem Pitch bis zu 5,8 cm bei einem Innenrohrdurchmesser von 3 cm zu einem unterkritischen Verhalten führt. Wird der Rohrdurchmesser d erhöht verringert sich der Bereich der Unterkritikalität (siehe Beispiel

$d = 5$ cm). Ab einem Rohrdurchmesser von 7 cm liegt im berücksichtigten Konzentrationsbereich keine Unterkritikalität mehr vor, vielmehr steigt der Multiplikationsfaktor mit zunehmendem Rohrdurchmesser an (Vgl. Anhang D 2).

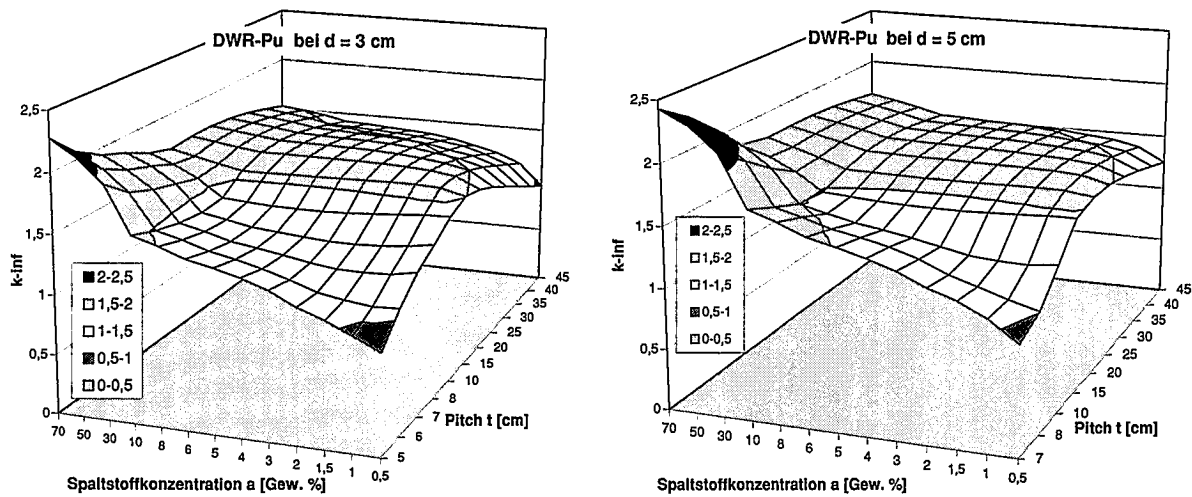


Abb. 4.3: k_{∞} im Blanket in Abhängigkeit der Pu Spaltstoffkonzentration und dem Pitch für einen Brennstoffinnenrohrdurchmesser von 3 cm und 5 cm.

Werden dem Pu-Spaltstoff Minor Actinides (**PuMA**) zugegeben, so ergeben sich bei den gleichen Randbedingungen (TRU-Konzentration, Pitch und Rohrdurchmesser) größere unterkritische Bereiche. Je höher der MA Anteil liegt, desto größer ist der unterkritische Bereich des Systems hinsichtlich der Konzentration und des Pitches. **Abb. 4.4** bis **Abb. 4.6** illustrieren die Abhängigkeit der Unterkritikalität vom Minor Actinide Gehalt des TRU-Gemisches an den Gemischvariationen 89%Pu mit 11% MA, 80%Pu mit 20% MA sowie 70%Pu mit 30%MA. Im Vergleich zur Pu Ausgangssituation kann festgehalten werden, daß sich die Bandbreite der Unterkritikalität bei einem Rohrdurchmesser von $d = 3$ cm nun von 0,5% bis zu max. 10% TRU-Beladung bei einer Pitchvariabilität von 5 bis zu 10 cm erstreckt.

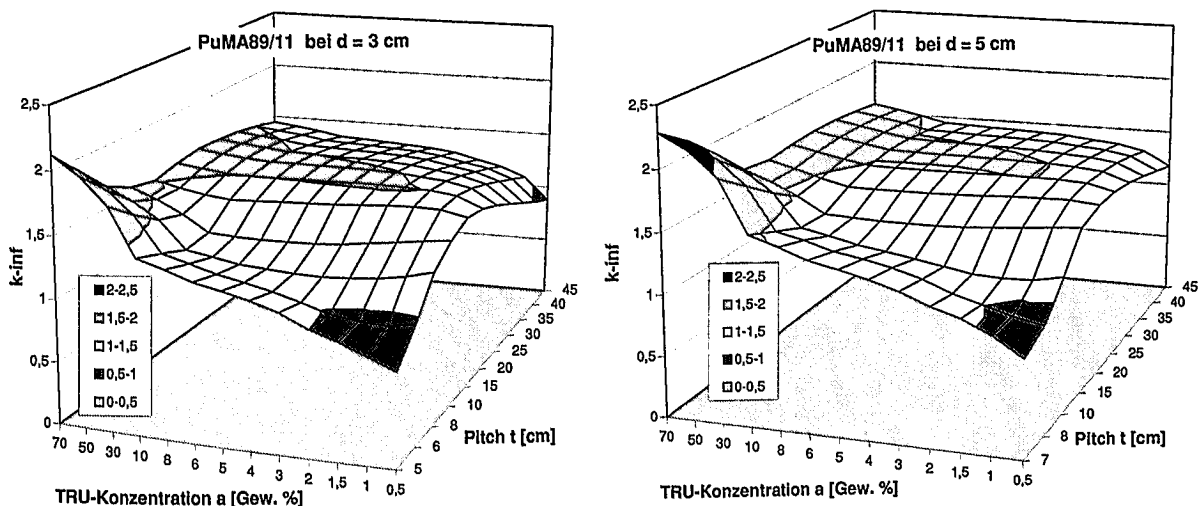


Abb. 4.4: k_{∞} im Blanket in Abhängigkeit der PuMA89/11 TRU-Konzentration und dem Pitch für einen Brennstoffinnenrohrdurchmesser von 3 cm und 5

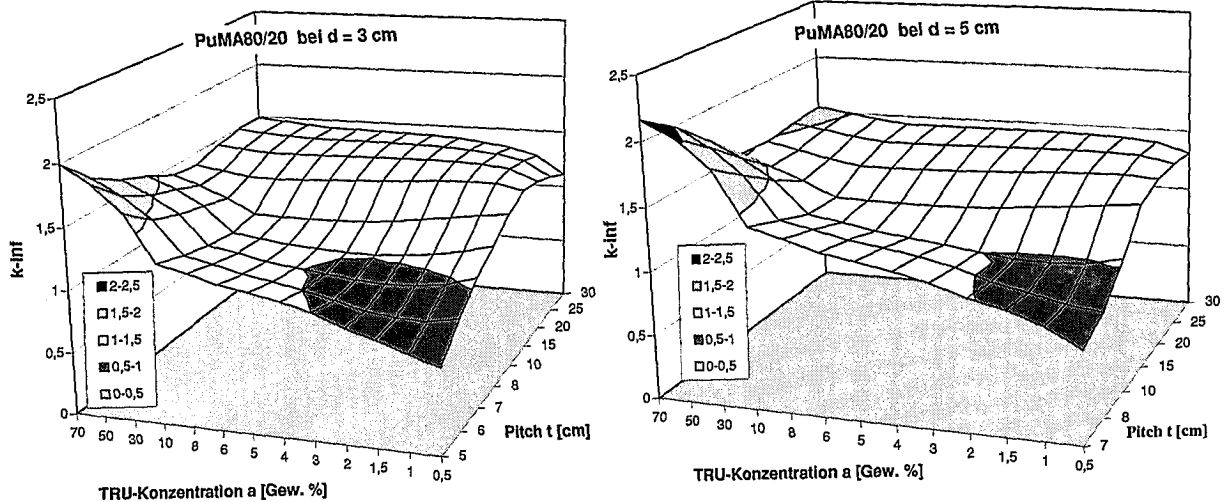


Abb. 4.5: k_{∞} im Blanket in Abhängigkeit der PuMA80/20 TRU-Konzentration und dem Pitch für einen Brennstoffinnenrohrdurchmesser von 3 cm und 5 cm.

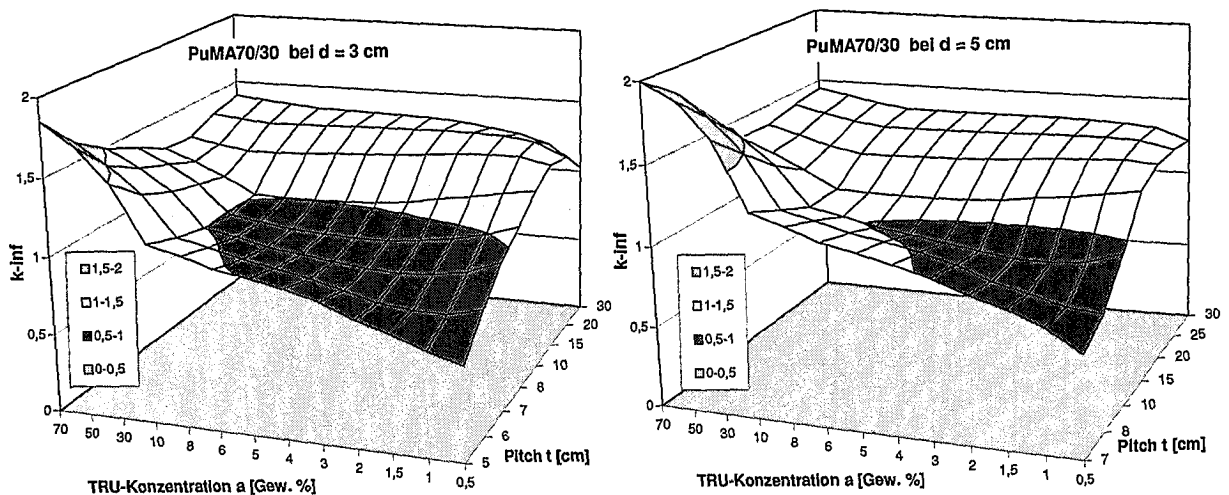


Abb. 4.6: k_{∞} im Blanket in Abhängigkeit der PuMA70/30 TRU-Konzentration und dem Pitch für einen Brennstoffinnenrohrdurchmesser von 3 cm und 5 cm.

Wie beim reinen Pu Spaltstoff herrscht auch bei den mit MA verschnittenen Brennstoffen das Verhalten vor, mit zunehmendem Brennstoffdurchmesser einen höheren Multiplikationsfaktor zu erzeugen, bzw. zu einem kleineren unterkritischen Bereich zu führen (vgl. Abb. 4.4 bis Abb. 4.6). Bei geringen Moderationsverhältnissen kann bei den größeren Brennstabdurchmessern jedoch auch schon bei geringen TRU-Beladungen von z.B. 1 % Pu die Schnellspaltung einen dominierenden Effekt haben, der den Multiplikationswert dann wieder ansteigen läßt. Ein Vergleich dreier Brennstabdurchmesser, in Abb. 4.7 von $d = 3$ cm bis $d = 7$ cm bei einer Spaltstoffbeladung von 1% Pu als Funktion des Moderationsverhältnisses aufgetragen, verdeutlicht die Verhaltensweise. Hier wird deutlich, daß der Brennstabdurchmesser von 3 cm den günstigsten Multiplikationsverlauf aufweist. Dementsprechend eignen sich große Brennstoffrohrdurchmesser unter Berücksichtigung der hier angegebenen Randbedingungen nicht für den Einsatz in unterkritischen Systemen.

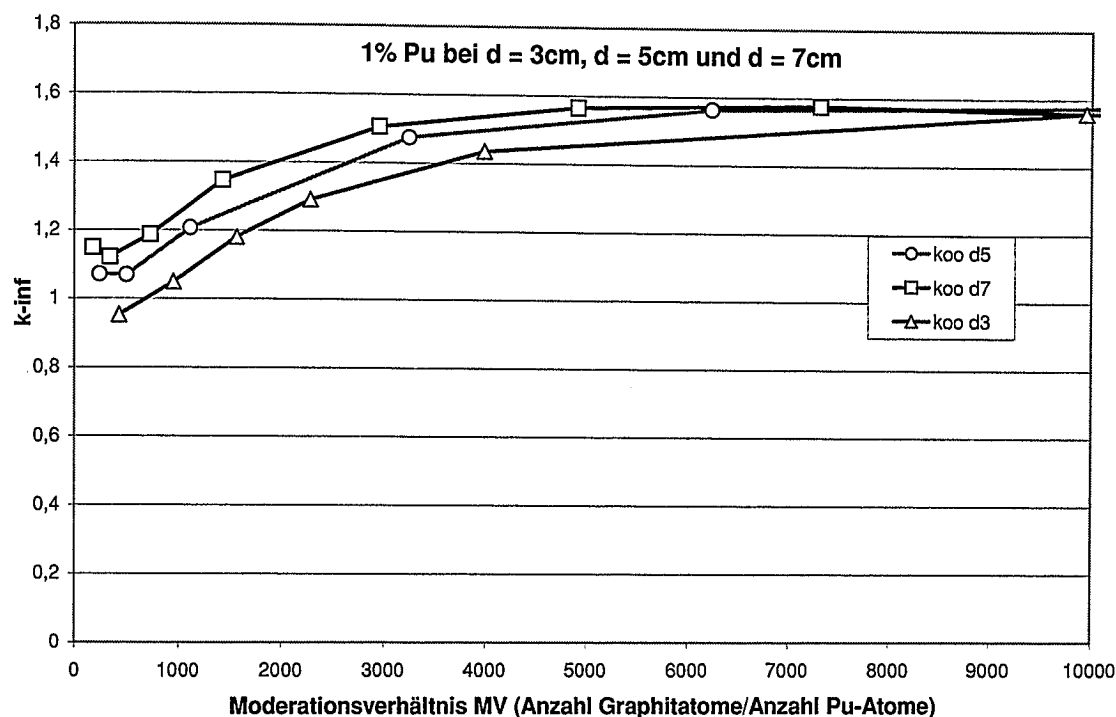


Abb. 4.7: k_{∞} im Blanket in Abhängigkeit des Moderationsverhältnisses bei einer Spaltstoffbeladung von 1% Pu für unterschiedliche Brennstabdurchmesser.

Insgesamt kann festgehalten werden, daß die Variabilität der Systemkomponente Pitch bzw. des Moderationsverhältnisses durch den Zusatz von MA in den Brennstoff ausreichend erschlossen werden kann. Hinsichtlich der Subkritikalität in Abhängigkeit von der TRU-Konzentration herrscht immer noch Handlungsbedarf, wenn von einer Suspension des Brennstoffes ausgegangen wird. Hier gilt es zu berücksichtigen, daß es bei einem Pumpenausfall zur Sedimentation der schwereren TRU-Partikel im Blei kommen würde. Daher sollte ein idealer Brennstoff unabhängig von seiner TRU-Konzentration unterkritisch bleiben.

Um diesen Gedanken fortzuführen, wird dem Blei-TRU Gemisch auch Thorium zugegeben (Pu-Th). Wie sich zeigt, erweitert die Zugabe von Thorium, dies geschieht immer in einem ganzen Vielfachen der Transurane, die Unterkritikalität des Pu basierenden Brennstoffes enorm. **Abb. 4.8a-d** verdeutlicht die Erweiterung des unterkritischen Bereiches für einen reinen Pu Spaltstoff bei einem Rohrdurchmesser von 3 cm. Unter Berücksichtigung höherer Thoriumanteile im Brennstoff sind sogar hinsichtlich der Sedimentation inhärent sichere Brennstoffe möglich, da über alle möglichen Spaltstoffkonzentrationen bei einem festgelegtem Pitch von z.B. 6 cm eine Unterkritikalität gegeben ist. Dies wird sehr gut in **Abb. 4.8d** deutlich, wo der Multiplikationsfaktor für ein Plutonium Thoriumgemisch im Verhältnis 1:7 (Pu-Th 1:7) für unterschiedliche Spaltstoffkonzentrationen und Pitches aufgetragen wurde. Hier wird sofort ersichtlich, daß für einen Pitch bis zu 6,3 cm das System für alle vorkommenden Spaltstoffkonzentrationen unterkritisch ist. Somit können auch Brennstoff-suspensionen eingesetzt werden, ohne daß ein Kritikalitätsrisiko durch eine auftretende Sedimentation entstehen kann.

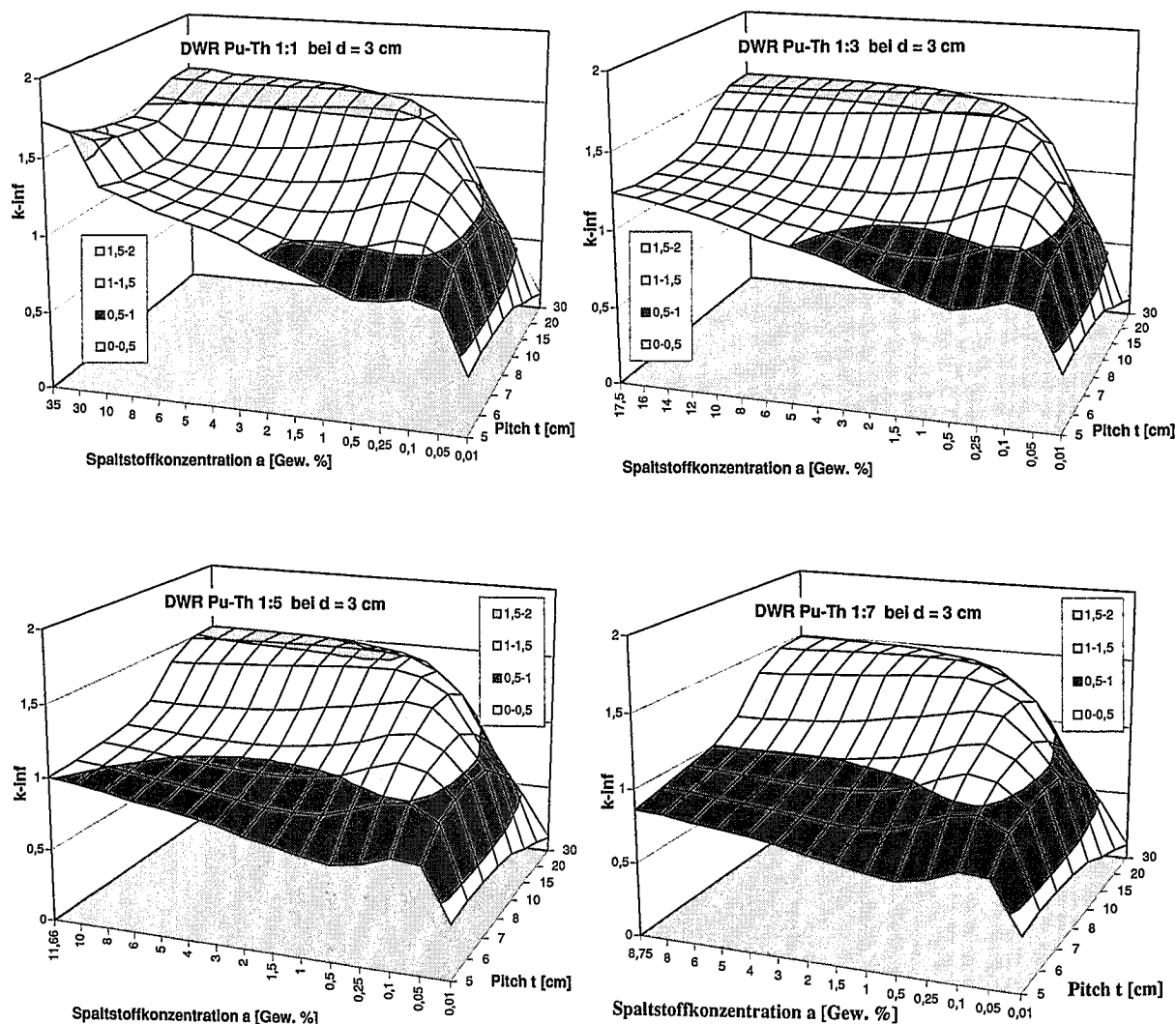


Abb. 4.8a-d: k_{∞} im Blanket in Abhängigkeit des Pu-Th Verhältnisses bei unterschiedlichen Spaltstoffkonzentrationen und Pitches für ein Hüllrohrdurchmesser von 3 cm.
a: Links oben Pu-Th 1:1. **b:** Rechts oben Pu-Th 1:3
c: Links unten Pu-Th 1:5. **d:** Rechts unten Pu-Th 1:7.

Ein ähnliches Verhalten weist auch das PuMA Gemisch auf, nur bedarf es bei diesem Gemisch geringerer Thoriumanteile (PuMA-Th), um eine Unterkritikalität über weite Bereiche der Konzentration zu ermöglichen. Dabei besteht ein direkter Zusammenhang zwischen eingesetzter Menge an Minor Actinides und Thorium. Je höher der Minor Actinide Anteil im Brennstoff, desto geringer muß das Thoriumverhältnis ausfallen, um Unterkritikalität zu erreichen. Bei der TRU-Zusammensetzung PuMA(70/30) reicht ein geringes Thoriumverhältnis von 1:1 aus, um den Bereich der Unterkritikalität enorm zu erweitern (**Abb. 4.9**). Wird das Thoriumverhältnis bei gleicher TRU-Zusammensetzung von PuMA70/30 auf 1:3 erhöht, besteht über dem gesamten TRU-Konzentrationsbereich ein unterkritisches Verhalten bei einem Pitch bis ca. 8 cm und Hüllrohrdurchmesser von 3 cm. Dies wird in **Abb. 4.9** verdeutlicht.

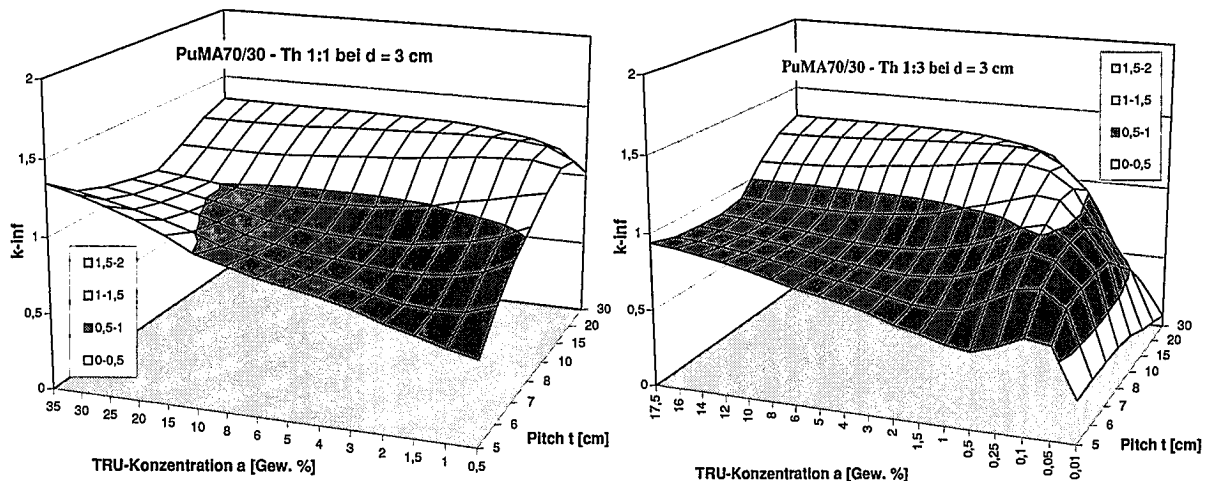


Abb.4.9: k_{∞} im Blanket für einen PuMA70/30-Th 1:1 und 1:3 Brennstoff bei unterschiedlichen TRU Konzentrationen und Pitch es mit einem Rohrdurchmesser von 3 cm.

Als Schlußfolgerung aus den hier gewonnen Überlegungen kann festgehalten werden, daß :

- Der Brennstoffrohrdurchmesser d klein (3 cm) gewählt werden sollte, da mit zunehmendem Durchmesser d der unterkritische Bereich verringert wird.
- Ein reiner Pu basierter Brennstoff nur in einem eng begrenztem Bereich von Konzentration und Moderation (Pitch) unterkritisch ist.
- Die Zugabe von Minor Actinides den Bereich der Unterkritikalität für einen PuMA Brennstoff erweitert und dies direkt vom MA Anteil im Brennstoff abhängig ist.
- Durch hohe Zugaben von Thorium zum Pu-Th basierten Brennstoff eine inhärente Subkritikalität des Systems über alle Brennstoffkonzentrationen möglich ist.
- Geringe Thoriumanteile ausreichen, um einen PuMA-Th basierten Brennstoff inhärent unterkritisch ausulegen.

Bleiben zunächst die realen Löslichkeitsverhältnisse in Blei außen vor, so bieten sich in Form einer Suspension in Blei drei Brennstoffgruppen, Pu-Th , PuMA und PuMA-Th Brennstoffe, an. Diese sollen im weiteren Verlauf hinsichtlich ihres Kritikalitätsverhaltens während einer Sedimentation beurteilt werden.

4.3 Sedimentationsverhalten

Bei allen höheren TRU-Konzentrationen im Blei muß nach einer konservativen Abschätzung davon ausgegangen werden, daß das Gemisch als Suspension vorliegt. Dementsprechend kommt dem Pumpenausfall eine entscheidende Bedeutung zu. Stellt sich in Folge eines Strömungsverlustes eine Sedimentationsbewegung innerhalb des Fluids ein, so findet eine Akkumulation der schwereren Transuranoxide am Boden der Brennstoffrohre statt. Dies führt als Konsequenz zu einer Aufkonzentrierung der Transurane im Bodenbereich und zu einer Konzentrationsabnahme an Transuranen in den darüber befindlichen Bereichen. Für Brennstoffe mit hohem Thoriumanteil (Pu-Th 1:7 und PuMA70/30-Th 1:3) konnte bereits für den unendlich ausgedehnten Fall gezeigt werden, daß eine Aufkonzentration hinsichtlich einer

Überkritikalität bedeutungslos ist, da eine Unterkritikalität über alle TRU-Konzentrationen gegeben ist. Um jedoch einen größeren Spielraum in Fragen der Brennstoffzusammensetzung zu erreichen, besteht nun die Fragestellung, ob auch Brennstoffe, die bei der eindimensionalen Betrachtung nicht über dem gesamten Konzentrationsbereich unterkritisch sind, im Falle einer Sedimentationsbewegung dennoch zu einem sicheren d.h. unterkritischen Gesamtverhalten führen.

4.3.1 Berechnungsverfahren zur Sedimentation

Um dieser Fragestellung nachzugehen, wurde die Einheitszelle in eine 2-dimensionale Berechnungszelle überführt. Mit dem Programmmodul KENO-V des SCALE Programmpaketes konnte der k_{∞} -Wert dieses Systems berechnet werden. Die Grundidee des Berechnungsmodus für den Fall einer Sedimentation besteht dabei darin, daß die eintretende Sedimentation in 8 Schritte unterteilt wird. Ausgangspunkt ist eine axial homogene Verteilung der Transurane im Blei, Endsituation ist die vollständige Konzentration der Transurane eines Brennstoffrohres im Bodenbereich, wobei dementsprechend im verbleibenden Brennstoffrohr kein TRU mehr vorhanden ist. So besitzt jeder Sedimentationsschritt ein unterschiedliches Konzentrationsgefüge, wobei die TRU-Masse innerhalb des Hüllrohres konstant bleibt. Um die unterschiedlichen Konzentrationen auch räumlich widerspiegeln zu können, wurde der Brennstab vertikal in 10 Bereiche segmentiert. Segment 0 bildet den Boden und Segment 9 den oberen Abschluß in einer Höhe von 250 cm. Jedes Segment hat eine gleiche Höhe von 25 cm. Innerhalb dieser Segmente findet die Konzentrationsänderung statt. Wird die Z-Richtung betrachtet, so finden die Abkonzentrationen von oben nach unten statt. Eine weitere Beschreibung des Verfahrens gibt Anhang D 3 wieder.

4.3.2 Sedimentationsverhalten eines PuMA70/30-Th 1:1 Brennstoffes

Anhand des PuMA70/30-Th 1:1 Brennstoffes soll stellvertretend für weitere nicht inhärente Brennstoffe das Sedimentationsverhalten dargestellt werden. Ausgangspunkt für die hier getroffenen Beurteilungen sind Brennstoffe mit einem weiten Bereich der Unterkritikalität wie z.B. Pu-Th 1:5 und PuMA89/11-Th 1:3. Diese Gruppe an Brennstoffen besitzt gegenüber den inhärent sedimentationssicheren Brennstoffen den Vorteil, daß die Gesamtbeladung des Bleis mit Schwermetallen deutlich geringer ausfällt. Dies weist verschiedene Vorteile im Bereich der Handhabung auf, welche hier nicht näher beleuchtet werden sollen.

Um den weiten Bereich der Unterkritikalität auszunutzen, ist es sinnvoll, nur TRU-Konzentrationen auszuwählen, die vorab im homogenen Zustand nicht höhere TRU-Beladungen als ca. 4% aufweisen. Da die TRU-Menge innerhalb des Brennstoffrohres begrenzt ist, wird somit eine quantitative Grenze gesetzt, die sich in Form einer maximalen Aufkonzentration im Bodenbereich widerspiegelt. **Abb. 4.10** zeigt den simulierten Sedimentationsverlauf und seine Auswirkungen auf den Multiplikationsfaktor k_{∞} am Beispiel des PuMA70/30-Th1:1 Brennstoffes bei einem Brennstababstand von 8 cm. Es wurden vier Ausgangskonzentrationen (0,5%, 1%, 2% und 4%) herangezogen, um das Verhalten zu

beurteilen. In der homogenen Situation der Ausgangsphase weisen die geringeren TRU-Konzentrationen die höheren k_{∞} -Werte auf, da für diese Brennstoffe ein günstigeres Moderationsverhältnis vorliegt. Mit einsetzender Sedimentation ändert sich dieses Bild. Nach einem Ansteigen des Multiplikationsfaktors in der Anfangsphase sinkt der k_{∞} Wert immer weiter für die Brennstoffe niedriger Konzentration ab. Für die höher beladenen Brennstoffe kommt es hingegen zu einem konstanten Anstieg des Multiplikationsfaktors. Ist die Sedimentation abgeschlossen, so hat sich das Bild der Multiplikationsfaktoren in Abhängigkeit der TRU-Konzentration genau entgegengesetzt verändert. Nun weisen die höher beladenen Brennstoffe einen höheren k_{∞} Wert auf und die niedrig beladenen dementsprechend kleinere Werte. Wurde der Beladungszustand des Bleis mit TRU geeignet gewählt, so bleiben auch diese Konzentrationen nach einer Sedimentation unterkritisch. Demzufolge können auch nicht inhärent sichere Brennstoffe zum Einsatz kommen, solange diese über eine angemessene TRU-Beladung verfügen. Hierdurch erweitert sich das Spektrum der zu Verfügung stehenden Brennstoffgruppen und geometrischen Kenndaten enorm. Ein Grenzwert für die zu wählende max. Konzentration ist naturgemäß von der jeweiligen Brennstoffgruppe, dem Brennstabdurchmesser und dem Pitch des Systems abhängig. Anhang D 4 gibt Aufschluß über weitere geprüfte Brennstoffkombinationen wie z.B. 0,5%Pu-Th 1:3 bei einem Pitch von 6 cm und einem Hüllrohrdurchmesser von 3 cm, oder 2%Pu-Th 1:5 bei einem Pitch von 8 cm und einem Hüllrohrdurchmesser von 5 cm, die sedimentationssicher hinsichtlich einer Überkritikalität ausgelegt werden können.

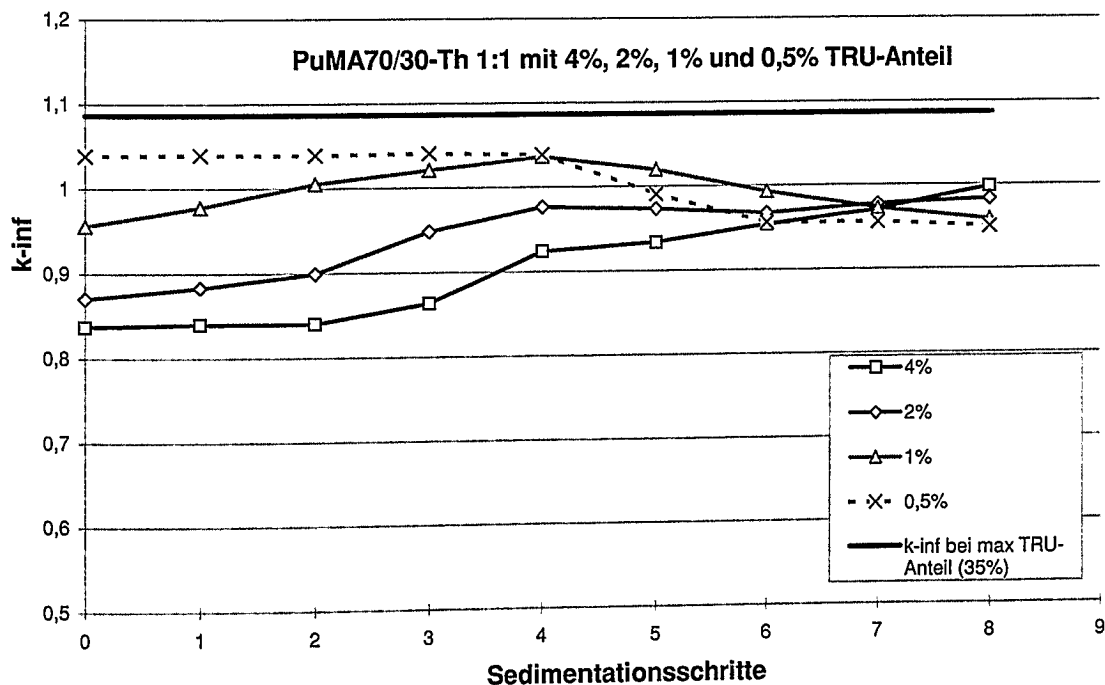


Abb. 4.10: Entwicklung des k_{∞} Wertes in Abhängigkeit der Ausgangskonzentrationen an Transuranen und dem Sedimentationsverlauf für ein PuMA70/30 – Th 1:1 Brennstoff bei $d = 3$ cm und $t = 8$ cm.

4.4 Schlußfolgerungen

Für den Betrieb des Jülicher Konzeptes eines thermischen Transmutationssystemes kommen hinsichtlich ihres chemischen Grundaufbaus drei Klassen von Gemischlösungen in Betracht. Für reine und kolloide Bleilösungen kommen nur TRU-Beladungen mit geringen Mengen in Betracht, wohingegen bei einer Dispersion/ Suspension auch höhere TRU-Beladungen in das Trägerfluid Blei eingebracht werden können. Hierbei muß aber der Ausfall der Bleiströmung und als Folge ein Sedimentationsverhalten des Brennstoffgemisches von vornherein berücksichtigt werden. Durch hohe Zusätze an Thorium können Pu und PuMA basierte Brennstoffe für bestimmte geometrische Kenngrößen des Blankets (Pitch) für alle vorkommenden TRU-Konzentrationen unterkritisch ausgelegt werden, so daß eine Sedimentation zu keiner Überkritikalität führen kann.

Weiterhin konnte nachgewiesen werden, daß auch Brennstoffe die a priori nicht sedimentationssicher hinsichtlich der Kritikalität sind, bis zu einem bestimmten TRU-Anteil in der homogenen Ausgangssituation auch im Falle einer Sedimentation unterkritisch bleiben, falls man die Masse (Verdünnung) im Brennstoffrohr einbezieht. Hierdurch erweitert sich die Anzahl der als Suspension einsatzfähigen Brennstoffgruppen auf drei (Pu-Th, PuMA-Th und PuMA70/30 Brennstoffe). Da diese Suspensionen einen höheren TRU-Anteil besitzen, bieten sich für diese Form des Brennstoffes ein „Batch“ Betriebsmodus an, das heißt, daß die Anlage ohne Unterbrechung und ohne weitere Brennstoffzufuhr und Spaltproduktabzug über einen längeren Zeitraum (z.B. 1 Jahr) betrieben werden kann. Hinsichtlich einer ingenieurtechnischen Realisierung würde dies enorme Vorteile aufweisen. Demzufolge wird im weiteren Verlauf zunächst die Eignung eines Batch Betriebes für sedimentationssichere Brennstoffsuspensionen betrachtet.

5 Batchbetrieb mit Brennstoffsuspensionen

Die Tatsache, daß auch Brennstoffkonzentrationen mit TRU-Anteilen von bis ca. 4%, je nach Randbedingung, auch im Falle einer Sedimentation unterkritisch bleiben, ermöglicht die Konzeption eines ADS im Batchbetrieb. Der Vorteil solch eines Betriebsmodus liegt im einfacheren Aufbau der Anlage, da sie ohne kontinuierliche Brennstoffaufarbeitung bzw. – zugabe auskommt. Der Brennstoff wird zu Beginn eines Zyklus eingefügt und nach Ablauf der Bestrahlungszeit komplett gewechselt. Da vernünftiger Weise aus Betriebsgründen eine Standzeit von ca. 1 Jahr angestrebt werden sollte, werden hierfür Brennstoffe mit einem hohem TRU-Anteil zwingend vorausgesetzt. Dies bedingt wiederum den Einsatz einer Blei-TRU-Suspension.

Ob der Batchbetrieb der Jülicher Anlage ein erfolgversprechender Einsatzweg für die Vernichtung von Transuranen darstellt und welche Schlußfolgerungen sich aus dem Abbrandverhalten der Brennstoffsuspensionen ziehen lassen, soll im nachfolgenden geklärt werden. Dabei gelten als erste Beurteilungskriterien folgende Anforderungen:

- Es soll ein maximaler Umsatz an TRU erreicht werden.
- Während des Betriebes soll ein Multiplikationsfaktor von $\sim k_{\text{eff}} = 0,95$ vorliegen.
- Der Abfall des Multiplikationsfaktors sollte möglichst gering sein.
- Ein niedriger Beschleunigerstrom ist anzustreben ($I \sim 10\text{mA}$ bis 40mA)
- Hohe Standzeiten für den Moderator.
- Niedrige Neutronenflüsse.

Exemplarisch wird dies für zwei Brennstofftypen, einmal PuMA-Th und einmal Pu-Th basierten Brennstoff, dargelegt. Da sich die Abbrandberechnungen nicht auf k_{eff} sondern k_{∞} beziehen, eine effektive Kritikalitätsbetrachtung und die benötigte Protonenstrahlleistung jedoch aus k_{∞} des Systems resultiert, gilt es vorab, die Abweichungen der unterschiedlichen Berechnungsmodi zu qualifizieren.

5.1 Vergleich von 1-D und 3-D Berechnungen

Aufgrund der Tatsache, daß die Abbrandberechnungen mit dem 1-dimensionalen SAS2H Steuermodul des SCALE Programmpaketes berechnet werden, besteht die Notwendigkeit, die gewonnenen Ergebnisse des Multiplikationsfaktors k in einem unendlich ausgedehnten System mit denen eines 3-dimensionalen Systems in Bezug zu setzen. Hierfür bietet sich eine Vergleichsberechnung exemplarischer Brennstoffe mit dem 1-dimensionalen SAS2H bzw. dem integrierten CSAS1X Code für den k_{∞} Wert und dem 3-dimensionalen KENO-V Code an, der einen k_{eff} Wert berechnet. Eine weitere 3-dimensionale Berechnung anhand des MORSE Codes dient der zusätzlichen Verifizierung der 3-D Berechnung. Kann aufgrund der Vergleichsberechnung eine Abweichungsgröße zwischen 1-D und 3-D Berechnungsverfahren bzw. k_{∞} und k_{eff} bestimmt werden, so erleichtert dies das weitere Vorgehen. Die Abbrandberechnungen können mit der zeitlich schnelleren 1-D Berechnung erfolgen und eine

Abschätzung der realen Verhaltensweise hinsichtlich des Multiplikationsfaktors anhand der bekannten Abweichungsgröße erfolgen. Die Vergleichsberechnungen wurden mit zwei unterschiedlichen Brennstofftypen mit einem Brennstoffrohrdurchmesser von 3 cm durchgeführt. Zum einen PuMA-Th Brennstoffe und zum anderen reine Pu-Th Brennstoffe. Zu jeder Gruppe wurden drei Beispielbrennstoffe herausgesucht. Die Beladung variiert dabei zwischen 2% und 5% TRU-Anteil im Brennstofffluid, das Thoriumverhältnis zwischen 1:2 und 1:4,5. Eingebracht wurde der Brennstoff in eine 3-D Geometrie wie sie in **Abb. 5.1** im X-Z Schnitt skizziert ist. Das Gesamtsystem weist eine zylindrische dreidimensionale Basisstruktur auf und umfaßt fünf Bereiche, die sich aus unterschiedlichen Materialien zusammensetzen. Zentral in der Anlage befindet sich das Target mit einer Höhe von 1,8 m und einem darüber befindlichem Hohlraum. Umschlossen wird das Target, welches selbst aus mehreren Schichten und Materialien besteht, vom Blanket, das einen Durchmesser von 4 m und eine Höhe von 2,5 m aufweist. In X-Richtung ist das Blanket von einer 1 m dicken Reflektorschicht aus Graphit umgeben. In der Z-Richtung, schließt sich dem 2,5 m hohem Blanket eine 50 cm Mischschicht aus 80% Graphit und 20% Blei an, um die Zuführungsleitungen des Kühlsystems mit in die Berechnungen einzubeziehen. Erst nach dieser Materialschicht wird dem Rechenmodell eine weitere 50 cm dicke Graphitschicht als Reflektor zugefügt.

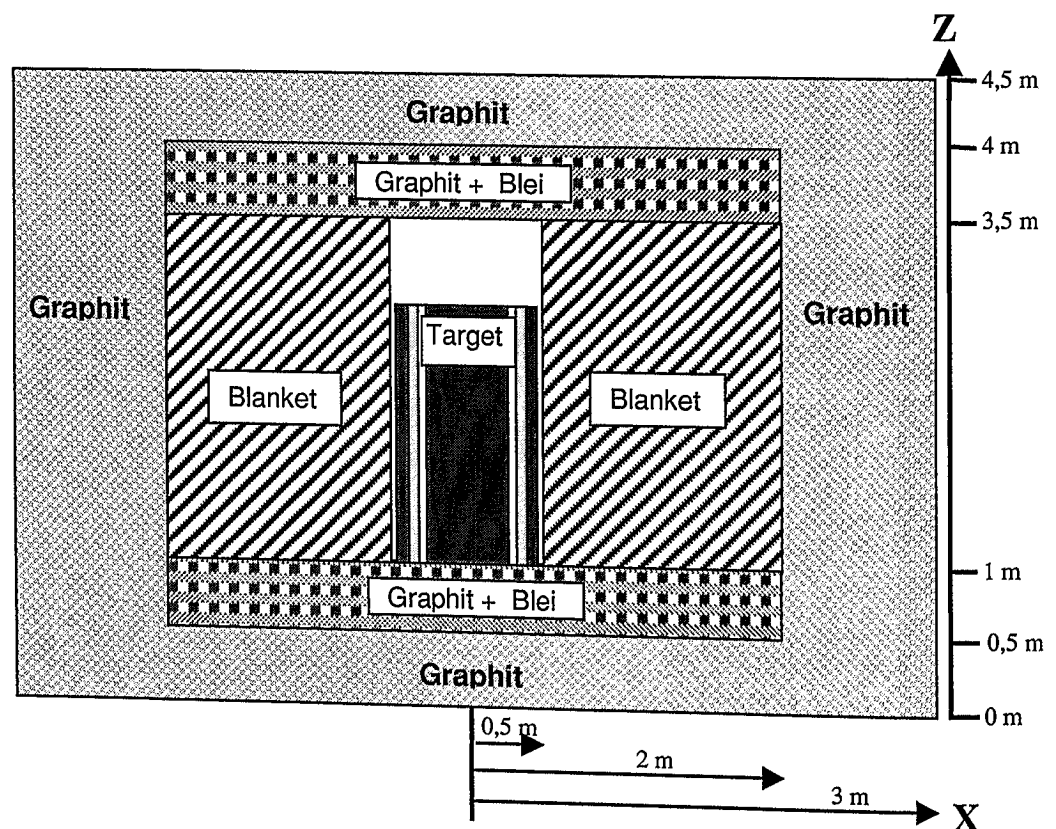


Abb. 5.1: Geometrie der 3-D Rechnung in X – Z Richtung.

Die Ergebnisse dieser Vergleichsberechnungen werden in **Abb. 5.2** dargestellt. Insgesamt sind die Unterschiede sehr gering und weisen nahezu immer die gleiche Tendenz auf. (Die Beispiele 3%Pu-Th1:4 und 2%Pu-Th1:4,5 bei jeweils einem Pitch von $t = 7,5$ cm führen zu keinem Ergebnis bei der MORSE Berechnung, da Werte >1 berechnet werden). Die k_{∞} Werte der 1-dimensionalen SAS2H Berechnung weisen die höchsten Werte aus, gefolgt von den 3-dimensionalen KENO-V Berechnungen. Die 3-dimensionalen MORSE Berechnungen führen zu den niedrigsten k -Werten. Alles im allem kann der Unterschied zwischen dem k_{∞} (1-D) und dem k_{eff} Wert in einer guten Annäherung mit 1,7 nile angegeben werden. Dieser Wert erscheint hinreichend genau, um im weiteren Vorgehen die Berechnungen in Form von 1-D Rechnungen durchzuführen und den k_{eff} Wert für weitergehende Schlußfolgerungen, wie z.B. die benötigte Protonenstrahlleistung abzuschätzen.

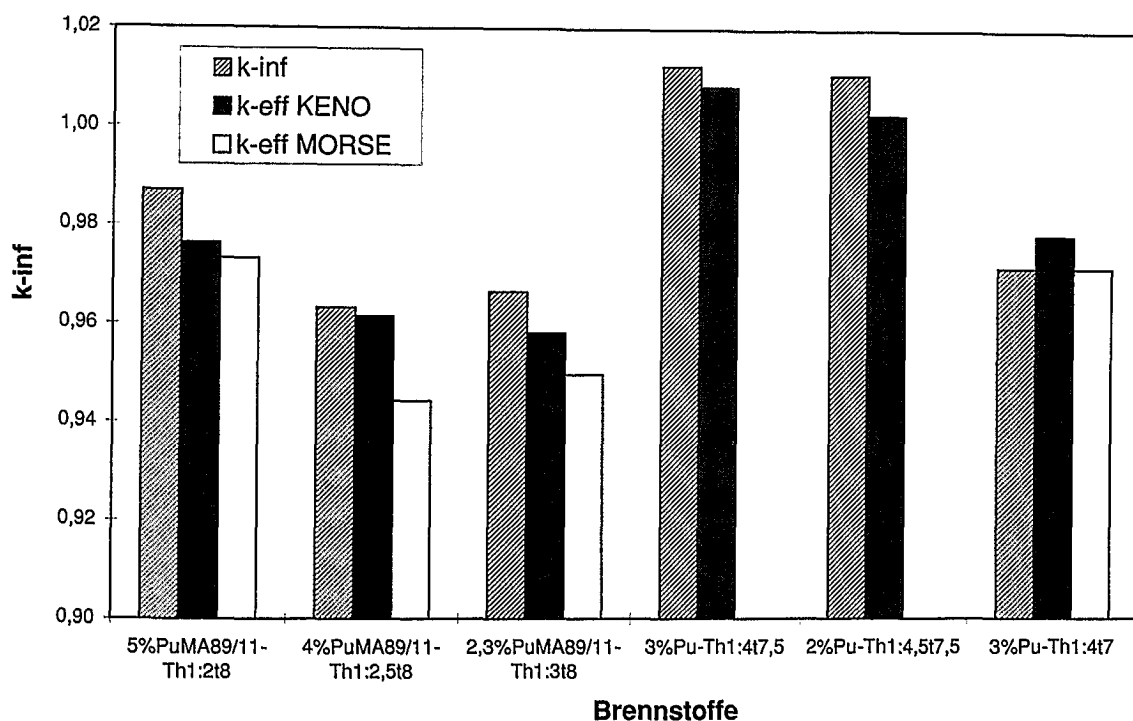


Abb. 5.2: Vergleich der 1-D (SAS2H) und 3-D (KENO-V und MORSE) Berechnungen.

5.2 Auswahl von Brennstoffen für den Batch Modus

Für einen unterkritischen Betrieb im Batch Modus ist ein wesentliches Kriterium die Stabilität des Eigenwertes. Dieser Wert sollte ungefähr $k_{\text{eff}} = 0,95$ betragen und möglichst konstant über die Betriebsdauer vorhanden sein. Dementsprechend gering ist die Steigerung des benötigten Protonenstrahls, bzw. der Beschleunigerleistung. In Folge der technischen Probleme Beschleuniger mit sehr hoher Energie zu realisieren, stellt ein konstant hoher k -Wert über der Abbrandzeit ein wesentliches Ziel der Brennstoffcharakteristika dar.

Für den Batchbetrieb kommen zwei Brennstoffgruppen zum Zuge. Zum einen die PuMA Gemische mit Th Anteilen und zum anderen die reinen LWR Pu Brennstoffe mit Th Anteilen. **Abb. 5.3** zeigt für einige ausgewählte Brennstoffkombinationen den Multiplikationsfaktorverlauf über einer Abbrandzeit von 1000 Tagen. Allen Rechnungen liegen die in Tab. 4.2 genannten Temperaturen zugrunde und gehen von einer Leistungsdichte von 170 MW/m^3 Brennstoff aus. Da ein aussagekräftiger Vergleichswert für 3-D (k_{eff}) und 1-D (k_{∞}) Berechnungen existiert, werden alle nachfolgenden Berechnungen anhand eines 1-D Rechenmodells durchgeführt.

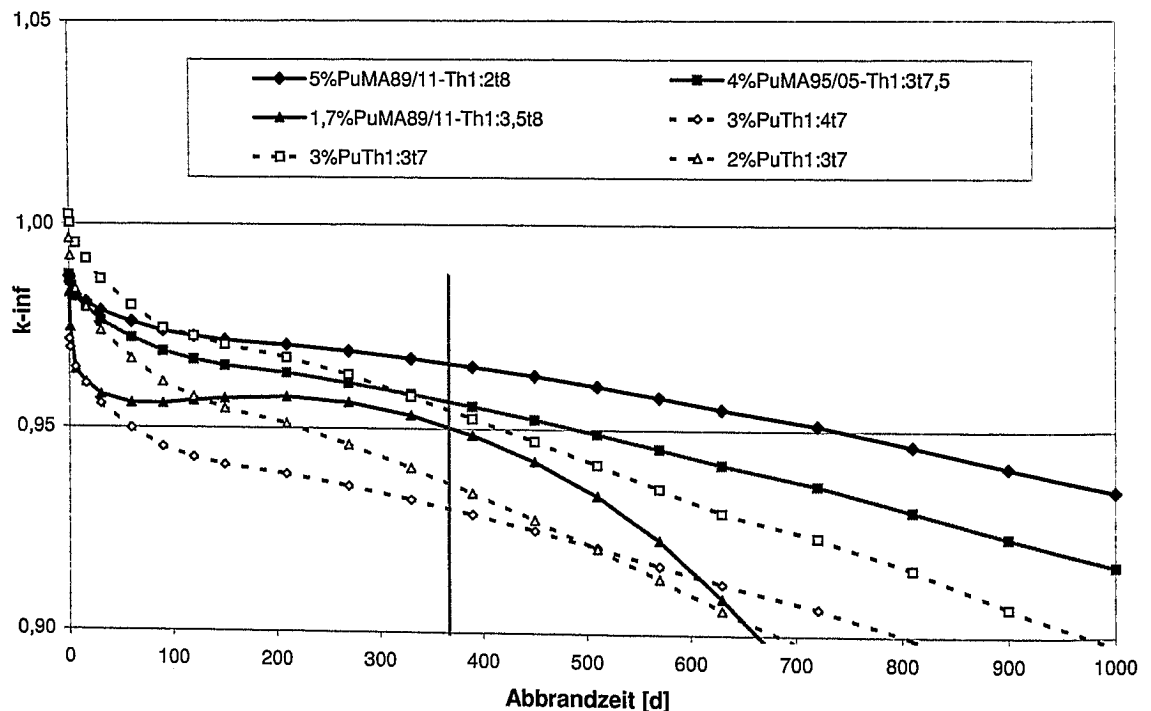


Abb. 5.3: k_{∞} für eine Gruppe von ausgesuchten Suspensionsbrennstoffen (SAS2H; 1-D).

Wird die angestrebte Betriebszeit von 1 Jahr (~ 330 efpd) betrachtet, so zeigt sich, daß etliche Brennstoffkombinationen die Vorgabe eines max. k -Wert Abfalles von 5 mlie erfüllen würden. Insbesondere die PuMA basierten Brennstoffe zeichnen sich durch einen recht stabilen Verlauf des k -Wert über 330d aus. Der geringe Abfall des Multiplikationsfaktors resultiert zum Teil auf die Bildung von spaltbaren Uran-233 aus Thorium-232. Somit wird das Gesamtsystem nicht nur durch Thorium in einen unterkritischen Bereich gehalten, sondern das neutronische Verhalten hinsichtlich des Eigenwertes nahezu stabilisiert. So weisen gerade die Brennstoffe mit einem sehr hohen Thoriumanteil einen stabilen Verlauf auf. Demzufolge stellt der k -Wert Verlauf kein entscheidendes Auswahlkriterium für die Beurteilung von einzelnen Brennstoffsuspensionen dar, da eine Vielzahl die Vorgabe erfüllen. Nur eine Abbranduntersuchung kann letztlich die Vor- und Nachteile der Brennstoffkombinationen aufzeigen.

5.3 Abbrandverhalten im Batch Modus

Um die Vor- und Nachteile einer Brennstoffsuspension in einem Batchbetriebsmodus für das Jülicher Konzept beurteilen zu können, ist die Betrachtung des zeitlichen Multiplikationsfaktorverlaufes nicht alleiniges Kriterium. Vielmehr bedarf es einer Abbrandanalyse. Diese wird exemplarisch für die beiden Brennstofftypen PuMA-Th und Pu-Th durchgeführt. Zum einen ist dies ein 5%PuMA89/11 basierter Brennstoff mit einem Verhältnis von 1:2 von TRU-Material zu Thorium bei einem Pitch von $t = 8$ cm, und zum anderen ist dies ein 3% Pu Brennstoff mit einem Verhältnis von 1:3 bei einem Pitch von $t = 7$ cm. In beiden Fällen liegt ein Brennstoffhüllrohrinnendurchmesser von $d = 3$ cm vor.

5%PuMA89/11-Th 1:2 t8

Der 5%ge PuMA89/11 Brennstoff mit einem Thoriumverhältnis von 1:2 und einem Pitch von $t = 8$ cm zeigt ein sehr ausgewogenes k_{∞} Verhalten hinsichtlich seiner Stabilität des Abbrandes. Zu Beginn des Zyklus (BOB abgekürzt) kann der aus dem k_{∞} Wert abgeleitete k_{eff} Wert mit 0,97 angegeben werden und nach dem hier betrachteten Zyklus von 330 d (efpd) fällt dieser Wert nur um 1,9 nile ab. Daher bietet dieser Brennstoff hinsichtlich der benötigten Beschleunigerleistung ein ausgewogenes Verhalten. Als Folge muß die Beschleunigerstromstärke P-current bei einer Beschleunigerspannung von 1,6 GeV und einer sehr konservativen Spallationsneutronenausbeute von 20 Neutronen je Proton, nur von 15 mA zu Beginn auf 25 mA am Ende des Zyklus ansteigen. Der Anstieg verläuft zudem sehr konstant. Dabei stellt sich ein gemittelter totaler Neutronenfuß von $4,6 \cdot 10^{14}$ [n/(cm²*s)] ein. Die Leistungsdichte beträgt im Blanket 21,7 MW/m³ und die thermische Gesamtleistung der Anlage 640 MW_{th}. Das Coreinventar besitzt zu Beginn eine Masse von 1545 kg Plutonium, 191 kg MA und insgesamt 5193 kg Schwermetalle. Nach 330 Tagen Abbrandzeit verringert sich das Pu In-

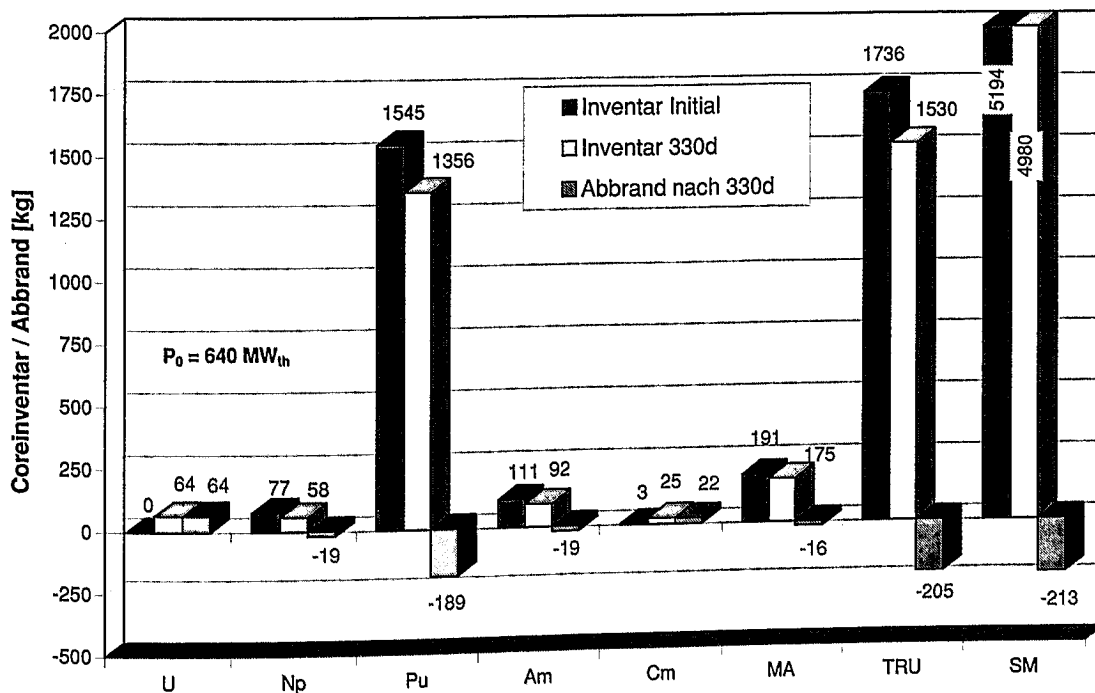


Abb. 5.4: Coreinventar und Nuklidabbrand für 5%PuMA89/11-Th 1:2 t8 Brennstoff.

ventar auf 1355 kg, das TRU Inventar auf 1594 kg und der Schwermetall Anteil auf 4980 kg. Werden die Mengen wie in **Abb. 5.4** nach den wichtigsten TRU Elementen aufgeschlüsselt, so stellt sich heraus, daß 19 kg Neptunium, 189 kg Plutonium und 19 kg Americium verbrannt, und gleichzeitig 22 kg Cm aufgebaut wurden. Hinzu kommt eine Brutrate von 72 kg Uran, wobei 8 kg direkt wieder umgewandelt wurden. Insgesamt wurden 205 kg TRU bzw. 213 kg Schwermetall umgesetzt. Auf 1 GW_{th}a normiert wurden 354 kg TRU bzw. 368 kg Schwermetall umgewandelt.

3%Pu-Th 1:3 t7

Für den 3%igen Pu Brennstoff mit einem Thoriumverhältnis von 1:3 und einem Pitch von $t = 7\text{cm}$ kann der k_{eff} Wert zum Zyklusbeginn (BOB) mit $k_{\text{eff}} = 0,978$ abgeschätzt werden. Nach der Abbrandzeit von 330 Tagen (EOB abgekürzt) fällt der Wert auf ungefähr $k_{\text{eff}} = 0,94$ ab. Als Konsequenz aus dem Abfall des Multiplikationsfaktors muß die Beschleunigerstromstärke P-current bei einer Beschleunigerspannung von 1,6 GeV und einer sehr konservativen Spallationsneutronenausbeute von 20 Neutronen je Proton von 14 mA zu Beginn auf 38 mA am Ende des Zyklus steigen. Der Anstieg verläuft auch bei diesem Brennstofftypus sehr konstant. Es stellt sich ein gemittelter totaler Neutronenfuß von $6,8 \cdot 10^{14} \text{ [n/(cm}^2\text{s)]}$ ein. Aufgrund des engeren Pitches im Vergleich zum 5%PuMA89/11-Th 1:2t8 Brennstoffs steigt die Leistungsdichte im Blanket auf $28,3 \text{ MW/m}^3$ und die thermische Gesamtleistung der Anlage somit auf $833 \text{ MW}_{\text{th}}$. Das Coreinventar besitzt zu Beginn eine Masse von 1360 kg Plutonium und insgesamt 5425 kg Schwermetall. Nach 330 Tagen Abbrandzeit verringert sich das Pu Inventar auf 1073 kg, das TRU Inventar auf 1100 kg und die Schwermetallmasse auf 5146 kg. Werden wiederum die Mengen wie in **Abb. 5.5** nach den wichtigsten TRU Elementen aufgeschlüsselt, so stellt sich heraus, daß 287 kg Plutonium verbrannt, und gleichzeitig 19 kg Americium und 8 kg Cm aufgebaut wurden; zusätzlich werden 126 kg Uran erbrütet,

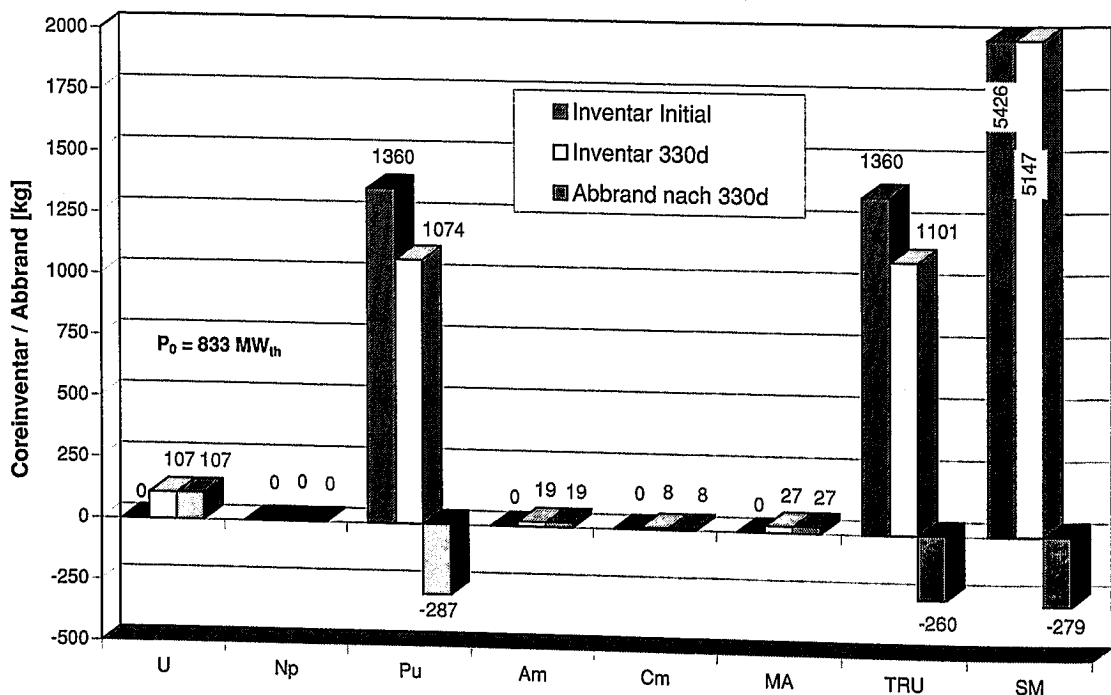


Abb. 5.5: Coreinventar und Nuklidabbrand für 3%Pu-Th 1:3 t7 Brennstoff.

wobei 19 kg direkt wieder umgewandelt wurden. Insgesamt wurden 260 kg TRU bzw. 279 kg Schwermetall umgesetzt. Auf 1 GW_{th}a normiert wurden 345 kg TRU bzw. 370 kg Schwermetall umgewandelt.

5.4 Bewertung des Batch Modus für das Jülicher Konzept

Beide Brennstofftypen verdeutlichen, daß ein Batchbetrieb mit dem Konzept einer thermischen, unterkritischen Anlage aus neutronischer Sicht möglich ist. Der Abfall des Multiplikationsfaktors kann durch eine geeignete Menge an Spaltmaterial in Kombination mit einer Thoriumzugabe begrenzt werden. So beträgt er in den hier gezeigten Beispielen nur ca. 2 nile. Die Umwandlungsrate von 354 kg TRU/GW_{th}a bzw. 345 kg TRU/GW_{th}a ist mit über 90% der theoretisch möglichen von 375 kg TRU/GW_{th}a sehr hoch. Bei beiden Systemen kommt es aber zu einem Cm Aufbau. Beim PuMA basierten Brennstoffen wird neben Pu auch Americium auch Neptunium verbrannt. Als Nachteil erscheint das hohe Inventar an Transuranen und Schwermetallen wie in **Tab. 5.1** dargestellt. Insbesondere der Thoriumanteil

Tab. 5.1: Systemcharakteristika für einen Batchbetrieb.

Kenndaten	5%PuMA89/11- Th 1:2 t8	3%Pu-Th 1:3 t7
k _{eff} BOB/EOB	0,97 / 0,951	0,978 / 0,94
Beschl.-Stromstärke I BOB/EOB	15 mA/ 25 mA	14 mA/ 38 mA
Leistungsdichte Blanket	21,7 MW/m ³	28,3 MW/m ³
Anlagenleistung	640 MW _{th}	833 MW _{th}
Umsatz TRU Anl./GW _{th} a	205 / 354 kg	260 / 345 kg
Coreinventar EOB TRU / SM	1530 / 4980 kg	1101 / 5147 kg
Gesamtinventar der Anlage Einkreisystem TRU / SM	6,73 / 20,5 t	5,18 / 21,4 t
TRU Verhältnis Abbrand/Inventar EOB		
Zweikreiskühlsystem	0,134	0,236
Einkreiskühlsystem	0,03	0,05

von 10% bzw. 9% erhöht die Masse an Schwermetallen auf über 5 t. Zudem erscheint es unter betrieblichen Aspekten (Schmirgeleffekt) fraglich, ob solch hohe Konzentrationen von Thorium in Blei als Suspension eingebracht werden können /GME 92/ (vgl. Anhang E 1). Da sich die Inventarberechnungen auf das Core beziehen, und dementsprechend nur für ein Zweikreiskühl-

system gelten, würde die Masse an TRU bzw. Schwermetallen in einer Anlage bei einem Einkreiskühlsystem um ca. das 3-fache ansteigen (vgl. Kap. 3.2.2). Da es noch keine abschließende thermodynamische Untersuchung über das Kühlsystem der ADS Anlage gibt, müssen beide Varianten beachtet werden. Wird dementsprechend das TRU Anlageninventar für den Fall einer Einkreisanlage berechnet, so führt dies zu einer nicht akzeptablen Gesamtmasse von ca. 5 t an TRU und 20 t Schwermetallen. Die relative Umsatzrate von transmutierter Masse an TRU zu Inventarmasse an TRU am Zyklusende würde von einem Verhältnis von 0,134 (PuMA) bzw. 0,236 (Pu) auf 0,03 (PuMA) bzw. 0,05 (Pu) sinken. Diese schlechte Relation könnte nur durch eine längere Zyklusdauer verbessert werden, was jedoch wieder hinsichtlich des abfallenden Multiplikationsfaktors zu Problemen führt. Dadurch würde die benötigte Beschleunigerleistung zwangsweise ansteigen müssen.

Insgesamt erscheint daher zwar ein Batchbetrieb als möglich, doch weist das Konzept keine Vorteile hinsichtlich der Abbrandergebnisse gegenüber kritischen thermischen oder schnellen Systemen auf. Vielmehr erscheint der benötigte hohe Thoriumanteil als extrem ungünstig und schwer in eine Bleisuspension einbringbar. Das Gesamtinventar an TRU im Core und bei einer Zweikreisanlage im System erscheint im Vergleich zu anderen thermischen Systemen, vgl. /BOW 91/ sehr hoch und kann eher mit den hohen TRU Massen in einem schnellen System verglichen werden. Dies wirft insbesondere bei der Handhabung und hinsichtlich der Proliferation zusätzliche Probleme auf. Somit weist zwar ein Batchsystem Vorteile hinsichtlich der technischen Realisierbarkeit auf, da weder eine kontinuierliche Extraktion von Spaltprodukten noch eine kontinuierliche Zugabe an frischen Spaltstoffen benötigt werden, doch ist diese Betriebsart nicht geeignet, die potentiellen Vorteile eines thermischen Systems auszunutzen und weist im eigentlichen Abbrandverhalten keine Vorteile auf.

6 Betrieb mit kontinuierlicher Beschickung und Extraktion

Ein flüssiger Brennstoff bietet die Möglichkeit, den Betrieb der Anlage mit einer kontinuierlichen Zugabe an Transuranen und Extraktion von Spaltprodukten durchzuführen. Dies beinhaltet zwar einen wesentlich höheren technischen Aufwand, wie in **Abb. 6.1** skizziert, doch eröffnet dies die Nutzung ganz anders gearteter Brennstoffe als in einem Batchbetrieb.

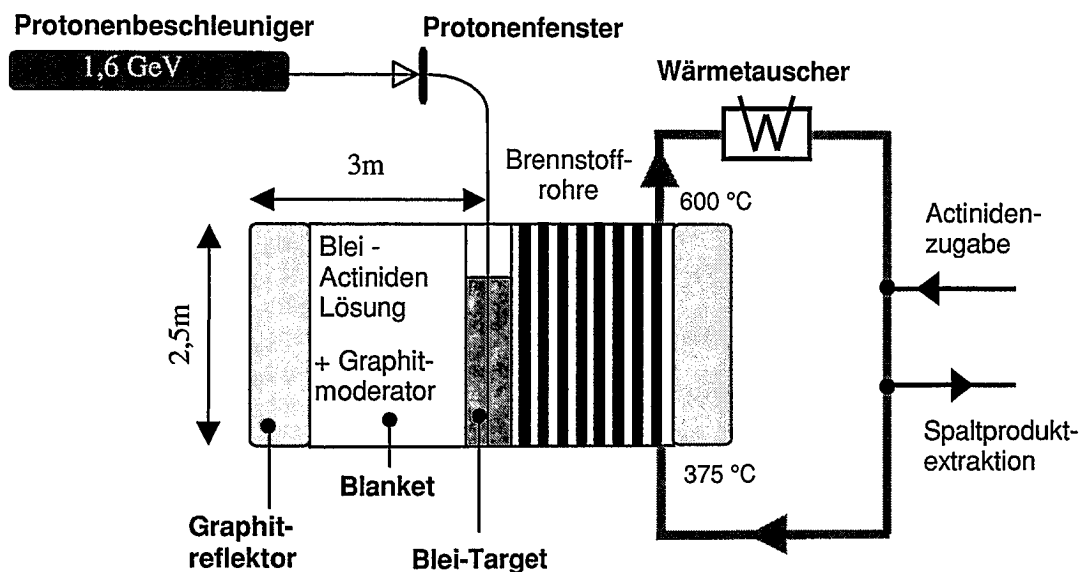


Abb. 6.1: Jülicher Konzept mit kontinuierlicher Beschickung und Extraktion.

Ist in einem Batchbetrieb die TRU-Beladung nach der Zykluslänge zu bemessen und kamen ausschließlich Brennstoff Suspensionen zum Einsatz, so können in einer Anlage mit kontinuierlicher Brennstoffzugabe Brennstoffkombinationen zum Tragen kommen, welche sich durch sehr geringe TRU-Konzentrationen ($TRU < 0,5\%$ BOB) auszeichnen. Somit sind die Blei-Brennstoffgemische mit 99,5% Blei eher im Bereich der homogenen bzw. kolloiden Lösungen anzusiedeln. Dies stellt hinsichtlich eines Pumpenausfalls und Stagnation der Strömung ein wesentliches und positives Sicherheitselement dar, da dieser Störfall nicht zu Sedimentationen führen kann. Zusätzlich führt dies zu geringen TRU Massen innerhalb des Cores und der Anlage, was wiederum die Betriebssicherheit erhöht und die Handhabung erleichtert. Das Proliferationsrisiko nimmt zeitgleich mit sinkenden Actinideninventaren ab. Somit wird ein wesentlicher Vorteil thermischer Systeme durch den Einsatz flüssiger Brennstoffe unterstützt bzw. verstärkt. Die Fragestellung ob ein Einkreis- oder Zweikreiskühlsystem zur Anwendung kommt, bleibt auch bei einem kontinuierlichen Betrieb offen, da dies primär von der thermodynamischen Auslegung abhängt und nicht von dem Betriebsmodus der Anlage.

Um einen kontinuierlichen Betrieb mit Zugabe an frischem TRU und Extraktion an Spaltprodukten rechenstechnisch simulieren zu können, wurde mittels des SCALE 4.2 Programmpaketes das Abbrandmodul BURNUP entworfen. Dieses Steuermodul verknüpft einzelne Berechnungsprogramme (BONAMI-S, NITAWL-II/S, XSDRNPM-S, COUPLE und ORIGEN-S) und ist in der Lage nach vorgegebenen Abbrandschritten einen definierten TRU-Nuklidvektor zu dem bestehenden Brennstoffvektor hinzuzufügen und eine Extraktion an Spaltprodukten bzw. Thorium mit vorgegebenen Extraktionsfaktoren durchzuführen.

Die Notwendigkeit Thorium zum Zyklusbeginn dem Brennstoff zuzugeben und während des Betriebes zu extrahieren ergibt sich aus seiner neutronenabsorbierenden Eigenschaft. Im Anfangsstadium des Betriebs dient Thorium dazu, die existierende Überkritikalität bzw. Reaktivität einiger Brennstoffkombinationen zu binden. Dadurch können nicht nur von Beginn an unterkritische Brennstoffe zum Einsatz kommen, sondern auch diejenigen, die erst

Tab. 6.1: Kenndaten des Berechnungssystems.

Kenndaten	Werte
Temp. Brennstoff	773 K
Temp. Hüllrohr	773 K
Temp. Spalt	773 K
Temp. Graphit	600 K
Leistungsdichte Brennstoff	170 MW/m ³
Vektor der nachzufüllen- den TRU-Zugabe	Ausgangsvektor des frischen Brennstoffs
Masse an TRU-Zugabe	Definierte vielfache der Ausgangsbeladung des frischen Brennstoffs
Spaltprodukt- extraktionsfaktor	0,5
Anzahl der extrahierten Spaltprodukte	15
Thoriumextraktionsfaktor	0,015 – 0,10

nach einem Teilabbrand des Inventars bzw. Aufbau von Spaltprodukten unterkritisch sind. Dementsprechend wird Thorium zum binden der Reaktivität nur im Anfangsverlauf benötigt. Hinsichtlich der Stabilisierung des Multiplikationsfaktors auf einem hohen unterkritischen Niveau wirkt sich Thorium nun sogar kontraproduktiv aus. Da die Brutrate von U-233 aus Th-232 nicht ausreicht, die Absenkung des k -Wertes auszugleichen, bietet sich eine Extraktion von Thorium an, um den Multiplikationsfaktor zu stabilisieren.

Für die Extraktion an Spaltprodukten bzw. Thorium müssen daher zum einen die zu extrahierenden Elemente benannt und zum anderen der Extraktionsfaktor definiert werden. Unter dem Extraktionsfaktor wird die Kennzahl verstanden, um welchen Faktor ein Element im Brennstoff vermindert wird. Bei den hier durchgeführten Berechnungen wird ein Extraktionsfaktor von 50% für Spaltprodukte vorgegeben. Dies bedeutet somit, daß 50% der im Brennstoff vorhandenen Masse eines Elementes aus dem Brennstoff entfernt wird. Als zu extrahierende Elemente wurden Xe, J, Sm, Ce, Nd, Cs, Sr, Y, Mo, Ru, Rh, Pd, Sb, Te und Ba festgelegt. Für Thorium, soweit im Brennstoff vorhanden, gilt ein variabler Extraktionsfaktor von 1,5% bis 10%, je nach Abbrandzeit. Die Temperaturen und die Leistungsdichte der Anlage blieben erhalten. Die wesentlichen Kenndaten des Berechnungssystems faßt **Tab. 6.1** zusammen. Eine Beschreibung der Rechenabläufe findet sich im Anhang F 1.

Um die Eignung dieser niedrig konzentrierten Brennstofflösungen zu untersuchen, gliedert sich das weitere Vorgehen in drei Schritte. Im ersten Schritt werden Brennstoffkombinationen hinsichtlich ihres Eigenwertes k_{∞} in Abhängigkeit der Abbrandzeit untersucht. Dabei kristallisierten sich 6 Brennstoffe heraus, die im folgenden vorgestellt werden. Daraufhin erfolgt eine Abbranduntersuchung der ausgesuchten Brennstoffe für ein Jahr Betriebszeit bei kontinuierlicher TRU-Zugabe und kontinuierlicher Extraktion von 15 Spaltprodukten. Eine Bewertung des Abbrandverhaltens und der Systemeigenschaften schließt das Kapitel ab.

6.1 Multiplikationsfaktor von Brennstoffen niedriger TRU Konzentration

Auf der Grundlage der in Kap. 4.2 durchgeführten Parameterstudie bieten sich 2 Gruppen mit je 3 Brennstoffarten zur weitergehenden Untersuchung als niedrig konzentrierte Brennstoffe an. Zum einen handelt es sich um die Gruppe der auf Thorium basierten Brennstoffe und zum anderen um die der thoriumfreien Brennstoffe. Hierbei können jeweils unterschiedliche TRU-Zusammensetzungen zum Einsatz kommen (vgl. Tab. 4.1). Unter Vernachlässigung der Pu-MA80/20 Spaltstoffzusammensetzung, welche nicht näher betrachtet werden soll, ergeben sich folgende sechs Möglichkeiten:

- Reiner Pu Spaltstoff mit Thoriumanteilen (Pu-Th abgekürzt).
- Pu mit Minor Actinides in einem 89% Pu, 11% MA Verhältnis mit Thoriumanteilen (PuMA89/11-Th abgekürzt).
- Pu mit Minor Actinides in einem 70% Pu, 30% MA Verhältnis mit Thoriumanteilen (PuMA70/30-Th abgekürzt).
- Reiner Pu Spaltstoff in Bleilösung (Pu abgekürzt).
- Pu mit Minor Actinides in einem 89% Pu, 11% MA Verhältnis in Bleilösung (PuMA89/11 abgekürzt).
- Pu mit Minor Actinides in einem 70% Pu, 30% MA Verhältnis in Bleilösung (PuMA70/30 abgekürzt).

Diese Brennstoffarten werden in Bezug auf die freien Parameter Pitch, TRU-Konzentration zu Beginn (BOB), Thoriumanteil und der quasi kontinuierlichen Zugabe an Transurane bzw. Spaltstoffmassen geprüft. Als Kriterium gilt wiederum der über den Abbrandzeitraum möglichst konstant zu haltende Multiplikationsfaktor, da der Beschleuniger bzw. der Protonenstrahl nur eine begrenzte Menge an Spallationsneutronen bereitstellen kann. Als Abbrand- und Vergleichszeitraum werden 365 Vollasttage verwendet. Wiederum beziehen sich die Berechnungen auf den Eigenwert k_{∞} des Systems.

Abb. 6.2 verdeutlicht die Auswirkungen auf den k_{∞} Wert von unterschiedlichen Spaltstoffzugaben während des Betriebes am Beispiel eines 0,1%Pu-Th 1:3 t = 5,95 cm Brennstoffs. Aufgrund der enormen Unterschiede des k Wertes von bis zu 4 nile (Zugabemodus A zu C) kann festgehalten werden, daß das System sehr sensibel auf die Änderungen der zugeführten Spaltstoffmassen reagiert und somit hervorragend einjustiert werden kann. Im Unterschied zum Batchbetrieb kann mit Hilfe eines geeigneten Zugabemodus an Spaltstoffen der Multiplikationsfaktor der Anlage aktiv bestimmt, und somit den auftretenden Anforderungen angepaßt werden. In dieser Stufe der Brennstoffanalyse werden die zu vergleichenden Brennstoffarten auf einen Multiplikationsfaktor von ungefähr $k_{\infty} = 1$ eingestellt, wohl wissend, daß dies nicht den realen Betriebspunkt darstellt. Die Untersuchungen innerhalb jeder einzelnen Brennstoffart führen letztlich zu beispielhaften Brennstoffen und Konfigurationen, die im weiteren Verlauf miteinander verglichen werden können. Für die Pu-Th Brennstoffe wurde eine 0,1%Pu-Th 1:3 t5,95, für die PuMA89/11-Th Brennstoffe eine 0,1%PuMA89/11-Th 1:9 t6,95, für die PuMA70/30-Th Brennstoffe eine 0,15%PuMA70/30-Th 1:3t8, für die Pu Brennstoffe eine 0,05%Pu t8, für die PuMA89/11 Brennstoffe eine 0,05%PuMA89/11 t8 und für die

PuMA70/30 Brennstoffe eine 0,1%PuMA70/30 t8 Kombination mit zugehörigem TRU-Zugabemodus entwickelt.

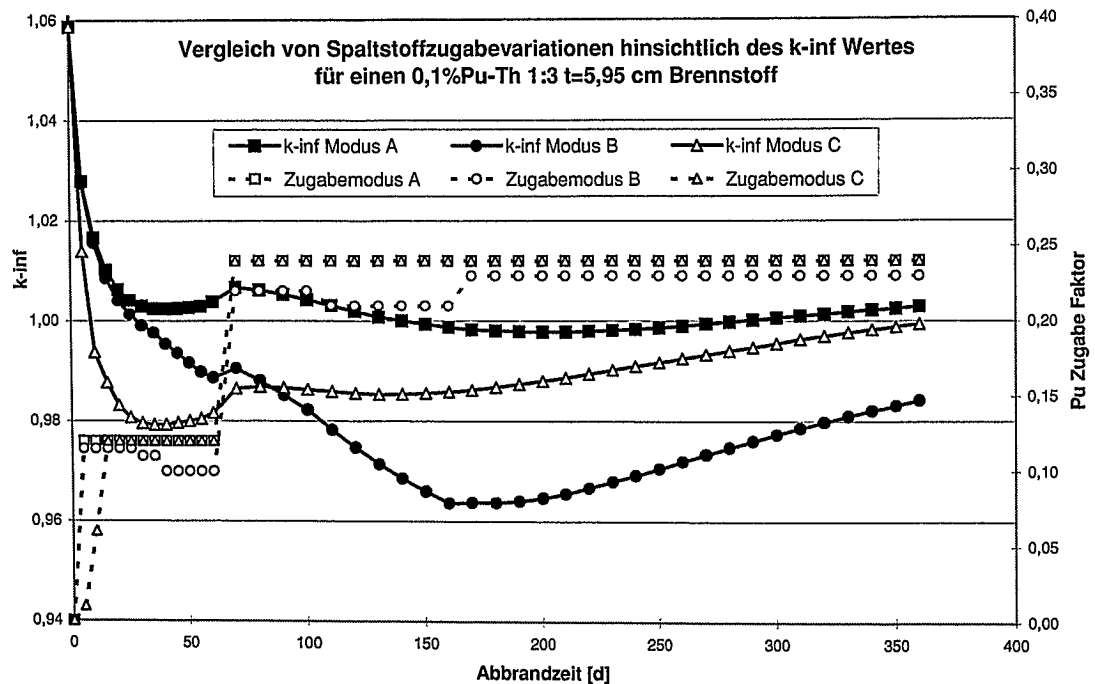


Abb. 6.2: Spaltstoffzugabevariationen für einen 0,1%Pu-Th 1:3 t = 5,95 cm Brennstoff.

Abb. 6.3 stellt den Multiplikationsfaktorverlauf während des Abbrandes von einem Jahr für die genannten Brennstoffe gegenüber. Die vier Brennstoffe 0,05%Pu t8, 0,05%PuMA t8, 0,1%Pu-Th 1:3 t5,95 und 0,1%PuMA89/11-Th 1:9 t6,95 weisen einen k Wert Verlauf auf, der nach einem kurzzeitigen Einbrechen zu Beginn (Xenonaufbau) sehr gut nahe dem $k_{\infty} = 1$ Wert stabilisiert werden kann. Aus dieser Gruppe benötigt einzig der 0,1%Pu-Th 1:3 t5,95

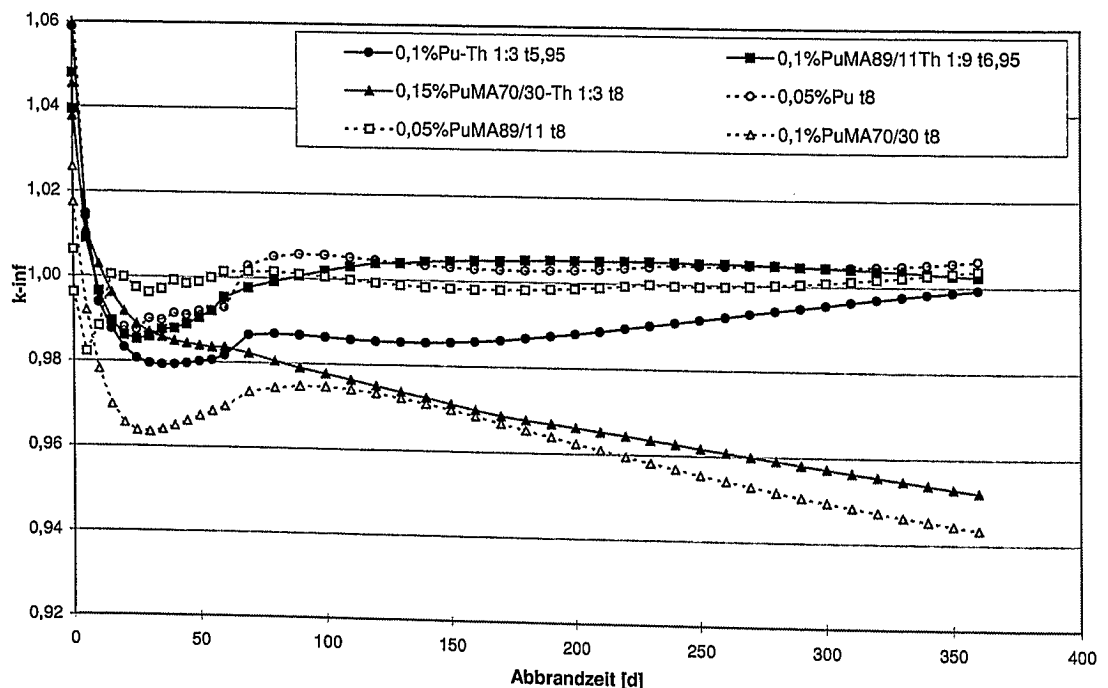


Abb. 6.3: Vergleich des k_{∞} Wertes für ausgewählte Brennstoffarten mit geringen (<0,5%) TRU Anteil.

Brennstoff eine etwas längere Zeit, um ein Niveau von $k_{\infty} \sim 1$ zu erreichen. Die beiden Brennstoffe auf PuMA70/30 Basis erreichen dieses Ziel nicht. Sowohl der 0,15%PuMA70/30-Th 1:3P8 als auch der 0,1PuMA70/30 t8 Brennstoff weisen trotz optimierter TRU-Zugabe einen konstanten Abfall des Multiplikationsfaktors auf unter $k_{\infty} = 0,96$ auf. Die Differenz zwischen BOB und EOB kann mit ungefähr 5 nile (0,15%PuMA70/30-Th 1:3 t8) bzw. 6 nile (0,1%PuMA70/30 t8) angegeben werden. Somit wäre dies noch in dem geforderten Rahmen. Naturgemäß zeigen die Brennstoffkombinationen mit den geringsten TRU-Anteilen den stärksten Einfluß hinsichtlich der TRU-Zugabe. Somit bieten sich zur Kontrolle und Regelung der Kritikalität gerade die niedrigst beladenen Brennstoffe (0,05% TRU-Anteil BOB) an. Erst eine Analyse des Abbrandverhaltens ermöglicht, auch qualitative Unterschiede der Brennstoffe heraus zuarbeiten.

6.2 Abbrandverhalten von Brennstoffen im kontinuierlichen Betrieb

Um das Abbrandverhalten von Brennstoffkombinationen mit unterschiedlicher TRU-Beladung und geometrischen Moderationsverhältnis, was wiederum direkt die Anlagenleistung bei vorgegebenem Blanketvolumen bestimmt, sinnvoll miteinander vergleichen zu können, bietet sich eine Normierung der Leistung auf ein GW_{th} und einer Abbranddauer von einem Jahr (365 efpd) an. Erst auf dieser Vergleichsgrundlage kann die ermittelte Abbrandrate bzw. der TRU Umsatz in Relation zur max. Umsatzrate von ~ 375 kg TRU/ $GW_{th}a$ bzw. zu den anderen Brennstoffen gesetzt werden. Als weitere Kenndaten zur Beurteilung der Systeme werden die Ausgangsmasse des TRU-Inventars (BOB) und zum Abbrandende (EOB) aufgeführt. Die Darstellung der Abbrandergebnisse gliedert sich naturgemäß in die Gruppe der Thorium basierten Brennstoffe und in die der reinen Pu und PuMA Brennstoffe ohne Thoriumzusatz.

6.2.1 Thorium basierte Brennstoffe

Abb. 6.4 zeigt das Abbrandergebnis für den 0,1%Pu, 0,3%Th und 99,6% Blei (0,1%Pu-Th 1:3) Brennstoff bei einem Pitch von $t = 5,95$ cm. In einem GW_{th} a wird ein Abbrand von 356 kg TRU erreicht. Zeitgleich bilden sich 37 kg Minor Actinides in Form von Am und Cm und das Inventar steigt um das 3-fache von 54 kg/ GW_{th} auf 159 kg/ GW_{th} . Kommt statt des reinen Pu-Th ein PuMA-Th Brennstoff zum Tragen, so nimmt die transmutierte Pu Masse im gleichen Verhältnis ab, wie der MA Anteil im Ausgangsbrennstoff ansteigt und Actinide in Form von Np und Am abgebrannt werden. Als Konsequenz sinkt die Pu Umsatzrate bei einem 0,1%PuMA89/11-Th 1:9 Brennstoff mit einem Pitch von $t = 6,95$ cm (**Abb. 6.5**) auf 345 kg und für den 0,15%PuMA70/30-Th 1:3 Brennstoff bei $t = 8$ cm sinkt der Pu Abbrand weiter auf 275 kg (**Abb. 6.6**). Das Verhalten hinsichtlich der Np und Am Elemente ändert sich mit den eingesetzten Brennstoffen grundlegend. Kommt es in einem reinen Pu-Th Fall zu einer Produktion der Stoffe, so findet mit zunehmenden Einsatz der Minor Actinides im Brennstoff ein Konsum an Np und Am statt. Der Abbrand beträgt für einen PuMA89/11-Th Fall 15 kg Np und 17 kg Am (**Abb. 6.5**) und kann durch die Verwendung höherer MA Anteile (PuMA70/30) auf 50 kg Np und 96 kg Am (**Abb. 6.6**) gesteigert werden. In Bezug auf Curium muß festgestellt werden, daß keine der angesprochenen Th basierten Brennstoffkombination

nen in der Lage ist, Cm zu vernichten. In allen drei Brennstoffarten kommt es zu einem Aufbau der Cm-Nuklide.

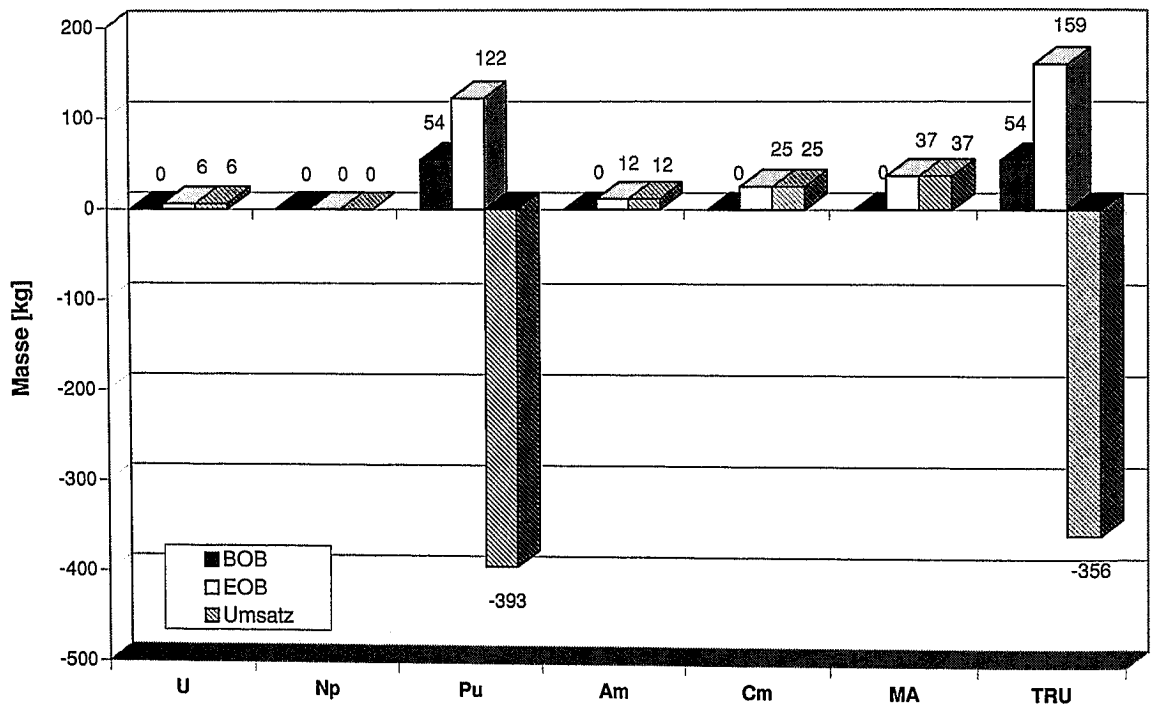


Abb. 6.4: Inventar/ Umsatz nach einem Abbrand von 1 GW_{th}a für 0,1%Pu-Th 1:3 t_{5,95}.

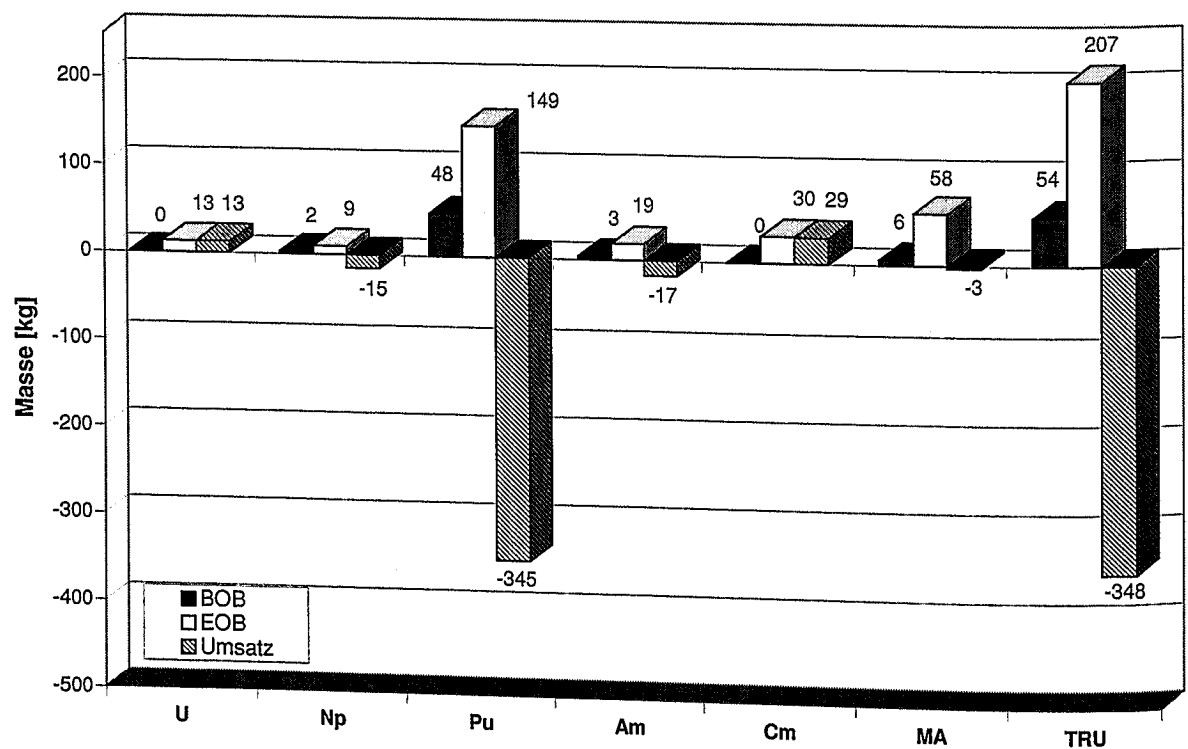


Abb. 6.5: Inventar/ Umsatz nach einem Abbrand von 1 GW_{th}a für 0,1%PuMA89/11-Th 1:9 t_{6,95}.

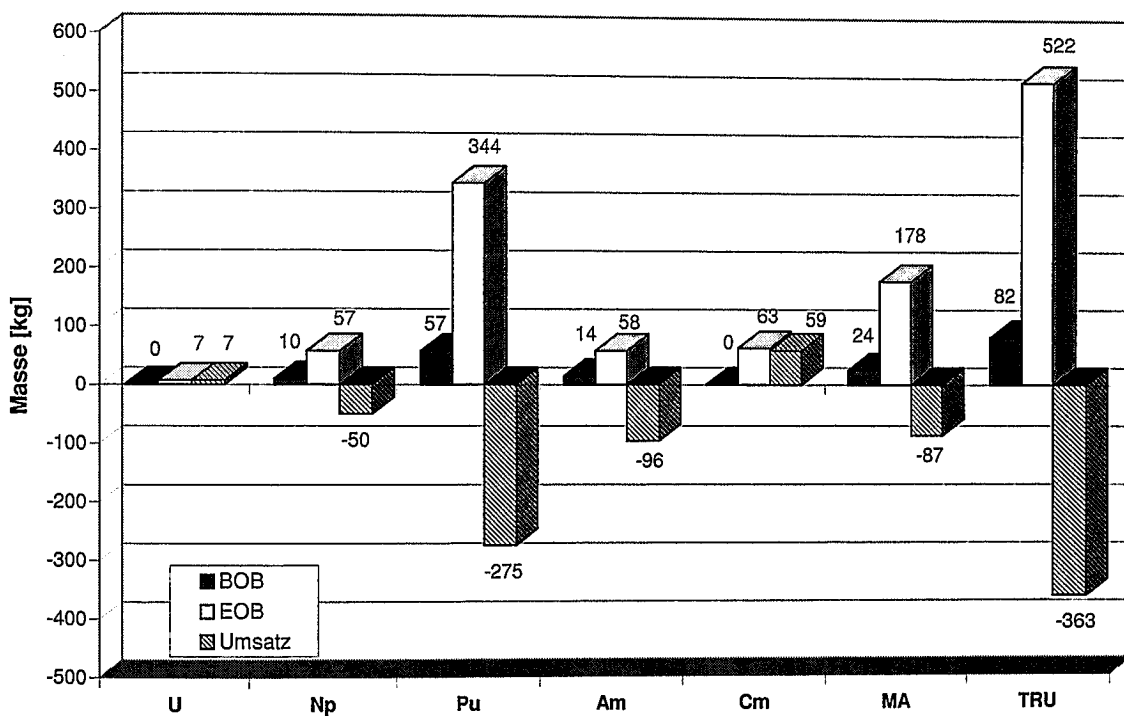


Abb. 6.6: Inventar/ Umsatz nach einem Abbrand von 1 GW_{th}a für 0,15%PuMA70/30-Th 1:3 t8.

Insgesamt weist die Brennstoffkombination mit dem höchsten MA Anteil (PuMA70/30) mit 363 kg die größte Umsatzrate an TRU auf. Aber als Kehrseite dieser hohen Abbrandrate steigt das Inventar im Kern innerhalb des Abbrandjahres um mehr als das 6-fache auf 522 kg TRU bei gleichzeitigem Absinken des Multiplikationsfaktors. Die niedrigste TRU Umsatzrate mit 348 kg erreicht der 0,1%PuMA-Th 1:9 Brennstoff. Der hohe Thoriumanteil führt dabei zu einem Aufbau von ca. 19 kg Uran-233, wobei ungefähr 6 kg an U-233 wiederum gespalten wurden. Eine Bilanz über die Trans Thorium (TRTh) Masse fällt mit 354 kg positiver aus. Das Inventar steigt im gleichen Zeitraum um den Faktor 4 an.

6.2.2 Reine Pu und PuMA Brennstoffe

Festlegung des Pitch t

Nach längeren Simulationsberechnungen zu unterschiedlichen Brennstoffkombinationen kristallisiert sich heraus, daß reine Pu und PuMA basierte Brennstoffe die Möglichkeit bieten das Coreinventar an TRU nochmals zu senken, da hier sehr niedrige Konzentrationen an Spaltmaterial von nur 0,05% zum Einsatz kommen können. Dementsprechend besteht der „Brennstoff“ in der Anfangsphase zu 99,95% aus flüssigem Blei. Trotz dieser niedrigen Konzentration erreicht der Brennstoff aufgrund einer extrem guten Moderation eine leichte Überkritikalität bei einem Pitch von 8 cm im Falle des PuMA89/11 Brennstoffes. Dieser Pitch führt, wie in Abb. 6.7 dargestellt, zu einem idealen Moderationsverhältnis und zum maximalen Multiplikationsfaktor für diese Brennstoffkonzentration. Wird der ideale Moderationspunkt von t = 8 cm in das Moderationsverhältnis von Graphitatomten zu TRU Atomen umgerechnet, so ergibt sich ein Moderationsverhältnis von $MV = 40298$.

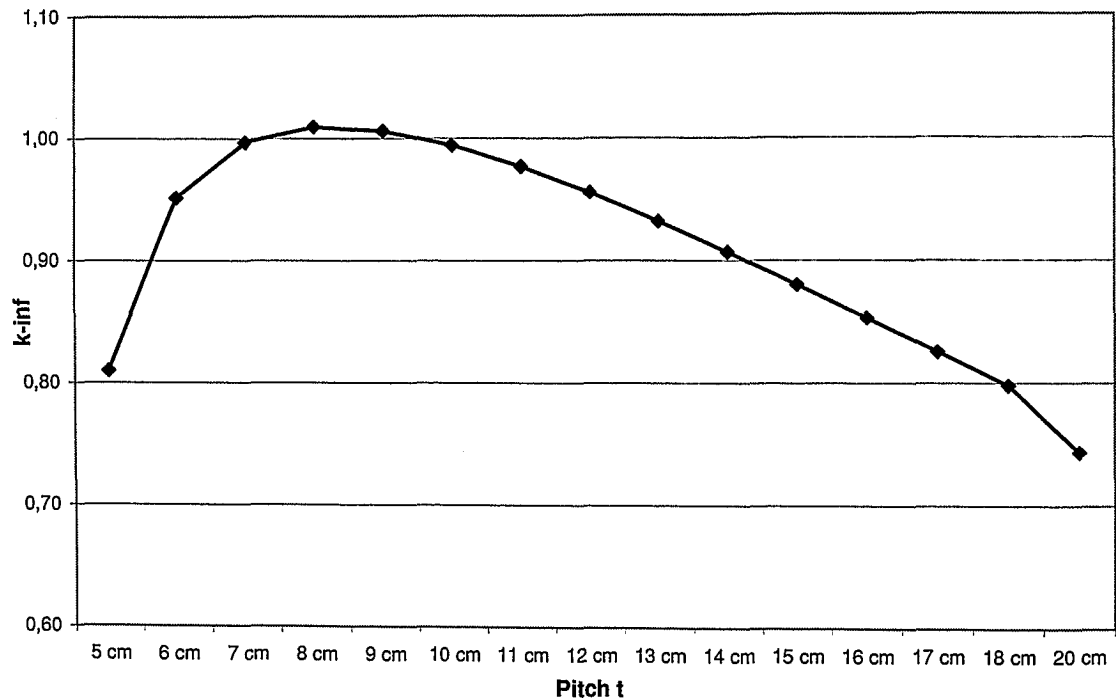


Abb. 6.7: k_{∞} in Abhängigkeit vom Pitch t für einen niedrigst konzentrierten Brennstoff mit 0,05%PuMA89/11.

Ein weiterer Grund für die Nutzung eines 8 cm Pitches wurde bei den Abbrandstudien zum 0,05%Pu Brennstoff deutlich. Hierbei wurden zwei Pitchvarianten von 7,1 cm und 8 cm miteinander verglichen. Es stellte sich heraus, daß beide Kombinationen bei gleichen Pu Eingabe Faktoren zwar zu ähnlichen Multiplikationsfaktoren gelangen (Abb. 6.8), doch unterscheiden sich die Varianten deutlich hinsichtlich ihres Abbrandes. So kann allein durch die

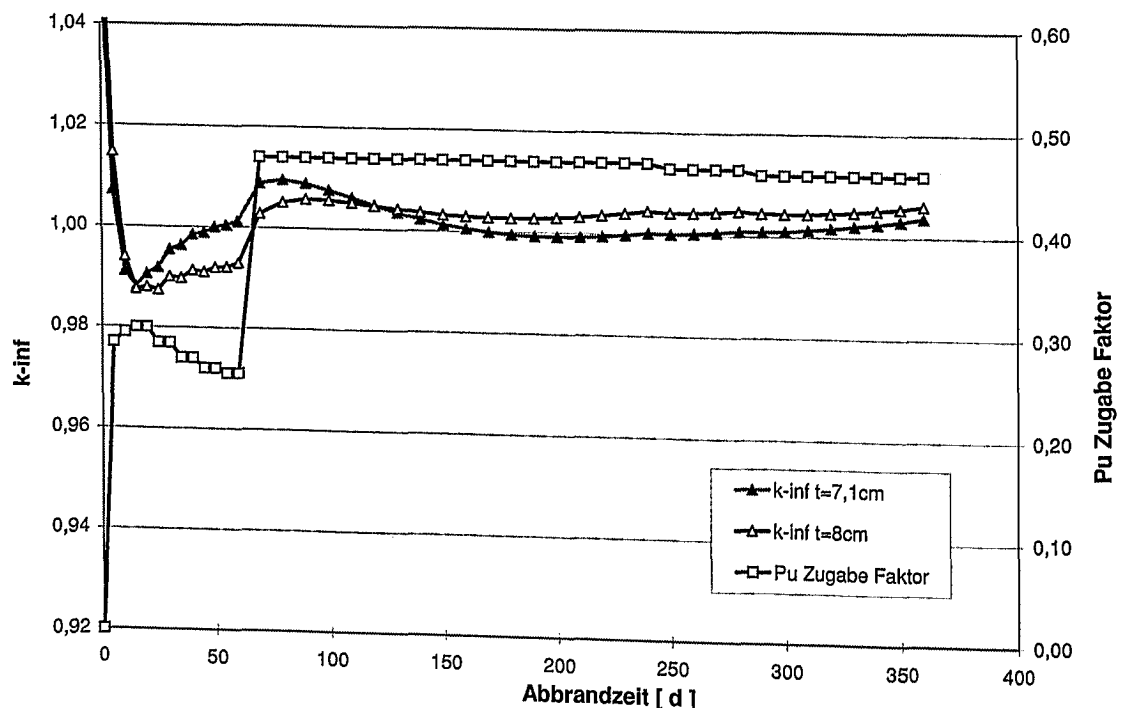


Abb. 6.8: Vergleich des k_{∞} Wertes für einen 0,05%Pu Brennstoff bei einem Pitch von $t = 7,1$ cm und $t = 8$ cm bei gleichem Operationsmodus.

Erhöhung des Moderationsverhältnisses (Pitch Erhöhung) die produzierte Cm Menge um 18,3% (von 20,3 kg auf 16,6 kg) vermindert werden. Als Konsequenz aus diesen beiden Beobachtungen, werden alle weiteren Studien an den Th freien Brennstoffen mit einem Pitch von 8 cm durchgeführt.

Abbrandverhalten

Als erste Brennstoffart wird der reine Pu Brennstoff mit einer Anfangskonzentration von 0,05% und einem Pitch von $t = 8$ cm betrachtet. Wie in **Abb. 6.9** dargelegt, setzt diese Systemkonfiguration 396 kg Pu pro GW_{th} a um und produziert zeitgleich 29 kg Minor Actinides in Form von 12 kg Am und 17 kg Cm. Somit ergibt sich die TRU Umsatzrate zu 367 kg pro GW_{th} a. Das Inventar pro GW_{th} steigt im selben Zeitraum von 27 kg auf 131 kg TRU um den Faktor 4,85. Werden dem Plutonium Brennstoff Minor Actinides hinzugefügt, so erhöht sich das Verhältnis von End-Inventar (EOB) zu Ausgangs-Inventar an TRU (BOB) durch das Ansteigen des Minor Actinide Anteils. Im Falle des 0,05%PuMA89/11 Brennstoffes steigt das Verhältnis um 7,2 und für den 0,1%PuMA70/30 Brennstoff ist das End-Inventar gar um den Faktor 9,9 größer als das Ausgangs-Inventar. Ungeachtet des starken Inventarzuwachses sinkt zeitgleich der k -Wert des PuMA70/30 Brennstoffes konstant ab. Beide anderen Brennstoffe weisen demgegenüber einen nahezu stabilen k_{∞} -Wert von 1 auf.

Wie auch bei den Thorium basierten Brennstoffen, sinkt bei dieser Brennstoffgruppe der reine Pu Abbrand mit der Zumischung von Minor Actinides ab. Bei dem 0,05%PuMA89/11 Brennstoff (**Abb. 6.10**) werden 363 kg Pu umgesetzt und bei dem 0,1%PuMA70/30 Brennstoff (**Abb. 6.11**) gar nur noch 282 kg Pu. Gleichzeitig steigt der TRU Abbrand bei den PuMA Brennstoffen um 2 kg auf 369 kg $\text{TRU}/\text{GW}_{\text{th}}$ a an und erreicht wie der reine Pu Brennstoff ca. 96% des theoretisch möglichen Abbrandes. Somit wird der absinkende Pu Umsatz bei den

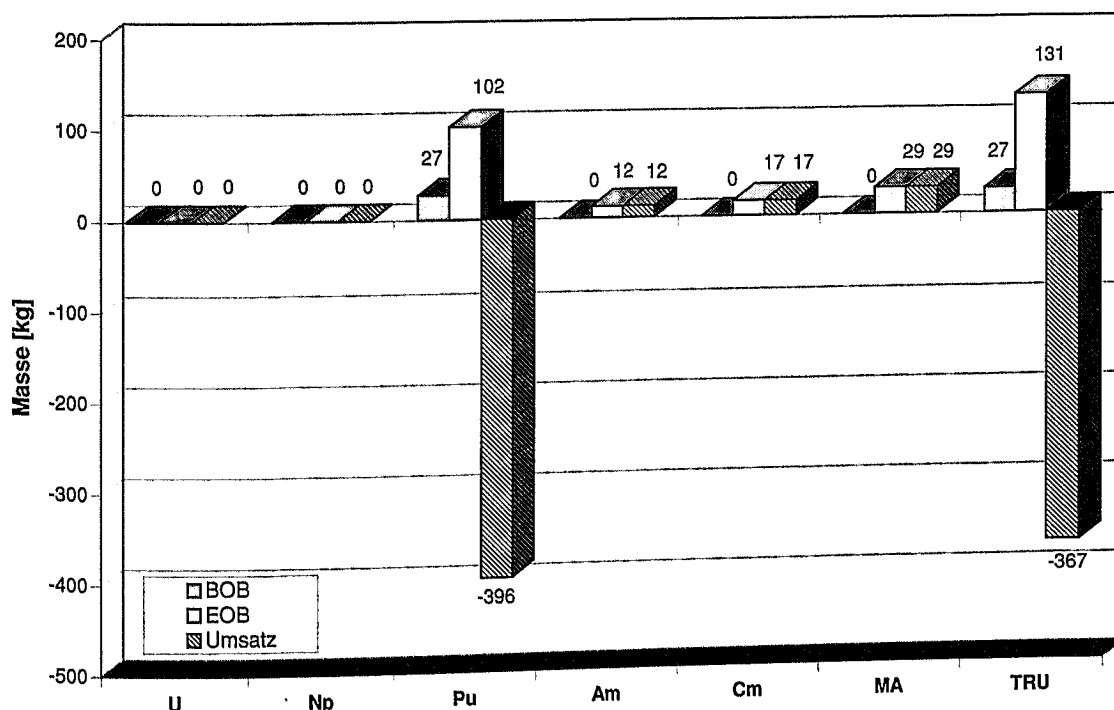


Abb. 6.9: Inventar/ Umsatz nach einem Abbrand von 1 GW_{th} a für 0,05%Pu t8.

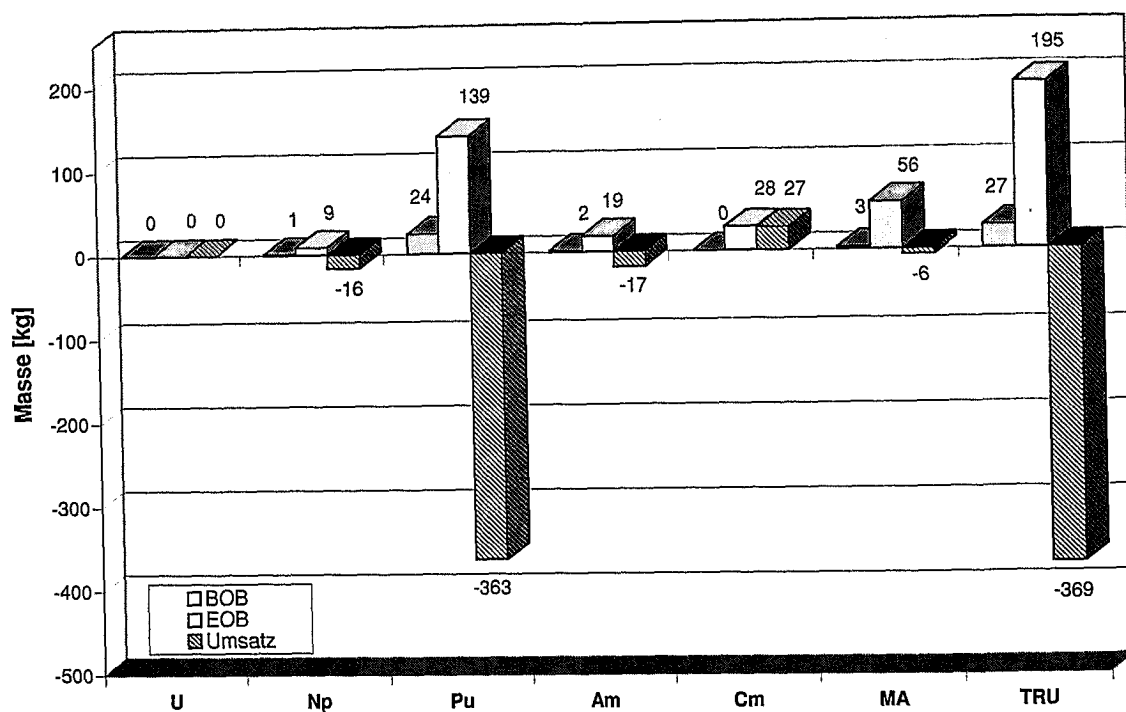


Abb. 6.10: Inventar/ Umsatz nach einem Abbrand von 1 GW_{th}a für 0,05%PuMA89/11 t8.

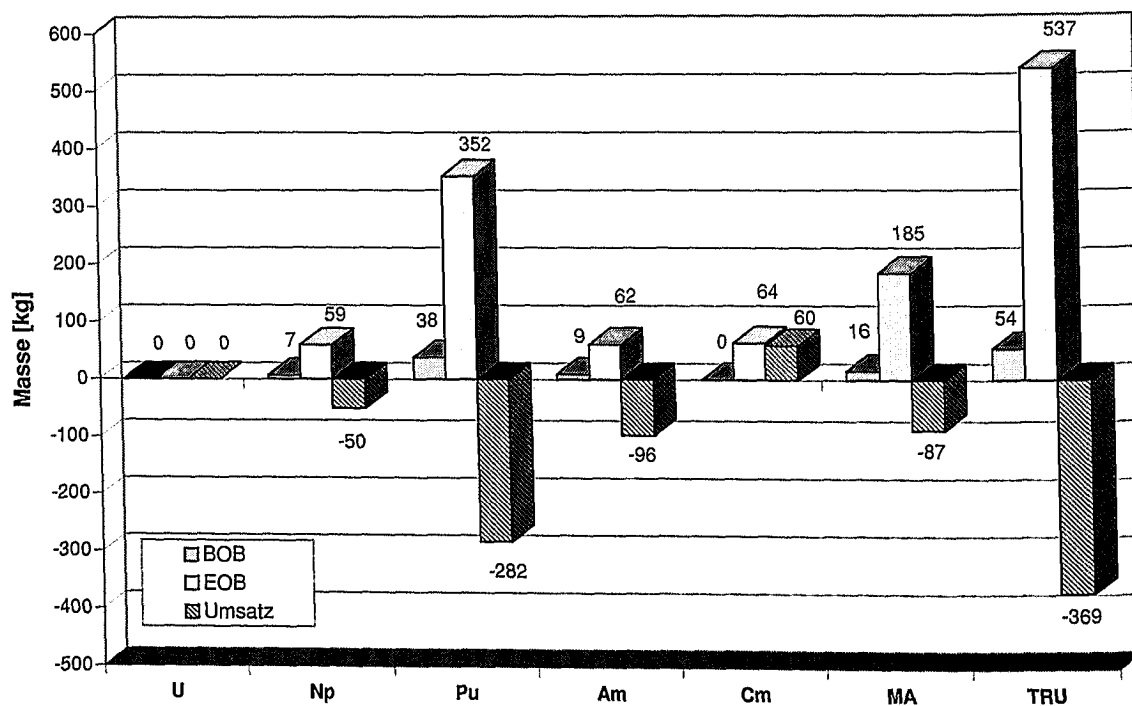


Abb. 6.11: Inventar/ Umsatz nach einem Abbrand von 1 GW_{th}a für 0,1%PuMA70/30 t8.

PuMA Brennstoffen durch einen zunehmenden Abbrand von Np (16 kg bei PuMA89/11 und 50 kg bei PuMA70/30) und Am (17 kg bei PuMA89/11 und 96 kg bei PuMA70/30) kompensiert. Dementsprechend werden beim PuMA89/11 6 kg Minor Actinides und beim

PuMA70/30 87 kg MA umgesetzt, während beim reinen Pu Brennstoff ein MA Aufbau von 29 kg stattfindet. Nichtsdestoweniger wird Cm bei allen drei Brennstoffen aufgebaut. Wird die Auswirkung des MA Anstiegs im Brennstoff von 11% auf 30% analysiert, so zeigt sich, daß diese Erhöhung zu einer proportionalen Erhöhung des Np Abbrandes um den Faktor $\sim 3,1$ führt, wohingegen der Am Umsatz um das $\sim 5,6$ -fache, also stark überproportional ansteigt, und die Erhöhung der Cm Produktion mit einem Faktor von 2,2 unterproportional erfolgt.

6.3 Schlußfolgerungen für einen kontinuierlichen Betrieb

Ein Vergleich der beiden Brennstoffgruppen zeigt, daß zwar die TRU und TRU-Th Brennstoffe ein ähnliches Abbrandverhalten zeigen, doch der integrale TRU Abbrand ist bei den Thorium freien Pu und PuMA Brennstoffen immer etwas höher als bei den Th basierten. Desgleichen besitzen Thorium basierte Brennstoffe, bis auf die Ausnahme des PuMA70/30 Brennstoffs, ein höheres TRU Inventar um die gleiche Leistungsfähigkeit zu erlangen wie die Thorium freien Brennstoffe. Ebenso zeigen die reinen Pu und PuMA Brennstoffe ein günstigeres Verhalten in Bezug auf die Entwicklung des Multiplikationsfaktors während des Abbrandes. Insgesamt bestehen für den Einsatz von Thorium keine Vorteile in einem kontinuierlichem Betriebsmodus. Werden zusätzlich die Argumente berücksichtigt, daß eine kontinuierliche Extraktion von Thorium ein zusätzliches potentiell Problem aufwirft, die Löslichkeit von Thorium in Blei sehr begrenzt ist und der Aufbau von Protactinium und Uran nicht gewünscht ist, so sollten Thorium basierte Brennstoffe für den Einsatz in kontinuierlich mit Transuranen beschickten Anlagen nicht verwendet werden.

Werden nun die drei Thorium freien Brennstoffe miteinander verglichen, so wird ersichtlich, daß alle MA beladenen Brennstoffe in der Lage sind, Np und insbesondere Am zu verbrennen. Gleichwohl kommt es bei allen Brennstoffarten zum Aufbau von Cm. Dieser Aufbau kann nicht verhindert, sondern nur durch eine geeignete Wahl des Moderationsverhältnisses begrenzt werden. Dementsprechend wird als geometrische Kennzahl ein Pitch von $t = 8$ cm festgelegt. Diese Pitchwahl ermöglicht zeitgleich den Einsatz von niedrigst ($< 0,05\%$ TRU) konzentrierten Brennstoffen für die Brennstoffarten Pu und PuMA89/11. Um die Vorteile eines geringen Inventars in thermischen Anlagen weiterzuverfolgen, bieten sich diese beiden Brennstoffarten geradezu an, da sie sowohl über das geringste Anfangs-Inventar als auch über ein niedriges Inventar am Abbrandende verfügen. Zudem weisen der $0,05\%$ Pu t8 und auch der $0,05\%$ PuMA89/11 t8 Brennstoff einen sehr hohen und stabilen Multiplikationsfaktor k_{∞} auf. Der PuMA70/30 Brennstoff ist hingegen sowohl hinsichtlich des Multiplikationsfaktors, als auch in Bezug auf das Anlagen-Inventar zum Zyklusende deutlich schlechter zu bewerten als der $0,05\%$ Pu und $0,05\%$ PuMA89/11 Brennstoff.

Ein Betrieb mit kontinuierlicher Beschickung an Transuranen und Extraktion von Spaltprodukten ist unter den gegebenen Randbedingungen möglich, und erweist sich gerade im Hinblick auf die TRU Inventare im Kern bzw. der Anlage als sehr positiv. Bei allen sechs Brennstoffoptionen kommt es dabei zu einem deutlich besseren Verhältnis von TRU Abbrand zu TRU Inventar, zum Teil um den Faktor zehn, als während des Batchbetriebes. Somit wird deutlich, daß erst eine kontinuierliche Beschickung der Anlage die potentiellen Vorteile des

flüssigen Brennstoffes nutzen kann. Im Zusammenhang mit dem thermischen Neutronenspektrum werden auch hier die erwarteten Vorteile der sehr geringen TRU Inventare deutlich. Mit den entwickelten niedrigst konzentrierten Brennstoffen 0,05%Pu t8 und 0,05%PuMA89/11 t8 stehen zudem Brennstoffe zur Wahl, die hinsichtlich ihrer Löslichkeit im Blei geringe Probleme erwarten lassen /WOO 69/. Im weiteren Vorgehen wird das Konzept der thermischen Anlage auf einen realen Betrachtungszeitraum/ Zykluslänge übertragen. Dementsprechend findet eine Optimierung der Betriebsmodi für die ausgewählten Brennstoffe statt.

7 Charakteristika der optimierten Jülicher ADS Anlage

Nachdem die ersten Ergebnisse für einen Betrieb der Jülicher ADS Anlage mit kontinuierlicher Beschickung an Transuranen und Extraktion von Spaltprodukten als sehr positiv angesehen werden können, gilt es nun einen „realen“ Betriebsmodus für die Anlage zu entwerfen. Dies umfaßt zunächst die Spaltproduktextraktion und die TRU-Zugabe als wesentliche Elemente dieses Betriebsmodus bzw. dieser Anlage. Diese beiden Elemente werden optimiert bzw. für einen längeren Betriebszeitraum ausgelegt. Hierbei wird von einer Betriebszeit von 3 Vollastjahren (1095 efpd) ausgegangen. Diese Vorgabe wird auch für die Analyse des Abbrandverhaltens angenommen. Wie sich später herausstellen wird, ist diese Annahme von 3 Jahren Betriebszeit bis zum Komplettwechsel des Brennstoffinventars eine vernünftige Begrenzung der Abbrandzeit und spiegelt die zu erwartenden Probleme von höheren Brennstoff- bzw. Elementkonzentrationen wieder. Analysiert werden die herausgearbeiteten niedrigst konzentrierten Brennstoffe 0,05% Pu und 0,05%PuMA89/11, jeweils bei einem Pitch von $t = 8$ cm und einem Brennstoffinnenrohrdurchmesser von $d = 3$ cm, was wiederum bei einer festgelegten Leistungsdichte von 170 MW/m^3 Brennstoff zu einer fixen Anlagenleistung von $\sim 640 \text{ MW}_{\text{th}}$ führt. Eine Sicherheitsbetrachtung in Form der Bewertung von Temperaturkoeffizienten und möglichen Störfällen dient ebenfalls der Anlagencharakterisierung. Eine zusammenfassende Bewertung der Gesamtanlage und Vergleich mit entsprechenden ADS sowie kritischen Systemen zur TRU Transmutation schließen das Kapitel ab.

7.1 Optimierung des Betriebsverhaltens

Bevor eine detaillierte Analyse eines Systems durchgeführt wird, ist es sinnvoll, die wesentlichen Elemente eines solchen Systems zunächst zu optimieren. Hierbei bedarf es hinsichtlich der neutronenökonomischen Sicht eines besonderen Augenmerks auf die Spaltproduktextraktion und TRU-Zugabe. So stehen die Fragestellungen im Mittelpunkt des Interesses und sind zentrale Elemente des gesamten Betriebsmodus:

- Welche Spaltproduktelemente sollen extrahiert werden?
- Mit welcher Extraktionsrate soll dies geschehen?
- Welcher TRU-Zugabemodus ist sinnvoll, um einen maximalen TRU Umsatz bei minimalen Inventar mit der zwingenden Randbedingung eines hohen, kontrollierbaren Multiplikationsfaktors zu erreichen?

Beide Problematiken beeinflussen sich gegenseitig, doch stellt die Extraktion eine feste Größe dar, da sie hinsichtlich der chemischen Rahmenbedingungen und Möglichkeiten begrenzt ist.

7.1.1 Spaltproduktextraktion

Die bisherigen Abbrandberechnungen für einen kontinuierlichen Betriebsmodus der Anlage basierten auf einer großen Anzahl von zu extrahierenden Spaltprodukten. 15 Elemente (Xe, J, Sm, Ce, Nd, Cs, Sr, Y, Mo, Ru, Rh, Pd, Sb, Te, Ba) müßten hierzu kontinuierlich mit einem

vorgegebenen Extraktionsfaktor von 50% behandelt werden. Die Extraktion von Thorium erweist sich hingegen nicht mehr als notwendig, da die Thorium basierten Brennstoffe keine Vorteile für einen Einsatz im kontinuierlichen Betrieb bieten und dementsprechend nicht zum Einsatz kommen. Nichtsdestotrotz bedeutet die Extraktion von 15 Elementen einen ungeheuer großen technischen Aufwand und die Einführung eines chemischen Systems hoher selektiver Kapazität.

Da die chemischen Aufwendungen bzw. deren Umsetzung direkt mit der Anzahl der zu extrahierenden Elemente verknüpft sind, befassen sich Bestrebungen zur Durchführbarkeit solch eines chemischen Extraktionsweges mit der notwendigen Anzahl der zu extrahierenden Stoffe. Demzufolge wird der Ansatz verfolgt, die zu extrahierenden Elemente auf ein Minimum beschränken. Hier stellt sich die Frage, welche Elemente neutronenökonomisch die größten Auswirkungen auf das Gesamtsystem zeigen? Diese Fragestellung läßt sich in zwei Schritten klären. Im ersten Schritt wird das Aufkommen der Spaltprodukte quantitativ erfaßt. Im zweiten Schritt wird den Nukliden der spezifische thermische Absorptionsquerschnitt unter Betriebsbedingungen (773K) zugewiesen. Eine Verknüpfung des quantitativen Auftretens mit der qualitativen Bewertung des Absorptionsverhaltens ermöglicht schließlich eine Aussage hinsichtlich der neutronenökonomischen Bedeutung von einzelnen Spaltprodukten. Da eine Extraktion nur auf Element Basis sinnvoll erscheint, erfolgt die Bewertung der Spaltprodukte ebenfalls Element weise.

Um die Spaltprodukte zu erfassen wird ein 0,05%PuMA89/11 Brennstoff ohne jegliche Extraktion unter festen Randbedingungen 3 Jahre lang abgebrannt. So werden in drei Jahren 5139 Mole Spaltprodukte in der Anlage erzeugt. Dann erfolgt eine Auswertung von 879 Nukliden welche in 48 Elementen zusammengefaßt werden, hinsichtlich ihrer auftretenden Molmenge. Das quantitative Auftreten an der Gesamtmolmenge zeigt **Abb. 7.1**. Xenon besitzt hierbei mit 15% den höchsten Anteil an der Gesamtspaltproduktmolmenge. Ruthenium mit 12%, Molybden mit 10% und Palladium mit 10% stellen die Elemente mit den nächst höheren Anteilen dar. Wird jedem Nuklid der dementsprechende thermische mikroskopische Wirkungsquerschnitt σ bei der Betriebstemperatur von $t = 773\text{K}$ zugewiesen, so baut sich eine neue Rangordnung hinsichtlich der neutronenökonomischen Bewertung auf. Diese wird in **Abb. 7.2** illustriert. So erzeugen nur drei Elemente (Sm, Eu, Xe) 53,8% der Spaltproduktvergiftung. Dabei kommt Samarium eine zentrale Bedeutung zu. Zum einen ist Samarium aufgrund der extrem hohen Wirkungsquerschnitte der einzelnen Isotope (Sm-149 besitzt z.B. ein σ von 41000 barn) trotz seines geringen Aufkommens nach Molen von nur 1,6% Spaltproduktanteil mit 20% das bedeutendste Spaltprodukt und zum anderen ist Europium (18%) als zweitwichtigstes Neutronengift ein Zerfallsprodukt von Samarium. Wird Samarium eliminiert, verschwindet damit auch weitestgehend Europium, da Europium nur in sehr kleinen Mengen direkt als Spaltprodukt erzeugt wird. Xenon weist eine relative Bedeutung von 16% auf und ist das drittgrößte Neutronengift in diesem System. Mit dieser qualitativen Aussage hinsichtlich jedes einzelnen Spaltproduktelements, können nun gezielt die bedeutendsten Elemente extrahiert werden.

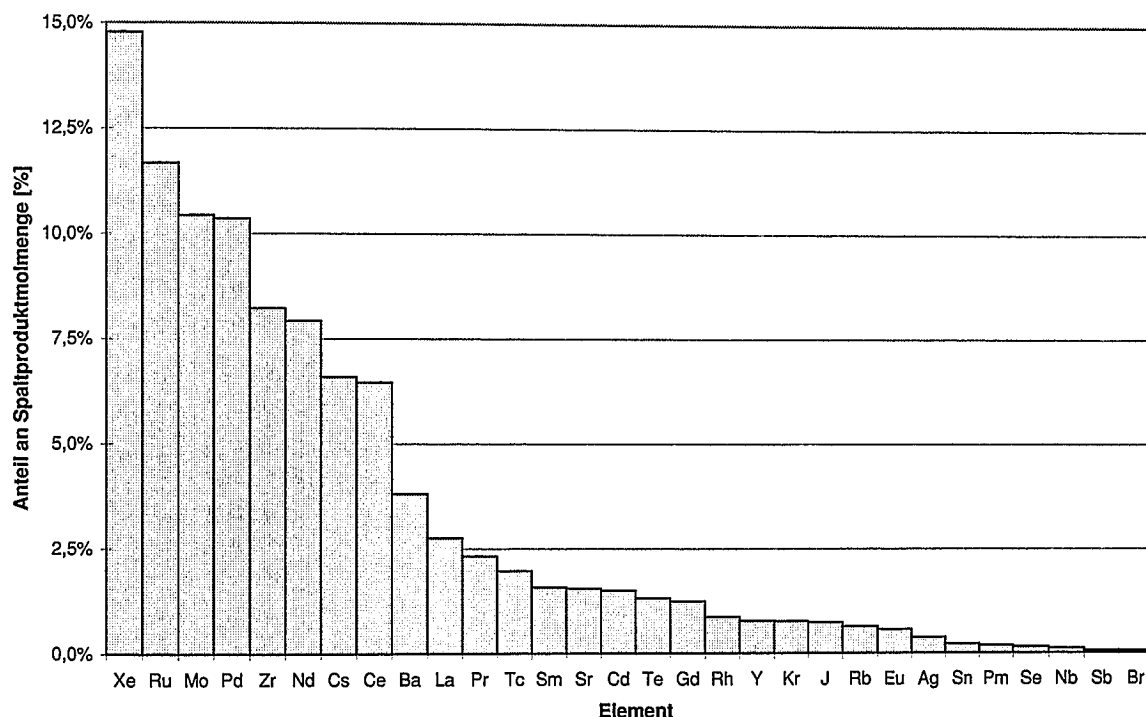


Abb. 7.1: Quantitatives Auftreten von Spaltprodukten (in Molen) bei einem Abbrand von 3 Jahren für ein 0,05%PuMA89/11 Brennstoff ohne jegliche Extraktionen.

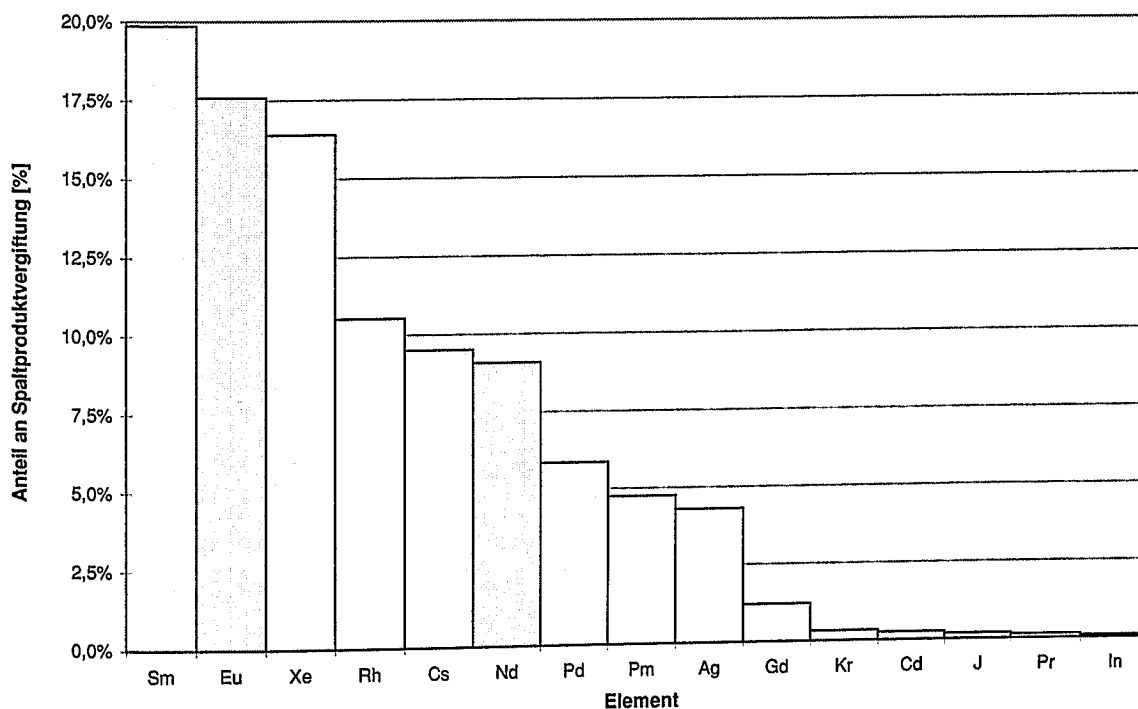


Abb. 7.2: Qualitative Bewertung von Spaltprodukten bei einem Abbrand von 3 Jahren für ein 0,05%PuMA89/11 Brennstoff ohne jegliche Extraktion bei $T = 773\text{K}$.

Um die Frage nach der notwendigen Anzahl von extrahierten Spaltprodukten zu beantworten, müssen Vergleichsberechnungen durchgeführt werden. Hierbei werden die Multiplikations-

faktorverläufe von gleichen Brennstoffeingabemodi aber unterschiedlichen Extraktionsverhalten in Bezug zur Ausgangssituation (Extraktion von Xe, J, Sm, Ce, Nd, Cs, Sr, Y, Mo, Ru, Rh, Pd, Sb, Te, Ba) gesetzt. Dabei stellt sich heraus, daß eine Extraktion der sieben Elemente Sm, Xe, Rh, Cs, Nd, Pd und Pm ausreichend ist, um 93,55% der Neutronengifte herauszuziehen und daß diese Maßnahme zu einem ähnlichen Multiplikationsfaktor führt, wie die Extraktion der 15 vorher genannten Elemente. Der leichte Abfall des k -Wertes kann dabei sehr einfach durch eine Korrektur der TRU-Zugabe ausgeglichen werden. Diese Aussage trifft dabei sowohl auf den 0,05% Pu als auch den 0,05%PuMA89/11 Brennstoff zu, wie die Abb. 7.3 illustriert. Die durchgezogene Linie charakterisiert das Abbrandverhalten in Bezug auf den k Wert bei einer Extraktion der 15 Elemente Xe, J, Sm, Ce, Nd, Cs, Sr, Y, Mo, Ru, Rh, Pd, Sb, Te und Ba. Im Vergleich zeigt die gepunktete Linie den selben Brennstoff mit einer Extraktion der sieben neutronenökonomisch wichtigsten Elemente Sm, Xe, Rh, Cs, Nd, Pd und Pm. Innerhalb des Abbrandzyklus von 3 Jahren führt dies zu einer Extraktion von ca. 314 kg der genannten sieben Spaltprodukte. Die verbleibende Masse der sieben Elemente im Brennstoff bleibt ab dem 2ten Jahr mit 7 kg nahezu konstant. 55% der insgesamt entstehenden

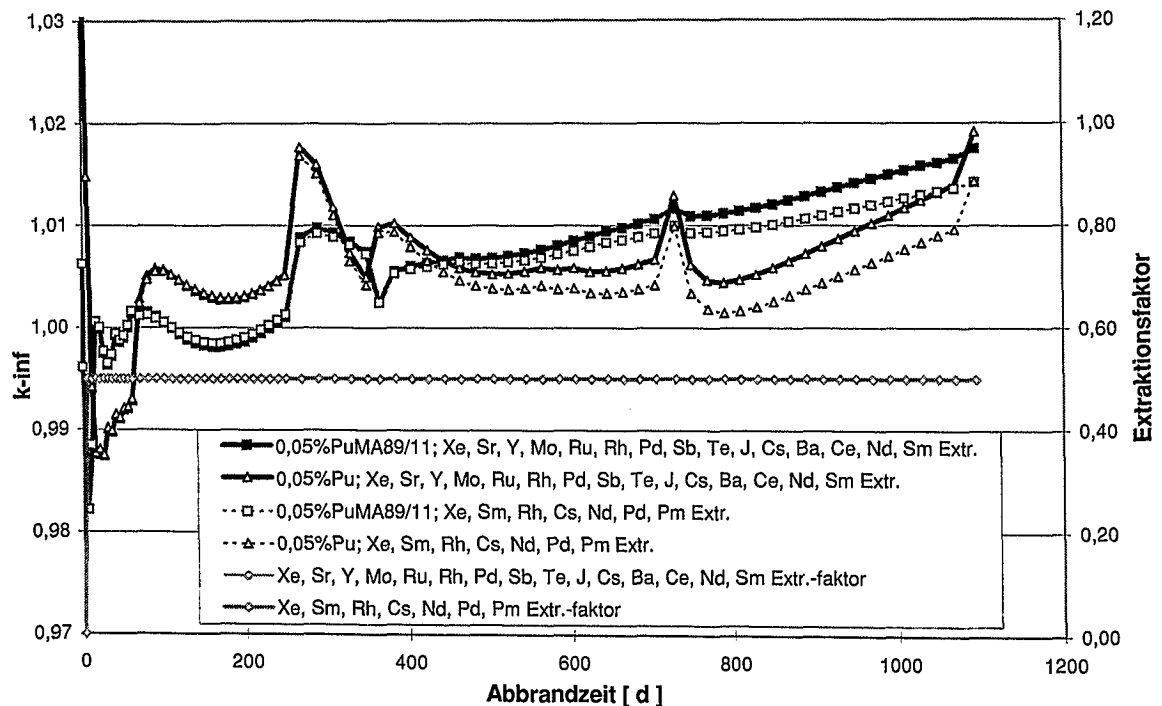


Abb. 7.3: Vergleich der k_{∞} -Werte für ein 0,05%PuMA89/11 und 0,05%Pu Brennstoff mit unterschiedlicher Extraktion von Spaltprodukten bei einem Abbrand von 3 Jahren.

Spaltproduktmasse verbleiben im Brennstoff.

Als Extraktionsfaktor wird der Wert von 50% beibehalten, da diese Größenordnung als technisch sinnvoll und durchführbar erscheint. Für Xenon wird aufgrund der gasförmigen Phase dieser Extraktionsfaktor leicht realisierbar sein. Für die anderen Elemente erscheint eine Extraktion mit organischen Extraktionsmitteln und/ oder chromatographischer Selektion als Möglichkeit gegeben. Aufgrund dieser Extraktionsoptimierung werden alle weiteren Untersuchungen auf der Grundlage einer Extraktion der sieben Elemente Sm, Xe, Rh, Cs, Nd, Pd und Pm mit einem Extraktionsfaktor von 0,5 durchgeführt.

7.1.2 TRU-Zugabemodus

Die Zielsetzung einer Optimierung des TRU-Zugabemodus besteht in der Maximierung des TRU Konsums bei gleichzeitiger Minimierung des TRU Inventars in der Anlage. Als regulierende Randbedingung gilt ein gut zu kontrollierender Multiplikationsfaktor auf hohem Niveau. Dabei stellt der k -Wert eines der entscheidenden Qualitätskriterien für einen unterkritischen ADS Betrieb dar, da sowohl der Multiplikationsfaktor mit Blick auf die Begrenztheit der Spallationsneutronen bzw. Beschleunigerleistung möglichst nahe am k -Wert 1 liegen sollten, aber dennoch muß zu jedem Abbrandzeitpunkt bei jeglichem Störfall Unterkritikalität gewährleistet sein. Eine weitere Bedingung besteht in der Gleichförmigkeit des Multiplikationsfaktors, da große Unterschiede zwischen minimalen und maximalen k -Wert nur bedingt mittels des Protonenbeschleunigers ausgeglichen werden können. Alle Berechnungen des Abbrandverhaltens werden auf der Grundlage des Multiplikationsfaktors k_∞ im unendlich ausgedehntem System durchgeführt. Der Absolutwert des Multiplikationsfaktors spielt hierbei eine untergeordnete Rolle, da jeder erforderliche Multiplikationswert über die Masse der TRU-Zugabe einjustiert werden kann.

Der Verlauf eines optimierten TRU-Modus am Beispiel des 0,05%PuMA89/11 Brennstoffes wird in **Abb. 7.4** deutlich. Unter gleichen Ausgangsbedingungen führen unterschiedliche TRU-Zugabemodi zu unterschiedlichen Multiplikationsfaktoren. Die Zeitachse spiegelt die Abbrandschritte wieder und die linke Y-Achse gibt zu dem jeweiligen Zeitpunkt den k -Wert an, während die rechte Y-Achse den zugehörigen TRU-Zugabefaktor beschreibt. Zwischen dem 100sten und 200sten Abbrandtag wird zum Beispiel eine Abbrandschrittweite von 10 Tagen gewählt, was einen PuMA Zugabefaktor von 0,526 der Initial PuMA Masse erfordert. Wird die Schrittweite auf 20 Tage erhöht, wie im Bereich des zweiten und dritten Jahres, so wird ein höherer Zugabefaktor erforderlich (z.B. 0,91 der Initial PuMA Masse). Innerhalb des

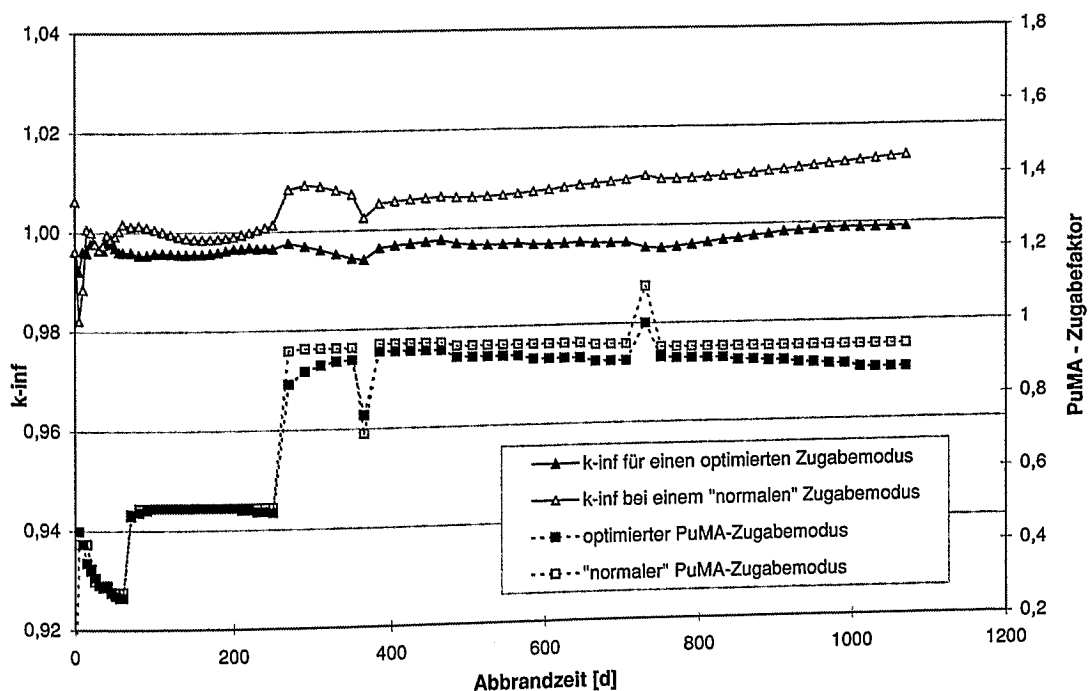


Abb. 7.4: k_∞ -Werte für unterschiedliche TRU-Zugabemodi am Beispiel eines 0,05%PuMA89/11 Brennstoffes.

Diagramms fallen sofort die unregelmäßigen Zugabefaktoren bei einer Betriebszeit von 365 Tagen und 730 Tagen auf. Die Ursache für diese Unregelmäßigkeit liegt in einem geänderten Abbrandschritt von 15 Tagen bzw. 25 Tagen um genau ein Jahr bzw. zwei Jahre Abbrandzeit erfassen zu können. Dementsprechend führt die Änderung der Schrittweite zu einem niedrigeren Zugabefaktor für den kürzeren Abbrandschritt und einen höheren Zugabefaktor für den längeren Abbrandschritt. Wird der optimierte Zugabemodus und der normale Zugabemodus verglichen, so wird sehr deutlich, daß geringe Unterschiede von wenigen Kilogramm zu sehr unterschiedlichen Multiplikationsfaktoren führen. Anhand der hier durchgeführten Optimierung kann der Multiplikationsfaktor quasi konstant um 1 gehalten werden. Die Amplitude zwischen minimalen und maximalen k -Wert senkt sich dabei von 3,2 nile auf 1,4 nile. Ebenfalls wird deutlich, daß der Eingabemodus für jeden Brennstoff individuell konzipiert werden muß, dieser es dann aber erlaubt, jeglichen k -Wert zu erreichen und diesen auch während eines Abbrandzyklus dort zu stabilisieren. Der Multiplikationsfaktor folgt somit den Vorgaben aus anderen Bereichen (nukleare Sicherheit) und bedingt nicht unmittelbar das Abbrandverhalten des Systems.

7.2 Abbrandverhalten des optimierten Jülicher Systems

Das Jülicher ADS System basiert auf der Skizzierung in Abb. 6.1 und wurde für zwei unterschiedliche Brennstoffarten optimiert. Zum einen ist dies der 0,05%Pu Brennstoff, ein reiner DWR Pu Brennstoff (DWR Pu Vektor nach 10 Jahren Abklingzeit, vgl. Tab. 4.1) und zum anderen handelt es sich um den Plutonium/ Minor Actinide Brennstoff 0,05%PuMA89/11, der in der TRU Nuklidzusammensetzung den abgebrannten Brennelementen eines DWR nach 10 Jahren Abklingzeit entspricht (vgl. Tab. 4.1). Grundsätzlich zeigen die beiden Brennstoffe ein sehr ähnliches Verhalten. Dennoch ermöglicht der reine Pu Brennstoff einen höheren Pu Abbrand als der PuMA Brennstoff, während der PuMA Brennstoff die Möglichkeit bietet, neben Pu auch Np und Am zu verbrennen. Dementsprechend wird für den Einsatz der Jülicher ADS Anlage als Plutonium-„Brenner“ ein reiner Pu Brennstoff zum Zuge kommen, wohingegen bei einer Auslegung hinsichtlich eines TRU Abbrandes ein PuMA Brennstoff zum Tragen kommt. Hinsichtlich einer Toxizitätsreduzierung im Gesamtkontext ist eine TRU Reduzierung als bedeutender zu gewichten. So steht das Abbrandverhalten und die hieraus zu ziehenden Schlußfolgerungen für den PuMA Brennstoff im Mittelpunkt des Interesses.

Die Abbrandzeit wird auf 3 Jahre begrenzt, so daß am Ende dieses Zyklus ein Komplettaustausch des Kerninventars stattfindet. Diese Zykluszeit erscheint hinsichtlich des konstant ansteigenden Inventars als sinnvoll. Begrenzt wird die Abbrandzeit durch eine frei gewählte konservative Abschätzung der Löslichkeit und des Wärmeeintrags von Minor Actinides, insbesondere von Cm, im flüssigen Blei. Das gewählte Limit wird dabei auf 0,25% MA Anteil in Blei gesetzt. Dieser Gewichtsanteil wird nach drei Jahren Abbrand durch Inventaraufbau des 0,05% PuMA Brennstoffs erreicht. Aus Vergleichsgründen wird beim Pu Brennstoff ebenfalls ein Zyklusende nach 3 Jahren angenommen, obwohl die MA Fraktion innerhalb des Brennstoff noch nicht auf 0,25% angestiegen ist. Da die Jülicher ADS Anlage bei beiden Brennstoffarten aufgrund der geometrischen Kenndaten (Blanketvolumen 29,45 m³ bei 2,5 m Höhe, Pitch 8 cm und Rohrinnendurchmesser 3 cm) und Vorgaben hinsichtlich der

Leistungsdichte im Brennstoff (170 MW/m^3) nur eine thermische Leistung von $640 \text{ MW}_{\text{th}}$ besitzt, sind im weiteren Verlauf alle Kenndaten und Abbrandcharakteristika meist auf 1 GW_{th} normiert. Dies bietet den großen Vorteil der direkten Vergleichbarkeit mit anderen Brennstoffen bzw. Transmutationsanlagen.

7.2.1 Plutonium/ Minor Actinide Brennstoff im Betriebszyklus

Die zentralen Abbrandergebnisse für eine Zykluslänge von 3 Jahren bei 1 GW_{th} werden in **Abb. 7.5** für den 0,05%PuMA89/11 Brennstoff zusammengefaßt. Dargestellt wird das Ausgangsinventar (BOB), das Endinventar (EOB) und die Umsatzrate jeweils nach TRU unterteilt. Das Kerninventar pro GW_{th} steigt in diesem Zeitraum von 27 kg zu Beginn auf 339 kg TRU am Ende des Abbrandes an. Umgerechnet auf die Gesamtkonzentration im flüssigen Blei bedeutet dies eine Aufkonzentration von 0,05% auf 0,63% bzw. ein Anstiegsfaktor von 12,6. In der selben Zeit wird ein Abbrand von 1103 kg TRU erbracht, der im wesentlichen aus dem Abbrand von 1080 kg Pu resultiert. Zusätzlich wird ein Umsatz von 53 kg Np und 61 kg Am erreicht, was jedoch mit einer Produktion von 92 kg Cm in Relation gesetzt werden muß, so daß ein Nettoabbrand von 22 kg MA innerhalb von 3 GW_{th} resultiert. Wird erzielter TRU Abbrand und TRU Inventar innerhalb des Zyklus in ein Verhältnis gesetzt, so ergeben sich die Systemdaten von 367 kg TRU Abbrand pro GW_{th} bei einem TRU Umsatz zu TRU Inventar Verhältnis von 3,25.

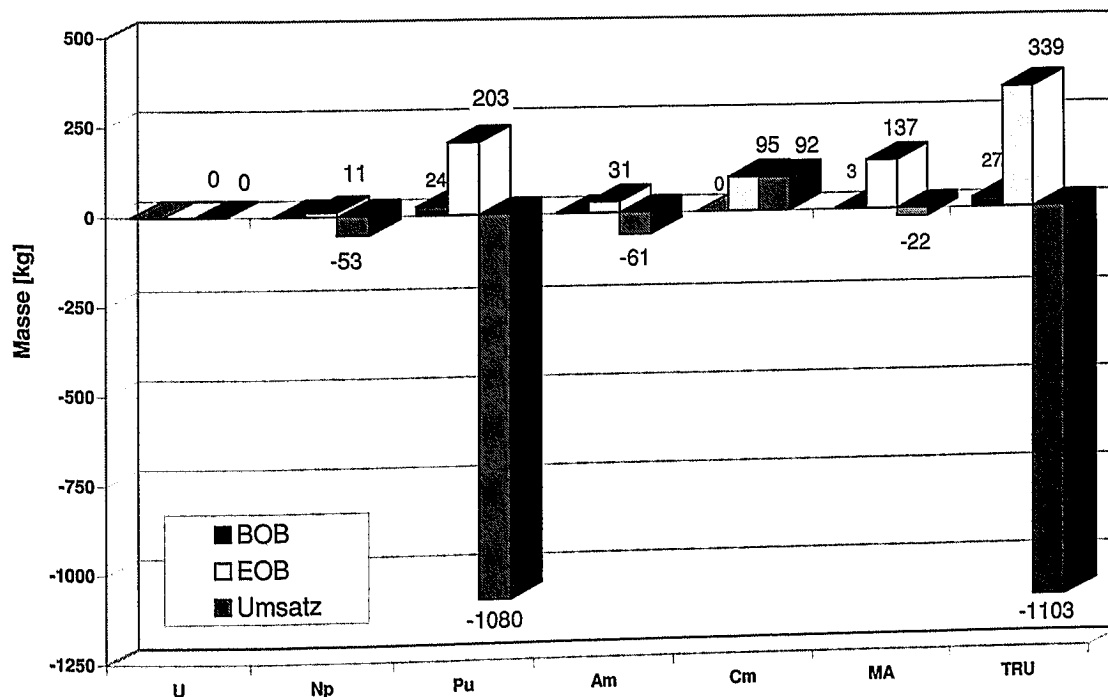


Abb. 7.5: Kerninventar und Umsatz nach einem Abbrand von 3 GW_{th} für das 0,05%PuMA89/11 Brennstoffsystem.

Wird das Ansteigen des TRU Inventars näher betrachtet (**Abb. 7.6**), so stellt sich heraus, daß der Anstieg des TRU Inventars nicht proportional zur Zykluslänge verläuft, sondern der größte Anstieg bereits im ersten Jahr mit $156 \text{ kg/GW}_{\text{th}}$ erfolgt. Im zweiten und dritten Abbrandjahr steigt das TRU Inventar mit $86 \text{ kg/GW}_{\text{th}}$ TRU bzw. $71 \text{ kg/GW}_{\text{th}}$ TRU deutlich

unterproportional an bzw. stagniert quasi für einzelne Elemente (Np Anstieg um 1,2 kg). Eine Ausnahme stellt nur Cm dar, welches eine konstant hohe Inventarsteigerung besitzt.

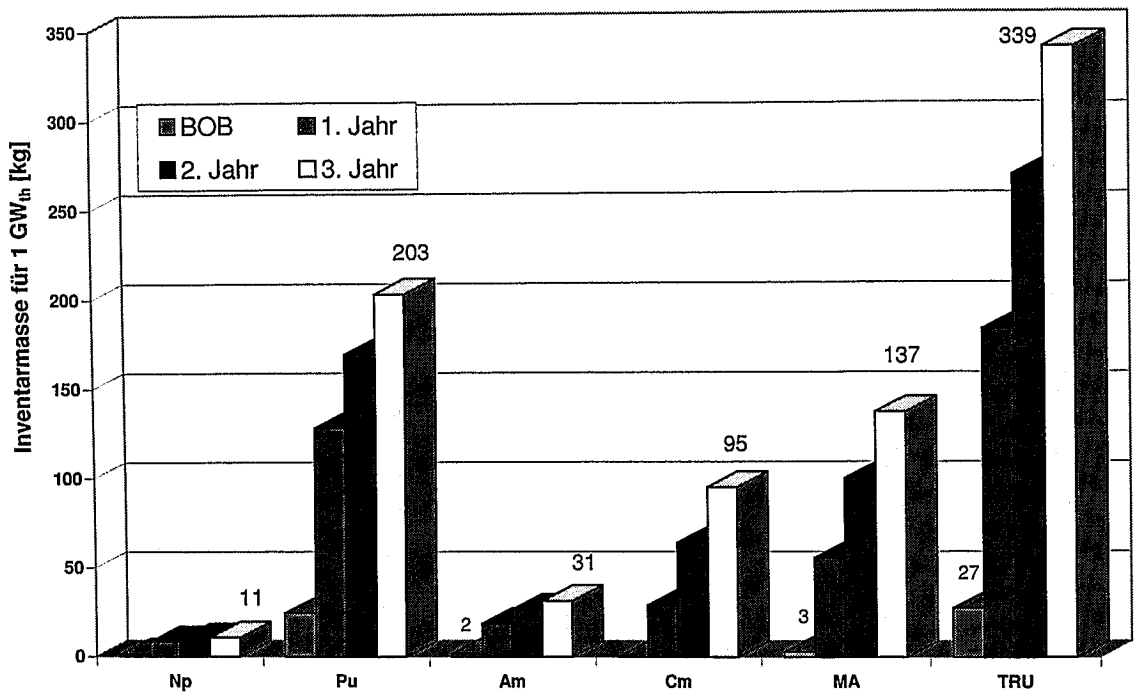


Abb. 7.6: Inventarmasse an TRU während eines Abbrands von 3 GW_{th}a für das 0,05%PuMA89/11 Brennstoffsystem.

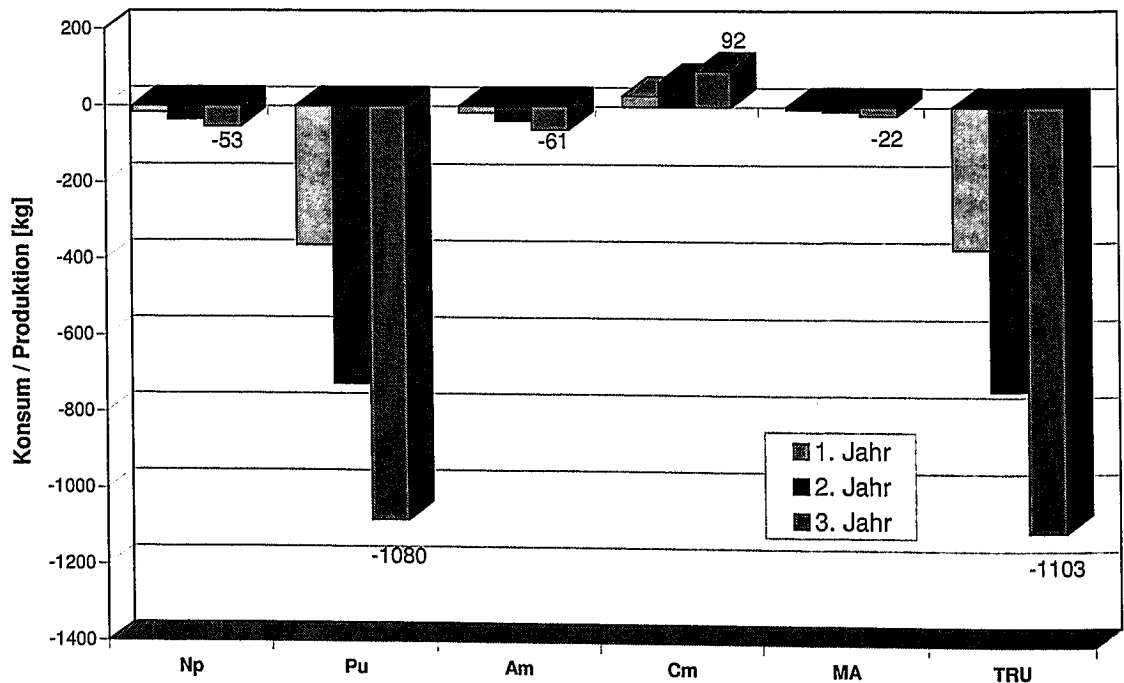


Abb. 7.7: Umsatzraten während eines Abbrands von 3 GW_{th}a für das 0,05%PuMA89/11 Brennstoffsystem.

Wird der Konsum von TRU in Abhängigkeit von der Zykluslänge untersucht (Abb. 7.7), so ergibt sich insgesamt ein gleichmäßiges Abbrandverhalten von 367 kg/GW_{th} TRU. Die Produktion von Cm ist proportional zur Zykluslänge bzw. steigt im zweiten und dritten

Abbrandjahr leicht an. Die Abbrandrate von Pu ist ebenfalls nahezu konstant über der Zeit. Im Falle des Np und Am kann hingegen ein leichtes überproportionales Ansteigen der Abbrandrate im zweiten und dritten Abbrandjahr aufgezeigt werden.

Während des Abbrandzyklus verändert sich naturgemäß auch das Verhältnis von Pu und MA im Brennstoff. Obwohl immer ein Verhältnis von 89%Pu und 11%MA in der bekannten Nuklidzusammensetzung als frischer Spaltstoff nachgeführt wird, kommt es durch den Aufbau von MA zu einer Konzentrationserhöhung von Minor Actinides im Brennstoff. **Abb. 7.8** illustriert diesen Wechsel der TRU-Zusammensetzung während des Abbrandzeitraums von 3 Jahren. Ausgangssituation zum BOB ist eine Zusammensetzung von 89% Pu und 11% MA, welche sich in 6,4% Am, 4,4% Np und 0,2% Cm aufschlüsseln lassen. Nach ungefähr einem Jahr bildet sich ein nahezu konstanter TRU-Anteil von 10 % Am und 3,4% Np innerhalb der TRU Zusammensetzung aus. Der Cm Anteil hingegen steigt stetig mit der Abbrandzeit an, von anfänglichen 0,2% Cm auf 28% Cm nach drei Jahren. Im selben Zeitraum sinkt der Pu

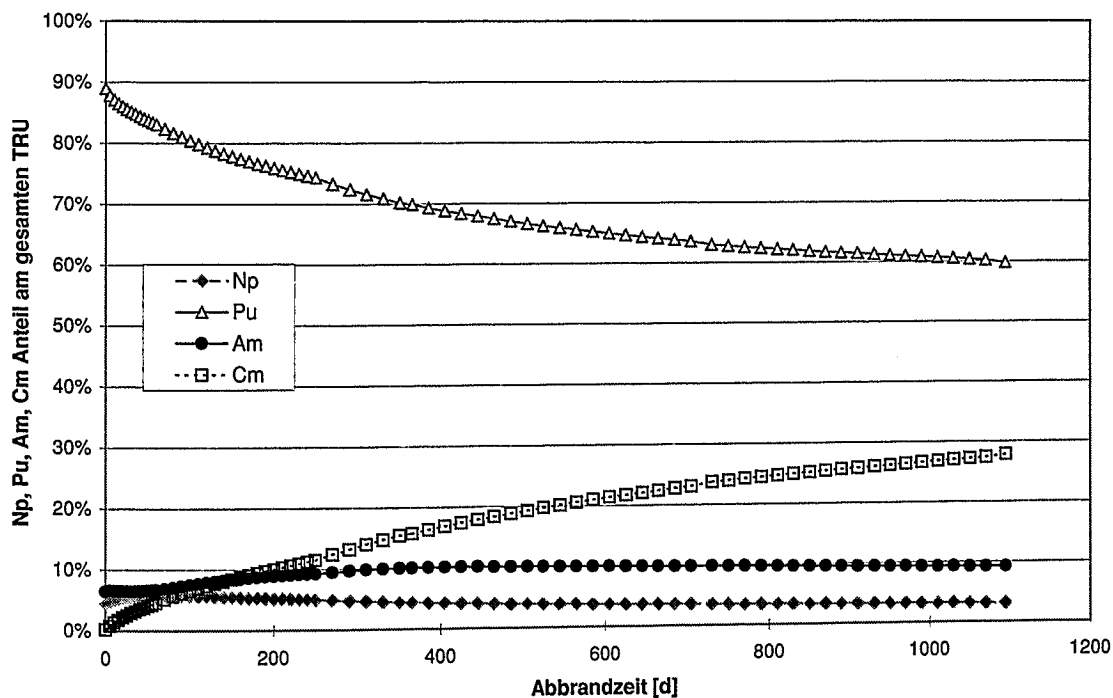


Abb. 7.8: TRU Zusammensetzung (Pu MA) während eines Abbrands von 3 GW_{th}a für das 0,05%PuMA89/11 Brennstoffsystem.

Anteil von 89% auf 60%. Wird der Brennstoff hinsichtlich seiner Endzusammensetzung charakterisiert (EOB), so handelt es sich um einen 0,623%PuMA60/40 Brennstoff, wobei die Pu, Np, Am und Cm Nuklidzusammensetzungen nicht mit denen der Ausgangssituation zu vergleichen sind.

Dies wird besonders deutlich am Beispiel des Pu Vektors, dessen Entwicklung in **Abb. 7.9** dargelegt wird. Ausgangspunkt ist der DWR Pu Vektor nach 10 Jahren Abklingzeit. Innerhalb der ersten 400 Tage wandelt sich diese Nuklidzusammensetzung rapide um und verharrt im weiteren Zyklusverlauf nahezu in einem konstanten Vektor mit 41,7% Pu-242, 20% Pu-240, 16,3% Pu-239, 12,5% Pu-241 und 9,5% Pu-238. Einzige Ausnahme bildet das Pu-238 Isotop, dessen Anteil am Pu-Vektor langsam aber stetig bis auf ein Niveau von knapp 10% ansteigt.

Ursache hierfür ist die Existenz zweier Quellterme. So wird über die Np-237, was dem Brennstoff kontinuierlich zugegeben wird, und Np-238 Kette und einem anschließenden β Zerfall ($d_{1/2} = 2,1$ d) zusätzlich Pu-238 erzeugt. Mit einer größeren Verzögerung und in einem geringeren Anteil wird über den α Zerfall ($d_{1/2} = 163$ d) von Cm-242 ebenfalls Pu-238 erzeugt. Als Konsequenz aus der Verschiebung der Nuklidzusammensetzung des Pu steigt die Anzahl der kritischen Pu Massen ($m_k \approx 10$ kg DWR Pu) deutlich unterproportional im Vergleich zum Anstieg der gesamten Pu Masse. So steigt die Pu Masse der Anlage von 15,45 kg zu Beginn auf 129,51 kg am Zyklusende (EOB) um den Faktor 8,38. Wird jedoch die Anzahl der kritischen Pu Massen, respektive die Nuklide Pu-239 und Pu-241, als Beurteilungsgrundlage einer Sicherheitsbetrachtung herangezogen, so erhöht sich diese von 1,54 zu Beginn nur auf 5,37 am Zyklusende. Wird die Betrachtung der kritischen Massen auf die Transurane ausgedehnt, so erhöht sich die Gesamtanzahl der kritischen Massen auf 7,37 da insbesondere Cm-244 ein hohes Potential an Kritikalität besitzt ($m_k \approx 26,8$ kg Cm-244) /SMI 99/. Somit existiert in Bezug auf die kritische Masse eine Steigerung um den Faktor 3,49 für Pu und um 4,78 für die TRU Massen. (Wird ein Einkreis-Kühlsystem zu Grunde gelegt, so kann mit einer Vervierfachung der Massen gerechnet werden.) Ebenfalls ändert sich das Kritikalitätsverhalten. Es wird eine deutlich höhere Konzentration an Pu benötigt, um die Anlage nahe der Kritikalität zu betreiben. Dies entspricht jedoch dem erwarteten Verhalten, da der Pu Vektor zunehmend von thermisch schlechter spaltbaren Pu Isotopen (Pu-242, Pu-240, Pu-238) dominiert wird.

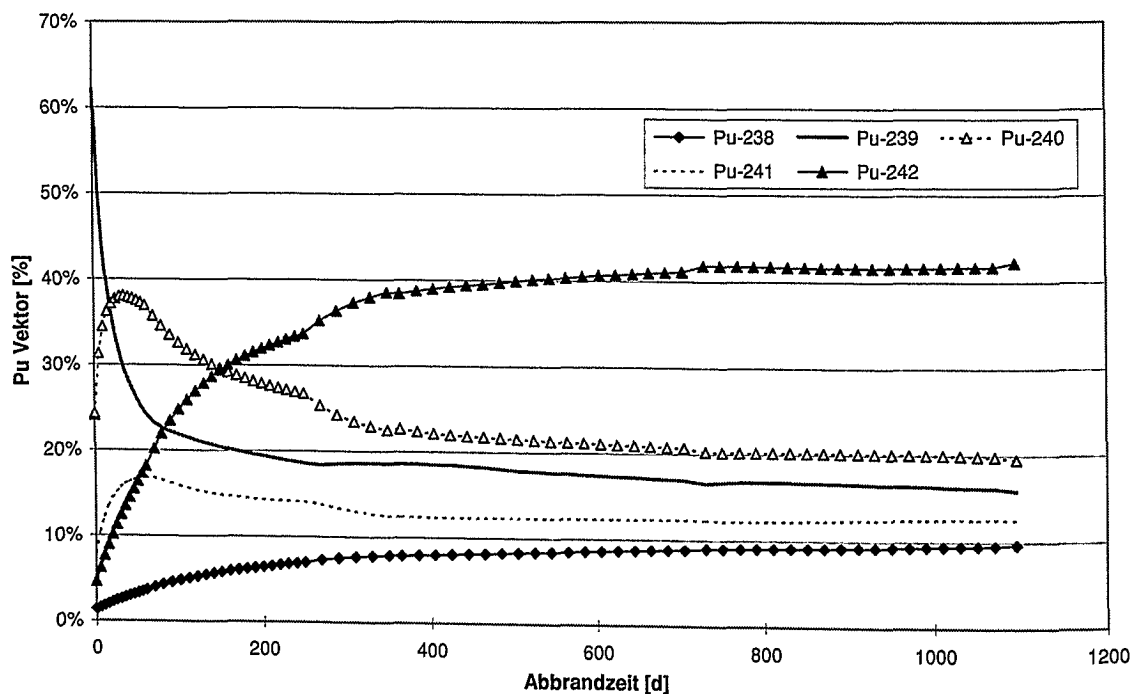


Abb. 7.9: Pu Vektorentwicklung während eines Abbrands von 3 GW_{th} für das 0,05%PuMA89/11 Brennstoffsystem.

Cm wird nach ca. 200 Tagen Abbrandzeit zum zweit häufigsten TRU Element im Brennstoff. Dabei ändert sich der Aufbau des Cm Vektors ebenfalls rapide. Nach 200 Tagen wechselt die Dominanz innerhalb des Cm Vektors vom Cm-242 Isotop auf das Cm-244 Isotop. Abb. 7.10 zeigt diese Entwicklung auf. Nach 600 Abbrandtagen beträgt der Cm-244 Anteil am Cm

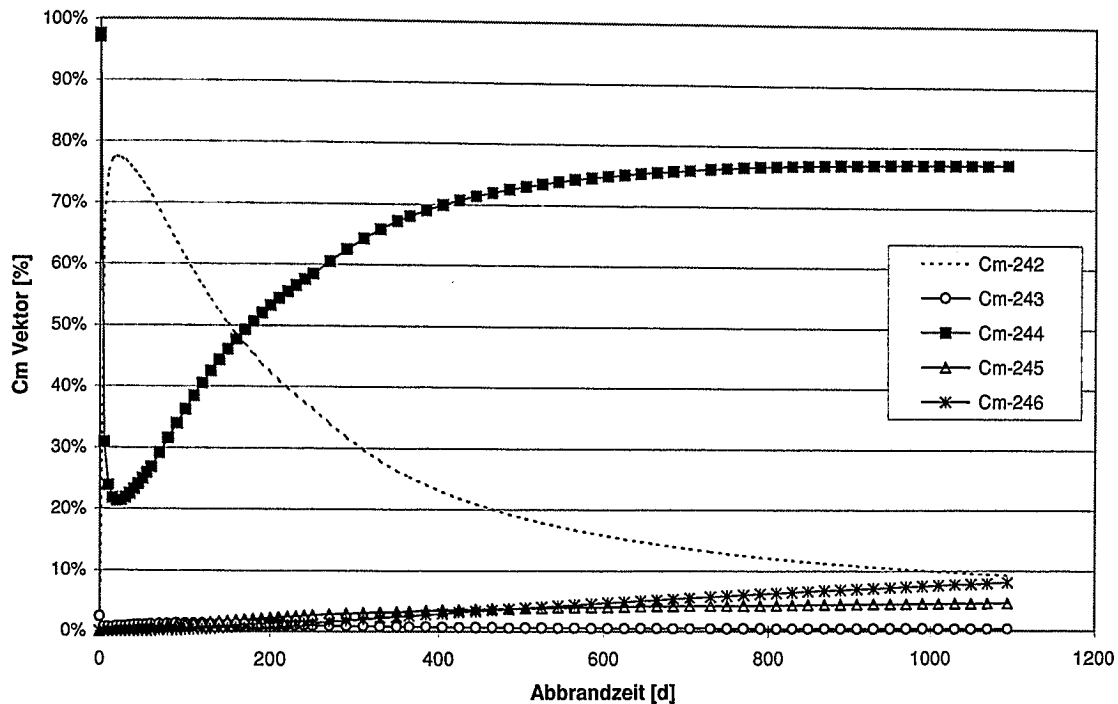


Abb. 7.10: Veränderung des Cm Vektors während eines Abbrands von 3 GW_{th}a für das 0,05%PuMA89/11 Brennstoffsystem.

Vektor ca. 77% und verbleibt auf diesem hohen Niveau. Cm-242 hingegen nimmt konstant an Bedeutung ab und erreicht am Ende des Betriebszyklus einen Anteil von 9,2%. Einen entgegengesetzten Trend besitzt das Cm-246 Isotop. Hier steigt das Verhältnis im Cm Vektor konstant über dem Abbrandzeitraum an und erreicht mit 8% nach 3 Jahren seinen Endwert. Das Cm-245 Isotop erreicht nach ca. 600 Tagen mit 4,5% seine Endkonzentration innerhalb des Cm Vektors. Alle weiteren Cm Isotope besitzen insgesamt einen Anteil von ca. 1%. Wird berücksichtigt, daß das Cm-244 Isotop eine Halbwertszeit von 18,1 Jahren besitzt, so vermindert sich das dominierende Nuklid innerhalb des Curiums, nach zum Beispiel 100 Jahren, auf weniger als 2,2%. Das Zerfallsprodukt aus dem α -Zerfall des Cm-244 Isotops ist das Pu-240 Nuklid. Dieses wiederum kann in der hier beschriebenen thermischen Jülicher ADS Anlage als Brennstoff eingebracht werden. Legt man dies zugrunde, reduziert sich der verbleibende Cm Abfall von 92kg auf 14,25kg, da neben dem Cm-244 auch das Cm-242 mit einer Halbwertszeit von 163 Tagen nicht mehr zum Tragen kommt. Dementsprechend erhöht sich die Pu Masse im selben Zeitraum (100 Jahren) um 77,75 kg (69,28 kg Pu-240 und 8,46 kg Pu-238).

Einen Einblick in das neutronenphysikalische Verhalten der Anlage erlaubt die **Abb. 7.11**. Dort ist neben dem thermischen und dem gesamten Neutronenfluß auch die Aufteilung der Flußanteile nach thermischen, Resonanz und schnellen Bereichen in Abhängigkeit von der Abbrandzeit dargestellt. Der gesamte Neutronenfluß fällt innerhalb der ersten 100 Tage von $1 \cdot 10^{15} \text{ n/(s} \cdot \text{cm}^2)$ auf $8,3 \cdot 10^{14} \text{ n/(s} \cdot \text{cm}^2)$ ab. Im weiteren Verlauf sinkt der Fluß von $8,3 \cdot 10^{14} \text{ n/(s} \cdot \text{cm}^2)$ auf $6,8 \cdot 10^{14} \text{ n/(s} \cdot \text{cm}^2)$ sehr langsam ab. Während des gesamten Zyklus wird dabei das Neutronenspektrum vom thermischen Flußanteil dominiert, obwohl der schnelle Anteil mit fortlaufender Abbrandzeit an Bedeutung gewinnt.

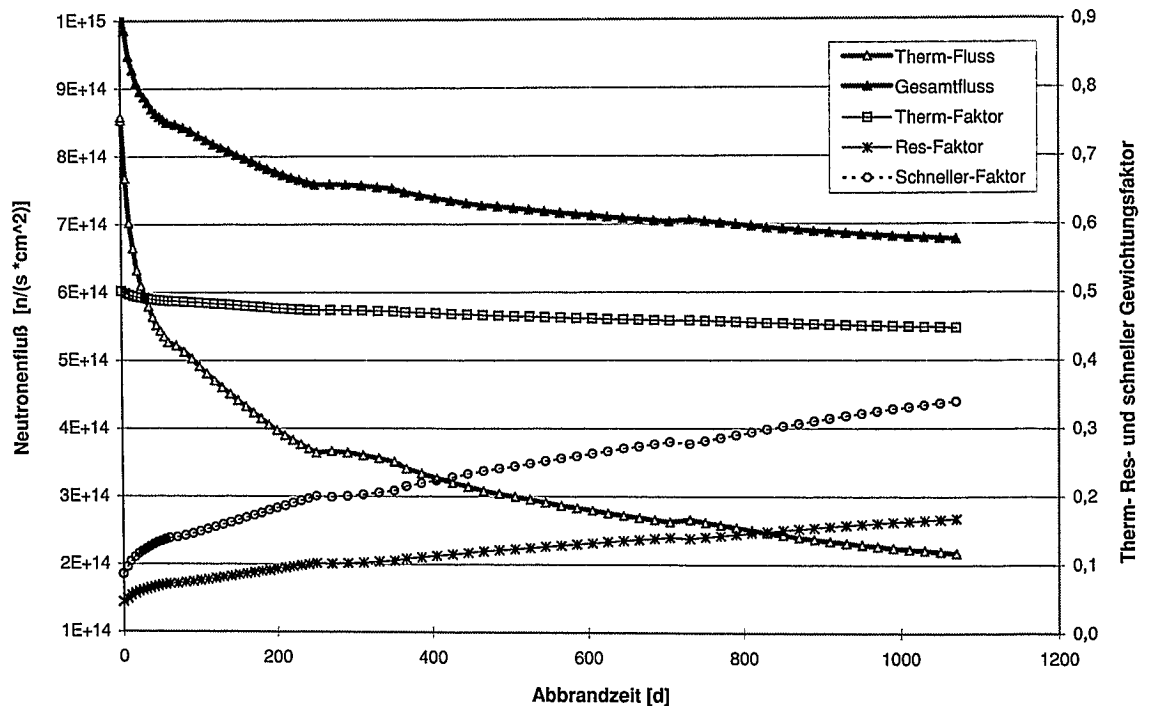


Abb. 7.11: Neutronenflußverlauf während eines Abbrands von 3 GW_{tha} für 0,05%PuMA 89/11 Brennstoff.

Der hohe und quasi konstante ($\Delta k < 1$ nile) k -Wert Verlauf während des Abbrandzyklus spiegelt sich in positiver Weise in den geringen Anforderungen an den Protonenbeschleuniger wieder. Der niedrigste Multiplikationsfaktor von $k_{\infty} = 0,992$ während des Zyklus, kann zu einem k_{eff} Wert von 0,972 abgeschätzt werden. Für diese Betriebssituation wäre dementsprechend eine maximale Leistung von 12,8 mA bei einer Spannung von 1,6 GeV für den Beschleuniger vorzusehen, um die Anlage kritisch zu halten. Dabei beruht die Leistungsabschätzung von 12,8 mA für die Protonenbeschleunigerleistung auf einer sehr konservativen Annahme, daß nur 20 Spallationsneutronen pro 1,6 GeV Proton im Target erzeugt werden. Durch die niedrige Stromstärke von 12,8 mA wird auch die Gesamtleistung des Beschleunigers auf 20,48 MW begrenzt.

Insgesamt kann bei dem PuMA89/11 Basisbrennstoff von einem sehr ausgewogenen Anlagenverhalten gesprochen werden. Insbesondere der sehr gleichmäßige und hohe Multiplikationsfaktor wirkt sich positiv auf die benötigte Beschleunigerleistung aus. Dabei wird mit 367 kg TRU/GW_{tha} eine hohe Umsatzrate (97,8% von der theoretisch möglichen von 375 kg) erreicht. Dies geschieht bei einem sehr kompakten Inventar von max. 339 kg TRU am Zyklusende, was einer Kernmasse von 217 kg entspricht, da die Anlage eine Leistung von 640 MW_{th} besitzt. Tab. 7.1 (S. 99) am Ende dieses Kapitels führt nochmals alle Kenndaten im Vergleich auf.

7.2.2 Reiner Plutonium Brennstoff im Betriebszyklus

Der 0,05%Pu Brennstoff weist ein ähnliches Betriebsverhalten wie der PuMA Brennstoff auf, doch ergeben sich Unterschiede, da der Pu Brennstoff eine Optimierung in Bezug auf den Pu Umsatz darstellt. Dies wird schon an den zentralen Abbrandergebnissen für eine Zykluslänge

von 3 Jahren bei 1 GW_{th} in **Abb. 7.12** deutlich. Dargestellt wird das Ausgangsinventar (BOB), das Endinventar (EOB) und die Umsatzrate jeweils nach TRU unterteilt. Das Kerninventar pro GW_{th} steigt in diesem Zeitraum von 27 kg zu Beginn auf 197 kg TRU am Ende des Abbrandes an. Umgerechnet auf die Gesamtkonzentration im flüssigen Blei bedeutet dies eine Aufkonzentration von 0,05% auf 0,36% bzw. ein Anstiegsfaktor von 7,3. In der selben Zeit wird ein Abbrand von 1158 kg Pu erbracht. Wird diese Abbrandrate mit der zeitgleichen Produktion von 91 kg Minor Actinides (18 kg Am, 73 kg Cm) in Bezug gesetzt, so ergibt sich ein Nettoabbrand von 1067 kg TRU innerhalb von 3 GW_{th}a. Die Elemente Uran und Neptunium fallen in diesem Brennstoffsystem nicht ins Gewicht. Werden erzielter TRU Abbrand und TRU Inventar innerhalb des Zyklus ins Verhältnis gesetzt, so ergeben sich die Systemdaten von 356 kg TRU Abbrand pro GW_{th}a bei einem TRU Umsatz zu TRU Inventar Verhältnis von 5,42. Wird bei einem Pu „Brenner“ nur der Pu Anteil betrachtet, so ergibt sich ein Verhältnis von Pu Umsatz zu Pu Inventar von 10,9.

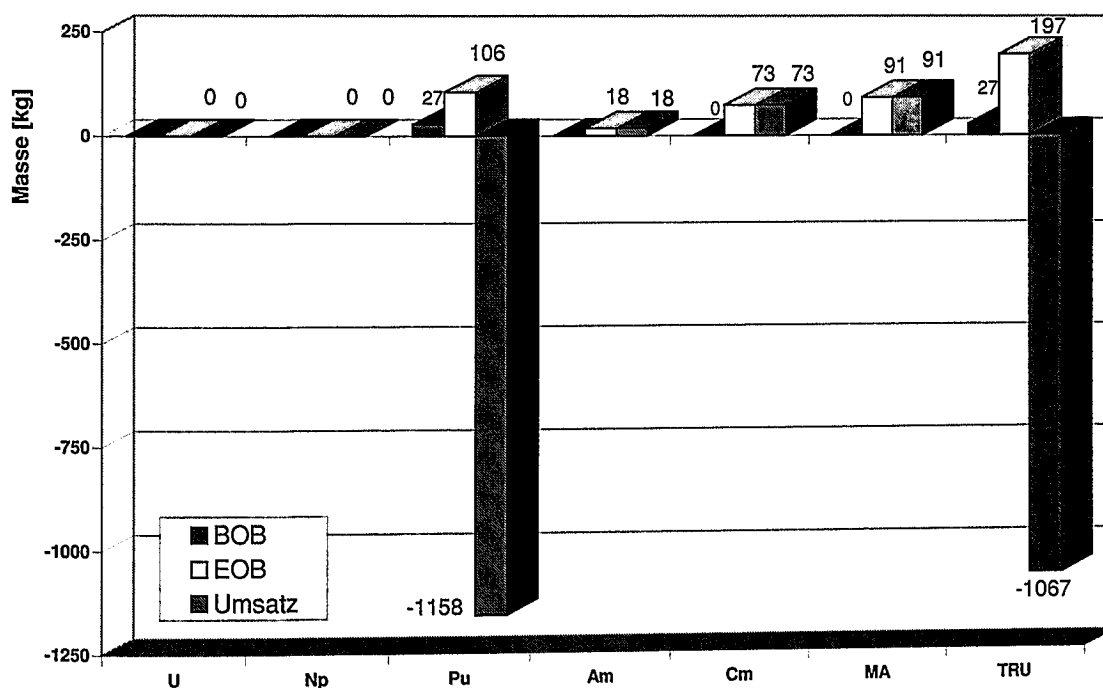


Abb. 7.12: Kerninventar und Umsatz nach einem Abbrand von 3 GW_{th}a für das 0,05%Pu Brennstoffsystem.

Wird das Ansteigen des TRU Inventars näher betrachtet (**Abb. 7.13**), so stellt sich heraus, daß dessen Anstieg ebenso wie beim 0,05%PuMA89/11 Brennstoff nicht proportional zur Zykluslänge verläuft, sondern der größte Anstieg bereits im ersten Jahr mit 89 kg/GW_{th} erfolgt. Im zweiten und dritten Abbrandjahr steigt das TRU Inventar mit 50 kg/GW_{th} TRU bzw. 31 kg/GW_{th} TRU deutlich unterproportional an und stagniert quasi für Am im dritten Jahr (Anstieg um 1,6 kg/GW_{th}). Eine Ausnahme stellt wiederum Cm dar, welches eine konstant hohe Inventarsteigerung aufweist.

Wird der Umsatz an TRU in Abhängigkeit von der Zykluslänge betrachtet (**Abb. 7.14**), so ergibt sich insgesamt ein gleichmäßiges Abbrandverhalten von 355,6 kg/GW_{th} TRU. Die Produktion von Cm ist proportional zur Zykluslänge bzw. steigt im zweiten etwas stärker an (29 kg), um im dritten Abbrandjahr auf ein hohes Niveau zurückzugehen (23 kg). Die Ab-

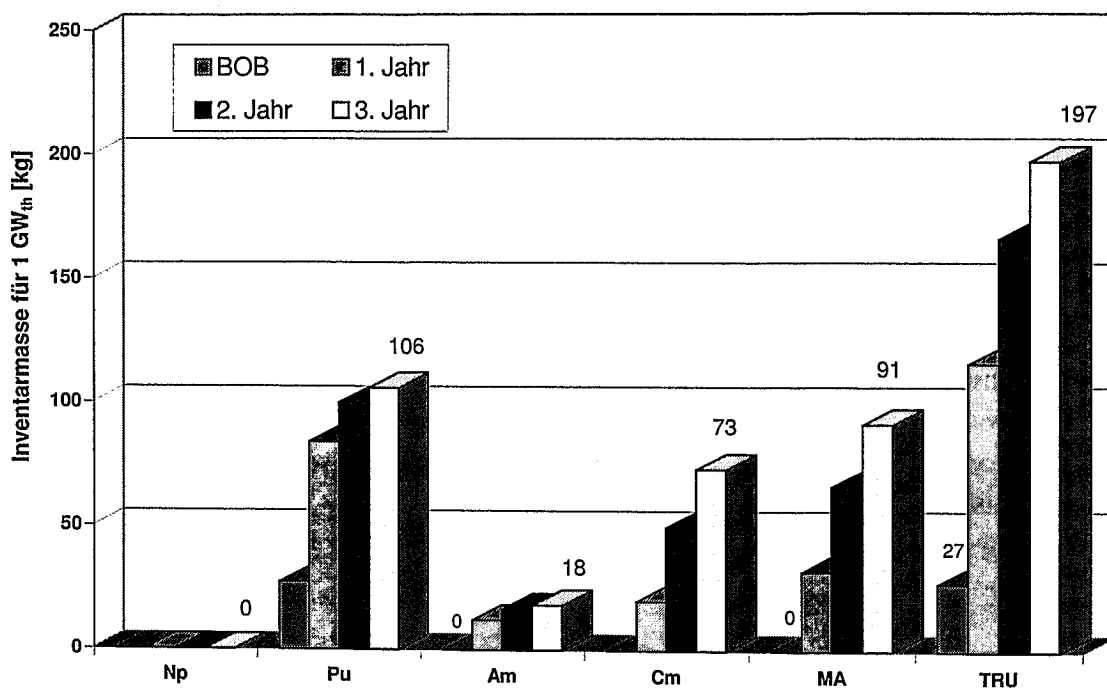


Abb. 7.13: Inventar während eines Abbrands von 3 GW_{th}a für das 0,05%Pu Brennstoffsystem.

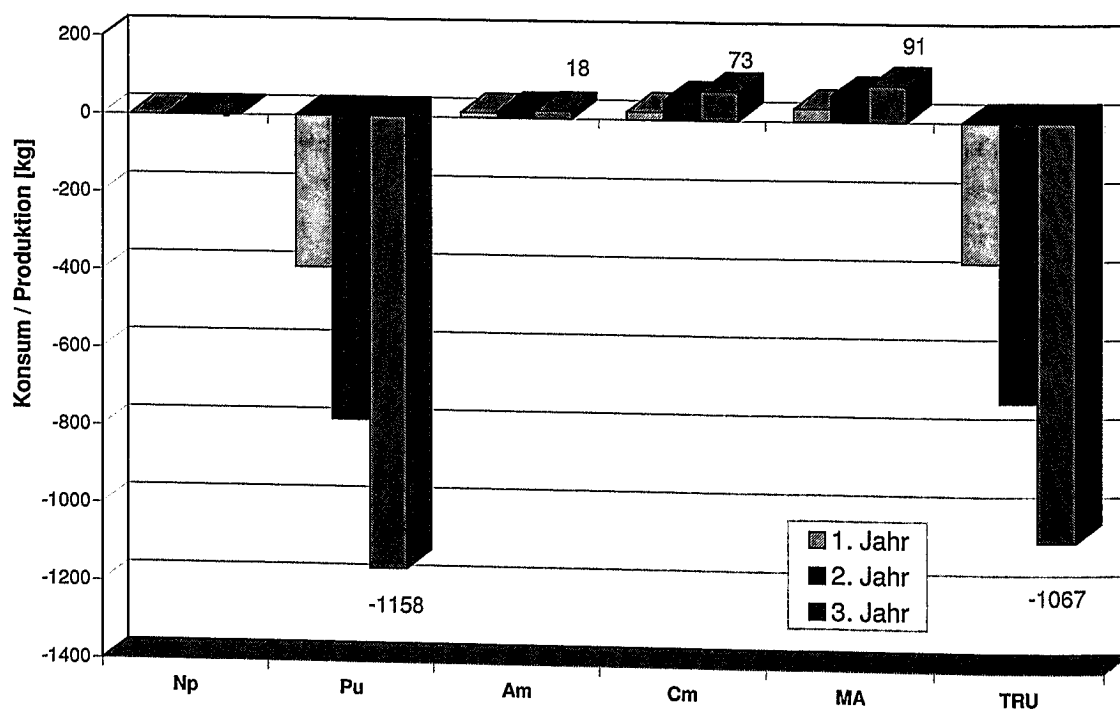


Abb. 7.14: Umsatzraten während eines Abbrands von 3 GW_{th}a für das 0,05%Pu Brennstoffsystem.

brandrate von Pu ist nahezu konstant über der Zeit. Im Falle des Am wird hingegen im ersten Jahr bereits 2/3 des Endproduktion erzeugt. Mit zunehmender Abbranddauer sinkt die Am Produktion stark ab (4,5 kg im zweiten, 1,6 kg im dritten Jahr). Np hingegen wird erwartungsgemäß nicht erzeugt.

Während des Abbrandzyklus verändert sich die Zusammensetzung der TRU Masse im Brennstoff. Sie wächst nicht nur quantitativ an, sondern ändert auch ihre Zusammensetzung. Zum Startzeitpunkt besteht das TRU Inventar zu 100% aus dem bekannten Pu Vektor. Dieser Vektor wird immer als neuer frischer Spaltstoff nachgefüllt. Dennoch wird, als Folge des Aufbaus von Cm und Am, der Pu Anteil immer niedriger. **Abb. 7.15** illustriert diesen Wechsel der TRU-Zusammensetzung während des Abbrandzeitraums von 3 Jahren. Ausgangssituation zum BOB ist eine Zusammensetzung aus 100% Pu. Nach ungefähr einem Jahr bildet sich ein nahezu konstanter TRU-Anteil von ca. 10 % Am innerhalb der TRU Zusammensetzung aus. Der Cm Anteil hingegen steigt stetig mit der Abbrandzeit von anfänglichen 0% Cm auf 37% Cm nach drei Jahren. Im selben Zeitraum sinkt der Pu Anteil von 100% auf 53%. Der Verlauf weist im Bereich von 365 bis 400 Tagen ein leicht inhomogenes Verhalten auf, da in diesem Bereich mit einem erhöhtem Plutonium Zugabemodus gearbeitet wurde. Wird der Brennstoff hinsichtlich seiner Endzusammensetzung charakterisiert (EOB), so handelt es sich demnach um einen 0,37%PuMA53/47 Brennstoff, wobei die Pu, Am und Cm Nuklidzusammensetzungen nicht mit denen der Ausgangssituation zu vergleichen sind. Somit entwickelt sich der Pu Basisbrennstoff während des Zyklus zu einem PuMA Brennstoff mit extrem hohem MA Anteil in Form von Am und Cm, wobei im Vergleich zum PuMA89/11 Brennstoff die Gesamtmasse im Core an MA wesentlich (34%) geringer ist.

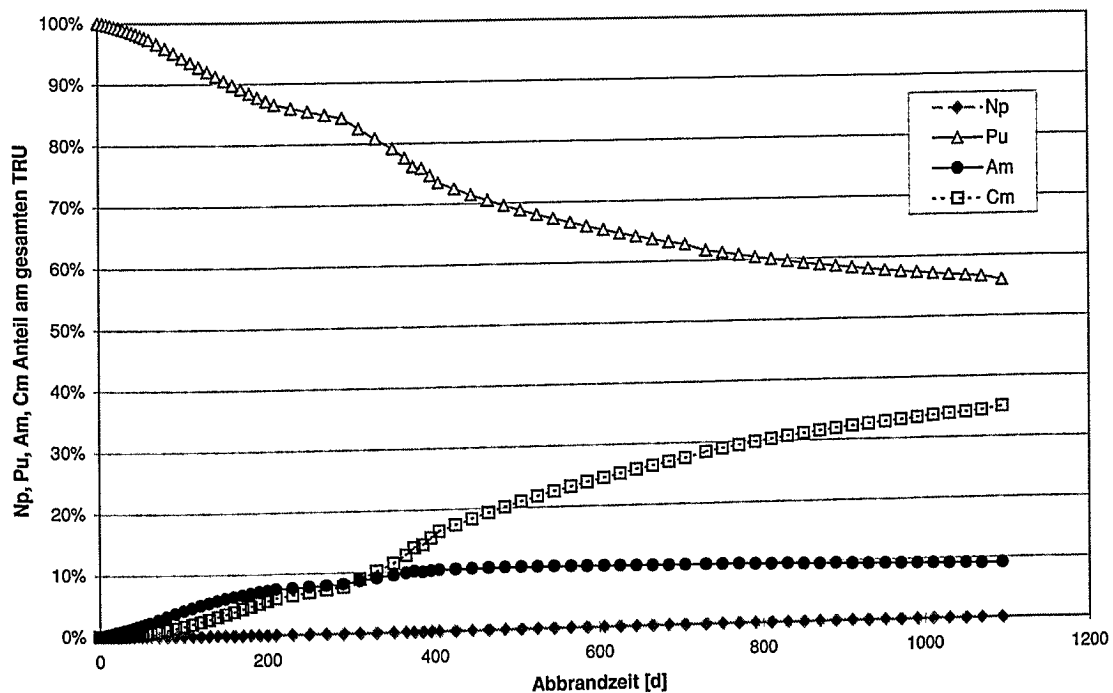


Abb. 7.15: TRU Zusammensetzung während eines Abbrands von 3 GW_{th}a für das 0,05%Pu Brennstoffsystem.

Die rapide Veränderung der Nuklidzusammensetzung wird besonders deutlich am Beispiel des Pu Vektors, dessen Entwicklung in **Abb. 7.16** dargelegt wird. Ausgangspunkt ist der DWR Pu Vektor nach 10 Jahren Abklingzeit. Innerhalb des ersten Jahres wandelt sich diese Nuklidzusammensetzung rapide um und verändert sich im weiteren Zyklusverlauf mit der Ausnahme von Pu-242 nur noch im sehr geringen Maße. So lautet die Nuklidzusam-

mensetzung für die fünf Hauptisotope nach 350 Tagen 50% Pu-242, 19,5% Pu-240, 19,5% Pu-239, 9,4% Pu-241 und 1,3% Pu-238. Am Ende der Abbrandzeit von drei Jahren gab es mit der Ausnahme des Pu-242 Isotops, was um 5,5% zunahm, nur noch geringe Abnahmen des Nuklidanteils der verbleibenden Isotope. Die Zusammensetzung am Ende der Abbrandzeit (EOB) lautet dementsprechend 55,5% Pu-242, 17,7% Pu-240, 16,2% Pu-239, 9,2% Pu-241 und 1,2% Pu-238. Als Konsequenz aus der Verschiebung der Nuklidzusammensetzung des Pu steigt die Anzahl der kritischen Pu Massen ($m_k \approx 10$ kg DWR Pu) deutlich unterproportional im Vergleich zum Anstieg der integralen Pu Masse aller Nuklide. So nimmt die Pu Masse der Anlage von 17 kg zu Beginn auf 67 kg am Zyklusende (EOB) um den Faktor 3,94 zu. Wird jedoch die Anzahl der kritischen Massen als Beurteilungsgrundlage einer Sicherheitsbetrachtung herangezogen, so steigt diese von 1,7 zu Beginn nur auf 2,6 am Zyklusende (Isotope ^{239}Pu und ^{241}Pu berücksichtigt). Wird auch beim Pu-Brennstoff die kritische Masse an TRU mit in die Betrachtung einbezogen, so steigt die kritische TRU-Masse auf 4,1. Auch hier dominiert das Cm-244 Nuklid (97% der zusätzlichen Kritikalität) den Einfluß der Actinide auf die kritische TRU Masse. Somit existiert in Bezug auf die kritische Masse eine Steigerung um den Faktor 1,52 bei einer reinen Pu Betrachtung und um 2,4 für die gesamte kritische TRU Masse. (Wird ein Einkreis-Kühlsystem zu Grunde gelegt, so kann mit einer Vervierfachung der Massen gerechnet werden.) Bei der Betrachtung dieser Vektorentwicklung fällt sofort der geringe Pu-238 Anteil auf, der quasi konstant bei 1,3% liegt. Dementsprechend kann jetzt schon davon ausgegangen werden, daß beim Pu Brennstoffsystem keine zusätzlichen Quellterme durch Np-237 und Cm-242 auftreten. Augenscheinlich wird der Gesamtvektor dadurch noch stärker durch das Pu Isotop ^{242}Pu geprägt. Eine kurzzeitige Inhomogenität der Vektorzusammensetzung im Bereich 365 Tage bis 400 Tage spiegelt die erhöhte Pu Eingabe wieder. Da der zugegebene Spaltstoff zu 62% aus Pu-239 besteht, steigt dieser Vektoranteil kurz an, während die anderen Isotope eine kleine negative Stufe in der Vektorentwicklung aufweisen.

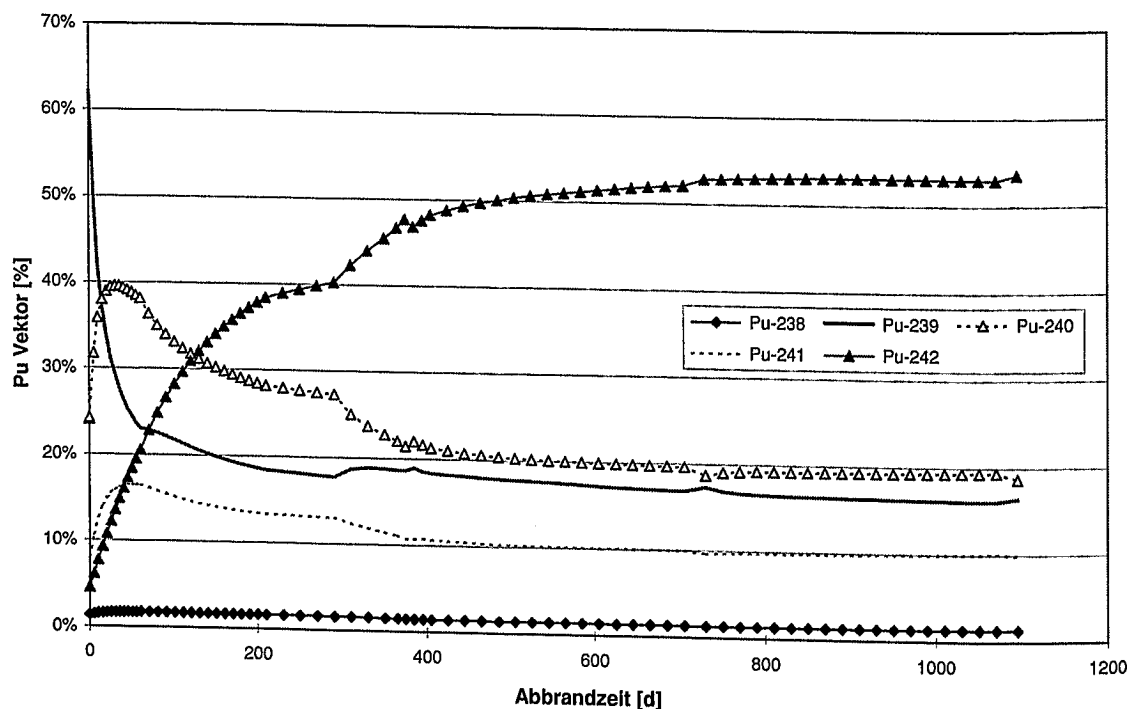


Abb. 7.16: Veränderung des Pu Vektors während eines Abbrands von 3 GW_{th}a für das 0,05%Pu Brennstoffsystem.

Cm löst nach ca. 200 Tagen Abbrandzeit Am als zweit häufigstes TRU im Brennstoff ab. Der Cm Vektor weist dabei schon von Beginn an eine absolute Dominanz des Isotops ^{244}Cm auf. **Abb. 7.17** zeigt diese Entwicklung auf. Entsprechend dem Auftreten des Am Anteils und dem Pu Ausgangsvektor und der Entwicklung der TRU Anteile liegt dementsprechend eine Entwicklungskette über Pu-243, Am-243, Am-244 zu Cm-244 vor (vgl. Anhang A 1).

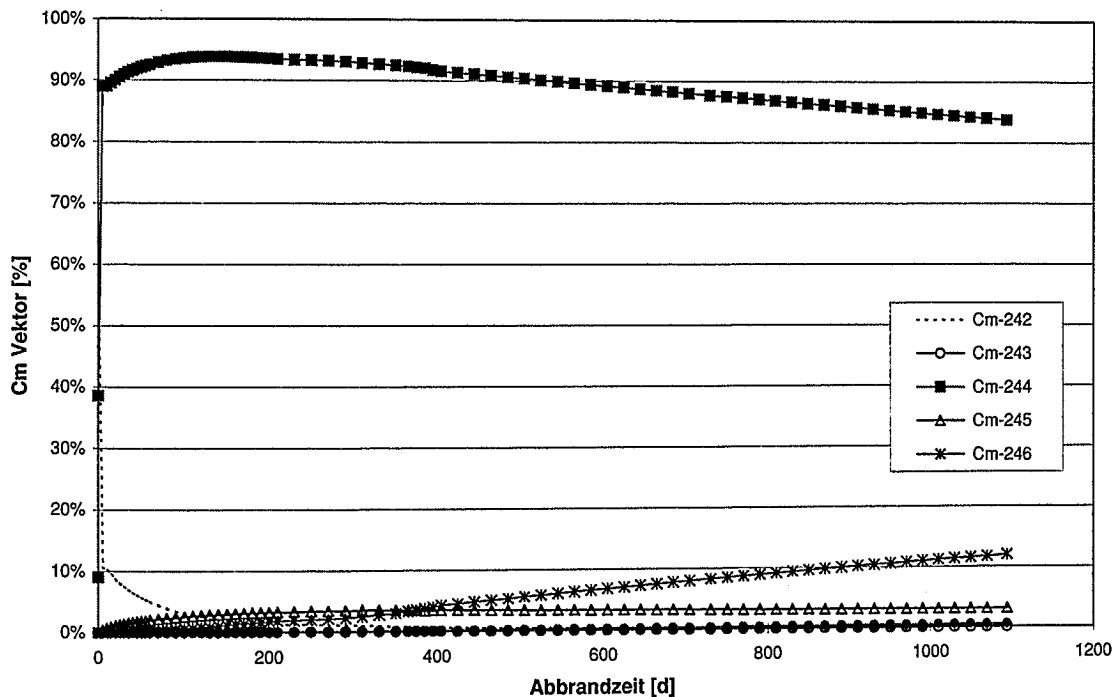


Abb. 7.17: Veränderung des Cm Vektors während eines Abbrands von 3 GW_{th} für das $0,05\% \text{ Pu}$ Brennstoffsystem.

Nach ca. 140 Tagen erreicht der ^{244}Cm Anteil über 94%. Im weiteren Abbrandverlauf sinkt dieser extrem hohe Anteil auf ca. 83% gleichmäßig ab. Cm-245 erreicht nach ca. 200 Abbrandtagen eine konstante Konzentration von ca. 3%. Aus dieser Quelle entwickelt sich durch Neutroneneinfang das Cm-246 Isotop. Die Konzentration von Cm 246 steigt mit zunehmender Abbrandzeit konstant an und erreicht nach 3 Jahren einen Anteil von 12,8%. Die Cm Isotope ^{247}Cm und ^{248}Cm nehmen zusammen mit 1% einen geringen Anteil am Cm Vektor ein. Quasi gänzlich ausgeschlossen mit nur 0,18% ist die Produktion des Cm-242 Isotops. Aufgrund der fehlenden bzw. sehr begrenzt vorhandenen Am-241 und Am-242 Vorprodukte, kann sich dieses Nuklid Cm-242 nur in sehr geringen Mengen bilden. Demzufolge wird auch das Folgenuklid Cm-243 faktisch nicht erbrütet. Wird berücksichtigt, daß das Cm-244 Isotop eine Halbwertszeit von 18,1 Jahren besitzt, so vermindert sich das dominierende Nuklid innerhalb des Curiums, nach zum Beispiel 100 Jahren, auf weniger als 2,2%. Das Zerfallsprodukt aus dem α -Zerfall des Cm-244 Isotops ist das Pu-240 Nuklid. Dieses wiederum kann in der hier beschriebenen thermischen Jülicher ADS Anlage als Brennstoff eingebracht werden. Legt man dies zugrunde, reduziert sich der verbleibende Cm Abfall von $73 \text{ kg/GW}_{\text{th}}$ auf $13,74 \text{ kg}$. Als Folge erhöht sich die Pu Masse im selben Zeitraum (100 Jahren) um $59,25 \text{ kg Pu-240}$.

Einen Einblick in das neutronenphysikalische Verhalten des Brennstoffsystems erlaubt die **Abb. 7.18**. Dort ist neben dem thermischen und gesamten Neutronenfluß auch die Aufteilung der Flußanteile nach thermischen, Resonanz und schnellen Bereichen in Abhängigkeit von der Abbrandzeit dargestellt. Der gesamte Neutronenfluß fällt innerhalb der ersten 100 Tage von $9,39 \cdot 10^{14} \text{ n/(s} \cdot \text{cm}^2)$ auf $8,85 \cdot 10^{14} \text{ n/(s} \cdot \text{cm}^2)$ ab. Im weiteren Verlauf sinkt der Fluß von $8,85 \cdot 10^{14} \text{ n/(s} \cdot \text{cm}^2)$ auf $7,88 \cdot 10^{14} \text{ n/(s} \cdot \text{cm}^2)$ sehr langsam ab und weist einen quasi konstanten Verlauf auf. Der thermische Neutronenfluß besitzt eine ausgeprägtere Verlaufsstruktur mit einem stärkeren Abfall innerhalb der ersten 270 Tage ($7,6 \cdot 10^{14} \text{ n/(s} \cdot \text{cm}^2)$ auf $4,8 \cdot 10^{14} \text{ n/(s} \cdot \text{cm}^2)$). Es folgt eine kleine Stufe als Folge des veränderten Pu-Zugabemodus. Im weiteren Verlauf kommt es dann zu einem langsamen absinken des thermischen Neutronenflusses auf $4,1 \cdot 10^{14} \text{ n/(s} \cdot \text{cm}^2)$. Während des gesamten Zyklus wird dabei das Neutronenspektrum vom thermischen Flußanteil dominiert. Der schnelle Anteil gewinnt mit fortlaufender Abbrandzeit nur gering an Bedeutung.

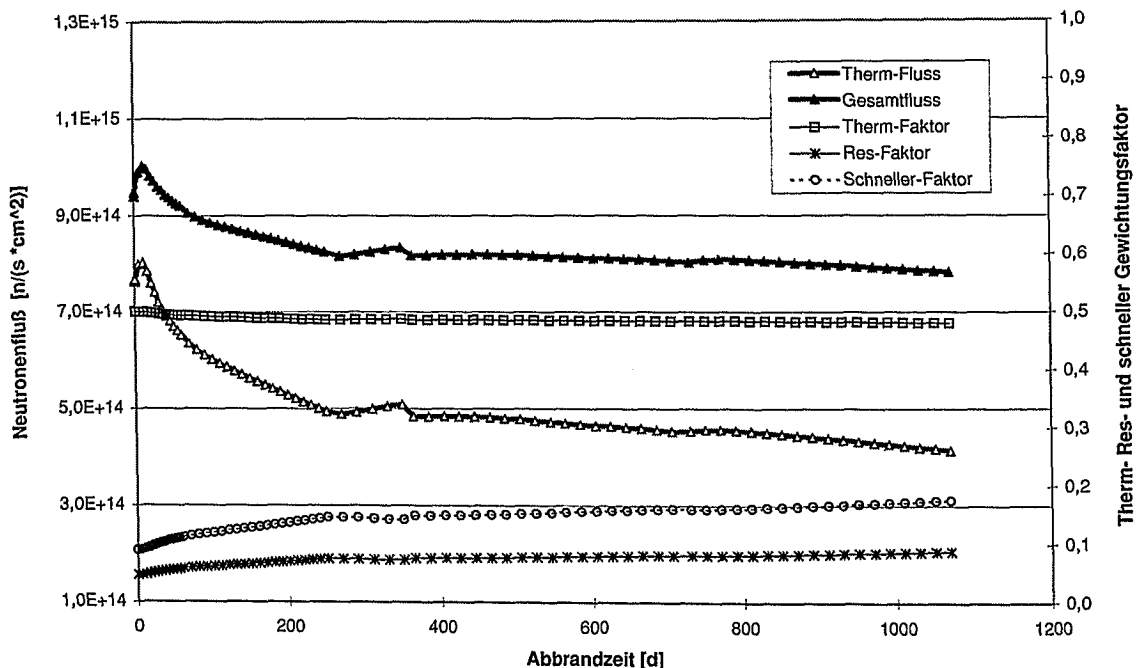


Abb. 7.18: Neutronenflußverlauf während eines Abbrands von 3 GW_{th} für das $0,05\% \text{Pu}$ Brennstoffsystem.

Der Pu Brennstoffzyklus besitzt die Eigenart, daß in den ersten 10 Abbrandtagen ein überkritischer Multiplikationsfaktor vorliegt, der in Realität z.B. durch ein geringe Borzugabe korrigiert werden muß. Ab dem 10. Abbrandtag weist dieses System einen hohen und auch recht konstanten ($\Delta k < 2 \text{ nile}$) unterkritischen k -Wert Verlauf während des Abbrandzyklus auf. Der niedrigste Multiplikationsfaktor von $k_{\infty} = 0,983$ während des Zyklus, kann zu einem k_{eff} Wert von $0,962$ abgeschätzt werden. Für diese Betriebssituation wäre dementsprechend eine maximale Leistung von $16,8 \text{ mA}$ bei einer Spannung von $1,6 \text{ GeV}$ für den Beschleuniger vorzusehen, um die Anlage kritisch zu halten. Die Leistungsabschätzung von $16,8 \text{ mA}$ für die Protonenbeschleunigerleistung beruht wiederum auf einer sehr konservativen Annahme, daß nur 20 Spallationsneutronen pro $1,6 \text{ GeV}$ Proton im Target erzeugt werden. Durch die niedrige Stromstärke von $16,8 \text{ mA}$ wird auch die Gesamtleistung des Beschleunigers auf $26,88 \text{ MW}$ begrenzt.

Insgesamt kann bei dem Pu Basisbrennstoff von einem Anlagenverhalten gesprochen werden, welches zwar keinen ausgeprägten konstanten Verlauf aufweist, doch sind die Unterschiede kleiner als 2 nile. Ebenso wie beim PuMA Brennstoff wirkt sich auch hier der gleichmäßige und hohe Multiplikationsfaktor positiv auf die benötigte Beschleunigerleistung aus. Dabei wird mit 355 kg TRU/GW_{th} eine hohe Umsatzrate (94,8% von der theoretisch möglichen von 375 kg) erreicht, gleichwohl neben Cm auch Am in der Anlage produziert wird. Das Gesamtinventar beträgt bei dem Pu Brennstoffzyklus nur 126 kg in der Anlage bzw. 197 kg TRU/GW_{th} da die Anlage eine Leistung von 640 MW_{th} besitzt. **Tab. 7.1** (S.99) am Ende dieses Kapitels führt nochmals alle Kenndaten im Vergleich auf.

7.2.3 Vergleich von Pu und PuMA Brennstoff

Auf dem ersten Blick weisen der Pu und der PuMA Brennstoff ein sehr ähnliches Abbrandverhalten auf. Dennoch erscheint der PuMA Brennstoff insgesamt als ausgeglichener in seinem Verhalten. Dies wird besonders deutlich hinsichtlich des Multiplikationsfaktors, der überaus konstant und gleichmäßig verläuft. Hier findet die höhere Inventarmasse in einem stabileren bzw. trägeren Anlagenverhalten ihren Ausdruck.

Der Neutronenfluß bzw. seine Zusammensetzung ist bei dem reinen Pu Brennstoff gleichmäßiger ausgeprägt, während sich beim PuMA Brennstoff die Zusammensetzung des gesamten Neutronenflusses stetig in Richtung zu einem etwas schnelleren Flußanteil verschiebt. Dieser Effekt tritt beim Pu Brennstoff kaum auf, da die vorhandenen Inventarmassen an TRU um ca. 50% geringer sind. Insgesamt erscheint aber der Mittelwert des Gesamtneutronenflusses von $8,5 \cdot 10^{14} \text{ n/(s} \cdot \text{cm}^2)$ für den Pu Brennstoff und $7,7 \cdot 10^{14} \text{ n/(s} \cdot \text{cm}^2)$ für den PuMA Brennstoff als annehmbare Größe.

Für eine erste Beurteilung der Standzeit der graphitischen Einbauten als Folge des Neutronenflusses im Blanket ist das Verhalten des schnellen Flußanteils $\Phi_{\text{schnell}}(E)$ mit $E \geq 180 \text{ keV}$ von besonderer Bedeutung. Grundlage einer Standzeitbeschränkung ist typischerweise der Beginn der Nettowachstumsphase des Graphits. Diese Nettowachstumsphase setzt bei einem akkumuliertem schnellen Fluß von ca. $2,3 \cdot 10^{22} \text{ n/(cm}^2)$ ein /HAA et al. 90/. Dementsprechend richtet sich die Standzeit der graphitischen Einbauten nach dem maximalen schnellen Neutronenfluß $\Phi_{\text{schnell}}^{\text{max}}(E)$ im Blanket. Da der maximale Neutronenfluß im schnellen Energiebereich für den PuMA Brennstoff $\Phi_{\text{schnell}}^{\text{max}} = 5,1 \cdot 10^{13} \text{ n/(s} \cdot \text{cm}^2)$ und für den Pu Brennstoff $\Phi_{\text{schnell}}^{\text{max}} = 5,2 \cdot 10^{13} \text{ n/(s} \cdot \text{cm}^2)$ quasi gleich ausfällt, wird der Pu Brennstoff für eine überschlägige Standzeitauslegung des Graphits herangezogen.

Auf der Grundlage des akkumulierten Neutronenflusses von $\Phi_{\text{schnell}}^{\text{akk.;Grenzwert}} = 2,3 \cdot 10^{22} \text{ n/cm}^2$ und einem maximalen schnellen Neutronenfluß von $\Phi_{\text{schnell}}^{\text{max}} = 5,2 \cdot 10^{13} \text{ n/(s} \cdot \text{cm}^2)$ ergibt sich eine Standzeit von 5084 Tagen (efpd) bzw. 13,9 Jahren. Diese Zahl mag als erster, konservativer Richtwert gelten, obwohl nach heutigem Kenntnisstand auch Graphite mit einer um ca. 20% vergrößerten Lebensdauer herstellbar sind /HAA 85/. Genauere Betrachtungen erfordern zusätzlich die Betrachtung der Temperaturverteilung, da das Wachstum um so früher einsetzt, je höher die Temperaturen sind /DEE 83/. Grundlagen für eine differenzierte Betrachtung von Graphiteinbauten finden sich auch in /LYP₄ 96/. Hinsichtlich der Graphitstandzeit weisen

beide Brennstoffvarianten mit ca. 14 Jahren einen sehr guten Wert auf, so daß die Graphitstandzeit primär nicht durch das Neutronenspektrum des Brennstoffs eingeschränkt wird, sondern die hochenergetischen Spallationsneutronen für eine Standzeitbegrenzung verantwortlich erscheinen. Durch die Spallationsneutronen findet nach /LYP₄ 96/ eine starke lokale Schädigung des Graphits im targetnahen Bereich statt. Im Vergleich der Einflußgrößen erscheint dies der bestimmende Einflußfaktor zu sein, wobei die Möglichkeit besteht, durch auswechselbare Einbauten um das Target die lokale Schädigung des reinen Blanketgraphits deutlich zu verringern.

Größere Unterschiede finden sich indes in dem verbleibenden Inventar an TRU im Blanket. Wird die Inventarmasse verglichen, so ist zunächst nur augenscheinlich, daß der PuMA Basisbrennstoff ein um 72% größeres Inventar an TRU am Zyklusende aufweist, als der Pu basierte Brennstoff. Wird der Pu Vektor verglichen zwischen den Brennstoffen am Zyklusende (EOB) und dem gemeinsamen Ausgangsvektor (BOB), Abb. 7.19, so kommt es zu deutlichen Verschiebungen in der Zusammensetzung. Kann noch bei beiden Brennstoffvarianten festgestellt werden, daß sich der relative Pu-239 Anteil fast identisch von 62% auf ca. 16% erwartungsgemäß abgesenkt hat, und daß es bei beiden Brennstoffen nur zu sehr geringen Pu-243, und in Folge dessen zu keinem Pu-244, Aufbau kommt, weisen die weiteren Pu Isotope doch gravierende Unterschiede auf. Zwar ist beim Pu-240 Isotop bei beiden Brennstoffen eine Verringerung des rel. Anteils zu erkennen, doch fällt diese prozentuale Größe beim PuMA basierten Brennstoff geringer aus. Beim Isotop Pu-241 haben beide Brennstoffsysteme eine gleiche Tendenz zum gemäßigten ansteigen des rel. Anteils. Die größten Unterschiede ergeben sich beim Pu-242 Isotop und dem Pu-238 Isotop. Entgegen dem Ausgangswert von 4,5% Pu-242 steigert sich dieser Wert beim PuMA Brennstoff um den Faktor 9,3 auf 42,2% und beim Pu basierten Brennstoff um das 12,3-fache auf 55,5%. Beim Pu-238 Isotop findet nur ein deutlicher Anstieg beim PuMA Brennstoff auf 9,7% statt, wohingegen

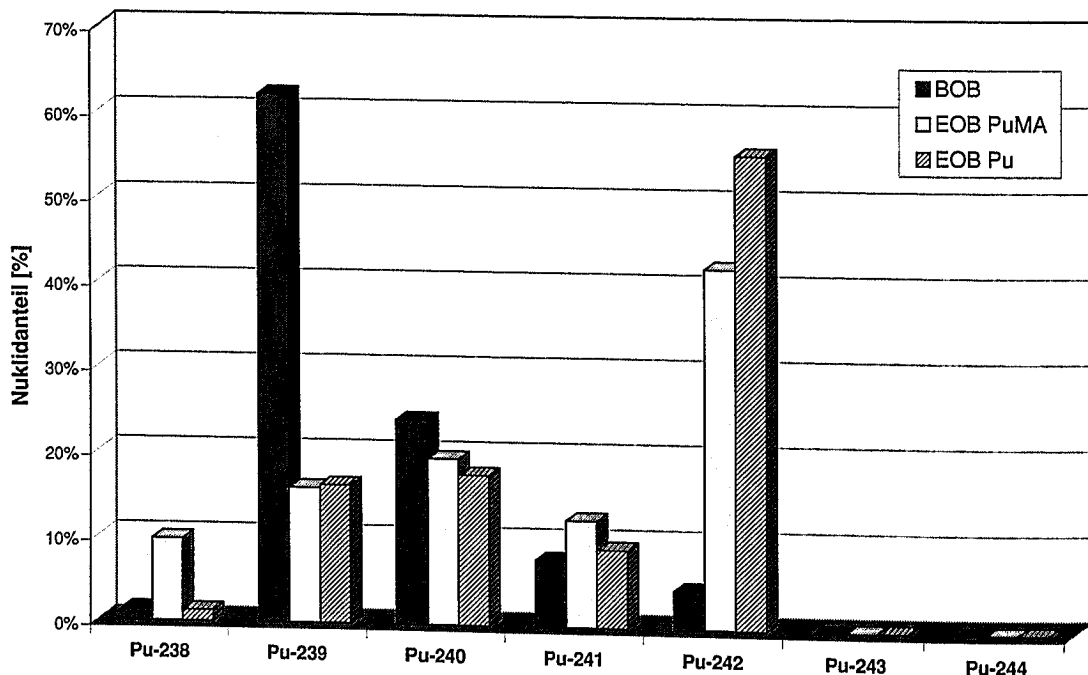


Abb. 7.19: Pu Vergleich bei BOB und EOB nach einem Abbrand von 3 Jahren für reinen Pu- sowie PuMA Brennstoff.

der Pu Brennstoff fast den Ausgangswert von 1,3% beibehält. Insgesamt werden beide Brennstoffe nunmehr vom Pu-242 Nuklid deutlich dominiert. Zwar kann nun anhand des Pu Vektors eine Abschätzung über das Brennstoffverhalten abgegeben werden, doch um die Vektorverschiebung und das TRU Abbrandverhalten differenziert beurteilen zu können, ist es sinnvoll die absoluten Nuklidmassen zu betrachten.

Abb. 7.20 gibt einen Überblick über die eingesetzten TRU Nuklide für den PuMA basierten Brennstoff und stellt sie in Relation zum Endinventar an TRU nach Abbrandende (EOB). Da sich die eingegebenen Pu Massen zwischen dem PuMA Brennstoff und reinem Pu Brennstoff nur um einige kg (ca. 20 kg/3 GW_{th}a) unterscheiden, kann auch das Endinventar des Pu Brennstoffsystems direkt in den Vergleich mit einbezogen werden. Entgegen der prozentualen Darstellung wird sofort ersichtlich, daß beide Brennstoffe im wesentlichen die Isotope ²³⁹Pu, ²⁴⁰Pu und ²⁴¹Pu verbrennen. Zusätzlich weist der PuMA basierte Brennstoff einen deutlichen Abbrand an Np-237 und Am-241 auf. Ein wesentlicher Nuklidaufbau findet beim Pu basierten Brennstoff beim Am-243, welches neu entsteht und dem Cm-244 Nuklid bzw. den Folgenukliden Cm-245 und Cm-246 statt. Dabei besitzt das Cm-244 Nuklid mit 61 kg, was 67% des gesamten MA Aufkommens entspricht, eine dominierende Rolle. Beim PuMA basierten Brennstoff weist ebenfalls das Cm-244 Nuklid eine dominierende Rolle in der MA Zusammensetzung auf, doch finden sich ebenso die Cm-245 und Cm-246 als auch die Cm-242 und Am 243 Isotope wieder, die einem Zuwachs unterliegen. Hinsichtlich der Bewertung der beiden Basisbrennstoffe sind gerade die Nuklide mit deutlich unterschiedlichen Entwicklungen und hoher Inventarmasse am EOB von Interesse. Daher sollen die fünf Nuklide Pu-238, Pu-242, Am-243, Cm-242 und Cm-244 näher betrachtet werden. Das starke „Abbrennen“ der Nuklide Np-237 und Am-241 beim PuMA Brennstoff entspricht hingegen den Erwartungen und wird demnach nur hinsichtlich seiner Auswirkungen berücksichtigt.

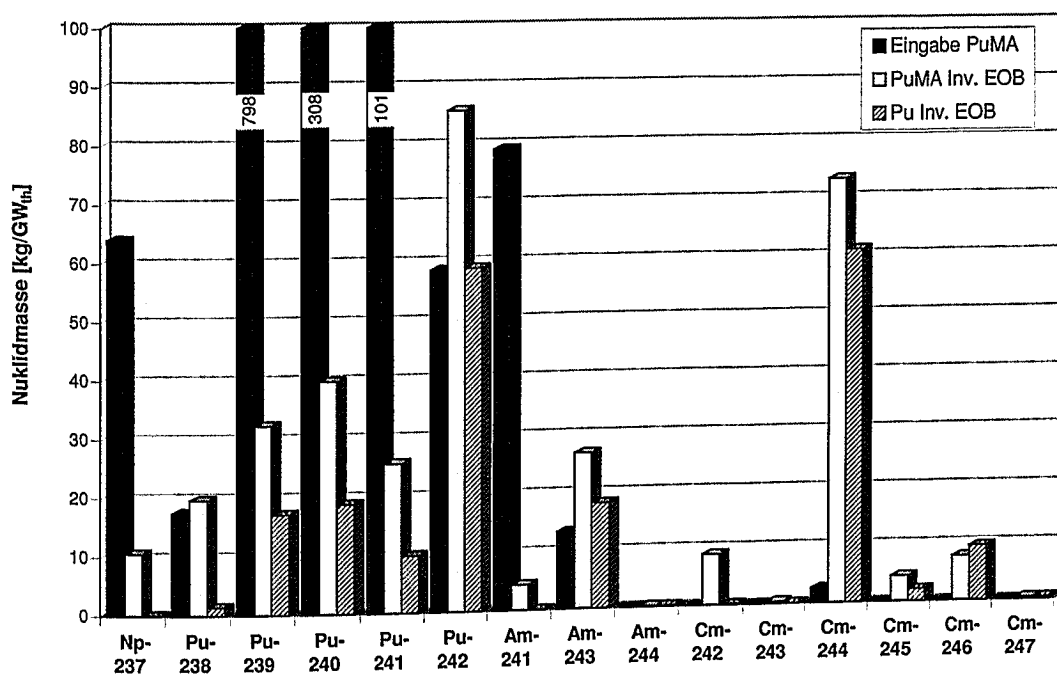
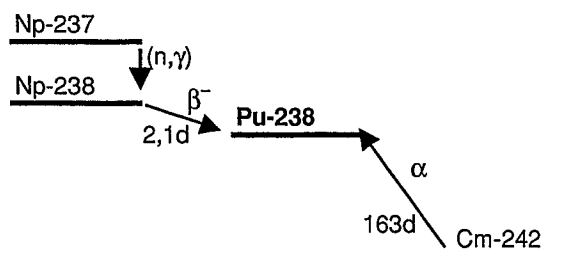


Abb. 7.20: Inventarvergleich der TRU für Pu und PuMA Brennstoffe zum BOB und EOB nach 3 GW_{th}a Abbrand.

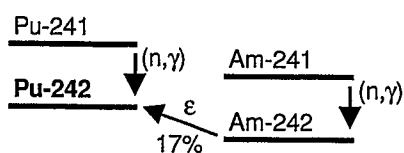
Das Pu Isotop ^{238}Pu besitzt einen hohen thermischen Wirkungsquerschnitt für Neutronenabsorption und einen recht kleinen Wirkungsquerschnitt für Spaltung. Dementsprechend sollte eine deutliche Reduzierung des Nuklids erreicht werden. Beim reinen Pu Brennstoff tritt dies



erwartungsgemäß ein, doch beim PuMA basierten Brennstoff kommt es zu einer Massenerhöhung des Pu-238 Isotops. Ursache hierfür ist die Existenz zweier Quellterme, die beim reinen Pu Brennstoff nicht existieren. So wird über die Np-237 und Np-238 Kette und einem anschließenden

den β⁻ Zerfall ($d_{1/2} = 2,1 \text{ d}$) zusätzlich Pu-238 erzeugt. Mit einer größeren Verzögerung und in einem geringeren Anteil wird über den α Zerfall ($d_{1/2} = 163 \text{ d}$) von Cm-242 ebenfalls Pu-238 erzeugt. Bei dem Quellterm Np-237 handelt es sich um ein Isotop, welches direkt dem Brennstoff im PuMA Zyklus zugegeben wird und das Cm-242 wird über die Pu-241 - Am-241 Kette erzeugt.

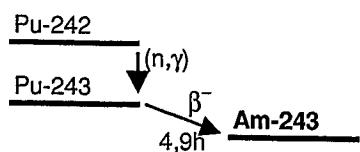
Für das Pu Isotop ^{242}Pu existieren im wesentlichen zwei Quellterme. Zum einen kommt es zu kontinuierlichem Aufbau durch die Neutronenabsorption des Pu-241, was dann zum Isotop



^{242}Pu führt. Ein weiterer Bildungsweg existiert mittels eines Elektroneneinfangs (Wahrscheinlichkeit von 17%) des Nuklids Am-242, welches sich wiederum aus dem Nuklid Am-241 anhand einer (n,γ) Reaktion bildet. Da sich beim PuMA basierten Brennstoff ein stark erhöhter

Massenanteil am Pu-242 Nuklid widerspiegelt, stellt der Bildungsweg über das Am-242 Isotop den entscheidenden Quellterm für den Massenunterschied dar.

Ein deutlicher Massenaufbau findet auch beim Nuklid **Am-243** statt. Dieser Massenaufbau fällt für den Pu basierten Brennstoff (18 kg) deutlicher aus als für den PuMA Brennstoff (13 kg), obwohl dort keine direkte Am Zugabe stattfindet. Dementsprechend muß der Aufbau im wesentlichen durch den β⁻ Zerfall des sehr kurzlebigen ($d_{1/2} = 4,9\text{h}$) Pu Isotops ^{243}Pu erfolgen. Dieses wiederum entsteht durch den Neutroneneinfang eines Pu-242 Isotops. Das die

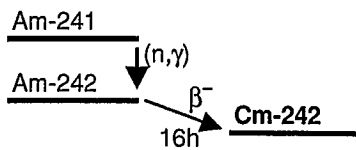


absolute Am-243 Massenzunahme beim Pu Brennstoff höher ausfällt, liegt darin begründet, daß Am-243 selbst ein Quellterm für andere Nuklide darstellt und sich das PuMA Brennstoffsystem schneller einem Gleichgewichtszustand zwischen Am-243 Aufbau durch Pu-243 und Am-243 Ver-

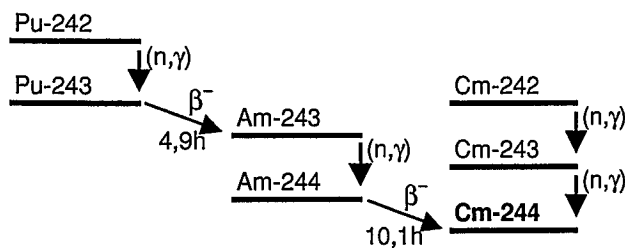
minderung durch Kernreaktionen annähert. Dies wird auch durch den unterproportionalen Am Anstieg im 2ten und 3ten Abbrandjahr bestätigt. Ein prinzipiell möglicher Am-243 Aufbau durch (n,γ) Reaktion des Am-242m Nuklids sowie durch einen Elektroneneinfang des Cm-243 Nuklids fällt aufgrund der geringen Wahrscheinlichkeit und der begrenzten Cm-243 Massen bzw. nicht vorhandenen Am-242m Masse nicht ins Gewicht.

Das ^{242}Cm Isotop baut sich faktisch nur im PuMA Brennstoffsystem auf. Ursache ist hier das Zwischennuklid Am-242, welches sich durch einen Neutroneneinfang aus dem Am-241 bildet. Am-241 ist im PuMA Brennstoff ein wesentliches Nuklid bei der MA Brennstoffzugabe

und weist einen recht hohen Absorptionsquerschnitt für die (n,γ) Reaktion auf. Am-242 besitzt nur eine Halbwertszeit von 16 Stunden und wandelt sich durch eine β^- Reaktion in Cm-242 um. Cm-242 selbst weist eine Halbwertszeit von ($d_{1/2} = 163$ d) auf und dient unter Aussendung eines α Teilchens als Quellterm für Pu-238. Da ab dem 400 Abbrandtag die Cm-242 Masse quasi konstant ist, befindet sich das Nuklid ab diesem Zeitpunkt im Gleichgewicht zwischen Cm-242 Aufbau und Cm-242 Zerfall.



Cm-244 besitzt den weitaus größten Massenanteil unter den Minor Actinides und wird von beiden Brennstoffsystemen in großen Mengen (60 kg Pu/ 70 kg PuMA Brennstoff) aufgebaut. Da der Pu Brennstoff keine Cm-242 und Cm-243 Nuklide aufweist, kann über die (n,γ) Reaktion dieser Isotope nur ein prinzipieller Unterschied von ca. 10kg zwischen den verschiedenen



Brennstoffen erklärt werden. Der Hauptbildungsweg für das Cm-244 Nuklid muß dementsprechend über Am-244 und dessen β^- Zerfall ($d_{1/2} = 10,1$ h) erfolgen. Quellterm für das kurzlebige Am-244 Isotop ist die (n,γ) Reaktion des Am-243 Nuklids. Dieses wiederum

bildet sich im wesentlichen aus dem β^- Zerfall des kurzlebigen Pu-243 und besitzt als vorge-schalteten Quellterm das Pu-242 Isotop, welches in beiden Brennstoffen den Pu-Vektor dominiert und Hauptbestandteil des Brennstoffs am Zyklusende darstellt. Da sich in den drei Jahren Abbrandzeit noch kein Gleichgewicht zwischen Cm-244 Bildung und Cm-244 Kernre-aktionen ((n,γ) und Spaltreaktionen) einstellt, steigt das Cm-244 Inventar bis zu diesem Zeitpunkt proportional zur Abbrandzeit.

Insgesamt kann festgehalten werden, daß beide Brennstoffarten bei ähnlichen EOB-Zusammensetzungen einen problematischen Nuklidentwicklungsverlauf bei den Isotopen Pu-242 und Cm-244 aufweisen. Das Verhalten im Bereich des Am Elements als solches erscheint weniger ungünstig, als vielmehr die Tatsache ein Quellterm für den Cm Aufbau darzustellen. Hierbei kann der Einfluß zur Cm-244 Bildung über einer direkten Am Zugabe (PuMA Brennstoff) mit ca. 22% angegeben werden. Ebenfalls resultiert die Bildung des Cm-242 Isotops aus der Zugabe von Am-241. Bei einem Mehrabbrand von 127 kg Am und Np in 3 GW_{th}a kommt es zu einem zusätzlichen Aufbau von 2 kg Pu-238, 30 kg Pu-242, 13 kg Am-243, 8 kg Cm-242 und 10 kg Cm-244 (Σ 63 kg) gegenüber dem Pu Brennstoff. Die Wahl eines Brennstoffs beruht somit auf der prinzipiellen Frage, ob Np und Am vernichtet werden sollen oder nicht. Hinsichtlich des Cm Aufbaus ist diese Frage nur von zweitrangiger Bedeutung. Entscheidender erscheint die Entwicklung der Gesamtbeladung des Trägerfluids Blei mit Actiniden. Ist in der Gesamtkonzentration die Beladung am Zyklusende beim Pu Brennstoff mit 0,37% PuMA57/47 gegenüber 0,623% PuMA60/40 beim PuMA basierten Brennstoff augenscheinlich um knapp 68% günstiger, so relativiert sich diese Aussage, wenn die Einzelzusammensetzung betrachtet wird. Da der Plutoniumanteil am Ende des Abbrands beim Pu basierten Brennstoff nur noch 57% beträgt und 47% von MA gestellt werden, verschiebt sich

der Konzentrationsunterschied für einige Elemente drastisch. Da die MA's beim Pu Brennstoff im wesentlichen aus Cm bestehen, weist ein Absolutvergleich für 3 GW_{th}a mit 72 kg Cm beim Pu-Brennstoff und 92 kg Cm beim PuMA basierten Brennstoff nur einen Unterschied von 27% auf. Hinsichtlich der Konzentration von Cm im Blei führt dies zu einer Aufkonzentration von 0,132% beim Pu Brennstoff und 0,169% beim PuMA basierten Brennstoff. Somit stellt insbesondere die Löslichkeit von Cm in Blei ein mögliches, einschränkendes Kriterium hinsichtlich einer durchführbaren Zykluslänge dar. Die Einschränkung auf 3 Jahre erscheint somit als konservativ, aber durchaus sinnvoll. Dementsprechend wird auch am Ende des Zykluszeitraumes von einer Blei-Actiniden Lösung ausgegangen, so daß eine Sedimentation zu diesem Zeitpunkt nicht möglich erscheint.

7.3 Nukleares Sicherheitsverhalten

Das wesentliche sicherheitstechnische Beurteilungskriterium einer kerntechnischen Anlage besteht im Problemfeld eines möglichen Kritikalitätsstörfalles. Die möglichen Szenarien für das Eintreten nuklear sicherheitsrelevanter Ereignisse können hierbei in drei Gruppen unterteilt werden.

Zunächst steht die Neutronenquelle als wesentliches Element des Systems im Blickpunkt, da erst die aus der Quelle aufgrund von Spallationsprozessen erzeugten Neutronen eine Kettenreaktion in der Anlage in Gang setzen. Somit besteht die Möglichkeit, daß eine Fehlfunktion des Protonenbeschleunigers (Ansteigen der Stromstärke oder Stromspannung, etc.) zu unerwartet hohen Spallationsneutronenflüssen führen kann, die eine Leistungsexkursion nach sich ziehen können. Diese Überlegung ist zunächst anlagenunabhängig für alle beschleunigergetriebenen Systeme gegeben. Hierzu wurden schon Studien /MAS 98/ /KLÜ 99/ durchgeführt, so daß die prinzipiell positiven Ergebnisse übernommen werden können. Eine zweite Gruppe von Störfallszenarien mit reaktivitätsrelevantem Verlauf ergibt sich aus dem Problemkreis der Blanket-Kühlung. Dies beinhaltet unter anderem den möglichen Kühlmittelverlust, das Ausfallen einer Wärmesenke, Ausfall der Kühlmittelpumpe, die partielle Blockierung von Kühlkanälen etc. aber auch das mögliche Erstarren des Bleis bei überproportionaler Wärmeabfuhr. Eng verknüpft mit diesem Problemkreis ist der Gedanke eines möglichen Verlustes der Kerengeometrie. Auch zu diesem Themenkreis existieren Studien /MAS 98/ /KLÜ 99/, die sich allerdings nur mit dem Konzept einer schnellen, Blei gekühlten ADS Anlage (Rubbia Modell) beschäftigen. Um detaillierte Aussagen für das Jülicher System treffen zu können, müssen die thermodynamischen Rahmenbedingungen sowie insbesondere die Art (Einkreis- oder Zweikreisanlage) und Ausführung des Kühlsystems definiert werden. Da die thermodynamische Gesamtauslegung der Jülicher ADS Anlage nicht Gegenstand dieser Arbeit ist, bzw. die wesentlichen Grundlagen zur Auslegung des Primärkreises schon von /LYP₅ 96/ erörtert wurden, wird auf das Konzept und die dort erfolgten Erörterungen verwiesen. Die dritte Gruppe von Störfallszenarien hängt direkt mit dem verwendeten Brennstoff und dem Betriebsmodus der Anlage zusammen. Da ein komplett neuer Brennstoff und ein neuer Anlagenzyklus kreiert worden ist, werden im weiteren Verlauf die Temperaturkoeffizienten und ein möglicher Kritikalitätssprung im Rahmen einer unerwarteten Extraktion aller Spaltprodukte Gegenstand der nuklearen Sicherheitsbetrachtungen sein.

7.3.1 Reaktivitätsänderung / Brennstofftemperaturkoeffizient α_B

Die Reaktivitätsänderung des Kerns in Abhängigkeit von einer induzierten Temperaturänderung im Core stellt den wesentlichen Beitrag zur nuklearen Stabilität der Anlage dar. Im Prinzip kommen für einen Reaktor vier Parameter in Betracht, die in Folge einer Temperaturerhöhung die Reaktivität beeinflussen können.

1. Brennstofftemperaturkoeffizient, der die sich ändernde Dichte und die Dopplerverbreiterung des Brennstoffs berücksichtigt.
2. Moderatortemperaturkoeffizient, der die sich ändernde Dichte des Moderators berücksichtigt.
3. Dampfblasenkoeffizient des Kühlmittels (Voidkoeffizient), der die verändernde Absorption des Kühlmittels berücksichtigt.

Der letztgenannte Parameter hat hinsichtlich der Sicherheitsbetrachtung für das Jülicher System nur eine untergeordnete Bedeutung, da das flüssige Blei mit 1743°C eine extrem hohe Siedetemperatur besitzt. Dementsprechend würde aufgrund der hohen Temperatur vor Eintreten von Dampfblasensieden das Hüllrohrmaterial seine Struktur verlieren. Somit bezieht sich eine Reaktivitätsänderung in Folge einer induzierten Temperaturänderung auf den Brennstoff- und Moderatortemperaturkoeffizienten. Da Graphit als Moderator eingesetzt wird, kann hierbei die Dichteänderung des Moderators vernachlässigt werden. Ebenso stellt sich heraus, daß das dynamische Verhalten quasi ausschließlich durch den Brennstoffkoeffizienten bestimmt wird, da der Graphit in seiner festen Form bei den hier betrachteten Temperaturänderungen nur sehr, sehr geringe Moderationsänderungen aufweist. Diese sind im Verhältnis zum Einfluß des Brennstoffkoeffizienten vernachlässigbar. Somit kann beim Jülicher System der Reaktivitätskoeffizient α direkt aus dem Brennstofftemperaturkoeffizient α_B abgeleitet werden.

$$\alpha \cong \alpha_B$$

Für eine nukleare Kernstabilität ist es unabdingbar, daß die Reaktivitätsänderung integral immer in umgekehrter Richtung des Ursprungs verläuft und auf diese Weise die Abweichung von den Nominalwerten selbständig kompensiert wird („negatives Feed Back“). Im Falle einer Erhöhung der Leistung kommt es zu einer Erhöhung der Brennstofftemperatur und Verminderung der Brennstoffdichte. Dies hat wiederum Rückwirkungen auf die Reaktivität des Brennstoffs da sich durch Resonanzverbreiterung die effektiven Wirkungsquerschnitte für Spaltung und Absorption verändern. Ein nuklear sicheres Verhalten ist dann gegeben, wenn durch die Vergrößerung des Absorptionsanteils und Verminderung des Spaltanteils die nukleare Leistungsproduktion und damit auch die Temperatur fällt.

In den Rechnungen, die mit dem CSAS1X Modul des SCALE Programmes erfolgten, wurde die Brennstofftemperatur und somit auch die Brennstoffdichte in Schritten von jeweils 50 K erhöht, bis ein maximaler Wert von 1573 K erreicht wurde. Dementsprechend bietet sich sowohl eine Darstellung der Reaktivitätsänderung in Absolutwerten gegenüber dem Betriebszustand (773 K) an, als auch die Berechnung der Reaktivitätsänderung bezogen auf den nominellen Multiplikationsfaktor bei Betriebstemperatur und der Normtemperatur (773 K) pro Grad K. Hierzu wird der Brennstofftemperaturkoeffizient α_B benutzt, der sich nach

Gl. 7.1 berechnet und entsprechend den vorher gemachten Ausführungen als Reaktivitätskoeffizient α angesehen werden kann. Durch Überführen der Differentiale in Differenzen läßt sich der Reaktivitätskoeffizient α vereinfacht als **Gl. 7.2** darstellen. Die Änderung aus dem Normzustand wird hierbei jeweils mit „*“ gekennzeichnet.

$$\text{Gl. 7.1:} \quad \alpha = \frac{d\rho}{dT} = \frac{\partial \frac{k-1}{k}}{\partial k} \frac{\partial k}{\partial T}$$

$$\text{Gl. 7.2:} \quad \alpha = \frac{1}{(T^* - T)} \frac{k_{\infty}^* - k_{\infty}}{k_{\infty}^* \cdot k_{\infty}}$$

Da es sich beim Brennstoff um eine flüssige Blei-Actiniden Lösung handelt, wird die Reaktivitätsänderung nicht nur durch die sich verändernden, temperaturabhängigen Wirkungsquerschnitte für Spaltung und Absorption bestimmt, sondern auch durch die Dichteänderung des Fluids, welche eine Verminderung der Actinidenmasse nach sich zieht. Diese beiden Effekte führen zum Gesamteffekt des Brennstofftemperaturkoeffizienten α_B . Um die Dichte des Bleis zu bestimmen wird die Gleichung **Gl. 7.3** /HOF 70/ verwendet. Zur Berechnung der höheren Temperaturen von 1173 K bis 1573 K wird der Geltungsbereich erweitert.

Bleidichteberechnung gültig für $600 \text{ K} < T < 1123 \text{ K}$ /HOF 70/.

$$\text{Gl. 7.3:} \quad \rho(T) = (11,381 - (1,1653 \cdot 10^{-3} \cdot T)) \cdot 1000 \quad [\text{kg/m}^3] \quad \text{mit } T = \text{Temperatur [K]}$$

Wird der Temperatureinfluß auf die Kritikalität hinsichtlich der beiden Effekte (sich ändernden Wirkungsquerschnitte und Dichte) separiert, so stellt sich heraus, daß die Effekte, mit der Ausnahme der niedrigst konzentrierten Actinidenbeladung für die Ausgangssituation ($t = 0$), immer gegenläufig verlaufen. **Abb. 7.21** verdeutlicht dies am Beispiel des PuMA Brennstoffes zum Zeitpunkt $t = 3$ Jahre, also mit der maximalen Actinidenbeladung. Nullniveau ist ein

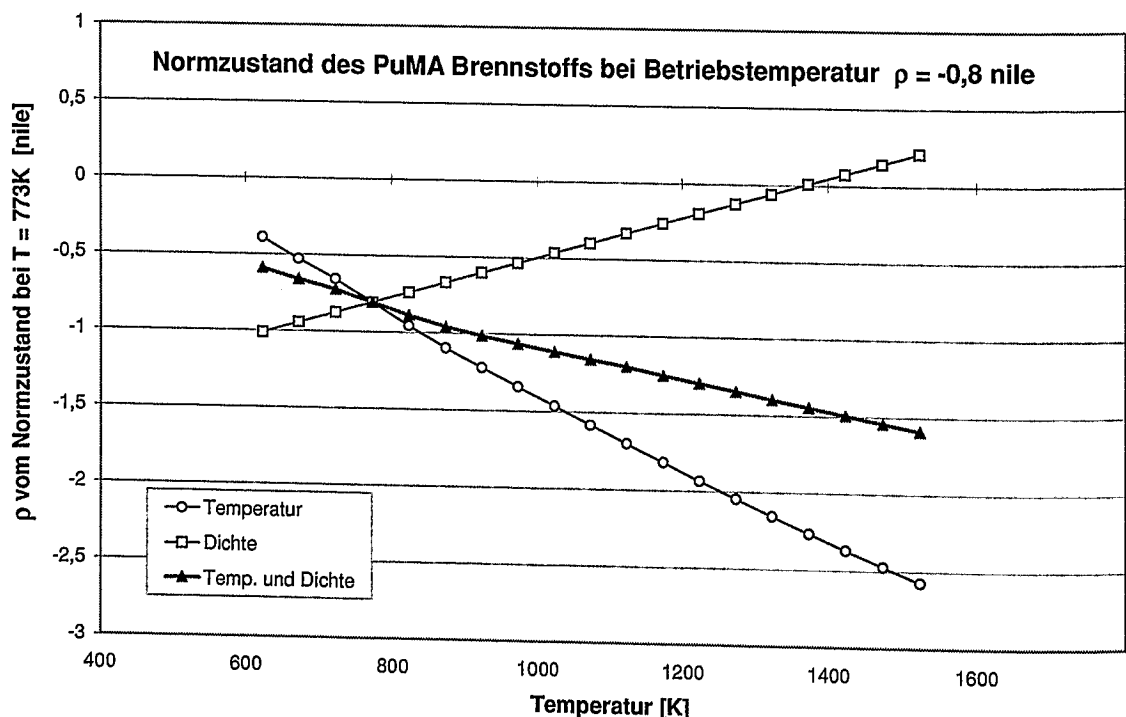


Abb. 7.21: Temperatur- und Dichteinfluß des Brennstoffs auf die Kritikalität bei PuMA Brennstoff nach $t = 3$ Jahren Abbrand.

Multiplikationsfaktor von $k = 1$. Der Normzustand bei $T = 773 \text{ K}$ befindet sich dementsprechend bei $-0,8 \text{ nile}$ (PuMA Brennstoff) bzw. bei $-1,7 \text{ nile}$ (Pu Brennstoff). Durch eine Erhöhung der Temperatur kommt es zu einer Verminderung der Brennstoffdichte und in Folge dessen zu einer abnehmenden Actinidendichte. Dies hat den Effekt, daß ebenfalls die Wirkung der Selbstabschirmung vermindert wird. Somit erzeugt die Dichteverminderung in Folge der Temperaturerhöhung eine positive Reaktivitätszunahme. Dieser positive Effekt wird durch die Dopplerverbreiterung der Resonanzen der Nuklide, insbesondere des Hauptabsorbernuklids Pu-240, überkompensiert, so daß insgesamt mit steigender Temperatur für den integralen Brennstofftemperaturkoeffizienten eine negative Reaktivität erreicht wird. Sinkt die Temperatur unter 773 K so kommt es zu einem entgegengesetzten Verhalten. Die Reaktivitätsänderung ist insgesamt positiv, während der Einzeleffekt der Dichteerhöhung zu einem negativen Anteil beiträgt, die Verkleinerung der Resonanzbreiten einen positiven Effekt haben und wiederum den Gesamteffekt bestimmen. Eine generelle Änderung des Verhaltens ist erst beim Eintreten in den Siedebereich bei $T = 2016 \text{ K}$ zu erwarten.

Da die Actinidenbeladung im flüssigen Blei nicht konstant, sondern zeit- bzw. abbrandabhängig ist, wird die Berechnung der Reaktivitätsänderung für vier signifikante Zeitpunkte durchgeführt. Dies ist die Ausgangssituation des frischen Brennstoffs ($t = 0$), nach 180 Tagen ($t = 180 \text{ d}$) nach dem sich also das System stabilisiert hat, nach einem Jahr ($t = 1 \text{ a}$) als Betriebspunkt und nach 3 Jahren ($t = 3 \text{ a}$) zum Zeitpunkt der maximalen Actinidenbeladung. **Abb. 7.22** stellt das Ergebnis der Absolutänderung der Reaktivität für die vier genannten Zeitpunkte bzw. Actinidenkonzentrationen dar. Als Nullniveau dient wiederum die jeweilige Situation im Normzustand bei $T = 773 \text{ K}$. Es wird deutlich, daß alle vier Actinidenkonzentrationen mit zunehmender Brennstofftemperatur ein negatives Reaktivitätsverhalten aufweisen. Je geringer die Beladung mit Actiniden (geringe Abbrandzeit), desto höher fällt die negative

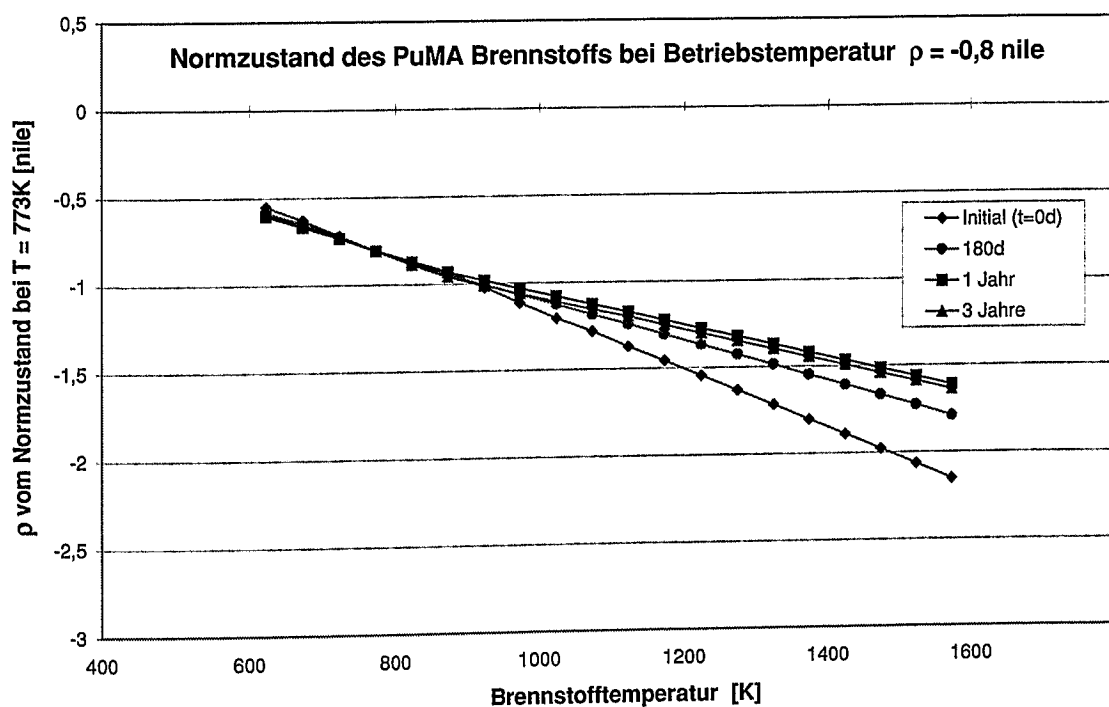


Abb. 7.22: Absolute Reaktivitätsänderung des PuMA Brennstoffs infolge einer Temperatur- und Dichteänderung in Bezug auf den Betriebszustand für unterschiedliche Abbrandsituationen.

Rückkopplung aus. Für die Situation nach einem Jahr und drei Jahren Abbrand trifft dies nicht zu, da die Absolutänderungen dieser beiden Gemische sehr ähnlich verlaufen bzw. auf dem gleichen Niveau liegen. Sind die Unterschiede der Reaktivitätsänderung bei geringen Temperaturerhöhungen bis z.B. auf 1000 K noch sehr gering, so steigt die Diversifizierung mit höheren Temperaturen ($> 1200\text{K}$) sehr deutlich an. Während sich die negative Reaktivitätsänderung mit zunehmender Actinidenbeladung ($t = 1$ Jahr und $t = 3$ Jahre) bei hohen Temperaturen zunehmend abschwächt, liegt für den Zeitpunkt $t = 180$ d und $t = 0$ d ein nahezu konstanter Verlauf vor. Die stärkste Wirkung wird bei der geringsten Actinidenbeladung ($t = 0$ d) erzielt.

Für den Pu Brennstoff treffen die selben Grundaussagen zur Reaktivitätsänderung zu (Abb. 7.23), obwohl beim Pu Brennstoff die Gesamtbreite der Reaktivitätsänderungen geringer ist, als beim PuMA Brennstoff. Die Zuordnung der Brennstoffgemische hinsichtlich der Reaktivitätsänderung zeigt sich beim Pu Brennstoff sehr stringent nach Höhe der Actinidenbeladung wieder. Vergleichbar zum PuMA Brennstoff zeigen auch die Brennstoffe nach einem Jahr bzw. nach drei Jahren nur sehr geringe Unterschiede. Ähnliches ist für den Brennstoff nach 180 d und der Initial Beladung festzuhalten. Beides liegt an den kaum geänderten Brennstoffbeladungen im System. Der Unterschied zum PuMA Brennstoff liegt darin, daß selbst zum Abbrandende ($t = 3$ Jahre) die negative Reaktivitätsänderung kaum an ihrer Dynamik verliert. Insgesamt verlaufen die Änderungen auch im hohen Temperaturniveau sehr gleichmäßig. Die Ursache liegt hierbei in dem um knapp 42% niedrigerem Actinideninventar im Blei gegenüber dem PuMA Brennstoff. Somit sind die Effekte der Brennstofftemperaturänderung im Bezug auf die Kritikalität im niedriger beladenem Pu Brennstoff deutlich höher als im PuMA Brennstoff.

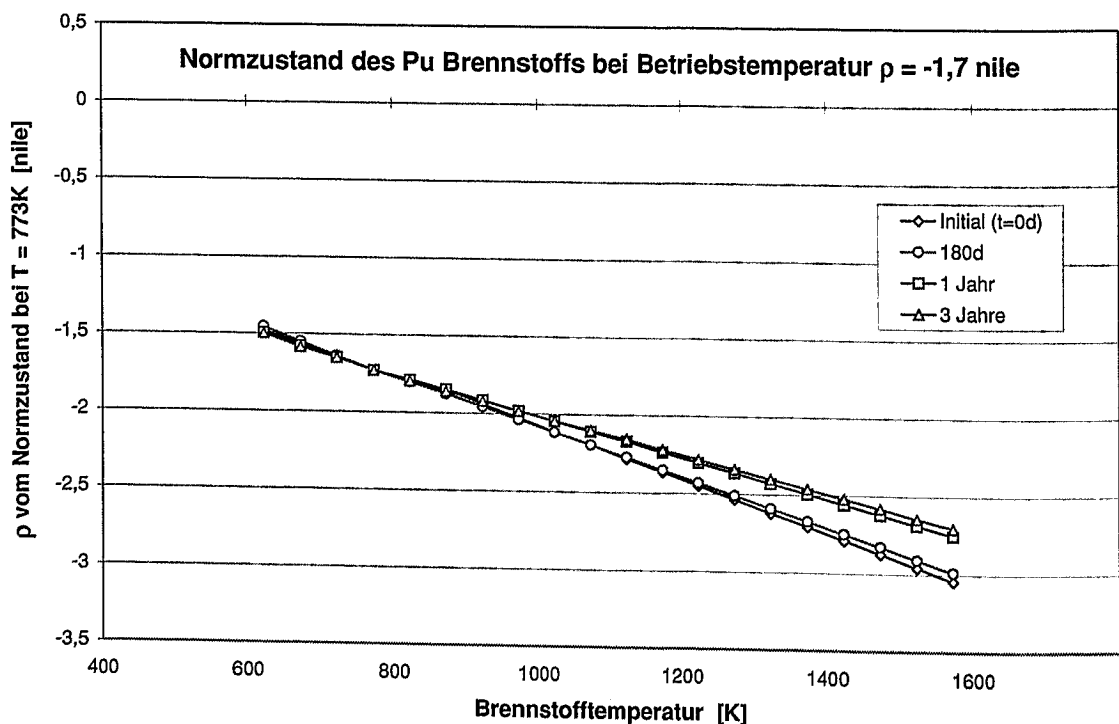


Abb. 7.23: Absolute Reaktivitätsänderung des Pu Brennstoffs infolge einer Temperatur- und Dichteänderung in Bezug auf den Betriebszustand für unterschiedliche Abbrandsituationen.

Wird der Reaktivitätskoeffizient / Brennstofftemperaturkoeffizient α_B für den Betriebspunkt bei $T = 773\text{K}$ betrachtet (Abb. 7.24), so besitzen beide Brennstoffe einen ausgeprägten negativen Koeffizienten. Berechnet wurde der Reaktivitätskoeffizient nach Gl. 7.1 für eine Temperaturerhöhung um 50K aus dem Nominalzustand heraus. Mit der Eigenschaft eines negativen Reaktivitätskoeffizienten für beide Brennstoffe bei unterschiedlichen exemplarischen Actinidenbeladungen wird die geforderte Bedingung eines negativen „Feed Backs“ erfüllt. Der geringste Effekt stellt sich mit einem Reaktivitätskoeffizienten von $-0,00108\text{ nile/K}$ (oder $-1,08\text{ pcm/K}$) für den Pu Brennstoff zum Beginn der Betriebsphase ($t = 0\text{ d}$) ein. Das zu Beginn der frische PuMA Brennstoff einen größeren Reaktivitätskoeffizienten aufweist, liegt darin begründet, daß bei gleicher Actinidenmassenbeladung, der MA Anteil (insbesondere Am-241 und Np-237) einen höheren Absorptionsquerschnitt aufweist als der Pu Brennstoff. Alle höher beladenen TRU-Brennstoffe weisen einen deutlich ausgeprägteren negativen Reaktivitätskoeffizienten ($>20\%$) auf.

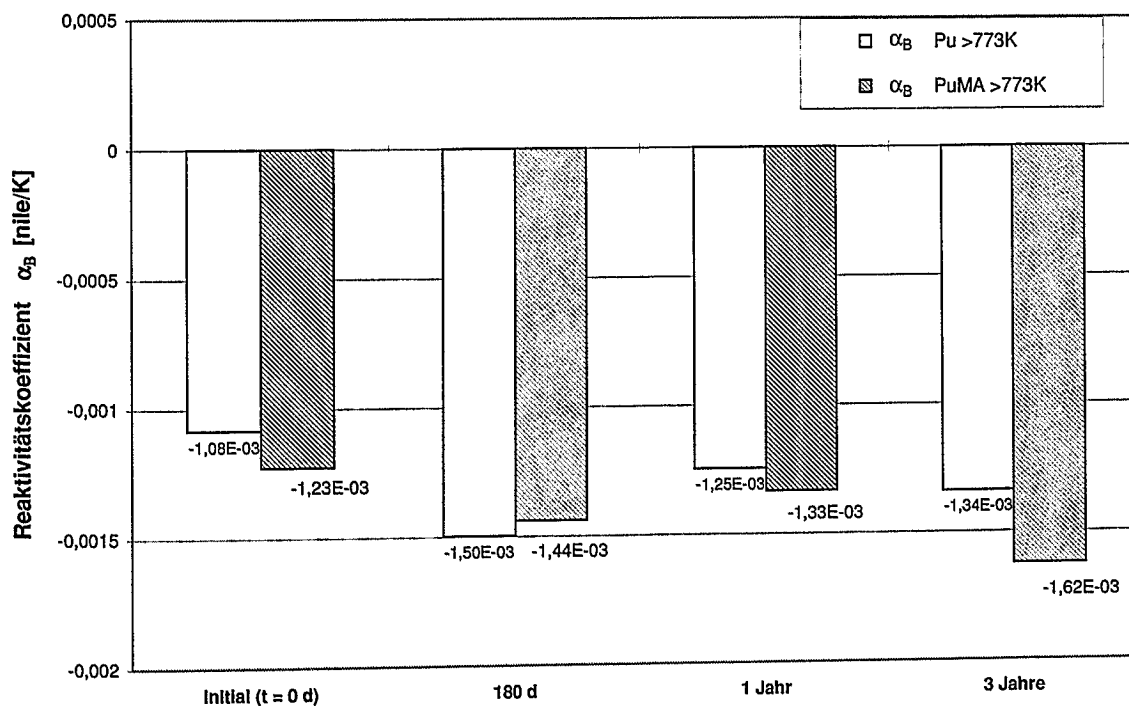


Abb. 7.24: Reaktivitätskoeffizient α bzw. Brennstofftemperaturkoeffizient α_B [nile/K] des Pu und PuMA Brennstoffs für unterschiedliche Abbrandsituationen für eine geringen Temperaturerhöhung der Betriebstemperatur.

Insgesamt kann festgehalten werden, daß immer ein negativer Reaktivitätskoeffizient gegeben ist und somit einer induzierten Leistungserhöhung selbsttätig entgegengewirkt wird. In Bezug auf das Reaktivitätsverhalten, welches ausschließlich vom Brennstofftemperaturkoeffizienten geprägt wird, kann von einem nuklear sicheren Anlagenverhalten gesprochen werden. Einschränkende Kriterien für das Betriebsverhalten ergeben sich nicht.

7.3.2 Kritikalitätssprung durch Extraktionsstörfall

Unter dem Begriff des Kritikalitätssprungs gilt es zu klären, ob anlagenspezifische Ereignisse eintreten könnten, die zu einem rapiden Anstieg des Multiplikationsfaktors führen könnten. In diesem Zusammenhang wird der Extraktion von Spaltprodukten eine besondere Bedeutung zugewiesen, da sie im Vergleich zu festen Brennstoffen ein Novum darstellt, somit anlagenspezifisch ist und zum anderen einen direkten Einfluß auf den Multiplikationsfaktor besitzt. Während des Betriebes werden sieben Elemente (Xe, Sm; Rh, Cs, Nd; Pd und Pm) kontinuierlich mit einem Extraktionsfaktor von 0,5 aus der flüssigen Brennstofflösung extrahiert. Wird, ungeachtet der Wahrscheinlichkeit, eine Fehlfunktion der Extraktionskomponente zu Grunde gelegt, so legt eine Extraktion aller Spaltprodukte mit einem Extraktionsfaktor von 1 den maximalen Reaktivitätsgewinn frei. Somit würden alle Spaltprodukte zu 100% aus der flüssigen Brennstofflösung herausgezogen werden. Dies hätte zwangsweise einen Reaktivitätssprung zur Folge. Um das „Worst Case“ Szenario anzuwenden, würde dies genau am Zyklusende geschehen, da zu diesem Zeitpunkt eine maximale Menge an Spaltprodukten vorhanden ist, und somit der Gewinn am größten.

Abb. 7.25 zeigt das Ergebnis solch einer Studie bzw. Berechnung. Ausgangssituation ist ein Abbrand des PuMA Brennstoffs nach 3 Jahren (1095 d) Zykluslänge. Bis zu diesem Zeitpunkt wurden die sieben Elemente Xe, Sm; Rh, Cs, Nd; Pd und Pm mit einem Extraktionsfaktor von 0,5 aus dem flüssigen Brennstoff herausgezogen. Nach Abschluß des Zyklus besitzt das System einen Multiplikationsfaktor von $k_{\text{inf}} = 0,9985$. Wird zu diesem Zeitpunkt ein Fehlverhalten der Art unterstellt, daß alle Spaltprodukte schlagartig zu 100% aus dem Brennstoff extrahiert werden, so kommt es zu einem Kritikalitätssprung um 6,29 nile auf 1,0614. Um diesen unfallbedingten Kritikalitätssprung zu verhindern, bedarf es einem Abbrand von 17 Volllasttagen ohne jegliche Actinidenzufuhr. Somit kann ein „Stretch out“ Betrieb von 17

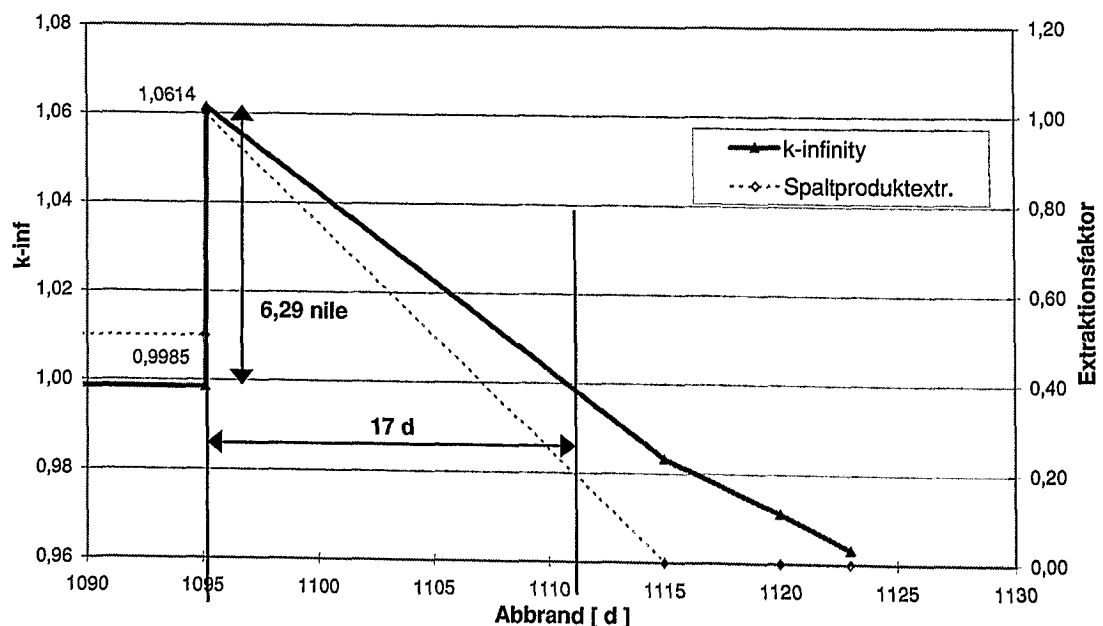


Abb. 7.25: Kritikalitätssprung als Folge einer vollständigen Extraktion aller Spaltprodukten aus dem PuMA Brennstoff nach einem Abbrand von 3 Jahren.

Tagen, in denen keine Actiniden zugeführt werden, ein ausreichend tiefes Absinken des Multiplikationswertes erreichen, um einen derartigen Unfall auszuschließen. Dementsprechend müßte die Beschleunigerleistung als treibende Kraft zwar erhöht werden, doch könnte somit selbst einem hypothetischen Störfall einer kritikalitätsrelevanten kompletten Extraktion aller Spaltprodukte entgegengetreten werden.

Wird eine adäquate Störfallsituation auf den Pu Brennstoff übertragen (Abb. 7.26), so kann festgehalten werden, daß der Kritikalitätssprung mit 5,7 nile (von $k_{\text{inf}} = 0,9956$ auf $k_{\text{inf}} = 1,0526$) bedeutend geringer ausfällt als beim PuMA Brennstoff. Durch die niedrigere Konzentration an Actiniden im Brennstoff wird nur ein kurzer „Stretch out“ Betrieb von 5 Tagen benötigt, um solch einen Kritikalitätssprung zu kompensieren. Demzufolge würde sich das skizzierte Störfallszenario einer sprunghaften Überkritikalität als Folge einer Extraktion von Spaltprodukten bei einem Pu basierten Brennstoff leichter vermeiden lassen und die Anforderungen an den Protonenbeschleuniger in einem „Stretch out“ Betrieb wären niedriger.

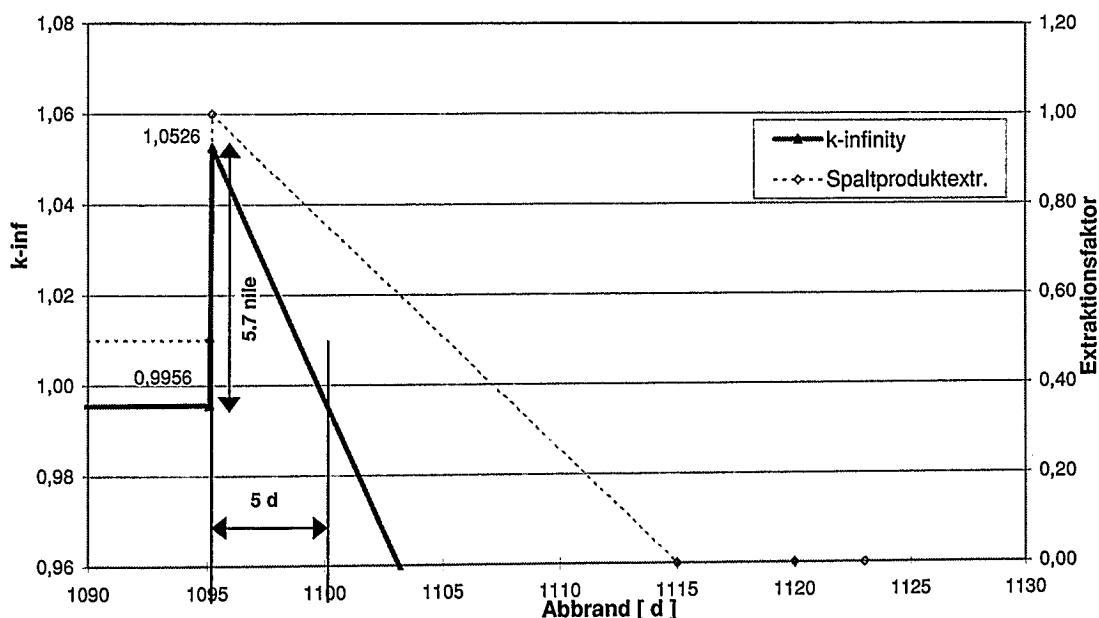


Abb. 7.26: Kritikalitätssprung als Folge einer vollständigen Extraktion aller Spaltprodukten aus dem Pu Brennstoff nach einem Abbrand von 3 Jahren.

Insgesamt kann das nukleare Sicherheitsverhalten der thermischen unterkritischen Jülicher Transmutationsanlage mit niedrigst konzentrierten flüssigen Brennstoffen als positiv bewertet werden. Die anlagenspezifischen Unterschiede (Brennstoff und Extraktionskomponente für Transurane) gegenüber anderen ADS Konzepten konnten aus neutronenphysikalischer Sicht geprüft und als positiv bewertet werden. So konnte nachgewiesen werden, daß der Reaktivitätskoeffizient bzw. der bestimmende Brennstofftemperaturkoeffizient für beide Brennstoffvarianten negativ ist. Die Problematik eines Kritikalitätssprungs ist zwar theoretisch gegeben, doch rechtfertigt die Wahrscheinlichkeit solch eines Störfalls und die damit verbundenen Auswirkungen auf die Kritikalität zum jetzigen Zeitpunkt keine Einschränkungen auf das Betriebsverhalten, denn ein derartiger Unfall ist durch die Fahrweise der Anlage vermeidbar.

7.4 Nachwärmeproduktion

In diesem Unterkapitel werden die zuvor untersuchten Brennstoffe hinsichtlich ihrer Nachzerfallswärmeleistung untersucht. Bei der Nachzerfallswärme handelt es sich um die verzögert frei werdende Energie aus Zerfallsprozessen nach Abschaltung der Anlage. Sie resultiert aus dem α -, β - und γ -Zerfall der Nuklide und spiegelt den gesamten thermischen Leistungseintrag wider. Da sich die Nuklidzusammensetzung im Laufe eines Betriebszyklus verändert, kann dies auch zu Unterschieden in der Nachwärmeproduktion führen. Dieser Wärmeeintrag ist insbesondere hinsichtlich der Nachkühlung von entscheidender Bedeutung. Dementsprechend müssen zur konstruktiven Auslegung eines Kühlsystems die auftretenden Wärmemengen bekannt sein. **Abb. 7.27** stellt die produzierte Nachwärme als relative Nachwärmeleistung im Bezug auf die Betriebsleistung (640MW_{th}) für ein PuMA Brennstoffsystem dar. Um auch der Möglichkeit einer vorzeitigen Abschaltung der Anlage z.B. als Folge eines Störfalls Rechnung zu tragen, wird nicht nur die Nachwärmeproduktion am Betriebszeitende berücksichtigt, sondern auch nach einem und zwei Jahren Betriebszeit.

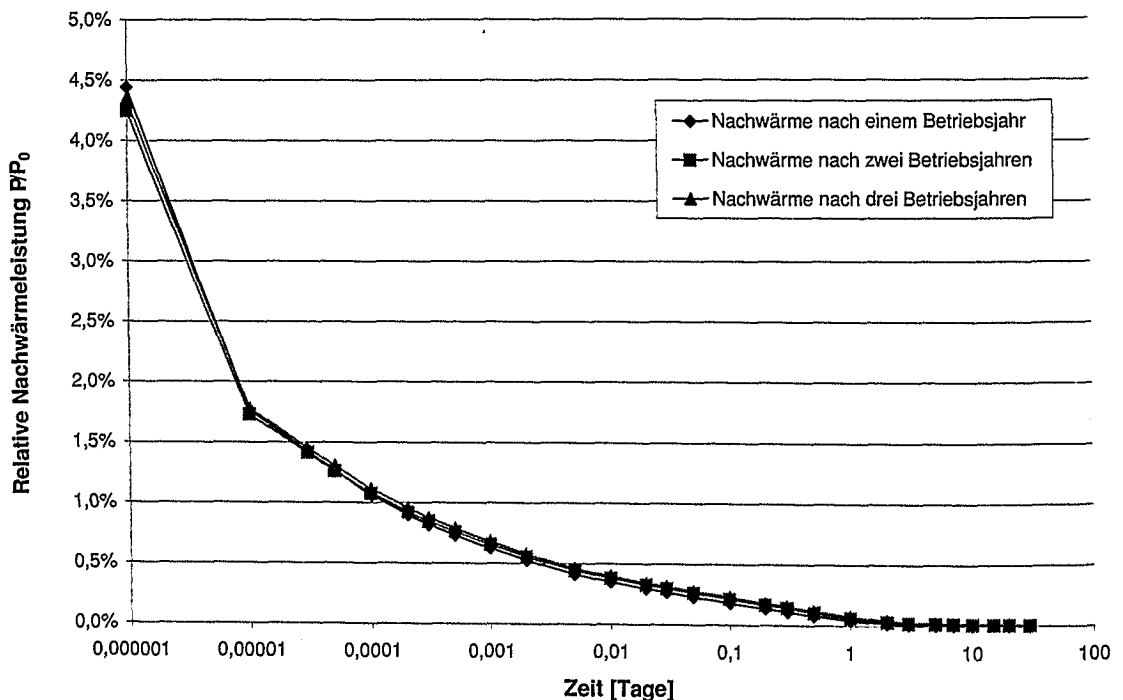


Abb. 7.27: Relative Nachwärmeleistung für das PuMA Brennstoffsystem zu verschiedenen Betriebszeiten.

Trotz der unterschiedlich langen Betriebszeit bildet sich für alle drei Nachzerfallskurven ein annähernd gleicher Verlauf aus. Das Abschalten der Anlage führt demnach sowohl nach einer Betriebszeit von einem, als auch nach zwei oder drei Jahren zu einem Anfangswert zwischen 4,2% und 4,4% der Nennleistung. Innerhalb von ca. 9,5 s sinkt diese Leistung auf ca. 1% der Nennleistung weiter ab. Nach 12 Stunden wird nur noch eine Wärmeproduktion in Höhe von 0,1% der Nennleistung freigesetzt. Die Höhe der Nachzerfallswärmefreisetzung ist im Vergleich zu anderen kerntechnischen Anlagen (diese besitzen je nach Betriebszeit ~ 6 - 7% zu Beginn) deutlich niedriger. Die Ursache liegt in der kontinuierlichen Extraktion einiger Spaltprodukte. Dementsprechend besitzt der vorliegende Brennstoff hinsichtlich seiner erzeugten

Leistung unterdurchschnittlich wenig Spaltprodukte. Da die Spaltprodukte die Wärmeproduktion zu Beginn der Nachzerfallszeit dominieren, spiegelt sich das Fehlen eines Teils der Spaltprodukte in einer geringeren Nachwärmeleistung wieder. Diese geringe Nachwärmeleistung ist hinsichtlich einer benötigten Nachwärmeabfuhr als positiv zu bewerten.

Gleiches gilt auch für die Nachwärmeproduktion beim Pu-Brennstoff (Abb. 7.28), auch wenn hier die Höhe der relativen Nachwärmeproduktion im Vergleich zum PuMA Brennstoff nochmals sinkt und zu Beginn einen Wert zwischen 3,1% und 3,5% der Nennleistung aufweist. 1% der Nennleistung wird im Pu Brennstoff schon nach 4,4 s erreicht und nach 12 Stunden reduziert sich die relative Nachwärmeproduktion auf 0,06%. Dementsprechend weist besonders der Pu Brennstoff in Form einer geringen Nachwärmeproduktion Vorteile im Bezug auf die thermische Stabilität auf. Die Gründe für dieses günstige Verhalten liegen in dem geringen Anlageninventar an Actiniden und vor allem in der kontinuierlichen Extraktion einiger Spaltprodukte.

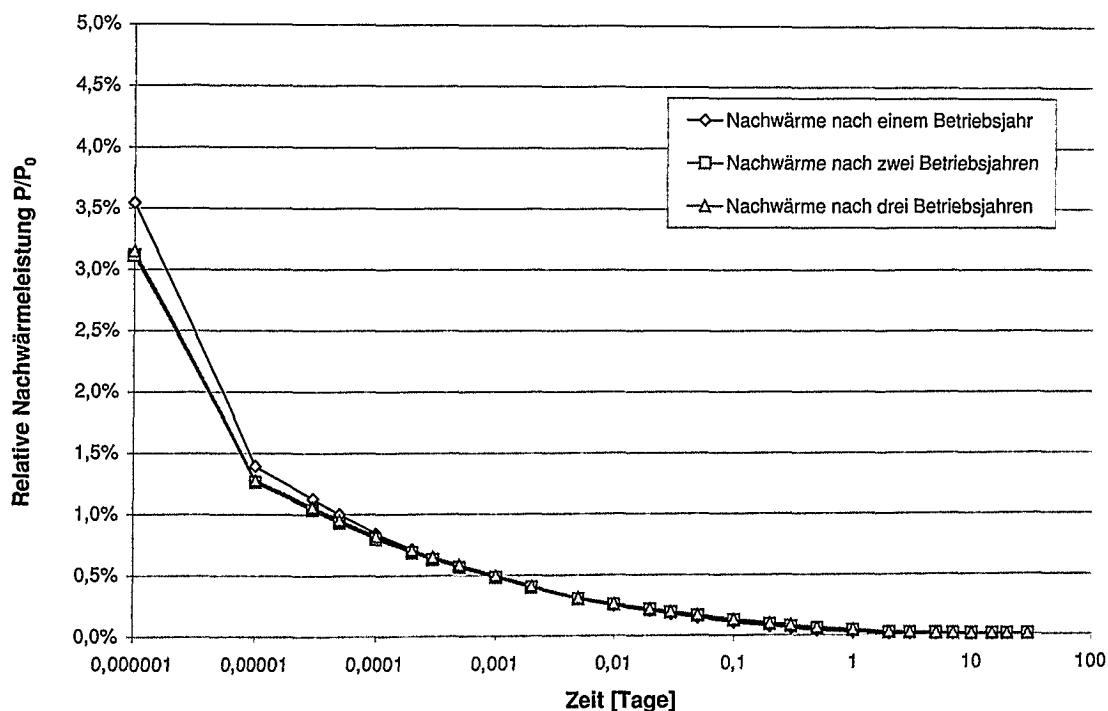


Abb. 7.28: Relative Nachwärmeleistung für das Pu Brennstoffsystem zu verschiedenen Betriebszeiten.

Insgesamt weisen beide Brennstofftypen mit einer relativen Nachwärmeleistung von 4,4% (PuMA) bzw. 3,5% (Pu) (unmittelbar nach dem Abschalten) eine vergleichsweise geringe Nachwärmeproduktion auf. Ursache für dieses günstige Betriebsverhalten ist im hohen Maße die kontinuierliche Extraktion von Spaltprodukten, wodurch die Spaltproduktkonzentration als wesentlicher Quellterm der Nachzerfallswärme im Brennstoff gesenkt wird, und das geringe Actinideninventar. Beide Effekte führen zu einer moderaten Nachwärmeproduktion die hinsichtlich einer benötigten Nachwärmeabfuhr positiv zu bewertet ist.

7.5 Bewertung und Vergleich der Anlage mit anderen Transmutationskonzepten

Die optimierte Jülicher unterkritische Transmutationsanlage mit einem thermischen Neutronspektrum und flüssigem Blei als Actinidenträger mit einer geringen TRU-Konzentration eröffnet im beschriebenen kontinuierlichen TRU-Zuführungs- und Spaltproduktextraktionsmodus eine Vielzahl von Vorteilen. Das TRU Inventar der Anlage ist sehr gering und beträgt auch nach Zyklusende nur max. 0,63%. Dieser Vorteil wird insbesondere bei einem Zweikreiskühlsystem deutlich, da dann das Blanketinventar an TRU gleichzeitig das Anlageninventar repräsentiert. Dies bedeutet mit Hinblick auf die Proliferationsproblematik einen zusätzlichen Bonus. Wird nur das Blanketinventar betrachtet, so besitzt die Anlage selbst am Zyklusende nicht mehr als max. 5,4 kritische Pu Massen ($m_k = 10 \text{ kg /DWR-Pu Vektor}$) bzw. 7,4 kritische Massen an TRU im Inventar. Die Umsatzrate an TRU beträgt je nach Brennstoffwahl 227 kg (355 kg je GW_{th}) (Pu Brennstoff) bis 235 kg (367 kg je GW_{th}) (PuMA Brennstoff) je Abbrandjahr und erreicht somit sehr hohe Werte, die deutlich oberhalb von 94% des theoretisch möglichen liegen. Das Verhältnis von Umsatz zum Inventar beträgt dabei für den Pu Brennstoff 5,42 und für den PuMA Brennstoff 3,25. Wird ein Einkreis-Kühlsystem zum Vergleich herangezogen, so beträgt das Verhältnis für den Pu Brennstoff 1,35 und für den PuMA Brennstoff 0,813. Der Multiplikationsfaktor weist während der Abbrandzeit nur geringe Schwankungsbreiten auf und kann mit $k_{\text{eff}} = 0,962$ (Pu Brennstoff) bzw. $k_{\text{eff}} = 0,972$ (PuMA Brennstoff) abgeschätzt werden. Dabei stellt nicht nur die absolute Höhe des Multiplikationsfaktors sondern auch die Gleichmäßigkeit einen entscheidenden Vorteil des Systems dar. Als direkte Folge kann trotz einer sehr konservativen Annahme der Spallationsrate von 20 n/p die Stromstärke für einen 1,6 GeV Protonenbeschleuniger mit max. 16,8 mA für die Anlagenleistung von $640 \text{ MW}_{\text{th}}$ angegeben werden. Bei einer realistischeren Spallationsrate von 30 n/p würde die Stromstärke ausreichen um eine Leistung von 1 GW_{th} zu erzeugen. Wird ein thermischer Wirkungsgrad von $\eta = 0,4$ für die Anlage unterstellt, so wird

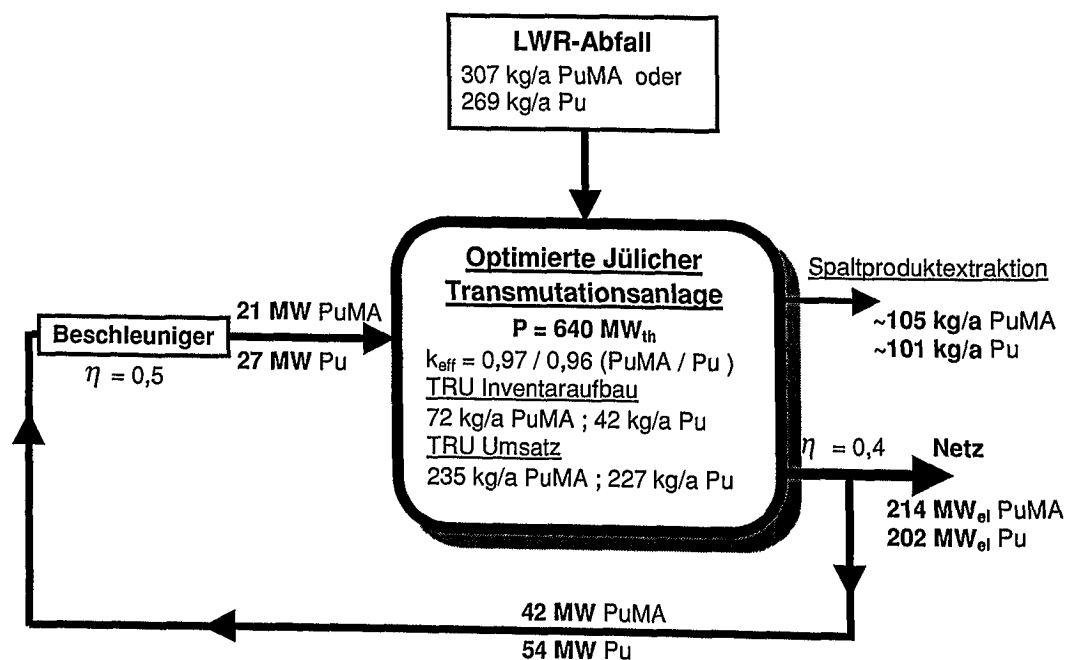


Abb. 7.29: Gesamtbilanz der optimierten Jülicher ADS Anlage für den PuMA- und Pu-Brennstoff.

eine Leistung von 256 MW_{el} produziert. Wird der Strombedarf für den Protonenbeschleuniger bei einem Wirkungsgrad von $\eta = 0,5$ mit berücksichtigt, so kann an das Netz eine Leistung von 214 MW_{el} (PuMA) bzw. 202 MW_{el} (Pu) abgegeben werden. **Abb. 7.29** verdeutlicht die Gesamtbilanz des optimierten Jülicher Konzeptes einer thermischen unterkritischen Transmutationsanlage mit flüssigem Blei als Actinidenträger. Das Betriebsverhalten wird auf der Basis der Mittelwerte des dreijährigen Betriebszyklus berechnet.

Dieses hohe Leistungsvermögen der optimierten Jülicher ADS Anlage weist dennoch ein ausgeprägtes positives Sicherheitsverhalten auf, insbesondere hinsichtlich des Reaktivitätskoeffizienten, der immer deutlich negativ verläuft. Die Optimierung des Extraktionsverhaltens und Begrenzung auf sieben Elemente spielt hinsichtlich einer Realisierung eine weitere Schlüsselrolle, da somit die technischen Anforderungen deutlich gesenkt werden konnten. **Tab.7.1** faßt nochmals alle systemrelevanten Kenndaten zusammen.

Tab. 7.1: Kenndaten der optimierten Jülicher ADS Anlage.

	PuMA Brennstoff	Pu Brennstoff
Blanket		
Blanketvolumen	29,45 m ³	
Brennstoffrohrinnendurchmesser	30 mm	
Brennstoffrohrdicke	3 mm	
Spalt	3 mm	
Brennstoffrohrhöhe	2500 mm	
Pitch	8 cm	
Moderator	Graphit	
Leistungsdichte im Brennstoff	170 MW/m ³ _{Br}	
Therm. Anlagenleistung	640 MW _{th}	
Elektr. Leistung (W.-grad = 0,5)	256 MW _{el}	
Elektrische Netzabgabe	214 MW _{el}	202 MW _{el}
Betriebszyklus		
Zykluslänge	3 Jahre (1095 efpd)	
Betriebsart Brennstoff	kontinuierliche Actinidenzufuhr	
Betriebsart Spaltprodukte	kontinuierliche Spaltproduktextraktion	
Extrahierte Elemente	Sm, Xe, Rh, Cs, Nd, Pd, Pm	
Extraktionsfaktor	0,5	
k-Wert während des Betriebes	k _{eff} ~ 0,972	k _{eff} ~ 0,962
k-Wert Variabilität	$\Delta k < 1$ nile	$\Delta k < 2$ nile
Protonenbeschleuniger der Anlage	1,6 GeV	
Stromstärke bei 20 n/p	12,8 mA	16,8 mA
Leistung des Beschleunigers	20,48 MW	26,88 MW
Neutronenfluß		
Integraler N-Fluß (Mittelwert)	7,7*10 ¹⁴ n/(s*cm ²)	8,5*10 ¹⁴ n/(s*cm ²)
Thermischer N-Fluß (Mittelwert)	3,85*10 ¹⁴ n/(s*cm ²)	5,35*10 ¹⁴ n/(s*cm ²)
Max. schneller N-Fluß	5,09*10 ¹³ n/(s*cm ²)	5,19*10 ¹³ n/(s*cm ²)
Dominierender Flußanteil	thermisch	
Graphitstandzeit	> 13,9 Jahre (5084 efpd)	
Actinidenanteil im Blei	0,05%	
Konzentration im Blei BOB	0,05%	
Masse TRU Core / GW _{th}	17kg / 27kg [GW _{th}]	
Konzentration im Blei EOB	0,623%	0,364%
Masse TRU Core / GW _{th}	217kg / 339 kg [GW _{th}]	126kg / 197 kg [GW _{th}]

Tab. 7.1 Teil 2: Kenndaten der optimierten Jülicher ADS Anlage.

	PuMA Brennstoff	Pu Brennstoff
Actinidenzusammensetzung		
BOB	89%Pu 11%MA 89%Pu, (4,43%Np, 6,39%Am, 0,174%Cm)	100%Pu
Pu Vektor	1,35% ²³⁸ Pu, 62,03% ²³⁹ Pu, 24,08% ²⁴⁰ Pu, 7,94% ²⁴¹ Pu, 4,6% ²⁴² Pu	1,35% ²³⁸ Pu, 62,03% ²³⁹ Pu, 24,08% ²⁴⁰ Pu, 7,94% ²⁴¹ Pu, 4,6% ²⁴² Pu
Np Vektor	100% ²³⁷ Np	-
Am Vektor	85,66% ²⁴¹ Am, 14,34% ²⁴³ Am	-
Cm Vektor	2,45% ²⁴³ Cm, 97,55% ²⁴⁴ Cm	-
EOB	59,8%Pu 40,2%MA (3,1%Np, 9,2%Am, 27,9%Cm)	53,7%Pu 46,3%MA (0%Np, 9,2%Am, 37,1%Cm)
Pu Vektor	9,7% ²³⁸ Pu, 15,9% ²³⁹ Pu, 19,56% ²⁴⁰ Pu, 12,57% ²⁴¹ Pu, 42,24% ²⁴² Pu	1,27% ²³⁸ Pu, 16,24% ²³⁹ Pu, 17,69% ²⁴⁰ Pu, 9,19% ²⁴¹ Pu, 55,55% ²⁴² Pu
Np Vektor	~ 100% ²³⁷ Np	-
Am Vektor	13,77% ²⁴¹ Am, 0,25% ^{242m} Am, 0,13% ²⁴² Am, 85,51% ²⁴³ Am, 0,35% ²⁴⁴ Am	0,15% ²⁴¹ Am, 99,21% ²⁴³ Am, 0,63% ²⁴⁴ Am
Cm Vektor	9,19% ²⁴² Cm, 0,34% ²⁴³ Cm, 77,19% ²⁴⁴ Cm, 4,6% ²⁴⁵ Cm, 8,07% ²⁴⁶ Cm	0,18% ²⁴² Cm, 0,01% ²⁴³ Cm, 83,14% ²⁴⁴ Cm, 2,81% ²⁴⁵ Cm, 12,82% ²⁴⁶ Cm
Massen EOB		
TRU Blanket / GW _{th}	217 kg / 339 kg [GW _{th}]	126 kg / 197 kg [GW _{th}]
Pu Blanket / GW _{th}	129,5 kg / 203 kg [GW _{th}]	67,4 kg / 106 kg [GW _{th}]
Np Blanket / GW _{th}	6,8 kg / 11 kg [GW _{th}]	0 kg / 0 kg [GW _{th}]
Am Blanket / GW _{th}	19,9 kg / 31 kg [GW _{th}]	11,6 kg / 18 kg [GW _{th}]
Cm Blanket / GW _{th}	60,4 kg / 95 kg [GW _{th}]	46,7 kg / 73 kg [GW _{th}]
Umsatz während des Zyklus	Abbrand von Pu, Np und Am	Abbrand von Pu
TRU Anlage / GW _{th}	-704 kg / -1103 kg [GW _{th}]	-680 kg / -1067 kg [GW _{th}]
Pu Anlage / GW _{th}	-690 kg / -1080 kg [GW _{th}]	-739 kg / -1158 kg [GW _{th}]
Np Anlage / GW _{th}	-34 kg / -53 kg [GW _{th}]	0 kg / 0 kg [GW _{th}]
Am Anlage / GW _{th}	-39 kg / -61 kg [GW _{th}]	+12 kg / +18 kg [GW _{th}]
Cm Anlage / GW _{th}	+59 kg / +92 kg [GW _{th}]	+47 kg / +73 kg [GW _{th}]
Mittelwert des TRU Abbrands		
TRU Anlage a / GW _{th a}	-235 kg / -367 kg [GW _{th}]	-227 kg / -355 kg [GW _{th}]
Cm Prod. Anlage a / GW _{th a}	+20 kg / +31 kg [GW _{th}]	+16 kg / +24 kg [GW _{th}]
Verhältnis Umsatz/ Inventar		
Zweikreiskühlsystem	3,25	5,42
Einkreiskühlsystem	0,813	1,35
Reaktivitätskoeff. α nile/K		
Mittelwert t = 0d	-1,23E-03	-1,08E-03
Mittelwert t = 180d	-1,44E-03	-1,50E-03
Mittelwert t = 1 Jahr	-1,33E-03	-1,25E-03
Mittelwert t = 3 Jahre	-1,62E-03	-1,34E-03
Integraler Mittelwert	-1,40E-03	-1,29E-03
Anzahl krit. Pu Massen (10kg)	BOB / EOB	BOB / EOB
Je Brennstoffrohr	0,00073 / 0,00252	0,00082 / 0,00122
Im Blanket	1,545 / 5,376	1,736 / 2,603
In der Anlage bei Zweikreiskühl.	1,545 / 5,376	1,736 / 2,603
In der Anlage bei Einkreiskühl.	6,18 / 21,5	6,944 / 10,41
Anzahl krit. Massen TRU	BOB / EOB	BOB / EOB
Je Brennstoffrohr	0,00073 / 0,00346	0,00082 / 0,00193
Im Blanket	1,545 / 7,37	1,736 / 4,10
In der Anlage bei Zweikreiskühl.	1,545 / 7,37	1,736 / 4,10
In der Anlage bei Einkreiskühl.	6,18 / 29,5	6,94 / 16,40

Werden die Leistungscharakteristika der Anlage mit denen anderer Konzepte verglichen, so wird direkt die Sonderstellung der optimierten Jülicher Anlage deutlich. Als Vergleichskennzahlen dienen hierbei der netto TRU Abbrand in kg auf ein GW_{th} und Jahr bezogen, sowie das Verhältnis von TRU Abbrand zur Entlademenge (EOB). Zum Vergleich werden verschiedene konventionelle LWR Konzepte /GRU 98/, LWR Konzepte auf Basis eines Th-MOX Zyklus /NEU₁ 99/, die schnellen kritischen Systeme des CAPRA und EFR Konzeptes /GRU 98/, der Hochtemperaturreaktor /RÜT 98/ und als ADS Anlage das schnelle FEA System von Rubbia /RUB 95/ herangezogen. Anhang G 1 nennt die Kenndaten explizit. **Abb. 7.30** illustriert den Vergleich der unterschiedlichen Konzepte. Hierbei wird für das Jülicher Konzept von einem Zweikreisssystem ausgegangen. Es ist sofort ersichtlich, daß insbesondere der Betriebsmodus mit dem Pu basierten Brennstoff annähernd ein ideales Transmutationssystem darstellt. Bei sehr hohem TRU Umsatz kommt nur ein geringes TRU Inventar zum Einsatz. Alle bisherigen Konzepte liegen mindestens um einen Faktor 3 zurück. Das schnelle FEA System liegt z.B. hinsichtlich des TRU Abbrandes um 30% und in Bezug auf das Abbrand zu Inventar Verhältnis um 430% hinter den Ergebnissen des Jülicher Konzeptes.

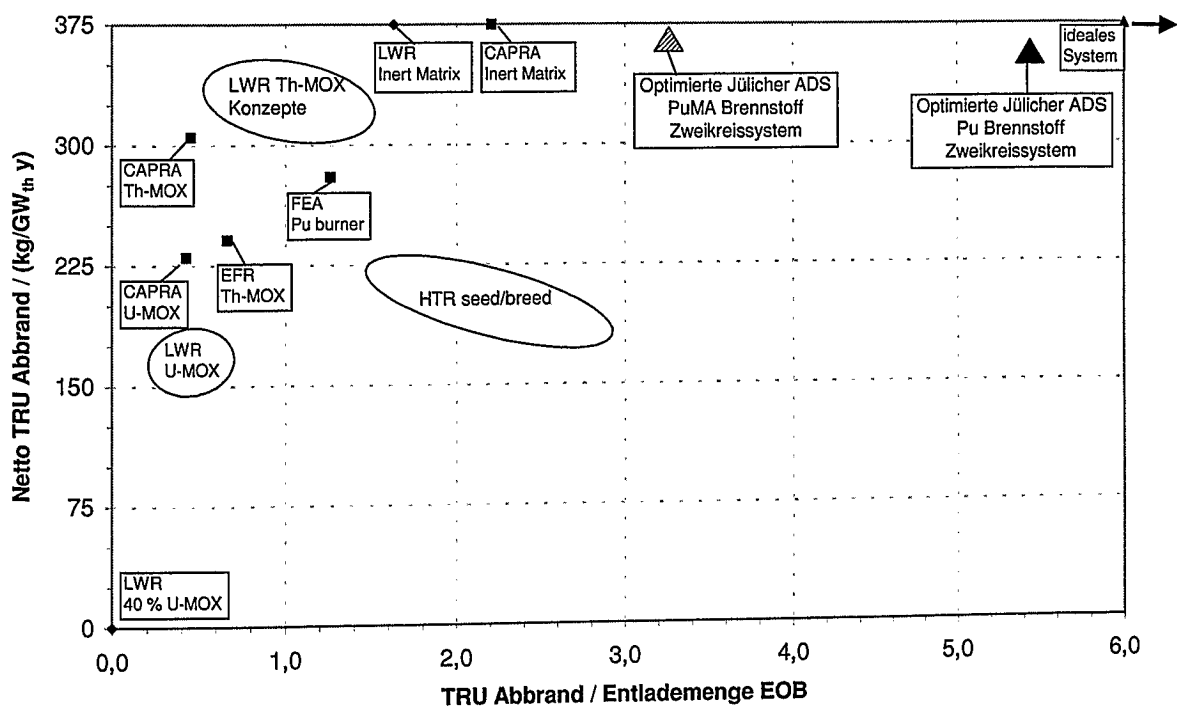


Abb. 7.30: Vergleich der Leistungsfähigkeit verschiedener Transmutationssysteme mit der optimierten Jülicher ADS Anlage.

Somit weist das dargelegte System mit einem thermischen Neutronenspektrum und flüssigem Blei als Actinidenträger einer geringen TRU-Konzentration bei kontinuierlicher TRU-Zugabe und Spaltproduktextraktion die mit Abstand besten Leistungskenndaten für eine Transmutationsanlage auf. Das Grundproblem höher konzentrierter flüssiger Brennstoffe (Sedimentation, Löslichkeit) erscheint bei den gewählten niedrigst konzentrierten Brennstoffen mit einer Anfangskonzentration von $\text{TRU} < 0,05\%$ im flüssigem Blei als gelöst. Die Vorteile des hohen TRU Umsatzes bei geringem Inventar sowie die Stabilisierung des Multiplikationsfaktors auf

einem extrem hohem Wert mit geringen Schwankungen konnten erreicht werden, ohne das schwierigere Problemfelder auftauchten, als bei anderen ADS Anlagen. Gerade in Bezug auf die Nutzung des Bleis und der damit verbundenen Korrosionsprobleme, weisen verschiedene unterkritische Systeme die gleichen Problemfelder auf. Dementsprechend bietet sich eine Ausweitung der bisherigen Studien zur Jülicher ADS Anlage gerade zu an, da die zentralen Fragen zum Bleikreislauf auch von anderer Stelle mit Nachdruck angegangen werden. Der wesentlichste Unterschied liegt demnach auf dem Gebiet der kontinuierlichen Extraktion einiger Spaltprodukte.

8 Integrale Toxizitätsreduzierung für die Gesamtstrategie

Um die Frage nach einer drastischen Toxizitätsreduzierung hochaktiver Transurane mittels der dargestellten thermischen unterkritischen Transmutationsanlage klären zu können, reicht ein relativer Vergleich der unterschiedlichen Transmutationssysteme wie in Kap. 7.5 nicht aus. Vielmehr bedarf es einer Analyse der Gesamtstrategie in der die Betriebsweise der Anlage eingeht. Erst diese Gesamtstrategie ermöglicht die Skizzierung eines Massenflußdiagramms für den Brennstoffkreislauf, welches zur Bewertung der Toxizität bzw. deren Reduzierung unverzichtbar ist. Dementsprechend wird in einem ersten Schritt ein Gesamtkonzept für die Anlage und den Brennstoff dargelegt. Darauf aufbauend wird der Massenstrom der TRU Elemente erstellt. Dies geschieht sowohl für den Pu als auch den PuMA basierten Brennstoff. Als Bezugsgröße wird eine reale Anlage mit einer Leistung von $640 \text{ MW}_{\text{th}}$ herangezogen. Eine ausschließliche Betrachtung der TRU Massen bzw. der Actiniden erleichtert die Darstellung und ist aufgrund ihrer bestimmenden Funktion hinsichtlich der Gesamttoxizität nach ca. 200 Jahren (vgl. Kapitel 2) sinnvoll. Da die Systemgrenze der Betrachtung den kompletten Kernbrennstoffkreislauf umfasst und ein Vergleich mit 1000 kg Pu bzw. PuMA im Falle der direkten Endlagerung gezogen wird, werden die Wiederaufarbeitungsverluste für die „Herstellung“ des Pu dem ADS System zugeschlagen. Diese WAA-Verluste umfassen dabei die kompletten (100%) Minor Actinides, da diese durch eine Wiederaufarbeitung nicht herausgelöst werden. Gleiches gilt für die Verluste des Partitioning. Da das Partitioning jedoch in der Lage ist die Minor Actinides herauszulösen und dementsprechend erst ein PuMA Brennstoff möglich ist, gelangt nur ein Bruchteil an Neptunium, Americium und Curium in den Abfallstrom/ Verluststrom des primären Partitionings. Die Verluststraten für das Partitioning werden mit 10^{-4} für Pu, sowie mit 10^{-3} für U, Np, Am und Cm angenommen (Vgl. Kapitel 2.2.3). Die Verluststraten für die WAA betragen 10^{-3} für Pu und U sowie 1 für Np, Am und Cm. Die Betriebsverluste sind mit 0,1% TRU veranschlagt.

Die Darstellung der Toxizitätspotentiale in Abhängigkeit von der Anzahl der durchgeführten Betriebszyklen und Rezyklierungen ermöglicht anschließend den direkten Vergleich mit dem Pu bzw. PuMA Abfall eines DWR im Falle einer direkten Endlagerung. Um den Vergleich sinnvoll zu gestalten, wird als Bezugsgröße 1000 kg Pu bzw. PuMA Abfall eines $1300 \text{ MW}_{\text{el}}$ DWR mit $35 \text{ GWd}/(\text{kg SM})$ Abbrand herangezogen. Die Massen und Toxizitäten sind dementsprechend normiert. Abweichend von der bisherigen Darstellungsform ist das Gefährdungspotential in Sievert pro thermischer Leistung aufgetragen. Die eigentliche Berechnung der Toxizitäten erfolgt mittels des SCALE 4.2 Programmes ORIGEN-S, wobei die ICRP 68 Richtlinien von 1994 für die Toxizitätsbestimmung herangezogen werden /ICR 94/.

8.1 Gesamtstrategie der Jülicher ADS Anlage

Eine umfassende Toxizitätsreduzierung durch Transmutation wird erst durch die Einbettung des einzelnen dreijährigen Betriebes in ein Gesamtkonzept erreicht, das in **Abb. 8.1** anhand der Transurane dargestellt wird. Die Gesamtstrategie besteht demnach aus mehreren Betriebszyklen. Jeder Zyklus dauert vier Jahre und setzt sich aus einer Betriebsphase von drei Jahren und einer Brennstoffaufarbeitungsphase von einem Jahr zusammen. Die Betriebsphase verläuft in der in Kap. 7 beschriebenen Form. Nach dieser Zeit wird die Brennstofflösung

aufgearbeitet. Dies beinhaltet die Entfernung der Spaltprodukte und Abtrennung der Transurane aus der Lösung. Für diesen Schritt wird eine Zeit von einem Jahr veranschlagt. Das Curium wird zwischengelagert, wohingegen die verbleibenden Transurane wie Np, Pu und Am unter Zugabe von frischem Brennstoff im darauffolgendem Betriebszyklus in die Anlage zurückgeführt werden. Durch die Weiternutzung des Np, Pu und Am aus dem ersten Zyklus und der Verschneidung mit frischem Brennstoff entsteht ein neuer Brennstoffvektor in der ADS Anlage, der zu einem geringeren Multiplikationsfaktor führt. Erste Berechnungen für den zweiten, dritten und vierten Zyklus quantifizieren den Abfall des Multiplikationsfaktors im Mittel mit 5 nile im Vergleich zum Betrieb mit 100% frischen Brennstoff, also dem ersten Zyklus. Um die Verminderung des Multiplikationsfaktors auszugleichen, besteht zum einen die Möglichkeit, die Brennstoffzugabe zu optimieren (Vgl. Kapitel 7.1) oder aber die Beschleunigerleistung zu erhöhen. Beide Ansätze müßten noch detailliert gegeneinander abgewogen werden, sind jedoch prinzipiell durchführbar. Durch die Weiterverwendung des am Ende eines Betriebszyklus anfallendem Np, Pu und Am Inventars kann die Masse sukzessiv transmutiert werden.

Für Cm bietet sich eine Zwischenlagerung von 36 Jahren an, da Cm-244 mit ca. 80% Masseanteil das dominierende Nuklid darstellt und die Halbwertszeit von $T_{1/2} = 18$ Jahren diesen Schritt erlaubt. Dementsprechend wird bei einer Rückführung der zuvor abgetrennten Cm Masse 75% des Cm-244 Isotops in Pu-242 zerfallen sein. Ähnliches gilt für Cm-242 welches eine deutlich kürzere Halbwertszeit ($T_{1/2} = 163$ d) besitzt und ebenfalls in Pu zerfällt. Insgesamt besteht nach einer Zwischenlagerung von 36 Jahren mehr als 60% der Masse nunmehr aus Pu-242 und Pu-240. Der Wiedereinsatz in die Transmutationsanlage (Reimplementierung) erlaubt einen zweiten Versuch der Spaltung der betreffenden Masse, ohne daß es zwangsweise zu einem schnellen Aufbau an höheren Cm Isotopen kommt, wie es der Fall wäre, wenn die Cm Masse nicht am Ende eines Betriebszyklusses abgetrennt und zwischengelagert worden wäre. Dieses Vorgehen führt dazu, daß ab dem 11. Zyklus der verwendete Brennstoff drei

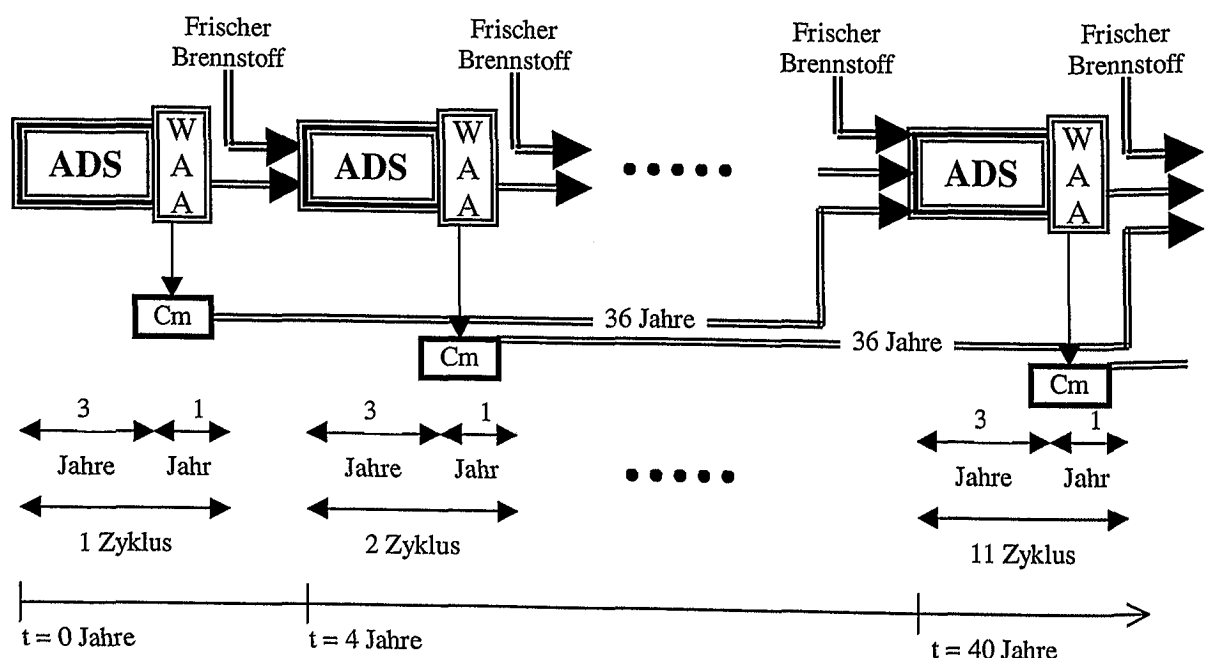


Abb. 8.1: Gesamtstrategie für den Betrieb der Jülicher ADS Transmutationsanlage.

Fraktionen aufweist. Zum einen existiert der Anteil an Np, Pu und Am aus dem vorhergehenden Zyklus (ca. 79,5 kg beim Pu Brennstoff und 128 kg beim PuMA basierten Brennstoff), die zwischengelagerte Cm Masse, welche nun ein Cm Pu Gemisch darstellt (ca. 59 kg beim Pu Brennstoff und 97 kg beim PuMA basierten Brennstoff) und der frische Brennstoff, der mit ca. 670 kg frischem Pu bzw. 700 kg PuMA den größten Anteil darstellt. Mittels der Trennung und Reimplementierung kann der Transmutationsgrad integral betrachtet nochmals gesteigert werden.

Wird diese Gesamtstrategie für den Betrieb der Jülicher ADS Transmutationsanlage als Möglichkeit der Vernichtung von hochaktiven Transuranen in den Kernbrennstoffkreislauf eingebettet, so ergibt sich **Abb. 8.2**. Ausgangspunkt der Betrachtung ist das frische angereicherte Uran. (Dieses wird auch als Vergleichsmaßstab für ein zu unterschreitendes Toxizitätspotential herangezogen.) Die energetische Nutzung des Brennstoffs findet in Leichtwasserreaktoren statt. Nach einer Abklingzeit von 10 Jahren gelangt der abgebrannte Brennstoff in die Wiederaufarbeitungsanlage. Dort findet eine Trennung der einzelnen Abfallströme statt. Alle Schwermetalle, die nicht der weiteren Transmutation zugeführt werden, gehen dementsprechend in den endzulagernden WAA bzw. primär Partitioning Abfall ein. Unter der Voraussetzung, daß die Abtrennung mit der angestrebten Güte durchgeführt werden kann, erfolgt eine Vernichtung der hochaktiven Transurane innerhalb der thermischen unterkritischen Transmutationsanlage. Da dort jedoch nicht alle Transurane innerhalb eines Zyklus umgesetzt werden können und sich insbesondere Cm aufbaut, wird nach einer dreijährigen Betriebsphase der Anlage ein Partitioning des flüssigen Blei-TRU Gemisches durchgeführt.

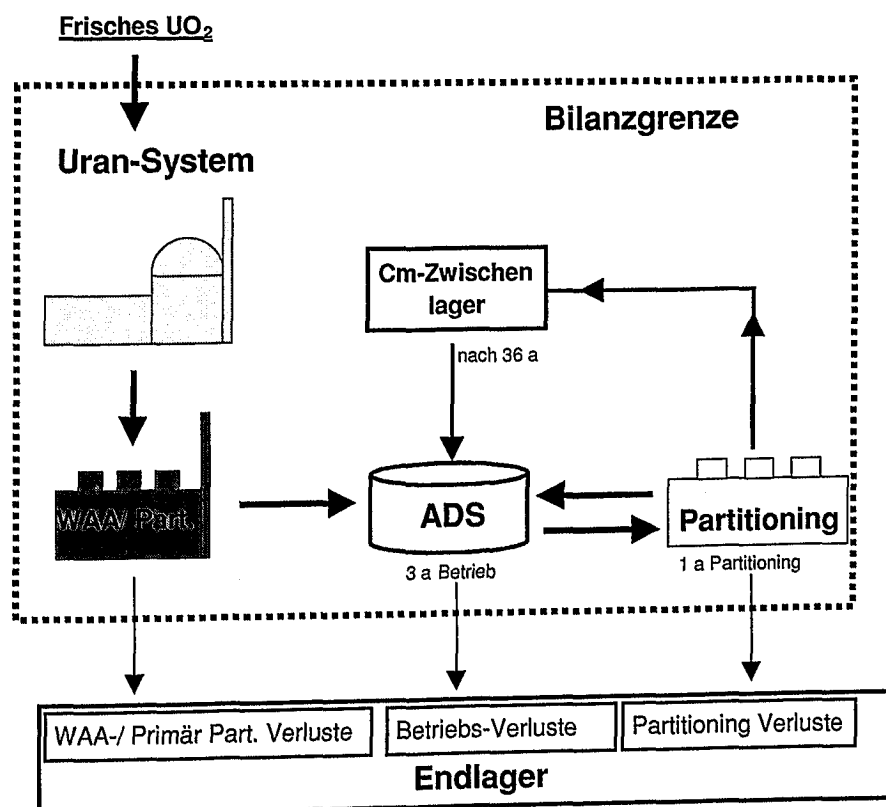


Abb. 8.2: Einbindung der Gesamtstrategie für den Betrieb der Jülicher ADS in den Uran Kernbrennstoffkreislauf.

Hierbei werden die noch vorhandenen Transurane von den Spaltstoffen getrennt und Cm wird in ein Cm-Zwischenlager überführt. Das verbleibende TRU Restinventar wird mit einer frischen TRU Fraktion aus abgebrannten LWR Brennstoffen aufgefüllt und der thermischen unterkritischen Transmutationsanlage sukzessive während der nächsten dreijährigen Betriebsphase zugeführt. Eine Reimplementierung des im Cm-Zwischenlager durch Zerfall entstandenen Pu in die ADS Anlage erfolgt nach einer Zeit von 36 Jahren. Dementsprechend verringert sich ab diesem Zeitpunkt die Fraktion des frischen TRU-Brennstoffanteils für den ADS Betrieb. In ein Endlager werden im Idealfall somit nur noch die anfallenden WAA- bzw. Partitioning Abtrennverluste (bzw. nicht genutzten Schwermetalle) für die ADS Brennstoffherstellung, die Betriebsverluste der ADS Anlage und die Verluste beim Partitioning des ADS Brennstoffs eingebracht. Die verbleibende Toxizität dieser Stoffströme sollte als Zielvorgabe nach 1000 Jahren das Niveau des in den LWR eingesetzten frischen Brennstoffs besitzen. Als eine mögliche Erweiterung des Kernbrennstoffkreislaufes kann die Einführung eines Th-MOX Systems angesehen werden. In diesem Fall durchläuft der abgebrannte LWR Brennstoff eine zusätzliche energetische Nutzung in einem Th-MOX betriebenen Reaktor, bevor er dem Transmutationssystem zugeführt wird (Anhang H 2).

Wie sich diese Gesamtstrategie auf den Massenstrom auswirkt, wird im folgenden erläutert. Dabei beginnt die Systemgrenze der Betrachtung mit der Nutzung des angereicherten Urans im Reaktor und endet mit den endzulagernden Stoffströmen. Diese Stoffströme sind im Falle des Uran LWR Systems die Verluste der WAA zur Wiederaufarbeitung der abgebrannten LWR Brennelemente bzw. der Anteil an Schwermetallen, der nicht der Transmutation zugeführt wird, die Betriebsverluste der ADS Anlage und die Partitioning Verluste bei der Trennung des ADS Brennstoffs. Ebenfalls fließen das Inventar der ADS Anlage und das des Cm-Zwischenlagers in die Bilanz ein.

8.2 Massenbilanzierung der Jülicher ADS Anlage im Gesamtkonzept

Aufbauend auf das dargelegte Konzept für den Betrieb der ADS Anlage wird eine Massenbilanzierung für die ersten Zyklen und für den späteren Zeitpunkt der Reimplementierung der abgetrennten Cm Masse durchgeführt und erläutert. Diese Bilanz resultiert aus weitergehenden Abbranduntersuchungen. Eine wichtige Rahmenbedingung für die weiteren Betriebszyklen war, im Unterschied zum ersten Betriebszyklus, nicht der konstant hohe Multiplikationsfaktor, sondern die Beibehaltung einer konstanten Eingabemenge je Zyklus. Diese betrug für den Pu basierten Brennstoff 807 kg und für den PuMA basierten Brennstoff 921 kg. Die Grundidee beinhaltet, daß die Inventarmasse einer Anlage nach ihrer dreijährigen Betriebszeit wiederaufgearbeitet und Cm von den anderen Transuranen abgetrennt wird. Der Brennstoff des folgenden Zyklus setzt sich aus dem TRU Anteil ohne Cm des vorhergehenden Zyklusses und einem definierten frischen Brennstoffanteil zusammen, da die Eingabemasse für den dreijährigen Betriebszyklus für die hier durchgeführte Bilanz konstant gehalten werden soll. Aufgrund des sich verschlechternden Brennstoffvektors, kommt es zwangsweise zu einer Absenkung des Multiplikationsfaktors. Dieser verschlechtert sich im Mittel um ca. 5 nile für den Pu Brennstoff und ca. 7 nile für den PuMA basierten Brennstoff. Somit verharrt der Pu basierte Brennstoff ab dem dritten Zyklus bei einem k_{∞} Wert von ca. 0,94 und bei dem PuMA basierten Brennstoff bei einem k_{∞} Wert von 0,92. Dieser Verlust an

Reaktivität kann entsprechend dem vorherigen Vorgehen durch ein optimiertes Verfahren einer höheren frischen Brennstoffzugabe aufgefangen werden bzw. im begrenzten Maße durch eine Erhöhung der Beschleunigerleistung ausgeglichen werden. Für eine Bewertung der Massenbilanz und möglichen Toxizitätsreduzierung spielt dies jedoch zum jetzigen Zeitpunkt keine entscheidende Rolle.

Für die Erstellung einer Massenbilanz sind neben den Eingabe- und Ausgabemassen auch die Verlustströme entscheidend. Wie aus **Abb. 8.2** ersichtlich, weist die Bilanz über dem Uran System drei Verlustströme auf. Die WAA Verluste bzw. Partitioning Verluste (im Falle des PuMA Brennstoffes) bei der Aufarbeitung der abgebrannten LWR Brennelemente, die Betriebsverluste der ADS Anlage und die Verluste beim Partitioning des ADS Brennstoffs. Bei den folgenden Ausführungen wird nur auf die beiden letztgenannten Verlustquellen eingegangen, da die WAA Verluste mit 0,8 kg Pu + 99,8 kg MA für den Pu Brennstoff und 0,9 kg TRU für den PuMA Brennstoff beim Partitioning eine statische Größe darstellen. Die verbleibende Uranfraktion von ca. 86t aus den abgebrannten LWR Brennelementen wird ebenfalls den WAA Abfällen zugewiesen und stellt einen konstanten Wert da. Die zeitlich veränderlichen Verluste sind zum einen die Betriebsverluste an Transuranen (0,1% der umgesetzten Masse an TRU) durch die kontinuierliche Extraktion von Spaltprodukten und zum anderen diejenigen innerhalb der Brennstoffaufarbeitungsphase in der Partitioning Anlage (10^{-4} für Pu und 10^{-3} für die restlichen TRU). Auf diesen Rahmenbedingungen aufbauend wurde das **Anlagenverhalten** der unterschiedlichen Brennstoffe für mehrere Zyklen berechnet und bilanziert. **Abb. 8.3** skizziert die Massenbilanz für den Pu basierten Brennstoff und **Abb. 8.4** für den PuMA basierten Brennstoff. Bezugspunkt der dargestellten Massen ist immer das einzusetzende Anlageninventar von 807 kg TRU im Falle des Pu Kreislaufs und 921kg TRU im Falle des PuMA Brennstoffs. Diese Masse wird der Anlage innerhalb von drei Jahren zugeführt, unabhängig vom Zyklus. Es ist direkt ersichtlich, daß die Kenndaten der Transuratumsetzung für den ersten Zyklus am günstigsten erscheinen. Wird nur das Verhältnis von Abbrandmasse zur Eingabemasse (807 kg Pu/ 921 kg PuMA) betrachtet, so beträgt dieses über 84% bei dem Pu Brennstoff und 76% für den PuMA basierten Brennstoff. Erwartungsgemäß verschlechtert sich diese Größe aufgrund des sich verändernden Nuklidvektors, doch stabilisiert sie sich ab dem dritten Zyklus auf ca. 82% bzw. 75%. Auch stabilisiert sich die zwischenzulagernde Cm Menge ab dem dritten Zyklus auf ca. 60 kg im Falle des Pu Brennstoffes und ca. 85 kg im Falle des PuMA Brennstoffes bei einer eingesetzten Masse von 807 kg (Pu) bzw. 921 kg (PuMA) TRU. Insgesamt kann ab dem dritten Zyklus von einem stabilen System gesprochen werden, in dem nur noch geringe Schwankungen hinsichtlich der Umsatzrate und der Nuklidvektoren auftreten. Zu diesem Zeitpunkt sind die Partitioning Verluste mit 0,08 kg TRU (Pu) und 0,12 kg TRU (PuMA) nahezu konstant und die Betriebsverluste, 0,1% der Betriebsmasse, betragen a priori immer 0,8 kg (Pu) bzw. 0,92 kg (PuMA) TRU.

Die Reimplementierung des zwischengelagerten Curiums nach 36 Jahren führt zu einer nochmaligen Veränderung der Nuklidzusammensetzung. Als Folge sinkt der Multiplikationsfaktor nochmals um ca. 2,5 nile ab. Hinsichtlich des Gesamtabbrandverhaltens verändert sich das System nur geringfügig um weniger als 0,5% in beiden Brennstoffvarianten. Augenscheinlich ist die bedeutend höhere Cm Masse, die ab dem 11 Betriebszyklus abgetrennt wird.

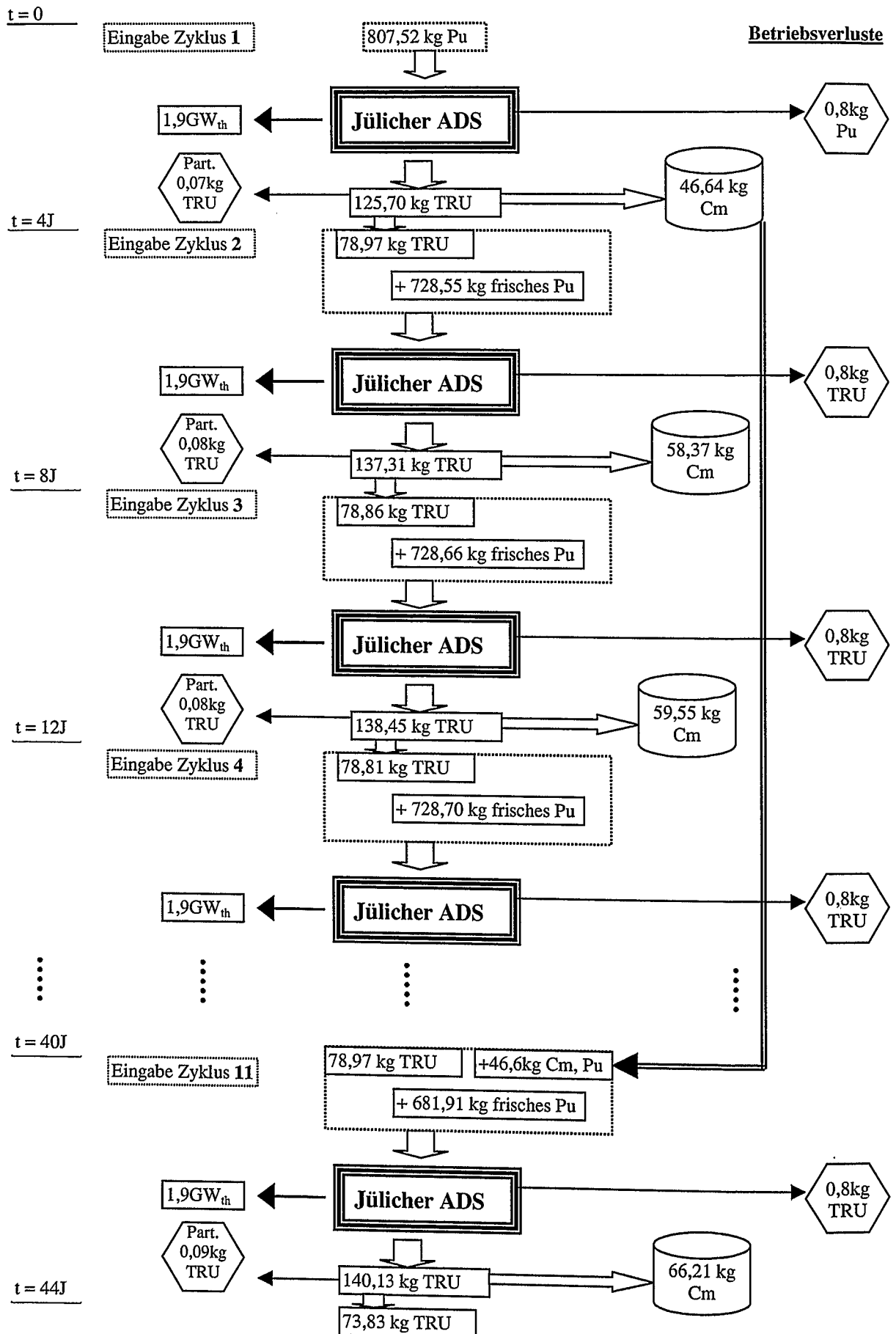


Abb. 8.3: Massenbilanzierung der ADS Anlage mit 640 MW_{th} für eine Betriebszeit von drei Jahren für den Pu basierten Brennstoff über mehrere Zyklen.

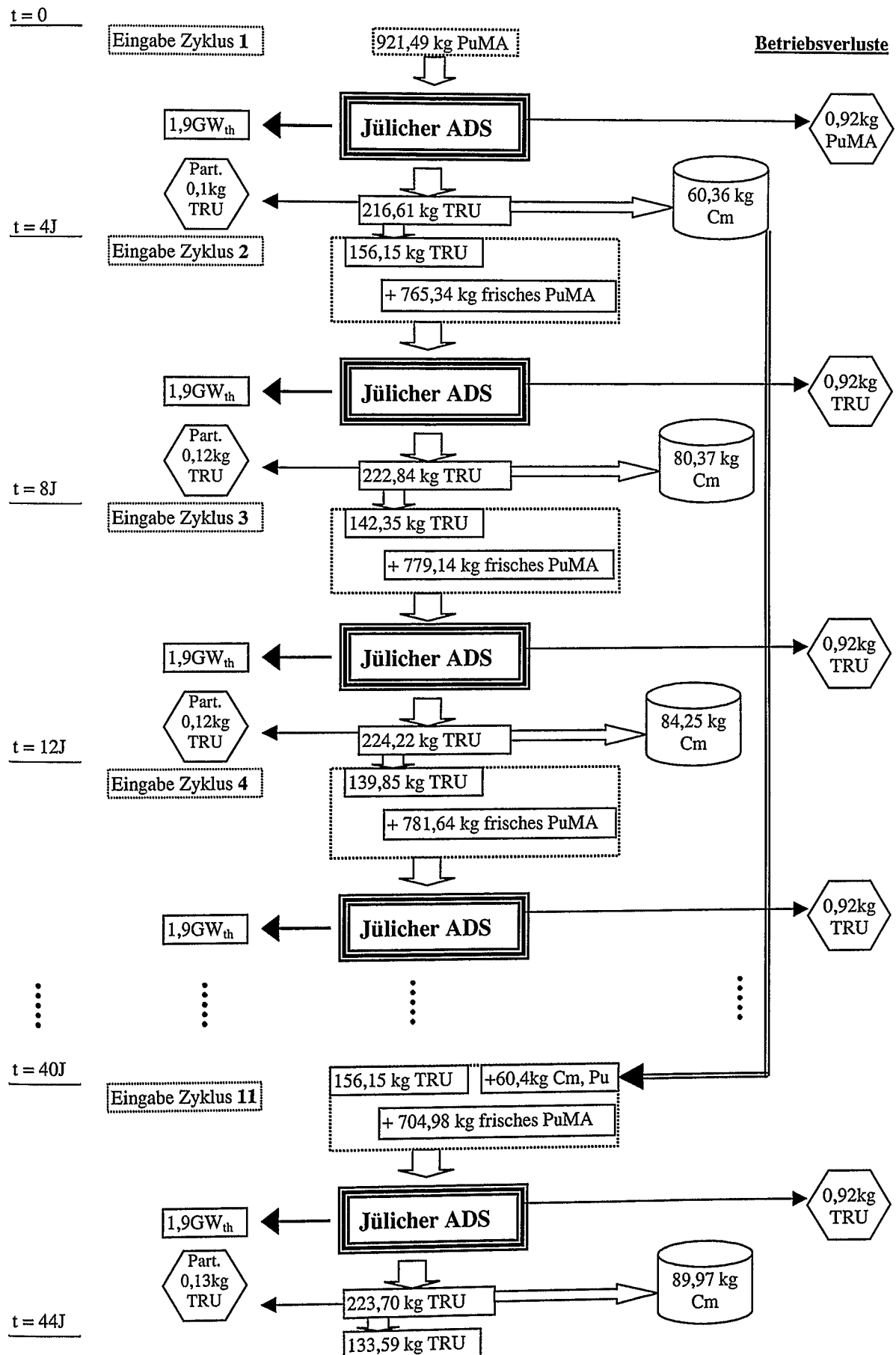


Abb. 8.4: Massenbilanzierung der ADS Anlage mit 640 MW_{th} für eine Betriebszeit von drei Jahren für den PuMA basierten Brennstoff über mehrere Zyklen.

Diese beträgt für den Pu Brennstoff im 11 Zyklus 66 kg und im 12 Zyklus 70 kg bzw. für den PuMA Brennstoff 90 kg nach dem 11 Zyklus und 97 kg nach dem 12 Zyklus. Wird jedoch die reale Neuproduktion an Cm betrachtet, indem der reimplementierte Cm Anteil mit berücksichtigt wird, ca. 19 kg (40% der 46 kg Pu-Cm) für den Pu Brennstoff im 11 Zyklus, werden gerade einmal 48 kg (Pu) bzw. 70 kg (PuMA) Cm neu erzeugt. Dieser Wert liegt deutlich (ca. 12% - 17%) unter den zu erwartenden Erzeugungsraten für Cm aus den Zyklen 2-10. Hinsichtlich der anfallenden Verlustmasse während des Partitionings schlägt der Cm Anstieg im abgebrannten ADS Brennstoff nur mit wenigen Gramm zu Buche.

Anhand der aufgestellten Massenbilanz über mehrere Zyklen kann ein integrales Reduzierungspotential für eine eingesetzte Brennstoffmasse (Primärmasse/Eingangsmasse) ermittelt werden. Hierbei wird die eingegebene Primärmasse als Basis genommen und hinsichtlich ihrer Teilströme über mehrere Zyklen verfolgt. Wie sich die Teilströme einer Primärmasse darstellen, wird mittels einer differenzierten Betrachtung der entstehenden Inventare und Massenströme aufgeschlüsselt. Dabei wird jedem Zyklus ein zu erwartendes Restinventar zugewiesen, welches dann mit dem tatsächlich auftretendem Restinventar abgeglichen wird. Das zu erwartende Restinventar ergibt sich aus der Masse des eingesetzten frischen Brennstoffs bzw. Restinventars und der daraus resultierenden Abbrandzusammensetzung. Da sich das Neutronenflußspektrum nur sehr wenig zwischen den einzelnen Zyklen ändert, kann eine auftretende Differenz zwischen erwartetem Abbrand und tatsächlichem Abbrandergebnis (Restinventar) den einzelnen Eingabefractionen (frischer Brennstoff, eingesetztes Restinventar der Anlage, Pu-Cm Gemisch aus dem Cm Lager) zugewiesen werden. Nach jedem Zyklus wird so die verbleibende Restmasse des Primärinventars bilanziert. Dementsprechend kann die Massenänderung in Bezug zur Betriebszeit gesetzt werden. Hierbei gilt es die fünf Stoffströme (Anlageninventar, Cm Zwischenlager, WAA-Verluste/Abfälle, Betriebsverluste und Partitioning-Verluste) zu berücksichtigen. Diese Berechnung wurde für die Anlagengröße von 640 MW_{th} und einer Primärmasse von 807 kg (Pu) bzw. 921 kg (PuMA) durchgeführt.

Um eine einfachere Vergleichbarkeit der Resultate zu erzielen, wurden die Ergebnisse der anlagenbezogenen Massenbilanz auf eine Primärmasse von 1000 kg TRU skaliert (Faktor 1,24 für Pu, bzw. 1,09 für PuMA System). Somit können die Ergebnisse auch in den Kontext der DWR Toxizitätsverläufe gesetzt werden. Die folgenden relativen Vergleiche beziehen sich immer auf die eingesetzte Primärmasse von 1000 kg TRU. Das Ergebnis wird in **Tab. 8.1** für den Pu Brennstoff und in **Tab. 8.2** für den PuMA Brennstoff dargestellt. Es wird beim Pu Brennstoff sofort deutlich, daß die größte TRU Massenreduzierung innerhalb der Anlage um 84% direkt im ersten Zyklusschritt erfolgt. Ebenso trägt der erste Zyklusschritt zum Hauptanteil hinsichtlich der Betriebsverluste sowie der Partitioning-Verluste bei. Dies ist direkt mit der hohen Masse zu verbinden. Der WAA-Verlust aus der DWR Brennelementaufarbeitung bzw. die verbleibende SM-Masse beträgt immer konstant 125 kg TRU (124 kg MA, 1 kg Pu) + 106t abgebranntes Uran für das Pu-System, da er schon als Verlustrate für die „Herstellung“ der 1000 kg Pu entstand. Da diese Verlustrate außerhalb des Transmutations & Partitioning Systems anfällt und nicht in die Anlage eingebracht werden kann, wird diese Masse nicht weiter beeinflusst.

Tab. 8.1: Tatsächlich vorhandene Anteile der Primärmasse von 1000 kg Pu zu jedem Zyklus in kg.

	Zeit [a]	Anlagen- Inv.	Cm Z.-Lager	Part.- Verl.	Betriebs- Verl.	WAA- Verl./Abfälle	Summe ohne WAA	TRU Summe	Summe mit Uran
Primärmasse	0	1000,00	0,00	0,00	0,00	125kg TRU+106t U	1000,00	1125,00	107125
Zyklus 1	4	97,89	57,82	0,08	1,00	125kg TRU+106t U	156,79	281,79	106282
Zyklus 2	8	9,42	78,22	0,11	1,10	125kg TRU+106t U	88,84	213,84	106214
Zyklus 3	12	0,88	80,23	0,11	1,11	125kg TRU+106t U	82,32	207,32	106207
Zyklus 4	16	0,09	80,29	0,11	1,11	125kg TRU+106t U	81,60	206,60	106207
Zyklus 5	20	0,00	80,29	0,11	1,11	125kg TRU+106t U	81,51	206,51	106207
Zyklus 6	24	0,00	80,29	0,11	1,11	125kg TRU+106t U	81,51	206,51	106207
Zyklus 7	28	0,00	80,29	0,11	1,11	125kg TRU+106t U	81,51	206,51	106207
Zyklus 8	32	0,00	80,29	0,11	1,11	125kg TRU+106t U	81,51	206,51	106207
Zyklus 9	36	0,00	80,29	0,11	1,11	125kg TRU+106t U	81,51	206,51	106207
Zyklus 10	40	0,00	80,29	0,11	1,11	125kg TRU+106t U	81,51	206,51	106207
Zyklus 11	44	0,00	35,55	0,12	1,17	125kg TRU+106t U	36,84	161,84	106161
Zyklus 12	48	0,00	19,83	0,13	1,22	125kg TRU+106t U	21,18	146,18	106146
Zyklus 13	52	0,00	18,27	0,13	1,23	125kg TRU+106t U	19,62	144,62	106145

Werden die weiteren Zyklen betrachtet, so befindet sich quasi nach dem vierten Zyklus keine Transurane der Erstbeladung/Primärmasse mehr im Brennstoff, wohingegen bis zu diesem Zeitpunkt ca. 8% der Masse in Cm umgewandelt wurde. Diese Cm Masse wird in Zwischenlager eingebracht und kann während der nächsten sechs Betriebszyklen nicht vermindert werden. Da im Brennstoff keine Primärmasse mehr vorhanden ist, ändern sich auch die Abtrennmassen für die Betriebs- und Partitioning-Verluste nicht. Insgesamt bleiben so 8,15% einer eingesetzten Primärmasse an Pu erhalten. Die absolut dominierende Fraktion dieser Restmasse ist mit 98,5 % das Cm. Durch die Reimplementierung des Cm nach einer Zwischenlagerung von 36 Jahren, also ab dem 11 Zyklus, kann die verbleibende Masse nochmals drastisch gesenkt werden. Im elften Zyklus werden 57,82 kg Pu-Cm aus dem Cm Zwischenlager des ersten Zyklus mit in das Anlageninventar eingeführt. Dieses Gemisch aus dem ersten Cm Zwischenlager kann bis auf einem Anteil von 13,08 kg heruntergebrannt werden. Die verbleibende Menge fällt als Cm an und stellt damit den Anteil des ursprünglichen Brennstoffs am Cm Zwischenlager des elften Zyklusschrittes dar. Im 12 Zyklusschritt wird das Pu Cm Gemisch (zweites Cm Zwischenlager) aus dem zweiten Zyklus eingesetzt. Der Anteil des ursprünglich eingesetzten Brennstoffs beträgt hier 20,40 kg. Dieser Wert wird durch die Reimplementierung in den 12 Zyklus auf 4,68 kg Cm reduziert. Im 13 Zyklus kommt nur noch ein geringer Pu Cm Anteil von 2,01 kg zum Tragen, der auf 0,45 kg Cm verringert wird. Innerhalb dieser drei Zyklusschritte kommt es zwar zu einem geringen Anstieg der Betriebs- und Partitioning-Abtrennverluste, doch wird die Cm Masse um 76% reduziert. Als Resultat der Reimplementierung existiert ab dem 13ten Zyklus nur noch ca. 2% (20 kg) der eingesetzten Primärmasse. Der Cm Anteil an dieser Masse beträgt 89% (18 kg) und kann durch eine erneute Reimplementierung weiter verringert werden. Dies sollte in den Betriebszyklen 21, 22 und 23 erfolgen. Dabei kann davon ausgegangen werden, daß eine erneute Reduzierung der Masse um 76% stattfinden wird. Insgesamt auffällig ist die Tatsache, daß ab dem dritten Betriebszyklus keine nennenswerten Massen des Primärbrennstoffs im Anlagenbetrieb auftauchen, sondern die verbliebene Masse fast ausschließlich in Form von Cm im Zwischenlager bilanziert werden kann. Der Verlustanteil der zwei Quellen Betrieb und

Partitioning besitzen ein Massenanteil von 0,14% (1,4 kg) der Primärmasse, aber 7% der verbleibenden Masse nach 13 Zyklen. Hierbei ist der Betriebsverlust des ersten Zyklus mit 1 kg die entscheidenden Größen. Werden diese Ergebnisse in den Kontext mit den WAA Verlusten gestellt, die ja dem P&T System zugeschlagen werden, so verändert sich das Bild. Zwar konnte die eingesetzte Primärmasse an TRU auf 2% innerhalb von 13 Zyklen vermindert werden, doch existieren noch 125kg TRU im WAA-Abfall/Verlust. Wird dies mit berücksichtigt, so findet nur eine Verminderung der existierenden TRU auf 14,5% statt. Durch ein mehrmaliges reimplementieren der Cm Masse kann dieser Wert maximal auf 12,64% verbessert werden, da die WAA-Verluste/Abfälle, sowie die Betriebs- und Partitioning-Verluste nicht weiter beeinflusst werden können.

Beim PuMA basierten Brennstoff (Tab. 8.2) führt der erste Betriebszyklus zu einer Massenreduzierung innerhalb der Anlage um 76,3% gegenüber der eingesetzten TRU Primärmasse. Ebenso trägt der erste Zyklusschritt zum Hauptanteil hinsichtlich der Betriebsverluste sowie der Partitioning Abtrennverluste mit insgesamt 1,11 kg bei. Die primären Partitioning Abtrennverluste bzw. verbleibende Schwermetalle besitzen einen konstanten Wert von nur 0,2 kg TRU sowie 94t abgebranntes Uran, da die auftretenden Minor Actinides Teil des PuMA Brennstoffs für die Transmutationsanlage sind. Dementsprechend existiert im Unterschied zum Pu Brennstoff keine MA Fraktion von den abgebrannten DWR Brennelementen, die als Abfälle außen vor bleiben.

In den beiden folgenden Zyklusschritten wird die Primärmasse innerhalb des Anlageninventars auf 0,5 kg reduziert. Nach dem vierten Zyklus befindet sich quasi keine Primärmasse mehr im Brennstoff der Anlage, wohingegen bis zu diesem Zeitpunkt ca. 10% der Primärmasse in Cm umgewandelt wurde. Diese befindet sich im Cm Zwischenlager und kann während der nächsten sechs Betriebszyklen nicht vermindert werden. Die Abtrennmassen für die Betriebs- und Partitioning-Verluste verändern sich ab diesem Zeitpunkt ebenfalls nicht. Insgesamt bleiben so 10,6% der eingesetzten PuMA Primärmasse erhalten. Die absolut dominierende Fraktion dieser Restmasse ist wiederum mit 98% das Cm. Die Reimplementierung

Tab. 8.2: Tatsächlich vorhandene Anteile der Primärmasse von 1000 kg PuMA zu jedem Zyklus in kg.

	Zeit [a]	Anlagen-Inv.	Cm Z.-Lager	Part.-Verl.	Betriebs-Verl.	Primär Part. Verl./ Abfälle	Summe ohne WAA	TRU Summe	Summe mit Uran
Primärmasse	0	1000,00	0,00	0,00	0,00	0,2kg TRU + 94t U	1000,00	1000,20	95000
Zyklus 1	4	170,12	65,57	0,11	1,00	0,2kg TRU + 94t U	236,80	237,00	94237
Zyklus 2	8	13,76	98,66	0,15	1,18	0,2kg TRU + 94t U	113,75	113,95	94114
Zyklus 3	12	0,51	103,78	0,15	1,20	0,2kg TRU + 94t U	105,65	105,85	94106
Zyklus 4	16	0,02	104,50	0,15	1,20	0,2kg TRU + 94t U	105,87	106,07	94106
Zyklus 5	20	0,00	104,50	0,15	1,20	0,2kg TRU + 94t U	105,85	106,05	94106
Zyklus 6	24	0,00	104,50	0,15	1,20	0,2kg TRU + 94t U	105,85	106,05	94106
Zyklus 7	28	0,00	104,50	0,15	1,20	0,2kg TRU + 94t U	105,85	106,05	94106
Zyklus 8	32	0,00	104,50	0,15	1,20	0,2kg TRU + 94t U	105,85	106,05	94106
Zyklus 9	36	0,00	104,50	0,15	1,20	0,2kg TRU + 94t U	105,85	106,05	94106
Zyklus 10	40	0,00	104,50	0,15	1,20	0,2kg TRU + 94t U	105,85	106,05	94106
Zyklus 11	44	1,64	53,67	0,17	1,27	0,2kg TRU + 94t U	56,74	56,94	94057
Zyklus 12	48	0,47	27,66	0,18	1,30	0,2kg TRU + 94t U	29,62	29,82	94030
Zyklus 13	52	0,13	23,68	0,18	1,31	0,2kg TRU + 94t U	25,30	25,50	94025

des Cm erfolgt nach einer Zwischenlagerung von 36 Jahren, also ab dem elften Zyklus. Dann werden 65,57 kg Pu Cm Gemisch aus dem Cm Zwischenlager des ersten Zyklus mit in das Betriebssystem eingeführt. Diese Masse kann bis auf einen Anteil von 16,38 kg verringert werden. Der Hauptanteil von 14,74 kg fällt in Form von Cm an und stellt damit den Anteil des ursprünglichen Primärbrennstoffs am Cm Zwischenlager des elften Zyklusschrittes dar. Ein geringerer Anteil von 1,64 kg verbleibt als Pu und Am im Brennstoff. Im 12. Zyklusschritt wird das Pu Cm Gemisch (33 kg) des Cm Zwischenlagers aus dem zweiten Cm Zyklus eingesetzt. Diese Masse von 33 kg wird durch die Reimplementierung in den 12. Zyklus auf 7,55 kg TRU reduziert. Auch hierbei bildet Cm mit 7,08 kg den Hauptanteil, der direkt in das Zwischenlager des zwölften Zyklus überführt wird und nur ein geringer Anteil von 0,47 kg TRU verbleibt im Brennstoffzyklus. Im 13. Zyklus kommt ein Pu Cm Anteil von 5,13 kg zum Tragen, der auf 1,28 kg TRU verringert wird. Davon sind wiederum 1,15 kg Cm, welches zwischengelagert wird. Innerhalb dieser drei Zyklusschritte der Cm Reimplementierung kommt es zu einem geringen Anstieg der Betriebs- und Partitioning-Abtrennverluste. Im Vergleich zum Zyklusschritt vier wird die verbleibende TRU Gesamtmasse nochmals um 76% reduziert und es existiert ab dem 13ten Zyklus nur noch ca. 2,5% (25,3 kg) der eingesetzten primären PuMA Masse. Der Cm Anteil an dieser Masse beträgt 94% (23,7 kg) und kann durch eine erneute Reimplementierung verringert werden. Dies sollte, ebenso wie beim Pu Brennstoff, in den Betriebszyklen 21, 22 und 23 realisiert werden. Dabei kann davon ausgegangen werden, daß eine erneute Reduzierung der Masse um 76% erfolgen wird. Ein TRU Anteil von 0,15% der Primärmasse findet sich in den Verlustaten des Betriebes und des Partitionings. Dabei weist der Betriebsverlust (1,3 kg) den Hauptteil auf. Werden diese Ergebnisse ebenfalls in den Kontext der vorgeschalteten WAA Verluste gestellt, so verändert sich beim PuMA Brennstoff das Bild hinsichtlich der TRU nur sehr gering. Da die in der WAA anfallenden Minor Actinides Teil des PuMA Brennstoffs sind, befinden sich bei den WAA-Verlusten/Abfällen nur die reinen Abtrennverluste an TRU von 0,2 kg. Dementsprechend wird die Umsatzrate an TRU im Gesamtkontext nicht wesentlich beeinflusst und es findet bis zum 13ten Betriebszyklus eine Gesamtreduzierung an TRU auf 2,5% statt.

Wird die Anlage langfristig (>120 a) betrieben, und kommt es zu einer mehrmaligen Reimplementierung des Cm in der beschriebenen Form, so verbleiben als Restmasse nur die WAA-Verluste/Abfälle, die Betriebsverluste und die Partitioning Verluste. Diese verändern sich nach dem 13ten Zyklus nur noch in einem sehr geringen Maße und können daher als TRU Restmasse einer Primärmasse von 1000 kg TRU zu 126,3 kg im Pu Kreislauf und zu 1,8 kg im PuMA Kreislauf bilanziert werden. Diese TRU Verlustströme müssen neben dem abgebrannten Uran letztlich endgelagert werden und bestimmen bei einer Langzeitbetrachtung (>120 a) die Masse und Toxizität des bilanzierten Brennstoffkreislaufs.

8.3 Toxizitätsbilanzierung der Jülicher ADS Anlage

Für die Toxizitätsbilanzierung gibt es ebenso wie für die Massenbilanzierung zwei grundsätzlich verschiedene Ansätze. Zum einen kann ein „Black Box“ System betrachtet werden, bei dem alle Massen und somit auch Toxizitätsströme und die dabei erzeugte Energie nachgehalten werden, die die Systemgrenze überschreiten, und zum anderen kann der Massenstrom einer eingesetzten „Primärmasse“ verfolgt werden. Hierbei spielen weiter zugeführte Stoffströme im Gegensatz zum „Black Box“ System keine Rolle, da nur der Verbleib der ursprünglich eingesetzten Primärmasse und die dabei erzeugte Energie von Interesse sind. Somit kann eine effektive Reduzierung der Toxizität anschaulich nachgewiesen werden. Im Falle des „Black Box“ Systems schwimmt die Toxizitätsreduzierung einer definierten Masse mit der Gesamtoxizität der Anlage, da die Anlage zu jedem Zeitpunkt aufgrund ihres zum Betrieb nötigen Anlageninventars eine Mindesttoxizität besitzt. Ebenso gestaltet sich eine Reimplementierung des Cm Zwischenlagers aufgrund ihres geringen Leistungsertrages bei hoher Toxizität als schwierig. Im weiteren Verlauf wird die Toxizität anhand der Massenreduzierung einer Ausgangsmasse (1000 kg), vgl. Kapitel 8.2, nachvollzogen. Eine Betrachtung des „Black Box“ Systems ist in [Anhang H 1](#) dargestellt.

Für die Gesamtoxizität eines Zyklusschrittes ist es unabdingbar, wie bei der Massenbilanzierung, alle fünf Stoffströme, Anlageninventar, Cm Zwischenlager, WAA Verluste, Betriebsverluste und Partitioning Verluste zu bilanzieren. **Abb. 8.5** stellt die einzelnen Anteile anhand des ersten Betriebszyklusses für den Pu Brennstoff dar. Als Vergleichswerte sind zum einen 1000 kg Pu, welches als Brennstoff dient, und 107 t Uran, welches zu einer Produktion von 1000 kg Pu in einem 1300 MW_{el} DWR Reaktor führt, eingetragen. Es ist sofort ersichtlich, dass die Gesamtoxizität innerhalb der ersten 60 Jahre vom Cm Lager dominiert wird und

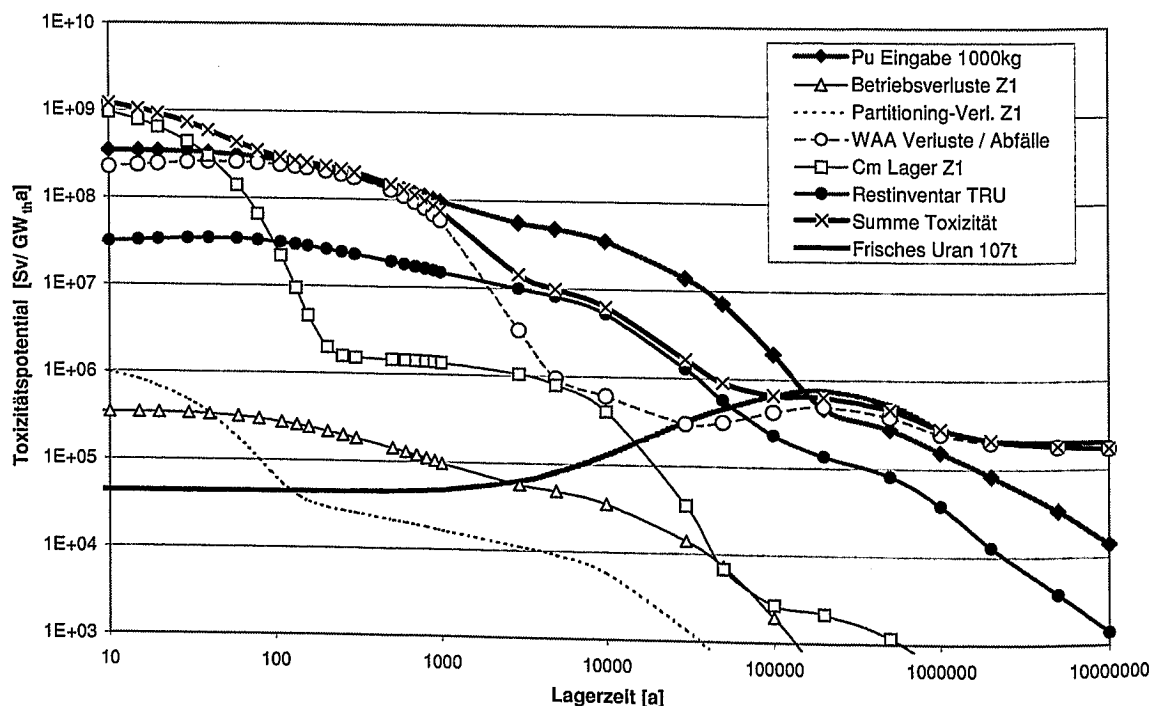


Abb. 8.5: Einflußgrößen der Stoffströme auf die Gesamtoxizität der Actinide des Pu Brennstoffsystems nach dem ersten Betriebszyklus.

ab ca. 60 Jahren die WAA Verluste /Abfälle mit 125 kg TRU und 106 t Uran die Toxizität die nächsten 2000 Jahre bestimmt. Nach diesem Zeitraum (>2000 a) dominiert das TRU Restinventar der ADS Anlage, im wesentlichen aus Pu bestehend, die Toxizität für weitere 70000 Jahre. Nach dieser Zeitspanne übernimmt wieder der WAA-Verlust/Abfall die Dominanz unter den Toxizitätsströmen. Der Schnittpunkt der Gesamtoxizität und dem frischen Uran liegt bei 100000 Jahren und verläuft nachfolgend auf gleichem Niveau, da ab diesem Zeitpunkt der Urananteil (106 t) der WAA-Abfälle die Gesamtoxizität prägen. Prinzipiell kommt es gegenüber der ursprünglich eingesetzten Pu Masse zu einem Toxizitätsanstieg innerhalb der ersten 100 Jahre. Ursache für dieses Verhalten ist die bedeutend höhere Toxizität des Cm (ca. 84 mal höher) im Vergleich zum Pu. Eine bedeutende Toxizitätsreduzierung findet erst im Zeitraum > 8000 a statt. Ab diesem Zeitpunkt beträgt der Toxizitätsunterschied eine Zehnerpotenz und bleibt bis zum Erreichen des Vergleichsniveaus von frischem Brennstoff annähernd konstant. Die Partitioning-Verluste stellen nur einen sehr geringen Teil der Gesamtoxizität dar. Die Betriebsverluste des ersten Zyklus sind zum jetzigen Zeitpunkt ebenfalls von nachgeordneter Bedeutung, gleichwohl der Vergleichswert des frischen Uran Brennstoffes erst nach ca. 2000 Jahren erreicht wird. Da die Betriebsverluste im weiteren Verlauf nur um 23% steigen, sowie die Partitioning-Verluste um 38% zunehmen, ändern sich die Toxizitäten für diese beiden Einflußgrößen in den weiteren Betriebszyklen nur im geringen Umfang. Nichtsdestotrotz bleibt die Dominanz der WAA Abfälle für den Zeitraum zwischen 60 und 2000 a. Zudem erreicht die Toxizität der WAA-Verluste/Abfälle das Vergleichsniveau erst in 30000 a. Da diese Abfälle nicht in die Transmutationsanlage überführt werden, besteht keine Möglichkeit der direkten Einflußnahme. Somit kann schon zu diesem Zeitpunkt festgehalten werden, daß das Vergleichsniveau des frischen Brennstoffs aufgrund der hohen WAA-Verluste/Abfälle des Pu Systems prinzipiell frühestens in 30000 Jahren erreicht werden kann.

Abb. 8.6 gibt die Gesamtoxizität nach dem ersten, dritten, elften und 13ten Zyklus wieder und stellt diese in Relation zu den beiden Vergleichsgrößen der eingesetzten Pu Masse und dem frischen Uran Brennstoff. Auch hier dient die Skalierung in Sv/GW_{th,a} als Vergleichsgröße. Es ist sofort ersichtlich, daß innerhalb der ersten 1000 Jahre keine Toxizitätsreduzierung stattfindet, und alle Betriebszyklen für einen Bereich von 80 bis 1000 a annähernd eine gleiche Gesamtoxizität aufweisen. Ursache des Verhaltens ist das Toxizitätsniveau des WAA Anteils der 100% der Minor Actinides umfasst und daher die Gesamtoxizität dominiert. Erst nachdem im weiteren Verlauf (>1000 a) der WAA Einfluß langsam zurückgeht, bilden sich symptomatische Toxizitätsverläufe der einzelnen Transmutationszyklen heraus. Erwartungsgemäß nimmt die Toxizität mit zunehmender Betriebszyklenzahl bis zum dritten Zyklus ab. Hierbei unterscheidet sich die Toxizität zwischen dem ersten Betriebszyklus und dem dritten Betriebszyklus innerhalb der ersten 10000 Jahre nur relativ wenig. Ohne eine Reimplementierung des abgetrennten Curiums wäre der Toxizitätsverlauf des dritten Betriebszyklus zugleich quasi die maximal erreichbare Toxizitätsreduzierung, da bis zu diesem Zeitpunkt die eingesetzte Pu Masse innerhalb der ADS Anlage bis auf 0,08% bereits umgesetzt wurde und das Anlageninventar bereits verlassen hat. Da dieser Umsatz nicht ausschließlich durch Spaltung erfolgte, baute sich im selben Zeitraum Cm auf. Insgesamt bleiben daher 8% der eingesetzten Pu Primärmasse als erzeugtes Cm übrig. Diese Menge stellt einen wesentlichen Anteil der Toxizität für die Zeitspanne von 2000 bis 10000 a. Die Cm Masse befindet sich dabei nicht in

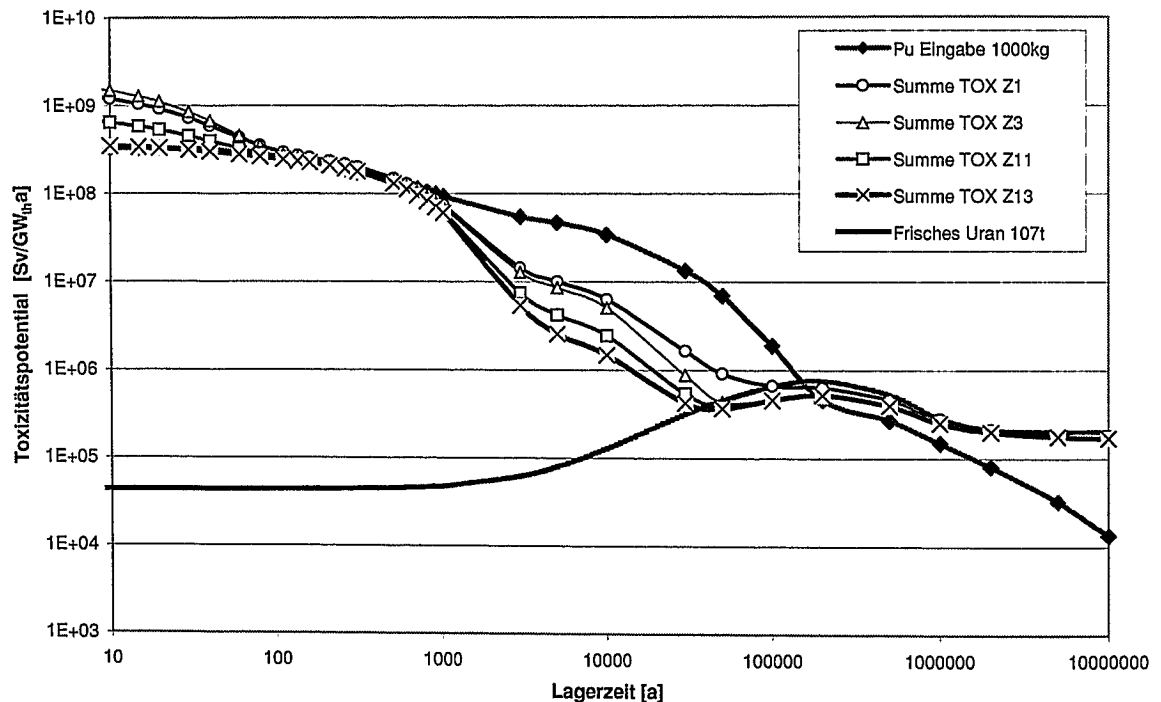


Abb. 8.6: Integrale Toxizitätsbilanz der Actinide unterschiedlicher Betriebszyklen des Pu Brennstoffsystems.

der Anlage, sondern wurde mittels des Partitionings abgetrennt und ins Zwischenlager überführt. Die Toxizitätsreduzierung erreicht ohne die Cm Reimplementierung einen Faktor von 10 gegenüber dem eingesetzten Pu bei einem Betrachtungszeitraum von 10000 Jahren. Erst mit einer Reimplementierung des Cm aus dem Zwischenlager ab dem elften Betriebszyklus kommt es nochmals zu einer deutlichen Toxizitätsreduzierung, die sich bis zum 13ten Betriebszyklus fortsetzt. Nach diesem Zyklus wird eine Toxizitätsreduzierung um einen Faktor 23 (Vergleichszeitraum 10000 Jahre) erreicht. Die Toxizitätskurve des 13ten Betriebsjahres schneidet die angestrebte Vergleichskurve des frischen Urans deutlich früher, doch nichtsdestotrotz nähern sich die Toxizitäten erst nach ca. 40000 Jahren an. Wird die Toxizitätszusammensetzung des 13ten Betriebszyklus nach Elementen aufgeschlüsselt (**Abb. 8.7**), so ist sofort der dominierende Effekt des WAA Abfalls für die ersten 2000 Jahre ersichtlich, da Am die Toxizität dominiert und dieses zu 60% den Hauptanteil des WAA Abfalls stellt. Für die Zeitspanne von 2000 bis 10000 a liefert Cm einen wesentlichen Anteil zur Gesamtoxizität. Mit dem Zerfall des Cm-244 steigt zwangsläufig die Toxizität des Pu Vektors an, da Pu-240 das Zerfallsprodukt darstellt. Für den Zeitraum von 10000 bis 20000 a haben Cm, Am und Pu einen sehr ähnlichen Anteil an der Gesamtoxizität. Für große Zeiträume hingegen ist Uran der dominierende Faktor für die Toxizität. Dementsprechend weist die Gesamtoxizität ab ca. 100000 Jahren den gleichen Verlauf auf, wie der frische Brennstoff. Neptunium stellt hinsichtlich des Toxizitätspotentials kein Problem dar, da die Toxizität immer unter dem Vergleichsbrennstoff Uran liegt.

Eine weitere Reimplementierung des Curiums führt zu einer abermaligen Toxizitätsreduzierung innerhalb des Systems der Transmutationsanlage. Diese wirkt sich hinsichtlich der Gesamtoxizität jedoch nur bedingt aus, da die Gesamtoxizität nahezu ausschließlich durch

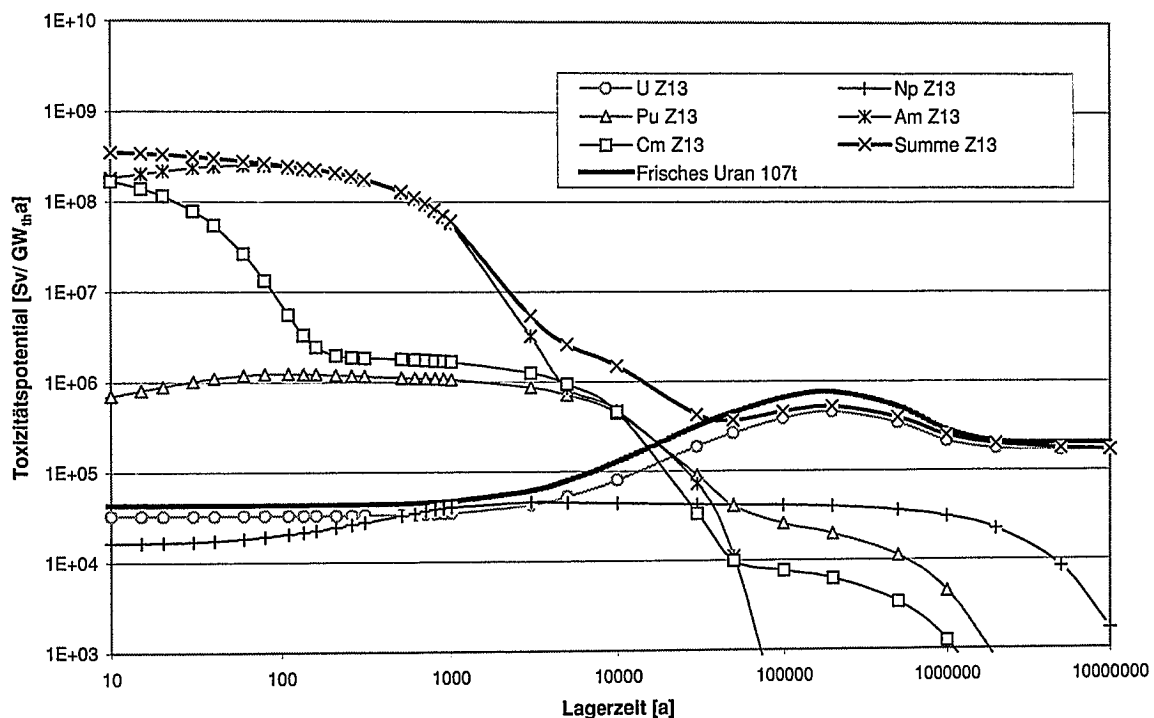


Abb. 8.7: Toxizitätszusammensetzung des 13ten Betriebszyklus nach Transuranen für Pu Brennstoff.

die WAA-Verluste/Abfälle dominiert wird. Lediglich in einem Zeitraum von 2000 bis 10000 Jahren erfolgt eine deutliche Beeinflussung der Toxizität durch die wiederholte Reimplimentierung.

Bei einer langfristigen Betrachtung (> 120 a) kann davon ausgegangen werden, daß nahezu das gesamte Cm aus der Primärmasse umgesetzt wird und keinen Einfluß mehr auf die Langzeittoxizität ausübt. Die verbleibende Toxizität setzt sich aus den vorhandenen Verlustströmen WAA-Verluste/Abfälle, Betriebsverluste und Partitioning-Verluste zusammen. Dementsprechend stellen diese Verlustströme die endzulagernden Abfälle einer langfristigen (> 120 a) Nutzung der ADS Anlage und bilden die Endbilanz/Endtoxizität des gesamten Systems. **Abb. 8.8** zeigt die Toxizität der endzulagernden Stoffströme für einen Betriebszeitraum größer 120 Jahre und stellt sie in Relation zur Toxizität der direkten Endlagerung. Gegenüber der direkten Endlagerung findet innerhalb von 1000 Jahren eine Toxizitätsverminderung um ca. 66% statt. Erst nach weiteren Jahrtausenden verringert sich die Toxizität signifikant (Faktor 45 nach 30.000 Jahren). Es wird sofort ersichtlich, daß die WAA-Verluste/Abfälle die Gesamtoxizität über den gesamten Zeitraum zu fast 100% dominieren. Dementsprechend scheitert eine Toxizitätsreduzierung auf ein Vergleichsniveau des Urans innerhalb von 1000-2000 Jahre schon allein aufgrund der Brennstoffvorgabe nur Pu und keine MA einzusetzen. Dies führt dazu, daß die Gesamtoxizität des Pu-Systems den Vergleichswert des frischen Uranbrennstoffs erst in 30000 Jahren erreicht. Ebenso kann festgehalten werden, daß auch die Betriebsabfälle zu hoch sind, um das Vergleichsniveau im angestrebten Zeitrahmen zu erreichen. Der Verluststrom des Partitioning stellt hinsichtlich des geforderten Toxizitätsniveau kein Problem dar.

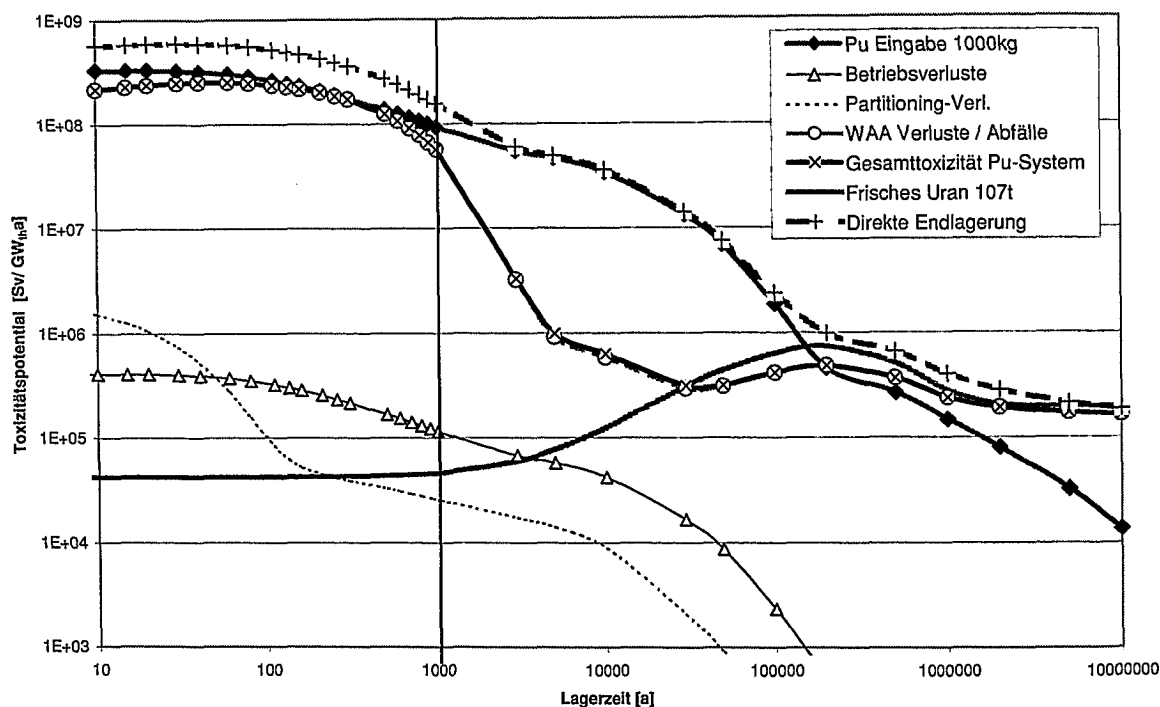


Abb. 8.8: Endzulagerndes Toxizitätspotential der Actiniden bei einem langfristigem Betrieb der ADS Anlage (>120 a) mit mehrmaliger Cm Reimplementierung für das Pu Brennstoffsystem.

Eine drastische Toxizitätsreduzierung der abgebrannten DWR Brennelemente kann dementsprechend nur unter Einbringung der Minor Actinides in das Transmutationssystem erfolgversprechend sein. Andernfalls besteht mit den endzulagernden WAA Verlusten/Abfällen ein Toxizitätspotential, welches nicht weiter beeinflusst werden kann und erst nach 30000 Jahren den Vergleichswert des frischen Urans erreicht. Ebenso zeigt sich, daß auch die Annahme von 0,1% Betriebsverlusten zu einer Mindesttoxizität führt, die den Uranvergleichswert erst in 5000-6000 Jahren erreichen läßt.

Wird die Gesamttoxizität des ersten Zyklusschritts im PuMA Brennstoffkreis (Abb. 8.9) mit dem des Pu Brennstoffes verglichen, so stellt sich ein komplett anderer Verlauf ein, da der Brennstoff die Minor Actinides enthält und somit die primären Partitioning Verluste (zur Unterscheidung weiterhin als WAA Verluste bezeichnet) nur die Abtrennverluste an TRU sowie das verbleibende Uran enthalten. Als Konsequenz existiert kein dominierender, unbeeinflussbarer Toxizitätsterm, wie beim Pu Brennstoff. Als Vergleichswerte sind zum einen die Toxizität von 1000 kg PuMA, welches als Brennstoff dient, und 95,4 t Uran, welches zu einer Produktion von 1000 kg PuMA in einem 1300 MW_{el} DWR Reaktor führt, eingetragen. Die Ausgangstoxizität ist folglich etwas höher als im reinen Pu Brennstoffkreislauf. Ebenso wie beim Pu Brennstoff spielt das Cm Inventar in einem sehr kurzen Zeitraum von 40 Jahren eine dominierende Rolle. Nach dieser Zeit übernimmt das TRU Restinventar, im wesentlichen aus Pu, Np und Am bestehend, die bestimmende Funktion der Toxizität für die weiteren 200000 Jahre. Erst im langfristigen Verlauf (>200000 a) dominiert das Uran aus den WAA-Verlusten die Gesamttoxizität und führt zu einem ähnlichen Toxizitätsverlauf wie beim frischen Uran. Das Vergleichsniveau wird jedoch erst nach 1.000.000 Jahren explizit erreicht.

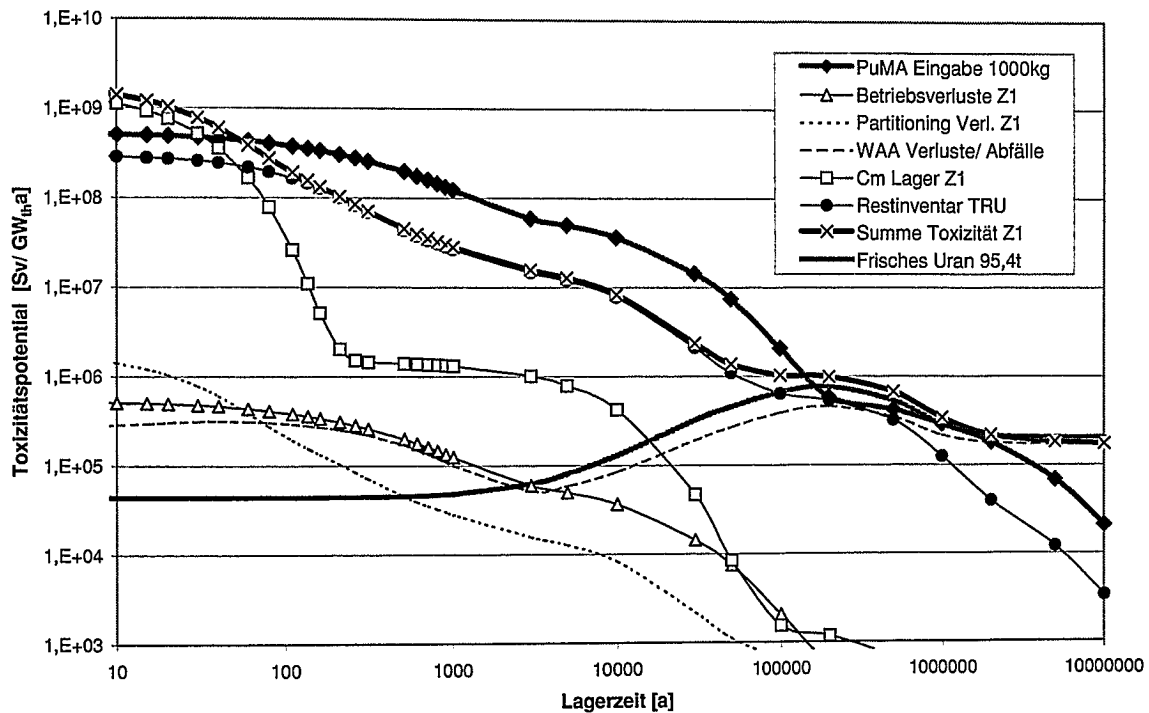


Abb. 8.9: Einflußgrößen der Stoffströme auf die Gesamtoxizität der Actinide des PuMA Brennstoffs nach dem ersten Betriebszyklus.

Insgesamt kommt es auch beim PuMA Brennstoff gegenüber der ursprünglich eingesetzten PuMA Masse zu einem Toxizitätsanstieg innerhalb der ersten 40 Jahre. Wie beim Pu Brennstoff liegt auch hier die Ursache in der Erzeugung von Cm. Erst nach ca. 100 Jahren kommt es zu einer deutlichen Toxizitätsreduzierung im Vergleich zur ursprünglich vorhandenen Toxizität. Diese fällt mit einem Faktor von 2,9 für 200 Jahre bzw. 4,4 für 1000 Jahre als Betrachtungszeitraum deutlich höher aus, als im Pu Brennstoffsystem, wo es innerhalb dieses Zeitraums zu keiner Toxizitätsreduzierung kommt. Die WAA-Verluste/Abfälle, Betriebsverluste und Partitioning-Verluste stellen zu diesem Bilanzierungszeitpunkt im Unterschied zum Pu Brennstoff nur einen sehr geringen Teil der Gesamtoxizität dar, gleichwohl die Betriebsverluste den Vergleichswert des frischen Uran Brennstoffes erst nach ca. 2500 Jahren erreichen. Da die Betriebsverluste sich im weiteren Verlauf nur um 31% steigern, sowie die Partitioning Verluste nur um 38% zunehmen, ändern sich die Toxizitäten für diese beiden Einflußgrößen in den weiteren Betriebszyklen erwartungsgemäß nur sehr wenig. Die Toxizität der WAA Verluste/Abfälle besitzt nur ein Bruchteil der Toxizität wie im Pu Brennstoffsystem und schneiden das Vergleichsniveau nach ca. 2300 Jahren. Diese Größe unterliegt keiner Änderung im ADS & Partitioning System. Da in den nachfolgenden Zyklen die Cm Masse infolge der PuMA Umsetzung ansteigt und das Restinventar immer kleiner wird, bestimmt im hohen Maße die Cm Toxizität die Gesamtoxizität der verbleibenden TRU Masse. Diese Cm Masse befindet sich im Cm Zwischenlager und nicht mehr in der Anlage.

Abb. 8.10 gibt die Gesamtoxizität nach dem ersten, dritten, elften und 13ten Zyklus wieder und stellt diese in Relation zu den beiden Vergleichsgrößen der eingesetzten PuMA Masse und dem frischen Uran Brennstoff. Es ist sofort ersichtlich, daß mit zunehmender Betriebszyklenzahl bis zum dritten Zyklus die Toxizität abnimmt. Die Toxizität sinkt zwischen dem

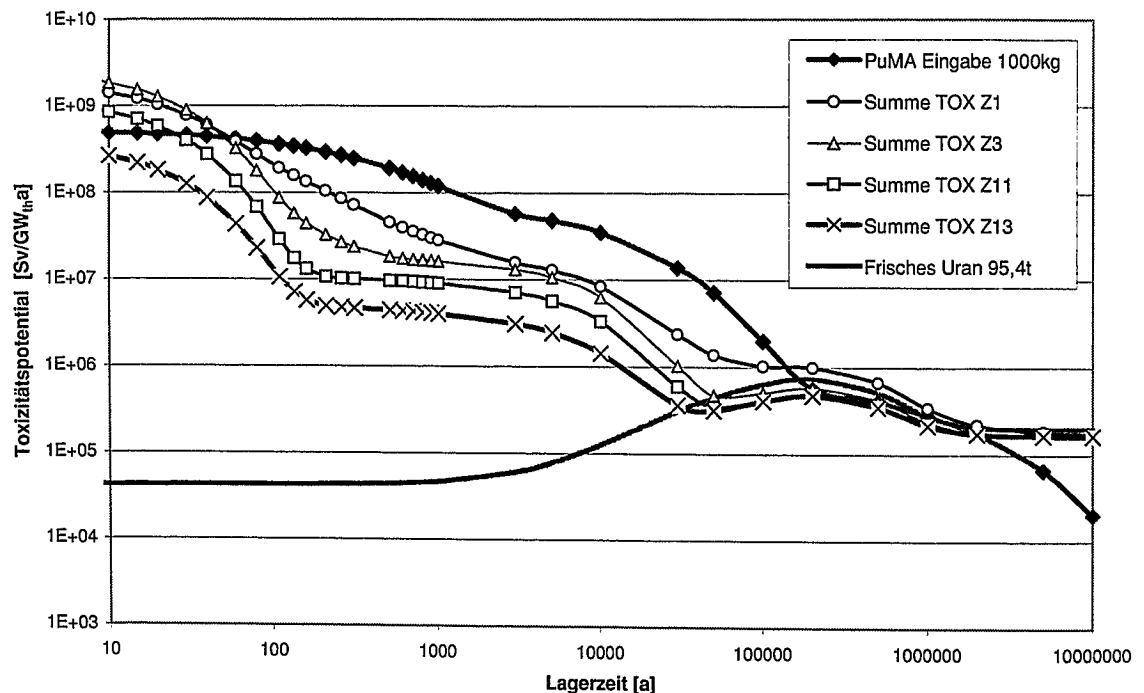


Abb. 8.10: Integrale Toxizitätsbilanz der Actinide unterschiedlicher Betriebszyklen des PuMA Brennstoffs.

ersten Betriebszyklus und dem dritten Betriebszyklus deutlicher als im Pu System, doch sind die Reduktionswerte hinsichtlich der Ausgangstoxizität immer noch unzureichend (Faktor 7,3 für 1000 Jahre). Ohne eine Reimplementierung des abgetrennten Curiums wäre der Toxizitätsverlauf des dritten Betriebszyklus quasi die maximal erreichbare Toxizitätsreduzierung, da bis zu diesem Zeitpunkt die eingesetzte PuMA Masse in der Anlage bis auf 0,05% bereits umgesetzt wurde. Dieser Umsatz an PuMA zog zeitgleich einen Aufbau von 104 kg (10,4% der Primärmasse) Cm nach sich, welches die Toxizität dominiert. Als deutlicher Indikator für den hohen Cm Einfluß auf die Gesamtoxizität kann der quantitative Toxizitätsverlauf herangezogen werden. Hier zeigt sich eine typische drastische Toxizitätsreduzierung aufgrund des Cm-244 Zerfalls innerhalb der ersten 180 Jahren. Der dann erreichte Toxizitätswert bleibt nahezu konstant, bis nach einigen 1000 Jahren auch der Zerfall von Cm-245 und Cm-246 zu einer deutlichen Toxizitätsreduzierung führt. Erst mit einer Reimplementierung des Cm aus dem Zwischenlager ab dem elften Betriebszyklus kommt es nochmals zu einer deutlichen Toxizitätsreduzierung. Die sich bis zum 13ten Betriebszyklus fortsetzt. Nach diesem Zyklus wird eine Toxizitätsreduzierung um einen Faktor 29 (Vergleichszeitraum 1000 Jahre) bzw. 25 (Vergleichszeitraum 10000 Jahre) erreicht. Die Toxizitätskurve des 13ten Betriebsjahres der Anlage schneidet die angestrebte Vergleichskurve des frischen Urans nach deutlich mehr als 20000 Jahren. Dies stellt hinsichtlich der geforderten Abschlußzeit von ca. 2000 Jahren ebenfalls keine befriedigende Lösung dar. Wird die Toxizitätszusammensetzung des 13ten Betriebszyklus nach Elementen aufgeschlüsselt (Abb. 8.11), so ist beim PuMA Brennstoff der dominierende Effekt des Curiums direkt ersichtlich. Neben Cm spielt auch Pu eine entscheidende Rolle hinsichtlich der Gesamtoxizität. Doch durch den Zerfalls des Cm-244 wird auch die Toxizität des Pu Vektors, da Pu-240 das Zerfallsprodukt darstellt, massiv beeinflußt. Somit stellt Cm den entscheidenden Toxizitätsterm dar. Am spielt im Unterschied zum Pu

Brennstoff nur eine untergeordnete Rolle, wenn auch das Vergleichsniveau des frischen Urans erst nach ca. 2000 Jahren erreicht wird. Wesentliche Quelle für den Am Anteil ist der Betriebsverlust, da Am zu 6,4% im PuMA Brennstoff enthalten ist und somit direkt in die Abschlußbilanz eingebracht wird.

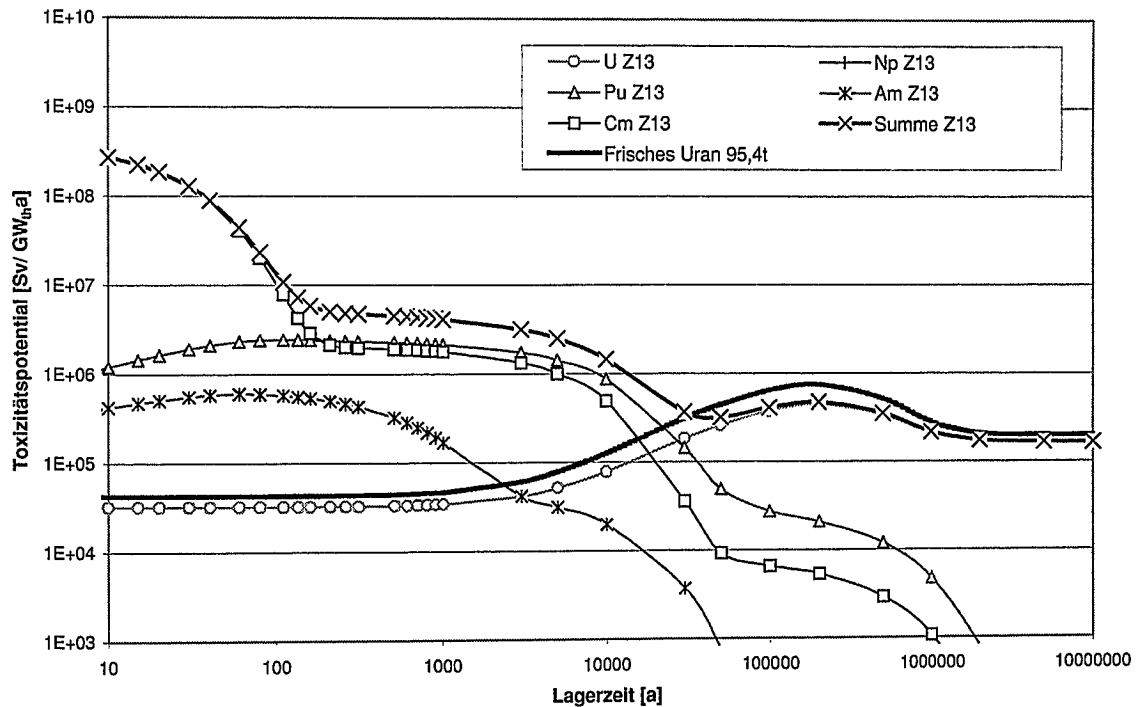


Abb. 8.11: Toxizitätszusammensetzung der Actinide des 13ten Betriebszyklus für PuMA Brennstoff.

Da nach dem Zyklus noch ca. 2,5% der TRU-Ausgangsmasse vorhanden ist, und diese zu 93% aus Curium besteht, welches die Gesamttoxizität bestimmt, kann durch eine weitere Reimplementierung des Curiums eine abermalige Toxizitätsreduzierung erfolgen. Dies sollte wiederum nach einer Zwischenlagerung von 36 Jahren, also ab dem 21 Betriebszyklus durchgeführt werden. Bei einer langfristigen Betrachtung (> 120 a) kann davon ausgegangen werden, daß nahezu das gesamte Cm aus der Primärmasse umgesetzt wird und keinen wesentlichen Einfluß mehr auf die Langzeittoxizität ausübt. Die verbleibende Toxizität setzt sich aus den vorhandenen Verlustströmen WAA-Verluste/Abfälle, Betriebsverluste und Partitioning-Verluste zusammen. Diese Ströme bauen sich im wesentlichen in den ersten Betriebszyklen auf und entziehen sich einer weiteren Umwandlung in einer Transmutationsanlage. Dementsprechend stellen diese Verlustströme die endzulagernden Abfälle einer langfristigen (> 120 a) Nutzung der ADS Anlage und bilden die Endbilanz/Endtoxizität des gesamten Systems mit PuMA Brennstoff als Basis. **Abb. 8.12** zeigt die Toxizität der endzulagernden Stoffströme für einen Betriebszeitraum größer 120 Jahre und stellt sie in Relation zur Toxizität der direkten Endlagerung. Aufgrund der Tatsache daß der PuMA Brennstoff nahezu die gesamte Toxizität an Schwermetallen der abgebrannten Brennelemente widerspiegelt, fällt die erreichbare Toxizitätsreduzierung gegenüber der direkten Endlagerung bedeutend höher aus. Es wird zwar sofort ersichtlich, daß eine Toxizitätsreduzierung auf ein Vergleichsniveau des Urans innerhalb von 1000-2000 Jahre am Aufkommen der Betriebsabfälle

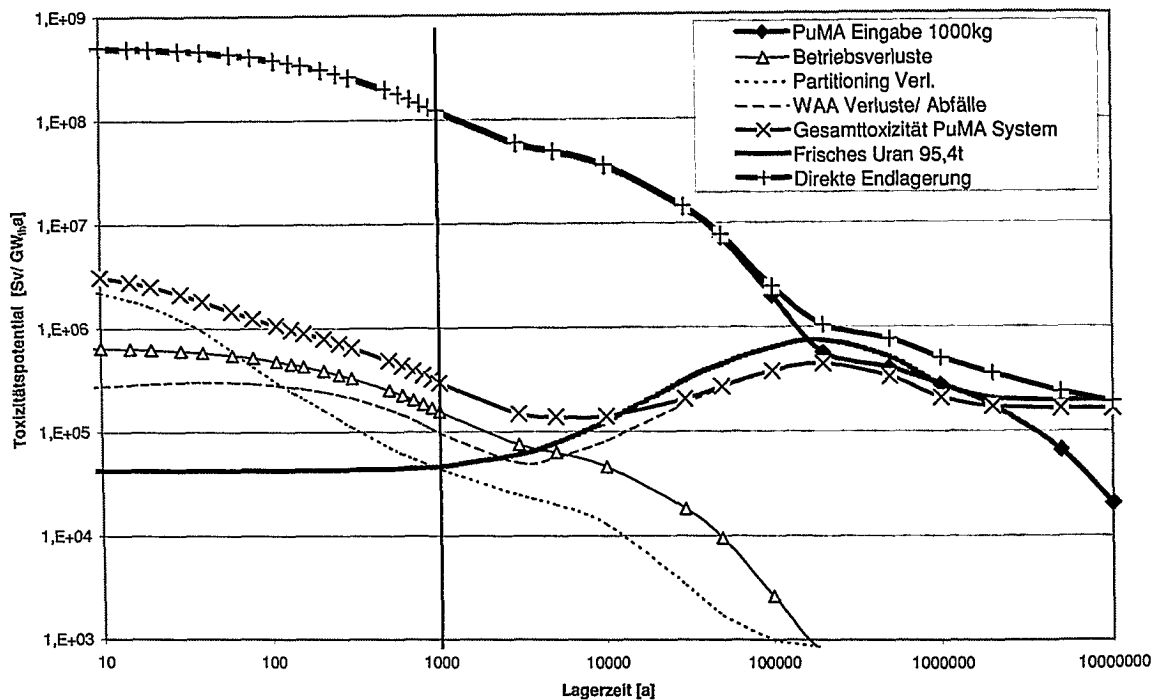


Abb. 8.12: Endzulagerndes Toxizitätspotential der Actiniden bei einem langfristigen Betrieb der ADS Anlage (>120 a) mit mehrmaliger Cm Reimplementierung für das PuMA Brennstoffsystem.

und der WAA-Verluste/Abfälle scheitert. Die endzulagernde Gesamtoxizität ist hingegen deutlich niedriger als beim Pu betriebenen System und erreicht das Vergleichsniveau in 10000 Jahren. Der bestimmende Faktor für die Gesamtoxizität bis zu einem Zeitraum von 5000 Jahren ist der Betriebsabfall, der die Vergleichstoxizität erst in ca. 2500 a erreicht. Der Verluststrom der WAA bedingt zwar ebenfalls, daß das Vergleichsniveau nicht vor 2300 Jahren erreicht werden kann und prägt die Gesamtoxizität nach 5000 Jahren, doch ist die Toxizität des Verluststroms im Vergleich zum Pu-Brennstoff um mehrere Potenzen niedriger. Die Verluste aus dem Partitioning stellen kein Hindernis hinsichtlich der angestrebten Toxizitätsreduzierung dar. Dementsprechend zeigt sich beim PuMA basierten Brennstoffsystem, daß primär ein Betriebsverlust von 0,1% und nur sekundär die WAA-Verluste/Abfälle der begrenzen- de Faktor für das Erreichen des vorgegebenen Toxizitätsniveau ist. Allein die Annahme von 0,1% Betriebsverlusten führt zu einer Mindesttoxizität, die den Uranvergleichswert erst in 2500 Jahren erreicht.

Werden die wesentlichen Ergebnisse zusammengefaßt, so stellt sich heraus, daß der Einsatz der beschriebenen Brennstoffe in das geschilderte Gesamtkonzept innerhalb kurzer Zeiträume zu einer deutlichen Massenminderung führt. Von dem eingesetzten TRU bleibt nach wenigen Zyklen nur das aufgebaute Cm als umzuwandelnde Masse übrig. Dieser Cm Aufbau stellt sich hinsichtlich der Toxizitätsreduzierung als kontraproduktiv heraus, auch wenn er absolut gesehen nur 8% (Pu) bzw. 10,4% (PuMA) des eingesetzten Brennstoffs darstellt. Erst nach einer Reimplementierung des zwischengelagerten Cm Anteils kommt es zu einer deutlichen Toxizitätsreduzierung. Diese Toxizitätsreduzierung kann sich aber nur unter der Bedingung des Einsatzes von PuMA Brennstoff entfalten, da innerhalb des Pu Brennstoffs die WAA-

Verluste/Abfälle mit den Minor Actinides, die Toxizität von vornherein dominieren. Dementsprechend kann für ein Pu-Brennstoff zwar die Toxizität des Cm Lagers durch eine mehrmalige Reimplementierung vernichtet werden, ebenso wie das Inventar innerhalb der ADS Anlage, doch die WAA-Verluste/Abfälle besitzen eine so hohe Toxizität, daß das Vergleichsniveau von frischem Uranbrennstoff prinzipiell nicht vor 30000 Jahren erreicht werden kann. Somit ist ein Pu-Brennstoff vom Wesen her nicht in der Lage, die gewünschte Toxizitätsreduzierung im angestrebten Zeitraum von ca. 1000-2000 Jahren zu erfüllen.

Der PuMA Brennstoff weist den Nachteil der verbleibenden MA Fraktion aus der WAA (primären Partitioning) nicht auf. Hier sind die im DWR anfallenden Minor Actinides Teil des Brennstoffs der Transmutationsanlage. Somit kann der Reduzierungsfaktor der Gesamtoxizität durch eine Reimplementierung des Cm aus dem Zwischenlager erhöht werden. Durch eine mehrmalige Reimplementierung des Cm kann letztlich eine komplette Vernichtung der Cm Masse und eine deutliche Toxizitätsminderung des Gesamtsystems erreicht werden. So verbleiben bei einem langfristigen ADS Betrieb (>120 a) mit mehrmaliger Reimplementierung des Cm als endzulagernde Stoffe nur die WAA-Verluste/Abfälle (primären Partitioning), die Betriebsverluste und die Verluste aus dem Partitioning. Hierbei zeigt sich, daß diese Stoffströme das Vergleichsniveau des frischen Brennstoffs im PuMA System in 10000 Jahren erreichen. Verantwortlich für dieses Toxizitätspotential ist primär der Betriebsverlust der Anlage mit 0,1% TRU des Umsatzes und erst sekundär der WAA-Verlust zur Brennstoffherstellung. Die Annahmen hinsichtlich der Partitioning Abtrennverluste von 10^{-4} für Pu und 10^{-3} für U, Np, Am und Cm erscheinen als ausreichend, um das angestrebte Ziel zu erreichen. Demzufolge ist die Anlage mit PuMA Brennstoff zwar in der Lage das geforderte Toxizitätspotential prinzipiell zu erreichen und somit eine bedeutende Alternative zur direkten Endlagerung aufzuzeigen, doch stellen sich die Betriebsverluste als wesentliches Hindernis dar; der unterstellte Wert von 0,1% sollte einer kritischen Überprüfung unterzogen werden.

Hinsichtlich der umgewandelten Schwermetallmenge, kann eine thermische unterkritische Transmutationsanlage mit $640 \text{ MW}_{\text{th}}$ in einem PuMA Betriebszyklus bei einer mittleren Umwandlungsrate von 233 kg TRU/a (ab dem 11 Zyklus) 70% des jährlichen TRU Abfalls eines $1300 \text{ MW}_{\text{el}}$ Druckwasserreaktors umsetzen.

Die Einführung eines Th-MOX Pu Brennstoffes mit einem abgetrennten Th-MOX Anteil (TRTh) aus der abgebrannten ersten Stufe des Th-Brennstoffzyklus eines DWR in Form eines 9,78% TRTh-MOX und 90,22% Pu Gemisches bringt hinsichtlich der Toxizitätsproblematik keine Entlastung, sondern weist vergleichbare Verhaltensweisen wie der Pu Brennstoff auf (Anhang H 2).

Als Konsequenz kann eine Toxizitätsreduzierung auf ein Vergleichsniveau des frischen Urans innerhalb des angestrebten Zeitraums nur erreicht werden, wenn die Minor Actinides nicht in die WAA Verluste übergehen (primäres Partitioning), sondern aktiv in einer Transmutationsanlage umgewandelt werden können. Dies bedarf den Einsatz eines PuMA Brennstoffs, wobei es zu einer mehrmaligen Reimplementierung des erzeugten Curiums in der Anlage kommen muß. Ebenso müssen die Betriebsverluste auf ein niedrigeres Niveau von ca. 0,01% reduziert werden. Unter diesen Voraussetzungen kann das angestrebte Vergleichsniveau nach

2300 Jahren erreicht werden. Für eine weitere Toxizitätsreduzierung müssen die Abtrenngüten von 99,9% für die MA verbessert werden. Diese Schlußfolgerungen ermöglichen eine Umwandlung der radioaktiven Schwermetalle in dem beschriebenen unterkritischen thermischen System in solch einem Ausmaße, daß das vorgegebene Vergleichsniveau von frischem Uranbrennstoff in einem Zeitraum von ca. 1000 Jahren erreicht wird.

9 Fazit und Ausblick

Die Kernenergie stellt in den industrialisierten Wirtschaftsräumen ein wichtiges Energiesystem der Elektrizitätserzeugung dar. In der Zukunft wird die Bedeutung aufgrund des steigenden Energiebedarfs im Zuge des Weltbevölkerungswachstums und der fortschreitenden Industrialisierung der Weltwirtschaftsräume noch weiter wachsen. Gleichzeitig spielt eine nachweisbare Umweltverträglichkeit eine zentrale Schlüsselrolle in der öffentlichen Akzeptanz des Energiesystems. Diese nachweisbare Umweltverträglichkeit führt als Konsequenz zu geforderten Abschlußzeiten für den radioaktiven Abfall von der Biosphäre in der Größenordnung von ca. 1000 Jahren, da für diesen Zeitraum eine technische Barriere möglich erscheint. Dieser Forderung kann nur durch eine drastische Toxizitätsreduzierung der Transurane entsprochen werden.

Wird das Toxizitätsverhalten der verschiedenen Abfallströme aus einem Kernkraftwerk analysiert, so stellt sich heraus, daß die Gruppe der Actiniden die Toxizität des radioaktiven Gesamtabfalles nach ca. 200 Jahren dominieren. Die Gruppe der Spaltprodukte und Strukturmaterialien stellt hinsichtlich ihrer Toxizität im Vergleich zu Uran-Brennstoff nachweislich kein Gefährdungspotential über einen technisch beherrschbaren Zeitraum hinaus dar. Um die Toxizität der Actiniden nachhaltig zu beeinflussen, bedarf es einer Abtrennung (Partitioning) und kernphysikalischen Umwandlung (Transmutation) der für die Langzeittoxizität verantwortlichen Transurane. Diese Umwandlung geschieht in Transmutationsanlagen, für die es unterschiedliche Konzepte gibt. Neben den kritischen Transmutationsanlagen ermöglichen die Fortschritte auf dem Gebiet der Protonenbeschleuniger auch unterkritische Transmutationsanlagen (ADS), bei denen die für eine kontinuierliche Kritikalität fehlenden Neutronen über einen Spallationsprozeß in die unterkritische Anlage induziert werden. Für den Einsatz einer unterkritischen Anlage sprechen insbesondere der zu erwartende positive Sicherheitsaspekt des unterkritischen Brennstoffkerns und die Möglichkeit, die Transurane in größerem Umfang umzuwandeln. Trotz einer Vielfalt von Konzepten konnte noch kein entscheidender Durchbruch bei der Toxizitätsreduzierung erreicht werden. Unter den Systemstudien verheißt insbesondere die Grundidee einer thermischen unterkritischen Transmutationsanlage mit flüssigem Blei als Brennstoffträger ein hohes Potential, die Forderung einer drastischen Toxizitätsreduzierung umzusetzen. Erste Ansätze hierzu verliefen zwar positiv, doch konnte das Potential nicht im Sinne eines 1000 a Ausgleichs umgesetzt werden. Ebenso konnten die Problemfelder der Löslichkeit und Sedimentation sowie des hohen TRU-Inventars mit den bisherigen Brennstoff-/ Anlagenkonzepten nicht zufriedenstellend beantwortet werden, da hierzu experimentelle Daten fehlen.

Die für das hier vorliegende Jülicher Konzept einer thermischen unterkritischen Transmutationsanlage mit flüssigem Blei als Actinidenträger durchgeführten Blanket- und Brennstoffbetrachtungen führten zu Brennstoffen auf Basis des endzulagernden Pu bzw. PuMA, die entweder aufgrund ihrer geringen Transuranbeladung als Lösungen vorliegen, oder aber hin zu höher konzentrierten Suspensionen/ Dispersionen, die durch die Zugabe von Thorium sedimentationssicher ausgelegt werden konnten. Diese höher konzentrierten Brennstoffe eignen sich insbesondere für den Betrieb in einem vergleichsweise einfach zu

realisierendem Batch Modus. Dieser Betriebsmodus erscheint möglich, doch kann er nicht die prinzipiellen Vorteile des thermischen Systems umsetzen. So weist der Batch Modus im Vergleich zu anderen thermischen ADS Anlagen ein extrem hohes Inventar an Pu bzw. TRU auf, ohne ein günstigeres Abbrandverhalten zu erzielen. Mit dem weiteren Nachteil der sehr hohen Thoriumbeladung im Blei kann der Batch Modus als Möglichkeit der sicheren und vorteilhaften Toxizitätsreduzierung verworfen werden.

Die Vorteile eines thermischen Systems mit flüssigem Brennstoff kommen erst durch eine kontinuierliche Beladung mit frischem Brennstoff zum Tragen. Wie gezeigt werden konnte, führt eine Weiterentwicklung der Brennstoffe zu Lösungen mit extrem geringen TRU-Anteilen, die im Betriebsverhalten ein sehr niedriges Anlageninventar an TRU nach sich ziehen. Hier kann davon ausgegangen werden, daß eine Sedimentation bzw. Phasentrennung nicht eintritt. Als wesentliche Bestandteile der optimierten Blanket- und Brennstoffgestaltung sind der gewählte Pitch von 8 cm und die gewählten 0,05%igen Pu- bzw. PuMA(89/11)-Brennstoffe anzusehen. Thorium bringt hingegen in einem kontinuierlichen Betrieb keine Vorteile.

Die Analyse der Spaltprodukte führte auf dem Gebiet der notwendigen Spaltstoffextraktion zu einer Minimierung der zu extrahierenden Elemente (Sm, Xe, Rh, Cs, Nd, Pd und Pm). Ebenso konnte der TRU-Zugabemodus hinsichtlich des Multiplikationsfaktors der Anlage derart verbessert werden, daß ein angestrebter Anlagenbetrieb von drei Jahren mit nahezu konstantem Multiplikationsfaktor in Höhe von $k_{\text{eff}} = 0,97$ bzw. $k_{\text{eff}} = 0,96$ durchgeführt werden kann.

Mit den dargelegten Randbedingungen ergibt sich für eine optimierte thermische unterkritische Transmutationsanlage ein positives Abbrandverhalten, das zu einer Umsatzrate von 355 kg TRU /GW_{tha} für einen Pu basierten und 367 kg TRU/GW_{tha} für den PuMA basierten Brennstoff führt. Dieser Abbrand wird mittels eines sehr geringen Inventars von max. 197 kg (Pu) bzw. 339 kg (PuMA) erreicht, was zu einem Abbrand zu Inventar Verhältnis von 5,42 (Pu) bzw. 3,25 (PuMA) führt. Neben diesen guten Leistungsdaten bietet die Anlage ein positives nukleares Sicherheitsverhalten, was seinen Ausdruck in einem stets negativen Reaktivitätskoeffizienten findet. Die Problemfelder der Löslichkeit und Sedimentation sowie des TRU-Inventars konnten mit der dargelegten Anlage gelöst werden. Bei vergleichbaren offenen Fragestellungen zum Anlagekonzept (z.B. Bleikorrosion, etc.) bietet die optimierte Jülicher ADS Anlage das mit Abstand beste Leistungsbild im Vergleich zu anderen Transmutationskonzepten.

Wird das Betriebsverhalten in ein Gesamtkonzept eingebettet und die Toxizität bilanziert, so zeigt sich, daß ein einmaliger Einsatz des Brennstoffs in der Transmutationsanlage die Toxizität nicht wesentlich senken kann. Nach drei Betriebszyklen wurden fast 100% der primär eingegebenen TRU Nuklide umgesetzt, doch geschah dies zu 8% bzw. 10% in Form eines Cm Aufbaus und findet sich in der Bilanz im Cm-Zwischenlager wieder. Durch eine Zwischenlagerung von 36 a und Reimplementierung des Cm (ab dem elften Betriebszyklus) kann die Toxizität schließlich bis zum 13ten Zyklus nochmals deutlich gesenkt werden. Demzufolge stellt eine mehrmalige Reimplementierung des Curiums die geeignete Möglichkeit dar, die Toxizität der eingesetzten Schwermetalle drastisch zu senken. Diese Toxizitätsminderung

wirkt sich allerdings nur dann auf die Gesamtoxität des Bilanzierungszeitraumes aus, wenn die Minor Actinides in die Transmutationsanlage überführt werden. Geschieht dies nicht, so wie beim Pu Brennstoff, dann stellen die WAA-Verluste/Abfälle eine derart hohe Toxizität, daß diese Abfälle die Gesamtoxität dominieren und das Vergleichsniveau erst in 30000 Jahre erreicht werden kann. Dementsprechend kann in einem langfristigen Betriebszeitraum von ca. 120 a die Toxizität des Cm Zwischenlagers vernichtet werden, doch wirkt sich dies nur für den PuMA Brennstoff in der Gesamtoxität positiv aus. Diese wird letztlich durch die nicht zu transmutierenden Betriebsverluste, die WAA-Verluste/Abfälle und die Partitioning Verluste beschrieben und stellt die endzulagernden Stoffe dar. Während der Pu Brennstoff aufgrund der Minor Actinides der WAA-Verluste/Abfälle innerhalb der ersten 1000 Jahre die Gesamtoxität nicht wesentlich beeinflussen und das Vergleichsniveau des frischen Uranbrennstoffs erst nach 30000 Jahren erreichen kann, stellt sich die Situation bei dem PuMA Brennstoff gänzlich anders dar. Die Gesamtoxität wird innerhalb der ersten 1000 Jahre um den Faktor 400 vermindert und erreicht das Vergleichsniveau nach 10000 Jahren. Verantwortlich für dieses Toxizitätspotential ist primär der Betriebsverlust von 0,1% der TRU des Umsatzes und sekundär der WAA-Verlust (primäres Partitioning). Um das angestrebte Vergleichsniveau von frischem Uran innerhalb von 1000-2000 Jahren zu erreichen, müssen demnach die Betriebsverluste auf 0,01% vermindert werden und die Abtrenngüte der Minor Actinides erhöht werden.

Insgesamt kann festgehalten werden, daß mit der optimierten thermischen unterkritischen Transmutationsanlage mit flüssigem Blei als Brennstoffträger ein Konzept vorliegt, welches bis dato die besten Leistungsdaten unter den verschiedenen Systemvorschlägen zur Transmutation aufweist. Im Falle des PuMA Brennstoffs kann eine Transmutationsanlage 70% der anfallenden radioaktiven Schwermetalle eines 1300 MW_{el} DWR vernichten. Gleichwohl existieren noch offene Fragen, doch stellen sich diese Problemfelder als nicht gravierender heraus als bei anderen Konzepten. Die Vorteile des geringen TRU Inventars, der hohen Umsatzrate und des hohen und konstanten Multiplikationsfaktors fordern geradezu weitere Evaluierungen zu dieser Anlage. Die Zwischenlagerung und mehrmalige Reimplementierung des Cm erweist sich als geeignetes Mittel, um die eingesetzte TRU-Masse letztlich zu vernichten. Eine drastische Reduzierung der Gesamtoxität kann a priori aber nur durch den Einsatz von PuMA Brennstoffen erfolgen, da ansonsten die endzulagernden Minor Actinides der WAA-Verluste/Abfälle die Toxizität bestimmen. Das angestrebte Toxizitätsniveau kann zum jetzigen Zeitpunkt in einem langfristigen Betrieb mit PuMA Brennstoff aufgrund der Betriebsverluste von 0,1% nicht erreicht werden. Daher besteht auf dem Gebiet der Abtrennchemie innerhalb der ADS Anlage weiterer Handlungsbedarf. Ebenso bedarf es einer Verbesserung der Abtrenngüte der Minor Actinides von 99,9% während des Partitionings. Werden beide Verlustraten weiter reduziert, so erscheint eine Umwandlung und Toxizitätsreduzierung radioaktiver Schwermetalle auf das Niveau von frischem angereichertem Uran nach ca. 1000 Jahren mit der entwickelten und vorgestellten optimierten unterkritischen thermischen Jülicher Transmutationsanlage möglich.

Mit diesem Hintergrund fordert das Gesamtkonzept geradezu weitergehende Untersuchungen. Diese sollten zunächst die folgenden Punkte behandeln:

- Erörterung des Löslichkeitsverhaltens und möglicher Extraktionsverfahren für die Spaltprodukte Sm, Xe, Rh, Cs, Nd, Pd, und Pm.
- Analysen zum Wärmeeintrag und zur Löslichkeit von Cm in Blei.
- Ausarbeitung eines effektiven Kühlsystems der Anlage zur weiteren Minimierung des TRU-Inventars.
- Evaluierung der chemischen Trennverfahren, um die Betriebsverluste auf die benötigten 0,01% zu senken.
- Evaluierung der chemischen Trennverfahren, um die Partitioning bzw. WAA-Verluste für Minor Actinides auf die benötigten 0,01% zu senken.
- Erstellung eines Anforderungsprofils für ein Cm-Zwischenlager und Modelle für das Cm-Management.
- Aufbau eines Berechnungssystems für langfristige Betrachtungszeiträume ($t > 120$ a).

Literaturverzeichnis

- /ADT 99/ N.N., „ADTTA '99; 3rd International Conference on Accelerator Driven Transmutation Technologies and Applications“. Proceedings, Prag 1999
- /ALB 93/ D. Albright, F. Berkhout, W. Walker: „World Inventory of Plutonium and Highly Enriched Uranium“. Stockholm International Peace Research Institute, Oxford University Press, Oxford 1993
- /AMP 76/ N.M. Greene, J.L. Lucius, L.M. Petrie, W.E. Ford, J.E. White und R.Q. Wright. „AMPX – A Modular Code System to Generate Coupled Multigroup Neutron Gamma Cross Sections from ENDF/B“. ORNL/TM 3706 (AMPX-1), März 1976.
- /BAE 92/ L.H. Baetsle. „Role and Influence of Partitioning and Transmutation on the Management of Nuclear Waste Streams“. NEA/P&T report No. 3. OECD-NDC Report 1992
- /BAE 93/ L.H. Baetsle, „Partitioning and Transmutation of Actinides and Fission Products“, atw. Vol.4, 1993, S. 226-270
- /BAU et al. 81/ G.S. Bauer, H. Sebening, J.E. Vetter, H. Willax. „SNQ, Realisierungsstudie zur Spallations – Neutronenquelle, Teil 1: Wissenschaftliche Motivation und Beschreibung der Anlage“. FZJ Jülich, Jül-Spez-113, Juni 1981
- /BMW_i 98/ BMWi. „Klimaschutz und Energiepolitik“. 4. Bericht des Arbeitskreises I „Energieversorgung“ der Interministeriellen Arbeitsgruppe „CO₂-Reduktion“. Bundesministerium für Wirtschaft und Technologie. Nr. 445, April 1998
- /BMW_{i1} 99/ BMWi. „Energie Daten 1999“. Bundesministerium für Wirtschaft und Technologie. Bonn, Februar 1999, S. 63
- /BMW_{i2} 99/ BMWi. „Energie Daten 1999“. Bundesministerium für Wirtschaft und Technologie. Bonn, Februar 1999, S. 11
- /BOW 91/ C.D. Bowman et al. „Nuclear Energy Generation and Waste Transmutation using Accelerator Driven intense thermal Neutron Source“. LA-UR-91-2601, 1991
- /BOW 97/ C.D. Bowman; LANL „Basis and Objectives of the Los Alamos Accelerator Driven Transmutation Technology Project“. Status report Accelerator driven systems: Energy generation and transmutation of nuclear waste. IAEA-TECDOC-985, Nov. 1997. S. 137
- /BRO et al. 98/ J.C. Browne, F. Venneri, M.A. Williamson, L. Ning; LANL, „Accelerator-Driven Transmutation of Waste“. ATW white paper 1/2/98, 1998
- /BRY 60/ J.S. Bryner. TID-7502 – Pt. 1 [1960] 230/41, NSA 15 [1961] No.3004.
- /BUN₁ 92/ Bundeszentrale für politische Bildung (Hrsg). „Energie“. Information zur politischen Bildung. Nr. 234, 1. Quartal, 1992, S.1
- /BUN₂ 92/ Bundeszentrale für politische Bildung (Hrsg). „Energie“. Information zur politischen Bildung. Nr. 234, 1. Quartal, 1992, S.7-8
- /CFR 71/ Office of the Federal Register National Archives and Records Service. „Code of Federal Regulations Title 10, Part 20 Standards of Protection against Radiation“. 10 CFR 20, Washington USA, 1971.
- /COS 98/ J. Costa, Nuclear Reactor Directorate. „Future of CAPRA“. 5th International CAPRA Seminar, FZK Karlsruhe Dezember 1998.

- /DEE 83/ W. Delle, K.Koizlik, H. Nickel. „Graphitische Werkstoffe für den Einsatz in Kernreaktoren, Teil 2: Polykristalliner Graphit und Brennelementmatrix“. Karl Thiemig AG, München 1983
- /EHR 95/ Ch.S. Ehrman, Ch.E. Boardman, USA. „System Consideration for Actinide Recycle in Fast Reactors“. International Conference on Evaluation of Emerging Nuclear Fuel Cycle Systems, September 1995, Versailles, France, S. 1934
- /FEI 93/ H. Feinroth, J. Guon, debu majmudar, „An Overview of the AIROX Process and ist Potential for Nuclear Fuel Recycle“. In: Proceedings of the Internat. Conf. And techn. Exposition GLOBAL 93, American Nuclear Society, Vol.2, Page 705-708, Seattle, Washington 1993
- /GLO 93/ N.N., Ed. American Nuclear Society, Proceedings of the International Conference and Technical Exposition, „GLOBAL 93“. ANS Order No. 700185, Seattle, Washington 1993
- /GLO 95/ GLOBAL 95, International Conference and Technology Exhibition, „Basic Considerations and Prerequisites for the Assessment of Future Fuel Cycles with Special Regard To P&T Issues“ by P.W.Phlippen, F.Lypsich, P.Lizanza, 1995, S. 1958
- /GME 92/ „Gmelin Handbook of Inorganic and Organometallic Chemistry Th Supplement Vol. B2“. Springer Verlag 1992
- /GRU 98/ Gruppelaar et. al.: Advanced Technologies for the reduction of Nuclear Waste, Netherlands Energy Research Foundation, Petten 1998, ECN- R-98-008.
- /HAA et al. 90/ G.Haag, et al. „Development of Graphite“. Journal of Nuclear Materials 171, Seite 41-48, 1990
- /HAY 51/ E.E. Hayes, P. Gordon. TID-2501 [1951] 115/26, NSA 12 [1959] No. 17285.
- /HOF 70/ W.Hofmann. „Lead and Lead Alloys“. Duisburg 1970
- /HOL 85/ A. Hollemann, N. Wiberg, „Lehrbuch der anorganischen Chemie“. Walter de Gruyter, Berlin 1985
- /HUG 95/ M. Hugon, European Commisison, Brüssel, „Assessment of the Benefits of Partitioning and Transmutation for the Safety of Nuclear Waste Management“, International Conference on Evaluation of Emerging Nuclear Fuel Cycle Systems, September 1995, Versailles, France, S.361
- /IAE 94/ IAEA; „Coordinated research Programme (CRP) on the Potential of Th-based Fuel Cyccles to Constrain Pu and to Reduce of Long-term waste Toxicities“. 1994
- /ICR 79/ „Limits for the Intake of Radionuclides by Workers“. ICRP-Publication 30 Part 1, Annals of the ICRP 2, (3/4), 1979.
- /ICR 80/ „Limits for the Intake of Radionuclides by Workers“. ICRP-Publication 30 Part 2, Annals of the ICRP 4, (3/4), 1980.
- /ICR 81/ „Limits for the Intake of Radionuclides by Workers“. ICRP-Publication 30 Part 3, Annals of the ICRP 6, (2/3), 1981.
- /ICR 88/ „Limits for the Intake of Radionuclides by Workers“. ICRP-Publication 30 Part 4, An Addendum, Annals of the ICRP 19, (4), 1988.
- /ICR 91/ „Annual Limits on Intake of Radionuclides by Workers Based on the 1990 Recommendations“. ICRP-Publication 61, Annals of the ICRP 22, No 4, 1991.
- /ICR 94/ „Dose Coefficients for Intakes of Radionuclides by Workers – replacement of ICRP Publication 61“. ICRP-Publication 68, Vol. 24, No 4, Dez. 1994.
- /INT 95/ N.N. International Conference on Evaluation of Emerging Nuclear Fuel Cycle Systems, September 1995, Versailles, France

- /JAH 98/ N.N. Jahrbuch der Atomwirtschaft 1998, Verlagsgruppe Handelsblatt GmbH, Düsseldorf 1998
- /JAN et al. 94/ Ch. Jansen, P.-W. Phlippen, P. Lizana-Allende, F. Lypsch. „Proton-Beam Window Design for a Transmutation facility operating with a Liquid Lead Target“. International Conference on Accelerator –Driven Transmutation Technologies and Applications, Las Vegas, July 25-29, 1994
- /JAN₀ 95/ C. Jansen, P.W. Phlippen, “Protonenfenster und Flüssigmetalltarget für eine beschleunigergetriebene Transmutationsanlage“, Jül-3152, Dez. 1995, S. 3
- /JAN₁ 95/ C. Jansen, P.W. Phlippen, “Protonenfenster und Flüssigmetalltarget für eine beschleunigergetriebene Transmutationsanlage“, Jül-3152, Dezember 1995, S. 7
- /JAN₂ 95/ C. Jansen, P.W. Phlippen, “Protonenfenster und Flüssigmetalltarget für eine beschleunigergetriebene Transmutationsanlage“, Jül-3152, Dezember 1995, S. 11
- /KAT et al. 92/ Y.Kato et al. „Accelerator Molten Salt Target Systems for Transmutation of Long Lived Nuclides“. Specialist Meeting on Accelerator Based Transmutation, Paul Scherer Institut, 24-26.3.1992
- /KLO 99/ J.L. Kloostermann, et al., EU Endbericht in Vorbereitung, Projekt Nr. FI4I-CT95-011. “Thorium as a waste Management Option“, 1999
- /KLÜ 99/ J.-u. Klügel, R. Gilli, J. Vigfusson. „Ergebnisse einer ersten sicherheitstechnischen Beurteilung des Konzeptes eines bleigekühlten Energy Amplifiers aus behördlicher Sicht.“ ATW 11/1999, Seite 664-669
- /KUG 92/ K. Kugeler, P.W. Phlippen „Energietechnik“. Springer-Verlag, Berlin 1992
- /KUG 94/ K.Kugeler. „Reaktortechnik I“, Vorlesungsscript, RWTH Aachen, September 1994
- /LAI 93/ J.J. Laidler, J.E. Battles, W.E. Miller, E.C. Gay „Development of IFR Pyroprocessing Technology“ Argonne Nat. Lab. In: Proceedings of the Internat. Conf. And techn. Exposition GLOBAL 93, American Nuclear Society, Vol.2, Page 1061-1065, Seattle, Washington 1993
- /LED et al. 84/ Lederer et al. „Table of Isotopes“. Aus „Assessment Studies on Nuclear Transmutation of By-Product Actinides“. E.Schmidt, E. Zamorani, W. Hage, S. Guardini. S.A. 1984.
- /LEE / J.S. Lee, H. Keil et al. „Research and Development Program KAERI for DUPIC (Direct Use of Spent PWR Fuel in CANDU Reactors)“, American Nuclear Society, Vol.2 S.733-739
- /LIZ 97/ P. Lizana-Allende, “Unterkritische Systeme in der Nukleartechnik – Energieproduktion, Transmutation und Spaltstofferzeugung“, Jül-3387, Mai 1997
- /LIZ et al. 94/ P. Lizana-Allende, Ch. Jansen, P.-W. Phlippen, F. Lypsch. „Design Considerations and Evaluations of an Accelerator-Driven Fluid Fuel Transmuter“. International Conference on Accelerator –Driven Transmutation Technologies and Applications, Las Vegas, July 25-29, 1994
- /LYP 96/ F. Lypsch, “Aspekte zum Einsatz von Systeme zur Transmutation radioaktiver Stoffe -Neutronik, Technik, Sicherheitsverhalten-“, Jül-3181, Januar 1996,
- /LYP₁ 96/ F. Lypsch, “Aspekte zum Einsatz von Systeme zur Transmutation radioaktiver Stoffe -Neutronik, Technik, Sicherheitsverhalten-“, Jül-3181, Januar 1996, S. 28-29

- /LYP₂ 96/ F. Lypsch, "Aspekte zum Einsatz von Systeme zur Transmutation radioaktiver Stoffe -Neutronik, Technik, Sicherheitsverhalten-", Jül-3181, Januar 1996, S. 34
- /LYP₃ 96/ F. Lypsch, "Aspekte zum Einsatz von Systeme zur Transmutation radioaktiver Stoffe -Neutronik, Technik, Sicherheitsverhalten-", Jül-3181, Januar 1996, S. 40
- /LYP₄ 96/ F. Lypsch, "Aspekte zum Einsatz von Systeme zur Transmutation radioaktiver Stoffe -Neutronik, Technik, Sicherheitsverhalten-", Jül-3181, Januar 1996, S. 102-106
- /LYP₅ 96/ F. Lypsch, "Aspekte zum Einsatz von Systeme zur Transmutation radioaktiver Stoffe -Neutronik, Technik, Sicherheitsverhalten-", Jül-3181, Januar 1996, S. 110-130
- /LYP₆ 96/ F. Lypsch, "Aspekte zum Einsatz von Systeme zur Transmutation radioaktiver Stoffe -Neutronik, Technik, Sicherheitsverhalten-", Jül-3181, Januar 1996, S. 120
- /MAL et al. 95/ Th. Maldague, S. Pilate, A. Renard, BELGONUCLEAIRE, Brüssel; A. Harislur, H. Mouney, M. Rome, ELECTRICITE DE FRANCE, Paris & Lyon, „Core Physics Aspects and Possible Loadings for Actinide Recycling in Light Water Reactors“, International Conference on Evaluation of Emerging Nuclear Fuel Cycle Systems, September 1995, Versailles, France, S.1093
- /MAN 84/ F.mannone, H. Dworschak „Chemical Separation of Actinides from High Activity Liquid Wastes“. Report S.A./1.07.03.84.02 Joint Research Centre Ispra Establishment 1984
- /MAS 98/ W. Maschek, B. Merk. „Comparision of servere accident behaviour of accelerator driven subcritical and conventional critical reactors.“ Forschungszentrum Karlsruhe, 1998
- /MAT et al. 94/ S. Matsuura, P.A. Landeyro, K. Abrahams, H. Gruppelaar, D.H. Rief, J.P. Grouiller, C. Artiori, H. Yoshida, S. Itakura „Overview of Physics Aspects of Different Transmutation Concepts“. Report NEA/NSC/DOC 94 11, OECD 1994
- /NEU 96/ I. Neuhaus, "Neutronische Untersuchungen zur Transmutation von Transuranelementen insbesondere von ²⁴³Am und ²⁴⁴Cm.", Interner Bericht KFA-ISR, Januar 1996, S. 2
- /NEU₁ 99/ I. Neuhaus, P. Phlippen: Comparison of Uranium- and Thorium- based Plutonium-Recycling in a Pressurised Water Reactor, Jülich September1999, Jül-3690.
- /NEU₂ 99/ I. Neuhaus. "Plutoniumverbrennung mittels Thorium Einsatz im Druckwasserreaktor" Jülich, 1999
- /NEU₃ 99/ I. Neuhaus. "Plutoniumverbrennung mittels Thorium Einsatz im Druckwasserreaktor". S. 123 ff, Jülich, 1999.
- /NEW 98/ T.D. Newton et al. , AEA, „Re-evaluation of the CAPRA Reference 4/'94m Core using ERALIB1“. “. 5th International CAPRA Seminar, FZK Karlsruhe Dezember 1998.
- /ORN 93/ Oak Ridge National Laboratory. „ Risc Computer Code Cellaction: SCALE 4.2 Modular Code System for Performing Standardised Computer Analyses for Licensing Evaluation, Nov. 1993.
- /PFE 95/ G. Pfennig, H. Klewe-Nebenius, W. Seelmann-Eggebert, „Karlsruher Nuklidkarte“ Forschungszentrum Karlsruhe 1995

- /PHL 93/ SCALE 4 Standard Composition Library modifiziert von P.W. Phlippen KFA/ISR Juni 1993. 417 standard Compositions; 336 Nuclides; 16 Elements with variable Isotopic distributions. 1993
- /PHL₁ 95/ P.W. Phlippen, F. Lypsch, P. Lizana, H.J. Rütten. „Gefährdungspotential radioaktiver Abfälle“. Atw, Vol. 40, Juni 1995
- /PHL₂ 95/ P.W. Phlippen. „Reduction Requirements for Actinides with special Regard to the Isolation Time at Final Disposal“. Proceedings of a Technical Committee Meeting on Advanced Fuels with reduced Actinide Generation, Vienna, November 1995 IAEA TECDOC-916, page3
- /PIO 96/ M. Piontek. „Entwicklung von Kernkraftwerken in den europäischen Staaten und der ehemaligen UdSSR einschließlich ihrer Nachfolgestaaten“. Ruhr-Uni-Bochum 1996
- /POY et al. 76/ A.M. Poyarkov, V.A. Lebedev, I.F. Nichkov, S.P. Raspopin. Izv. Akad. Nauk SSSR Met. 1976 No. 6, Seite 6 ff 64/6, Russ. Metal. 1976 No. 6, ff 51/2.
- /RIM et al. 98/ G. Rimpault et al. „The CIRANO Experimental Programme for the Characterisation of Highly Enriched Plutonium Oxide Fuel in Fast Reactors“. 5th International CAPRA Seminar, Karlsruhe 1998
- /RUB 95/ C. Rubbia et al.: A Realistic Plutonium Elimination Scheme with Fast Energy Amplifiers and Thorium-Plutonium Fuel. Cern/AT/95-53(ET), December 1995.
- /RUB et al. 93/ C. Rubbia, et al. „An Energy Amplifier For Cleaner and Inexhaustible Nuclear Energy Production Driven by a particle Beam Accelerator“. CERN/AT/93-47 (ET), 1993
- /RUB et al. 94/ C. Rubbia, et al. „Status Report on the Energy Amplifier“. CERN, 1994
- /RUB et al. 97/ C. Rubbia, et al. „Fast Neutron Incineration in the Energy Amplifier as alternative to Geologic Storage: The case of Spain“. CERN/AT/97-01 (EET), 1997
- /RUB₂ et al. 95/ C. Rubbia, et al. „Conceptual Design of a Fast Neutron Operated High Power Energy Amplifier“. CERN/AT/95-44 (ET), 1995
- /RUB₃ et al. 95/ C. Rubbia, et al. „A realistic Plutonium Elimination Scheme with fast Energy Amplifier and Thorium-Plutonium Fuel“. CERN/AT/95-53 (ET), 1995
- /RUB₄ et al. 95/ C. Rubbia, et al. „A realistic Plutonium Elimination Scheme with fast Energy Amplifier and Thorium-Plutonium Fuel“. CERN/AT/95-53 (ET), S. 4-5, 1995.
- /RÜT 98/ H.J. Rütten: Intermediate Report on the IAEA CRP: Potential of thorium based fuel cycles to constrain Pu and to reduce long term waste toxicity, Jülich, December 1998.
- /SAL 98/ M.Salvatores, CEA - Nuclear Reactor Directorate. „CAPRA : Lessons learned and some thoughts on future research directions“. „. 5th International CAPRA Seminar, FZK Karlsruhe Dezember 1998.
- /SAL et al. 93/ M.Salvatores, C.Prunier, Y.Guerin, A.Zaetta, I.Slessarev, „The SPIN Program at CEA, Transmutation Aspects“, Centre d’Etudes de CADARACHE, GLOBAL 93, S. 548
- /SCH 98/ St.O. Schriber; LANSCE, „MIT ATW Technical Review“. 15-16 Jan. 1998.
- /SHV₁ et al. 97/ O.V. Shvedov, et al. „Weapon Plutonium in Accelerator Driven Power System“, Status report Accelerator driven systems: Energy generation and transmutation of nuclear waste. IAEA-TECDOC-985, Nov. 1997. S. 332.
- /SHV₂ et al. 97/ O.V. Shvedov, et al. „Weapon Plutonium in Accelerator Driven Power System“, Status report Accelerator driven systems: Energy generation and transmutation of nuclear waste. IAEA-TECDOC-985, Nov. 1997. S. 348

- /SMI 73/ F.J. Smith. J. Less-Common Met. 32 [1973] 297/300.
- /SMI 99/ Ch. Smith. „Contributions to a Comparison of P&T and direct Waste Storage“, Jülich, 1999
- /STR 89/ „Verordnung über den Schutz vor Schäden durch ionisierende Strahlen, Strahlenschutzverordnung – StrlSchV“. BGBl. I S.1321, 30 Juni 1989.
- /TAK 97/ T. Takizuka, „JAERI Accelerator Driven System Project“, Status report Accelerator driven systems: Energy generation and transmutation of nuclear waste. IAEA-TECDOC-985, Nov. 1997. S. 102
- /ULL 87/ „Ullmann’s Encyclopedia of Industrial Chemistry“. Schlagwort: Solvents, Vol. A24., VCH-Verlag, Weinheim (1987)
- /VDI 99/ VDI-GET, „Jahrbuch 99“, VDI Gesellschaft Energietechnik, Düsseldorf 1999, S. 314
- /VEN₁ 97/ F. Venneri, M.A. Williamson, L. Ning; LANL „The Los Alamos Accelerator Driven Transmutation of Nuclear Waste (ATW) Concept Development of the ATW Target/Blanket System“. Status report Accelerator driven systems: Energy generation and transmutation of nuclear waste. IAEA-TECDOC-985, Nov. 1997. S. 154
- /VEN₂ 97/ F. Venneri, M.A. Williamson, L. Ning; LANL „The Los Alamos Accelerator Driven Transmutation of Nuclear Waste (ATW) Concept Development of the ATW Target/Blanket System“. Status report Accelerator driven systems: Energy generation and transmutation of nuclear waste. IAEA-TECDOC-985, Nov. 1997. S. 162
- /VEN₃ 97/ F. Venneri, M.A. Williamson, L. Ning; LANL „The Los Alamos Accelerator Driven Transmutation of Nuclear Waste (ATW) Concept Development of the ATW Target/Blanket System“. Status report Accelerator driven systems: Energy generation and transmutation of nuclear waste. IAEA-TECDOC-985, Nov. 1997. S. 167
- /VOL₁ 94/ M. Volkmer. „Kernenergie Basiswissen“. Informationskreis Kernenergie, 1994
- /VOL₂ 94/ M. Volkmer, „Kernenergie Basiswissen“, Informationskreis Kernenergie, S.77
- /WAD 88/ D.C.Wade, Y.I.Chang, „The Integral Fast Reactor Concept: Physics of Operation and Safety“, Argonne National Laboratory, Nucl.Sci.Eng.100, 1988, S. 507-524
- /WEA 79/ R. C. Weast. „CRC Handbook of Chemistry and Physics“. CRC Press, Inc., Boca Raton, Florida 1979
- /WOO 69/ D.H. Wood, E.M. Cramer, P.L. Wallace, W.J. Ramsey. „Phase Relations in the Plutonium-Lead System“. J. Nuclear Materials; 32, 1969
- /ZIE 85/ A.Ziegler. „Lehrbuch der Reaktortechnik Band 2 - Reaktortechnik“. Springer Verlag Berlin, Heidelberg, New York, Tokyo. 1985, S. 131

Anhang A 1: Aufbau- und Zerfallswege der Transurane

Im folgenden werden in der Abb. A 1.1 in einer kurzen Darstellung die wesentlichen Aufbau- und Zerfallswege der Transurane skizziert. Ebenfalls sind die Spalt- und Absorptionswirkungsquerschnitte der Nuklide im thermischen Neutronenfluß bei einer Energie von 0,0253 eV aufgezeigt /LED et al. 84/.

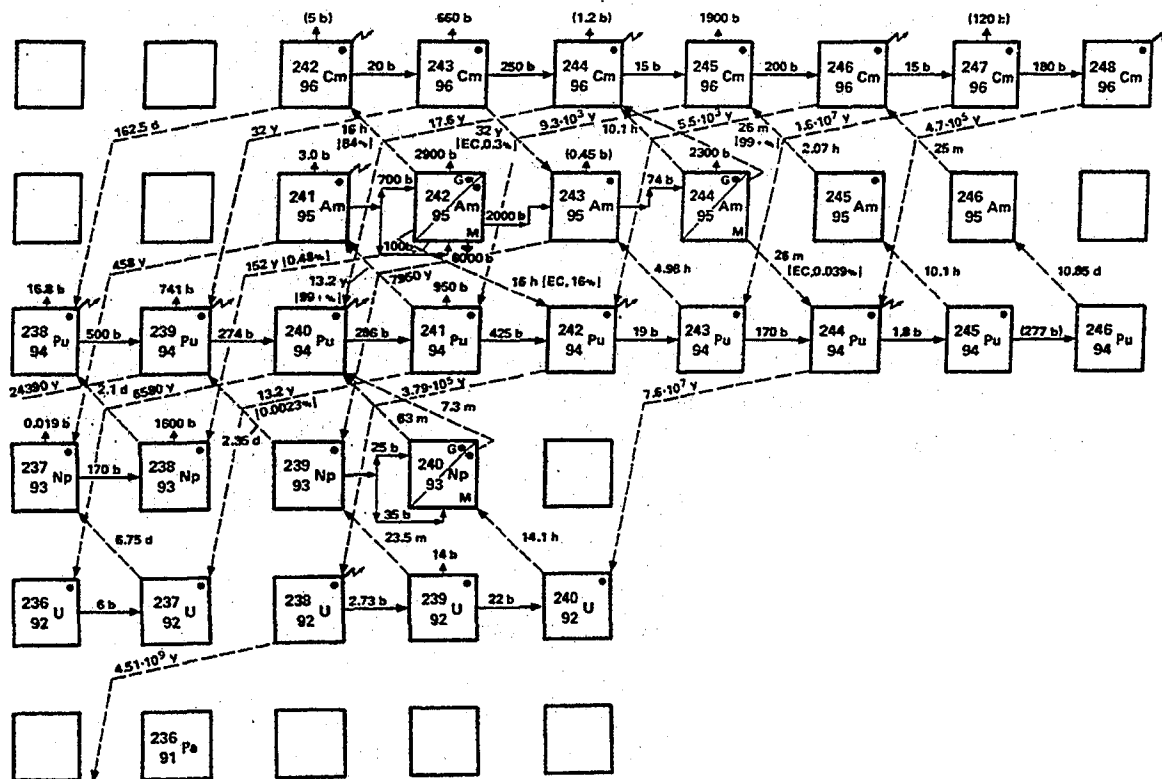


Abb. A 1.1: Aufbau- und Zerfallswege der Transurane /LED et al. 84/.

Anhang B 1: Entwicklung der Grenzwerte für radiotoxische Gefährdungspotentiale

Basis zur Berechnung des Gefährdungspotentials radiotoxischer Stoffe ist im allgemeinen die Aufnahme einzelner Isotope über den Ingestionspfad (Nahrungsaufnahme) oder den Inhalationspfad (Atmung). Die Konzentrationen werden in Form von maximal jährlich zu inkorporierenden Aktivitäten [Bq] als sogenannte ALI-Werte (Annual Limit of Intake) angegeben. Die Erstellung solcher Werte beruht zumeist auf einer Auswertung der Krebssterblichkeitsdaten der Überlebenden von Hiroshima und Nagasaki sowie der Anwendung eines Dosimetriesystems. Die momentan aktuellen Daten für Erwachsene finden sich in der ICRP 68 aus dem Jahre 1994. Die nachfolgende ICRP 72 aus dem Jahre 1995 spezifiziert die in der ICRP 68 gemachten Aussagen hinsichtlich der Personengruppen /ICR 94/.

Vielfach wurden und werden noch ältere ICRP Empfehlungen bzw. Grenzwerte aus dem Code of Federal Regulations (z.B. 10 CFR 20) verwendet. **Tab. B 1.1** gibt daher für die bedeutendsten Spaltprodukte und Actiniden einen Überblick über die historische Entwicklung der ALI-Werte für den Ingestionspfad, wobei die schärfsten Grenzwerte (unbekannte chem. Verbindung) zu Grunde gelegt werden. Hinsichtlich einer besseren Vergleichbarkeit sind die ALI-Werte mit der jeweils zugrundeliegenden Referenzjahresdosis auf Bq/Sv umgerechnet worden. Für die Umrechnung der CFR-Konzentrationen wird eine Wasseraufnahme von 1 m³/a unterstellt. Die Berechnung des Gefährdungspotentials in [Sv/g] erfolgte anhand der ICRP 68 Dosisfaktoren.

Tab. B 1.1: Vergleichende Zusammenstellung der durch Ingestion aufzunehmenden Aktivität /CFR 71/, /ICR 79/, /ICR 80/, /ICR 81/, ICR 88/, ICR 91/, /ICR 94/, /STR 89/.

Verordnung		10 CFR 20	ICRP-30	ICRP-30	ICRP-61	ICRP-68	StrlSchV	Gefährdungs- potential
Jahr		1971	1980	Part 4 1988	1991	1994	1989	ICRP 68
Nuklid	d _{1/2} [a]	/(Bq/Sv)	/(Bq/Sv)	/(Bq/Sv)	/(Bq/Sv)	/(Bq/Sv)	/(Bq/Sv)	[Sv/g]
Sr-90	28,5	2,20E+06	2,00E+07	-	3,00E+07	3,57E+07	6,00E+06	1,445E+05
Cs-135	2,00E+06	7,40E+08	6,00E+08	-	5,00E+08	5,00E+08	-	9,805E-02
Cs-137	30,17	1,50E+08	8,00E+07	-	5,00E+07	7,69E+07	8,00E+07	4,163E+04
Tc-99	2,10E+05	1,50E+09	2,00E+09	-	1,50E+09	1,56E+09	8,00E+08	4,075E-01
J-129	1,57E+07	4,40E+05	4,00E+06	-	1,00E+07	9,09E+06	2,00E+06	7,189E-01
Pb-210	22,30	7,40E+05	4,00E+05	-	1,00E+06	1,45E+06	2,00E+05	1,950E+06
Po-210	0,38	5,20E+06	2,00E+06	-	4,50E+06	8,33E+05	6,00E+05	1,996E+08
Ra-226	1,60E+03	2,20E+05	1,40E+06	-	4,50E+06	3,57E+06	8,00E+05	1,025E+04
Pa-231	3,28E+04	6,70E+06	1,40E+05	-	5,00E+05	1,41E+06	8,00E+04	1,240E+03
U-233	1,59E+05	2,20E+08	8,00E+06	-	3,50E+07	1,96E+07	6,00E+06	1,822E+01
U-234	2,45E+05	2,20E+08	8,00E+06	-	3,50E+07	2,04E+07	6,00E+06	1,131E+01
U-235	7,04E+08	2,20E+08	1,00E+07	-	3,50E+07	2,13E+07	6,00E+06	3,760E-03
U-236	2,34E+08	2,20E+08	1,00E+07	-	3,50E+07	2,13E+07	-	1,126E-02
U-238	4,47E+09	3,00E+08	1,00E+07	-	4,00E+07	2,22E+07	6,00E+06	5,599E-04
Np-237	2,14E+06	2,20E+07	6,00E+04	4,00E+05	1,50E+06	9,09E+06	2,00E+05	2,871E+00
Pu-238	87,74	3,70E+07	6,00E+06	6,00E+05	2,00E+06	4,35E+06	4,00E+05	1,458E+05
Pu-239	2,41E+04	3,70E+07	4,00E+06	6,00E+05	2,00E+06	4,00E+06	4,00E+05	5,745E+02
Pu-240	6,55E+03	3,70E+07	4,00E+06	6,00E+05	2,00E+06	4,00E+06	4,00E+05	2,105E+03
Pu-241	14,40	1,50E+09	2,00E+08	2,00E+07	1,00E+08	2,08E+08	1,80E+07	1,831E+04
Pu-242	3,76E+05	3,70E+07	6,00E+06	6,00E+05	2,00E+06	4,17E+06	-	3,491E+01
Am-241	4,33E+02	3,00E+07	1,00E+06	6,00E+05	1,50E+06	5,00E+06	4,00E+05	2,539E+04
Am-243	7,37E+03	3,00E+07	1,00E+06	6,00E+05	1,50E+06	5,00E+06	-	1,478E+03
Cm-243	28,50	3,70E+07	1,40E+06	8,00E+05	2,50E+06	6,67E+06	4,00E+05	2,867E+05
Cm-244	18,11	5,20E+07	1,80E+06	1,00E+06	3,00E+06	8,33E+06	6,00E+05	3,594E+05

Anhang C: Daten zu ADS Transmutationsanlagen

Im folgenden werden der Gesamtmassenstrom des integralen FEA Konzeptes und die Systemdaten des ITEP Konzeptes dargelegt.

C 1 Gesamtmassenstrom des integralen FEA Konzeptes

Nach den Vorstellungen der Cerner Arbeitsgruppe soll die einzelne FEA Anlage zu einem Block von drei FEA Modulen in einen Brennstoffkreis mit einem DWR integriert werden. Für diesen integralen Gesamtkomplex zeigt die **Abb. C1.1** die Massenströme für eine Betriebszeit von einem Jahr. In den FEA Modulen soll pro Jahr 358 kg DWR Plutonium der zugeordneten Reaktoranlage, 902 kg externes LWR Plutonium und 1251 kg Thorium umgesetzt werden. Als Restprodukte aus den FEA Anlagen wird 1666 kg Spaltprodukte und 794,5 kg erbrütetes Uran (meist U-233) entladen. Der Hauptanteil an Actiniden (2404 kg) sowie an Thorium (8771 kg) verbleibt in den drei Anlagen und bildet die Basis für den nachfolgenden Zyklus. Das erbrütete Uran wird als Spaltstoff mit frischen Brennstoffuran, sowie verbleibendem Uran-238 vermischt und dem DWR Brennstoffkreislauf zugeführt. Nach der thermischen Nutzung stehen 358 kg Plutonium zu Verfügung, welches den FEA Modulen zugeführt wird, sowie 1291 kg Spaltprodukte. Die Spaltprodukte werden zusammen mit den Spaltprodukten der FEA Anlagen einer langzeit Lagerung zugeführt. Plutonium oder andere Actinide treten aus diesem Kreislauf nicht heraus. Die Gesamtleistung des Komplexes beträgt 8,6 GW_{th}.

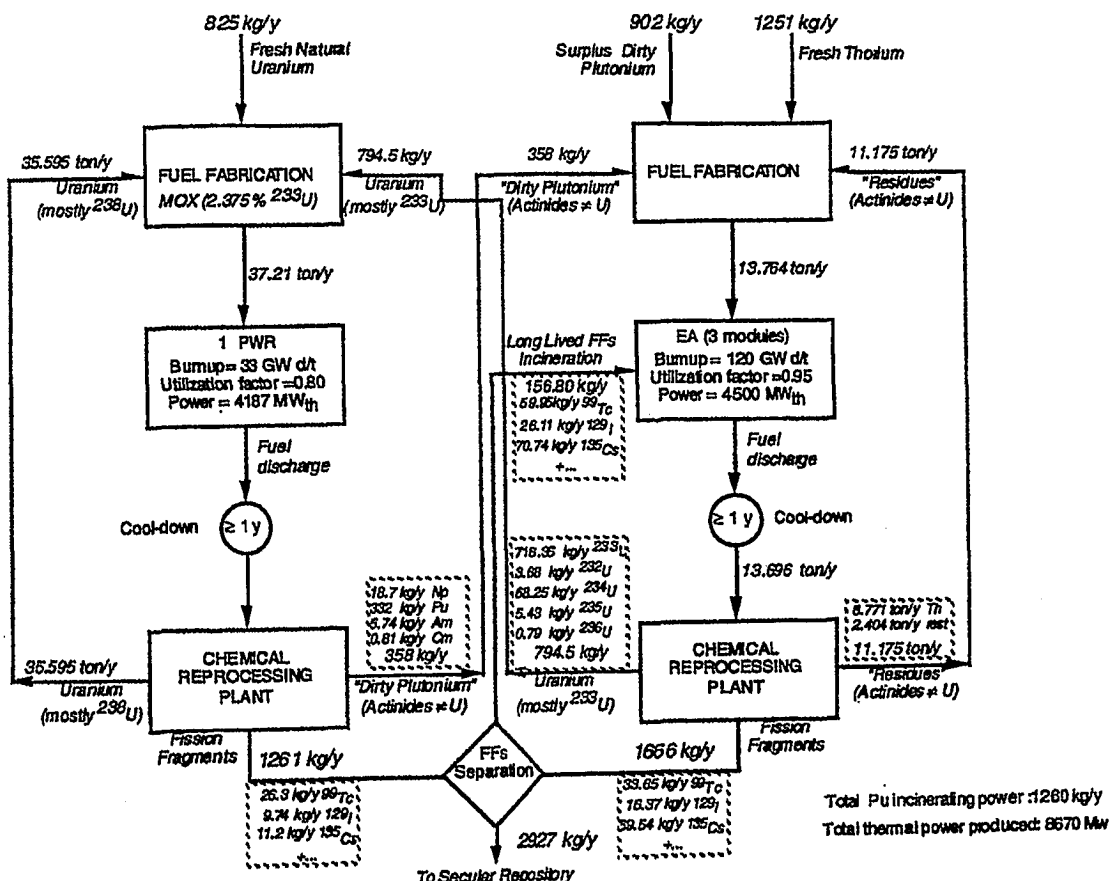


Abb. C 1.1: Gesamtmassenstrom für das integrale FEA Konzept /RUB₄ et al. 95/.

C 2 Kenndaten des ITEP Systems

In der nachfolgenden **Tab. C 2.1** werden die Hauptparameter des ITEP Systems aufgelistet. Dabei findet eine prinzipielle Unterscheidung zwischen thermischer und schneller Zone statt. Die Summe beider Bereiche bildet dementsprechend die Gesamtcharakteristika der Anlage.

Tab. C 2.1: Kenndaten des ITEP Systems /SHV₁ et al. 97/.

<u>Kenngroße</u>	<u>Einheit []</u>	<u>schneller</u>	<u>thermischer Bereich</u>
Gross thermal power	MW	300	2000
Main vessel			
height	m	27	9
outer diameter	m	2	9
Coolant target spallation material		molten	heavy
moderator		lead and Pb-Bi	water
Coolant mass	t	400	
Pumping method		natural convection	circulation pumps
Coolant flow in core	kg/s	7560	13890
Coolant pressure	MPa		110
Height of convection column	m	25	
Spallation target power	MW	10	
Coolant flow in target	kg/s	502	
Full coolant flow in exchanger - steam generator	kg/s	8062	
Water flow in steam generator	kg/s	1376	
Height of steam generator	m	8	
Fuel core: number of fuel assemblies		18	684
number of fuel pins		331	36
number of control rods			24
Max. coolant speed in fuel assembly	m/s	1,48	7,4
Height of active core	m	1,5	6,0
Radial power flattening factor		1,4	2,2
Axial power flattening factor		1,6	
Maximum fuel pin power	kW	112,9	178
Maximum fuel power density	kW/m ³	1,42 · 10 ⁶	4,6 · 10 ⁵
Maximum fuel temperature	°C	1609	494
Clad temperature	°C	760	336
Maximum outlet coolant temperature	°C	628	310
Volume water in coolant loop	m ³		45,9
Surface of stainless steel	m ²		3000
Volume of moderator in tank	m ³		80
Total volume of moderator	m ³		160
Temperature of moderator	k		340
Pressure in moderator loop	MPa		0,1
Surface of stainless steel	m ²		350

Anhang D Grundlagen zur Brennstoff- und Blanketberechnung

Anhang D beschäftigt sich mit der Methodik zur Blanket- und Brennstoffberechnung. In einem ersten Teil werden die benutzten Programmodule aus dem SCALE 4.2 Programm angesprochen und skizziert. Ein Einblick in den Bereich der Numerik kann bei /NEU₃ 99/ sowie im SCALE 4.2 Handbuch /ORN 93/ gewonnen werden. Im zweiten Teil werden die Ergebnisse der k_{∞} Wert Berechnung für unterschiedliche Brennstoffinnenrohrdurchmesser dargestellt.

D 3 schildert das vereinfachte Rechenmodell für die Sedimentationsbetrachtung. Eine Auswahl von Brennstoffe, die auch im Falle der Sedimentation unterkritisch bleiben, schließen das Kapitel ab.

D 1 Programm- / Steuermodule

Für die vorliegenden Berechnungen wurde eine Vielzahl an Programmodulen verwendet, die alle ihren Ursprung im SCALE 4.2 Programmpaket haben. Bei diesem Programmpaket handelt es sich um eines der umfangreichsten und weitverbreitetsten Programme zur Berechnung von multiplizierenden Anordnungen und Strahlenabschirmungen /ORN 93/. Hierbei gilt es zwischen Rechenalgorithmen und Steuermodulen zu unterscheiden. Als Rechenprogramme wurden BONAMI-S, NITAWL-II/S, XSDRNPM-S, COUPLE-S, ORIGIN-S, KENO-V und MORSE eingesetzt, als Steuermodule CSAS1X, SAS2H und das selbst konzipierte BURNUP. BURNUP basiert im wesentlichen auf dem SAS2H Modul und wird im Anhang F 1 erläutert.

Programme

BONAMI-S berechnet die nicht auflösbaren Resonanzen im epithermischen und schnellen Energiebereich. Hierbei kommt die Bondarenko Methode zur Anwendung. Es wird aus einem AMPX-Master Datensatz /AMP 76/, der die Bondarenko Faktoren enthält, unter Berücksichtigung der Selbstabschirmung der Resonanzen, ein neuer problembezogener Master-Datensatz erstellt. Dieser Master-Datensatz enthält nunmehr die notwendigen effektiven Wirkungsquerschnitte.

NITAWL-II/S berücksichtigt die auflösbaren Resonanzen im oberen thermischen sowie im epithermischen Energiebereich. Die Auflösung der Resonanzen erfolgt unter Berücksichtigung der geometrieabhängigen Selbstabschirmung mittels des Nordheim Integralverfahrens. Hierzu muß die energieabhängige Wechselwirkungshäufigkeit berechnet werden. Als Ergebnis erstellt NITAWL-II/S einen Arbeitsdatensatz der die zellgewichteten Wirkungsquerschnitte für die einzelnen Energiegruppen enthält. Dieser Datensatz dient als Eingabe für die nachfolgenden Transportprogramme.

XSDRNPM-S ist ein eindimensionales deterministisches Transportprogramm und löst die Boltzmann-Gleichung für Neutronen in Kartesischen-, Zylinder- oder Kugelkoordinaten. Somit kann das Programm zur Eigenwertbestimmung (k_{∞}) und Berechnung der zellgewichteten,

vom effektiven Neutronenfluß in den einzelnen Zonen abhängigen Wirkungsquerschnitte herangezogen werden. Die so kondensierten Eingruppenquerschnitte dienen als Eingabe für weitere Programme. Randbedingung dieser Vorgehensweise ist, daß die Neutronenleckage in den beiden nicht berücksichtigten Dimensionen vernachlässigt wird, wohingegen der Neutronenfluß an der äußeren Grenze der Einheitszelle als ideal reflektiert angenommen wird.

Das Programmmodul **COUPLE** dient zur Aufbereitung der von XSDRNPM-II/S berechneten Eingruppenquerschnitte. Hierzu werden die problemspezifischen Wirkungsquerschnitte und Neutronenflußwichtungsfaktoren für drei Energiegruppen (thermisch, Resonanzbereich und schnell) für jedes Nuklid zu binären, unformatierten Datensätzen zusammengefaßt, die unmittelbar von ORIGIN-S gelesen werden können.

ORIGIN-S berechnet die zeitabhängige Isotopenverteilung im System. Dabei werden Neutroneneinfang, Spaltung, radioaktiver Zerfall und äußere Zu- bzw. Abgaben von Nukliden berücksichtigt. Als Eingabedatensatz findet der von COUPLE aufbereitete binäre Datensatz Verwendung, der die problembezogenen Wirkungsquerschnitte beinhaltet. Mit diesem Programmmodul kann somit, unter weiterer Verwendung der vier Standard Datenbanken für LWR, LMFBR, MSBR und HTGR, die spezifische Nuklidkonzentration zu jedem Zeitpunkt bestimmt werden.

Zwei weitere Programme dienen der Berechnung des effektiven Multiplikationsfaktors k_{eff} in einer dreidimensionalen Anordnung unter Berücksichtigung von Leckagen. Dies sind die Programme KENO-V und MORSE.

KENO-V ist in der Lage den effektiven Multiplikationsfaktor (k_{eff}) für ein dreidimensionales System nach der Monte Carlo Methode zu berechnen. Ausgangspunkt für diese Berechnungsmethode ist die Boltzmann Transportgleichung für den Neutronenfluß. Dabei geht das Programm von vordefinierten Geometrien aus, die miteinander geschnitten und verbunden werden können. Die Leckagen im Randbereich werden ebenfalls berücksichtigt.

MORSE ist ebenfalls in der Lage den effektiven Multiplikationsfaktor zu berechnen, doch fußt in diesem Fall die Monte Carlo Methode auf einer statistischen Lösung der Transportgleichung. Im Unterschied zum KENO-V Programm können auch komplexere Geometrien erfaßt werden. Ein weiterer wesentlicher Unterschied besteht in der Möglichkeit, eine externe Neutronenquelle ins System einzubringen. Dementsprechend ist die Anwendung insbesondere hinsichtlich der Target Blanketproblematik in subkritischen Anlagen von besonderem Interesse.

Steuermodule

Innerhalb des SCALE Programmpaketes existieren verschiedene Steuermodule, die die einzelnen Programme zielgerichtet aufrufen und dementsprechend für eine Bereitstellung bzw. Übergabe der benötigten Datensätze unter den einzelnen Programmen sorgen. So wird der Eingabeaufwand für jede Rechnung vereinfacht, da nur der primäre Eingangsdatensatz bereitgestellt werden muß. Häufig benutzte Steuermodule sind das CSAS1X Modul und das SAS2H Modul.

CSAS1X steuert die drei Programme BONAMI-S, NITAWL-II/S sowie XSDRNPM-S und dient zum Berechnen des k_{∞} Wertes einer Einheitszelle, wobei die zugehörigen zellgewichteten Wirkungsquerschnitte ebenfalls berechnet werden. **Abb. D 1.1** verdeutlicht die Aufgabe des Steuermoduls.

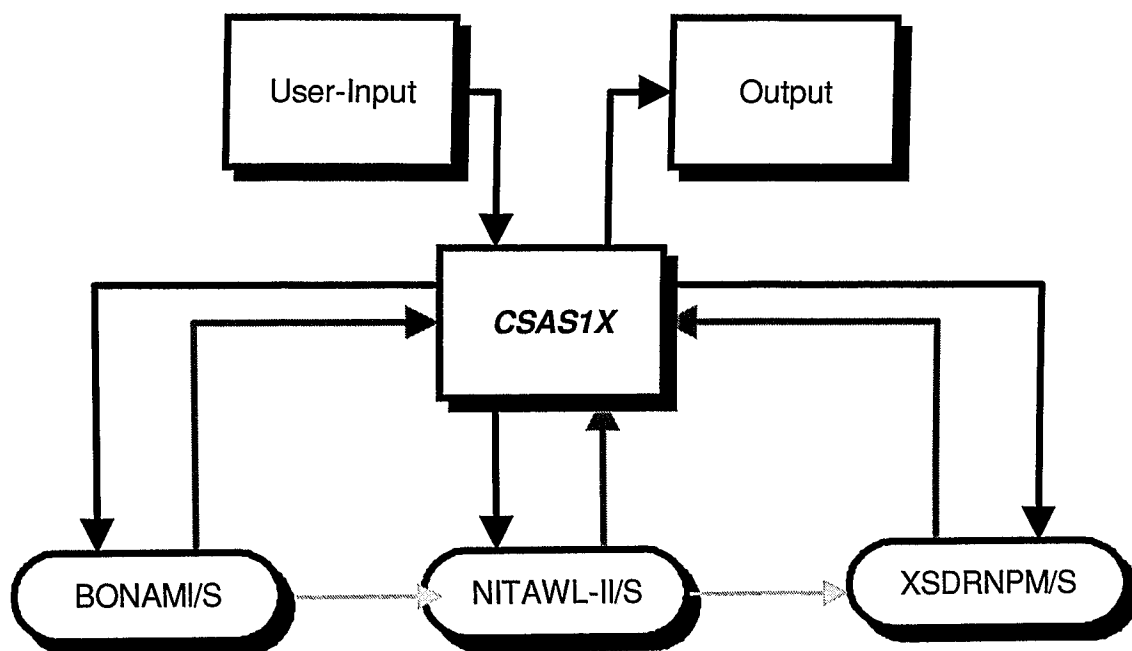


Abb. D 1.1: Programmflussschema des Steuermoduls CSAS1X.

SAS2H dient zur Abbrandberechnung und ermittelt die zeitabhängigen Schwermetallnuklidvektoren. Im einzelnen ruft das Steuermodul die fünf Programme BONAMI-S, NITAWL-II/S, XSDRNPM-S, COUPLE-S und ORIGEN-S, wie in **Abb. D 2.2** illustriert, auf. Zu Beginn des Programms wird analog zu dem CSAS1X Lauf das Neutronenspektrum und der k Wert der Einheitszelle berechnet. Darauf aufbauend erfolgt nach der Datenaufbereitung durch COUPLE die eigentliche Abbrandberechnung durch das ORIGEN-S Programm. Die sich anschließende Rekursion wird je nach gewünschter Vorgabe unterschiedlich oft durchlaufen. Da nach jedem Abbrandschritt ein neuer Nuklidvektor vorliegt, werden für jede neue Nuklidkonzentration der jeweilige Neutronenfluß und auch die neuen gewichteten Wirkungsquerschnitte berechnet und als neuer Datensatz für den nächsten Durchlauf verwendet. Die Angaben für die Abbrandschritte und Abbranddauer finden sich in der Eingabemaske des Primärinputs wieder.

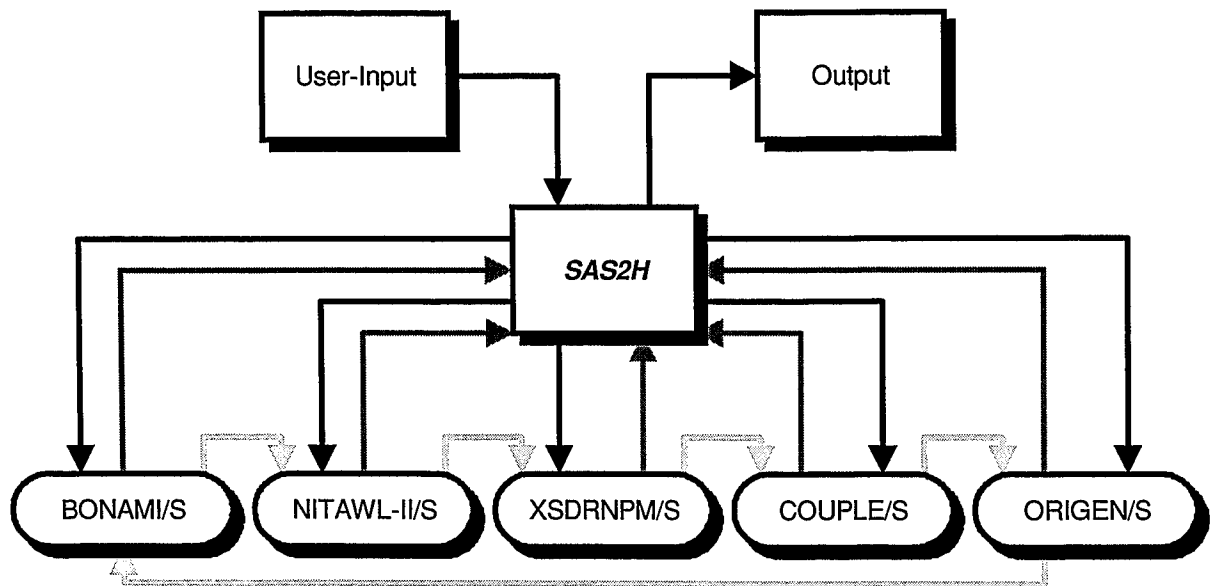


Abb. D 1.2: Programmflußschema des Steuermoduls SAS2H.

D 2 Multiplikationsfaktoren für das Jülicher ADS System

Im Abschnitt zwei des Anhangs D wird auf den Multiplikationsfaktor in einem unendlich ausgedehntem System am Beispiel der Jülicher ADS Anlage eingegangen. Bezug nehmend auf Kap. 4.2 zeigen die Abbildungen **Abb. D 2.1 – D 2.4** den Zusammenhang zwischen einem steigenden Brennstoffinnenrohrdurchmesser d , einem sich änderndem Pitch t und einer variierenden Spaltstoffkonzentration a in Bezug auf den Eigenwert des Systems. Wie deutlich zu erkennen ist, verringert sich mit steigendem Rohrdurchmesser der Bereich der Subkritikalität. Bei einem Durchmesser von $d = 7$ cm liegt nur noch für den Bereich der geringsten Konzentration und dem niedrigsten Pitch ein extrem kleiner Bereich der Subkritikalität vor (**Abb. D 2.1**). Ab einem Durchmesser von 9 cm fällt auch dieser Bereich weg (**Abb. D 2.2**). Wird der Innenrohrdurchmesser auf $d = 10$ cm weiter erhöht (**Abb. D 2.3**), so vergrößert sich der Bereich der sehr überkritischen Werte zwischen $1,5 < k_{\infty} < 2$ nochmals deutlich. Dieser Zustand hält auch bei einem extrem großen Durchmesser wie $d = 12$ cm an (**Abb. D 2.4**). Als Konsequenz der Eigenwert Verläufe bieten sich Brennstabrohre mit geringem Innendurchmesser für die Nutzung in einer unterkritischen Anlage an. Gleichzeitig muß aber auch dem Wärmeabfluß und Strömungsverlauf Rechnung getragen werden, da das flüssige Blei Actiniden Gemisch auch gleichzeitig Kühlmedium sein soll. Dementsprechend ist ein Minstdurchmesser ebenso zu berücksichtigen. Die Wahl fällt daher auf ein Durchmesser von $d = 3$ cm.

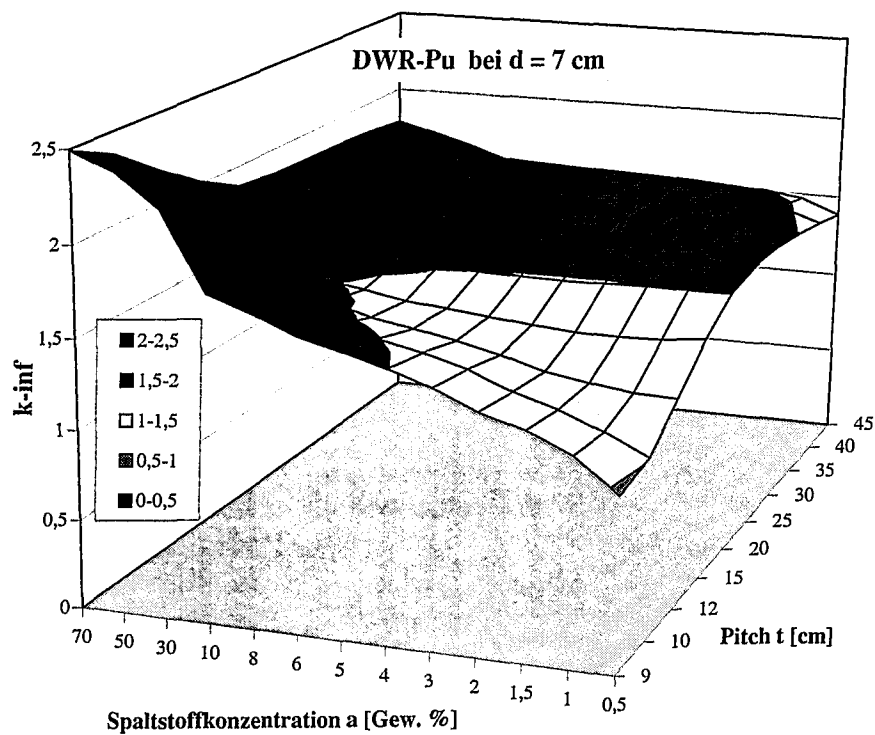


Abb. D 2.1: k_{∞} im Blanket in Abhängigkeit der Pu Spaltstoffkonzentration und dem Pitch für einen Brennstoffinnenrohrdurchmesser von d = 7 cm.

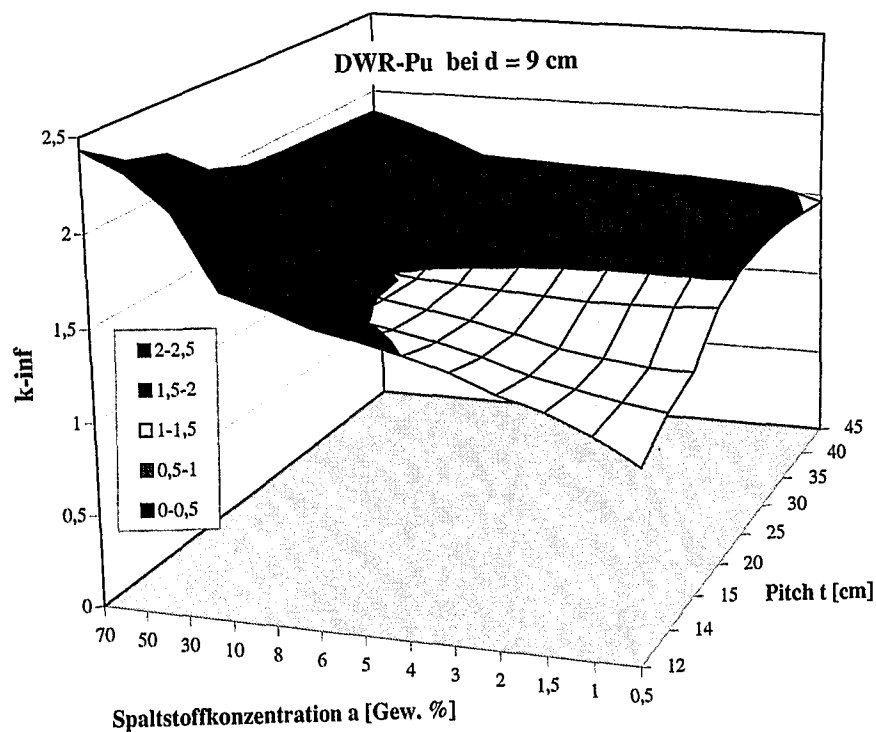


Abb. D 2.2: k_{∞} im Blanket in Abhängigkeit der Pu Spaltstoffkonzentration und dem Pitch für einen Brennstoffinnenrohrdurchmesser von d = 9 cm.

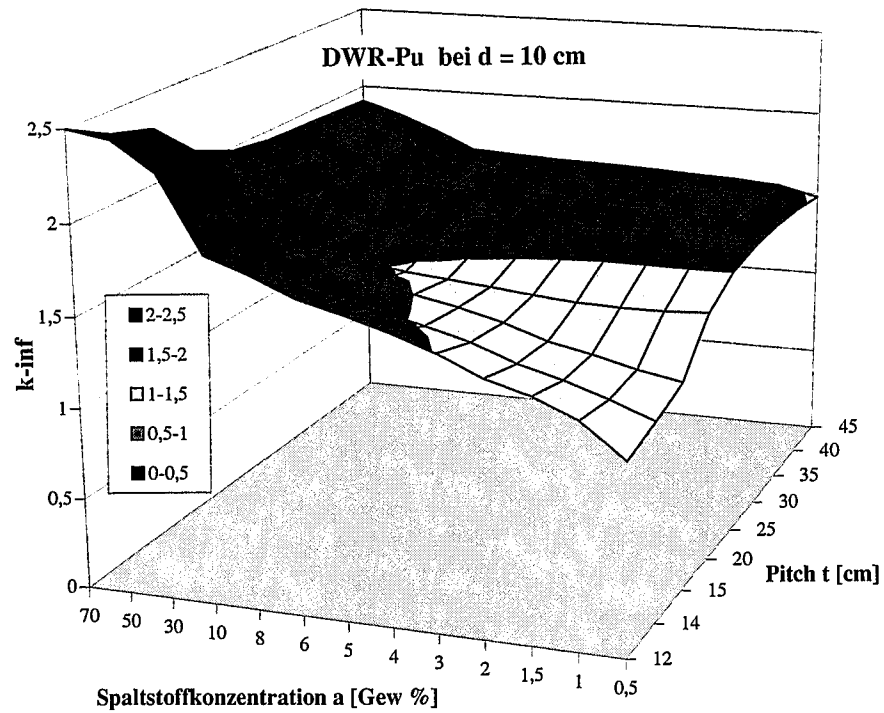


Abb. D 2.3: k_{∞} im Blanket in Abhängigkeit der Pu Spaltstoffkonzentration und dem Pitch für einen Brennstoffinnenrohrdurchmesser von d = 10 cm.

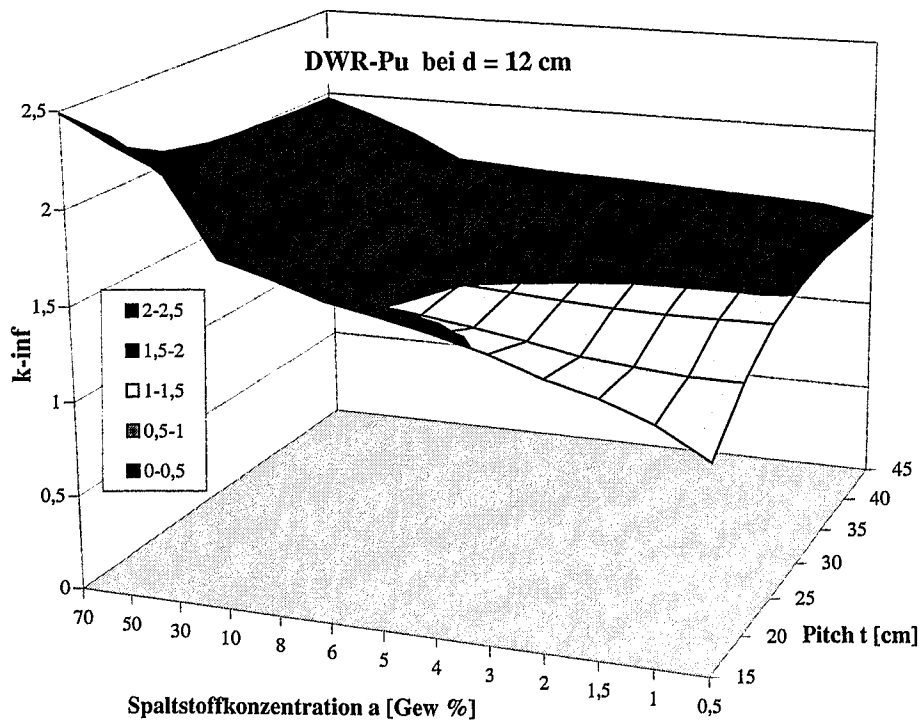


Abb. D 2.4: k_{∞} im Blanket in Abhängigkeit der Pu Spaltstoffkonzentration und dem Pitch für einen Brennstoffinnenrohrdurchmesser von d = 12 cm.

D 3 Berechnungsverfahren zur Sedimentation

Um das durchgeführte Sedimentationsverfahren besser illustrieren zu können, werden in dem Beispiel der **Abb. D 3.1** fünf Sedimentationszonen abgebildet, die Berechnung erfolgte hingegen mit zehn Sedimentationszonen. Dargestellt ist ein Schnitt in Z-Richtung über die Brennstablänge für unterschiedliche Phasen. Die Phasen stellen den zeitlichen Verlauf der Sedimentationsentwicklung dar. Ausgangspunkt ist in diesem Beispiel ein Brennstoff mit 8% Spaltstoffanteil und 24% Thorium (8%Pu-Th 1:3). Kommt es aufgrund eines Pumpenstillstands zu einer Sedimentation, so sinken die Schwebstoffe, in diesem Fall der Spaltstoff und die Thoriumbeladung, in Richtung Hüllrohrboden. Da die treibende Kraft überall im Querschnitt konstant groß ist, wird zu diesem Zeitpunkt genausoviel Material aus einem Kontrollraum heraussinken, wie aus dem darüberliegenden Kontrollraum in den Bereich einschwebt. Dementsprechend haben zu Beginn der Sedimentation alle Kontrollräume, die sowohl einen übergeordneten als auch einen unteren Sedimentationsraum besitzen, die gleiche Konzentration. In der obersten Zelle kann das Absinken der Schwebstoffe nicht durch Einfließen von Material aus übergeordneten Zellen kompensiert werden. Es bildet sich eine Abreicherung in dieser Zone aus. Ähnliches gilt für den Bodenbereich. Da unterhalb des Bodens kein weiterer Kontrollraum vorhanden ist, kommt es zu einer Aufkonzentration in diesem Bereich. Die Summe an Spaltmaterial bzw. eingesetztem Material ist immer konstant innerhalb des Brennstoffrohres. Mit zunehmender Sedimentationsdauer bildet sich ein immer größeres Konzentrationsgefälle heraus. Dies wird durch die einzelnen Phasen umgesetzt. Füllt sich die unterste Zelle mit dem theoretisch maximalen Anteil an Schwebstoffen, dies sind 70 % des Volumens, so füllt sich folgerichtig die darüberliegende Zelle sukzessive mit den Schwebstoffen an. Liegt wie in dem vorliegendem Beispiel ein Spaltstoff Thorium Gemisch im Verhältnis 1:3 zu Grunde, so kann die Konzentration an Spaltstoff im Bodenbereich maximal ein Viertel der theoretisch max. Sedimentationskonzentration von 70% erreichen. In diesem Fall 17,5%. Die dreifache Menge nimmt der Thoriumanteil ein. Als Konsequenz kommt es daraufhin zu einem deutlichen

8	6	4	3	2	1	0,25	0,1	0,1
8	8	6	5	4	3	2	0,25	0,1
8	8	8	8	8	6	6	6	5
8	8	8	10	10	14	14	16	17,5
8	10	14	14	16	16	17,5	17,5	17,5
START	Schritt 1	Schritt 2	Schritt 3	Schritt 4	Schritt 5	Schritt 6	Schritt 7	Schritt 8

Abb. D 3.1: Skizzierung des Sedimentationsverfahrens.

Konzentrationsanstieg im zweituntersten Kontrollraum. Der Grenzfall ist erreicht, wenn das gesamte eingesetzte Material an Schwermetallen sich im unteren Bereich abgesetzt hat. Dann existiert das größte Konzentrationsgefälle zwischen den abkonzentrierten oberen Bereichen und den aufkonzentrierten Bodenbereichen.

D 4 Sedimentationssichere Brennstoffe

Ein Brennstoff ist nur dann als sedimentationssicher anzusehen, wenn der Multiplikationsfaktor während des gesamten Sedimentationsverlaufes unterkritisch bleibt, also auch, wenn das gesamte Material eines Brennstoffrohres in einem Bereich konzentriert und die anderen Bereiche ausgedünnt sind. Neben den PuMA – Th Gemischen existieren auch Pu – Th Gemische und sogar einige reine PuMA 70/30 Brennstoffe, die ein sehr ausgewogenes Sedimentationsverhalten aufweisen.

Abb. D 4.1 zeigt dies am Beispiel des reinen PuMA 70/30 Brennstoffes. Es wird deutlich, daß sowohl Brennstoffkonzentrationen von 0,5% als auch 1% bei einem Pitch von 7 cm und einen Innenrohrdurchmesser von $d = 3$ cm immer unterkritisch bleiben.

Eine Vielzahl von Sedimentationssicheren Brennstoffen in Bezug auf die Kritikalität ergeben sich bei den Pu-Th Brennstoffgemischen. **Abb. D 4.2** verdeutlicht dies für Pu-Th Brennstoffe mit einem Brennstoffinnenrohrdurchmesser von $d = 3$ cm. **Abb. D 4.3** illustriert ein ausgewogenes Verhalten für Pu-Th Brennstoffe mit einem Innenrohrdurchmesser von $d = 5$ cm. Die Thoriumbeladung variiert zwischen Pu-Th 1:3 und 1:5.

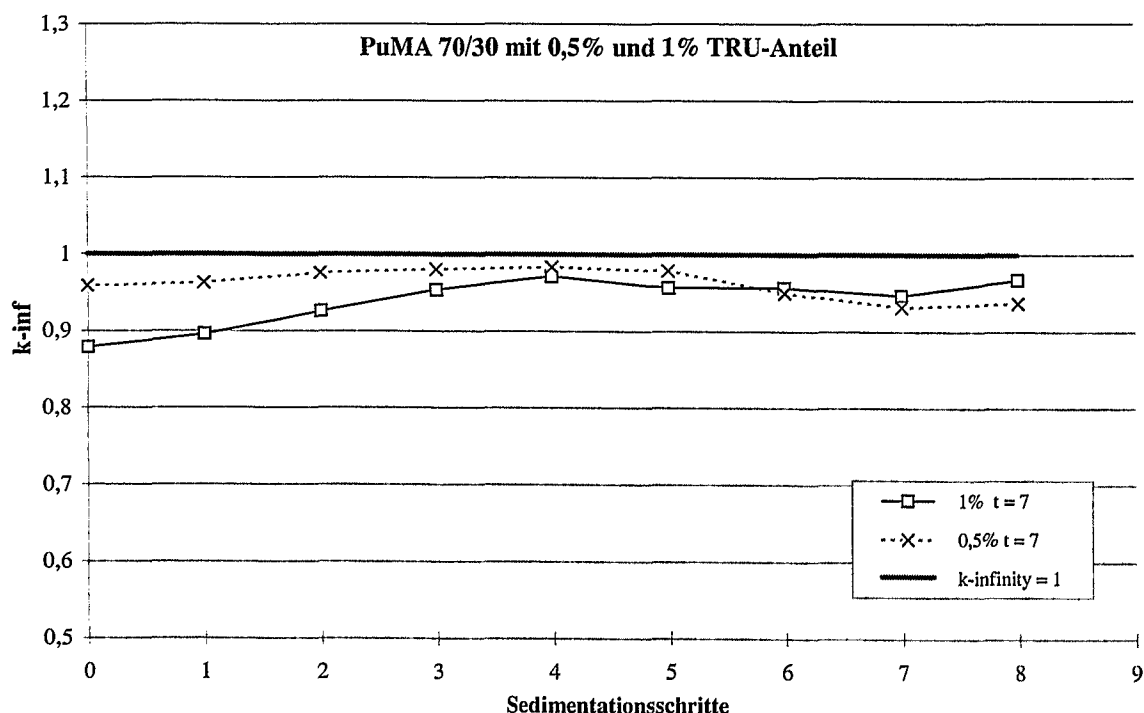


Abb. D 4.1: Entwicklung des k_{∞} Wertes in Abhängigkeit der Ausgangskonzentrationen an Transuranen und dem Sedimentationsverlauf für ein PuMA70/30 Brennstoff bei $d = 3$ cm und $t = 7$ cm.

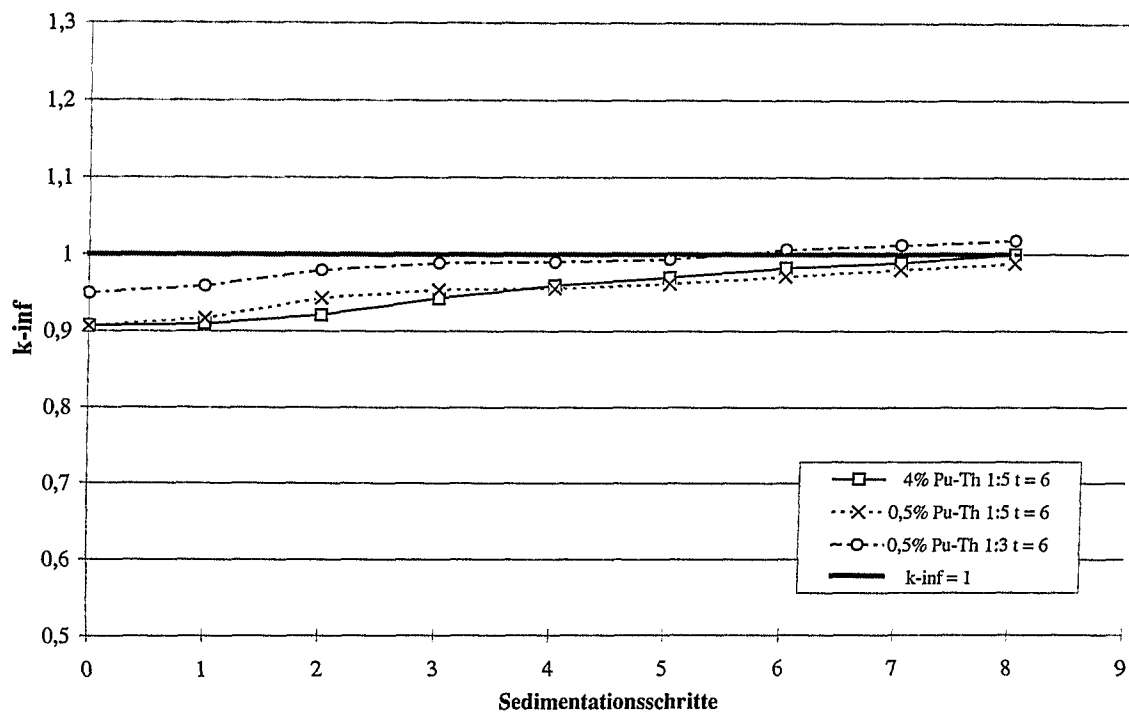


Abb. D 4.2: Entwicklung des k_{∞} Wertes in Abhängigkeit der Ausgangskonzentrationen an Transuranen und dem Sedimentationsverlauf für Pu-Th Brennstoffe bei $d = 3$ cm und $t = 6$ cm.

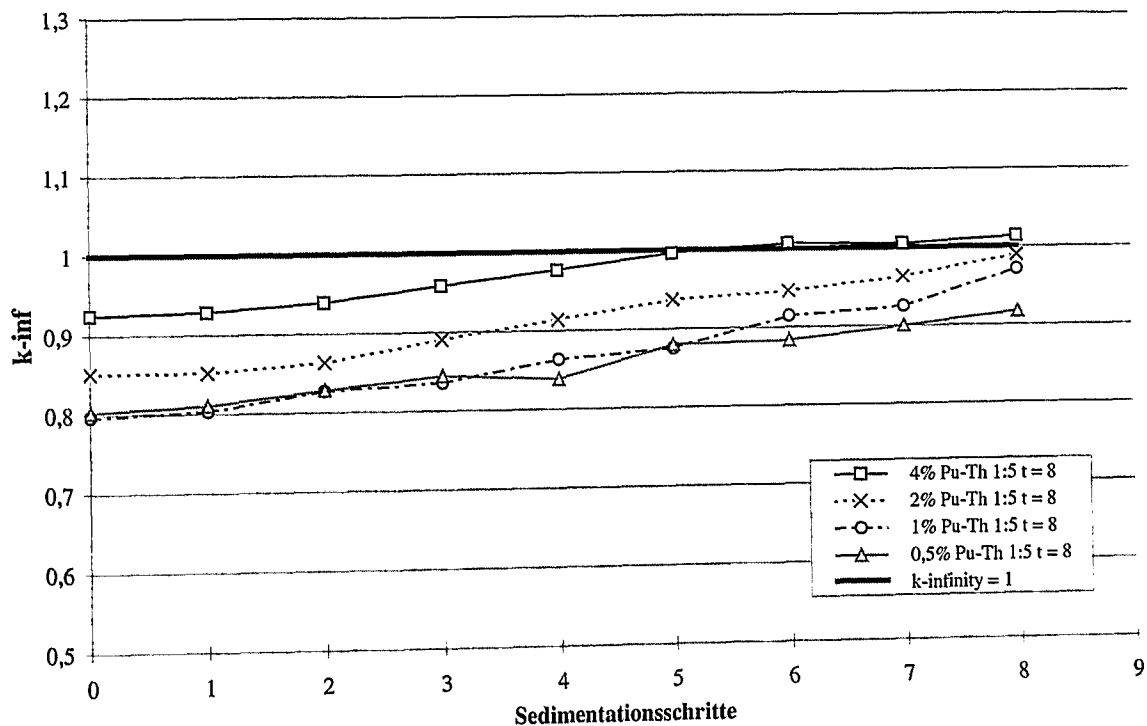


Abb. D 4.3: Entwicklung des k_{∞} Wertes in Abhängigkeit der Ausgangskonzentrationen an Transuranen und dem Sedimentationsverlauf für Pu-Th Brennstoffe bei $d = 5$ cm und $t = 8$ cm.

Anhang E 1 Löslichkeit von Thorium in flüssigem Blei

Die Löslichkeit von Thorium in flüssigem Blei in Abhängigkeit von der Temperatur wurde vielfach untersucht, doch ergeben sich zum Teil sehr unterschiedliche Kenndaten für das Löslichkeitsverhalten. Zweifelsohne ist die Löslichkeit bei niedrigen Temperaturen von $t < 1000^\circ\text{C}$ prinzipiell als sehr gering einzustufen. **Tab E 1.1** gibt einen tabellarischen Überblick über das Löslichkeitsverhalten von Thorium in Blei. Hierbei wurden vier Referenzquellen (/HAY 51/, /BRY 60/, /SMI 73/ und /POY et al. 76/) herangezogen, um ein Vergleich der bisherigen Literaturangaben zu gewährleisten.

Tab. E 1.1: Löslichkeitsverhalten von Thorium in flüssigem Blei.

t in °C	Lösl. in at %	t in °C	Lösl. in at %	t in °C	Lösl. in at %	t in °C	Lösl. in at %
/HAY 51/		/BRY 60/		/SMI 73/		/POY et al. 76/	
		450	0,0054	450	0,0008		
		600	0,045	600	0,017		
692	0,089	700	0,125	700	0,079	700	0,173
795	0,366	800	0,4	800	0,268	800	0,447
901	1,07	900	0,81				
		1000	2,78				
		1100	5,4				

Anhang F 1 BURNUP Steuermodul

Unter der Vorgabe, einen kontinuierlichen Betrieb mit Zugabe an frischen Spaltstoff und Extraktion von Spaltprodukten rechentechisch simulieren zu können, wurde das Steuermodul BURNUP entworfen. Es kombiniert, ebenso wie das bekannte SAS2H Steuermodul des SCALE 4.2 Programmpaketes, die Berechnungsprogramme BONAMI-S, NITAWL-II/S, XSDRNPM-S, COUPLE-S und ORIGEN-S. Im Unterschied zum SAS2H Modul beinhaltet das BURNUP Modul eine Veränderung des Nuklidvektors nach dem Abbrandschritt durch ORIGEN-S, so daß ein modifizierter Isotopenvektor für den nächsten Rechenzyklus ins BONAMI-S eingespeist wird. **Abb. F 1.1** verdeutlicht dieses Vorgehen. Der von ORIGEN errechnete Abbrandvektor kann demnach problembezogen in zweierlei Hinsicht verändert werden. Zum einen besteht die Möglichkeit dem vorhandenen, sprich abgebrannten, TRU Vektor einen bestimmten Masseanteil an neuen („frischen“) TRU (immer als Bezug zur ursprünglichen Startzusammensetzung) hinzuzufügen, **Abb. F 1.2**, und das Modul erlaubt die Extraktion von Spaltprodukten. Somit wird die TRU Masse je nach Vorgabe um einen bestimmten Anteil je Abbrandschritt erhöht. Bei der Extraktion von Spaltprodukten wird die vorhandene Spaltproduktmasse eines Elementes mit einem Extraktionsfaktor multipliziert (**Abb. F 1.3**). Da dieser Extraktionsfaktor kleiner als eins ist (meist beträgt dieser 50%), findet effektiv eine Verminderung (eine Halbierung bei 50%) der gewünschten Spaltprodukte statt. Dieses Vorgehen läßt sich auf alle gewünschten Spaltprodukte bzw. -Elemente ausdehnen.

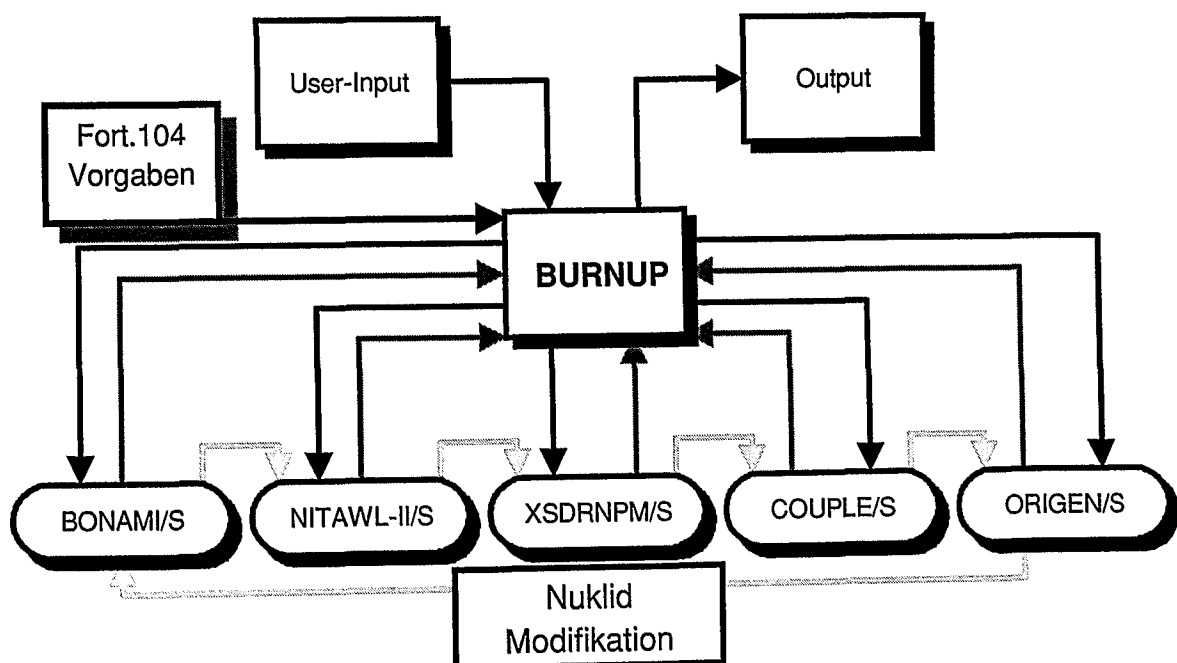


Abb. F 1.1: Steuermodul BURNUP.

Eine Festlegung, welche TRU mit welchem Faktor additiv hinzugefügt und welche Spaltprodukte mit welchem Extraktionsfaktor versehen werden, findet in der problembezogenen Datei 104 statt. Diese Datei wird für jeden Brennstoff individuell erstellt und enthält neben den Eingabesätzen für die Spaltmaterialzugabe und Extraktion der Spaltprodukte auch die Abbrandschrittweite als Steuereingaben für den ORIGIN-S Durchlauf. Aufgerufen wird der gesamte Programmablauf unter Nennung der gewünschten Anzahl an Abbrandschritten in der SCALE üblichen Weise.

	Ausgabe Origen Konz.		Zugabefaktor Fort.104		Initial		Eingabe BONAMI-S Konz.
Pu-239	XXX	+	0,25	x	Ini	=	XXX+(0,25*Ini)
Pu-240	YXX	+	0,25	x	Ini	=	YXX+(0,25*Ini)
Pu-241	YYX	+	0,25	x	Ini	=	YYX+(0,25*Ini)
Pu-242	YYY	+	0,25	x	Ini	=	YYY+(0,25*Ini)
Pu-243	ZYY	+	0,25	x	Ini	=	ZYY+(0,25*Ini)
Pu-244	ZZY	+	0,25	x	Ini	=	ZZY+(0,25*Ini)
Am-241	ZZZ	+	0,46	x	Ini	=	ZZZ+(0,25*Ini)
Am-242	WZZ	+	0,46	x	Ini	=	WZZ+(0,25*Ini)
Am-243	WWZ	+	0,46	x	Ini	=	WWZ+(0,25*Ini)
Am-244	WWW	+	0,46	x	Ini	=	WWW+(0,25*Ini)
Am-245	UWW	+	0,46	x	Ini	=	UWW+(0,25*Ini)

Abb. F 1.2: Zugabemodus für TRU am Beispiel von Pu und Am Nukliden.

	Ausgabe Origen Konz.		Extraktionsfaktor Fort.104		Eingabe BONAMI-S Konz.
Xe-130	AAA	x	0,5	=	0,5 x AAA
Xe-131	BAA	x	0,5	=	0,5 x BAA
Xe-132	BBA	x	0,5	=	0,5 x BBA
Xe-133	BBB	x	0,5	=	0,5 x BBB
Xe-134	CBB	x	0,5	=	0,5 x CBB
Xe-135	CCB	x	0,5	=	0,5 x CCB
Sm-149	CCC	x	0,5	=	0,5 x CCC
Sm-150	DCC	x	0,5	=	0,5 x DCC
Sm-151	DDC	x	0,5	=	0,5 x DDC
Sm-152	DDD	x	0,5	=	0,5 x DDD
Sm-153	EDD	x	0,5	=	0,5 x EDD

Abb. F 1.3: Extraktionsmodus für Spaltprodukte am Beispiel von Xe und Sm Nukliden.

Anhang G 1 Kenndaten verschiedener Transmutationsanlagen

Einen ersten Überblick über das Transmutationspotential verschiedener Anlagekonzepte ermöglicht die Einführung zweier wesentlicher Vergleichskennzahlen. Dies ist zum einen der netto TRU Abbrand in kg auf ein GW_{th} und Jahr bezogen (ΔTRU) und zum anderen das Verhältnis von TRU Abbrand zur Entlademenge (EOB) ($\Delta \text{TRU} / \text{TRU (EOB)}$). Als Limit des netto TRU Abbrandes kann der theoretisch maximale Abbrand von 375 kg/ GW_{th} und Jahr angesehen werden. Hinsichtlich des Verhältnisses von Abbrand zu Entlademenge gilt es ein möglichst hohes Verhältnis zu erreichen. Ein hoher Abbrand bei geringem Inventar ist von Vorteil (Proliferation, kritisches Anlageninventar, etc.).

Tab. G 1.1 stellt die beiden genannten Kenndaten für die aktuellen kritischen sowie subkritischen Transmutationsanlagen zusammen. Diese Kenndaten sind Ausgangsbasis für Abb. 1.1 und Abb. 7.27 sowie die abschließende Bewertung in Kap. 7.4. Für das Jülicher System wurden für die Tabelle theoretische TRU Massen zum BOB Zeitpunkt errechnet, da die realen Massen aufgrund der kontinuierlichen TRU Zugabe nicht in das Gesamtbild integriert werden können.

Tab. G 1.1: Leistungskenndaten einiger Transmutationsanlagen.

		TRU (BOB)	TRU (EOB)	ΔTRU	$\Delta \text{TRU} / \text{TRU (EOB)}$
Idealer Abbrand	/GRU 98/	375	0	375	
LWR-40% U/Pu-MOX	/GRU 98/	295	295	0	0,00
LWR-100% U/PU-MOX hoch moderiert	/GRU 98/	475	300	175	0,58
LWR-100% U/PU-MOX	/GRU 98/	718	556	162	0,29
LWR Inert matrix	/GRU 98/	605	230	375	1,63
CAPRA U/Pu-MOX	/GRU 98/	770	540	230	0,43
CAPRA Inert matrix	/GRU 98/	545	170	375	2,21
LWR 100% Th/Pu-MOX (60MWd/kg)	/NEU 99/	791	456	335	0,73
CAPRA Th/Pu-MOX	/GRU 98/	977	672	305	0,45
HTR Dual Ball feed (opt consumption)	/RÜT 98/	372	147	225	1,53
HTR Dual Ball feed (low discharge option)	/RÜT 98/	246	63	183	2,90
EFR Th/Pu-MOX	/GRU 98/	603	362	241	0,67
FEA	/RUB 95/	502	222	280	1,26
Jülicher Zweikreisssystem					
Pu Brennstoff (TRU BOB theoretisch)		421	66	355	5,42
PuMA Brennstoff (TRU BOB theoretisch)		480	113	367	3,25
Jülicher Einkreisssystem					
Pu Brennstoff (TRU BOB theoretisch)		619	264	355	1,35
PuMA Brennstoff (TRU BOB theoretisch)		819	452	367	0,81

Anhang H Aussagen zum Toxizitätsverlauf

Im weiteren Verlauf werden Aussagen zum Toxizitätsverlauf getroffen. Zum einen wird das Gefährdungspotential bzw. der Toxizitätsverlauf für eine „Black Box“ Betrachtung dargestellt, und zum anderen wird auf die Möglichkeit eingegangen, einen Teil des ADS Systems mit dem Restvektor aus dem Abbrand eines Th-MOX Brennstoffkreislauf zu beschicken.

Anhang H 1 Gefährdungspotential eines „Black Box“ Systems

Wird das Gefährdungspotential nach der „Black Box“ Methode über mehrere Zyklen betrachtet, so ergeben sich ab dem zweiten Betriebszyklus Unterschiede gegenüber der Betrachtung einer Primärmasse. Im „Black Box“ System werden alle Stoffströme zu 100% erfaßt und nicht hinsichtlich ihrer Herkunft gewichtet. **Abb. H 1.1** verdeutlicht dies am Beispiel der Toxizitätszusammensetzung eines Pu Brennstoffes nach dem dritten Zyklus. Es wird sofort ersichtlich, dass alle Stoffströme zu 100% erfaßt und bilanziert werden. So weisen die Betriebsverluste quasi immer die gleiche Toxizität auf. Aus diesem Ansatz ergibt sich ein großer Unterschied in der Bewertung des zweiten Cm Zwischenlagers. Bei der Analyse nach dem Primärmassen kann klar berechnet werden, wieviel Cm als Folge der Primärmasse im zweiten Zyklus entstanden ist. Bei dem „Black Box“ System spielt dieser Zusammenhang keine Rolle. Vielmehr werden alle anfallenden Stoffströme zusammengefaßt und in Bezug zur erzeugten Gesamtleistung gesetzt. Die Gesamtleistung setzt sich aus der Energie des pluto-

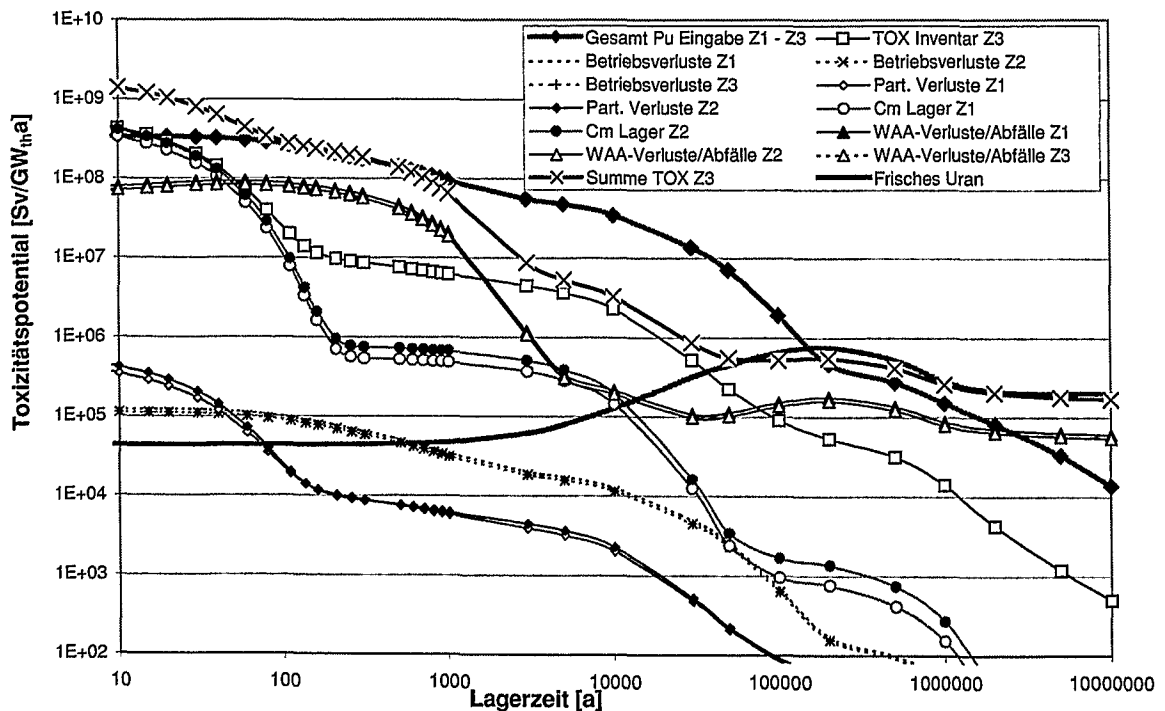


Abb. H 1.1: Einflußgrößen der Stoffströme auf die Gesamtoxizität der Actinide des Pu Brennstoffsystems nach dem dritten Zyklus im „Black Box“ System.

-niumerzeugenden DWR und der ADS Anlage zusammen, da Energie bei dem Pu Aufbau erzeugt wurde. Bei der Primärmassenanalyse hingegen darf den Stoffteilströmen nur ein definierter Energieanteil zugewiesen werden. Besonders deutlich wird der qualitative Unterschied der Bilanzierungsmethoden bei der Reimplementierung des Cm Zwischenlagers. Führt dies zu einem deutlichen Absenken der Toxizität bei der Analyse nach der Primärmassenmethode (vgl. Abb. 8.6), kann bei dem „Black Box“ System nur ein sehr geringer Einfluß gedeutet werden. **Abb. H 1.2** zeigt diesen Zusammenhang am Beispiel des Pu Brennstoffes, bei der Betrachtung der Gesamtoxizitäten für die Betriebszyklen 1 – 3 und dem Cm Reimplementierungszyklus Z11. Es ist ersichtlich, daß es bei diesem Schritt zu einer geringeren Toxizitätsreduzierung kommt. Dies ist folgerichtig, da im Cm Reimplementierungszyklus wiederum Cm aufgebaut wird. Im wesentlichen beruht die Toxizitätsreduzierung somit auf der zusätzlichen Erzeugung thermischen Leistung, womit das Gefährdungspotential, welches als Sievert pro erzeugter Leistung dargestellt wird, positiv beeinflußt wird.

Insgesamt bietet sich die Primärmassenanalyse bei einer detaillierten Untersuchung an, während das „Black Box“ Verfahren eher bei einer Gesamtdarstellung zum Zuge kommt. Hierbei berücksichtigt die „Black Box“ Analyse, daß die Anlage permanent ein toxisches Inventar zum Betrieb benötigt.

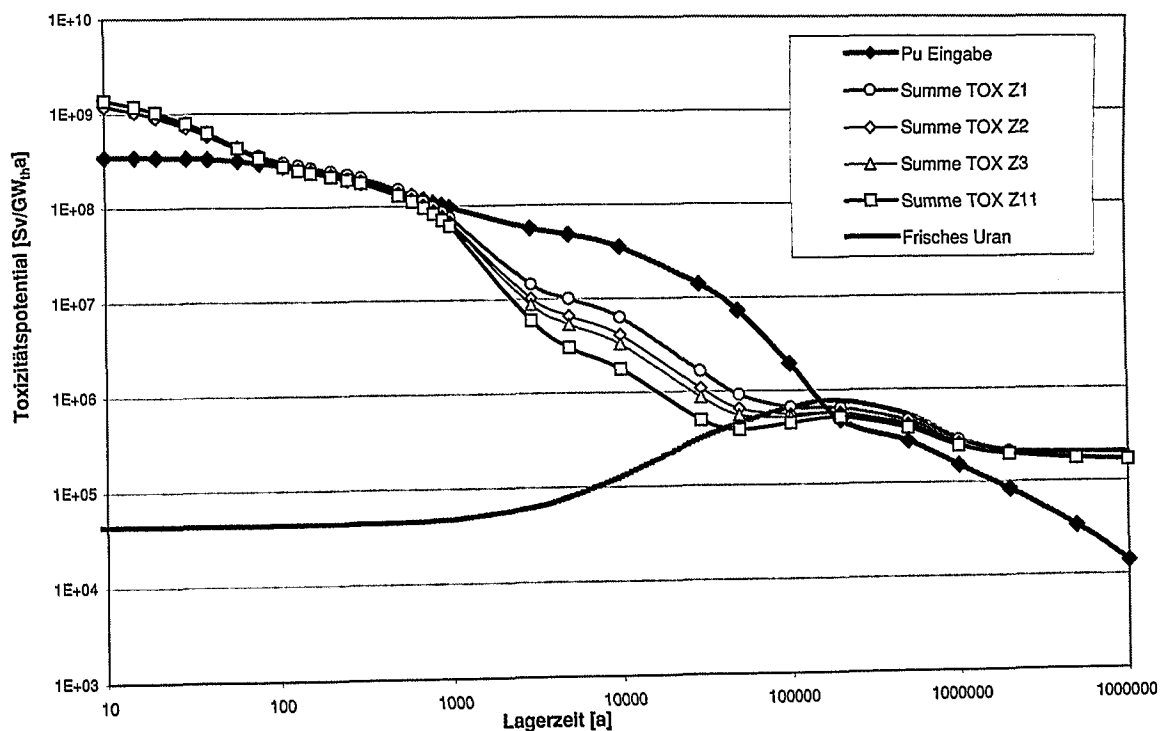


Abb. H 1.2: Gesamtoxizität der Actinide des Pu-Brennstoffes im „Black Box“ System für mehrere Betriebszyklen.

Anhang H 2 Einsatz von abgebranntem Th-MOX

Im Zuge der Analyse, welche TRU Abfallströme in der Jülicher ADS Anlage umgesetzt werden können, wird auch auf TRU bzw. Transthorium (TRTh) Abfallströme eingegangen, die in zukünftigen Brennstoffkreisläufen entstehen könnten. **Abb. H2.1** zeigt diesen Kernbrennstoffkreislauf. In diesem Fall durchläuft der abgebrannte LWR Brennstoff eine zusätzliche energetische Nutzung in einem Th-MOX betriebenen Reaktor. Nach einer Abklingzeit von mehreren Jahren gelangt der Brennstoff zur Wiederaufarbeitung. Ab hier durchläuft der abgebrannte Brennstoff den bekannten Transmutationszyklus.

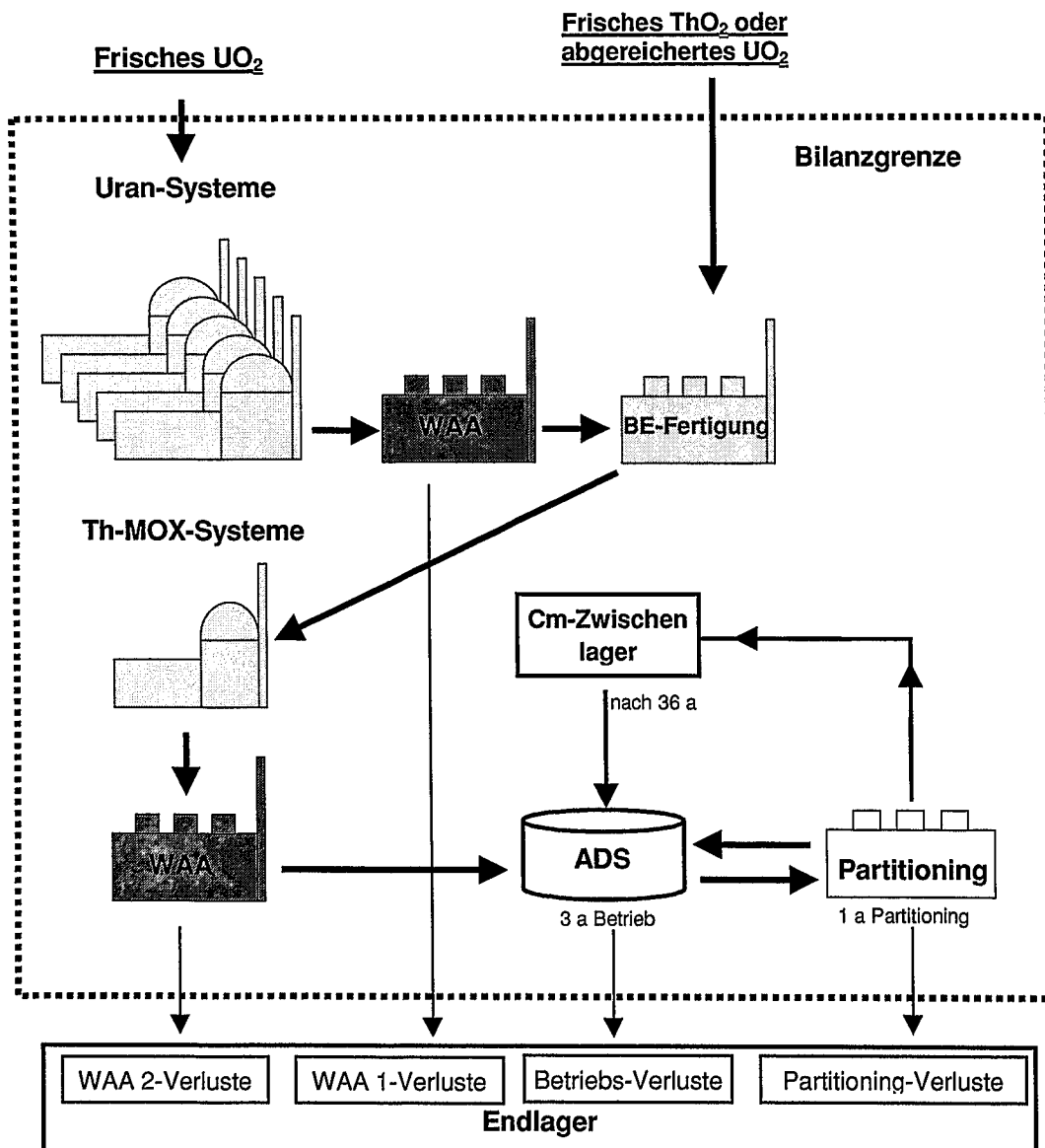


Abb. H 2.1: Einbindung der Gesamtstrategie für den Betrieb der Jülicher ADS in den Uran und Th-MOX Kernbrennstoffkreislauf.

Für diesen Kernbrennstoffkreislauf wird ein neuer Th-MOX Brennstoff in Leistungsreaktoren zur Stromerzeugung zum Einsatz kommen. Ausgangspunkt der Betrachtung solcher Art von Brennstoffen hinsichtlich einer weitergehenden Transmutation ist der abgebrannte Brennstoff aus einem Th-MOX Kreislauf nach dem Einsatz in einem DWR bei einem Abbrand von 60

GWd/t_{SM}. Der relative Nuklidvektor des abgebrannten Brennstoffs kann der Tab. H 2.1 entnommen werden. Um die Eignung für einen Einsatz als Brennstoff in der ADS Anlage zu prüfen, wurde ein Betriebszyklus mit 90,2% Pu des bekannten Vektors und 9,8% Th-MOX Transthoriumelemente des in Tab. H 2.1 dargestellten Vektors berechnet. Dies entspricht der bisherigen Situation eines zweiten Betriebszyklusses des Pu Brennstoffs. Der Unterschied besteht demnach in dem Einsatz der 9,8% TRTh Elemente aus dem Th-MOX Brennstoff

Tab. H 2.1: Nuklidvektor des abgebrannten Th-MOX Brennstoffs bei einem Abbrand von 60 GWd/t_{SM}.

Nuklid	rel. Anteil	Nuklid	rel. Anteil
Th-232	84,140%	Pu-238	0,384%
Pa-231	0,017%	Pu-239	1,303%
Pa-233	0,068%	Pu-240	2,554%
U-232	0,008%	Pu-241	1,344%
U-233	1,470%	Pu-242	1,203%
U-234	0,148%	Pu-243	0,000%
U-235	0,032%	Pu-244	0,000%
U-236	0,005%	Am-241	0,193%
U-238	0,000%	Am-242m	0,006%
Np-237	0,002%	Am-243	0,271%
Np-239	0,000%	Cm-243	0,002%
		Cm-244	0,154%

anstelle der 9,8% TRU welche als Restinventar aus dem vorhergehenden Betriebszyklus in den zweiten Zyklus übernommen werden. Eine erste Abschätzung des Multiplikationsfaktors zeigt, dass der Einsatz der TRTh Elemente zu einem um 2,8 nile höheren Multiplikationsfaktor führt als der zweite Betriebszyklus des Pu Brennstoffs.

Hinsichtlich des Abbrandverhaltens, das in Abb. H 2.2 für ein 1 GW_{th} System für drei Jahren Betriebszeit skizziert wird, zeigen sich insbesondere Unterschiede in der Zusammenstellung

der Minor Actinides. Es werden mit 88 kg MA innerhalb von 3 GW_{th} y ähnlich viel MA erzeugt, doch dominiert in diesem Fall nicht so deutlich das Curium die Zusammenstellung,

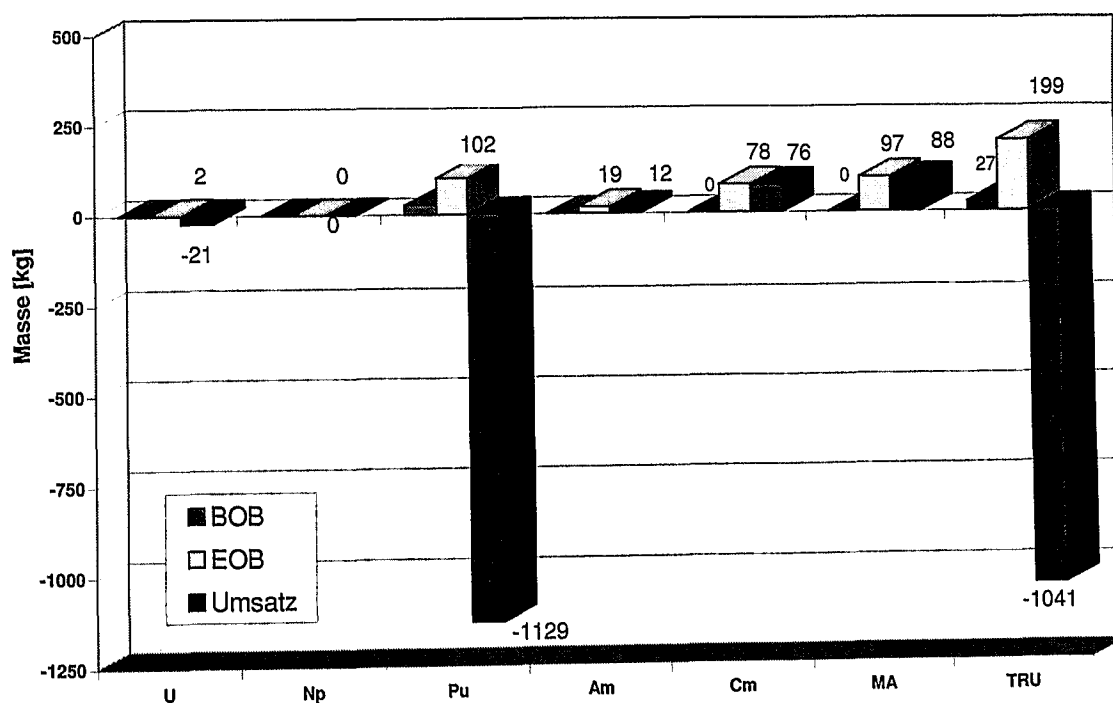


Abb. H 2.2: Kerninventar und Umsatz nach einem Abbrand von 3 GW_{th}a für den Pu Th-MOX (90,2% / 9,8%) Brennstoff.

sondern Am nimmt mit 13,6% Anteil auch eine deutliche Fraktion ein. Ebenfalls muß der Abbrand von 21 kg Uran berücksichtigt werden, so daß gegenüber dem reinen Pu System deutlich weniger Pu und TRU umgesetzt wird.

Wird die Toxizität der Entlademasse von dem ersten und zweiten Pu Betriebszyklus mit der Toxizität des Th-MOX gemischten Pu Betriebszyklus verglichen (Abb. H 2.3), so bilden alle drei Betriebszyklen quasi ein ähnliches Toxizitätsniveau. Der Verlauf der Th-MOX Pu Toxizität und der des ersten Pu Zyklus unterscheiden sich dabei kaum.

Als Schlußfolgerung kann festgehalten werden, daß die TRTh Mengen aus dem Th-MOX Zyklus eines DWR in die Anlage eingebracht werden können. Dies führt zu ähnlichen Betriebsergebnissen, wobei weniger Cm, wohl aber mehr Am produziert wird. Die Höhe des Multiplikationsfaktors läßt darauf schließen, daß weit höhere Anteile als 9,8% an abgebrannten Th-MOX TRTh Elemente in das System eingebracht werden können.

Um genauer Einschätzungen abgeben zu können, bedarf es jedoch detaillierterer Abbrandstudien. Ebenso muß eine umfangreiche Energiebilanzierung für den Th-MOX Kreislauf erfolgen, um das Gefährdungspotential des Einsatzes von Th-MOX Brennstoff in der ADS Anlage letztlich beurteilen zu können.

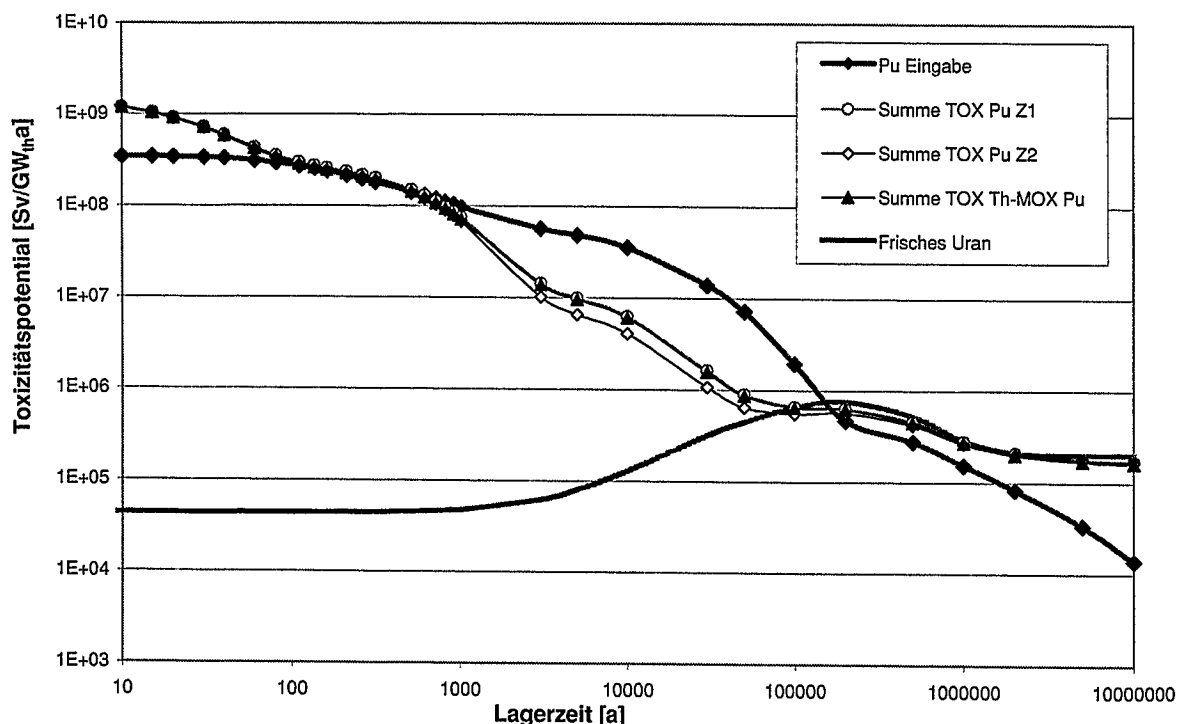


Abb. H 2.3: Toxizitätsvergleich des Th-MOX Pu Brennstoffes mit reinem Pu Brennstoff.

Forschungszentrum Jülich



Jül-3886
Juli 2001
ISSN 0944-2952