



Institut für Sicherheitsforschung und Reaktortechnik

***Konzept eines unterkritischen Transmutations-
systems mit schnellem Neutronenspektrum
und flüssigem Brennstoff***

Sven Tittelbach

***Konzept eines unterkritischen Transmutations-
systems mit schnellem Neutronenspektrum
und flüssigem Brennstoff***

Sven Tittelbach

Berichte des Forschungszentrums Jülich ; 4011

ISSN 0944-2952

Institut für Sicherheitsforschung und Reaktortechnik Jül-4011

D 82 (Diss., Aachen, RWTH, 2002)

Zu beziehen durch: Forschungszentrum Jülich GmbH · Zentralbibliothek

D-52425 Jülich · Bundesrepublik Deutschland

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

Konzept eines unterkritischen Transmutationssystems mit schnellem Neutronenspektrum und flüssigem Brennstoff

von Sven Tittelbach

Kurzfassung

Beim Betrieb kerntechnischer Anlagen zur Stromerzeugung fallen weltweit jährlich ca. 9500 t abgebrannter Brennelemente an, die als hochradioaktiver Abfall entsorgt werden müssen. An die Entsorgung der hochradioaktiven Abfälle wird die Anforderung gestellt, einen zuverlässigen Abschluß dieser Stoffe vom biologischen Lebensraum der Erde bis zum Erreichen eines tolerierbaren Gefährdungspotentials sicherzustellen.

Das Langzeit-Gefährdungspotential abgebrannten Brennstoffes wird durch die Actinidenelemente Plutonium, Americium und Curium dominiert. Durch Partitioning & Transmutation soll die endzulagernde Actinidenmenge so stark reduziert werden, daß das Referenzniveau des unverbrauchten Brennstoffes bereits nach wenigen tausend Jahren erreicht wird. Für diesen Zeitraum können technische Barrieren zum sicheren Einschluß der hochradioaktiven Abfälle gefertigt werden.

Im Rahmen dieser Arbeit wurde ein Konzept für ein unterkritisches Transmutationssystem mit schnellem Neutronenspektrum, Flüssigmetallkühlung und metallischem Flüssigbrennstoff erarbeitet. Als Kühlmittel und Träger des Brennstoffes ist das eutektische Flüssigmetallgemisch aus Blei und Wismut geeignet. Um für den Betrieb einer Transmutationsanlage bis 3 at% Transurane lösen zu können, ist eine minimale Brennstofftemperatur von 600 °C erforderlich. Die Berechnungen wurden mit einem stark degradierten Transuran-Isotopenvektor, der sich nach zweifacher Plutonium-Rezyklierung im Thorium-Brennstoffkreislauf ergibt, durchgeführt.

Es wurden zwei homogene und zwei heterogene Blanketmodelle entworfen und bewertet, von denen ein heterogenes Blanketkonzept weitergehend betrachtet wurde. Es verbindet die positiven Eigenschaften eines Festbrennstoffsystems (z.B. bessere Kontrolle des Brennstoffes und der Reaktivität durch kleine abgeschlossene Brennstoffvolumina) mit denen von Flüssigbrennstoffsystemen (kontinuierliche Be- und Entladung sowie Spaltproduktabzug).

Das Blanketmodell orientiert sich an dem Coredesign schneller flüssigmetallgekühlter Reaktoren. Es besteht aus hexagonalen Brennelementen, in denen sechs ringförmige Brennstoffzylinder angeordnet sind. Aufgrund der hexagonalen Geometrie der Brennelemente ergeben sich konzentrisch um das Spallationstarget drei Brennstoffzonen. Das Blanketkonzept weist bei der Wärmestromdichte- und Leistungsverteilung starke Heterogenitäten auf. Neben dem radialen Wärmestromdichte- und Leistungsprofil gibt es auch Spitzenbelastungen innerhalb der Brennstoffzonen und Brennelementen. Durch Variation der Anreicherung in den Brennstoffzonen oder Änderung der Brennelementgeometrie ist es möglich, ein radial ausgeglicheneres Wärmestromdichte- und Leistungsprofil gemittelt über das Blanket einzustellen.

Concept of a subcritical transmutation system with fast neutron spectrum and liquid fuel

by Sven Tittelbach

Abstract

The annual amount of nearly 9500 t of spent fuel from worldwide industrial nuclear energy utilization has to be disposed as high level waste. The retention of nuclear waste from the biosphere has to be assured until the radiological risk decreases to tolerable levels.

The long-term radiological risk of spent fuel is dominated by actinide elements, i.e. plutonium, americium and curium. It is intended to reduce this amount of high level waste by Partitioning & Transmutation, so that the radiotoxicity of the disposed waste falls short of the reference value of fresh fuel decaying naturally after about thousand years. For this time period the retention of high level waste can be assured by technical means.

The scope of this work is the design of a subcritical fast transmutation system with liquid metal cooling and liquid metal fuel. The lead bismuth eutectic has been chosen as the liquid metal coolant and fuel carrier. To dissolve at least 3 at% of transuran elements, a minimum fuel temperature of 600 °C is required. The calculations were carried out with a fuel composition, which results from two plutonium recycling steps in a thorium fuel cycle.

Two homogeneous and two heterogeneous blankets have been designed and evaluated leading to one preferred heterogeneous blanket design, which has been investigated in more detail. This blanket design merges the positive properties of a solid fuel system (better control of fuel and reactivity because of smaller and closed fuel volumina) and a liquid fuel system (continuous charge and discharge or extraction of fission products).

The blanket design is based on the core design of fast breeder liquid metal reactors. It consists of hexagonal fuel elements housing up to six annular shaped fuel cylinders. The hexagonal shape of the fuel elements leads to three fuel zones positioned concentrically around the central spallation target. There is a strong heterogeneous distribution of power and heat flux in this blanket design. Besides a radial shape of power density and heat flux, peak values can be found also in the fuel zones and fuel elements itself. It is possible to achieve a more balanced radial shape of power and heat flux by changing the enrichment in the fuel zones or adapting the fuel element geometry.

Vorwort

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

Besonderer Dank gebührt meinem Doktorvater Herrn Prof. Dr.-Ing. P.-W. Phlippen für die Betreuung, für die Unterstützung und nicht zuletzt für die Übernahme des Referates. Den Herren Prof. Dr.-Ing. K. Kugeler und Prof. Dr.-Ing. D. Filges danke ich für das Interesse an meiner Arbeit und die Übernahme der Korreferate.

Bei den Kolleginnen und Kollegen des Instituts für Sicherheitsforschung und Reaktortechnik bedanke ich mich für unzählige Hinweise, Anregungen und viele, nicht nur fachliche, Diskussionen. Insbesondere möchte ich mich hierbei namentlich bei A. Leber, I. Neuhaus, M. Piontek, S. Struth und H.M. Unger bedanken. Besonders herzlicher Dank gilt Tobias Bodewig und Andreas Zucker für ihre freundschaftliche und fachlich vielseitige Unterstützung.

Mein ganz besonderer Dank gilt meinen Eltern.

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
1.1	Gefährdungspotential radioaktiver Abfälle	1
1.2	Brennstoffkreislaufkonzepte	5
1.2.1	Konzept der Direkten Endlagerung	6
1.2.2	Konzept der Wiederaufarbeitung	7
1.2.3	Konzept eines mit Partitioning & Transmutation erweiterten Brennstoff- kreislaufes	10
2	Transmutationssysteme	13
2.1	Bedeutung des Neutronenspektrums für Transmutation	14
2.2	Bisherige Untersuchungen	16
2.2.1	Einsatz kritischer Reaktorsysteme	17
2.2.2	Entwicklung unterkritischer Transmutationssysteme	19
2.3	Vergleich von Flüssig- und Festbrennstoffsystemen	24
2.4	Ziel dieser Arbeit	27
3	Allgemeiner Entwurf eines unterkritischen Transmutationssystems	29
3.1	Kühlmittel	29
3.2	Brennstoff	29
3.3	Flüssigmetallkorrosion	33
3.3.1	Korrosionsmechanismen	33
3.3.2	Schutz gegen Flüssigmetallkorrosion	34
3.4	Protonenbeschleuniger und Spallationstarget	37
4	Entwurf eines geeigneten Blanketdesigns	39
4.1	Neutronenphysikalische Aspekte unterkritischer nuklearer Systeme	40
4.2	Blanket mit homogener Brennstoffanordnung	44

4.2.1	Externe Kühlung	44
4.2.2	Interne Kühlung	49
4.2.3	Vergleichende Betrachtung der homogenen Blanketmodelle	63
4.3	Blanket mit heterogener Brennstoffanordnung	66
4.3.1	Ringförmige Brennelemente	66
4.3.2	Brennelemente mit Brennstoffzylindern	74
4.3.3	Vergleichende Betrachtung der heterogenen Blanketmodelle	79
4.4	Blanketauswahl	81
5	Wärmetechnische und strukturmechanische Aspekte	83
5.1	Wärmetechnische Grundlagen	83
5.1.1	Temperatur und Spannungsaufbau in der Zylinderwand	84
5.1.2	Brennstofftemperatur	86
5.1.3	Kühlmitteltemperatur und Aufheizspanne	87
5.1.4	Zusammenfassung	90
5.2	Wärmestromdichte- und Leistungsverteilung im Blanket	90
5.3	Fazit	95
6	Zur Realisierung der Transmutationsanlage	97
6.1	Anpassung des <i>BE-HFMTS</i> -Blanketkonzeptes	97
6.1.1	Anpassung der Spaltstoffanreicherung	97
6.1.2	Anpassung der Brennelementgeometrie	99
6.1.3	Auswahl eines optimierten Blankets	101
6.2	Transmutationsanlage mit <i>BE-HFMTS</i> -Blanket	104
6.2.1	Blanket- und Abbrandeigenschaften	105
6.2.2	Gesamtsystem	110
6.2.3	Sicherheitseigenschaften	111
6.3	Bewertung des <i>BE-HFMTS</i> -Blanketkonzeptes	114
7	Zusammenfassung und Ausblick	115
7.1	Grundlagen	115
7.2	Ergebnisse	116
7.3	Ausblick	119
A	Berechnungsmodelle und Programme	121
A.1	Spallationsneutronenquelle	121
A.2	Kritikalität und Flußverteilung	123
A.3	Abbrandberechnung	125

B Parameter	127
B.1 TRU-Isotopenvektor	127
B.2 Wirkungsquerschnitte	129
B.2.1 MCNP	129
B.2.2 HERMES	130
B.2.3 ORIGEN2	130
C Abkürzungen und Formelzeichen	133
C.1 Abkürzungen	133
C.2 Formelzeichen	134
Abbildungsverzeichnis	135
Tabellenverzeichnis	139
Literaturverzeichnis	143

Einleitung

1.1 Gefährdungspotential radioaktiver Abfälle

Die beim Betrieb von kerntechnischen Anlagen sowie die beim Einsatz von Radionukliden in Industrie, Forschung und Medizin anfallenden Abfälle werden nach Abbildung 1.1 entsprechend ihrer Radioaktivität und der damit verbundenen Wärmeentwicklung eingeteilt.

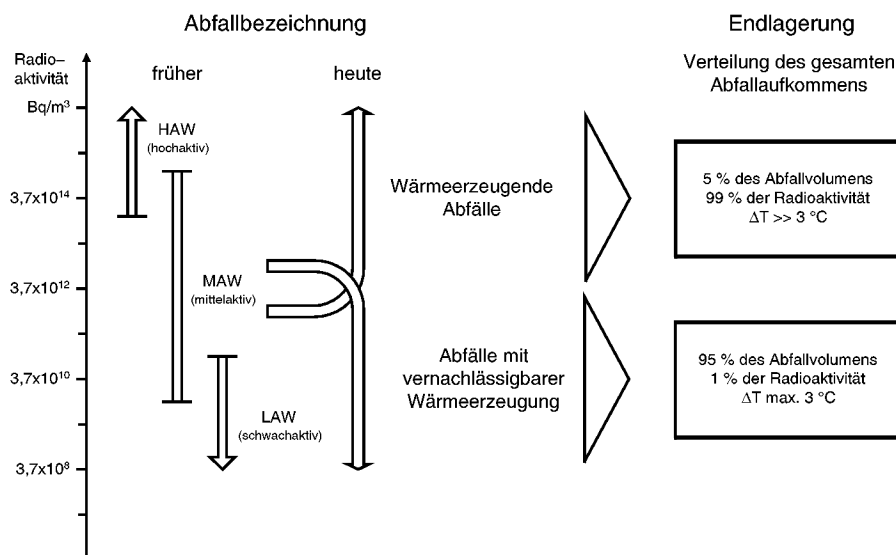


Abbildung 1.1: Klassifizierung radioaktiver Abfälle in Deutschland [Phl97]

Die schwach- und mittelaktiven Abfälle machen ca. 95 % des radioaktiven Abfallaufkommens aus, enthalten jedoch nur 1 % der Radioaktivität. Das Gefährdungspotential des gesamten radioaktiven Abfalls wird dementsprechend zu 99 % durch das Gefährdungspotential der hochradioaktiven Abfälle bestimmt. Zur Beurteilung des Gefährdungspotentials radioaktiver Nuklide wird deren Radioaktivität in eine Dosis umgerechnet. Für einige relevante Isotope im radio-

aktiven Abfall sind die Umrechnungsfaktoren in den Tabellen 1.2 und 1.3 angegeben. Hauptverursacher der hochradioaktiven Abfallstoffe (HAW) sind fast ausschließlich die Kernreaktoren zur Stromgewinnung und hierbei speziell deren abgebrannte Brennelemente. 2000 wurden nach [atw01] weltweit 438 Reaktorblöcke zur Erzeugung von ca. 350 GW elektrischer Leistung eingesetzt. Dabei fielen ca. 9500 t Schwermetalle in Form abgebrannter Brennelemente an. Abbildung 1.2 zeigt exemplarisch den zeitlichen Verlauf des Gefährdungspotentials des hochradioaktiven Abfalls eines Druckwasserreaktors, aufgegliedert nach den wichtigsten Fraktionen Spaltprodukte und Actiniden¹. Als Vergleichswert für die Beurteilung der radioaktiven Gefährdung ist das

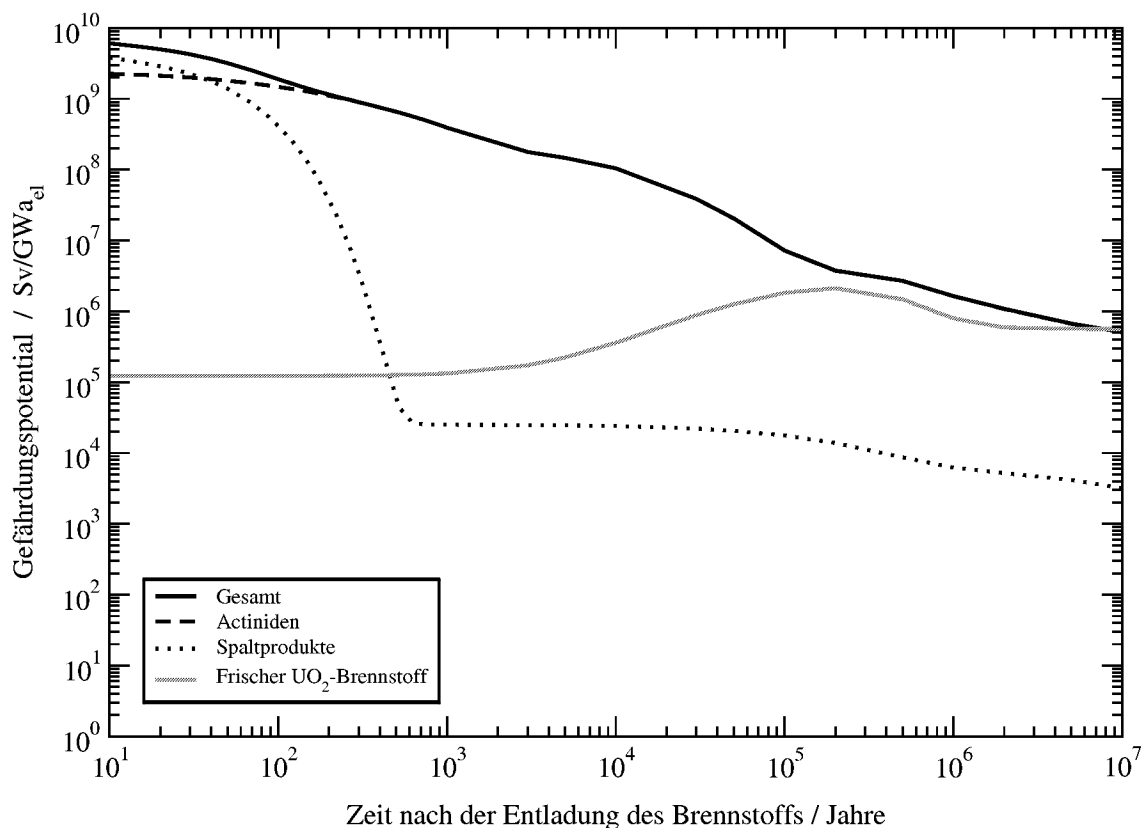


Abbildung 1.2: Gefährdungspotential abgebrannten UO_2 -Brennstoffs im OTC-Brennstoffkreislauf, 47,5 GWd/t SM Abbrand im DWR, 10 Jahre Abklingzeit, Dosiskoeffizienten für Ingestion nach ICRP 68 [ICR94]

Gefährdungspotential des unverbrauchten, angereicherten Brennstoffes eingetragen. Dieser Wert ist als Referenz für die natürliche Gefährdung sinnvoll, da eine Erhöhung des Gefährdungspotentials des Brennstoffes durch den Menschen erst mit dem Einsatz im Reaktor erfolgt [Phl95]. Aus Abbildung 1.2 wird deutlich, daß das Gefährdungspotential des hochradioaktiven Abfalls durch die Actinidenelemente bestimmt wird. Aufgrund der hohen Halbwertszeiten der Actiniden

¹Als *Actiniden* werden die chemischen Elemente und ihre Isotope mit einer Ordnungszahl zwischen 89 (Actinium) und 103 (Lawrencium) bezeichnet. Actinidenelemente mit einer Ordnungszahl größer 92 (Uran) bezeichnet man als *Transurane (TRU)*. Die *Minoren Actiniden (MA)* sind TRU-Elemente, die, im Vergleich zum Plutonium, in geringen Mengen vorkommen. Das sind vor allem Neptunium-, Americium- und Curium-Isotope.

wird erst nach mehreren Millionen Jahren die von einem unverbrauchten Brennstoff ausgehende Gefährdung unterschritten.

An die Entsorgung hochradioaktiver Abfälle muß daher der Anspruch gestellt werden, einen zuverlässigen Abschluß dieser Stoffe vom biologischen Lebensraum der Erde über eine Zeitspanne von mehreren hunderttausend Jahren zu gewährleisten. Nach der heutigen Auffassung der kern-energienutzenden Nationen kann dieser Forderung durch das Multibarrierenkonzept (Abbildung 1.3) entsprochen werden.

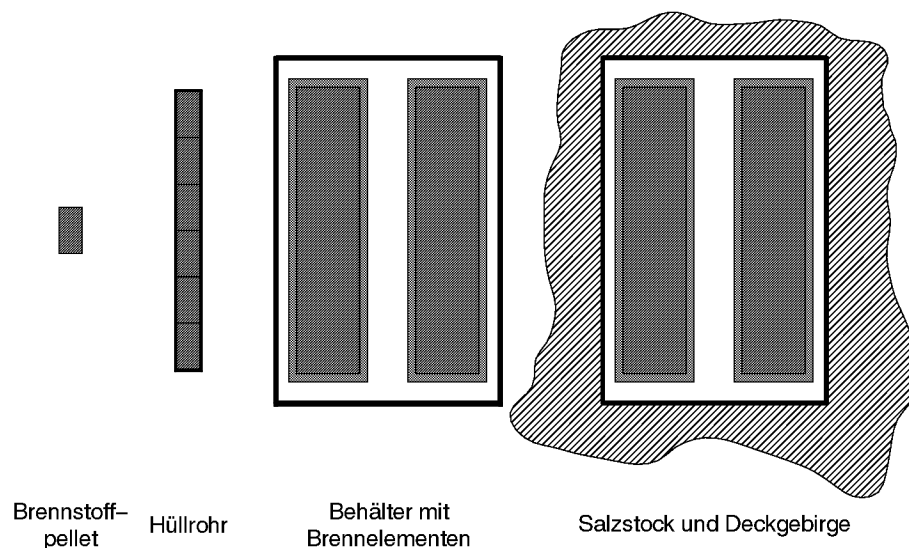


Abbildung 1.3: Multibarrierenkonzept bei der Endlagerung radioaktiver Abfälle [Neu00]

Brennstoffpellet, Brennstabhülle und Endlagerbehälter sind vom Menschen hergestellte Barrieren. Für diese ingenieur-technischen Barrieren kann jedoch nur eine Lebensdauer von 1000 - 2000 Jahren garantiert werden. Deshalb soll die Einlagerung der Abfälle in einer tiefen geologischen, eine mögliche Freisetzung radioaktiver Stoffe stark verzögernde, Formation erfolgen. Als Wirtsf Formationen werden weltweit Steinsalz, Granit, Ton, Fels, Tuff usw. auf ihre Eignung untersucht. Dabei wird vor allem die geologische Stabilität (eingestuft anhand der geologischen Lebenszeit) der entsprechenden Gesteinsformation, die Strömungsgeschwindigkeit evtl. vorhandenen Wassers sowie ein möglicher Austausch zwischen Grund- und Oberflächenwasser berücksichtigt. Die Einlagerung in eine geeignete geologische Formation wird für HAW weltweit noch nicht praktiziert.

Die Kritiker des geplanten Verfahrens der Einlagerung bezweifeln dessen langfristige, d.h. für hunderttausende von Jahren, Beherrschbarkeit und befürchten dabei vor allem, daß die geologische Stabilität der Einlagerungsformation durch den menschlichen Eingriff (Wirkung der Wärmeentwicklung) nicht mehr gewährleistet ist, daß heute noch nicht vorstellbare Störfälle auftreten könnten und somit eine unverantwortbare Gefährdung der zukünftigen Generationen durch die Endlagerung nicht auszuschließen ist. Weiterhin gehen sie davon aus, daß die Maßstäbe für die Beurteilung radiologischer Wirkungen von der unvorhersehbaren Entwicklung des Lebens auf der Erde abhängen. Die Ergebnisse der Störfallberechnungen für Endlager gäben damit für die Zukunft bezüglich der Sicherheit keine sinnvollen oder ausreichend zuverlässigen Aussagen.

Den Bedenken der Kritiker hinsichtlich der Beherrschbarkeit des Entsorgungsprozesses durch den Menschen könnte entgegen gewirkt werden, wenn es gelänge, das Langzeit-Gefährdungspotential eines Endlagers für radioaktive Stoffe auf technisch überschaubare Zeiträume von 1000 - 2000 Jahre zu reduzieren.

Dieses Ziel soll durch Partitioning & Transmutation (P & T) erreicht werden. Unter dem Begriff *Transmutation* werden im allgemeinen sowohl die Kernumwandlung durch Neutroneneinfang als auch die Spaltung schwerer Nuklide, Spallations- und andere nukleare Reaktionen unter Einwirkung von z.B. Neutronen zusammengefaßt. Das Ziel der Transmutation im Zusammenhang mit radioaktiven Abfällen ist, langfristig das Inventar radiotoxischer Nuklide durch die Umwandlung der Ausgangsnuklide entweder in kurzlebige Radionuklide oder stabile Nuklide umzuwandeln [NEA99]. Wie bereits festgestellt wurde, bestimmen vor allem die Actiniden die Langzeit-Gefährdung des abgebrannten Brennstoffes. Der langfristige Einfluß der Spaltprodukte auf die Gesamttoxizität ist wegen des Zerfalls der meisten Spaltprodukte innerhalb von ca. 250 Jahren eher gering. Aufgrund ihrer hohen Mobilität sollten jedoch, trotz ihrer geringen Massenanteile, auch einige langlebige Spaltprodukte für P & T in Betracht gezogen werden.

Voraussetzung für die Transmutation der relevanten Isotope ist deren möglichst vollständige Abtrennung aus den abgebrannten Brennelementen. Alle hiermit verbundenen Prozesse werden als *Partitioning* bezeichnet. Daher kann auch die bereits praktizierte Abtrennung von Uran und Plutonium aus abgebrannten Brennelementen zur Rückgewinnung noch enthaltenen Spaltmaterials als Partitioning aufgefaßt werden. Neben den für P & T relevanten Isotopen (Tabellen 1.2 und 1.3) sind in Tabelle 1.1 auch die Halbwertszeiten $\tau_{\frac{1}{2}}$ sowie Dosiskoeffizienten² für Ingestion einiger Uranisotope zusammengestellt.

Welche Bedeutung P & T bei der Entsorgung radioaktiver Abfälle zukommen könnte, wird im folgenden Abschnitt bei der Erläuterung der unterschiedlichen Brennstoffkreislaufkonzepte verdeutlicht.

Tabelle 1.1: Uranisotope, deren Halbwertszeiten und Dosiskoeffizienten für Ingestion [ICR94]; UO₂-Brennstoff, 7 Jahre Abklingzeit, 47,5 GWd/t SM Abbrand im DWR

Isotop	$\tau_{\frac{1}{2}}$ / Jahre	Masse / $\frac{\text{kg}}{\text{TW}_{\text{hel}}}$	Dosiskoeffizienten (Ingestion) / $\frac{\text{Sv}}{\text{Bq}}$
²³⁴ U	$2,45 \cdot 10^5$	0,56	$4,9 \cdot 10^{-8}$
²³⁵ U	$7,04 \cdot 10^8$	17,69	$4,6 \cdot 10^{-8}$
²³⁸ U	$4,47 \cdot 10^9$	2384,00	$4,4 \cdot 10^{-8}$

²Mit diesen Konversionsfaktoren kann aus der Aktivität eines Isotops (angegeben in Bq) die bei Ingestion (Aufnahme mit der Nahrung) des Isotops resultierende effektive Dosis (Sv) berechnet werden.

Tabelle 1.2: Für P & T relevante langlebige Spaltprodukte, deren Halbwertszeiten und Dosiskoeffizienten für Ingestion [ICR94]; UO₂-Brennstoff, 7 Jahre Abklingzeit, 47,5 GWd/t SM Abbrand im DWR

Isotop	$\tau_{\frac{1}{2}}$ / Jahre	Masse / $\frac{\text{kg}}{\text{TWh}_{\text{el}}}$	Dosiskoeffizienten (Ingestion) / $\frac{\text{Sv}}{\text{Bq}}$
⁹⁹ Tc	$2,13 \cdot 10^5$	2,90	$7,8 \cdot 10^{-10}$
¹²⁹ I	$1,57 \cdot 10^7$	0,66	$1,1 \cdot 10^{-7}$
¹³⁵ Cs	$2,30 \cdot 10^6$	1,29	$2,0 \cdot 10^{-9}$

Tabelle 1.3: Für P & T relevante Transurane, deren Halbwertszeiten und Dosiskoeffizienten für Ingestion [ICR94]; UO₂-Brennstoff, 7 Jahre Abklingzeit, 47,5 GWd/t SM Abbrand im DWR

Isotop	$\tau_{\frac{1}{2}}$ / Jahre	Masse / $\frac{\text{kg}}{\text{tSM}}$	Dosiskoeffizienten (Ingestion) / $\frac{\text{Sv}}{\text{Bq}}$
²³⁷ Np	$2,14 \cdot 10^6$	1,63	$1,1 \cdot 10^{-7}$
²³⁸ Pu	87,74	0,68	$2,3 \cdot 10^{-7}$
²³⁹ Pu	$2,41 \cdot 10^4$	13,68	$2,5 \cdot 10^{-7}$
²⁴⁰ Pu	6550	7,08	$2,5 \cdot 10^{-7}$
²⁴¹ Pu	14,4	2,85	$4,7 \cdot 10^{-9}$
²⁴² Pu	$3,76 \cdot 10^5$	2,14	$2,4 \cdot 10^{-7}$
²⁴¹ Am	432,6	1,26	$2,0 \cdot 10^{-7}$
²⁴³ Am	7370	0,45	$2,0 \cdot 10^{-7}$
²⁴⁴ Cm	18,11	0,13	$1,2 \cdot 10^{-7}$

1.2 Brennstoffkreislaufkonzepte

Der nukleare Brennstoffkreislauf umfaßt alle Abläufe und Vorgänge zur Versorgung eines Kernreaktors mit Brennstoff („front end“) sowie zur Beseitigung der dabei anfallenden radioaktiven Abfälle („back end“). Je nach Art des Umganges mit den abgebrannten Brennelementen werden drei Brennstoffkreislaufkonzepte unterschieden:

- Konzept der Direkten Endlagerung (Once Through Cycle - OTC),
- Konzept der Wiederaufarbeitung (Reprocessing Fuel Cycle - RFC) und
- das Konzept eines mit P & T erweiterten Brennstoffkreislaufes (Advanced Fuel Cycle - AFC).

1.2.1 Konzept der Direkten Endlagerung

Die Direkte Endlagerung radioaktiver Abfälle ist schematisch in Abbildung 1.4 dargestellt. Nach der Entladung aus dem Reaktor wird in den abgebrannten Brennelementen durch die Zerfallsreaktionen der radioaktiven Spaltprodukte sehr viel Wärme und radioaktive Strahlung freigesetzt. Da es sich aber vorwiegend um kurzlebige Isotope handelt, werden die Brennelemente bis zum Abklingen der Radioaktivität und Wärmeentwicklung auf ca. 1/100 des Ausgangswertes für einige Jahre am Reaktorstandort in wassergefüllten Becken eingelagert.

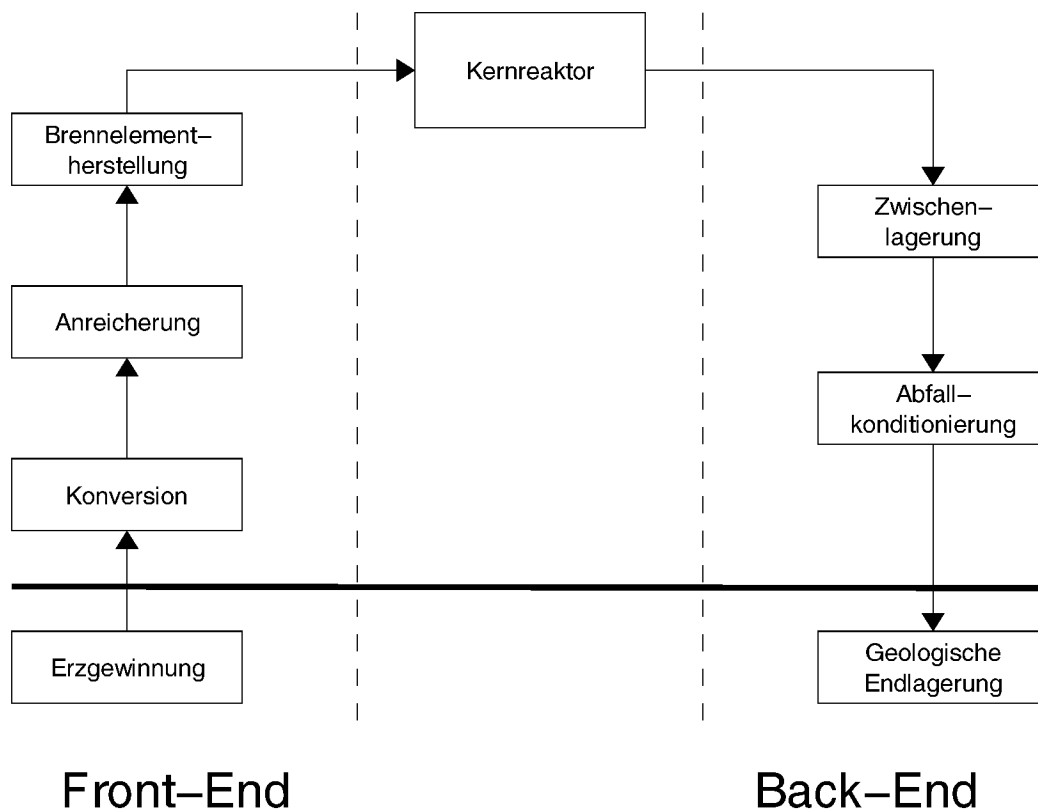


Abbildung 1.4: Brennstoffkreislaufkonzept der Direkten Endlagerung

Danach werden die Brennelemente in Transportbehälter verladen und für einige Jahrzehnte zwischengelagert. Die Nachwärmeproduktion ist bis zum Ende der Zwischenlagerung fast vollständig abgeklungen. Der Zwischenlagerung schließt sich die Konditionierung der Abfälle, Umladung in einen Endlagerbehälter und die Einlagerung in eine geeignete geologische Formation an (s. Abschnitt 1.1). Dieses Konzept wird zur Zeit vor allem von Spanien, Kanada, Schweden, Deutschland und den USA favorisiert [NEA99]. Die direkte Endlagerung unterteilt man in die permanente und die rückholbare Endlagerung. In den USA behält man sich für die nächsten hundert Jahre die Rückholung der abgebrannten Brennelemente vor. Damit hat man weiterhin die Möglichkeit, auf neue wissenschaftliche Erkenntnisse oder technische Entwicklungen zu reagieren und

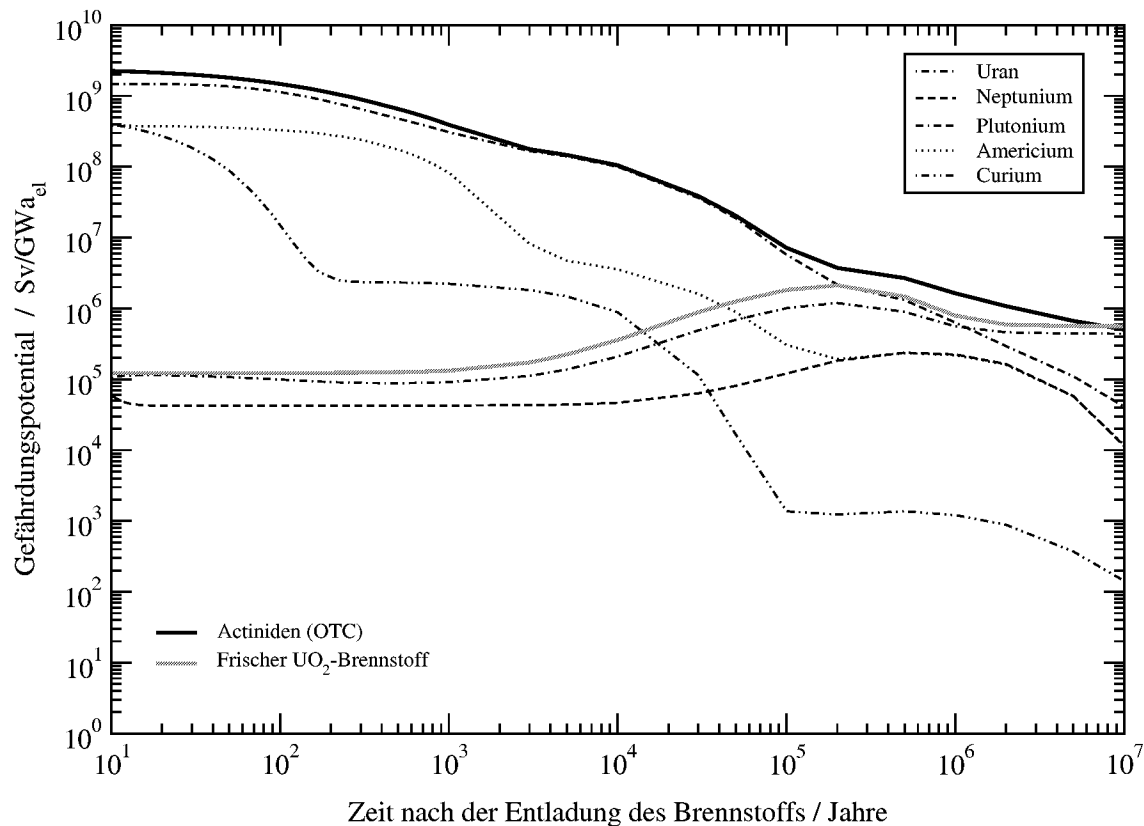


Abbildung 1.5: Gefährdungspotential einzelner Elemente abgebrannten UO_2 -Brennstoffs im OTC-Brennstoffkreislauf, 47,5 GWd/t SM Abbrand im DWR, 10 Jahre Abklingzeit, Dosiskoeffizienten für Ingestion nach ICRP 68 [ICR94]

die abgebrannten Brennelemente unter Umständen besser zu entsorgen. In Abbildung 1.5 ist der Verlauf des Gefährdungspotentials eines abgebrannten UO_2 -Brennstoffes über der Zeit bei direkter Endlagerung aufgetragen. Das Gesamtgefährdungspotential des abgebrannten Brennstoffes wird vor allem durch Plutonium-Isotope bestimmt.

1.2.2 Konzept der Wiederaufarbeitung

Der geringe Anteil spaltbarer Uranisotope in natürlichem Uran hat sehr früh dazu geführt, daß die Rückgewinnung und Verwendung spaltbaren Materials aus abgebranntem Brennstoff zur Herstellung von frischem Brennstoff untersucht wurde. Das Konzept der Wiederaufarbeitung sieht dabei, wie Abbildung 1.6 zu entnehmen ist, eine weitgehende Abtrennung von Uran und Plutonium vor. Die abgebrannten Brennelemente werden nach der Zwischenlagerung einer Wiederaufarbeitungsanlage zugeführt. Dort erfolgt durch das PUREX³-Verfahren die Auftrennung der verbrauchten Brennelemente in Wertstoffe (Uran, Plutonium) sowie in Abfallstoffe (höhere Actiniden, Spaltprodukte und Strukturmaterial). Die hochradioaktiven Actiniden, die Strukturmaterialien, die Spaltprodukte sowie die Abtrennungsverluste an Spaltmaterial werden nach

³PUREX = Plutonium Uranium Recovery by EXtraktion

einer Wartezeit verglast. Die Glasbinde stellen eine feste, stabile Verpackung des Abfalles dar. Die so konditionierten Abfälle können abschließend in ein geologisch geeignetes Endlager verbracht werden.

In den vergangenen Jahren haben einige Staaten von diesem Weg aus ökonomischen Gründen und wegen der Proliferationsgefahr Abstand genommen und betrachten die Direkte Endlagerung als den besseren Entsorgungsweg. Neben der Abtrennung von Uran und Plutonium wurde in den siebziger Jahren auch eine vollständige Abtrennung von Minoren Actiniden erwogen. Dieser Gedanke wurde aber bald als unrealisierbar verworfen[NEA99].

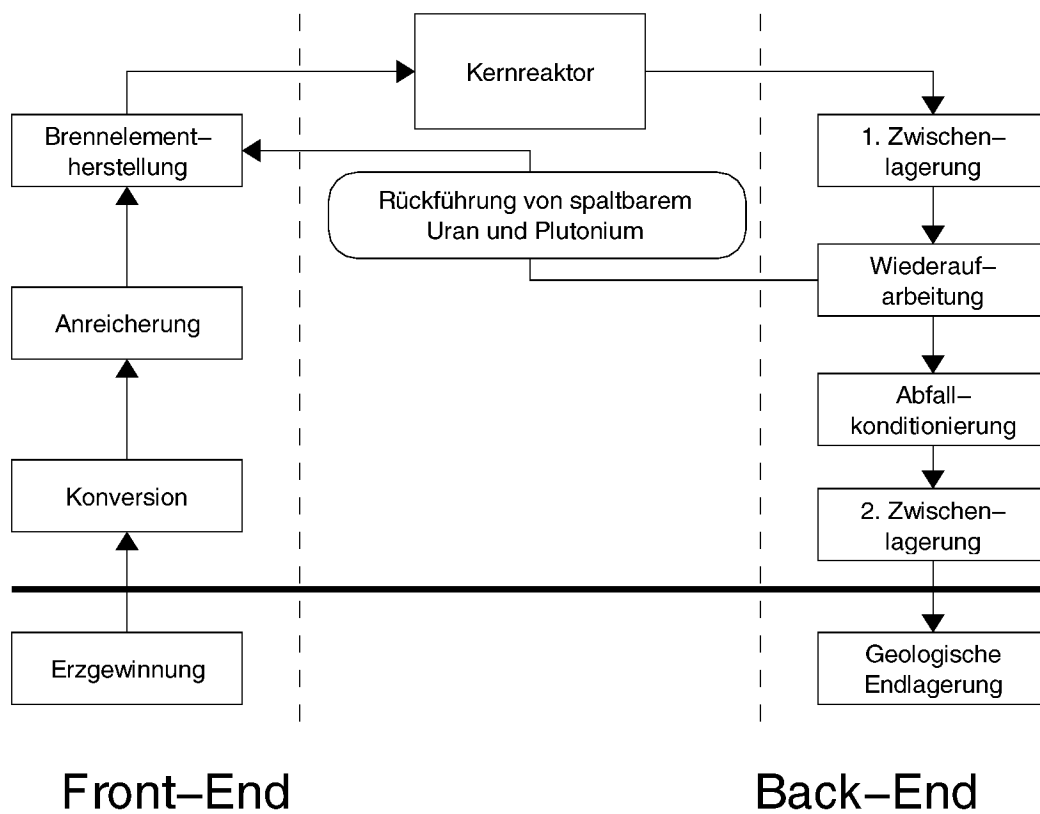


Abbildung 1.6: Brennstoffkreislaufkonzept der Wiederaufarbeitung

Einige europäische Länder wie z.B. Belgien, England, Frankreich, Schweiz, Deutschland⁴, Rußland und Japan gehen den Weg der Wiederaufarbeitung von abgebrannten Brennelementen für die überwiegende Masse des Brennstoffes. Mit modernen Anlagen zur Abtrennung von Uran und Plutonium können Abtrennverluste von ca. 0,5 Gew% realisiert werden. Es wird zur Zeit allerdings lediglich ein Teil des abgetrennten Plutoniums und Uran rückgeführt. Aus einem 1300 MW_{el}Leistungsreaktor (LWR) werden jährlich ca. 26 t abgebrannter Brennstoff mit einem

⁴In Deutschland ist durch das „Gesetz zur geordneten Beendigung der Kernenergienutzung zur gewerblichen Erzeugung von Elektrizität“ vom 22. April 2002 der Weg der Wiederaufarbeitung zum 1. Juli 2005 untersagt worden.

mittleren Abbrand von 40 GWd/t entladen. Durch die Wiederaufarbeitung dieses abgebrannten Brennstoffes können ca. 300 kg Plutonium in den Brennstoffkreislauf in Form von MOX-Brennelementen⁵ zurückgeführt werden [KKG99]. Der Einsatz des zurückgewonnen Plutoniums im LWR reduziert zwar die hohen Kosten, die für die Abtrennung und Rezyklierung aufgebracht werden müssen, hat aber auf das Langzeit-Gefährdungspotential des Brennstoffes eine eher geringe Auswirkung. Denn im LWR wird nur ein Teil des Plutoniums gespalten (ca. 25 Gew%) und vor allem werden langlebige Plutonium- und Americiumisotope aufgebaut.

In Abbildung 1.7 ist der Gefährdungsverlauf des LWR-Brennstoffes nach der Abtrennung von 99,5 Gew% Plutonium und Uran dargestellt. Der Verbleib der abgetrennten Plutonium- und Uran-Fractionen und deren Einfluß z.B. durch den oben beschriebenen Einsatz von Plutonium als MOX-Brennstoff im LWR auf das Gefährdungspotential wird nicht betrachtet.

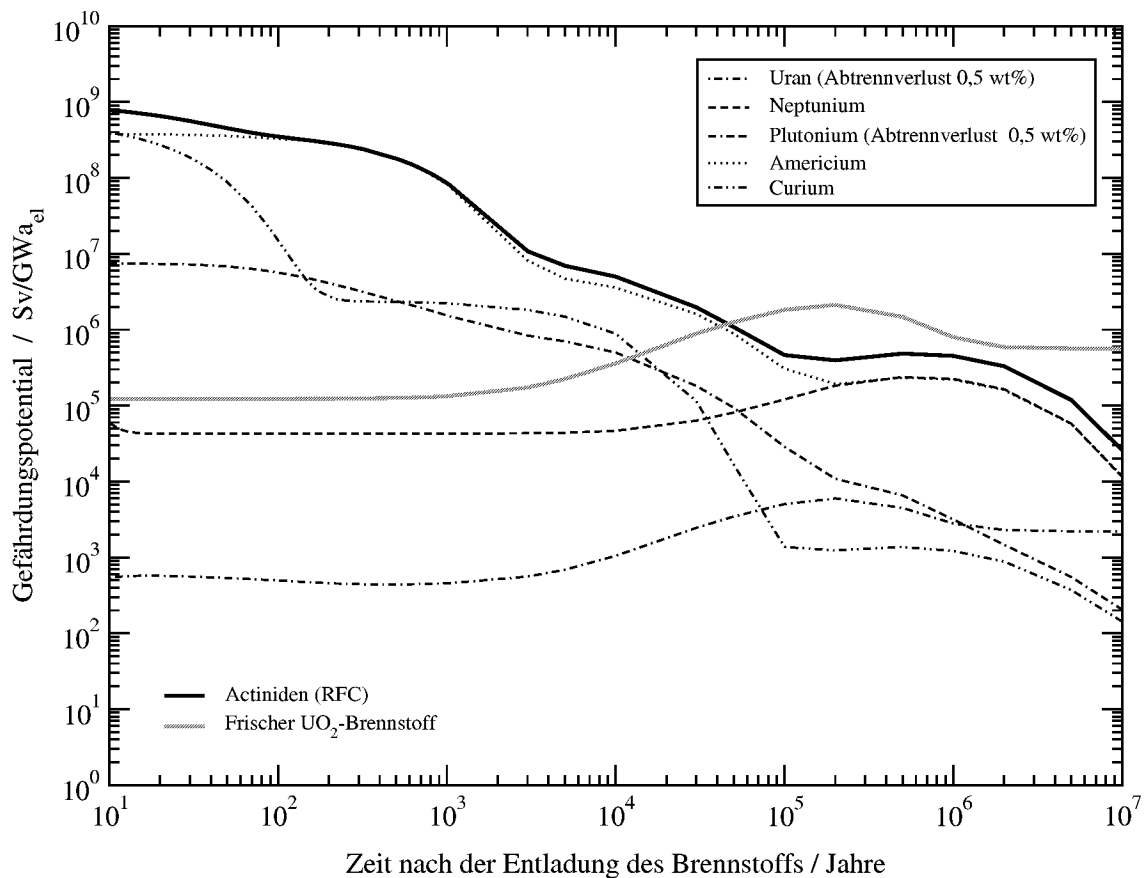


Abbildung 1.7: Gefährdungspotential einzelner Elemente abgebrannten UO₂-Brennstoffs im RFC-Brennstoffkreislauf, 47,5 GWd/t SM Abbrand im DWR, Abtrennung nach 10 Jahren Abklingzeit, Dosiskoeffizienten für Ingestion nach ICRP 68 [ICR94]

Mit dem Konzept der Wiederaufarbeitung wird, bei den hier getroffenen Annahmen, nach Abbildung 1.7 das Referenzniveau des frischen UO₂-Brennstoffes (s. Seite 2) erst nach mehre-

⁵MOX: Misch-OXid aus PuO₂ und UO₂

ren 10.000 Jahren unterschritten. Das Langzeit-Gefährdungspotential wird vor allem durch Plutonium- und Americium-Isotope bestimmt. Es wird deutlich, daß zusätzlich zur Abtrennung von Plutonium auch eine Abtrennung von Americium und Curium durchzuführen ist. Curium spielt hierbei als Precursor-Element für den Aufbau von Plutoniumisotopen eine bedeutende Rolle. Außerdem ist noch die Vernichtung bzw. der Verbleib der abgetrennten Actiniden sicherzustellen. Diese Probleme sollen durch das Konzept eines mit P & T erweiterten Brennstoffkreislaufes gelöst werden.

1.2.3 Konzept eines mit Partitioning & Transmutation erweiterten Brennstoffkreislaufes

Das Konzept eines mit P & T erweiterten Brennstoffkreislaufes hat zum Ziel, daß aus dem Brennstoffkreislauf nur geringe Mengen an langzeit-radiotoxischem Inventar in ein Endlager verbracht werden, so daß das Referenzniveau des frischen UO_2 -Brennstoffes nach ca. tausend Jahren unterschritten wird (vgl. Erläuterungen auf Seite 4). Der schematische Ablauf eines P & T-Konzeptes ist in Abbildung 1.8 dargestellt. Nach dem Entladen der verbrauchten Brennelemente

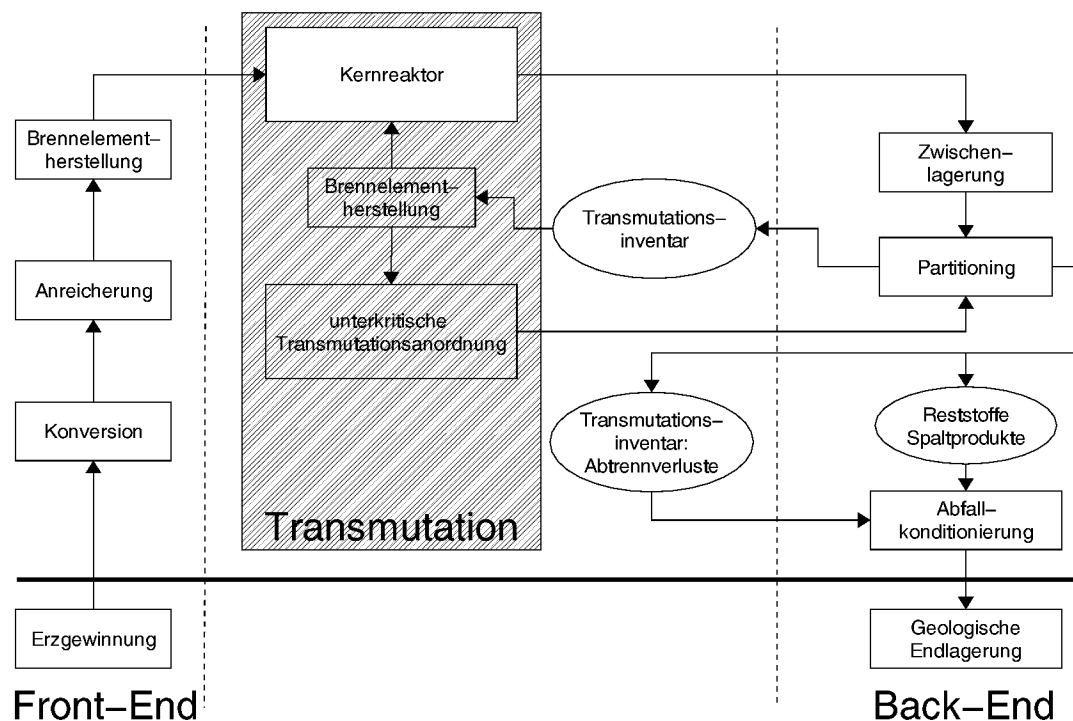


Abbildung 1.8: Brennstoffkreislaufkonzept mit P & T

aus dem Reaktor schließt sich auch bei diesem Konzept eine Zwischenlagerung der Brennelemente an. Danach erfolgt eine Abtrennung (Partitioning) der für das Langzeit-Gefährdungspotential relevanten Nuklide (s. Tabelle 1.3, Seite 5). Diese werden als Transmutationsinventar der Transmutation zugeführt. Die Transmutation soll in kritischen oder unterkritischen nuklearen Einrichtungen erfolgen. Auf die unterschiedlichen Ansätze wird in Abschnitt 2 eingegangen. Die

Abfallstoffe aus den Transmutationseinrichtungen werden wiederum dem Partitioning unterzogen. Die nicht abtrennbaren Fraktionen werden als Abtrennverluste der Abfallkonditionierung zugeführt und schließlich in einem Endlager deponiert. Neben den Abtrennverlusten fallen auch langlebige Spaltprodukte und andere radioaktive Abfallstoffe an, die ebenfalls nach der Abfallkonditionierung endgelagert werden. Das Langzeit-Gefährdungspotential der aus einem P & T - Brennstoffkreislauf entfernten Stoffströme wird durch die Abtrennverluste bei der Aufbereitung des Transmutationsinventars durch Partitioning bestimmt. In Abbildung 1.9 ist der zeitliche Gefährdungsverlauf abgebrannten DWR-Brennstoffes für ein Brennstoffkreislaufkonzept mit P & T aufgetragen. Dabei wird von 1% Abtrennverlust an Uran, Neptunium, und Curium sowie 0,02% Abtrennverlust an Plutonium und Americium ausgegangen. Es wird deutlich, daß bei diesen Annahmen das Referenzniveau des frischen Brennstoffes nach ca. 1000 Jahren unterschritten wird. Abschließend sind in Abbildung 1.10 noch einmal alle drei Brennstoffkreislaufkonzepte und das damit verbundene Gefährdungspotential des abgebrannten UO_2 -Brennstoffes aufgetragen.

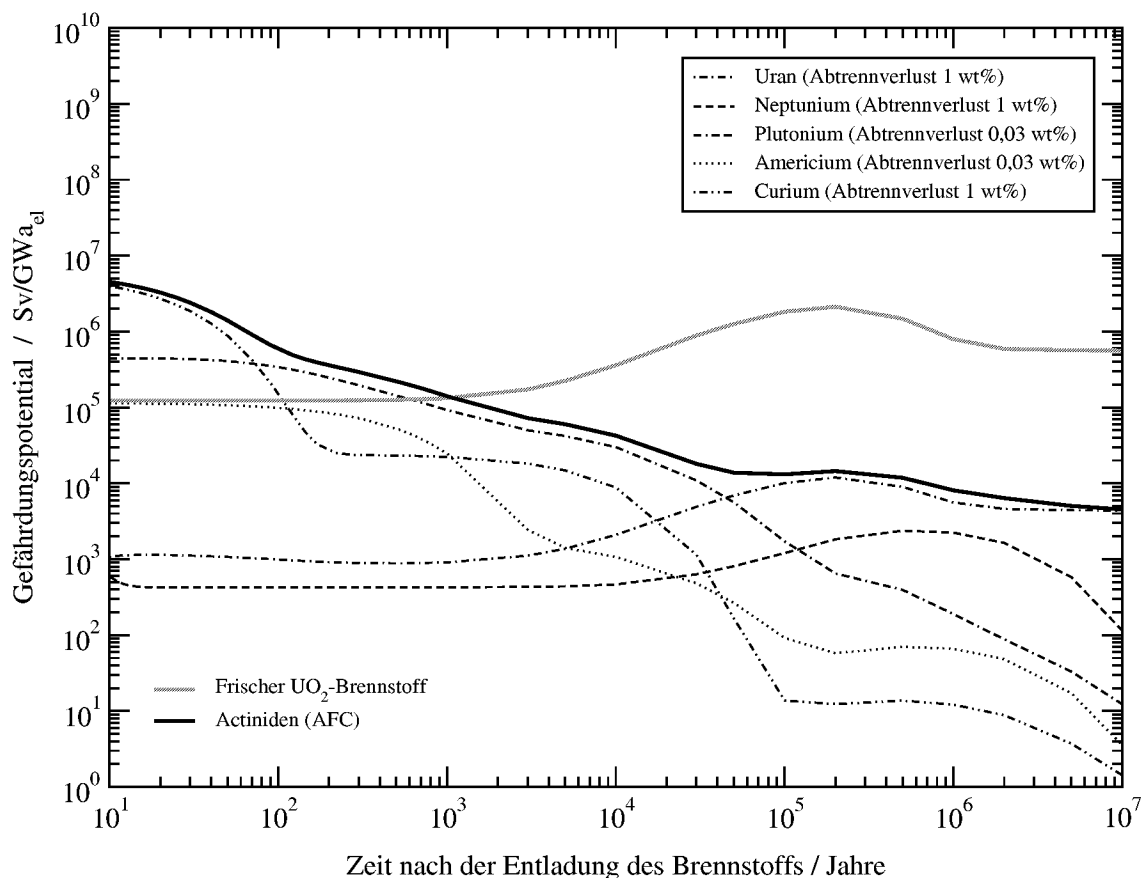


Abbildung 1.9: Gefährdungspotential einzelner Elemente abgebrannten UO_2 -Brennstoffes im AFC-Brennstoffkreislauf, 47,5 GWd/t SM Abbrand im DWR, Abtrennung nach 10 Jahren Abklingzeit, Dosiskoeffizienten für Ingestion nach ICRP 68 [ICR94]

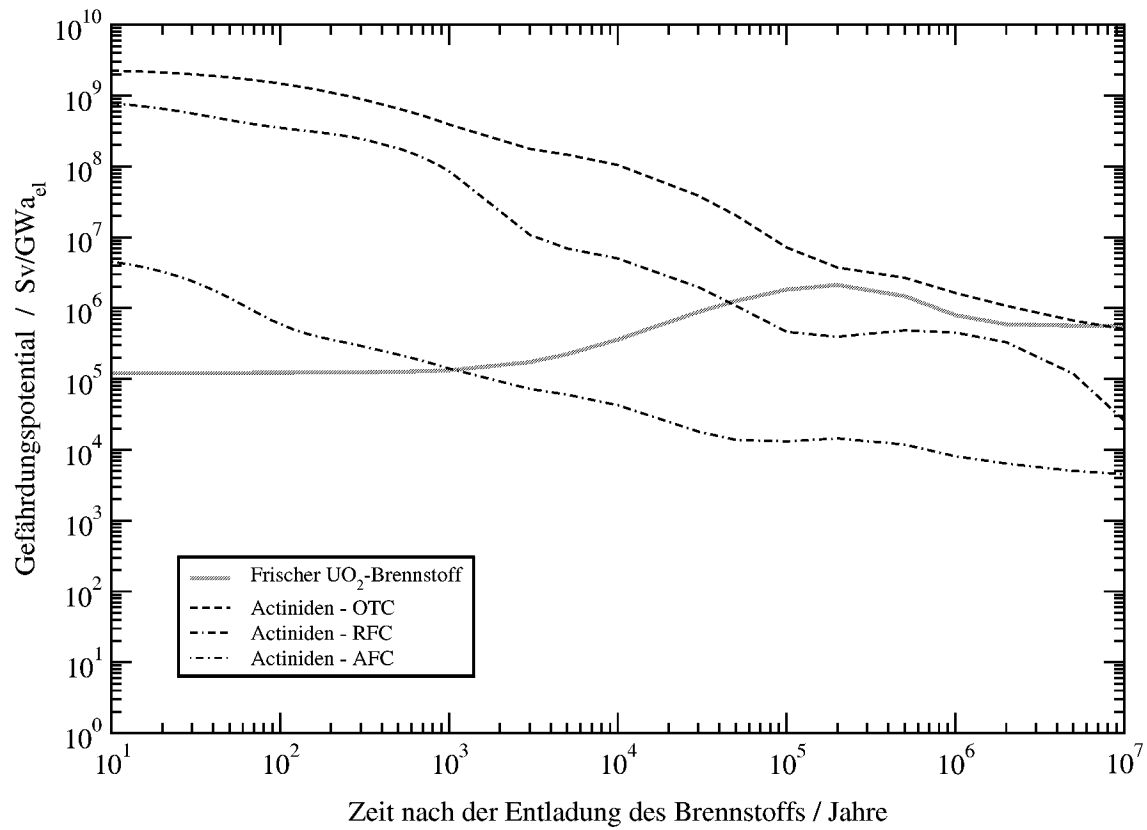


Abbildung 1.10: Gefährdungspotential abgebrannten UO₂-Brennstoffs mit einem Abbrand im DWR von 47,5 GWd/t SM in verschiedenen Brennstoffkreislaufkonzepten, 10 Jahre Abklingzeit. Dosiskoeffizienten für Ingestion nach ICRP 68 [ICR94] Für die Abtrennverluste im RFC und AFC gelten die oben gemachten Angaben.

Kapitel 2

Transmutationssysteme

Die Transmutation relevanter¹ Radionuklide kann durch Einfang von Neutronen oder durch Spallationsreaktionen erfolgen. Die spallationsinduzierte Transmutation erfolgt durch Beschuß des umzuwandelnden Materials mit hochenergetischen Protonen oder Deuteronen. Forschung und Entwicklung konzentrieren sich aber vor allem auf die neutroneninduzierte Umwandlung.

Für die Charakterisierung bestehender oder für die Entwicklung neuer Anlagen zur Transmutation sind aus neutronenphysikalischer Sicht die folgenden drei Parameter von Bedeutung.

1. Neutronenspektrum

- Thermisches Neutronenspektrum
- Schnelles Neutronenspektrum

2. Kritikalität

- Selbsterhaltende Kettenreaktion in kritischer Anordnung
- Unterkritische Anordnung mit externer Neutronenquelle

3. Brennstoffsystem

- Fester Brennstoff
- Flüssiger Brennstoff

In der weiteren Darstellung soll zunächst die Bedeutung des Neutronenspektrums für die Transmutation herausgearbeitet werden. Danach wird ein kurzer Überblick über bestehende Systeme zur Transmutation und bisherige Entwicklungen bzw. Forschungsarbeiten gegeben. Dabei wird deutlich werden, daß die oben aufgeführten Parameter in unterschiedlicher Weise miteinander kombiniert werden können. Sie werden deshalb nicht nacheinander abgearbeitet, sondern in den verschiedenen Kombinationen diskutiert.

¹Die relevanten Radionuklide sind in den Tabellen 1.2 - 1.3 des Kapitels 1.1 zusammengefaßt.

2.1 Bedeutung des Neutronenspektrums für Transmutation

Setzt man schwere Atomkerne einem Neutronenfluß aus, gibt es prinzipiell zwei unterschiedliche Reaktionen:

- Durch *Spaltung* entstehen β^- und/oder n, γ -Emitter, die eine wesentlich kürzere Halbwertszeit als die Ausgangsnuklide haben. Spaltreaktionen finden im thermischen Neutronenspektrum vor allem bei Nukliden mit ungeraden Massenzahlen statt (Ausnahme: z.B. $^{242\text{m}}\text{Am}$). Besonders hervorzuheben sind hierbei die Isotope ^{233}U , ^{235}U , ^{239}Pu , ^{241}Pu , ^{245}Cm . Im schnellen Neutronenspektrum sind prinzipiell alle Atomkerne spaltbar. Die Spaltung ist die einzige Möglichkeit zur Vernichtung der relevanten Nuklide und wird daher auch als Verbrennung² bezeichnet.
- Bei allen anderen, nicht spaltbaren³, schweren Atomkernen führt dagegen die *Umwandlung durch Einfang von Neutronen* zum Aufbau höherer Nuklide. Hierbei kann es zur Bildung eines Nuklids, das in wesentlich kürzerer Zeit als das Ausgangsnuklid radioaktiv zerfällt oder eines spaltbaren Kerns, kommen. Es ist aber auch möglich, daß Nuklide mit radiologisch wesentlich schlechteren Eigenschaften, als die des Ausgangsnuklids (z.B. längere Halbwertszeit, größere Radiotoxizität), entstehen.

Umwandlung durch Einfang von Neutronen führt in nuklearen Systemen mit thermischem Neutronenspektrum (z.B. Leistungsreaktoren), wie in Abbildung 2.1 dargestellt, zum Aufbau höherer Actiniden. Es kommt zunächst zum Aufbau höherer Isotope innerhalb eines Elementes. Über β^- -Zerfälle entstehen neue Elemente mit höheren Massenzahlen. In Leistungsreaktoren ist ^{238}U der Ausgangspunkt der Aufbaukette. Neutroneneinfang im ^{238}U , gefolgt von zwei β^- -Zerfällen führen im Reaktor zur in-situ Erbrütung von ^{239}Pu . Allerdings werden neben der erwünschten Generierung neuen Brennstoffes auch höhere Plutonium-Isotope und Minore Actinide, die sich nur bedingt im thermischen Reaktor spalten lassen, aufgebaut.

Wie bereits im vorigen Kapitel dargelegt, wird durch Partitioning ein hoher Abtrennfaktor für die verschiedenen Transuranelemente angestrebt. Der technische Aufwand und die damit verbundenen hohen Kosten werden allerdings eine Isotopentrennung wahrscheinlich nicht zulassen. Das bedeutet, daß das Transmutationsinventar neben spaltbaren Isotopen auch solche enthalten wird, die zum Aufbau höherer Isotope führen können. Es ist leicht einzusehen, daß die Beseitigung der langlebigen Transurane nur dann erreicht werden kann, wenn beim Einsatz eines Transmutationssystems mehr Isotope vernichtet als aufgebaut werden. Da die Wechselwirkungen von Atomkernen und Neutronen von der Neutronenenergie abhängig sind, kann dieses Ziel vor allem durch die Wahl eines geeigneten Neutronenspektrums für ein System zur Vernichtung von Transuranen erreicht werden. Es stellt sich die Frage, bei welcher Neutronenenergie das Verhältnis von Neutroneneinfang zu Spaltung

$$\alpha = \frac{\sigma_{\gamma}}{\sigma_f} \quad (2.1)$$

²engl.: incineration

³Bei der Angabe ob spaltbar oder nicht, bezieht man sich, wenn nicht anders angegeben, in der Regel auf thermische Neutronenspektren.

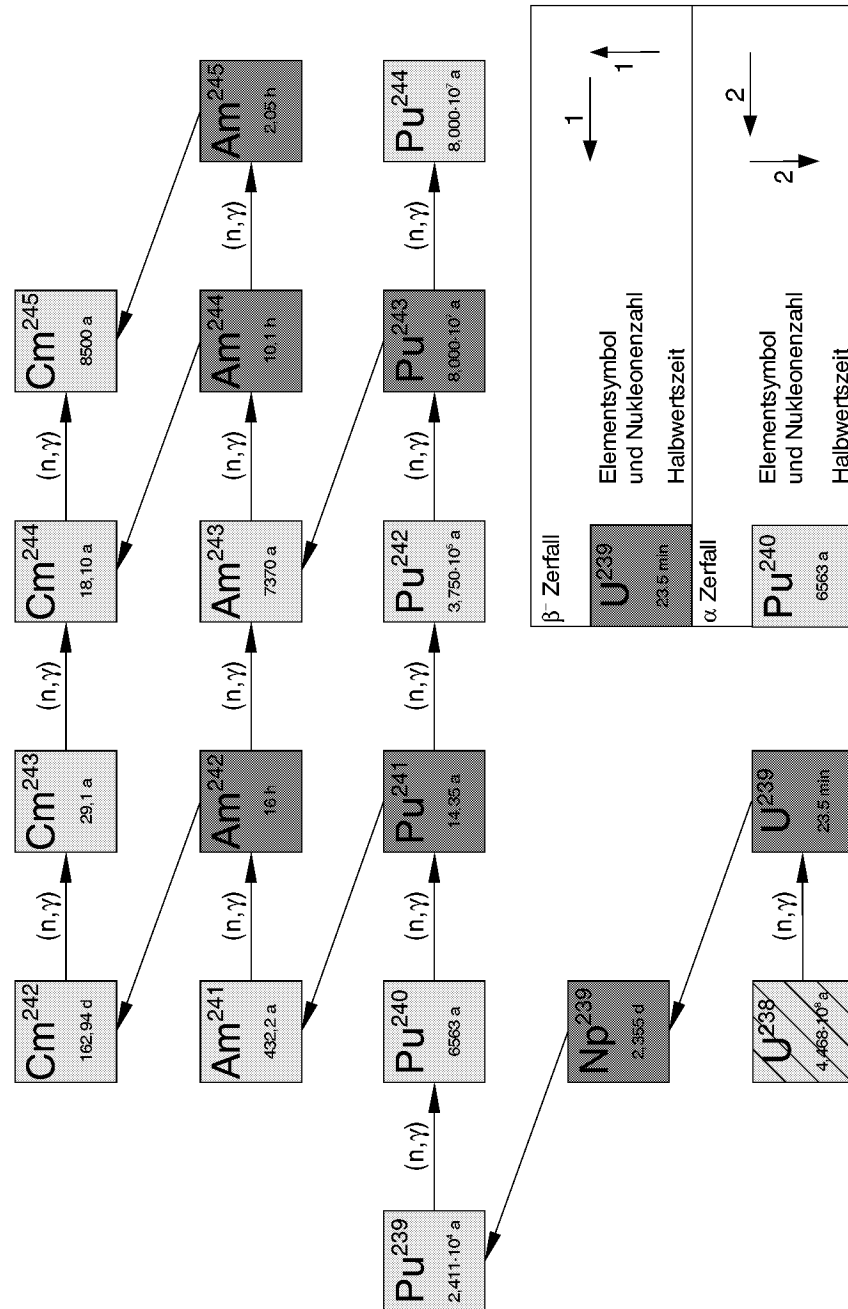
Abbildung 2.1: Aufbauwege höherer Actiniden ausgehend von ^{238}U

Tabelle 2.1: Mittlere Wirkungsquerschnitte für Spalt- und Neutroneneinfang-Reaktionen einiger Actiniden und der α -Wert bei thermischem Neutronenspektrum (links) und schnellem Neutronenspektrum (rechts) [NEA99]

Isotop	$\overline{\sigma}_\gamma$ / barn	$\overline{\sigma}_f$ / barn	α	Isotop	$\overline{\sigma}_\gamma$ / barn	$\overline{\sigma}_f$ / barn	α
^{235}U	8,70	38,80	0,22	^{235}U	0,57	1,98	0,29
^{237}Np	33,00	0,52	63,00	^{237}Np	1,70	0,32	5,30
^{238}Pu	27,70	2,40	12,00	^{238}Pu	0,58	1,10	0,53
^{239}Pu	58,70	102,00	0,58	^{239}Pu	0,56	1,86	0,30
^{240}Pu	110,60	0,50	221,00	^{240}Pu	0,57	0,36	1,58
^{241}Pu	36,70	94,80	0,38	^{241}Pu	0,47	2,49	0,19
^{242}Pu	29,00	0,43	67,00	^{242}Pu	0,44	0,23	1,90
^{241}Am	110,00	1,10	100,00	^{241}Am	2,00	0,27	7,40
^{243}Am	49,00	0,44	111,00	^{243}Am	1,80	0,21	8,57
^{243}Cm	14,00	88,00	0,16	^{243}Cm	1,00	7,20	0,14
^{244}Cm	16,00	1,00	16,00	^{244}Cm	0,60	0,42	1,40

am geringsten ist. Die mittleren Wirkungsquerschnitte für Spaltung und Neutroneneinfang sowie die α -Werte einiger Actiniden bei thermischen und schnellen Neutronenenergien sind in Tabelle 2.1 zusammengestellt.

Ein Vergleich der Werte in Tabelle 2.1 verdeutlicht, daß in einem System mit schnellem Neutronenspektrum die meisten Actiniden geringere α -Werte aufweisen als in einem System mit thermischem Neutronenspektrum. Für die Entwicklung eines Transmutationssystems bietet sich unter dem Gesichtspunkt der Vermeidung des Aufbaus höherer Isotope aus den Actiniden der Einsatz eines schnellen Neutronenspektrums an. Es ist jedoch zu beachten, daß dem günstigen α -Wert geringe absolute Spaltwirkungsquerschnitte σ_f entgegenstehen, die nur in der Größenordnung weniger barn⁴ liegen. Um eine sinnvolle Transmutationsrate

$$T = M \cdot \sigma_f \cdot \Phi \quad (2.2)$$

zu erreichen, ist daher eine Anhebung des Transmutationsinventars M und/oder des Neutronenflusses Φ erforderlich.

2.2 Bisherige Untersuchungen

Transmutation kann in einer kritischen Anordnung mit selbsterhaltender Kettenreaktion oder in einer unterkritischen Anordnung mit externer Neutronenquelle stattfinden. Da die Art der Bereitstellung der Neutronen für die Transmutation irrelevant ist, ergibt sich vielmehr die Frage, ob man bereits existierende Reaktorsysteme einsetzen kann oder ob völlig neue Anordnungen

⁴1 barn $\equiv 10^{-24} \text{cm}^2$

entwickelt werden müssen. Am naheliegendsten ist es, zunächst kritische Systeme aus der konventionellen Kernenergienutzung für Transmutation zu verwenden.

2.2.1 Einsatz kritischer Reaktorsysteme

Thermische kritische Reaktorsysteme

Bei den Untersuchungen zur Eignung bestehender Reaktorsysteme hat man sich bei thermischen Reaktoren vor allem mit Leicht- und Schwerwasserreaktoren und dem Hochtemperaturreaktor beschäftigt.

Bei den Forschungen zu *Leichtwasserreaktoren* können folgende Schwerpunkte unterschieden werden:

- Potentiale und Grenzen der Plutonium- und Uranrezyklierung in MOX-Brennstoffen:
Der Einsatz von Uran-Plutonium Mischoxid Brennelementen ist nach [Phl95] zwar möglich, führt aber nach einmaliger Rezyklierung durch den Aufbau neuer Actiniden zunächst zu einem höheren Gefährdungspotential. Die Reduktion des Gefährdungspotentials wäre nur durch eine Vielzahl von Rezyklierungen möglich. Die Grenzen sind dabei aufgrund technischer Randbedingungen bei der Brennelementherstellung zur Zeit durch maximal 4 Rezyklierungen gesetzt. Der Gesamtnutzen dieses Vorgehens ist daher nach [Lyp96] fraglich.
- Brennstoffkomposition:
Neben den etablierten oxidischen Brennstoffen werden auch nitridische Brennstoffe auf ihre Eignung zum Einsatz im Reaktor untersucht.
- Homogene Beimischung von Transuranen in den Brennstoff oder heterogener Einsatz von normalen Brennstäben und Transuranbrennstäben.
- Einsatz von Brennstoff-Inertmatrizen:
Andere Studien (z.B. [MPR⁺95]) untersuchen den Ersatz von Brennstäben durch Brennstäbe mit Plutonium- MA- Inertmatrix .
- Einfluß der Transurane auf die Reaktordynamik
- Ersetzen des Uran-MOX-Brennstoffes durch Thorium-MOX-Brennstoff:
Das größte Problem beim Einsatz von Uran- bzw. MOX- Brennstoff zur Transmutation stellt der Aufbau von Am-241, Pu-241 und vor allem Cm-244 im thermischen Neutronspektrum aus dem Hauptbestandteil des Uranbrennstoffes U-238 dar (vgl. Abbildung 2.1). Die Nutzung des bisherigen Uran-Brennstoffkreislaufes für die Transmutation muß deshalb in Bezug auf die Minderung des Gefährdungspotentials negativ bewertet werden. Eine Lösungsmöglichkeit ist im Thorium-Brennstoffkreislauf zu sehen. Durch den Verzicht auf den Einsatz von U-238, wird die Erbrütung relevanter Actinidenmengen vermieden. Der Thorium-Brennstoffkreislauf wird unter anderem im Rahmen des 4. und 5. Rahmenprogrammes der EU untersucht [GS00].

Bei *Candu-Reaktoren* können die abgebrannten Leichtwasserreaktor- Brennelemente wegen der geringen parasitären Absorptionen des D_2O aus neutronenphysikalischer Sicht ohne erneute Anreicherung direkt in den schwerwassermodierten Candu- Reaktor eingesetzt werden. Diese Vorgehensweise ermöglicht bereits eine Reduktion der hochaktiven Reststoffe um ca. 30 % gegenüber deren Gehalt im Ausgangs(-LWR-)brennstoff [LKa93]. Obwohl diese Mengenreduktion noch zu gering ist, sind weitere Untersuchungen gerechtfertigt. Besonders wenn man berücksichtigt, daß zur Herstellung der Candu- aus den LWR- Brennstäben auf den bewährten AIROX-Prozeß zurückgegriffen werden kann.

Ein *Hochtemperaturreaktor* kann mit hohem Uran-Thorium-Anteil im Brennstoff, der in Form von coated particles ausgeführt ist, betrieben werden. Aus dem Thorium wird ein Teil des benötigten Spaltstoffes (^{233}U) erbrütet. Die hohen Abbrände von ca. 80 MWd/kg SM und der grundsätzlich spezifisch geringere Transuranaufbau führen gegenüber den Leichtwasserreaktoren zu einer Absenkung des Gefährdungspotentials durch die Actinidenelemente um den Faktor zwei [Phl95]. Wird der Reaktor mit angereicherten Plutonium-Brennstoff betrieben, sind Abbrandraten wie in schnellen Systemen möglich [Hug95]. So könnte man innerhalb einer Brennstoffstandzeit das eingesetzte Plutonium um bis zu 95 % abbrennen. Eine weitergehende Reduktion macht jedoch Rezyklierungen erforderlich. Auf dem Gebiet der Aufarbeitung von coated particles wurden bisher nur wenige Erfahrungen gesammelt. Es bedarf daher noch intensiver F & E Arbeit.

Schnelle kritische Reaktorsysteme

In Abschnitt 2.1 wurde deutlich gemacht, daß man für die Vernichtung der höheren Actiniden in einem Brennstoffkreislaufsystem neben den thermischen Transmutationssystemen auch Systeme mit schnellem Neutronenspektrum braucht. Man greift hierbei auf die langjährigen Erfahrungen bei der Entwicklung *Schneller natriumgekühlter Brutreaktoren* zurück. Da zur Zeit kein schnelles Reaktorsystem im Leistungsbetrieb ist, konzentriert man sich bei der Nutzung der Technologie Schneller Reaktoren für die Transmutation auf die Entwicklung von „Fast Burner Reactors“. Die Schwerpunkte der Forschungs- und Entwicklungsarbeit liegen auf den Gebieten der Reaktordynamik, dem Sicherheitsverhalten und der Brennstoffentwicklung. Es werden hierbei oxidische, nitridische und metallische Brennstoffe auf ihre Eignung für den Einsatz im schnellen Neutronenspektrum untersucht. Die guten Erfahrungen mit Oxidbrennstoffen in Wasserreaktoren führte auch zu deren Einsatz in schnellen Brutreaktoren mit Natriumkühlung [Zie85]. Für Oxidbrennstoffe kann man mit dem PUREX- Verfahren auf ein erprobtes System zur Rezyklierung zurückgreifen. Der Einsatz metallischer Brennstoffe hat dagegen den Vorteil, daß eine wesentlich bessere Brutrate erreicht werden kann. Dieses Verhalten ist auf das schnellere Neutronenspektrum zurückzuführen. Denn im Gegensatz zum oxidischen sind im metallischen Brennstoff keine, die Neutronen abbremsenden, Sauerstoffatome enthalten. Die Möglichkeiten des Einsatzes metallischer Brennstoffe werden vor allem in Japan und den USA untersucht. Die USA greifen bei ihren Forschungen auf das Konzept des Flüssigmetall-Reaktors aus den 70-er Jahren zurück. Das Ziel soll der Einsatz der metallischen Brennstoffe in einem Advanced Liquid Metal Reactor (ALMR) sein. Im Zusammenhang mit dem IFR (Integral Fast Reactor) Programm wurde in den USA bereits ein Recyclesystem für metallische Brennstoffe, das ARS (Actinide Recycle System), entwickelt [EB95].

2.2.2 Entwicklung unterkritischer Transmutationssysteme

Unterkritische Systeme zeichnen sich dadurch aus, daß keine stabile Kettenreaktion mit $k_{\text{eff}} = 1$ aufrechterhalten werden muß. Die fehlende Kritikalitätsbedingung kann zum einen ein Sicherheitsgewinn sein und läßt zum anderen viel Freiraum für die Gestaltung solch einer Anlage, unter anderem bezüglich Neutronenspektrum und Brennstoffkonfiguration. Allerdings müssen Neutronen zur Aufrechterhaltung einer „Kettenreaktion“ von außen bereitgestellt werden (siehe auch Abschnitt 4.1). In einem Teilchenbeschleuniger werden Protonen auf eine sehr hohe Energie von bis zu 1,6 GeV beschleunigt, und der Protonenstrahl anschließend auf ein Spallationstarget geleitet. Beim Auftreffen der hochenergetischen Protonen auf das Target werden durch Spallationsreaktionen Neutronen freigesetzt. Die Neutronen treten in die unterkritische Spaltstoffanordnung im Blanket ein. Sie werden dort in den umzuwandelnden Kernen absorbiert und erzeugen weitere Spaltneutronen. In Abbildung 2.2 ist eine unterkritische beschleunigergetriebene Transmutationsanlage (ADS: Accelerator Driven System) schematisch dargestellt.

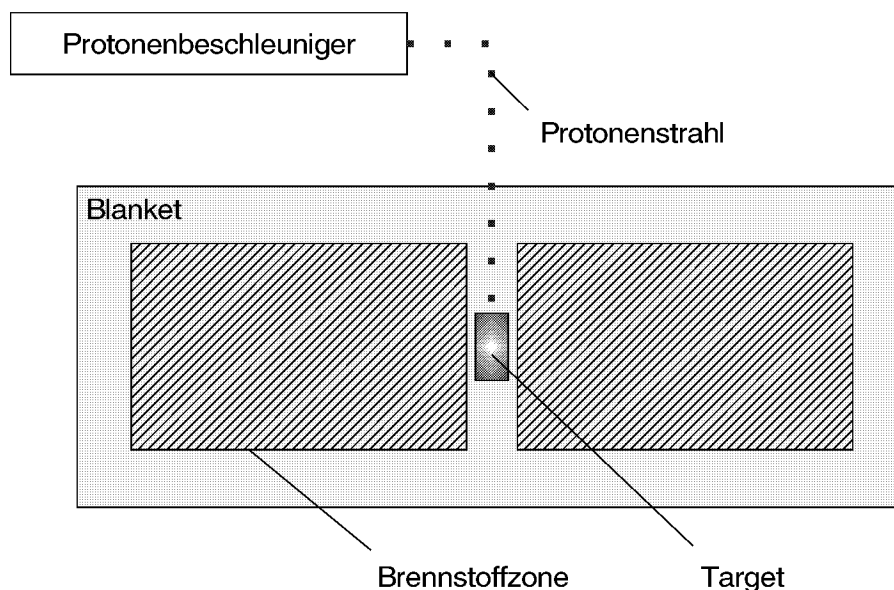


Abbildung 2.2: Schematische Darstellung einer beschleunigergetriebenen, unterkritischen Transmutationsanlage (ADS)

Im Vergleich zu kritischen Systemen haben unterkritische Systeme im allgemeinen ein günstigeres Sicherheitsverhalten gegenüber Kritikalitätsstörfällen [RT94],[TR92]. Allerdings muß sichergestellt sein, daß die Anlage in jedem Betriebszustand unterkritisch bleibt. In die Sicherheitsbetrachtungen muß der Protonenbeschleuniger als neuer Anlagenbestandteil aufgenommen, das Verhalten der Anlage auf Ausfall, fehlerbedingtes Anfahren des Beschleunigers usw. untersucht werden. Die bisher untersuchten unterkritischen Transmutationssysteme unterscheiden sich vor allem durch das Neutronenspektrum und die Form des Brennstoffes. Neben festen Brennstoffen wurden auch flüssige Brennstoffe auf ihre Eignung untersucht. Eine vergleichende Betrachtung von Fest- und Flüssigbrennstoffkonzepten erfolgt in Abschnitt 2.3. Im Folgenden werden kurz verschiedene Transmutationssysteme, die bislang entwickelt und untersucht wurden, vorgestellt.

das Los Alamos Salzschnmelzen-ATW-Konzept entwickelt. Hierbei handelt es sich um ein System mit Graphitreflektor, einem Blei-Wismut Flüssigmetalltarget und einem angeschlossenen pyrochemischen Separationsprozeß. Als Brennstoffträger wird eine Mischung aus Lithium-Fluorid und Beryllium-Fluorid (${}^7\text{LiF} - \text{BeF}_2$ 0,67:0,33) verwendet. Der Brennstoff fließt durch die Bohrungen in den Graphitblöcken, die um das Blei-Wismut-Flüssigtarget angeordnet sind. Die Anlage soll mit einem 800MeV-Protonenstrahl bei $k_{\text{eff}} = 0,95$ betrieben werden [BVW⁺97].

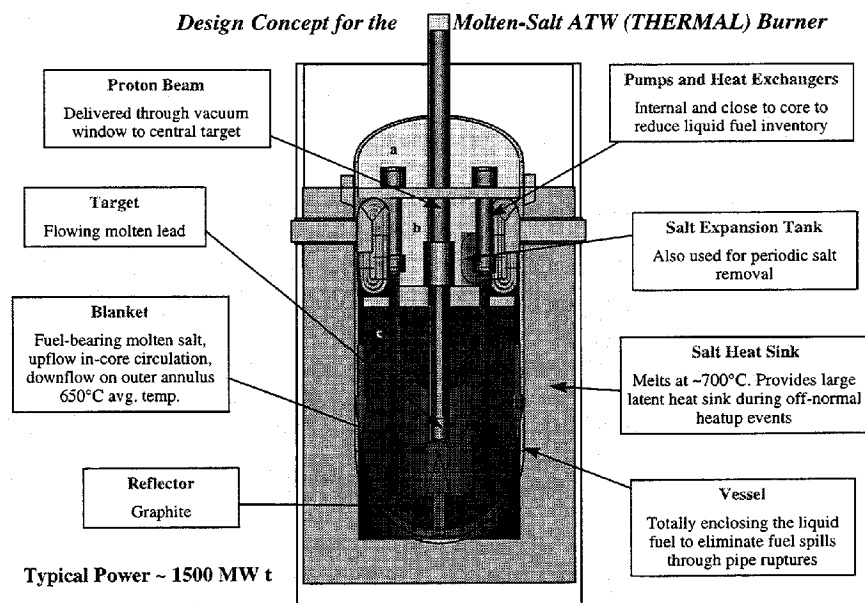


Abbildung 2.4: ATW-Salzschnmelzenkonzept [BVW⁺97]

(b) Jülicher Transmutationskonzept:

Das Transmutationskonzept wurde am Institut für Sicherheitsforschung und Reaktortechnik des Forschungszentrums Jülich entwickelt. Dieses Konzept sieht einen Hochleistungsbeschleuniger mit einer maximalen Leistung von 64 MW (Protonenenergie: 1,6 GeV und Protonenstrom: bis 40 mA) vor. Es wird ein Blei-Flüssigmetalltarget eingesetzt. Der Brennstoff ist in flüssigem Blei gelöst (als echte Lösung oder Suspension). Blei ist nicht nur Brennstoffträger sondern gleichzeitig auch Kühlmittel. Das Blanket besteht aus einem Graphitmoderator in dem brennstoffführende Rohrleitungen angeordnet sind. Direkt um das Spallationstarget und im Graphitreflektor befinden sich jeweils eine Transmutationszone für Spaltprodukte. Verschiedene Aspekte wie z.B. Brennstoffzusammensetzungen, konstruktive Ausführungen und Sicherheitseigenschaften zu diesem Konzept wurden in [Pio00],[LA97] und [Lyp96] untersucht.

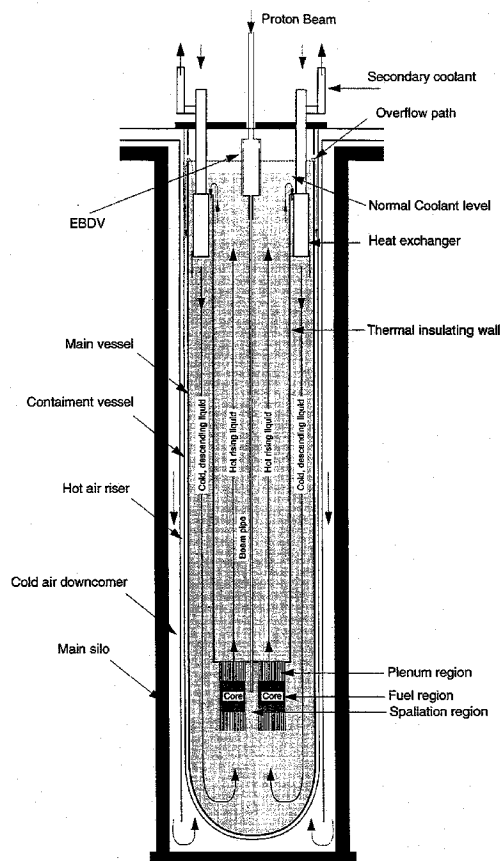
Schnelle unterkritische Transmutationssysteme

Die bisherigen schnellen kritischen Reaktorsysteme haben einige problematische Sicherheitseigenschaften, die man bei der Entwicklung unterkritischer schneller Transmutationssysteme vermeiden möchte. Ein Problem kritischer schneller Reaktoren stellt wegen der kurzen Neutronenlebenszeiten im Core die kontrollierte Abschaltung des Systems dar. Stellt man die Unterkri-

tikalität einer Transmutationsanlage in jedem Betriebszustand sicher, so ist durch Abschalten des Protonenstrahles auch die gesamte Anlage abschaltbar. Schnelle Reaktoren nach dem Prinzip des „Schnellen Brüters“ werden mit Natrium gekühlt. Durch Eigenabsorption und Moderation von Natrium hat der Reaktor bei Kühlmittelverlust einen positiven Voidkoeffizient. Dieser Effekt soll bei den verschiedenen Konzepten für unterkritische Transmutationssysteme durch den Einsatz von Blei als Kühlmittel vermieden werden.

1. Fester Brennstoff:

(a) CERN-Energy Amplifier:



Zunächst als Energy Amplifier primär zur Energieerzeugung in einer unterkritischen kerntechnischen Anlage mit thoriumbasiertem Brennstoff konzipiert, wurde auch das Potential dieses Konzepts für die Transmutation untersucht. Der Energy Amplifier wird mit einem Cyclotron-Teilchenbeschleuniger betrieben. Er wird mit Blei durch Naturkonvektion gekühlt. Um diese inhärent sichere Wärmeabfuhr nutzen zu können, hat der Hauptbehälter des Energy Amplifiers einen Durchmesser von 6 m und eine Höhe von 30 m. Bei einer maximalen Betriebstemperatur zwischen 600 und 700 °C wird eine Aufheizspanne von ca. 200 K erreicht. Es wird bei $k_{\text{eff}} = 0,98$ eine thermische Leistung von 1500 MW_{th} erzeugt. Genauere Angaben zum konzeptionellen Design der Anlage können zB. [RRB⁺95] entnommen werden. In der nebenstehenden Abbildung aus [RRB⁺95] ist ein Querschnitt des Energy Amplifiers dargestellt.

(b) Jülicher Transmutationskonzept:

In [Tit97] und [Tit98] wurde das oben bereits erwähnte Jülicher Konzept modifiziert. Der Brennstoff ist in fester Form ausgeführt. Die im Blanket angeordneten Brennelemente werden von flüssigem Blei gekühlt. Die Zonen zur Spaltprodukttransmutation entfallen. Es wurden verschiedene Anreicherungen oxidischer Brennstoffe mit Plutonium und Minoren Actiniden betrachtet. Alternativ wurde der oxidische durch metallischen Brennstoff sowie das Kühlmittel Blei durch Natrium ersetzt und der Einfluß auf das Abbrandverhalten untersucht.

(c) JAERI Solid-System:

Basierend auf schnellen, natriumgeköhlten Reaktorsystemen wurde dieses Konzept

entwickelt. Es wird metallischer Brennstoff (Np-15Pu-30Zr und AmCm-35Pu-10Y) eingesetzt. Die Anlage wird mit einem Feststofftarget aus Wolfram betrieben. Das Kühlmittel wird von 703 auf 746 K aufgeheizt. Bei $k_{\text{eff}} \approx 0,9$ und einem Protonenstrom von 39 mA wird eine thermische Leistung von $820 \text{ MW}_{\text{th}}$ erreicht [Tak97].

2. Flüssiger Brennstoff:

(a) JAERI Molten Salt-Konzept:

Der Entwurf basiert auf der Lösung der Actiniden (MA: Np, Am, Cm und Pu) in einer Chloridsalzschnmelze ($\text{NaCl} - \text{MACl}_3 - \text{PuCl}_3$). Die Salzschnmelze ist nicht nur Actinidenträger sondern auch Spallationstarget und Kühlmittel. Der Protonenstrahl wird direkt auf die Schnmelze geleitet. Der flüssige Brennstoff ist homogen im Core verteilt. Durch zwei Reflektoren werden die internen Wärmetauscher und Pumpen vor der Neutronenstrahlung geschützt. Das Kühlmittel wird von 923 auf 1023 K aufgeheizt. Es soll bei $k_{\text{eff}} = 0,92$ und einem Protonenstrahl mit einer Strahlleistung von 1,5 GeV und einem Protonenstrom von 25 mA eine Leistung von $800 \text{ MW}_{\text{th}}$ erreicht werden. [Tak97].

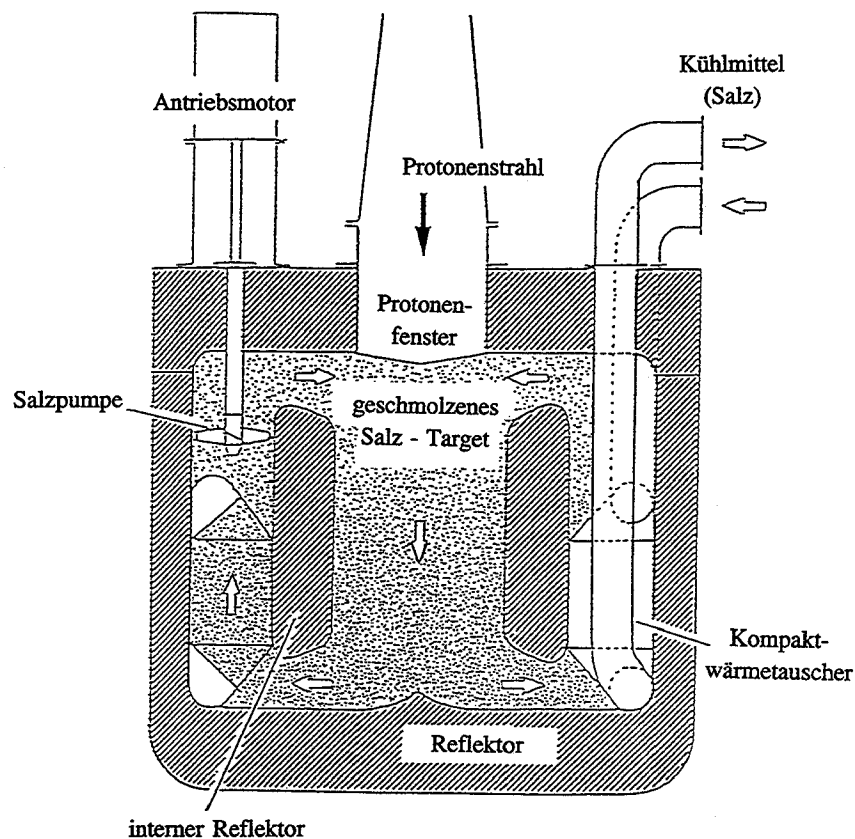


Abbildung 2.5: JAERI Salzschnmelzenkonzept [Tak97]

2.3 Vergleich von Flüssig- und Festbrennstoffsystemen

Nukleare Reaktorsysteme mit flüssigem Brennstoff oder homogenen Brennstoff/Moderator Mischungen waren unter den ersten nuklearen Systemen, die nach Entdeckung der Uranspaltung experimentell untersucht wurden [LMM58]. Ein Vergleich der wesentlichen Eigenschaften von Flüssig- und Festbrennstoffsystemen in den Tabellen 2.2 und 2.3 zeigt, weshalb man bei der Entwicklung von Transmutationssystemen auch wieder Brennstoffsysteme mit flüssigem Brennstoff betrachtet. Hierbei kommt zum Tragen, daß bei Flüssigbrennstoffsystemen im Gegensatz zu heterogenen Festbrennstoffsystemen der Brennstoff homogen angeordnet ist.

Tabelle 2.2: Vergleich von Flüssig- und Festbrennstoffsystemen: Neutronik Normal- und Störfallverhalten

Normalverhalten		
Kriterium	Festbrennstoff	Flüssigbrennstoff
Steuerung k-Wert	Neutronengifte und Steuerstäbe	kontinuierliche Beschickung
Überschußreaktivität	Groß	Gering
Strukturmaterialien	Große Mengen an Strukturmaterial im Core haben einen hohen Einfluß auf den Reaktorbetrieb.	Wenig Strukturmaterial möglich - bessere Neutronenökonomie
Spaltprodukte	Negativer Einfluß auf die Reaktordynamik durch Spaltprodukte, vor allem beim Wiederanfahren des Reaktors.	Kontinuierlicher Abzug von Spaltprodukten verbessert Neutronenökonomie und ermöglicht höhere Abbrände.
Reaktivitätsschwankungen	nicht zu erwarten	möglich durch Dichte- oder Konzentrationsschwankungen im Brennstoff, z.B. durch Blasenbildung
Verlust verzögerter Neutronen	nicht möglich	Durch Umpumpen des Brennstoffes zum Kühlen kommt es zum Verlust verzögerter Neutronen.
Störfallverhalten		
Temperaturkoeffizient	Je nach Konzept unterschiedlich stark ausgeprägter neg. Temperaturkoeffizient, z.T. verzögert.	Flüssiger Brennstoff, der sich bei Temperaturerhöhung ausdehnt, hat in der Regel einen negativen Temperaturkoeffizient.
Fehlbeladung Brennstoff	unwahrscheinlich	Fehlbeladung bei kontinuierlicher Be- und Entladung möglich.
Fehldosierung der Neutronengifte	Möglich. Falsche Dosierung kann schwerwiegende Folgen haben.	Unmöglich, da nicht erforderlich

Tabelle 2.3: Vergleich von Flüssig- und Festbrennstoffsystemen: Betriebsverhalten

Kriterium	Festbrennstoff	Flüssigbrennstoff
Beladung	Diskontinuierliche Beschickung ⁵	Kontinuierliche Beladung
Brennstoffdesign und Brennstoff-handhabung	Kompliziertes Brennelementdesign und aufwendiger Brennelementwechsel	Je nach Konzept kann auf spezielle Brennelemente verzichtet werden.
Auslagerung spaltbaren Materials	-	In Einkreisssystemen verläßt der Brennstoff gegebenenfalls das Core.
Aktivierung sekundärer Anlagenteile	Aktivierung der Anlagenteile des Primärkreises durch Kühlmittel	Aktivierung von Pumpen, Rohren und Wärmetauschern durch Brennstoff/Kühlmittel. Kann durch Zweikreisssysteme verringert werden.
Aufheizspanne	DWR: ca. 32 K; CANDU: ca. 50 K; HTR: ca. 400 - 600 K	LMFBR: ca. 200 ... 400 K
Austrittstemperatur	DWR: ca. 332 °C ; CANDU: ca. 293 °C ; HTR: bis 950 °C	LMFBR: ca. 600 ... 700 °C
Betriebsdruck	je nach System 50 - 155 bar	kann bei geringem Druck betrieben werden
Wiederaufarbeitung	erst nach langer Abklingzeit mit komplizierten Verfahren	leichtere Wiederaufarbeitung, da Brennstoff bereits gelöst vorliegt, Abklingzeit wegen des kontinuierlichen Spaltproduktabzuges wesentlich kürzer
Besondere Belastungen	Korrosion und hoher Innendruck	Korrosions- und Erosionsprobleme in unterschiedlicher Ausprägung je nach System.

Einer der wesentlichen Vorzüge der Flüssig- gegenüber Festbrennstoffsystemen ist die Möglichkeit der kontinuierlichen Beschickung mit frischem Brennstoff bei gleichzeitigem Abzug von Spaltprodukten. Dadurch kann unter anderem auf die hohe Überschußreaktivität zu Beginn des Abbrandzyklus verzichtet werden. Aus der kontinuierlichen Be- und Entladung erwächst aber auch die Notwendigkeit, die dafür erforderlichen Anlagen zur Abtrennung und Anreicherung am Standort der Anlage zur Verfügung zu haben. Hierbei ist aber zu beachten, daß im Gegensatz zur Wiederaufarbeitung festen Brennstoffes, wo der Brennstoff erst aus der Brennelementmatrix herausgelöst werden muß, der Brennstoff bei Flüssigbrennstoffsystemen besser zugänglich vorliegt und daher dieses System auch unter dem Gesichtspunkt mehrfacher Rezyklierungen Vorteile verspricht.

Als Trägermaterial für den Brennstoff in einem Flüssigbrennstoffsystem kommen Wasser bzw. Schwerwasser, Salzschnmelzen und Flüssigmetalle in Betracht. Ein Vergleich der Trägermateriali-

⁵ Ausnahme: Quasikontinuierliche Beladung der CANDU-Reaktoren oder der Kugelhaufen-HTR

en erfolgt in Tabelle 2.4. Bei der Einstufung der verschiedenen flüssigen Brennstoffträger ist vor allem das erforderliche Neutronenspektrum relevant. Für ein Transmutationssystem mit schnellem Neutronenspektrum sind nur Chloridsalzschmelzen und Flüssigmetalle als Trägermaterial für den Brennstoff geeignet. Gegen die Salzschmelzen spricht jedoch der hohe Schmelzpunkt, so daß für die geplante Anlage Flüssigmetalle als Brennstoffträger verwendet werden sollten.

Tabelle 2.4: Vergleich von wasserbasierten , Salzschmelzen- und Flüssigbrennstoffsystemen

Kriterium	Wasserbasierte Systeme	Salzschmelzen	Flüssigmetalle
Lösungsmittel (Bsp.)	H_2SO_4 , HNO_3, H_3PO_4	Fluoride der Alkalimetalle Na, Li, K und Zr, Be oder Chloridsalzschmelzen	Pb, Bi, Na und Pb-Bi-Eutektikum
Neutronenspektrum	thermisch	Fluoridsalzschmelzen: thermisch - epithermisch; Chloridsalzschmelzen: schnell	thermisch - schnell
Betrieb bei hohen Temperaturen	möglich, erfordert hohe Drücke	bei geringen Drücken möglich	bei geringen Drücken möglich
Löslichkeit von Actiniden ab Uran, Potential als Lösungsmittel	Gute Löslichkeit der Salze, tw. Nitrate bei niedrigen Temperaturen	Sehr gute Löslichkeit der Fluoride	akzeptable Löslichkeiten erst bei höheren Temperaturen
Strahlenschäden	Radiolyse des Wassers $\rightarrow H_2$; Rekombination erforderlich	strahlenbeständig	strahlenbeständig
Korrosion	korrosiv, aber bekannt und gelöst	sehr korrosiv	sehr korrosiv
Schmelztemperatur	-	ab ca. 340 °C	ab ca. 130 °C
Wärmeübertragungseigenschaften	gut	gut	sehr gut
Einsatz elektromagnetischer Pumpen	nicht möglich	nicht möglich	möglich
Skalierbarkeit des Systems	beliebig skalierbar	-	nach unten nicht beliebig skalierbar

2.4 Ziel dieser Arbeit

In dieser Arbeit soll ein Konzept für ein Transmutationssystem mit den folgenden Parametern entworfen werden:

1. Schnelles Neutronenspektrum:
Die Betrachtungen in den vorigen Abschnitten haben deutlich gemacht, daß man in einem Brennstoffkreislauf mit Partitioning & Transmutation nicht auf Systeme mit schnellem Neutronenspektrum verzichten kann.
2. Unterkritische Anlage:
Der Abstand vom kritischen Zustand legt insbesondere bei MA-haltigen Brennstoffen nahe, neue kerntechnische Einrichtungen zur Transmutation als unterkritische Anlagen auszuführen.
3. Flüssigbrennstoffsystem mit Flüssigmetall als Brennstoffträger:
Der Vergleich von Fest- und Flüssigbrennstoffsystemen in den Tabellen 2.2 und 2.3 hat die Vorteile von Flüssigbrennstoffen vor allem im sicherheitstechnischen Bereich, bei der Kontrolle und Steuerung einer solchen Anlage herausgestellt. Wie bereits herausgearbeitet wurde, ist die möglichst vollständige Rezyklierung der TRU in einem P&T-Brennstoffkreislaufkonzept von großer Bedeutung. Dieses Ziel ist allerdings bei einmaliger Abtrennung der TRU aus dem Brennstoff nicht erreichbar. Mehrfache Rezyklierungsschritte lassen sich bei Flüssigbrennstoffsystemen wahrscheinlich besser realisieren. Denn zum einen kann wegen der geringeren Abklingzeiten des Brennstoffes früher mit Rezyklierungsprozessen begonnen werden. Zum anderen sind die TRU bereits im Trägermaterial gelöst und müssen im Gegensatz zu Festbrennstoffsystemen nicht erst aus der Brennstoffmatrix herausgelöst werden. Als Trägermaterial für den Brennstoff sind Flüssigmetalle am besten geeignet.

Bei der Entwicklung des Konzeptes sind vor allem unterschiedliche Blanketdesigns auf ihre Eignung zu untersuchen. Dafür sind u.a. Abbrandstudien durchzuführen. Entwicklung und Beurteilung von Protonenbeschleuniger und Spallationstarget sind nicht Gegenstand dieser Arbeit.

Kapitel 3

Allgemeiner Entwurf eines unterkritischen Transmutationssystems

3.1 Kühlmittel

Flüssigmetalle eignen sich als Kühlmittel für Reaktoren wegen der geringen Schmelztemperatur und der sehr guten Wärmetransporteigenschaften. Die geringen Dampfdrücke von Flüssigmetallen ermöglichen den Betrieb einer Anlage bei hohen Temperaturen ohne sie auf hohe Drücke auslegen zu müssen. Die einzigen realisierten und zivil genutzten Reaktorsysteme mit Flüssigmetallkühlung sind die natriumgeköhlten „Schnellen Brüter“. Neben Natrium eignen sich auch Blei, Wismut und das Blei-Wismut-Eutektikum für den Einsatz als Kühlmittel. In Tabelle 3.1 sind einige relevante Eigenschaften dieser Flüssigmetalle zusammengestellt. Beurteilt man die aufgeführten Flüssigmetalle nach ihren wärmetechnischen Eigenschaften, so eignet sich zunächst Natrium wegen der hohen Wärmeleitfähigkeit als Kühlmittel. Blei, Wismut und deren Eutektikum haben aus sicherheitstechnischer Sicht einige Vorteile gegenüber Natrium. Sie haben, je nach System, einen negativen oder weniger stark ausgeprägten positiven Voidkoeffizienten als Natrium. Die Siedepunkte sind mit $\vartheta_{Siede} = 1650 - 1725 \text{ °C}$ wesentlich höher als der von Natrium $\vartheta_{Siede} = 892 \text{ °C}$. Blei, Wismut und deren Eutektikum sind an der Luft auch nicht so reaktiv wie Natrium. Wismut hat den Nachteil, daß es sich bei Erstarren ausdehnt. Da ein Erstarren des Kühlmittels durch zusätzliche Beheizung der Rohrleitungssysteme etc. vermieden werden muß, werden die Metalle mit zunehmendem Schmelzpunkt als Kühlmittel immer ungeeigneter. Gegen den Einsatz von Natrium spricht, daß es nicht als Brennstoffträger geeignet ist (s. Abschnitt 3.2). Es sollte vermieden werden, in dem Transmutationssystem mit unterschiedlichen Brennstoffträgern und Kühlmitteln zu arbeiten. Als Kühlmittel ist nach diesen Betrachtungen das Blei-Wismut-Eutektikum am besten geeignet.

3.2 Brennstoff

Die Lösung von Actiniden in Flüssigmetallschmelzen kann in unterschiedlicher Form erfolgen:

Tabelle 3.1: Physikalische Eigenschaften einiger Flüssigmetalle [Gme70a] ,[Tip60]

Metall	$\vartheta_{Schmelz}$	ϑ_{Siede}	ϑ	Dichte ρ	Wärme- kapazität c_p	Wärmeleit- fähigkeit λ
	°C	°C	°C	g/cm ³	J/(kg · K)	W/(m · K)
Na	98,0	892	100	0,93	1.368,00	85,90
			300	0,83	1.306,00	76,68
			600	0,81	1.256,00	62,43
Bi	271,3	1560	300	10,03	142,50	17,10
			400	9,91	144,70	15,50
			600	9,66	157,50	15,50
Pb	327,4	1725	400	10,60	149,92	16,91
			500	10,48	148,76	18,58
			600	10,36	147,59	19,99
Pb-Bi Eutektikum (56,5 w/o Bi)	125,0	1670	200	10,46	146,50	11,68
			400	10,19	144,00	13,73
			600	9,91	145,70	15,78

- Wirkliche Lösungen:
Der Durchmesser der aufgelösten Partikel beträgt ca. 0,1 nm und befindet sich in der Größenordnung der freien Moleküle. Es entsteht eine homogene Flüssigkeit.
- Kolloide Lösungen:
Der Durchmesser der gelösten Partikel liegt zwischen 10 und 100 nm.
- Dispersionen:
Dispersionen entstehen bei größeren Teilchendurchmessern. Es liegen mindestens zwei Phasen vor. Ist die Flüssigkeit in Ruhe, kommt es zur Sedimentation schwerer Partikel.

Eine Sedimentation des Brennstoffes ist wegen möglicher Reaktivitätseffekte zu vermeiden. Es sind deshalb wirkliche Lösungen den Dispersionen vorzuziehen. Daher wird bei der Auswahl eines geeigneten Trägermaterials im folgenden Abschnitt auch nur die Löslichkeit der TRU in einigen Flüssigmetallen untersucht.

Bei der Auswahl eines geeigneten Trägermaterials für die Transurane sollen lediglich die Flüssigmetalle Natrium, Blei, Wismut und das Blei-Wismut-Eutektikum berücksichtigt werden. Die Löslichkeit eines Stoffes ist in der Regel stark von der Temperatur abhängig. Trotzdem geben die von Guminski [Gum90] in Abbildung 3.1 dargestellten Löslichkeiten S_M verschiedener Metalle in niedrigschmelzenden Metallen bei $T=873K$ einen ersten Überblick. Abbildung 3.1 ist zu entnehmen, daß ausgehend von Thorium mit steigender Massenzahl eine bessere Löslichkeit der TRU in Blei und Wismut zu erwarten ist. In Natrium lassen sich TRU lediglich in vernachlässigbaren Mengen lösen [Gum90].

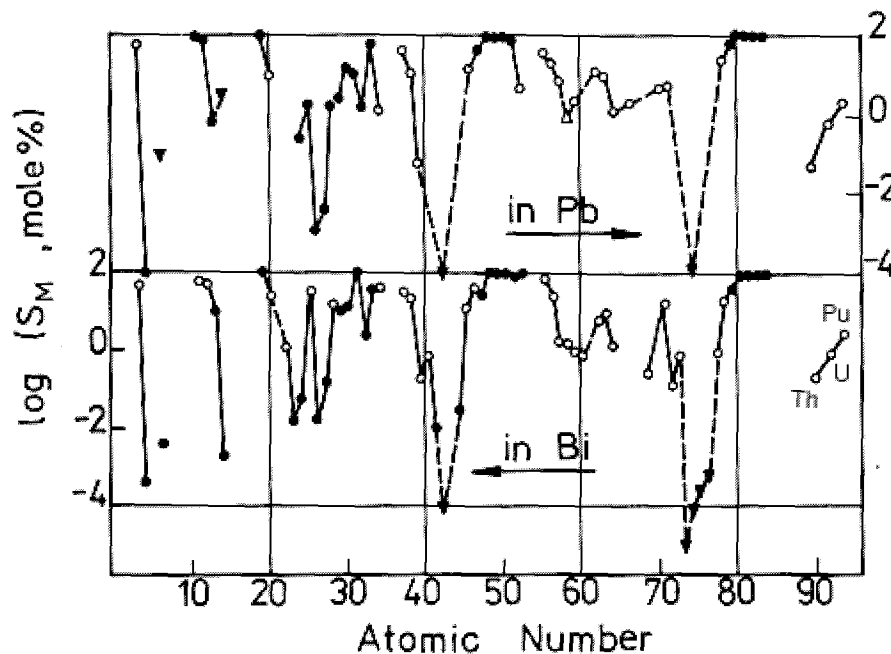


Abbildung 3.1: Löslichkeiten verschiedener Metalle in Blei und Wismut bei $T=873$ K. Ausschnitt aus [Gum90]

Plutonium

Für die Löslichkeit von Plutonium in Blei kann aus Abbildung 3.1 bei einer Temperatur von $T=873$ K ein Wert von $S_{Pu\text{ in } Pb} = 1,77$ at% abgelesen werden. Die Löslichkeit von Plutonium in Wismut wird in [Gme70b] beschrieben. Die dort aufgeführten temperaturabhängigen Löslichkeiten sind in Abbildung 3.2 graphisch aufbereitet. Berücksichtigt man Ungenauigkeiten beim Ablesen, kann übereinstimmend mit den Angaben in [Gme70b] aus Abbildung 3.1 eine Löslichkeit von Plutonium in Wismut bei $T=873$ K von ca. $S_{Pu\text{ in } Bi} = 2,79$ at% abgelesen werden. Über die Löslichkeit von Plutonium in Pb-Bi-Eutektikum lassen sich kaum Angaben in der Literatur finden. Es ist aber davon auszugehen, daß die Aussagen über die Löslichkeit von Metallen im Pb-Bi-Eutektikum von Weeks in [Wee71] und Borgstedt/Politis in [BP79] auch auf die Löslichkeit von Plutonium übertragen werden kann. Danach wird eine Löslichkeit erwartet, die sich ungefähr in der Mitte der Löslichkeiten von Plutonium in Blei und Wismut befindet.

Americium und Curium

Für die Transurane Americium und Curium können keine genauen Angaben über deren Löslichkeit in Blei, Wismut oder deren Eutektikum gemacht werden. In dem Beitrag von Guminski [Gum89] wurden allerdings unter anderem auch die Löslichkeit verschiedener Transurane (TRU) in Quecksilber untersucht. Abbildung 3.3 kann man entnehmen, daß sich Americium und Curium besser in Quecksilber lösen als Plutonium. Ausgehend von Guminskis Feststellung, daß die Löslichkeit primär von den Eigenschaften des zu lösenden Stoffes bestimmt wird, kann man also vom Lösungsverhalten der TRU in Quecksilber auf das Lösungsverhalten dieser Actiniden in Pb und Bi schließen. Americium und Curium werden sich demnach wahrscheinlich in Blei und Wismut nicht schlechter lösen als Plutonium. Diese Vermutung wird auch durch Abbildung 3.1

Zusammenfassend kann festgestellt werden, daß Natrium als Brennstoffträger nicht geeignet ist. In Blei lassen sich die Actiniden schlechter lösen als im Blei-Wismut-Eutektikum und in Wismut. Der Einsatz von Wismut ist wegen des Ausdehnens beim Erstarren nicht unproblematisch. Je nach Löslichkeitsbedarf wird mit Blei-Wismut-Eutektikum oder Wismut als Actinidenträger gearbeitet. Wegen der schlechten Datenbasis, besonders für die temperaturabhängige Löslichkeit der Actiniden in Blei-Wismut-Eutektikum bzw. Wismut wird für die weiteren Betrachtungen zur Beladung der Schmelzen mit Actiniden als unterer Grenzfall die temperaturabhängige Lösungskurve von Plutonium in Wismut angenommen.

3.3 Flüssigmetallkorrosion

Den Eigenschaften der diskutierten Flüssigmetalle Na, Pb, Bi, Pb-Bi, die sie für den Einsatz als Kühlmittel oder Brennstoffträger als geeignet erscheinen lassen, steht vor allem ihre hohe Korrosivität entgegen. Nach einem kurzen Überblick über die wesentlichen Korrosionsmechanismen sollen einige Lösungsansätze für die Ausführung eines Transmutationssystems unter Einsatz von Flüssigmetallen dargestellt werden.

3.3.1 Korrosionsmechanismen

Flüssigmetallkorrosion ist eher bedingt durch die Löslichkeit der verwendeten Materialien untereinander, als durch elektrochemische Reaktionen oder Elektronenaustausch. Korrosion durch Flüssigmetalle resultiert aus einem thermodynamischen Ungleichgewicht an der Grenzfläche von Flüssigmetall und Festmetall [Ber71]. Die relevanten Korrosionsmechanismen lassen sich grob unterteilen in [Ber71], [Tor], [BP79]:

- **Abzehrung:**
Dieser Prozeß ist ein einfacher Lösungsvorgang des Festmetalls im Flüssigmetall und wird durch die Löslichkeit des Festmetalls im Flüssigmetall bestimmt. Als wesentliche Einflußgrößen sind Temperatur und Strömungsgeschwindigkeit des Flüssigmetalls zu nennen. Die Bedeutung der Temperatur ergibt sich daraus, daß sowohl die Löslichkeit als auch der Diffusionskoeffizient temperaturabhängig sind. Die Auflösungsrate des Festmetalls im Flüssigmetall ist geschwindigkeitsabhängig. Das bedeutet, daß der Übergang der Atome in das Flüssigmetall wesentlich schneller sein muß, als der darauffolgende Transport im Flüssigmetall [Ber71].
- **Verunreinigungen des Flüssigmetalls oder des Festmetalls**
können zur Bildung von einfachen oder komplexen Verbindungen an oder unter der Festmetalloberfläche führen. Es können Wechselwirkungen befördert oder inhibiert werden. Beispiele hierfür sind die Bildung von Oxiden, Karbiden oder Nitriden.
- **Legierungsbildung:**
Selten auftretende Form der Flüssigmetallkorrosion, bei der eine intermetallische Verbindung an der Oberfläche des Festmetalls (ohne Einbeziehen von Verunreinigungen) entsteht.
- **Herauslösen von Legierungselementen**
aufgrund unterschiedlicher Löslichkeiten der Legierungselemente des Festmetalls. Es kann

hierbei zu Phasenumwandlungen oder Leerräumen unterhalb der Festmetalloberfläche kommen.

Eng verbunden mit der Abzehrung ist der Massentransfer der gelösten Anteile. Der *isotherme* Massentransfer wird lediglich durch den Konzentrationsgradienten zwischen den beiden Materialien bestimmt. Die Lösungsrate erreicht nach ausreichend langer Zeit bei Erreichen des Konzentrationsausgleiches bzw. der Sättigung des Flüssigmetalls den Wert Null. Bei *nicht-isothermen* Systemen kommt es wegen der Temperaturabhängigkeit der Löslichkeit an den heißen Stellen des Systems zur Auflösung des Festmetalls. An den kälteren Stellen lagern sich die aufgrund des Temperaturunterschiedes ausfallenden Festmetallbestandteile ab. Oft sind die Ablagerungen an den kalten Stellen (unter anderem wegen der Verstopfungsgefahr) ein größeres Problem beim Entwurf eines Systems als die Auflösung an den heißen Stellen. Diesem Problem ist am besten mit einem korrosionsbeständigeren Material bzw. Korrosionsschutzmaßnahmen zu begegnen.

3.3.2 Schutz gegen Flüssigmetallkorrosion

Pb, Bi, Pb-Bi sind, vor allem aufgrund der hohen Löslichkeit vieler Metalle in ihnen, wesentlich korrosiver als Natrium [Ber71]. Der Korrosionsschutz für Natrium ist außerdem durch langjährige Erfahrungen aus dem Betrieb und Bau „Schneller Brüter“ ausreichend bekannt und wird deshalb hier nicht weiter erörtert.

Unlegierte Stähle sind in unbehandelter Bleischmelze beständiger als ferritische Chromstähle oder austenitische Chromnickelstähle. Die Korrosion von Eisenlegierungen in unbehandelter Wismutschmelze ist, bei gleichen Bedingungen, ca. 40 mal größer als in Blei [BP79]. Stähle mit Nickelanteilen werden in Wismutschmelzen ausgewaschen [Ber71]. Die hohe Löslichkeit von Nickel in Pb, Bi und Pb-Bi verbietet den Einsatz von nickelbasierten Stählen. Für den Einsatz bei höheren Temperaturen müssen Korrosionsschutzmaßnahmen ergriffen werden. Es bieten sich folgende Methoden des Korrosionsschutzes an:

- Inhibition der Korrosion
- Verbundwerkstoffe
- Kontrolle des Sauerstoffpotentials

Inhibition der Korrosion

Verunreinigungen des Flüssigmetalls oder des Festmetalls (s.o.) können neben materialschwächenden Reaktionen auch zur Bildung von Schutzschichten auf dem Festmetall führen. Bei der Untersuchung der Korrosionsbeständigkeit von Eisenlegierungen gegenüber Blei, Wismut und Blei-Wismut wurden in Blei mit Zirkon und Titan als inhibierende Zusätze gute Ergebnisse erzielt. Es kommt hierbei zur Bildung von Oberflächenschutzschichten aus ZrN , ZrC bzw. TiN , TiC . Voraussetzung zur Herausbildung der Schutzschichten ist ein möglichst geringer Anteil der Inhibitorzusätze im Stahl, um die Diffusion von N und C an die Oberfläche nicht zu behindern. Durch den weiteren Zusatz von Magnesium wird Sauerstoff gebunden und somit die Oxidation der anderen Inhibitoren verhindert, die inhibierende Wirkung von Zr und Ti verstärkt. Langfristig ist die inhibierende Wirkung nur zu gewährleisten, wenn die Zusätze jederzeit in ausreichend hoher

Konzentration vorhanden sind. Zusätzlich ist ein ausreichend hoher Anteil von C und/oder N in den Stählen erforderlich, um eine Ausheilung der Schutzschichten gewährleisten zu können. Die Inhibition mit Zr, Ti, Mg in Wismut wirkt genauso wie beim Blei und ist bei Kohlenstoff- und niedriglegierten Stählen am effektivsten. [Ber71]

Verbundwerkstoffe

Einige Metalle (z.B. Wolfram, Molybdän) sind selbst bei Temperaturen über $\vartheta = 1000\text{ °C}$ korrosionsresistent gegen Blei, Wismut und deren Eutektikum. Daher gab es schon bei den Überlegungen zur Targetauslegung der SNQ in [BP79] den Vorschlag, einen aus neutronenökonomischer Sicht besser geeigneten Strukturwerkstoff mit einer dünnen Molybdän-Schicht zu plattieren. Bei diesem Vorhaben ist allerdings noch zu klären, ob bei thermischen Wechselbeanspruchungen die Haftung zwischen Molybdän-Schicht und Strukturmaterial gewährleistet werden kann.

Kontrolle des Sauerstoffpotentials

Die aktuellen Untersuchungen zur Flüssigmetallkorrosion durch Pb, Bi oder Pb-Bi-Eutektikum im Rahmen der weltweiten P&T-Forschungen konzentrieren sich auf das Konzept der Kontrolle des Sauerstoffpotentials. Wird beim Konzept der Inhibition gezielt der Sauerstoffanteil im Flüssigmetall verringert, so steht hier die Kontrolle und gegebenenfalls Erhöhung des Sauerstoffanteils im Flüssigmetall im Vordergrund. Das Konzept beruht darauf, daß sich ab einer bestimmten Sauerstoffkonzentration im Flüssigmetall eine oxidische Schutzschicht auf dem Stahl ausbildet und somit das Herauslösen von Legierungselementen aus dem Stahl unterbunden wird. Unterhalb dieser Konzentration führt die normale Flüssigmetallkorrosion zur Abzehrung des Stahls, oberhalb wird der Stahl durch den Sauerstoff oxidiert. Die Oxidation führt zwar auch zu einer Korrosion des Stahls, die jedoch langfristig leichter zu kontrollieren sein dürfte. Zur Ausbildung der passivierenden Schutzschicht kommt es, da das Sauerstoffpotential von Blei und Wismut höher als das der Legierungselemente in Stahl ist [Mü00]. Die Bildung und Langzeitstabilität der Oxidschicht ist durch die Kontrolle der Sauerstoffkonzentration zu gewährleisten. Der Sauerstoffanteil im Flüssigmetall kann nach [MSZ00] kontrolliert werden durch:

- Elektrolytische Messungen in der Schmelze und direkte Einspeisung von Sauerstoff. Die hierfür erforderlichen Einrichtungen sind allerdings sehr kompliziert.
- Kontrolle des O_2 -Partialdrucks über der Schmelze. Der Sauerstoffanteil in der Schmelze kann durch Anpassen des H_2/H_2O -Verhältnisses in der Gasphase über der Schmelze geregelt werden.

Stabile oxidische Schutzschichten bilden sich in stehenden Bleischmelzen bei einer Temperatur von 550 °C nach [MSZ00] sowohl bei einer kontrollierten Sauerstoffkonzentration von $8 \cdot 10^{-6}$ at% als auch nach [BBI⁺00] bei einer gesättigten Sauerstoffkonzentration von $3 \cdot 10^{-3}$ at% .

Neben den Untersuchungen zum Korrosionsverhalten der Stähle in Blei oder Blei-Wismut-Schmelzen hat man sich auch damit beschäftigt, ob und wie man Stähle speziell für den Einsatz in Flüssigmetallen unter Kontrolle des Sauerstoffpotentials vorbereiten oder herstellen kann.

Die im Forschungszentrum Karlsruhe in Kooperation mit anderen europäischen Einrichtungen durchgeführten Untersuchungen zeigen, daß durch die Behandlung der Stahloberflächen eine

zum Teil erheblich bessere Korrosionsbeständigkeit beobachtet werden kann. Eine interessante Möglichkeit, die Ausbildung der schützenden Oxidschicht zu unterstützen, wird unter anderem in [Mü00] vorgestellt. Es wird der Einfluß der Behandlung verschiedener Stähle (Stahl 1.4970, OPTIFER IVc) mit hochenergetisch gepulsten Elektronenstrahlen (GESA) auf das Korrosionsverhalten untersucht. Es konnte gezeigt werden, daß die Korrosionsbeständigkeit des Stahls 1.4970 durch Umstrukturierung der Oberfläche verbessert wird. Das Einlegieren einer Aluminiumschicht mit dem GESA-Verfahren auf die Stähle führte ebenfalls zu einem wesentlich besseren Korrosionsverhalten - nach 1500 h gab es keinen Korrosionsangriff. In [MHK⁺02] sind Ergebnisse von Korrosionsversuchen mit verschiedenen Stählen in fließendem Blei-Wismut-Eutektikum mit Strömungsgeschwindigkeiten von bis zu 2 m/s nach 2000 h zusammengestellt. Die unbehandelten Stähle sind bei Sauerstoffkonzentrationen von 10^{-6} at% oder mehr bis zu einer Temperatur von 550 °C für den Einsatz in Blei-Wismut-Eutektikum geeignet. Die austenitischen Proben, auf die eine Aluminiumschicht aufgebracht wurde ¹, zeigten nach 2000 h auch bei 600 °C keine Anzeichen von Korrosion. Die Korrosionsbeständigkeit ist auf die Ausbildung einer dünnen Al-Schutzschicht zurückzuführen, die sich an der Oberfläche unter Einfluß der umgebenden Blei-Wismut-Schmelze mit der eingestellten Sauerstoffkonzentration bildet.

Einen etwas anderen Weg gingen mit der Entwicklung von speziellen Stählen für den Einsatz in Blei-Wismut-Kreisläufen russische Wissenschaftler aus dem IPPE in Obninsk, die die Erkenntnisse ihrer langjährigen Arbeit in den Beiträgen [RTB⁺98], [BKP⁺98], [BIK⁺98] vorgestellt haben. Der Korrosionsschutz basiert auch hier auf der Ausbildung einer oxidischen Schutzschicht. Der Sauerstoffgehalt in der Schmelze muß dabei, wie bereits dargestellt, kontrolliert werden. Es wurde herausgefunden, daß besonders der Zusatz von Silicium die Korrosions- und Erosionsbeständigkeit des Stahls bei Einsatz in Blei-Wismut-Schmelzen erhöht. Silicium bildet eine sehr stabile oxidische Schutzschicht mit dem Sauerstoff der Schmelze, so daß sogar austenitische Stähle mit hohem Nickelanteil durch den Zusatz mit Silicium für den Einsatz in Pb-Bi-Schmelzen in Betracht gezogen werden können. Entsprechend dieser Erkenntnis wurden basierend auf 12%Cr-Stählen einige geeignete Stähle entwickelt und in Zusammenarbeit mit metallurgischen Industriebetrieben auch die industrielle Fertigung dieser Stähle bewerkstelligt. Die Stähle wurden auf ihre Korrosionsbeständigkeit bei verschiedenen Temperaturen, in stehenden und fließenden Schmelzen untersucht. Außerdem wurden Versuche zum Bestrahlungverhalten durchgeführt. Für den Einsatz als Strukturmaterial, Brennelementhüllen, Rohrleitungen etc. in Blei-Wismut-gekühlten Systemen bei Temperaturen bis 650 °C eignet sich bei Kontrolle der Sauerstoffkonzentration vor allem der Stahl EP823. Dieser Stahl zeigt nach [BFPR02] in strömendem Blei-Wismut-Eutektikum bei einer Strömungsgeschwindigkeit von 2 m/s, einer Sauerstoffkonzentration von $1,17 \cdot 10^{-3}$ wt% und einer Temperatur von 550 °C nach 700 h sowie nach [BBFR01] bei einer Temperatur von 470 °C nach 3000 h eine stabile oxidische Schutzschicht und keinen Korrosionsangriff. Materialeigenschaften und Zusammensetzung von EP823 sind in den Tabellen 3.2 und 3.3 zusammengestellt. Die zwei vorgestellten Lösungsansätze lassen erwarten, daß der Einsatz von Blei-Wismut-Eutektikum als Kühlmittel und/oder Brennstoffträger in einem Transmutationssystem unter dem Gesichtspunkt des Korrosionsschutzes noch einige Probleme, vor allem in Temperaturbereichen oberhalb von 600 °C, aufwerfen wird, diese aber lösbar sind.

¹Im Gegensatz zum GESA-Verfahren wurden die Proben mit einer Aluminiumfolie umhüllt und dann für eine halbe Stunde auf 1050 °C erhitzt.

Tabelle 3.2: Eigenschaften Stahl EP823 nach [BIK⁺98]

Kriterium	Geltungsbereich	Einheit	Wert
Therm. Ausdehnungskoeffizient α	20 - 400 °C	10^{-6}K^{-1}	10 - 12
Wärmeleitfähigkeit λ	400 °C	W/(m · K)	23,8
σ_B	300 - 600 °C	N/mm ²	900 - 400
$\sigma_{0,2}$	300 - 600 °C	N/mm ²	520 - 370
ε_B	300 - 600 °C	%	17 - 27
$\sigma_{10.000h}$	600 °C	N/mm ²	180
$\sigma_{10.000h}$	650 °C	N/mm ²	80 - 90

Tabelle 3.3: Zusammensetzung Stahl EP823 nach [BIK⁺98]

Element		Anteil Gew%
Kohlenstoff	C	0,14 - 0,18
Silicium	Si	1,10 - 1,30
Mangan	Mn	0,50 - 0,80
Nickel	Ni	0,50 - 0,80
Chrom	Cr	10,00 - 12,00
Vanadium	V	0,20 - 0,40
Molybdän	Mo	0,60 - 0,90
Wolfram	W	0,50 - 0,80
Niob	Nb	0,20 - 0,40

3.4 Protonenbeschleuniger und Spallationstarget

Für die Beschleunigung der Spallationsprotonen können entweder Linearbeschleuniger oder Cyclotronbeschleuniger eingesetzt werden. Die Protonen müssen, je nach Anlagenkonzept auf bis zu 1,6 GeV beschleunigt werden. Der Beschleuniger hat Protonenströme von 10 - 20 mA bereitzustellen. Zur Zeit gibt es unabhängig vom Beschleunigertyp noch keine Beschleunigeranlage, die diese hohen Leistungsanforderungen erfüllt. Geht man aber von dem leistungsfähigsten existierenden, gepulsten Linearbeschleuniger in Los Alamos (800MeV, 17mA Spitzenstrom, 6% Einsatzzzeit (duty factor)) aus, so gibt es keine schwerwiegenden Einwände, daß Linearbeschleuniger mit Strahlleistungen von ca. 100 MW realisiert werden können. Der leistungsfähigste Cyclotronbeschleuniger (2-stufig, 590 MeV, 1,6 mA mittlerer Strom) befindet sich am Paul-Scherrer Institut. Designstudien sehen eine Weiterentwicklung dieses Beschleunigertyps vor (z.B. für den CERN Energy Amplifier [RRB⁺95] 3-stufig, 1 GeV, 12,5 mA). Cyclotronbeschleuniger scheinen im Leistungsbereich bis 5 MW ebenso geeignet zu sein, wie Linearbeschleuniger. Für den Bereich von 5-10 MW sind ernsthafte technische Herausforderungen zu bewältigen. Die Entwicklung von Cyclotronbeschleunigern mit einer Strahlleistung über 10 MW wird wahrscheinlich mit erheblichen technischen Problemen verbunden sein [DOE99]. Neben den Leistungsparametern muß für einen geregelten Betrieb einer unterkritischen Transmutationsanlage aber auch eine hohe

Zeitverfügbarkeit sichergestellt werden. C. Rubbia et.al. sind in [RRB⁺95] der Ansicht, daß in absehbarer Zeit, nach entsprechender Forschungsarbeit, die Zeitverfügbarkeit 95 - 97 % betragen wird.

Der Protonenstrahl wird vom Beschleuniger über eine evakuierte Beschleunigerröhre auf das Spallationstarget geleitet. Das Vakuum im Beschleuniger ist vom Spallationstarget durch ein Protonenfenster getrennt. Den Entwurf und Einsatz von Protonenfenstern für eine beschleunigergetriebene Transmutationsanlage haben Jansen und Phlippen in [JP95] untersucht.

Beim Auftreffen der hochenergetischen Protonen auf ein Targetatom wird die kinetische Energie auf den Kern übertragen und kann im allgemeinen durch eine der drei Reaktionen *Spallation*, *Spaltung* oder *Fragmentation* wieder abgeführt werden. Für die Freisetzung von Neutronen sind lediglich die Spallationsreaktionen von Interesse. Spaltung und Fragmentation sind aber bei Betrachtungen zum Aktivitätsaufbau im Target mit zu berücksichtigen. Die Spallation erfolgt in 2 Schritten [CW81].

1. Das hochenergetische Proton kann innerhalb des Kerns entweder durch einen Stoß mit einem Kernteilchen dieses sofort herauslösen oder aber dieses Kernteilchen macht weitere Stöße innerhalb des Kerns. Dann bildet sich eine intranukleare Kaskade von Stößen, durch die einige Kernteilchen am Rand des Kernes freigesetzt werden. Wenn durch herausgelöste Kernteilchen, die ungefähr die Hälfte der kinetischen Energie des eintreffenden Protons haben können, in anderen Kernen weitere Spallationsreaktionen ausgelöst werden, spricht man von einer internuklearen Kaskade. Die im Kern verbleibenden Teilchen verteilen ihre Energie im ganzen Kern, der zum Abschluß der ersten Phase als angeregter Kern vorliegt.
2. Der angeregte Kern setzt langsam durch Abdampfen von energiereichen Neutronen die überschüssige Anregungsenergie frei. Dieser Prozeß erfolgt isotrop. Die Neutronen haben eine charakteristische Energie von einigen MeV.

Das Spallationstarget einer unterkritischen Transmutationsanlage kann als Flüssig- oder Feststofftarget ausgeführt werden. Ein Vergleich dieser beiden Targetkonzepte erfolgt u.a. in [JP95]. Die Anzahl der Neutronen, die bei einer Spallationsreaktion freigesetzt werden, bezeichnet man als Neutronenausbeute. Sie hängt vor allem von der Protonenenergie E_p und der Massenzahl des Targetmaterials A ab. Die effektive Neutronenausbeute kann mit E_P ($0,2 \leq E_P \leq 1,5$ GeV) und A ($9 \leq A \leq 210$) nach [Sch85] mit Gleichung 3.1 berechnet werden.

$$y(E_p) = 0,1 \text{ GeV}^{-1} \cdot (A + 20) \cdot (E_P - 0,12 \text{ GeV}) \quad (3.1)$$

Für das Target eignen sich wegen der Abhängigkeit der Neutronenausbeute von der Massenzahl Materialien mit hohem Atomgewicht. Materialien für Feststofftargets müssen darüber hinaus wegen des hohen Wärmeeintrags (nach [Hub80] bis zu 70% der Strahlleistung) auch noch eine gute Wärmeleitfähigkeit und hohe Schmelztemperatur haben. Diesen Anforderungen entsprechend werden z.B. Wolfram oder abgereichertes Uran eingesetzt. Das Feststofftarget wird durch umströmende bzw. Kühlkanäle durchströmende Flüssigkeiten oder Gase (z.B. Natrium, Helium) gekühlt. Bei einem Flüssigtarget zirkuliert das Targetmaterial (z.B. Blei) und gibt die freigesetzte Wärme in Wärmetauschern ab.

Vergleichbar mit dem JAERI-Salzschnmelzenkonzept (s. Abschnitt 2.2.2 und [Tak97]) soll bei dem zu entwerfenden Konzept das Kühlmittel Blei-Wismut-Eutektikum ebenfalls als Spallationstarget genutzt werden.

Kapitel 4

Entwurf eines geeigneten Blanketdesigns

Wie man Abbildung 4.1 entnehmen kann, gibt es verschiedene Möglichkeiten für die Gestaltung eines Blankets mit Flüssigbrennstoff. Auf der einen Seite kann der Brennstoff homogen im Blanket verteilt vorliegen. In diesem Fall gibt es keine Trennung zwischen Brennstoff und Kühlmittel. Der Brennstoff kann entweder im Blanket oder außerhalb gekühlt werden. Auf der anderen Seite kann der Brennstoff heterogen in Strukturelementen im Blanket angeordnet werden. Hierbei sind z.B. Rohre, Zylinder oder brennelementähnliche Strukturen vorstellbar. Kühlmittel und Brennstoffträger sind räumlich voneinander getrennt.

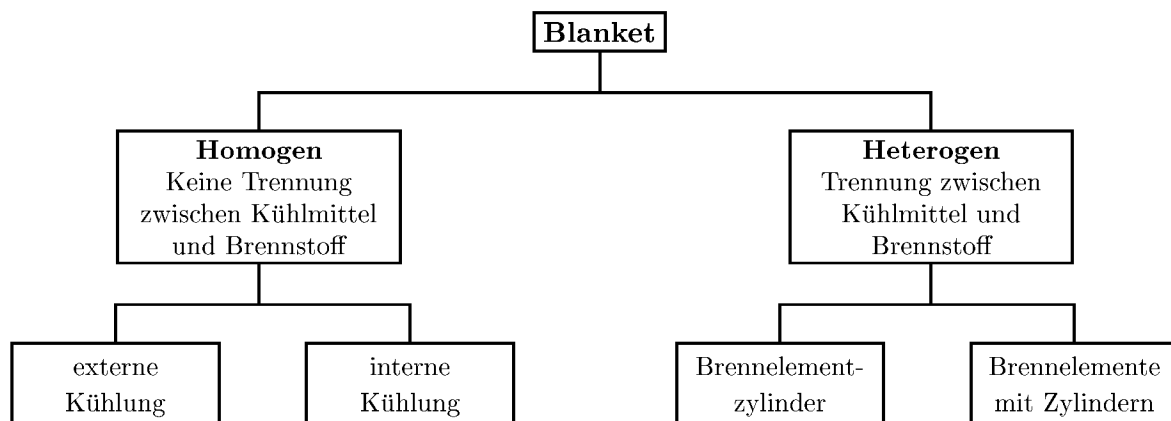


Abbildung 4.1: Übersicht über die betrachteten Blanketdesigns

In den folgenden Abschnitten werden zunächst einige neutronenphysikalische Aspekte unterkritischer Transmutationssysteme, die für die Gestaltung eines geeigneten Blankets relevant sind, diskutiert. Im Anschluß daran werden verschiedene homogene und heterogene Blanketentwürfe vorgestellt und in einer ersten Abschätzung auf ihre Realisierbarkeit untersucht. Hierbei stehen die neutronenphysikalischen Anforderungen an das Transmutationssystem im Vordergrund. Dabei ist vor allem der k_{eff} -Wert des Systems relevant. Er wird nach oben durch die geforder-

te Unterkritikalität und nach unten durch einen „ökonomisch sinnvollen“¹ Betrieb der Anlage begrenzt. Damit ergibt sich ungefähr: $0,80 \leq k_{eff} \leq 0,98$. Wie im vorigen Abschnitt dargestellt wurde, ist die Löslichkeit von Transuranen in Blei-Wismut- bzw. in Wismut-Schmelzen sehr stark von der Temperatur abhängig. Für ein zu entwerfendes System mit Blei-Wismut-Schmelze als Brennstoffträger muß sicher gestellt werden, daß ausreichend Brennstoff gelöst werden kann. Daher wird für die erste Beurteilung der Blanketmodelle die konservative Annahme getroffen, daß die Anlage mit einem Brennstoff betrieben werden können sollte, der durch mehrfache Rezyklierung im thermischen System entstanden ist und daher nur geringe Anteile an den Plutonium-Isotopen ^{239}Pu und ^{241}Pu hat. Diese Anforderungen erfüllt beispielsweise der durch zweimalige Rezyklierung in einem Thorium-System entstandene und in Anhang B.1 beschriebene TRU-Isotopenvektor aus der Arbeit von I. Neuhaus [Neu00]. Die TRU-Anreicherung der Blei-Wismut-Schmelze sollte 3 at% nicht überschreiten. Verbunden mit dieser TRU-Löslichkeit in Blei-Wismut ist eine Brennstofftemperatur von mindestens $\vartheta = 600\text{ °C}$.

4.1 Neutronenphysikalische Aspekte unterkritischer nuklearer Systeme

Der prinzipielle Unterschied zwischen einer kritischen Anordnung und einer unterkritischen besteht darin, daß in einem kritischen System eine sich selbst erhaltende Kettenreaktion etabliert wird. In einem unterkritischen System kann der Verlust an Neutronen durch Leakage und Absorption nicht durch Neutronenproduktion (primär aus Spaltreaktionen) ausgeglichen werden. Durch die kontinuierliche Zusp eisung von Neutronen durch eine externe Neutronenquelle kann aber in dem unterkritischen, multiplizierenden Medium trotzdem eine, allerdings nicht selbsterhaltende, Kettenreaktion aufrechterhalten werden. Als externe Neutronenquelle kann man die bei Spallationsreaktionen entstehenden Neutronen nutzen.

Zusätzlich durch eine externe Neutronenquelle eingespeiste Neutronen werden in jeder Neutronengeneration mit dem Faktor k_{eff} vermehrt. Damit ergibt sich die Gesamtzahl der je Zeiteinheit² in einem unterkritischen System entstehenden Neutronen n_{tot} :

$$\begin{aligned} n_{tot} &= n_{spall} + n_{spall} \cdot k_{eff} + n_{spall} \cdot (k_{eff})^2 + n_{spall} \cdot (k_{eff})^3 + \Lambda \\ &= n_{spall} \cdot \sum_{i=0}^{\infty} (k_{eff})^i \\ &= n_{spall} \cdot \frac{1}{1 - k_{eff}} = n_{spall} \cdot M \quad \text{für } k_{eff} < 1 \end{aligned} \quad (4.1)$$

Aus Gleichung 4.1 kann der Multiplikationswert M einer unterkritischen Anordnung entnommen werden.

$$M = \frac{1}{1 - k_{eff}} \quad (4.2)$$

¹Das bedeutet, daß die Anlage mindestens soviel Energie erzeugen sollte, daß der Eigenbedarf, vor allem für den Beschleuniger, gedeckt werden kann.

²Zeiteinheit = Lebenszeit einer Neutronengeneration

Die Multiplikation der Spallationsneutronen in einer unterkritischen Anordnung ist neben der Geometrie und Spaltstoffanreicherung auch vom Startpunkt der Neutronen abhängig.

An dieser Stelle ist ein Einschub zu den eingesetzten Rechenverfahren und die damit verbundene Nomenklatur erforderlich. Die neutronenphysikalischen Eigenschaften der vorgestellten Blanketkonzepte werden mit dem Programm MCNP untersucht. MCNP ist ein Rechenprogramm, mit dem der gekoppelte Transport von Neutronen, Photonen und Elektronen unter Einsatz der Monte Carlo Methode berechnet werden kann. Das Programm bietet die Möglichkeit, die zu betrachtende Geometrie dreidimensional zu modellieren. Weitere Ausführungen zu MCNP sind in Anhang A.2 enthalten. Hier soll nur auf die Berechnung des k_{eff} -Wertes eingegangen werden. Zur Berechnung des k_{eff} -Wertes einer Anordnung wird das MCNP-Modul KCODE benutzt. Bei der eingesetzten Rechenmethode werden die Startpunkte der Neutronen entsprechend der Spaltneutronenverteilung ermittelt. Der berechnete k_{eff} -Wert entspricht dem Eigenmultiplikationsfaktor der Anordnung. Soll der Multiplikationsfaktor des unterkritischen Systems berechnet werden, der sich bei Einsatz einer externen Neutronenquelle ergibt, ist eine „fixed source“-Rechnung durchzuführen. Aufgrund der unterschiedlichen räumlichen Verteilung der Startneutronen, die der KCODE- bzw. „fixed source“-Rechnung zu Grunde liegen, können sich unterschiedliche k_{eff} -Werte ergeben. In dieser Arbeit werden k_{eff} -Werte, die mit einer „fixed source“-Rechnung ermittelt wurden und somit den Multiplikationsfaktor der Anordnung unter Einbeziehung der externen Neutronenquelle repräsentieren, durch k_{fs} gekennzeichnet. Der Eigenmultiplikationsfaktor der Anordnung wird mit k_{eff} bezeichnet. Die mit den zwei verschiedenen Methoden berechneten k -Werte können technisch wie folgt interpretiert werden. Der k_{eff} -Wert ist der Multiplikationswert der Anlage bei abgeschalteter externer Neutronenquelle. Dagegen stellt der k_{fs} -Wert den Multiplikationswert der Anordnung während des Betriebes mit externer Neutronenquelle dar. Für sicherheitstechnische Betrachtungen ist sicherzustellen, dass der Multiplikationswert der Anlage in keinem der Betriebszustände den Wert 1 erreicht.

Die Gesamtzahl der in der Anlage pro Zeiteinheit entstehenden Neutronen setzt sich nach Gleichung 4.3 aus den durch Spallationsreaktionen n_{spall} und durch Spaltreaktionen entstehenden Neutronen n_{fis} zusammen. Die Anzahl der Spallationsneutronen n_{spall} ergibt sich aus dem Protonenstrom I und der Neutroneneffizienz $y(E_P)$ (sh. Gleichung 3.1). Durch Einsetzen der Gleichungen 4.1 und 4.4 in Gleichung 4.3 wird die Zahl der Spaltneutronen n_{fis} berechnet (Gleichung 4.5).

$$n_{\text{tot}} = n_{\text{spall}} + n_{\text{fis}} \quad (4.3)$$

$$n_{\text{spall}} = I \cdot y(E_P) \quad (4.4)$$

$$n_{\text{fis}} = I \cdot y(E_P) \cdot \frac{k_{\text{fs}}}{1 - k_{\text{fs}}} \quad (4.5)$$

Geht man von einer Neutronenfreisetzung je Spaltung $\nu = 3$ und der mittleren Spaltenergie $E_{\text{fis}} = 200 \text{ MeV}$ aus, so ergibt sich aus Gleichung 4.5 die in Gleichung 4.6 angegebene Leistung eines unterkritischen Systems.

$$P_{\text{th}} = I \cdot y(E_P) \cdot \frac{1}{\nu} \cdot \frac{k_{\text{fs}}}{1 - k_{\text{fs}}} \cdot E_{\text{fis}} \quad (4.6)$$

Zusätzlich wird im Target noch die bei den Spallationsreaktionen freigesetzte Leistung (bis zu 70 % der Strahlleistung, nach [Hub80]) frei. Unter der Annahme, daß diese Energie genutzt wird,

kann die Leistung aus Gleichung 4.6 im Sinne einer maximalen Abschätzung noch um den Wert $0,7 \cdot I \cdot E_P$ erhöht werden. In Gleichung 4.6 wird mit der Abhängigkeit des Leistungsniveaus der unterkritischen Anlage vom k_{fs} -Wert ein wesentlicher Unterschied zwischen kritischen und unterkritischen Systemen deutlich. Weiterhin kann man erkennen, daß die Leistung, und damit verbunden auch der Neutronenfluß, einer unterkritischen Anlage durch den Protonenstrom des Beschleunigers geregelt werden kann.

Neben der Position der Spallationsquelle im System ist für das Blanketdesign auch die axiale und radiale Ausdehnung der Spallationsquelle relevant. Die dazu durchgeführten Berechnungen wurden mit dem in Anhang A.1 vorgestellten Programmmodul HETC durchgeführt. Es wird eine Protonenenergie von $E_P = 1,6 \text{ GeV}$ angenommen. In Abbildung 4.3 ist die axiale und radiale Verteilung der Spallationsneutronen dargestellt, die sich ergibt, wenn der Protonenstrahl auf das Pb-Bi-Flüssigmetalltarget geleitet wird. Dabei sind die Entstehungsorte der Spallationsneutronen registriert und in ein (r,z)-Gitter eingeordnet worden. Die Normierung auf die Gesamtzahl der Spallationsneutronen ergibt die dargestellte Häufigkeitsverteilung. Der Auftreffpunkt des Protonenstrahles befindet sich im Zentrum der Anlage bei (x=0,y=0,z=180)cm. Die Spallationsneutronen entstehen vor allem entlang der Z-Achse. Das Maximum wird ungefähr 10 bis 20 cm unterhalb des Auftreffpunktes des Protonenstrahles erreicht. In radialer Richtung entsteht der größte Teil der Neutronen innerhalb eines Radius von 30 cm. Im vorigen Abschnitt wurde bereits darauf hingewiesen, daß bei der Spallation sehr energiereiche Neutronen entstehen. Dieser Sachverhalt wird noch einmal in Abbildung 4.2 verdeutlicht. Dort sind zwei verschiedene Neutronenspektren dargestellt. Das eine Spektrum zeigt die spektrale Verteilung der Spallationsneutronen im Maximum der Spallationsquelle und das andere am unteren axialen Minimum. Die mittlere Neutronenenergie liegt bei 3,5 bzw. 2,5 MeV.

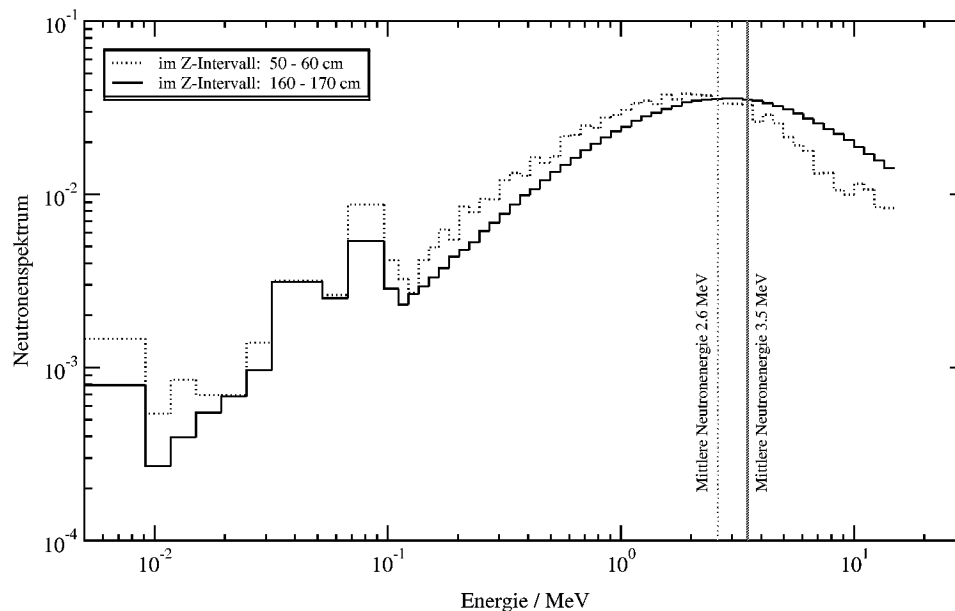


Abbildung 4.2: Vergleich der Energiespektren der Spallationsneutronen in unterschiedlichen Z-Schichten.

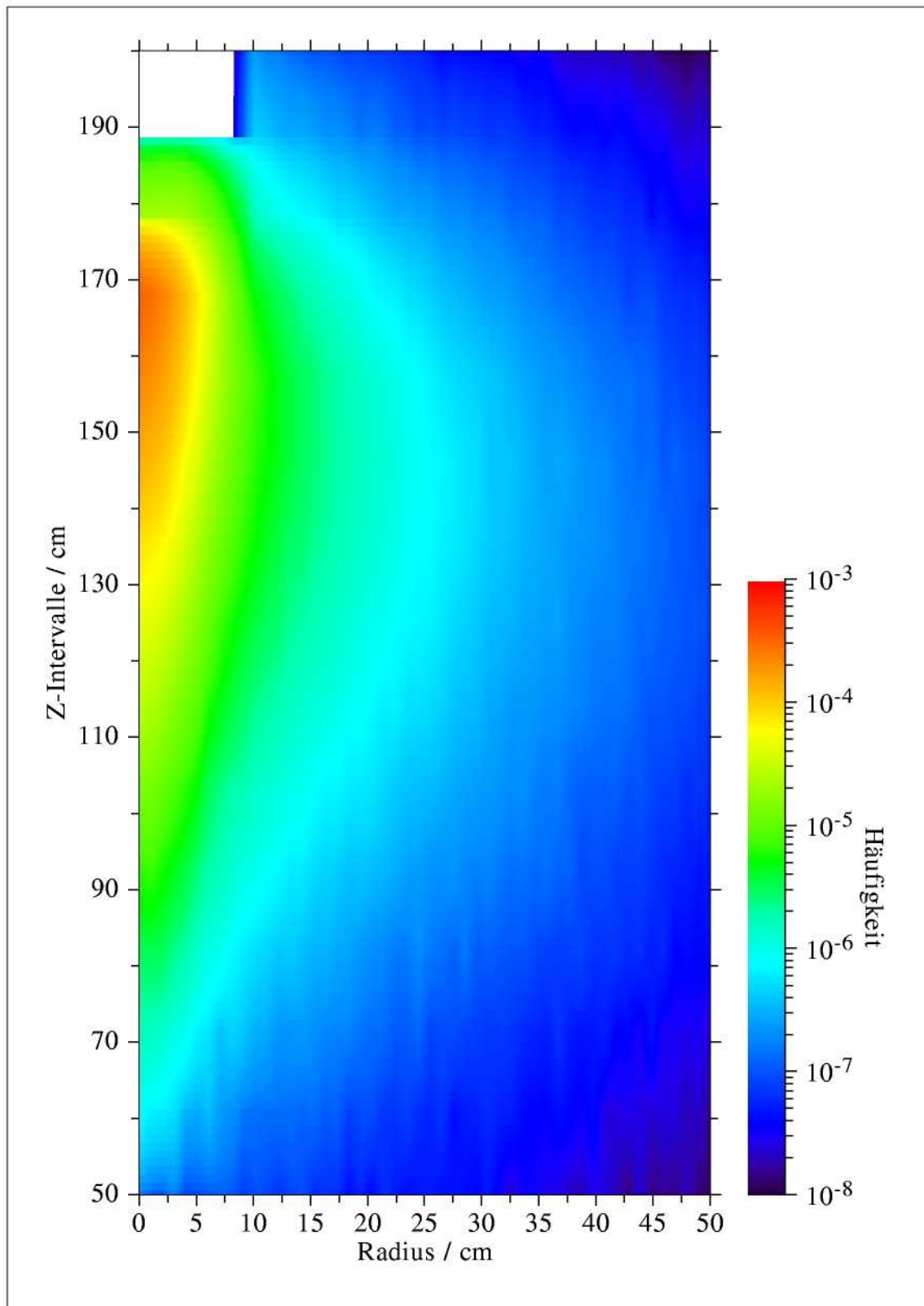


Abbildung 4.3: Axiale und radiale Verteilung der Spallationsneutronen. Die Energie der auftreffenden Protonen beträgt 1,6 GeV. Der Auftreffpunkt des Protonenstrahls liegt bei (0,0,180)cm

4.2 Blanket mit homogener Brennstoffanordnung

4.2.1 Externe Kühlung

Das Blanket für eine Anlage mit externer Kühlung zeichnet sich durch eine sehr einfache Gestaltung aus. In Abbildung 4.4 ist das für MCNP erstellte Modell eines solchen Systems dargestellt. Im Zentrum der konzentrischen Anordnung befindet sich der homogene Brennstoff, auf den durch das Protonenstrahlrohr der Protonenstrahl geleitet wird.

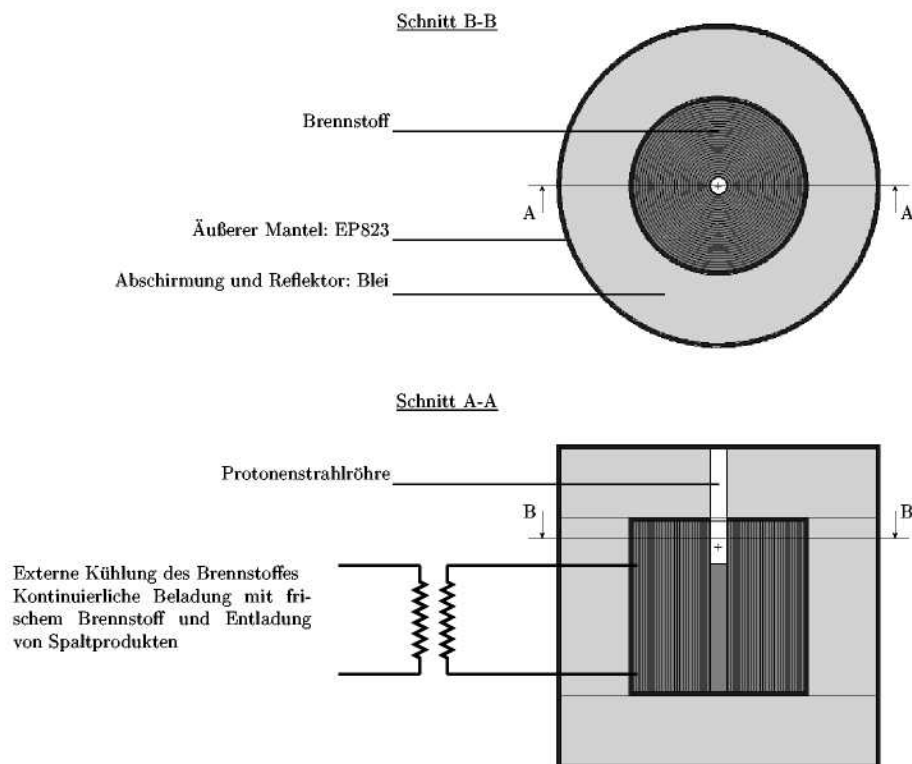


Abbildung 4.4: MCNP-Modell des Blankets mit homogener Brennstoffanordnung und externer Kühlung

Bei einem homogenen Blanket mit externer Kühlung kann neben den zwei geometrischen Parametern Höhe und Radius des Blankets die Konzentration des Brennstoffes an spaltbarem Material variiert werden. In Tabelle 4.1 sind bei gleicher Spaltstoffkonzentration die k_{eff} -Werte für verschiedene Radien zusammengestellt. Für alle vier Modelle wird eine Blankethöhe von 200 cm angesetzt. Der Auftreffpunkt des Protonenstrahles liegt bei ca. 1/4 der Blankethöhe. Damit wird der axialen Ausdehnung der Spallationsquelle in negativer z-Richtung Rechnung getragen.

Tabelle 4.1: k_{eff} -Werte Homogenes Blanket mit externer Kühlung bei unterschiedlichen Abmessungen, TRU-Isotopenvektor: Thorium 2-fach rezykliert (s. Tabelle B.4)

Modell	Blankethöhe cm	Blanketradius cm	Pu at %	k_{eff}	Fehler
mod1.ext-fmts ³	200,00	270,00	3,00	1,3085	1,50E-03
mod2.ext-fmts	200,00	200,00	3,00	1,2491	2,07E-03
mod3.ext-fmts	200,00	150,00	3,00	1,1710	2,07E-03
mod4.ext-fmts	200,00	100,00	3,00	1,0257	1,98E-03

Die Modelle 1 bis 3 sind bei der gewählten Anreicherung deutlich überkritisch. Modell 4 ist mit $k_{\text{eff}} = 1,026$ nur leicht überkritisch und damit für weitere Betrachtungen geeignet. In Tabelle 4.2 sind die k_{eff} -Werte für Modell 4 bei verschiedenen Anreicherungen mit MA und Plutonium angegeben. Es wird deutlich, daß der Zusatz von MA den k_{eff} -Wert der Anordnung negativ beeinflusst.

Tabelle 4.2: k_{eff} -Werte bei verschiedenen Anreicherungen, *mod4.ext-fmts* - Homogenes Blanket mit externer Kühlung, TRU-Isotopenvektor: Thorium 2-fach rezykliert (s. Tabelle B.4)

Modell	MA at%	Pu at%	k_{eff}	Fehler
mod4.ext-fmts.ma0pu3 ⁴	0,00	3,00	1,0257	1,98E-03
mod4.ext-fmts.ma0pu250	0,00	2,50	0,9374	1,97E-03
mod4.ext-fmts.ma0pu200	0,00	2,00	0,8344	1,64E-03
mod4.ext-fmts.ma0pu150	0,00	1,50	0,7149	1,76E-03
mod4.ext-fmts.ma0pu100	0,00	1,00	0,5670	1,46E-03
mod4.ext-fmts.ma025pu250	0,25	2,50	0,9116	1,62E-03
mod4.ext-fmts.ma050pu250	0,50	2,50	0,8991	1,66E-03
mod4.ext-fmts.ma050pu200	0,50	2,00	0,7896	1,54E-03
mod4.ext-fmts.ma100pu200	1,00	2,00	0,7808	1,31E-03

Anhand von Modell *mod4.ext-fmts.ma025pu250* werden die allgemeinen neutronenphysikalischen Eigenschaften dieses Blankettyps untersucht. In Abbildung 4.5 ist die normierte Gruppenflußdichte an verschiedenen Punkten des Blankets dargestellt. Es ist ein etwas härteres Neutronenspektrum im Bereich des Auftreffpunktes des Protonenstrahles (Spallationstarget) erkennbar. Im Vergleich dazu sind die normierten Gruppenflußdichten am Rand des Blankets und über das Blanket gemittelt eingetragen. Am Blanketrand ist aufgrund des stärkeren Aus-

³Anmerkung zur Nomenklatur: mod1 = Modellnummer, ext = Externe Kühlung, fmts = FlüssigMetall TransmutationsSystem

⁴Anmerkung zur Nomenklatur: mod4 = Modellnummer, ext-fmts = FlüssigMetall TransmutationsSystem mit externer Kühlung, ma**A**pu**B** = TRU-Anreicherung: **A**/100 at% MA bzw. **B**/100 at%Pu

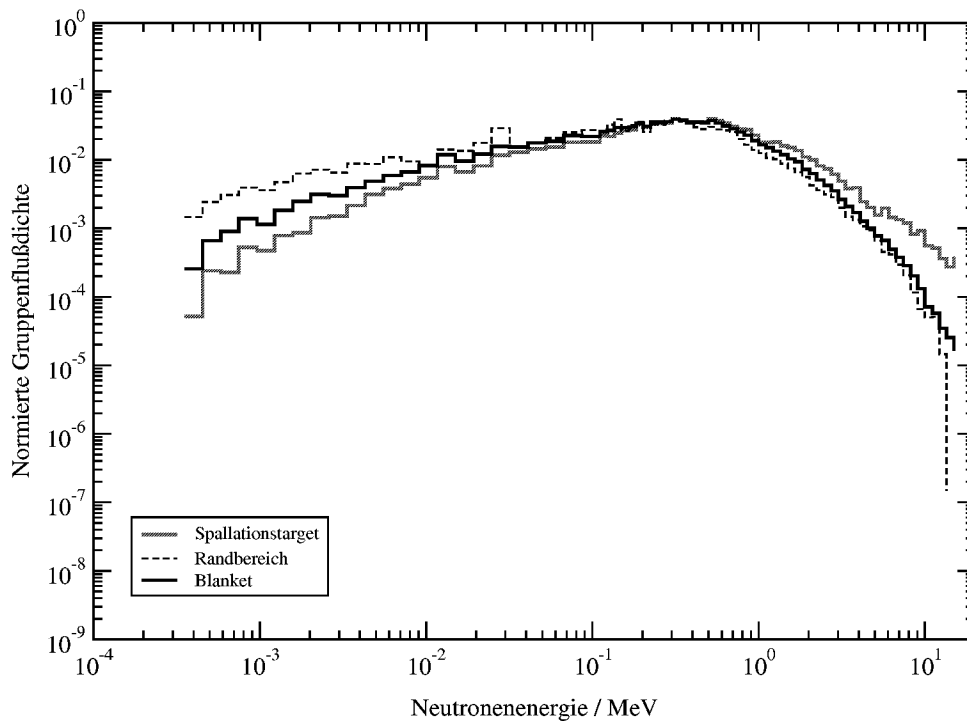


Abbildung 4.5: Normierte energieabhängige Verteilung der Gruppenflußdichte an verschiedenen Positionen im Blanket, Modell *mod4.ext-fmts.ma025pu250*

flusses ein geringeres Flußniveau und wegen der Moderation durch den Brennstoffträger Pb-Bi ein weiches Neutronenspektrum zu beobachten. Der radiale Verlauf des Flußniveaus und der Leistungsdichte ist in Abbildung 4.6 dargestellt. Der Neutronenfluß sinkt am Blanketrand auf das ca. 0,3-fache des Maximalwertes im Spallationstarget.

Für alle in diesem Abschnitt untersuchten Systeme gelten bei der Untersuchung des Abbrandverhaltens die folgenden Abbrandparameter:

- Abbranddauer: 360 Tage
- Erzeugte thermische Leistung: $500 MW_{th}$
- Keine Be- oder Entladung des Brennstoffes.

In Abbildung 4.7 sind der zeitliche Verlauf des k_{fs} -Wertes und der erforderliche Neutronenfluß im Brennstoff dargestellt. Der Abbildung ist zu entnehmen, daß mit zunehmendem Abbrand der k_{fs} -Wert von 0,94 auf 0,88 abfällt. Dieser starke Abfall des k_{fs} -Wertes wäre durch Zugabe frischen Brennstoffes zu kompensieren. Da diese Verfahrensweise durch die gewählten Randbedingungen ausgeschlossen wurde, muß zum Erreichen der gewünschten Leistung der Neutronenfluß, wie im unteren Teil der Abbildung dargestellt, entsprechend erhöht werden.

In Abbildung 4.8 sind die absoluten Massenumsätze an Transuranen zusammengefaßt. Der betrachtete Zeitraum umfaßt die Abbranddauer von 360 Tagen und nach der Entladung des Brenn-

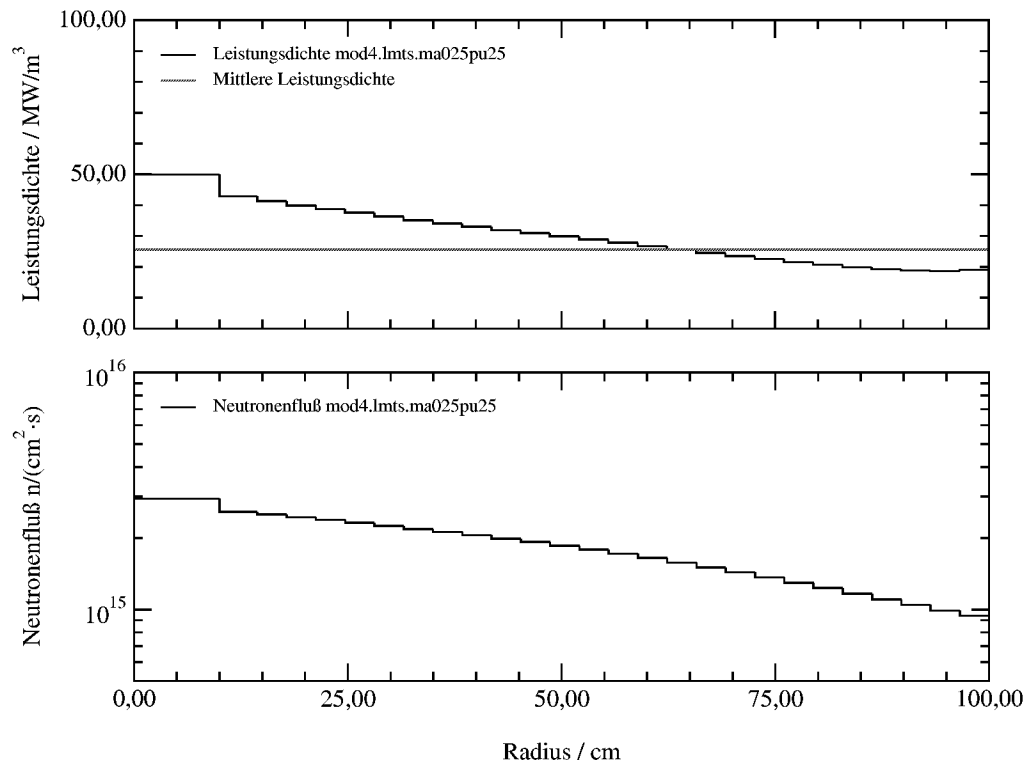


Abbildung 4.6: Radialer Verlauf der Leistungsdichte (oben) und des Neutronenflusses (unten) im Brennstoff, Modell *mod4.ext-fmts.ma025pu250*, Neutronenquellstärke = 10^{18} n/s

stoffes eine Zeit von 3 Jahren. Dieser Zeitraum ist eine Annahme für mögliche Abtrennprozesse, die vor der weiteren Verwendung des Brennstoffes nach der Entladung durchgeführt werden müssen. Der Nuklidvektor direkt nach der Entladung des Brennstoffes verändert sich innerhalb der drei Jahre durch den Zerfall einiger kurzlebiger TRU-Isotope (z.B. ^{239}Np zu ^{239}Pu und ^{242}Cm zu ^{238}Pu). Während der betrachteten Abbrandzeit werden ca. 13 % des Plutoniuminventars vernichtet. Gleichzeitig erhöht sich das MA-Inventar um ca. 19 %. Von den MA kann lediglich das ^{237}Np -Isotop reduziert werden.

Bei der Beurteilung der Actinidenumsätze ist anzumerken, daß bei den in diesem Abschnitt untersuchten Modellen und Abbrandszenarien kein Gleichgewichtszustand eingestellt wurde. Eine vergleichende Betrachtung zum Abbrandverhalten der einzelnen Systeme erfolgt am Ende dieses Abschnittes ab Seite 63.

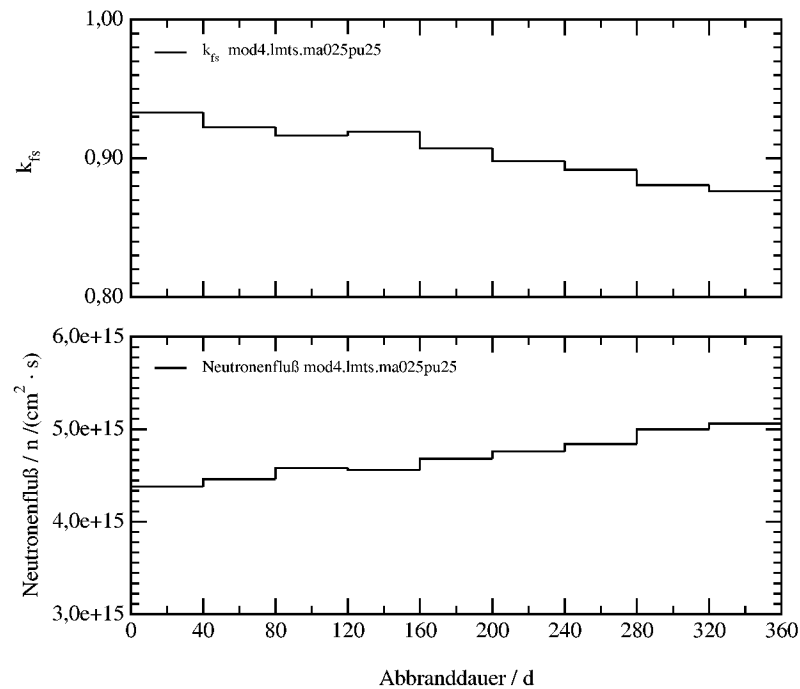


Abbildung 4.7: Zeitlicher Verlauf des k_{fs} -Wertes (oben) und des Neutronenflusses (unten) im Brennstoff, Modell *mod4.ext-fmts.ma025pu250*, Abbrand: 360 Tage bei 500 MW_{th}

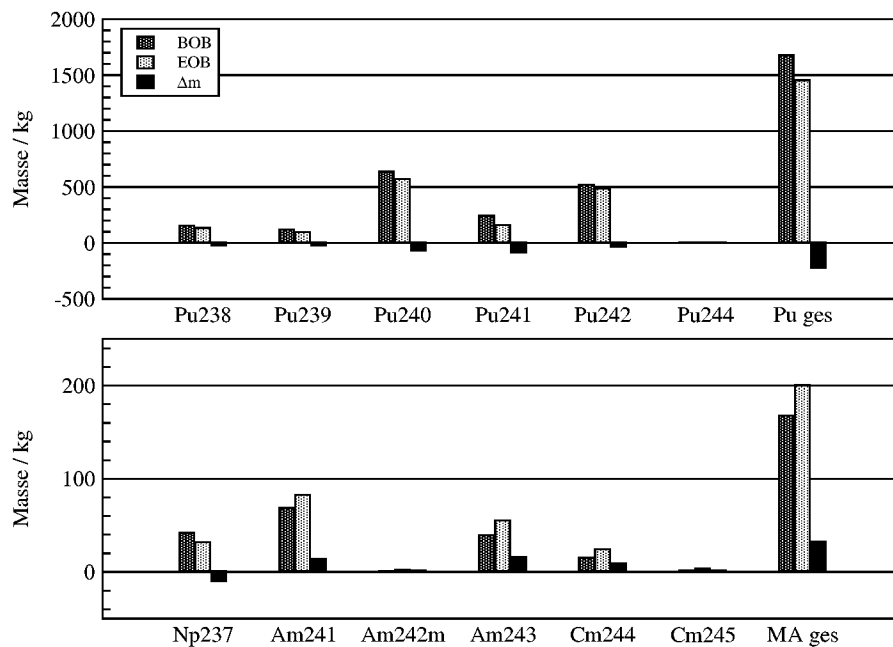


Abbildung 4.8: Absolute TRU-Massenumsätze, Modell *mod4.ext-fmts.ma025pu250*, Abbrand: 360 Tage bei 500 MW_{th} anschließend 3 Jahre Lagerung

4.2.2 Interne Kühlung

In Abbildung 4.9 ist das MCNP-Modell eines homogenen Blankets mit interner Kühlung dargestellt. Um einen zentralen Core-Bereich ist ein Reflektor angeordnet. Hinter dem Reflektor befinden sich Pumpen und Wärmetauscher. Der Reflektor wird oben und unten vom Brennstoff umflossen. Durch den Reflektor soll zum einen der Neutronenverlust durch Leakage vermindert werden und zum anderen sollen die Elemente des primären Kühlkreislauftes vor der hochenergetischen Neutronenstrahlung abgeschirmt werden.

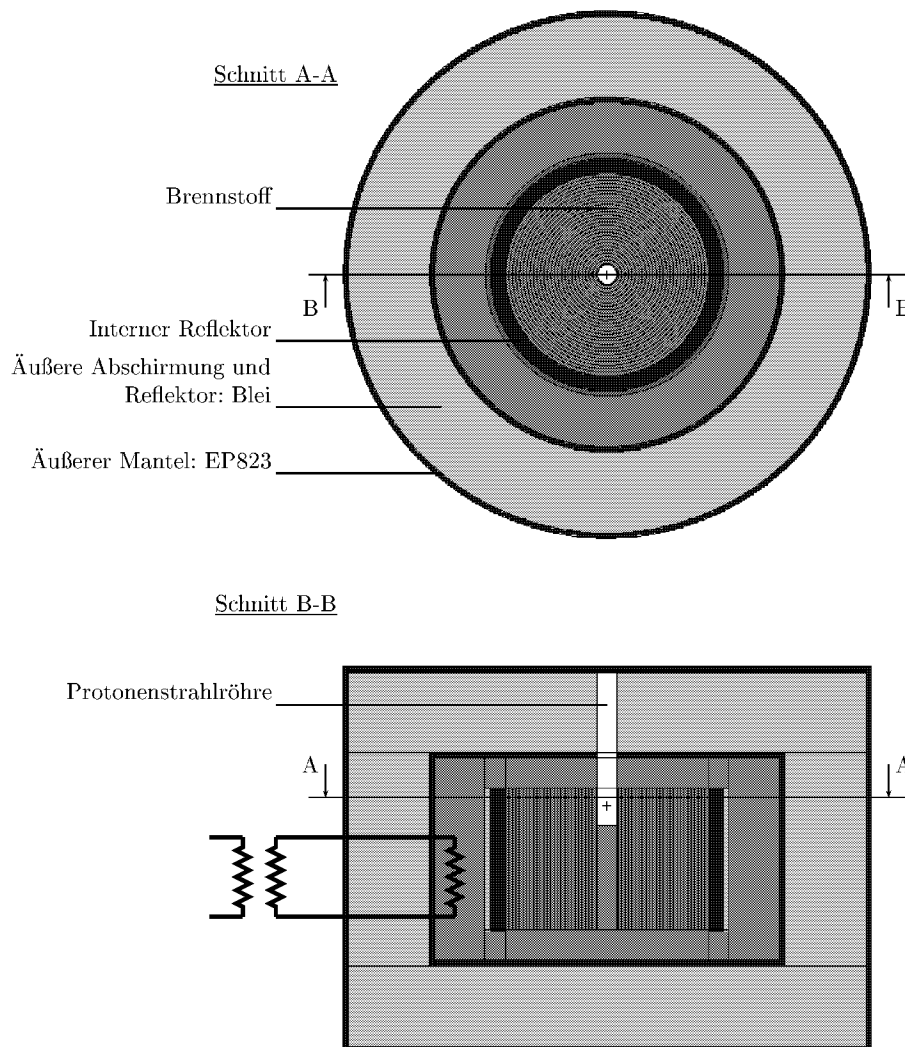


Abbildung 4.9: MCNP-Modell des Blankets mit homogener Brennstoffanordnung und interner Kühlung

Bei der Auslegung eines Blankets mit interner Kühlung müssen neben den geometrischen Parametern Höhe und Radius des Core-Bereiches auch die Positionierung und Dimensionierung des Reflektors berücksichtigt werden. Die Untersuchungen zu diesem Blanketkonzept sind wie folgt gegliedert.

1. Im ersten Schritt wird, ausgehend von den Modellen mit externer Kühlung, betrachtet, wie sich durch Hinzufügen von Reflektor und einem Bereich, in dem Wärmetauscher etc. angeordnet sein sollen, der k_{eff} -Wert der Anlage verändert.
2. An einem geeigneten System werden danach weitere Parameter, wie z.B. Corehöhe und Anreicherung variiert.
3. Anschließend werden verschiedene Reflektormaterialien und -geometrien auf ihre Eignung untersucht. Diese Untersuchung schließt eine genauere Betrachtung der räumlichen Flußverteilung und des Abbrandverhaltens mit ein.

In Tabelle 4.3 sind die fünf Modelle mit den entsprechenden Geometrieangaben zusammengestellt. Die Core-Radien der Modelle 1 - 4 entsprechen denen der Modelle mit externer Kühlung. Für Modell 5 gibt es kein entsprechendes Modell mit externer Kühlung. Für alle Modelle ist zunächst ein Graphitreflektor angenommen worden. Der Reflektor ist 30 cm breit und 100 cm hoch. Der Spalt für die Kühlkreislaufkomponenten hinter dem Reflektor beträgt 50 cm. Um die Ergebnisse besser miteinander vergleichen zu können, wird bei allen Modellen mit der gleichen Pu-Anreicherung von 3 at% gearbeitet. Es wird der TRU-Isotopenvektor aus Tabelle B.4 verwendet.

Wie bei Vergrößerung des Brennstoffvolumens zu erwarten war, erhöht sich der k_{eff} -Wert gegenüber den Systemen mit externer Kühlung (s. Tabelle 4.1). Ein Vergleich der Werte zeigt, daß bei den Modellen mit sehr großem Radius der Zugewinn an Spaltmaterial nur geringe Auswirkungen auf den k_{eff} -Wert hat. Bei Modell *mod1.int.fmts* steigt der k_{eff} -Wert lediglich um 3 nile während er bei Modell *mod4.int.fmts* um ca. 18 nile ansteigt. Dieses Verhalten ist ein deutliches Zeichen dafür, daß bei *mod1.int.fmts* der Neutronenfluß bereits vor dem Reflektor sehr stark abgefallen ist und der äußere Bereich des Blankets für die Erzeugung von Neutronen durch Spaltreaktionen kaum mehr von Bedeutung ist.

Tabelle 4.3: k_{eff} -Werte verschiedener Blanketentwürfe mit interner Kühlung, Anreicherung: 3 at% Pu-Vektor, Pu-Isotopenvektor: Thorium 2-fach rezykliert (s. Tabelle B.4), Höhe Graphitreflektor: 100 cm, Spalt hinter Reflektor: 50 cm

Modell	Radius Core cm	Höhe Core cm	Breite Refl. cm	k_{eff}	Fehler
mod1.int.fmts ⁵	270,00	200,00	30,00	1,3303	1,61E-03
mod2.int-fmts	200,00	200,00	30,00	1,2963	1,72E-03
mod3.int-fmts	150,00	200,00	30,00	1,2890	1,61E-03
mod4.int-fmts	100,00	200,00	30,00	1,1991	1,81E-03
mod5.int-fmts	75,00	200,00	30,00	1,1609	1,74E-03

Für die weiteren Betrachtungen wird Modell *mod4.int.fmts* ausgewählt. Wie bereits ausgeführt wurde, ist durch die Erweiterung des Blankets für die Anordnung von Wärmetauschern etc. im Blanket der k_{eff} -Wert stark angestiegen. Wie Tabelle 4.4 zu entnehmen ist, kann der k_{eff} -Wert

⁵Anmerkung zur Nomenklatur: mod1 = Modellnummer - die Innencoreabmessungen entsprechen denen der Modelle mit externer Kühlung, int-fmts = FlüssigMetall TransmutationsSystem mit interner Kühlung

durch Verringerung der Corehöhe und/oder der Spaltstoffanreicherung abgesenkt werden. Die Corehöhe wird beginnend mit 200 cm um 50 cm bis auf 100 cm verringert. Durch die erhöhte Leakage in axialer Richtung sinkt der k_{eff} -Wert. Die Verringerung der Core-Höhe ist allerdings nicht das geeignete Mittel, den k_{eff} -Wert des Gesamtsystems unter $k_{\text{eff}} = 1$ abzusenken. Denn wenn das Core zu klein wird, sind hohe Leistungsdichten erforderlich, um noch ausreichend Energie zu produzieren. Es wird deshalb bei den weiteren Betrachtungen versucht, den gewünschten k_{eff} -Wert durch Anpassung der Spaltstoffkonzentration einzustellen.

Tabelle 4.4: k_{eff} -Werte Modell *mod4.int.fmts* bei Variation der Corehöhe und verschiedenen Pu-Anreicherungen, Pu-Isotopenvektor: Thorium 2-fach rezykliert (s. Tabelle B.4), Breite Graphitreflektor: 30 cm, Spalt hinter Reflektor 50 cm

Modell	Höhe Core cm	Höhe Refl. cm	Pu at%	k_{eff}	Fehler
mod4-1.int-fmts.ma0pu250 ⁶	200,00	100,00	2,50	1,134	1,83E-03
mod4-2.int-fmts.ma0pu250	150,00	90,00	2,50	1,077	1,88E-03
mod4-3.int-fmts.ma0pu250	100,00	40,00	2,50	0,965	1,60E-03
mod4-1.int-fmts.ma0pu200	200,00	100,00	2,00	1,064	1,78E-03
mod4-2.int-fmts.ma0pu200	150,00	90,00	2,00	1,013	1,80E-03
mod4-3.int-fmts.ma0pu200	100,00	40,00	2,00	0,894	1,68E-03
mod4-1.int-fmts.ma0pu175	200,00	100,00	1,75	1,027	1,82E-03
mod4-2.int-fmts.ma0pu175	150,00	90,00	1,75	0,976	1,89E-03
mod4-3.int-fmts.ma0pu175	100,00	40,00	1,75	0,852	1,66E-03

Bei der Auswahl eines geeigneten Reflektors für das System sind, wie oben bereits einmal aufgeführt, zwei wesentliche Anforderungen zu erfüllen. Der Neutronenfluß hinter dem Reflektor sollte zum Schutz der wärmetechnischen Einrichtungen ausreichend abgesenkt werden. Außerdem sollen die Neutronen reflektiert werden. Unter diesen Gesichtspunkten wurden drei Reflektormaterialien untersucht:

- Graphitreflektor
- Bleireflektor
- Eisenreflektor mit B₄C-Einlage

Graphitreflektor

Das verwendete Modell basiert auf *mod4.int.fmts*. Es unterscheidet sich darin, daß die Reflektorhöhe auf 140 cm erhöht wurde. In Tabelle 4.5 sind die k_{eff} -Werte für verschiedene TRU-Anreicherungen zusammengestellt.

⁶Anmerkung zur Nomenklatur: mod4-1 = Modellnummer - Variation Nr. 1 des Basismodells mod4.ext-fmts, int-fmts = FlüssigMetall TransmutationsSystem mit interner Kühlung maApuB = TRU-Anreicherung: A/100 at% MA bzw. B/100 at%Pu

Tabelle 4.5: k_{eff} -Werte Modell *mod4-5.int-fmts* und verschiedene TRU-Anreicherungen, TRU-Isotopenvektor: Thorium 2-fach rezykliert (s. Tabelle B.4), Höhe Graphitreflektor: 140 cm, Breite Graphitreflektor: 30 cm, Spalt hinter Reflektor 50 cm

Modell	MA at%	Pu at%	k_{eff}	Fehler
mod4-5.int-fmts.ma0pu200	0,00	2,00	1,076	2,12E-03
mod4-5.int-fmts.ma0pu175	0,00	1,75	1,037	1,78E-03
mod4-5.int-fmts.ma0pu150	0,00	1,50	1,003	1,75E-03
mod4-5.int-fmts.ma0pu125	0,00	1,25	0,960	1,86E-03
mod4-5.int-fmts.ma0pu100	0,00	1,00	0,920	1,72E-03
mod4-5.int-fmts.ma0pu050	0,00	0,50	0,816	2,35E-03
mod4-5.int-fmts.ma100pu200	1,00	2,00	0,864	1,43E-03
mod4-5.int-fmts.ma075pu200	0,75	2,00	0,891	1,53E-03
mod4-5.int-fmts.ma050pu200	0,50	2,00	0,924	2,01E-03
mod4-5.int-fmts.ma025pu200	0,25	2,00	0,982	1,99E-03

Beispielhaft für das Blanketkonzept eines homogenen Blankets mit interner Kühlung und Graphitreflektor wird Modell *mod4-5.int-fmts.ma050pu200* weitergehend betrachtet. In Abbildung 4.10 ist die normierte Gruppenflußdichte an verschiedenen Positionen im Blanket dargestellt. Es ist sehr deutlich eine starke Verschiebung des Neutronenspektrums im Spallationstarget und an den andern Positionen im Blanket zu beobachten. Während im Spallationstarget die schnellen Neutronen dominieren, ist vor allem im Bereich vor dem Reflektor ein sehr großer thermischer Fluß festzustellen. Die Thermalisierung ist auf Moderationsvorgänge durch und Rückstreuungen aus dem Graphitreflektor zurückzuführen. Vergleicht man die dargestellte energetische Verteilung der Gruppenflüsse mit denen des Modells mit externer Kühlung (Abbildung 4.5), so wird deutlich, daß die Thermalisierung durch den Graphitreflektor nicht nur lokal wirkt sondern auch das Gesamtsystem beeinflusst. Zwischen den Gruppenflüssen im Gesamtblanket und dem Core-Bereich gibt es im thermischen Energiebereich kaum Unterschiede. Im epithermischen - schnellen Bereich (einige keV - MeV) stellt sich im Core-Bereich ein höheres Flußniveau ein.

Wie in Abbildung 4.11 zu erkennen ist, steigt die Leistungsdichte in der Nähe des internen Reflektors auf bis zu $80 \text{ MW}/\text{m}^3$ an. Diese Leistungsspitzen sind auf die Thermalisierung der Neutronen durch den Graphitreflektor und die wesentlich höheren thermischen Absorptionswirkungsquerschnitte zurückzuführen. Die eingezeichneten mittleren Leistungsdichten für das Blanket und den Core-Bereich zeigen aber, daß die lokalen Leistungsmaxima keinen großen Einfluß auf das Gesamtsystem haben. Die mittlere Leistung des Core-Bereiches beträgt ca. $20 \text{ MW}/\text{m}^3$, während die mittlere Leistung des gesamten Blankets bei ca. $12 \text{ MW}/\text{m}^3$ liegt. Für den Vergleich der Abschirmwirkung des internen Reflektors wird der Neutronenfluß vor und hinter dem internem Reflektor verglichen. Der Neutronenfluß ist nach dem Reflektor ungefähr auf die Hälfte abgesunken. Der Graphitreflektor ist demnach sehr gut zur Absenkung des Neutronenflusses geeignet.

Mit den auf Seite 46 beschriebenen Abbrandbedingungen ergibt sich der in Abbildung 4.12 dargestellte zeitliche Verlauf des k_{fs} -Wertes und die entsprechende Angleichung des Neutronen-

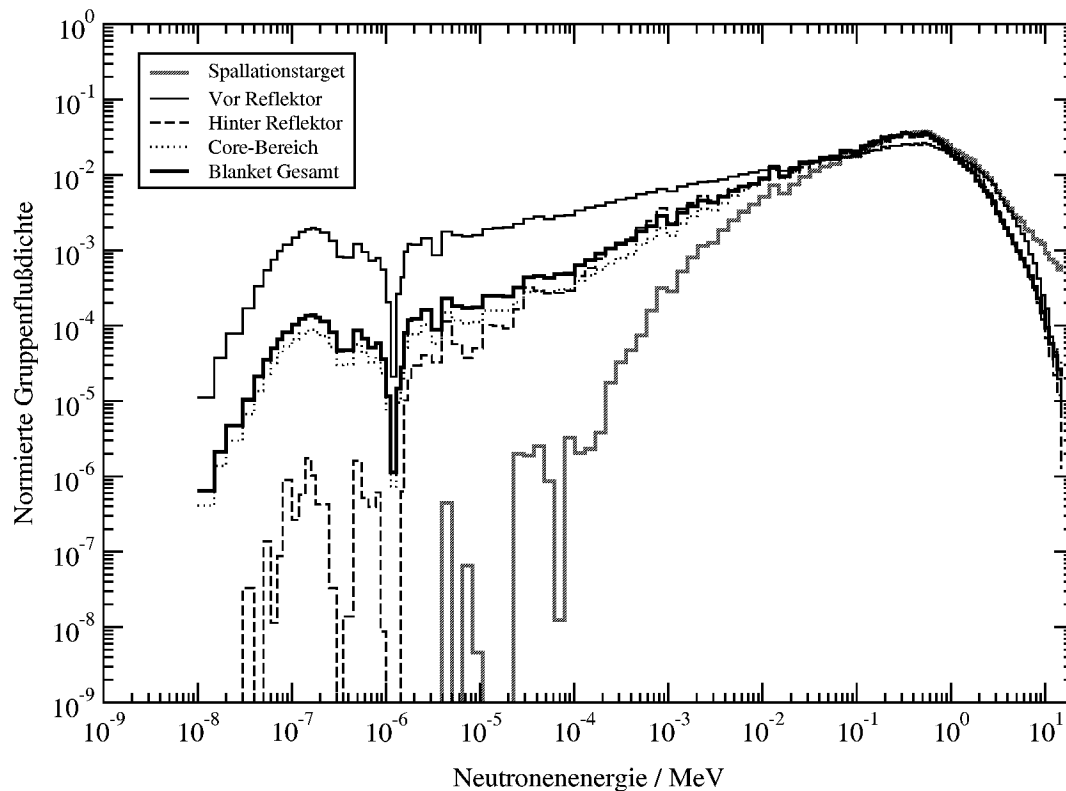


Abbildung 4.10: Normierte energieabhängige Verteilung der Gruppenflußdichte an verschiedenen Positionen im Blanket, Modell *mod4-5.int-fmts.ma050pu200*

flusses. Der k_{fs} -Wert fällt während der Betriebsdauer von 360 Tagen um ca. 3 nile von 0,965 auf 0,937.

Die TRU-Umsätze sind in Abbildung 4.13 dargestellt. Dem Abbrand von 360 Tagen schließt sich wiederum eine dreijährige Lagerzeit an. Um die Änderungen des TRU-Vektors während der Lagerzeit des Brennstoffes zu verdeutlichen, sind in Tabelle 4.6 die Massen der wesentlichen MA- und Pu-Isotope zu Beginn (BOB) und Ende (EOB) des Abbrandes und der anschließenden Lagerzeit gegenübergestellt. Der Vergleich des MA-Inventares des frisch entladenen Brennstoffes mit dem Inventar nach dreijähriger Lagerzeit, zeigt, daß mit dem untersuchten Modell MA vernichtet werden können. Zur negativen MA-Bilanz tragen ^{237}Np und ^{241}Am bei. Durch die anschließende Lagerzeit wird durch α -Zerfall ^{242}Cm in ^{238}Pu umgewandelt. Außerdem wird aus ^{241}Pu durch β^- -Zerfall ^{241}Am aufgebaut. Die MA-Bilanz ist daher nach der Lagerzeit von 3 Jahren nicht mehr negativ. Für die weitere Verwendung des Brennstoffes ist der Aufbau von ^{241}Am allerdings nicht nachteilig. Denn es konnte gezeigt werden, daß gerade dieses Isotop während des Abbrandes umgesetzt wird. Eine weitergehende Bewertung der Abbrandeigenschaften erfolgt beim Vergleich der Modelle am Ende dieses Abschnittes ab Seite 63.

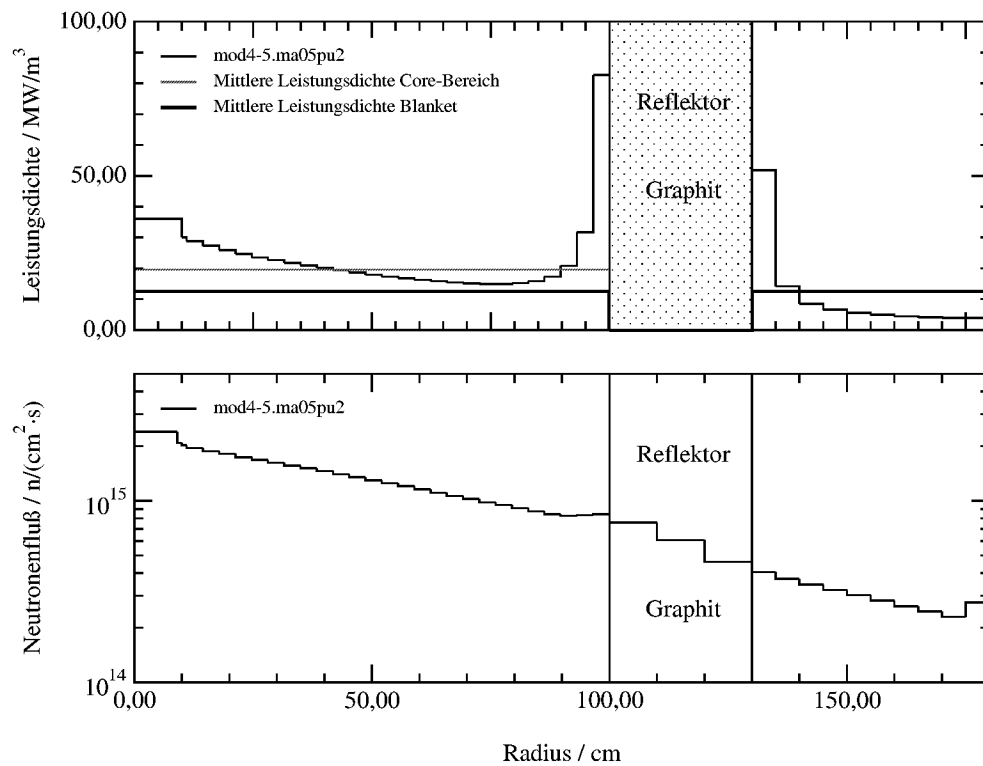


Abbildung 4.11: Radialer Verlauf des Neutronenflusses, Modell *mod4-5.int-fmts.ma05.pu200*, Neutronenquellstärke = 10^{18} n/s

Tabelle 4.6: Veränderung der TRU-Massenbilanz durch die dreijährige Lagerzeit, Modell *mod4-5.int-fmts.ma05.pu200*, Abbrand: 360 Tage bei 500 MW_{th} anschließend 3 Jahre Lagerung

Isotop	Ausgangsmasse kg	Entlademasse kg	Differenz kg	3 Jahre Lagerung kg	Differenz kg
²³⁷ Np	231,10	204,94	-26,16	206,71	-24,39
²⁴¹ Am	378,90	342,15	-36,75	403,96	25,06
^{242m} Am	3,96	4,89	0,93	4,82	0,86
²⁴² Cm	0,02	22,22	22,20	0,22	0,20
²⁴⁴ Cm	83,73	104,40	20,67	93,07	9,34
Summe MA	926,91	911,43	-15,48	941,50	14,59
²³⁸ Pu	344,70	352,31	7,61	365,63	20,93
²³⁹ Pu	264,53	232,66	-31,87	232,78	-31,75
²⁴⁰ Pu	1407,50	1336,60	-70,90	1347,40	-60,10
²⁴¹ Pu	536,76	470,07	-66,69	406,45	-130,31
Summe Pu	3703,49	3531,64	-171,85	3492,36	-211,13

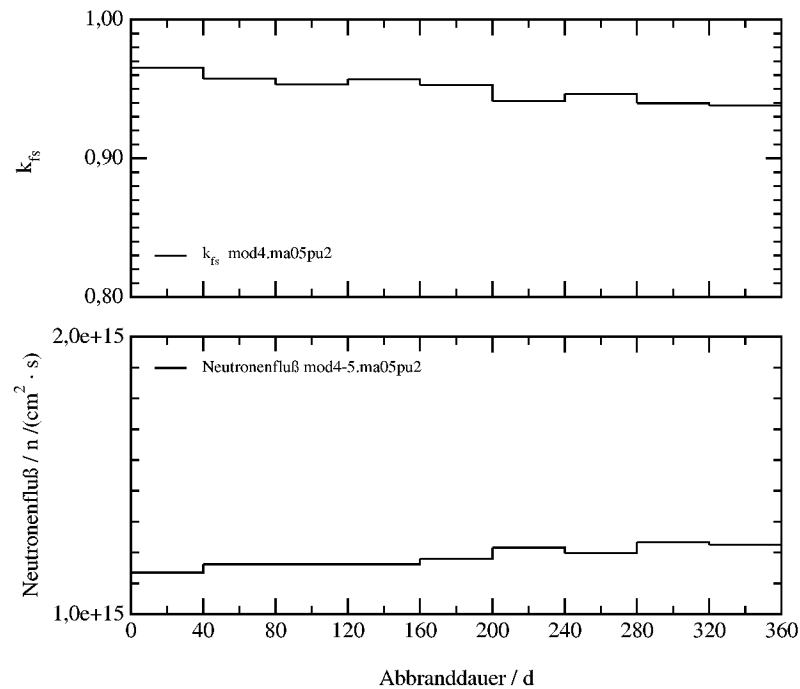


Abbildung 4.12: Zeitlicher Verlauf des k_{fs} -Wertes (oben) und des Neutronenflusses (unten) im Brennstoff, Modell *mod4-5.int-fmts.ma050pu200*, Abbrand: 360 Tage bei 500 MW_{th}

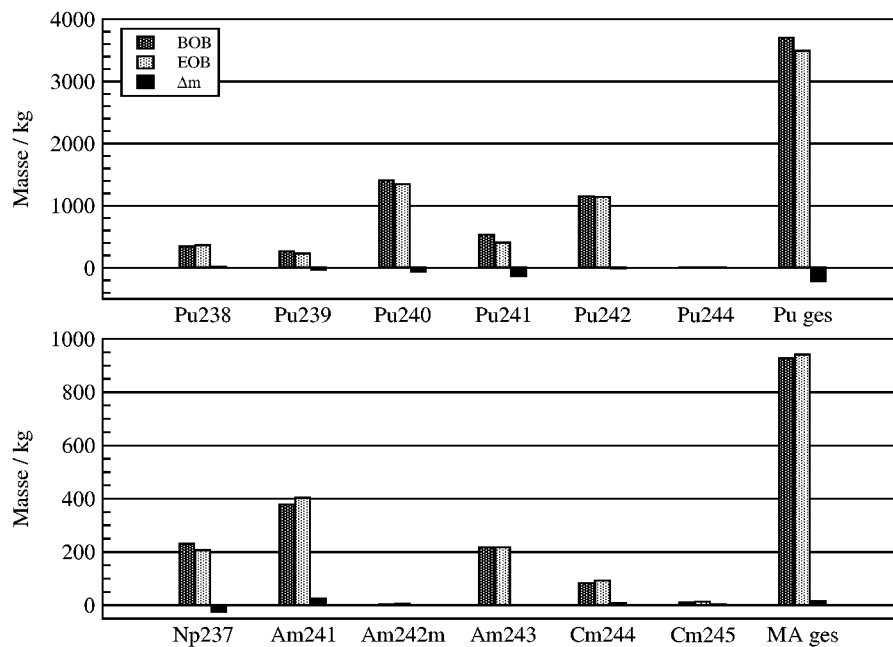


Abbildung 4.13: TRU-Massenumsätze, Modell *mod4-5.int-fmts.ma050pu200*, Abbrand: 360 Tage bei 500 MW_{th} anschließend 3 Jahre Lagerung

Bleirefektor

Das verwendete Modell basiert wieder auf *mod4.int.fmts*. Die Reflektorhöhe wurde auf 140 cm erhöht. Als Reflektormaterial wird Blei eingesetzt. In Tabelle 4.7 sind die k_{eff} -Werte bei verschiedenen TRU-Anreicherungen zusammengestellt.

Tabelle 4.7: k_{eff} -Werte Modell *mod4-7.int.fmts* und verschiedene TRU-Anreicherungen, TRU-Isotopenvektor: Thorium 2-fach rezykliert (s. Tabelle B.4), Höhe Bleirefektor: 140 cm, Breite Bleirefektor: 30 cm, Spalt hinter Reflektor 50 cm

Modell	MA at%	Pu at%	k_{eff}	Fehler
mod4-7.int-fmts.ma0pu050	0,00	0,50	0,475	1,05E-03
mod4-7.int-fmts.ma0pu100	0,00	1,00	0,676	1,23E-03
mod4-7.int-fmts.ma0pu125	0,00	1,20	0,757	1,26E-03
mod4-7.int-fmts.ma0pu150	0,00	1,50	0,828	1,44E-03
mod4-7.int-fmts.ma0pu175	0,00	1,75	0,891	1,30E-03
mod4-7.int-fmts.ma0pu200	0,00	2,00	0,947	1,42E-03
mod4-7.int-fmts.ma025pu200	0,25	2,00	0,900	1,38E-03
mod4-7.int-fmts.ma050pu200	0,50	2,00	0,877	1,20E-03
mod4-7.int-fmts.ma075pu200	0,75	2,00	0,858	1,17E-03
mod4-7.int-fmts.ma100pu200	1,00	2,00	0,848	1,12E-03
mod4-7.int-fmts.ma025pu225	0,25	2,25	0,950	1,35E-03

Als repräsentativer Vertreter dieses Blanketkonzepts wird Modell *mod4-7.int.fmts.ma025pu225* für weitere Betrachtungen ausgewählt. Bei Einsatz eines Bleirefektors werden die Neutronen, im Vergleich zum Graphitreflektor, kaum durch den Reflektor thermalisiert (s. Abbildung 4.14).

In Abbildung 4.15 ist die radiale Verteilung der Leistungsdichte und des Neutronenflusses dargestellt. Sowohl Leistungsdichte als auch Neutronenfluß nehmen im Blanket kontinuierlich ab. Der Neutronenfluß ist nach dem Reflektor auf 68% des Flußniveaus vor dem Reflektor gesunken. Der Bleirefektor bietet demnach weniger gute Abschirmeigenschaften als der Graphitreflektor. Da Blei bereits bei einer Temperatur von $\vartheta = 327\text{ °C}$ schmilzt, läßt sich ein Bleirefektor technisch nicht so einfach realisieren wie ein temperaturbeständiger Reflektor aus z.B. Graphit. Es wären zusätzliche Einbauten zur Fixierung des Reflektors im Blanket erforderlich. Außerdem ergeben sich Probleme, wenn bei einer Leckage das Reflektorblei ausläuft. Diese Szenarien müsste man weitergehend untersuchen und gegebenenfalls wären entsprechende Vorkehrungen zu treffen. Ob dieser technische Aufwand durch bessere Abbrandeigenschaften dieses Blanketkonzeptes zu rechtfertigen ist, wird in der abschließenden Betrachtung der homogenen Blanketkonzepte erörtert.

Während des Abbrandes gemäß der Abbrandbedingungen auf Seite 46 sinkt der k_{fs} -Wert des Systems von 0,977 um 3,5 nile auf 0,942 (s. Abbildung 4.16). Um die Leistung von $P_{th} = 500$ MW über den gesamten Abbrandzeitraum bereitstellen zu können, ist der Neutronenfluß im System, wie im unteren Teil des Bildes dargestellt, entsprechend anzupassen.

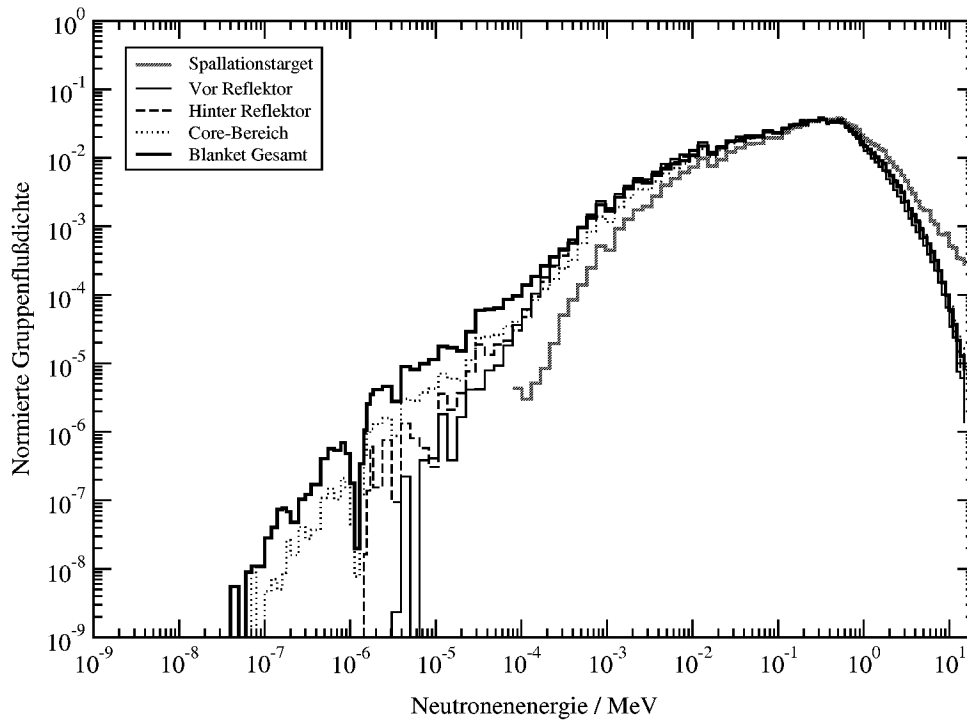


Abbildung 4.14: Normierte energieabhängige Verteilung der Gruppenflußdichte an verschiedenen Positionen im Blanket, Modell *mod4-7.int-fmts.ma025pu225*

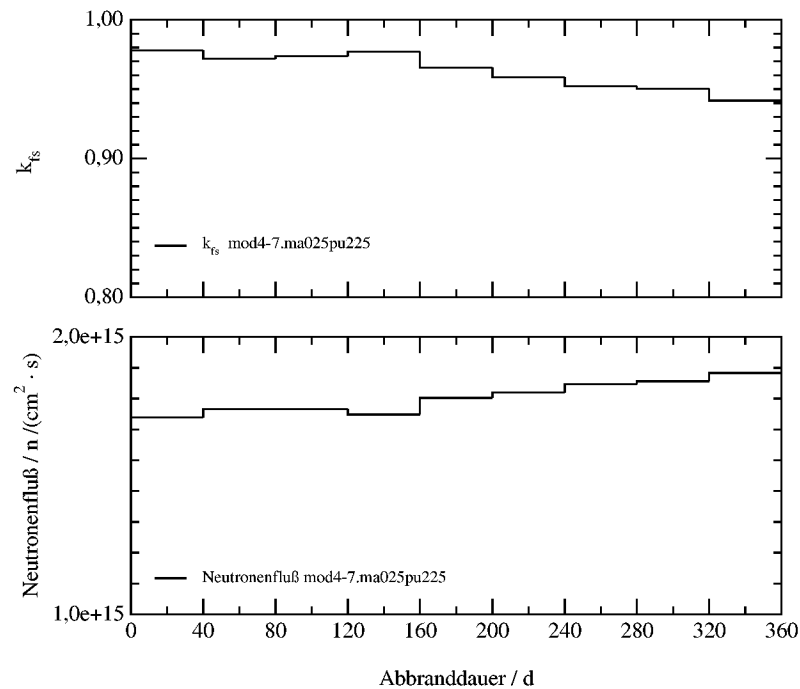


Abbildung 4.16: Zeitlicher Verlauf des k_{fs} -Wertes (oben) und des Neutronenflusses (unten) im Blanket, Modell *mod4-7.int-fmts.ma025pu225*, Abbrand: 360 Tage bei 500 MW_{th}

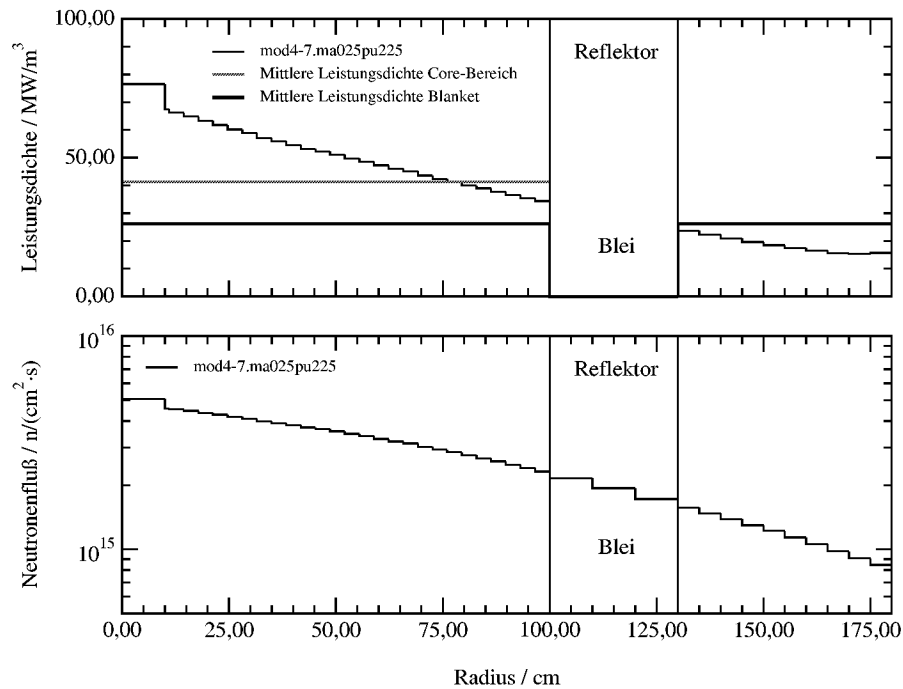


Abbildung 4.15: Radialer Verlauf des Neutronenflusses und der Leistungsdichte, Modell *mod4-7.int-fmts.ma025pu225*, Neutronenquellstärke = 10^{18} n/s

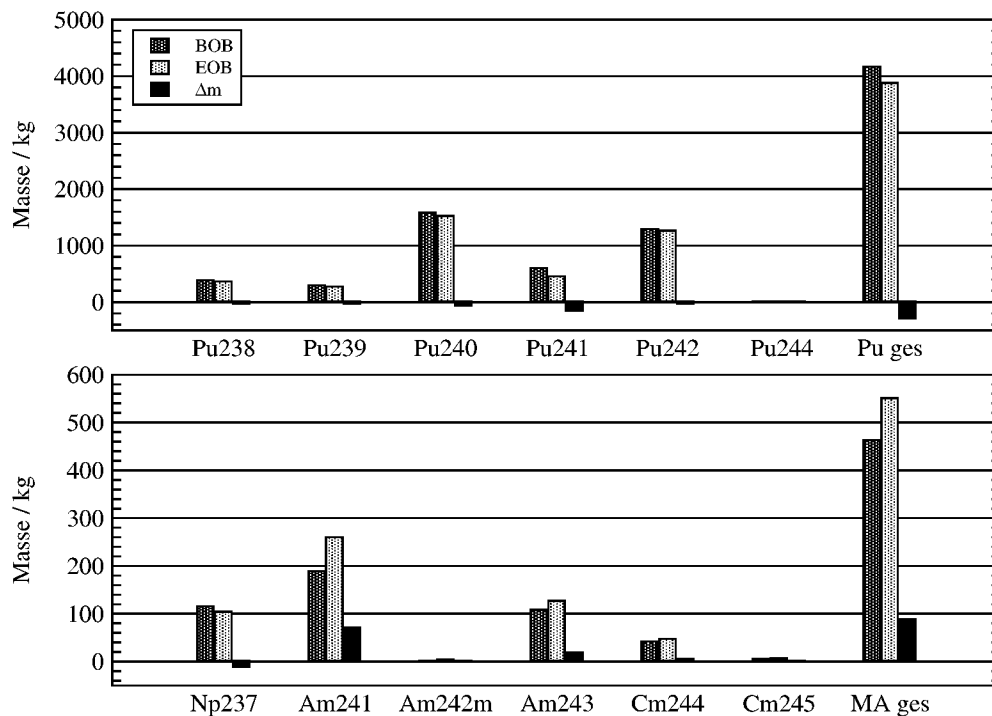


Abbildung 4.17: Absolute TRU-Massenumsätze, Modell *mod4-7.int-fmts.ma025pu225*, Abbrand: 360 Tage bei $500 \text{ MW}_{\text{th}}$ anschließend 3 Jahre Lagerung

Die absoluten TRU-Umsätze sind in Abbildung 4.17 dargestellt. Es werden vor allem Plutonium-Isotope umgesetzt. Von den Minoren Actiniden ist lediglich bei ^{237}Np eine negative Massenbilanz zu verzeichnen. Nach der Abbranddauer von 360 Tagen und einer Lagerung von 3 Jahren ist das Plutonium-Inventar von 4,16 Tonnen um 6,8 % auf 3,88 Tonnen verringert worden. Das Inventar an Minoren Actiniden steigt in der gleichen Zeit um ca. 19% von 463 kg auf 551 kg an.

Eisenreflektor mit B_4C -Schicht

Ausgehend von Modell *mod4.int.fmts* werden die gleichen Änderungen durchgeführt, wie bei den beiden vorhergehenden Modellen. Der Reflektor besteht aus einem korrosionsbeständigen Stahl (EP823), der eine B_4C -Schicht umschließt. In den untersuchten Modellen wird der Reflektor zweigeteilt abgebildet. Durch den Stahl sollen die Neutronen in den Core-Bereich reflektiert werden. Die B_4C -Schicht dient der Flußabsenkung hinter dem Reflektor. Zunächst muß eine geeignete Reflektordicke gefunden werden. Die Ergebnisse hierzu sind in Tabelle 4.8 erfaßt. Die Modelle mit einer Reflektordicke von 20 bzw. 10 cm binden sehr viel Reaktivität. Das ist vor allem auf die Absorptionen in der B_4C -Schicht zurückzuführen. Es wird *mod4-9.int-fmts.fe_4cm.b4c_1cm.ma0pu200* als am Besten geeignetes der untersuchten Modelle für die weiteren Betrachtungen als Modell *mod4-9.int-fmts* näher untersucht. In Tabelle 4.9 sind für Modell *mod4-9.int-fmts* die k_{eff} -Werte bei unterschiedlichen Anreicherungen mit Pu und MA angegeben.

Tabelle 4.8: k_{eff} -Werte verschiedene Modelle mit Eisen/ B_4C -Reflektor, Pu-Anreicherung: 2 at%, TRU-Isotopenvektor: Thorium 2-fach rezykliert (s. Tabelle B.4), Höhe Reflektor: 140 cm, Spalt hinter Reflektor 50 cm

Modell	Breite		k_{eff}	Fehler
	Eisen / cm	B_4C / cm		
mod4-9.int-fmts.fe_15cm.b4c_5cm.ma0pu2 ⁷	15,00	5,00	0,806	2,19E-03
mod4-9.int-fmts.fe_8cm.b4c_2cm.ma0pu200	8,00	2,00	0,858	2,28E-03
mod4-9.int-fmts.fe_9cm.b4c_1cm.ma0pu200	9,00	1,00	0,880	1,38E-03
mod4-9.int-fmts.fe_95cm.b4c_05cm.ma0pu2	9,50	0,50	0,899	1,23E-03
mod4-9.int-fmts.fe_10cm.b4c_0cm.ma0pu200	10,00	0,00	0,921	1,47E-03
mod4-9.int-fmts.fe_4cm.b4c_1cm.ma0pu200	4,00	1,00	0,899	1,41E-03

⁷Anmerkung zur Nomenklatur: mod4-9 = Modellnummer - Variation 9 des Basismodells mod4.int-fmts, int-fmts = FlüssigMetall TransmutationsSystem mit interner Kühlung, fe_8cm.b4c_2cm = Stärke der zwei Reflektorkomponenten, ,maApuB = TRU-Anreicherung: A/100 at% MA bzw. B/100 at%Pu

Tabelle 4.9: k_{eff} -Werte Modell *mod4-9.int-fmts* mit Eisen/ B_4C -Reflektor bei verschiedenen TRU-Anreicherungen, TRU-Isotopenvektor: Thorium 2-fach rezykliert (s. Tabelle B.4), Höhe Reflektor: 140 cm, Spalt hinter Reflektor: 50 cm

Modell	Breite Eisen cm	Breite B_4C cm	MA at%	Pu at%	k_{eff}	Fehler
mod4-9.int-fmts.ma0pu300	4,00	1,00	0,00	3,00	1,102	1,48E-03
mod4-9.int-fmts.ma0pu250	4,00	1,00	0,00	2,50	1,011	1,53E-03
mod4-9.int-fmts.ma0pu225	4,00	1,00	0,00	2,25	0,957	1,36E-03
mod4-9.int-fmts.ma0pu200	4,00	1,00	0,00	2,00	0,899	1,41E-03
mod4-9.int-fmts.ma025pu225	4,00	1,00	0,25	2,25	0,926	1,38E-03
mod4-9.int-fmts.ma050pu225	4,00	1,00	0,50	2,25	0,906	1,38E-03
mod4-9.int-fmts.ma075pu225	4,00	1,00	0,75	2,25	0,889	1,26E-03

Für Modell *mod4-9.int-fmts.ma025pu225* ist in Abbildung 4.18 die energieabhängige normierte Gruppenflußdichte an verschiedenen Orten im Blanket dargestellt. Den Bereich des Spallationstargets dominieren die schnellen Neutronen. Die energetische Verteilung der Gruppenflußdichten im Blanket und Core-Bereich unterscheidet sich nur unwesentlich voneinander. Im Vergleich mit der Gruppenflußdichte direkt vor dem Reflektor sind nur geringe Unterschiede zu erkennen.

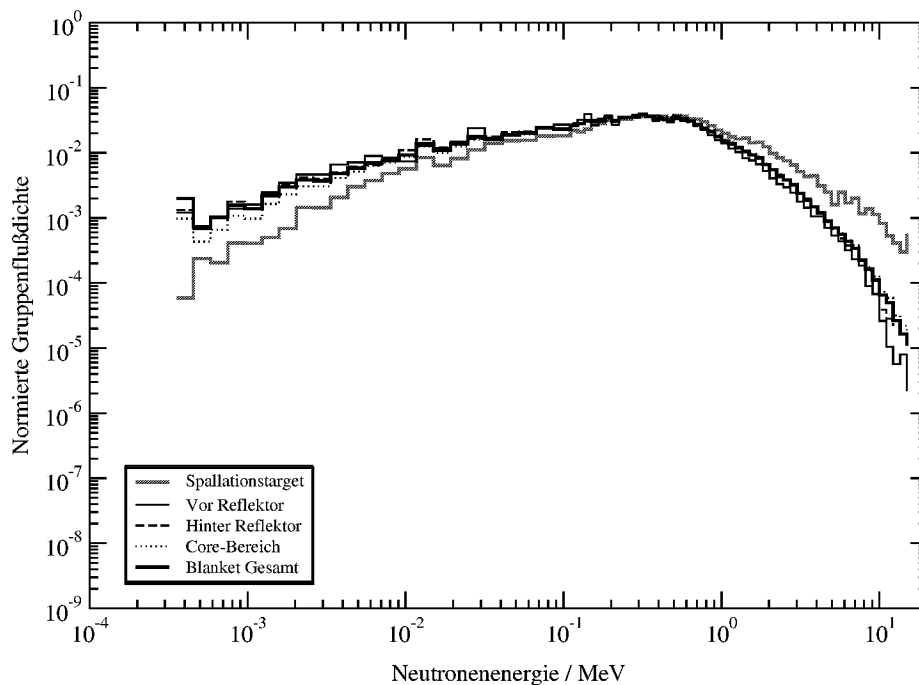


Abbildung 4.18: Normierte energieabhängige Verteilung der Gruppenflußdichte an verschiedenen Positionen im Blanket, Modell *mod4-9.int-fmts.ma025pu225*

Betrachtet man den radialen Verlauf des Neutronenflusses und der Leistungsdichte in Abbildung 4.19, so wird deutlich, daß der Neutronenfluß durch den internen Reflektor lediglich um 11% reduziert wird. Normiert man die Quellstärke der Spallationsquelle auf 10^{18} n/s , so erreicht man im Spallationstarget eine maximale Leistungsdichte von ca. 50 MW/m^3 . Die mittlere Leistungsdichte im Core-Bereich beträgt ca. 22 MW/m^3 . Für das gesamte Blanket ergibt sich eine mittlere Leistungsdichte von ca. 17 MW/m^3 .

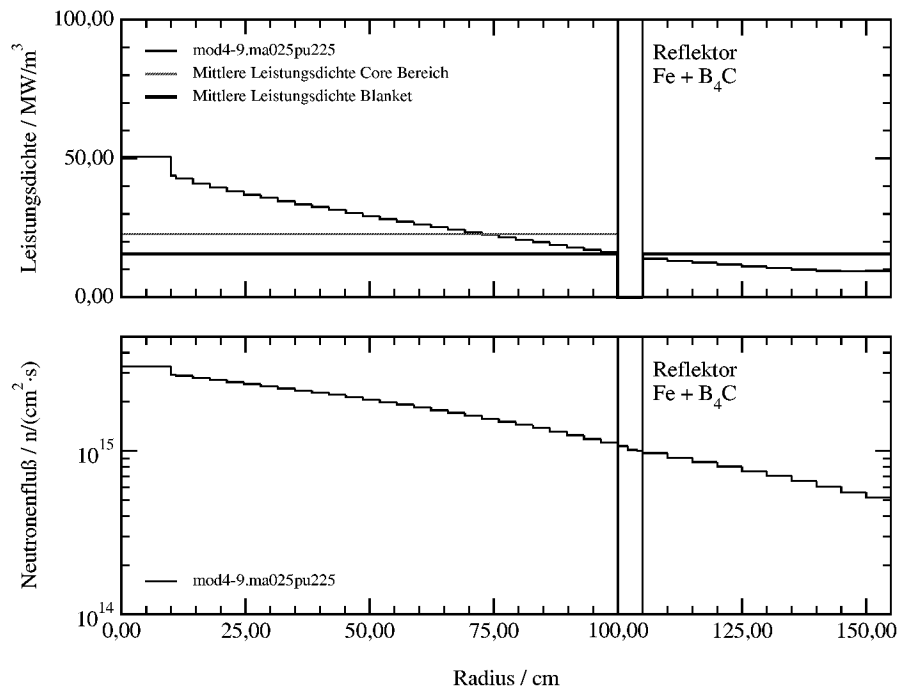


Abbildung 4.19: Radialer Verlauf des Neutronenflusses und der Leistungsdichte, Modell *mod4-9.int-fmts.ma025pu225*, Neutronenquellstärke = 10^{18} n/s

In den Abbildungen 4.20 und 4.21 sind die Ergebnisse der Abbrandberechnung angegeben. Es gelten die auf Seite 46 festgelegten Abbrandparameter. Der k_{fs} -Wert sinkt während der Betriebsdauer um 3 nile von 0,958 auf 0,928. Die erforderliche Neutronenflußanpassung ist im unteren Teil der Abbildung dargestellt. Das MA-Inventar erhöht sich während des Betrachtungszeitraums von 391 kg um ca. 18% auf 463 kg. Das einzige MA-Isotop, das während der Abbrandzeit vernichtet werden konnte, ist ^{237}Np . Die Plutoniummasse nimmt um 7,6 % von 3,52 auf 3,25 Tonnen ab.

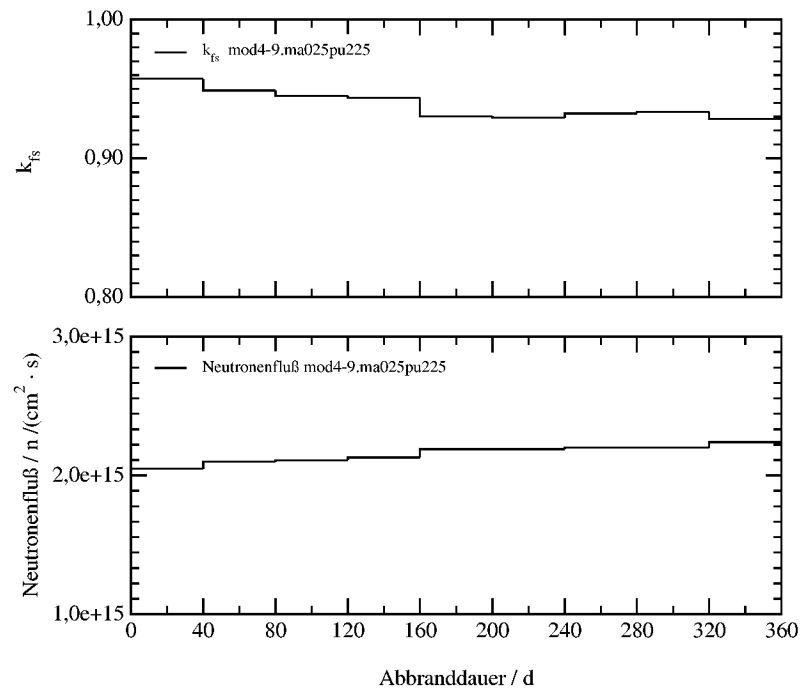


Abbildung 4.20: Zeitlicher Verlauf des k_{fs} -Wertes (oben) und des Neutronenflusses (unten) im Blanket, Modell *mod4-9.int-fmts.ma025pu225*, Abbrand: 360 Tage bei 500 MW_{th}

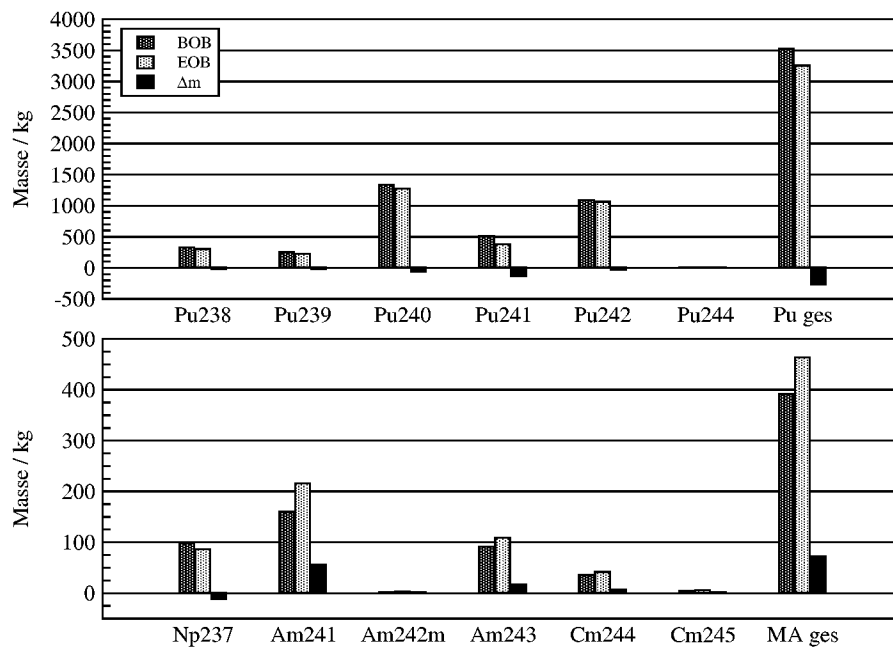


Abbildung 4.21: TRU-Massenumsätze, Modell *mod4-9.int-fmts.ma025pu225*, Abbrand: 360 Tage bei 500 MW_{th} anschließend 3 Jahre Lagerung

4.2.3 Vergleichende Betrachtung der homogenen Blanketmodelle

In diesem Abschnitt werden die vorgestellten homogenen Blanketmodelle im Vergleich nach ihrem Abbrandverhalten beurteilt.

Alle betrachteten Modelle können hinsichtlich des erreichbaren k_{eff} -Wertes mit dem „schmutzigen“ Plutonium-Isotopenvektor, der sich nach zweifacher Rezyklierung im Thorium-Brennstoffkreislauf ergibt (s. Abschnitt B.1 im Anhang), im Rahmen der Löslichkeitsgrenzen⁸ betrieben werden. Der Zusatz an Minoren Actiniden führt bei allen Systemen zu einer negativen Beeinträchtigung der Reaktivität, dem durch eine erhöhte Plutonium-Anreicherung entgegengewirkt werden muß. Der Einsatz des Graphitreflektors hat einen positiven Einfluß auf die Reaktivität des Systems. Die untersuchten Modelle mit Graphitreflektor können auch noch mit einer hohen Anreicherung an Minoren Actiniden einen k_{eff} -Wert über 0,90 erreichen.

Von den betrachteten Reflektorkonzepten ist der Graphitreflektor bezüglich der Flußabsenkung zum Schutz der wärmetechnischen Einrichtungen am effektivsten.

Bei der Beurteilung der Abbrandeigenschaften der Modelle ist zu beachten, daß bei den durchgeführten Berechnungen die Systeme nicht im Gleichgewicht sind.

Abbildung 4.22 gibt einen Überblick über die energiebezogenen TRU-Umsätze der betrachteten Modelle zwischen BOB und EOB. Da als Brennstoff ausschließlich TRU-Isotope eingesetzt werden, ist eine höhere mittlere Energiefreisetzung pro Spaltung zu erwarten. Bei den hier betrachteten Systemen liegt die Spaltenergie E_{fis} bei ca. $E_{fis} = 209 \text{ MeV}$. Für die Erzeugung einer Energie von 1 MWd müssen bei einer mittleren Molaren Masse von $\bar{M} = 241 \frac{\text{g}}{\text{mol}}$ dementsprechend 1,04 g des verwendeten Spaltstoffgemisches gespalten werden. Es ergibt sich somit ein theoretischer TRU-Umsatz je GW_{ath} von $380 \frac{\text{kg}}{\text{GW}_{\text{ath}}}$. Dieser Wert ist auch in Abbildung 4.22 für die vier Modelle zu entnehmen.

In den Tabellen 4.10 bis 4.12 sind die absoluten TRU-Massenbilanzen des Modells mit externer Kühlung *mod4.ext-fmts.ma025pu250* und die der drei untersuchten Modelle mit interner Kühlung *mod4-5.int-fmts.ma050pu200* (Graphitreflektor), *mod4-7.int-fmts.ma025pu225* (Bleireflektor) und *mod4-9.int-fmts.ma025pu225* (Fe-B₄C-Reflektor) gegenübergestellt. Bis auf *mod4-5.int-fmts.ma050pu200* weisen alle Modelle ähnliche Abbrandcharakteristika auf. Das ist damit zu begründen, daß Modell *mod4-5.int-fmts.ma050pu200* ein abweichendes Neutronenspektrum hat. Die Thermalisierung der Neutronen durch den Graphitreflektor hat einen positiven Einfluß auf das Abbrandverhalten. Obwohl bei diesem Modell mit über 900 kg MA ca. 2-3 mal mehr Minore Actiniden in der Anfangsbeladung vorhanden sind, nimmt das MA-Inventar während des betrachteten Abbrandzeitraumes mit anschließender Lagerung des Brennstoffes nur um ca. 1,6 % zu.

Die relativen Änderungen der TRU-Massen bei dem Modell mit externer Kühlung *mod4.ext-fmts.ma025pu250* weichen stark von den anderen Modellen ab. Das liegt vor allem daran, daß ein wesentlich kleineres Blanketvolumen vorliegt. Das entspricht allerdings nicht der Realität. Bei der Bilanzierung müßte berücksichtigt werden, daß sich zusätzlich mindestens die doppelte Menge des im Blanket befindlichen Brennstoffes in den externen wärmetechnischen Einrichtungen befindet.

Die Modelle mit interner Kühlung weisen während des Abbrandes eine gute Stabilität des k_{eff} -Wertes auf. Während bei den Modellen mit interner Kühlung und Reflektor der k_{eff} -

⁸Die maximale TRU-Anreicherung überschreitet in keinem Fall 3 at%.

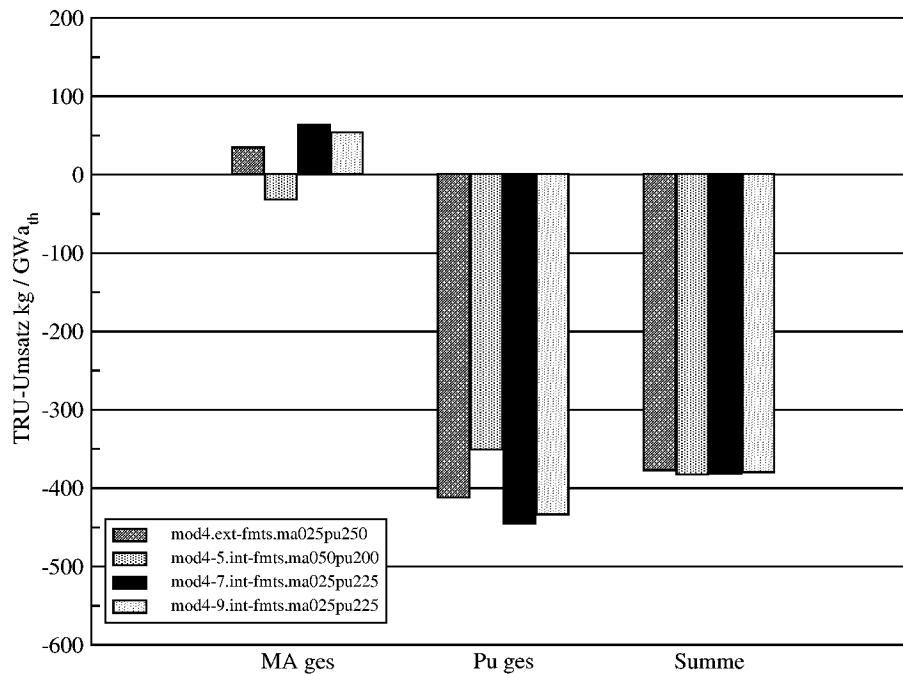


Abbildung 4.22: Vergleich der energiebezogenen TRU-Massenumsätze homogener Blanketmodelle zwischen BOB (Begin of Burn) und EOB (End of Burn), TRU-Isotopenvektor: Thorium 2-fach rezykliert (s. Tabelle B.4)

Wert über den Abbrandzeitraum lediglich um ca. 3 - 3,5 nile sinkt, ist bei Modell *mod4.ext-fmts.ma025pu250* ein Abfall von 6 nile zu beobachten. Der stabile k_{eff} -Wert ist auf das Erbrüten neuen Spaltstoffes zurückzuführen.

Die Gegenüberstellung der untersuchten Modelle in diesem Abschnitt macht deutlich, daß das Modell *mod4-5.int-fmts.ma050pu200* am besten für weitere Betrachtungen geeignet ist. Die Thermalisierung durch den Reflektor gestattet ein großes Spektrum verschiedener Anreicherungsstufen mit Plutonium und Minoren Actiniden. Wegen der begrenzten Löslichkeit von Transuranen in Blei-Wismut ist das ein wesentlicher Vorteil gegenüber den anderen untersuchten Systemen. Mit diesem System kann durchschnittlich Plutonium vernichtet werden. Es werden aber im Gegensatz zu den anderen Modellen nur geringe Mengen an Minoren Actiniden aufgebaut. Es wird aber auch ein Nachteil, der allen homogenen Systemen eigen ist, deutlich. Es ist nicht möglich, lokale spektrale Unterschiede wie z.B. thermische Inseln in der Nähe des Reflektors gezielt zu nutzen. Von den Erfahrungen, die mit dem Modell *mod4-5.int-fmts.ma050pu200* gemacht wurden, kann aber bei der Untersuchung heterogener Blanketsysteme in den folgenden Abschnitten profitiert werden.

Tabelle 4.10: Vergleich der MA-Massenbilanz der untersuchten homogenen Modelle zwischen BOB (Begin of Burn), EOB (End of Burn) und EOB^{+3a} (3 Jahre Lagerung nach Entladung), Abbrand: 360 Tage bei $500MW_{th}$ TRU-Isotopenvektor: Thorium 2-fach rezykliert (s. Tabelle B.4)

MA Modelle	BOB kg	EOB kg	$\frac{EOB-BOB}{BOB}$ %	EOB^{+3a} kg	$\frac{EOB^{+3a}-BOB}{BOB}$ %
mod4.ext-fmts.ma025pu250	167,88	185,05	10,22	200,47	28,45
mod4-5.int-fmts.ma050pu200	926,91	911,43	-1,67	941,5	1,57
mod4-7.int-fmts.ma025pu225	463,46	494,87	6,78	551,38	18,97
mod4-9.int-fmts.ma025pu225	391,28	417,88	6,80	463,6	18,48

Tabelle 4.11: Vergleich der Pu-Massenbilanz der untersuchten homogenen Modelle zwischen BOB (Begin of Burn), EOB (End of Burn) und EOB^{+3a} (3 Jahre Lagerung nach Entladung), Abbrand: 360 Tage bei $500MW_{th}$ TRU-Isotopenvektor: Thorium 2-fach rezykliert (s. Tabelle B.4)

Pu Modelle	BOB kg	EOB kg	$\frac{EOB-BOB}{BOB}$ %	EOB^{+3a} kg	$\frac{EOB^{+3a}-BOB}{BOB}$ %
mod4.ext-fmts.ma025pu250	1676,96	1473,71	-12,12	1454,89	-13,24
mod4-5.int-fmts.ma050pu200	3703,49	3531,64	-4,64	3492,36	-5,70
mod4-7.int-fmts.ma025pu225	4166,48	3946,97	-5,27	3881,21	-6,85
mod4-9.int-fmts.ma025pu225	3521,52	3307,12	-6,09	3253,72	-7,60

Tabelle 4.12: Vergleich der TRU-Massenbilanz der untersuchten homogenen Modelle zwischen BOB (Begin of Burn), EOB (End of Burn) und EOB^{+3a} (3 Jahre Lagerung nach Entladung), Abbrand: 360 Tage bei $500MW_{th}$ TRU-Isotopenvektor: Thorium 2-fach rezykliert (s. Tabelle B.4)

TRU ges Modelle	BOB kg	EOB kg	$\frac{EOB-BOB}{BOB}$ %	EOB^{+3a} kg	$\frac{EOB^{+3a}-BOB}{BOB}$ %
mod4.ext-fmts.ma025pu250	1844,84	1658,76	-10,09	1655,36	-9,69
mod4-5.int-fmts.ma050pu200	4630,40	4443,07	-4,05	4433,86	-4,24
mod4-7.int-fmts.ma025pu225	4629,94	4441,84	-4,06	4432,59	-4,26
mod4-9.int-fmts.ma025pu225	3912,80	3725,01	-4,80	3717,33	-5,00

4.3 Blanket mit heterogener Brennstoffanordnung

4.3.1 Ringförmige Brennelemente

Möchte man die isotrop im Spallationstarget freigesetzten Neutronen effektiv nutzen, so bieten sich für heterogene Blanketkonzeptionen als Brennelementstruktur konzentrisch um das Target angeordnete ringförmige Brennelemente an. Dieser Überlegung folgend besteht das in Abbildung 4.23 dargestellte *Heterogene Flüssigmetalltransmutationssystem (HFMTS)* aus ringförmigen Brennelementen, die das Spallationstarget umschließen. Bei der Darstellung des Konzeptes sind jeweils 20 Brennelemente zu einer Brennstoffzone zusammengefaßt worden. Wieviele Brennelemente überhaupt benötigt werden und welche Abmessungen diese haben sollten, wird in diesem Abschnitt erarbeitet. Die Brennelemente haben eine Höhe von 200 cm. Der Protonenstrahl trifft zentral im Target bei ca. 1/4 der aktiven Höhe auf. Hiermit soll, wie schon bei den homogenen Blanketkonzepten im vorigen Abschnitt, die räumliche Ausdehnung der Spallationsquelle berücksichtigt werden.

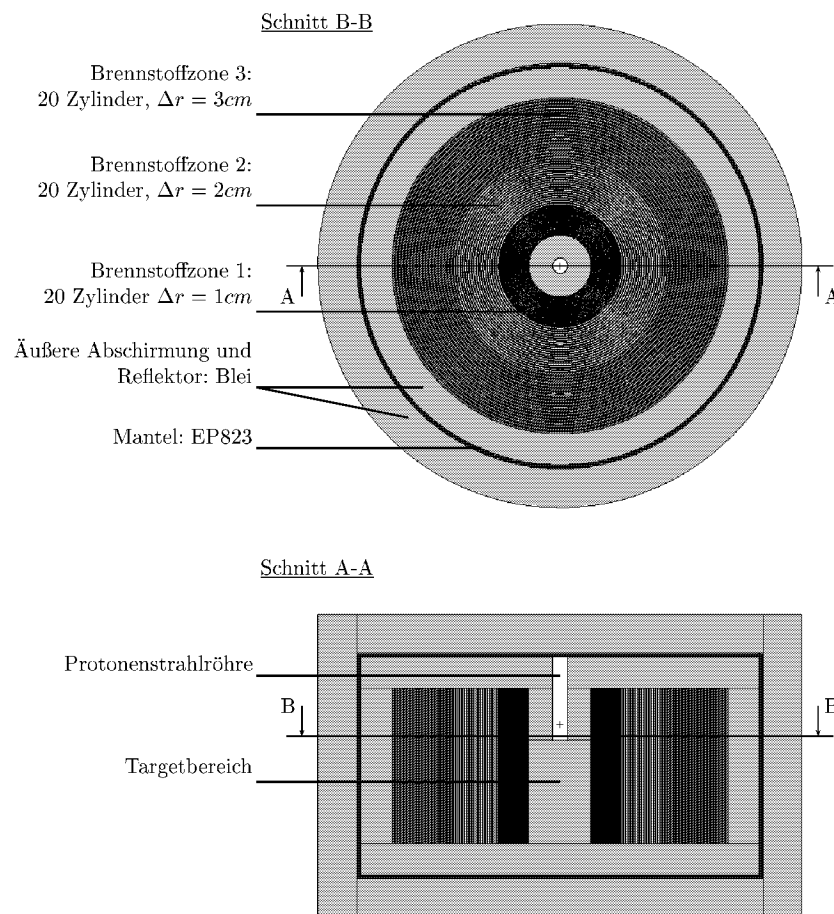


Abbildung 4.23: MCNP-Modell des heterogenen Blanketkonzeptes: *Heterogenes Flüssigmetalltransmutationssystem (HFMTS)*

In Tabelle 4.13 sind die k_{eff} -Werte für verschiedene Variationen dieses Konzeptes angegeben.

Die Modelle unterscheiden sich hinsichtlich der Anzahl und Breite der Brennelemente. Es werden jeweils 10 Brennelemente zu einer Zone zusammengefasst. In allen Hohlzylindern wird die, bei einer Temperatur von $\vartheta = 600\text{ }^{\circ}\text{C}$, maximal realisierbare Plutonium-Anreicherung von 3 at% angenommen. Es wird der TRU-Isotopenvektor aus Tabelle B.4 eingesetzt. Die Wanddicke der Hohlzylinder beträgt 0,10 cm und für das Kühlmittel ist ein Spalt von 0,75 cm vorgesehen.

Tabelle 4.13: k_{eff} -Werte für Heterogenes Blanket mit 60 konzentrischen ringförmigen Brennelementen bei verschiedenen Abmessungen. Die angegebene Breite der Hohlzylinder bezieht sich immer auf die Hohlzylinder einer Zone. Jede Zone umfaßt 10 Brennelemente. Brennelementhöhe = 200 cm, Hohlzylinderwanddicke: 0,1 cm, Kühlmittelspalt: 0,75 cm, TRU-Isotopenvektor: Thorium 2-fach rezykliert (s. Tabelle B.4)

Modell	Breite je Hohlzylinder Δr / cm						Radius cm	Pu at%	k_{eff}	Fehler
mod1.hfmts ⁹	1	1	1	1	1	1	156,25	3,00	0,790	0,0013
mod2.hfmts	1	1	1	2	2	2	186,25	3,00	0,924	0,0012
mod3.hfmts	2	2	2	2	2	2	216,25	3,00	1,011	0,0013
mod4.hfmts	2	2	2	3	3	3	246,25	3,00	1,075	0,0014
mod5.hfmts	3	3	3	3	3	3	276,25	3,00	1,125	0,0015
mod6.hfmts	1	1	2	2	3	3	216,25	3,00	1,017	0,0014
mod7.hfmts	3	3	3	3	3	-	236,75	3,00	1,097	0,0013
mod8.hfmts	3	3	3	3	-	-	197,25	3,00	1,055	0,0016
mod9.hfmts	3	3	3	-	-	-	157,75	3,00	0,992	0,0013

Berücksichtigt man, daß bereits die maximal mögliche Anreicherung an Plutonium unterstellt wurde und der Reaktivitätsverlust durch den Zusatz von Minoren Actiniden durch eine höhere Plutoniumanreicherung ausgeglichen werden muß, so sind die Modelle *mod1.hfmts* und *mod2.hfmts* nicht für weitere Betrachtungen geeignet. Modell *mod3.hfmts* und Modell *mod6.hfmts* weisen das gleiche Brennstoffvolumen und einen ähnlich hohen k_{eff} -Wert auf. Modell *mod6.hfmts* ist allerdings wegen der unterschiedlichen Brennelementabmessungen eher geeignet, wenn bei gleicher Anreicherung in allen Zylindern ein gleichmäßiges radiales Leistungsprofil eingestellt werden soll. Modell *mod5.hfmts* hat das mit Abstand größte Brennstoffvolumen und ist deutlich überkritisch.

Für die weiteren Betrachtungen sind die Modelle *mod6.hfmts* und *mod9.hfmts* geeignet. Während Modell *mod6.hfmts* wegen der geometrischen Anpassung an den zu erwartenden radialen Abfall des Neutronenflusses interessant ist, kann Modell *mod9.hfmts* als kleinstes, aus neutronenphysikalischer Sicht, realisierbares Modell angesehen werden. Die k_{eff} -Werte von Modell *mod6.hfmts* liegen bei allen untersuchten Anreicherungen um ca. 2 nile über denen von *mod9.hfmts*. Bei der Untersuchung der homogenen Blanketkonzepte wurde der positive Einfluß eines Graphitreflektors hervorgehoben. In den Tabellen 4.14 und 4.15 sind die k_{eff} -Werte der Modelle *mod6-1.hfmts* und *mod9-1.hfmts* mit Graphitreflektor den Modellen *mod6.hfmts* bzw. *mod9.hfmts* mit Bleireflektor gegenübergestellt.

⁹Anmerkung zur Nomenklatur: mod1 = Modellnummer, hfmts = Heterogenes FlüssigMetall Transmutations-System

Tabelle 4.14: Vergleich der k_{eff} -Werte bei verschiedenen Pu-Anreicherungen und Reflektormaterialien, Modell *mod6.hfmts*-Bleirefektor, Modell *mod6-1.hfmts*-Graphitreflektor, TRU-Isotopenvektor: Thorium 2-fach rezykliert (s. Tabelle B.4)

Modell	MA at%	Pu at%	k_{eff}	Fehler
mod6.hfmts.ma0pu100 ¹⁰	0,00	1,00	0,599	0,0011
mod6.hfmts.ma0pu250	0,00	2,50	0,936	0,0014
mod6.hfmts.ma0pu300	0,00	3,00	1,017	0,0014
mod6-1.hfmts.ma0pu100 ¹¹	0,00	1,00	0,681	0,0015
mod6-1.hfmts.ma0pu200	0,00	2,00	0,886	0,0013
mod6-1.hfmts.ma0pu250	0,00	2,50	0,970	0,0015
mod6-1.hfmts.ma0pu300	0,00	3,00	1,040	0,0014

Modell	MA at%	Pu at%	k_{eff}	Fehler
mod9.hfmts.ma0pu100	0,00	1,00	0,578	0,0012
mod9.hfmts.ma0pu150	0,00	1,50	0,709	0,0012
mod9.hfmts.ma0pu200	0,00	2,00	0,820	0,0014
mod9.hfmts.ma0pu250	0,00	2,50	0,911	0,0014
mod9.hfmts.ma0pu300	0,00	3,00	0,992	0,0013
mod9-1.hfmts.ma0pu100	0,00	1,00	0,678	0,0013
mod9-1.hfmts.ma0pu150	0,00	1,50	0,794	0,0023
mod9-1.hfmts.ma0pu200	0,00	2,00	0,880	0,0016
mod9-1.hfmts.ma0pu250	0,00	2,50	0,957	0,0011
mod9-1.hfmts.ma0pu300	0,00	3,00	1,027	0,0012

Tabelle 4.15: Vergleich der k_{eff} -Werte bei verschiedenen Pu-Anreicherungen und Reflektormaterialien, Modell *mod9.hfmts*-Bleirefektor, Modell *mod9-1.hfmts*-Graphitreflektor, TRU-Isotopenvektor: Thorium 2-fach rezykliert (s. Tabelle B.4)

Der Einsatz eines Graphitreflektors führt bei den betrachteten Modellen zum Anstieg des k_{eff} -Wertes. Der Einfluß des Reflektors ist umso größer, je kleiner der k_{eff} -Wert des Systems ist. So steigt der k_{eff} -Wert von 0,578 beim Modell mit Bleirefektor (*mod9.hfmts.ma0pu1*) um 10 nile auf 0,678 beim Modell mit Graphitreflektor (*mod9-1.ma0pu1*). Im Vergleich dazu beträgt der Unterschied der k_{eff} -Werte zwischen *mod9.hfmts.ma0pu3* und *mod9-1.ma0pu3* 3,5 nile. Allerdings bleibt auch bei Einsatz eines Graphitreflektors zwischen den k_{eff} -Werten der Modelle *mod6-1.hfmts* und *mod9-1.hfmts* ein Unterschied von ca. 2 nile bestehen. In Tabelle 4.16

¹⁰Anmerkung zur Nomenklatur: mod6.hfmts = Modellnummer, hfmts = Heterogenes FlüssigMetall Transmutationssystem, ,maApuB = TRU-Anreicherung: A/100 at% MA bzw. B/100 at%Pu

¹¹Anmerkung zur Nomenklatur: mod6-1.hfmts = Modellnummer - Variation 1 des Basismodells mod6.hfmts, hfmts = Heterogenes FlüssigMetall Transmutationssystem, ,maApuB = TRU-Anreicherung: A/100 at% MA bzw. B/100 at%Pu

sind die k_{eff} -Werte für die Modelle *mod6-1.hfmts* und *mod9-1.hfmts* bei verschiedenen TRU-Anreicherungen dargestellt. Es wird deutlich, daß der Reaktivitätsverlust der sich bei Zusatz von MA durch verstärkte Absorptionen ergibt, nicht vollständig durch eine gleichgroße Erhöhung des Pu-Anteils ausgeglichen werden kann.

Tabelle 4.16: Vergleich der k_{eff} -Werte bei verschiedenen Pu-Anreicherungen und Reflektormaterialien, Modell *mod6-1.hfmts*, Modell *mod9-1.hfmts*, TRU-Isotopenvektor: Thorium 2-fach rezykliert (s. Tabelle B.4)

Modell	MA at%	Pu at%	k_{eff}	Fehler
mod6-1.hfmts.ma050pu250	0,50	2,50	0,882	0,0016
mod6-1.hfmts.ma025pu250	0,25	2,50	0,919	0,0014
mod6-1.hfmts.ma025pu275	0,25	2,75	0,958	0,0015
mod9-1.hfmts.ma050pu250	0,50	2,50	0,864	0,0014
mod9-1.hfmts.ma025pu250	0,25	2,50	0,900	0,0015
mod9-1.hfmts.ma025pu275	0,25	2,75	0,938	0,0016

Für die weiteren Betrachtungen zu den neutronenphysikalischen Eigenschaften wie Fluß- und Leistungsdichteverteilung sowie Abbrandeigenschaften dieses Blanketkonzeptes, werden die Modelle *mod6-1.hfmts.ma025pu275* und *mod9-1.hfmts.ma025pu275* ausgewählt. Zur weiteren Untersuchung des Einflusses des Reflektormaterials wird außerdem das Modell *mod9.hfmts.ma025pu275* erstellt, das auf dem Basismodell mit Bleirefektor *mod9.hfmts* beruht. Es ist lediglich die TRU-Anreicherung entsprechend auf 0,25 at% MA und 2,75 at% Plutonium verändert worden.

In den Abbildungen 4.24 und 4.25 sind die radialen Verläufe des Neutronenflusses bzw. der Leistungsdichte der Modelle *mod6-1.hfmts.ma025pu275*, *mod9-1.hfmts.ma025pu275* und *mod9.hfmts.ma025pu275* dargestellt. Die eingetragenen Werte sind jeweils über den gesamten Brennstoffzylinder gemittelt. Zusätzlich sind bei den Leistungsdichten die Mittelwerte für drei Brennstoffzonen angegeben. Für Modell *mod6-1.hfmts.ma025pu275* sind jeweils die 20 Brennstoffzylinder mit der gleichen Zylinderdicke zu einer Zone zusammengefaßt worden. Bei den Modellen *mod9.hfmts.ma025pu275* und *mod9-1.hfmts.ma025pu275* bilden jeweils 10 Brennstoffzylinder eine Zone.

Den Modellen mit Graphitreflektor ist die auf die Thermalisierung der Neutronen zurückzuführende Leistungsspitze in den Zylindern vor dem Reflektor eigen. Der direkte Vergleich von *mod9.hfmts.ma025pu275* und *mod9-1.hfmts.ma025pu275* zeigt, daß durch den Einsatz des Reflektors ein höheres Neutronenflußniveau erreicht werden kann. Dieses Verhalten ist auch zu erwarten, wenn man sich noch einmal die Ausführungen vom Beginn dieses Kapitels vergegenwärtigt. Es wurde festgestellt, daß der k_{eff} -Wert und das Flußniveau direkt zueinander proportional sind. Der Vergleich der k_{eff} -Werte in den Tabellen 4.24 und 4.25 hat bereits gezeigt, daß der k_{eff} -Wert durch den Einsatz eines Graphitreflektors steigt. Außerdem kann bei *mod9-1.hfmts.ma025pu275* durch den Graphitreflektor ein gleichmäßigeres Leistungsdichteprofil erreicht werden. Vergleicht man den Verlauf der Leistungsdichte von Modell *mod9-1.hfmts.ma025pu275* mit dem von *mod6-1.hfmts.ma025pu275*, kann man bei *mod6-1.hfmts.ma025pu275* eine geringere Leistungsspitze vor dem Reflektor, und in der letzten Brennstoffzone eine weiter ab-

fallende mittlere Leistungsdichte erkennen.

Für die Abbrandberechnungen gelten die bereits bei den homogenen Blanketsystemen auf Seite 46 vorgestellten Parameter. In Tabelle 4.17 sind die k_{fs} -Werte der drei Modelle zu Beginn und am Ende des Abbrandes gegenübergestellt. Der k_{fs} -Wert sinkt bei Modell *mod6-1.hfmts.ma025pu275* um 4,1 nile. Bei den beiden anderen Modellen ist ein stärkeres Absinken des k_{fs} -Wertes zu beobachten. Dieser Unterschied ist auf das größere TRU-Inventar des Modells *mod6-1.hfmts.ma025pu275* zurückzuführen. Ein Vergleich der Modelle mit Bleirefektor *mod9.hfmts.ma025pu275* und mit Graphitrefektor *mod9-1.hfmts.ma025pu275* bestätigt den bereits bei den homogenen Blanketkonzepten beobachteten stabilisierenden Einfluß des Graphitrefektors auf den zeitlichen Verlauf des k_{fs} -Wertes.

Tabelle 4.17: Vergleich der k_{fs} -Werte der Modelle *mod6-1.hfmts.ma025pu275*, *mod9-1.hfmts.ma025pu275* und Modell *mod9.hfmts.ma025pu275* zu Beginn (BOB) und am Ende des Abbrandes (EOB),

Modell	k_{fs} (BOB)	k_{fs} (EOB)	Δk_{fs}
mod6-1.hfmts.ma025pu275	0,957	0,916	4,1 nile
mod9-1.hfmts.ma025pu275	0,958	0,905	5,3 nile
mod9.hfmts.ma025pu275	0,942	0,876	6,6 nile

Die energiebezogenen TRU-Umsätze für die Modelle *mod6-1.hfmts.ma025pu275* und *mod9-1.hfmts.ma025pu275* sind in Abbildung 4.26 und 4.27 nach den relevanten Isotopen aufgeschlüsselt graphisch dargestellt. Auf die Darstellung der Ergebnisse für Modell *mod9.hfmts.ma025pu275* wird verzichtet, da sie praktisch identisch mit denen von *mod9-1.hfmts.ma025pu275* sind. Der Vergleich der TRU-Umsätze zeigt, daß sich in der Grundtendenz die Abbrandeigenschaften der Modelle nur unwesentlich voneinander unterscheiden. Das MA-Inventar erhöht sich bei Modell *mod6-1.hfmts.ma025pu275* von 543 kg während des Abbrandes und der anschließenden dreijährigen Lagerung des Brennstoffes um ca. 25 % auf 680 kg. Für Modell *mod9-1.hfmts.ma025pu275* beträgt der Anstieg des MA-Inventars während des gleichen Bilanzzeitraumes 24% (von 299 kg auf 371 kg). Mit Modell *mod6-1.hfmts.ma025pu275* kann 5,7 % der eingesetzten Pu-Masse (5967 kg) umgesetzt werden. Dagegen werden bei Modell *mod9-1.hfmts.ma025pu275* ca. 8 % der eingesetzten 3291 kg Plutonium umgewandelt. Die genauen Zahlenwerte für die TRU-Umsätze sind im Rahmen einer vergleichenden Betrachtung der heterogenen Blanketkonzepte in Abschnitt 4.3.3 in Tabelle 4.20 gegenübergestellt.

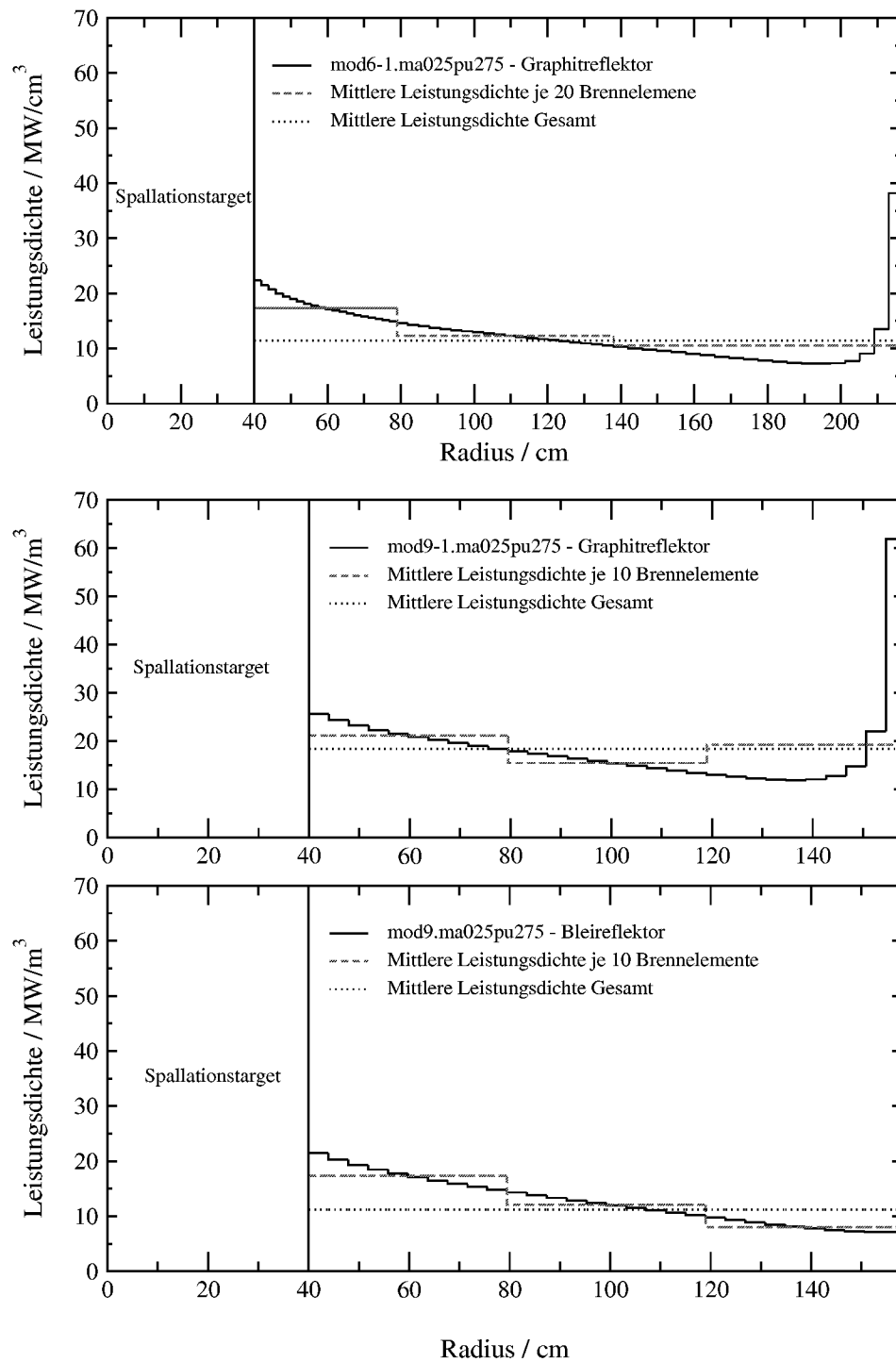


Abbildung 4.24: Radialer Verlauf der Leistungsdichte, Modell *mod6-1.hfmts.ma025-pu275* (oben), Modell *mod9-1.hfmts.ma025pu275* (Mitte), Modell *mod9.hfmts.ma025pu275* (unten), Neutronenquellstärke = 10^{18} n/s

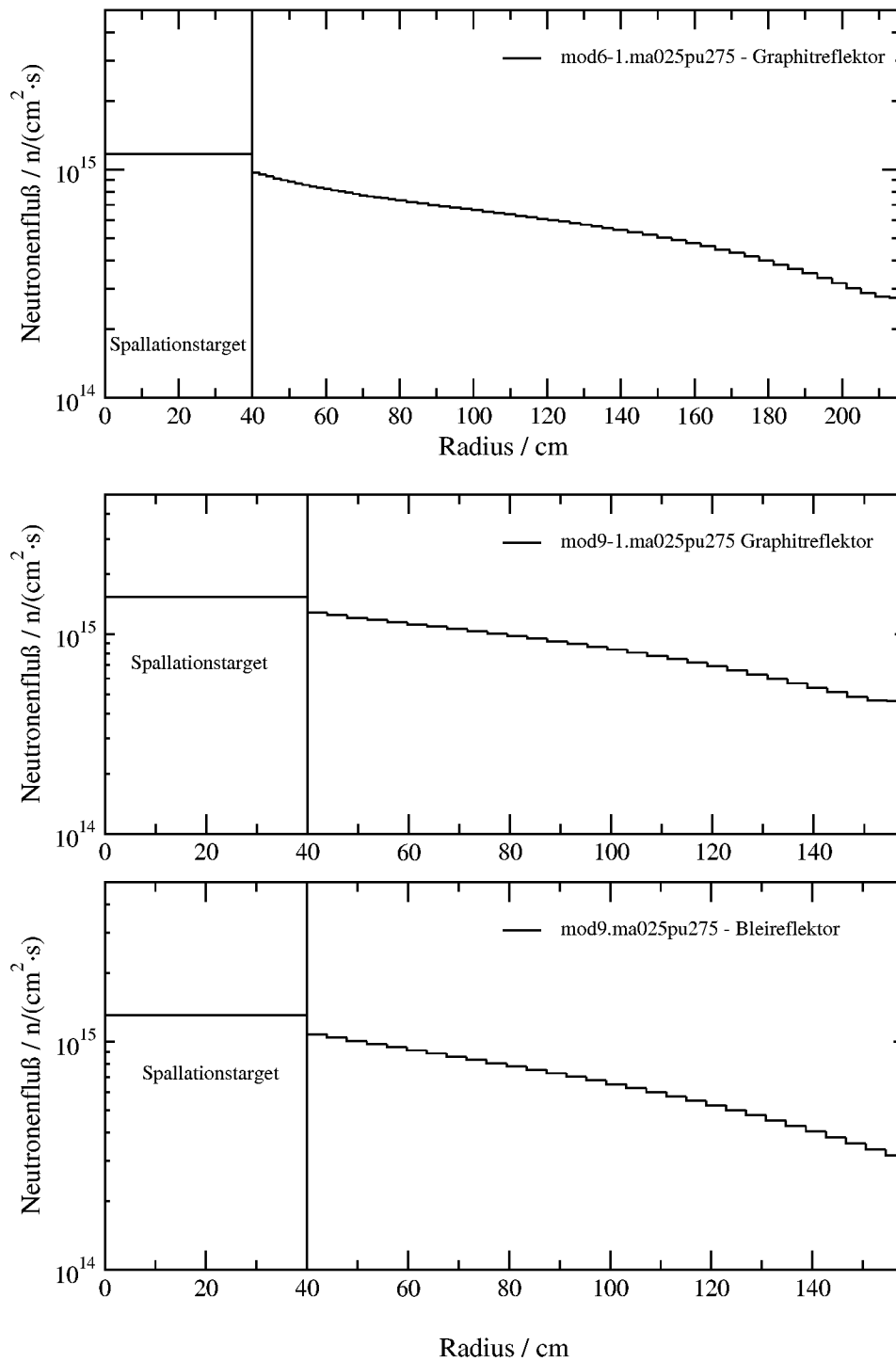


Abbildung 4.25: Radialer Verlauf des Neutronenflusses, Modell *mod6-1.hfmts.ma025-pu275* (oben), Modell *mod9-1.hfmts.ma025pu275* (Mitte), Modell *mod9.hfmts.ma025pu275* (unten), Neutronenquellstärke = 10¹⁸ n/s

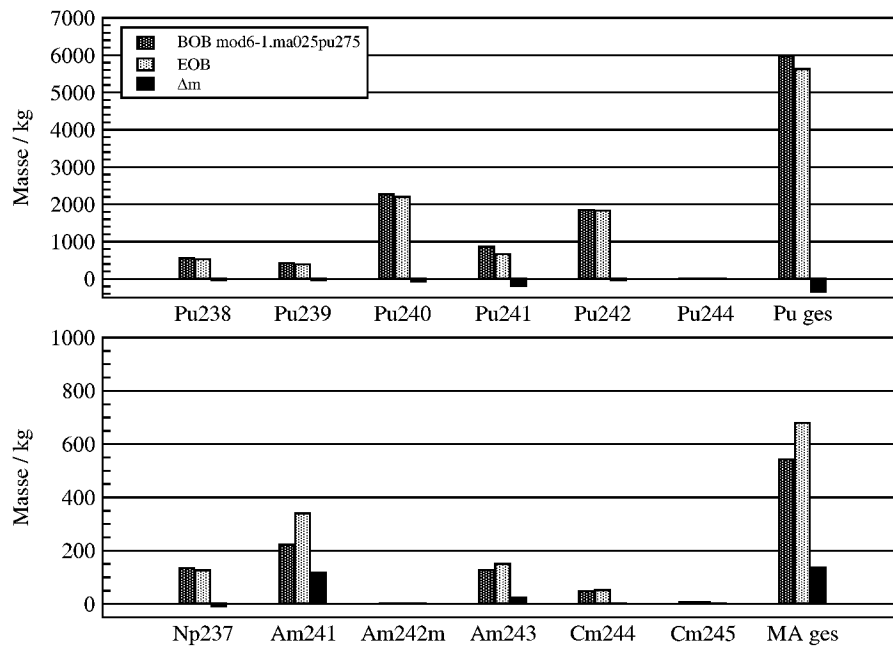


Abbildung 4.26: TRU-Massenumsätze, Modell *mod6-1.hfmts.ma025pu275*, Abbrand: 360 Tage bei 500 MW_{th} anschließend 3 Jahre Lagerung

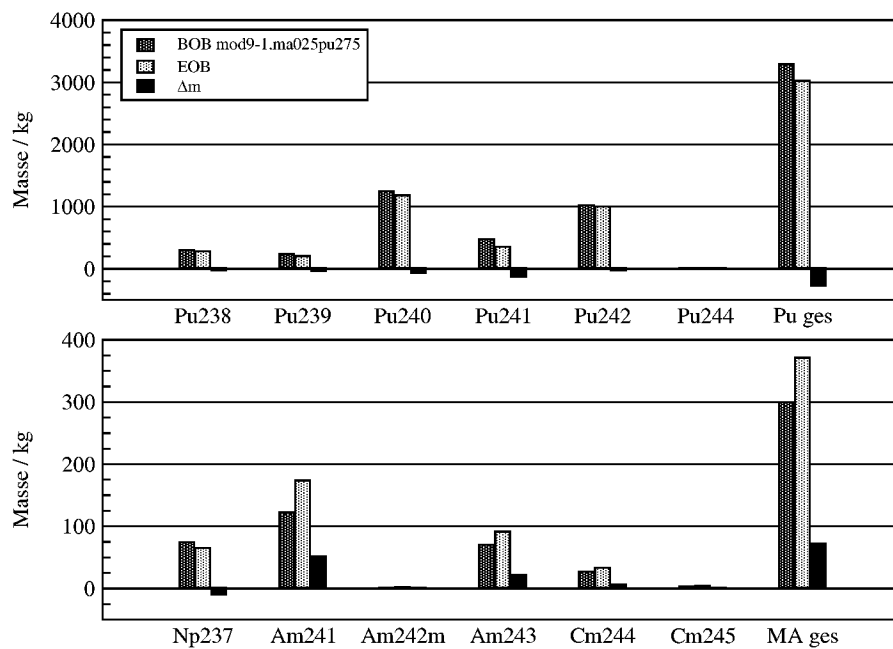


Abbildung 4.27: TRU-Massenumsätze, Modell *mod9-1.hfmts.ma025pu275*, Abbrand: 360 Tage bei 500 MW_{th} anschließend 3 Jahre Lagerung

4.3.2 Brennelemente mit Brennstoffzylindern

Das in Abbildung 4.28 dargestellte Blanketkonzept *Heterogenes Flüssigmetalltransmutationssystem mit Brennelementen (BE-HFMTS)* orientiert sich an dem Coredesign schneller flüssigmetallgekühlter Reaktoren. Es besteht aus hexagonalen Brennelementen (BE) ¹², in denen 6 ringförmige Brennstoffzylinder angeordnet sind. Aufgrund der hexagonalen Geometrie der Brennelemente ergeben sich konzentrisch um das Spallationstarget drei Brennstoffzonen mit 6, 12 bzw. 18 Brennelementen je Zone. Die Länge der Brennelemente beträgt 200 cm. Der Auftreffpunkt des Protonenstrahles liegt bei ca. 1/4 der Brennelementhöhe. Durch die Fixierung dieser Parameter soll, wie bereits bei den Blanketmodellen der vorigen Abschnitte, der räumlichen Ausdehnung der Spallations-Neutronenquelle Rechnung getragen werden. Weitere wichtige geometrische Abmessungen dieses Blanketmodells sind in Tabelle 4.18 zusammengestellt.

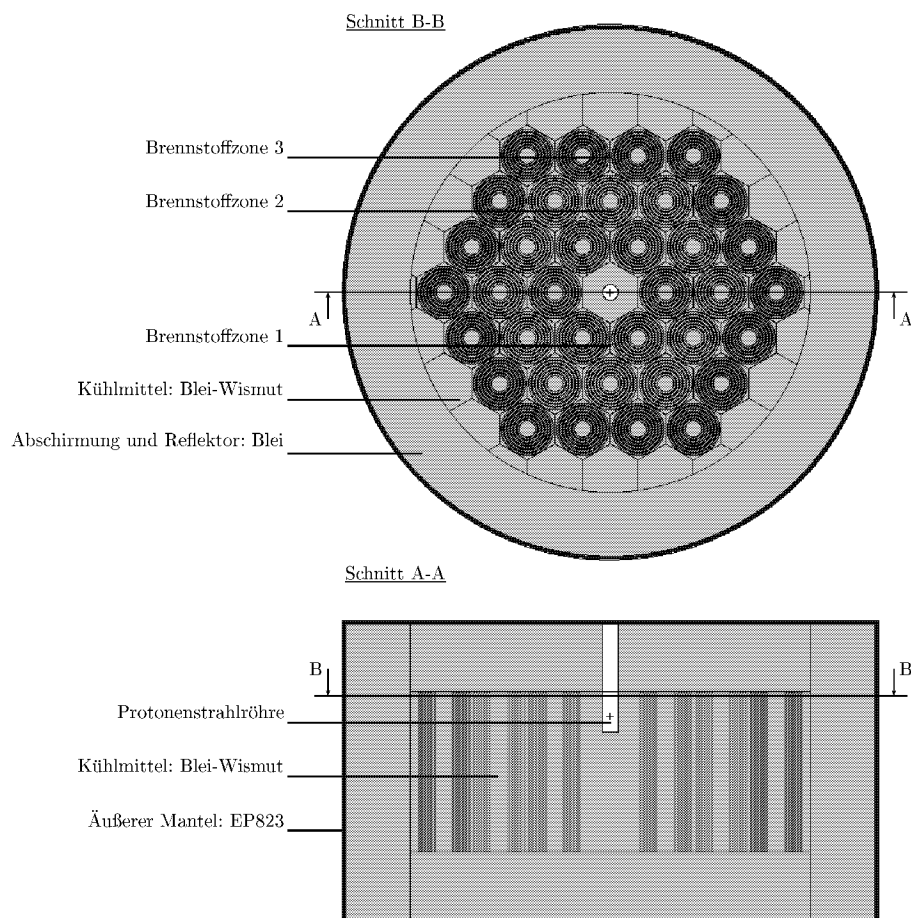


Abbildung 4.28: MCNP-Modell des heterogenen Blanketkonzeptes: *Heterogenes Flüssigmetalltransmutationssystem mit Brennelementen (BE-HFMTS)*

¹²Anmerkung zur Nomenklatur: Als Brennelemente (BE) werden, vergleichbar mit der Bezeichnung von Reaktorburneementen, die hexagonalen Strukturelemente inklusive der 6 Brennstoffhohlzylinder, bezeichnet. Die Brennstoffhohlzylinder entsprechen demnach den Brennstäben eines Reaktorburneementes. Die Brennstoffhohlzylinder werden im weiteren Verlauf als Brennstoffzylinder bezeichnet.

Tabelle 4.18: Geometriedaten des heterogenen Blanketkonzeptes: BE-HFMTS

Brennstoffzylinder		
Länge	cm	200,00
Schichtdicke jedes Brennstoffzylinders	cm	3,00
Stärke der Zylinderwand	cm	0,10
Kühlmittelspalt	cm	0,75
Innenradius (kleinster Zyl.)	cm	10,00
Außenradius (größter Zyl.)	cm	32,95
Brennelement		
Brennstoffzylinder je Brennelement		6
Schlüsselweite	cm	33,33
Teilung (Kantenlänge)	cm	38,48
Blanket		
Anzahl Brennelemente		36
davon in:		
Zone 1		6
Zone 2		12
Zone 3		18
Brennstoffvolumen (gesamt)	cm^3	1,748e+07
davon in:		
Zone 1	cm^3	2,914e+06
Zone 2	cm^3	5,829e+06
Zone 3	cm^3	8,744e+06
Blanketradius bis Reflektor	cm	233

Dieses Blanketkonzept ist im Vergleich zu den bisher untersuchten sehr komplex aufgebaut. Im Rahmen dieser Arbeit und speziell in diesem Abschnitt ist es nicht möglich, das gesamte Spektrum der Geometrie- und Anreicherungsparameter dieses Blanketkonzeptes zu variieren und zu untersuchen. Es soll vielmehr untersucht werden, ob die vorgestellten Blanketkonzepte mit der ungünstigen Randbedingung eines schlechten TRU-Vektors betrieben werden können. Ein Optimierungsprozeß kann bei Eignung des Konzeptes in einem weiterführenden Auslegungsschritt, auch unter Berücksichtigung wärmetechnischer Randbedingungen, erfolgen. Es liegt daher allen Berechnungen in diesem Abschnitt die in Tabelle 4.18 beschriebene Geometrie zugrunde.

In Tabelle 4.19 sind die k_{eff} -Werte, die sich bei verschiedenen TRU-Anreicherungen ergeben, zusammengestellt. Die Brennelemente einer Brennstoffzone werden prinzipiell mit dem gleichen Brennstoff und der gleichen Konzentration angereichert. Dementsprechend sind die Anreicherungen in Tabelle 4.19 auch für jede Zone angegeben. Es wird deutlich, daß zum Erreichen eines akzeptablen k_{eff} -Wertes die homogene Pu-Anreicherung aller Zonen ca. 2,5% betragen sollte. Eine Anreicherung mit Minoren Actiniden erfordert eine höhere Pu-Anreicherung. Der Vergleich der k_{eff} -Werte von *be-hfmts.ma0pu25* und *be-hfmts.ma025pu275* zeigt, daß hier der Verlust an Reaktivität bei Zusatz von Minoren Actiniden durch die Erhöhung der Pu-Anreicherung um den Anteil der zugesetzten Minoren Actiniden, ausgeglichen werden kann.

Tabelle 4.19: Vergleich der k_{eff} -Werte bei verschiedenen homogenen MA- und Pu-Anreicherungen, TRU-Isotopenvektor: Thorium 2-fach rezykliert (s. Tabelle B.4)

Modell:	Zone 1		Zone 2		Zone 3		k_{eff}	Fehler
	MA at%	Pu at%	MA at%	Pu at%	MA at%	Pu at%		
be-hfmts.ma0pu300 ¹³	0,00	3,00	0,00	3,00	0,00	3,00	1,002	1,79E-03
be-hfmts.ma0pu250	0,00	2,00	0,00	2,00	0,00	2,00	0,928	1,70E-03
be-hfmts.ma0pu200	0,00	2,00	0,00	2,00	0,00	2,00	0,836	1,84E-03
be-hfmts.ma0pu150	0,00	1,00	0,00	1,00	0,00	1,00	0,735	1,50E-03
be-hfmts.ma0pu100	0,00	1,00	0,00	1,00	0,00	1,00	0,606	1,68E-03
be-hfmts.ma050pu250	0,50	2,50	0,50	2,50	0,50	2,50	0,847	1,35E-03
be-hfmts.ma025pu250	0,25	2,50	0,25	2,50	0,25	2,50	0,882	1,52E-03
be-hfmts.ma025pu275	0,25	2,75	0,25	2,75	0,25	2,75	0,927	1,53E-03

Für weitere Betrachtungen wird das Modell *be-hfmts.ma025pu275* ausgewählt. In Abbildung 4.29 sind die normierten energieabhängigen Verteilungen der Gruppenflüsse der drei Brennstoffzonen dargestellt. Es ist eine kaum wahrnehmbare spektrale Verschiebung zwischen den Brennstoffzonen zu beobachten. Das Neutronenspektrum wird von Zone 1 nach Zone 3 durch Moderationsprozesse im Brennstoffträger aber nur unwesentlich thermischer.

Bei der Darstellung der zonengemittelten Leistungsdichte und des Neutronenflusses in Abbildung 4.30 ist wie bei allen bisherigen Betrachtungen von einer Neutronenquellstärke von $10^{18}n/s$ ausgegangen worden. Die mittlere Leistungsdichte sinkt von ca. $15MW/m^3$ in Zone 1 auf ca. $5MW/m^3$ in Zone 3. Diese Werte sind mit den Leistungsdichten der anderen Modelle nur schwer zu vergleichen, da andere Bilanzvolumina betrachtet werden.

Unter Annahme der Abbrandparameter auf Seite 46 ergibt sich der in Abbildung 4.31 dargestellte zeitliche Verlauf des k_{fs} -Wertes während des Abbrandes. Der k_{fs} -Wert sinkt in dieser Zeit von 0,956 um 4,1 nile auf 0,915. Im unteren Teil des Bildes ist der Neutronenfluß im Blanket dargestellt. Der Neutronenfluß müsste zum Erreichen der angestrebten Leistung von $500 MW_{\text{th}}$ mit steigendem Abbrand entsprechend erhöht werden.

Abschließend sind in Abbildung 4.32 die absoluten TRU-Umsätze zusammengefaßt. Der Betrachtungszeitraum umfaßt die Abbranddauer von einem Jahr und die anschließende dreijährige Lagerung des Brennstoffes (s. auch Ausführungen auf Seite 47). Am Ende der 4 Jahre hat sich das MA-Inventar von 468 kg um 26% auf 590 kg erhöht. Die Plutoniummenge wurde um 6,3 % von 5,1 t auf 4,8 t verringert. In der Gesamt-TRU-Bilanz kann eine Reduktion der eingesetzten TRU-Masse von 5,6 t auf 5,4 t um 3,8 % verzeichnet werden. In Abschnitt 4.3.3 erfolgt eine vergleichende Betrachtung und Beurteilung der Abbrandeigenschaften und des gesamten Blanketkonzeptes mit den anderen untersuchten heterogenen Blanketmodellen.

¹³Anmerkung zur Nomenklatur: be-hfmts = Heterogenes FlüssigMetall TransmutationsSystem mit BrennElementen ,maApuB = TRU-Anreicherung: A/100 at% MA bzw. B/100 at%Pu

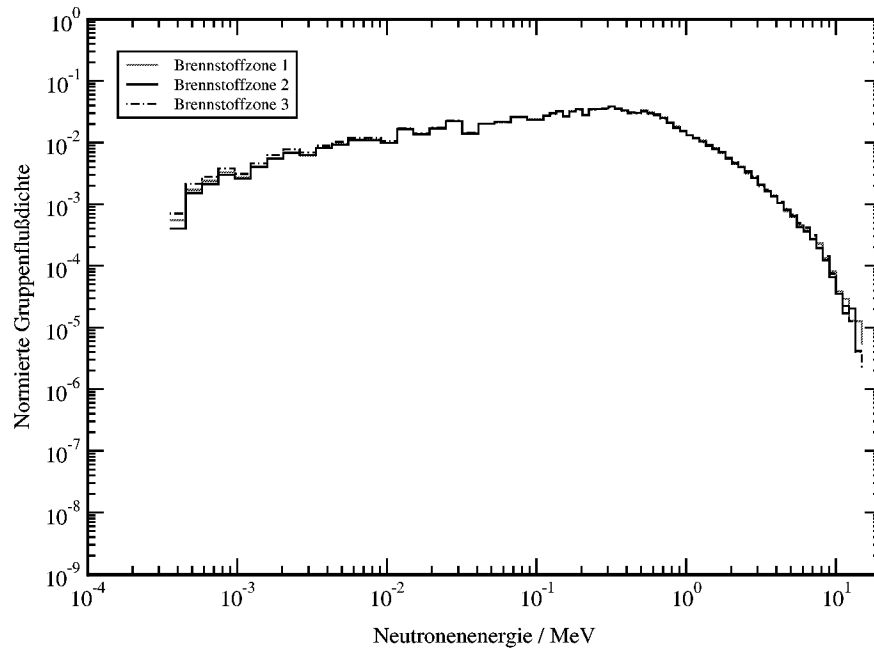


Abbildung 4.29: Normierte energieabhängige Verteilung der Gruppenflußdichte in den drei Brennstoffzonen, Modell *be-hfmts.ma025pu275*

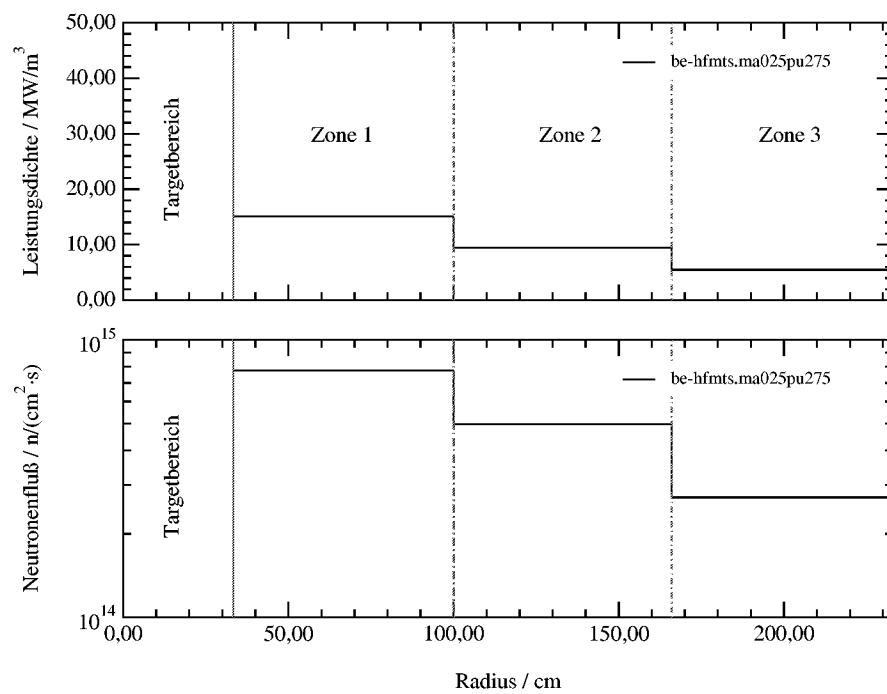


Abbildung 4.30: Leistungsdichte (oben) und Neutronenfluß (unten) in den drei Brennstoffzonen, Modell *be-hfmts.ma025pu275*, Neutronenquellstärke = 10^{18} n/s

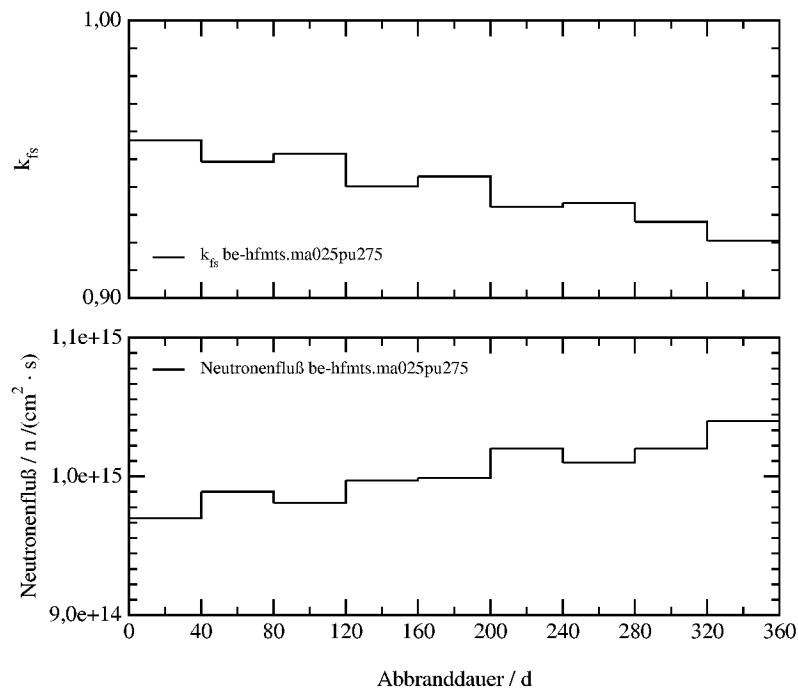


Abbildung 4.31: Zeitlicher Verlauf des k_{fs} -Wertes (oben) und des Neutronenflusses (unten) im Blanket, Modell *be-hfmts.ma025pu275*, Abbrand: 360 Tage bei 500 MW_{th}

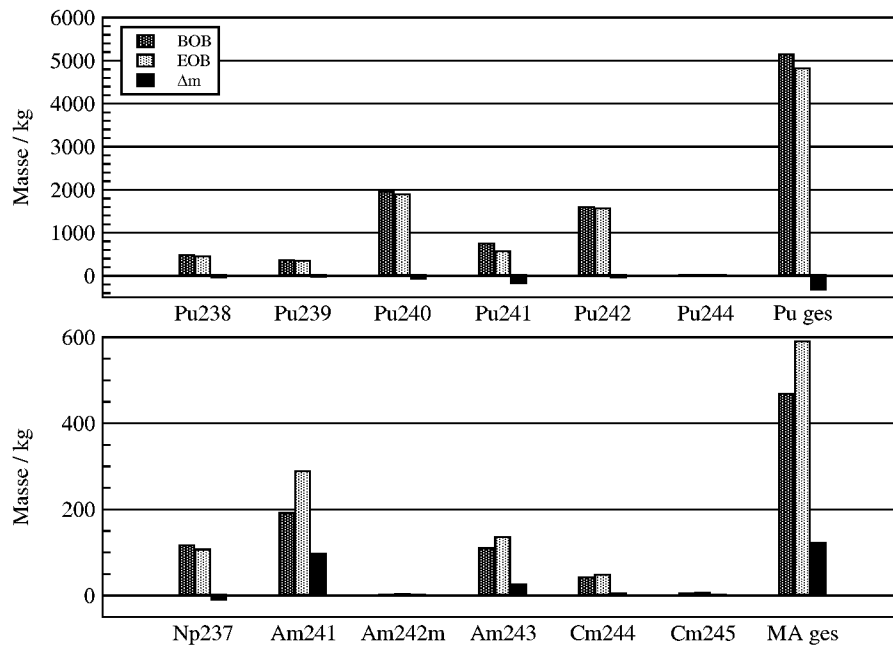


Abbildung 4.32: TRU-Massenumsätze, Modell *be-hfmts.ma025pu275*, Abbrand: 360 Tage bei 500 MW_{th} anschließend 3 Jahre Lagerung

4.3.3 Vergleichende Betrachtung der heterogenen Blanketmodelle

Die vorgestellten heterogenen Blanketkonzepte können mit dem Pu-Vektor aus der zweifachen Thorium-Rezyklierung (s. Abschnitt B.1 im Anhang) im Rahmen der Löslichkeitsgrenzen betrieben werden. Auch bei Anreicherung des Brennstoffes mit Minoren Actiniden ist bei entsprechender Erhöhung der Plutoniumanreicherung ein ausreichend hoher k_{eff} -Wert erreicht worden. In Tabelle 4.20 sind die Umsätze nach Stoffgruppen der verschiedenen heterogenen Modelle zusammengestellt. Die energiebezogenen TRU-Umsätze sind in Abbildung 4.33 gegenübergestellt. Auch bei der Beurteilung der heterogenen Modellen ist zu beachten, daß bei keinem der untersuchten Modelle ein Gleichgewichtszustand eingestellt worden ist.

Tabelle 4.20: Vergleich von Massenbilanzen der untersuchten heterogenen Modelle zwischen BOB (Begin of Burn), EOB (End of Burn) und EOB^{+3a} (3 Jahre Lagerung nach Entladung), Abbrand: 360 Tage bei 500MW_{th} TRU-Isotopenvektor: Thorium 2-fach rezykliert (s. Tabelle B.4)

MA-Bilanz					
Modellnamen	<i>BOB</i> kg	<i>EOB</i> kg	$\frac{EOB-BOB}{BOB}$ %	EOB^{+3a} kg	$\frac{EOB^{+3a}-BOB}{BOB}$ %
mod6-1.hfmts.ma025pu275	543,12	591,09	8,83	680,58	25,31
mod9-1.hfmts.ma025pu275	299,55	329,06	9,85	371,30	23,95
mod9.hfmts.ma025pu275	299,55	332,86	11,12	375,61	25,39
be-hfmts.ma025pu275	468,43	515,15	9,98	590,08	25,97
Pu-Bilanz					
mod6-1.hfmts.ma025pu275	5967,80	5731,00	-3,97	5628,10	-5,69
mod9-1.hfmts.ma025pu275	3291,20	3075,40	-6,56	3025,80	-8,06
mod9.hfmts.ma025pu275	3291,20	3071,50	-6,68	3021,70	-8,19
be-hfmts.ma025pu275	5146,85	4910,61	-4,59	4824,23	-6,27
TRU-Bilanz					
mod6-1.hfmts.ma025pu275	6510,92	6322,09	-2,90	6308,68	-3,11
mod9-1.hfmts.ma025pu275	3590,75	3404,46	-5,19	3397,10	-5,39
mod9.hfmts.ma025pu275	3590,75	3404,36	-5,19	3397,31	-5,39
be-hfmts.ma025pu275	5615,28	5425,76	-3,37	5414,31	-3,58

Der Vergleich der in Tabelle 4.20 und Abbildung 4.33 dargestellten Ergebnisse macht deutlich, daß sich die Abbrandeigenschaften der untersuchten heterogenen Blanketkonzepte nicht wesentlich voneinander unterscheiden. Die voneinander abweichenden relativen oder energiebezogenen TRU-Umsätze sind vor allem auf die unterschiedlich hohen TRU-Inventare zurückzuführen.

Bei der Auswahl eines geeigneten heterogenen Modells wird daher eher auf die technischen Randbedingungen bzw. die Realisierbarkeit des Konzeptes Wert gelegt.

Gegen das Blanketkonzept *HFMTS* gibt es einige grundsätzliche Einwände bezüglich der Realisierbarkeit:

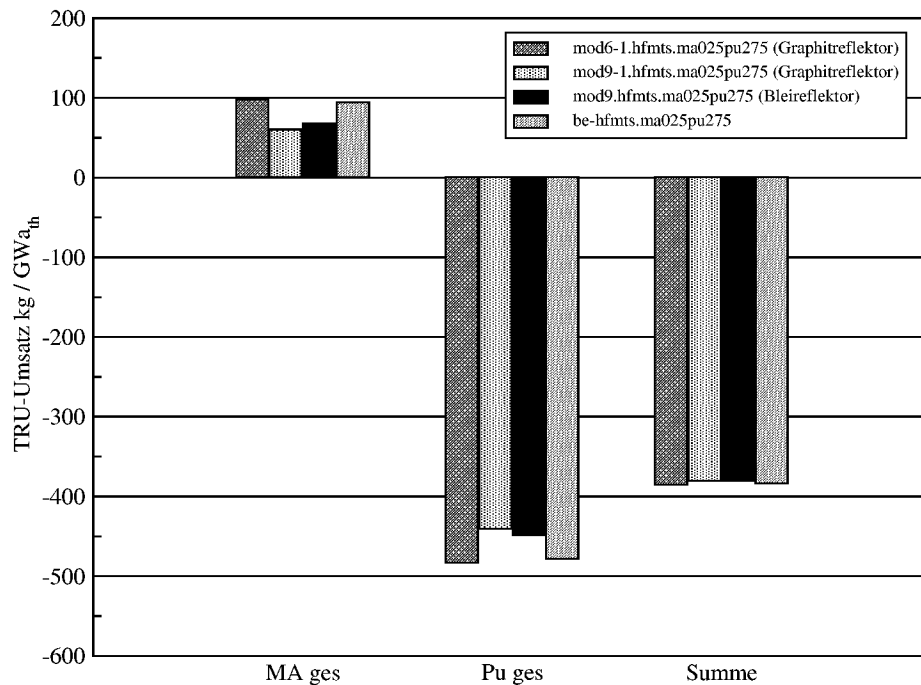


Abbildung 4.33: Vergleich der energiebezogenen TRU-Massenumsätze heterogener Blanketmodelle zwischen BOB (Begin of Burn) und EOB (End of Burn), TRU-Isotopenvektor: Thorium 2-fach rezykliert (s. Tabelle B.4)

- Stabilität und Fertigung:

Die vorgestellten Modelle haben Außenradien von 157 - 276 cm und eine Höhe von 200 cm. Bei diesen Abmessungen stellt sich bei Zylinderwandstärken von 1 mm die Frage nach der Stabilität der Zylinderanordnung. Die Brennstoffzylinder müssten ab einem bestimmten Radius mit Verbindungselementen abgestützt werden. Dadurch sind erhöhte Druckverluste zu erwarten. Dabei ist noch nicht berücksichtigt, wie stützende Strukturelemente an den Zylindern befestigt werden können. Denn Schweißstellen sind in der korrosiven Blei-Wismut-Schmelze möglichst zu vermeiden, da sie bevorzugt durch Korrosion angegriffen werden.

- Brennstoffzylinderwechsel:

Ein weiteres Problem, welches das ganze Blanketkonzept in Frage stellt, ist der Wechsel von Brennstoffzylindern. Es ist davon auszugehen, daß die Brennstoffzylinder durch den Korrosionsangriff des Kühlmittels und Brennstoffträgers sowie infolge von Strahlenversprödung nach einer gewissen Zeit ausgewechselt werden müssen. Unter diesem Gesichtspunkt sind sich gegenseitig umschließende Brennstoffzylinder vergleichsweise ungeeignet. Zum Austausch eines Zylinders müsste die gesamte Anlage geöffnet und die Beschleunigerröhre mit Protonenstrahlenfenster entfernt werden. Dem könnte durch eine stärkere Modularisierung der Brennelemente entgegengewirkt werden. Die Kreiszylinder könnten beispielsweise in Segmente unterteilt werden.

Ein verbesserter Ansatz zur Lösung dieses Problems, ist das zweite vorgestellte heterogene Blan-

Blanketkonzept *BE-HFMTS*. Die einzelnen Brennelemente können einfach ausgetauscht werden. Die Kreiszyylinder in den Brennelementen haben einen wesentlich kleineren Radius als im HFMTS-Modell, so daß eine strukturelle Stabilität a priori gegeben ist. Die Stabilität ist zusätzlich durch die Wände der Brennelemente gewährleistet.

4.4 Blanketauswahl

In diesem Kapitel sind verschiedene homogene und heterogene Blanketkonzepte vorgestellt worden.

Die neutronenphysikalische Eignung der untersuchten Blanketkonzepte wurde vor allem danach beurteilt, ob das System mit einem sehr „schlechten“ TRU-Vektor innerhalb der Löslichkeitsgrenzen betrieben werden kann. Diese Anforderung haben alle Modelle erfüllt. Weiterhin wurden für alle Systeme geltende Abbrandbedingungen definiert und die TRU-Umsatzraten der einzelnen Systeme miteinander verglichen. Von den homogenen Entwürfen ist das Basismodell *mod4-5.ext-hfmts* in Abschnitt 4.2.3 als geeignet eingestuft worden. Von den heterogenen Modellen ist Modell *BE-HFMTS* am besten geeignet.

Bei der Entscheidung, welches Konzept weiterverfolgt werden soll, geht es um die prinzipielle Wahl zwischen einem homogenen und einem heterogenen Blanketdesign. Das heterogene Brennstoffsystem hat einige wesentliche Vorteile gegenüber dem homogenen:

- Einrichtung und Nutzung thermischer Inseln z.B. zur Umwandlung von Isotopen mit größerem thermischen Absorptionsquerschnitt.
- Bessere Kontrolle und Handhabung bei Be- und Entladung des Brennstoffes durch kleinere Brennstoffvolumina der Brennelemente
- Trennung von Kühlmittel und Brennstoffträger und dadurch kleineres Umlaufvolumen des Brennstoffes
- Im Brennstoff lokalisierte Aktivität und dadurch Vermeidung eines Spaltprodukt-Transportes im gesamten Transmutationssystem.
- Möglichkeit der unterschiedlichen Beladung einzelner Sektionen des Transmutationssystems, z.B. Brennelemente nur mit Minoren Actiniden beladen oder radial unterschiedliche TRU-Konzentrationen.

Das heterogene Blanketkonzept *BE-HFMTS* verbindet die positiven Eigenschaften eines Festbrennstoffsystems (z.B. bessere Kontrolle des Brennstoffes und der Reaktivität durch kleine abgeschlossene Brennstoffvolumina) mit denen von Flüssigbrennstoffsystemen (kontinuierliche Be- und Entladung, Spaltproduktabzug) und wird daher in den nächsten Kapiteln weiter detailliert.

Kapitel 5

Wärmetechnische und strukturmechanische Aspekte

In diesem Kapitel erfolgt eine detailliertere Analyse des *BE-HFMTS*-Blanketkonzeptes. Bei den bisherigen Betrachtungen standen die neutronenphysikalischen Aspekte des Konzeptes im Vordergrund. Es konnte gezeigt werden, daß dieses System auch bei Verwendung eines ungünstigen TRU-Vektors betrieben werden kann. Vor der Entwicklung sinnvoller Beladungsstrategien für das Blanketkonzept, sollten einige für die technische Umsetzung relevante Sachverhalte etwas näher untersucht werden.

Bei der Analyse des *BE-HFMTS*-Konzeptes wird von dem im vorigen Abschnitt bereits vorgestellten Modell *be-hfmts.ma025pu275* ausgegangen. Das bedeutet, daß neben den in Tabelle 4.18 auf Seite 75 zusammengestellten Geometrieigenschaften auch die maximal zulässige Anreicherung mit Transuranen bei maximal 3 at% beibehalten wird. Damit verbunden ist eine Brennstofftemperatur von mindestens $\vartheta = 600\text{ }^{\circ}\text{C}$. Es sollte eine thermische Leistung von $P_{th} = 500\text{ MW}$ erreicht werden.

Da ein Flüssigmetallbrennstoffsystem bei geringen Drücken (lediglich hydrostatische Beiträge) betrieben werden kann, sind bei der Analyse möglicher Belastungen vor allem thermische Beanspruchungen zu berücksichtigen. Die größten thermischen Beanspruchungen sind durch Wärmeentwicklung und -transport in den Brennelementen bzw. Brennstoffzylindern zu erwarten. Deshalb bezieht sich die Analyse des Systems vor allem auf wärmetechnische Aspekte der Brennelemente.

5.1 Wärmetechnische Grundlagen

In Abbildung 5.1 ist die Geometrie eines *BE-HFMTS*-Brennelementes dargestellt und mit den für dieses Kapitel relevanten Beschriftungen versehen.

Die in einem Brennstoffzylinder durch Spaltreaktionen freigesetzte Wärmeenergie wird durch Wärmeleitung an die Zylinderwände transportiert. In der Zylinderwand bildet sich ein Temperaturgradient aus, der eine Wärmespannung hervorruft. Durch konvektiven Wärmeübergang zwischen Zylinderwand und strömendem Kühlmittel wird die Wärmeenergie schließlich aus

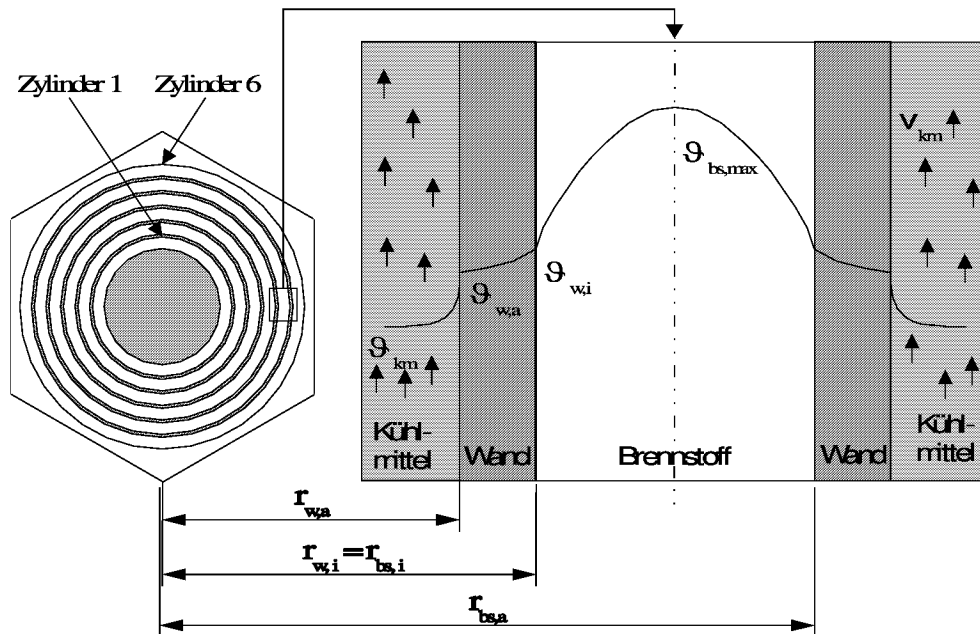


Abbildung 5.1: Geometriebeschreibung eines *BE-HFMTS*-Brennelementes mit 6 Brennstoffzylindern

dem Brennelement abgeführt. Entsprechend dieser kurzen Zusammenfassung der Wärmeübertragungsvorgänge in einem Brennstoffzylinder werden in den nächsten Abschnitten die folgenden Punkte betrachtet:

- Temperatur und Spannungsaufbau in den Brennstoffzylinderwänden und
- Temperaturverlauf und maximale Temperatur im Brennstoff,
- Kühlmitteltemperaturverlauf.

5.1.1 Temperatur und Spannungsaufbau in der Zylinderwand

Die statische Wärmespannung in der Wand der Brennstoffzylinder $\sigma_{w,stat}$ kann in einer einfachen Modellannahme, ausgehend vom Hooke'schen Gesetz für den ebenen Spannungszustand (Gleichung 5.1), wie folgt hergeleitet werden.

$$\sigma_{w,stat} = -\varepsilon \cdot \frac{E}{1 - \nu} \quad (5.1)$$

ε = elastische Dehnung

E = Elastizitätsmodul

ν = Querkontraktionszahl

Die maximale elastische Dehnung ϵ stellt sich für ein bestimmtes ΔT an der Außenwand ein.

$$\epsilon = -\alpha \cdot \frac{\Delta T_w}{2} \quad (5.2)$$

$$\begin{aligned} \alpha &= \text{Wärmeausdehnungskoeffizient} \\ \Delta T_w &= \text{Temperaturgradient in der Wand} \end{aligned}$$

Damit ergibt sich zur Berechnung der Wärmespannung folgende Gleichung.

$$\sigma_{w,stat} = \frac{\alpha \cdot E}{1 - \nu} \cdot \frac{\Delta T_w}{2} \quad (5.3)$$

Die Temperaturdifferenz in der Zylinderwand kann aus dem Gleichgewicht der Wärmeströme, die durch eine Rohrwand abgeführt werden können (Gleichung 5.6) und die abgeführt werden sollen (Gleichung 5.7), berechnet werden. Der Wärmestrom durch eine Rohrwand berechnet sich unter Anwendung des Fourier'schen Gesetzes für eine zylinderförmige Fläche zu

$$\dot{Q} = -\lambda_w \cdot A_w \frac{d\vartheta_w}{dr} \quad (5.4)$$

$$= -\lambda_w \cdot 2\pi \cdot r \cdot L \cdot \frac{d\vartheta_w}{dr} \quad (5.5)$$

$$= 2\pi \cdot \lambda_w \cdot L \cdot \frac{\Delta T}{\ln\left(\frac{r_{w,a}}{r_{w,i}}\right)} \quad (5.6)$$

Geht man davon aus, daß die bei einer Leistungsdichte $\dot{q}'''$ im Brennstoffzylinder freigesetzte Wärme gleichmäßig über die zwei begrenzenden Wände abgegeben wird, so ist der über eine Wand abzuführende Wärmestrom:

$$\dot{Q} = \frac{1}{2} \cdot \dot{q}''' \cdot 2\pi(r_{bs,a}^2 - r_{bs,i}^2) \cdot L \quad (5.7)$$

Mit Gleichung 5.6 und 5.7 berechnet sich die Temperaturänderung in der Zylinderwand

$$\Delta T_w = \frac{\dot{q}''' \cdot (r_{bs,a}^2 - r_{bs,i}^2) \cdot \ln\left(\frac{r_{w,a}}{r_{w,i}}\right)}{4\lambda_w} \quad (5.8)$$

Unter Verwendung von Gleichung 5.3 und 5.8 ergibt sich die statische Wärmespannung in Abhängigkeit von der Leistungsdichte im Brennstoffzylinder:

$$\sigma_{w,stat} = \frac{\alpha \cdot E}{1 - \nu} \cdot \frac{\dot{q}''' \cdot (r_{bs,a}^2 - r_{bs,i}^2) \cdot \ln\left(\frac{r_{w,a}}{r_{w,i}}\right)}{8\lambda_w} \quad (5.9)$$

Im Rahmen des allgemeinen Entwurfes eines Transmutationssystemes in Kapitel 3 wurde der Stahl EP823 als geeignetes Material für den Einsatz in einer Blei-Wismut-Schmelze vorgestellt.

Tabelle 5.1: Eigenschaften Stahl EP823 bei verschiedenen Temperaturen nach [BIK⁺98]

Temperatur	ϑ	°C	100	400	500	600	700
Therm. Ausdehnungskoeff. (bezogen auf 20 °C)	α	$10^{-6}/K$	12,25	13,20	13,60	13,70	13,90
Wärmeleitfähigkeit	λ	$W/(m \cdot K)$	23,28	23,70	25,45	26,09	27,30
Elastizitätsmodul	E	$10^5 N/mm^2$	2,37	2,09	1,95	1,76	1,60

Anhand einer Wärmespannung, die der Zeitstandfestigkeit $\sigma_{10.000h}$ von EP823 entsprechen soll, wird an dieser Stelle beispielhaft die dafür erforderliche Temperaturdifferenz in der Wand des Brennstoffzylinders und die entsprechende Leistungsdichte berechnet.

In Tabelle 5.1 sind die für die Berechnung der statischen Wärmespannungen relevanten Eigenschaften dieses Stahls bei verschiedenen Temperaturen zusammengestellt. Für den Betrieb der Anlage ist eine TRU-Anreicherung von maximal 3 at% zu gewährleisten. Damit verbunden ist eine Brennstofftemperatur von mindestens $\vartheta = 600$ °C. Tabelle 3.2 auf Seite 37 kann entnommen werden, daß für den Stahl EP823 die Zeitstandfestigkeit für 10.000 Stunden bei einer mittleren Betriebstemperatur von $\vartheta = 650$ °C zwischen $\sigma_{10.000h} = 80 - 90$ N/mm² beträgt. Mit dieser Spannung ergäbe sich aus Gleichung 5.9 eine Leistungsdichte in einem Brennelementzylinder $\dot{q}''' = 94$ MW/m³. Die Änderung der Wandtemperatur beträgt dementsprechend $\Delta T_w = 48$ K.

Durch Temperaturgradienten hervorgerufene Spannungen sind Sekundärspannungen, die durch Kriechen abgebaut werden können ohne daß ein Materialversagen auftritt. Sie sind deshalb nicht auslegungsrelevant. Materialversagen kann dann ausgeschlossen werden, wenn die plastische Dehnung ε_{pl} kleiner als die Bruchdehnung ε_B des Materials ist. Für den eingesetzten Stahl EP823 ist entsprechend der auf Seite 37 in Tabelle 3.2 aufgeführten Materialkennwerte für eine Temperatur bis 600 °C eine Bruchdehnung von $\varepsilon_B = 27\%$ angegeben. Aufgrund der berechneten Temperaturdifferenz in der Wand $\Delta T_w = 48$ K ergibt sich nach Gleichung 5.10 lediglich eine plastische Dehnung von $\varepsilon_{pl} = 6,53 \cdot 10^{-4}$. Für dieses Beispiel kann damit plastisches Versagen ausgeschlossen werden, auch wenn man berücksichtigt, daß sich ε_B unter Bestrahlung deutlich vermindert.

$$\begin{aligned}
 \varepsilon_{pl} &= -\alpha \cdot \frac{\Delta T}{2} \\
 &= \frac{13,7 \cdot 10^{-6} \cdot K^{-1} \cdot 47,7 K}{2} \\
 &= 6,53 \cdot 10^{-4}
 \end{aligned} \tag{5.10}$$

5.1.2 Brennstofftemperatur

Der Verlauf der Temperatur in einem Kreiszyylinder mit flüssigem Brennstoff wird mit Gleichung 5.11 in erster Näherung durch einfache Wärmeleitung beschrieben.

$$\dot{q}''' = -\frac{1}{r} \cdot \frac{d}{dr} \left(\lambda \cdot r \frac{d\vartheta}{dr} \right) \tag{5.11}$$

Als Randbedingung zur Lösung der Wärmeleitungsgleichung wird angenommen, daß an beiden Wänden des Brennstoffhohlzylinders die gleiche Wandtemperatur ϑ_w vorliegt:

$$\vartheta(r_{bs,i}) = \vartheta(r_{bs,a}) = \vartheta_{wand} \quad (5.12)$$

Für den Temperaturverlauf im Brennstoff ergibt sich damit:

$$\vartheta(r) = \vartheta_w + \frac{\dot{q}'''}{4 \cdot \lambda} \cdot \left(r_{bs,i}^2 - r^2 + \frac{(r_{bs,i}^2 - r_{bs,a}^2) \cdot \ln\left(\frac{r_{bs,i}}{r}\right)}{\ln\left(\frac{r_{bs,a}}{r_{bs,i}}\right)} \right) \quad (5.13)$$

Die maximale Temperatur im Brennstoff wird erreicht bei:

$$r(\vartheta = \vartheta_{max}) = \sqrt{\frac{r_{bs,a}^2 - r_{bs,i}^2}{2 \cdot \ln\left(\frac{r_{bs,a}}{r_{bs,i}}\right)}} \quad (5.14)$$

Mit der Forderung, daß die Brennstofftemperatur wegen der Löslichkeitsgrenze der Transurane mindestens $\vartheta = 600 \text{ °C}$ betragen muß, wird die Temperatur an der Innenwand der Brennstoffzylinder auf $\vartheta_w = 600 \text{ °C}$ festgelegt. Die Maximaltemperatur wird nach Gleichung 5.14 in der Mitte der Brennstoffzylinder erreicht. Mit der im Beispiel auf Seite 86 in Abschnitt 5.1.1 ermittelten Leistungsdichte von $\dot{q}''' = 94 \text{ MW/m}^3$ beträgt die maximale Änderung der Brennstofftemperatur $\Delta T_{bs,max} = 670 \text{ K}$. Bei einer Wandtemperatur von $\vartheta_w = 600 \text{ °C}$ ergibt sich eine Maximaltemperatur von $\vartheta_{bs,max} = 1270 \text{ °C}$. Der Vergleich mit der Siedetemperatur des Brennstoffträgers Pb-Bi-Eutektikum $\vartheta_{siede} = 1670 \text{ °C}$ zeigt, daß die maximale Brennstofftemperatur bei diesen Randbedingungen keine begrenzende Größe für die Auslegung ist.

Bei dieser Berechnung der maximalen Brennstofftemperatur handelt es sich um eine konservative Abschätzung, da lediglich Wärmeleitungsvorgänge erfaßt werden. Lypsch hat in [Lyp96] Untersuchungen zu Naturkonvektionsvorgängen in Zylindern mit flüssigem Blei und die Auswirkung auf die Wärmeleitung durchgeführt. Danach kann man Konvektionsvorgänge durch die Einführung einer effektiven Wärmeleitfähigkeit λ_{eff} , die doppelt so groß wie die reine Wärmeleitfähigkeit sein kann, ausreichend berücksichtigen. Damit ist real auch eine wesentlich geringere maximale Brennstofftemperatur zu erwarten.

5.1.3 Kühlmitteltemperatur und Aufheizspanne

Die Kühlmitteltemperatur ϑ_{km} kann aus der Gleichung für konvektiven Wärmeübergang berechnet werden. Der von einer Brennstoffzylinderwand mit der Fläche A_w und Temperatur ϑ_w an das Kühlmittel mit der Temperatur ϑ_{km} abgegebene Wärmestrom $\dot{q}$ errechnet sich aus Gleichung 5.15.

$$\dot{q} = \alpha \cdot A_w \cdot (\vartheta_w - \vartheta_{km}) \quad (5.15)$$

Der α -Wert ergibt sich aus der dimensionslosen Nusselt-Kennzahl (Gleichung 5.16).

$$Nu = \frac{\alpha \cdot d_{hyd}}{\lambda} \quad (5.16)$$

Die Bestimmung der Nusselt-Zahl von Flüssigmetallen erfolgt mit empirischen und halbempirischen Gesetzen. Umfassende Untersuchungen und Ergebnisse hierzu sind in [Dwy76] enthalten. Für die Nusselt-Zahl gilt nach [Dwy76] für turbulente Strömungen von Flüssigmetallen in einem Kreisringspalt unter Annahme folgender Randbedingungen:

- Wärmeübergang von beiden Wänden,
- gleiche Wandtemperatur bei jeder axialen Position $\vartheta_{w1} = \vartheta_{w2}$,
- für das Verhältnis der Wandradien $y < 7$ mit $y = \frac{r_{w1}}{r_{w2}}$

der in Gleichung 5.17 beschriebene Zusammenhang

$$Nu = \alpha + \beta \cdot (\bar{\psi} \cdot Pe)^\gamma \quad (5.17)$$

Es gelten folgende Berechnungsvorschriften:

$Nu :$

$$\begin{aligned} \alpha &= 7,82 + 1,72 \cdot y - 0,051 \cdot y^2 \\ \beta &= 0,0592 - 0,000342 \cdot y + 0,000723 \cdot y^2 \\ \gamma &= 0,655 + 0,0363 \cdot y - 0,0037 \cdot y^2 \end{aligned}$$

$Pe :$

$$Pe = Re \cdot Pr$$

Die am Beginn dieses Kapitels formulierte Anforderung an das System, eine Leistung von mindestens 500 MW_{th} bereitzustellen, ergibt bei der vorgegebenen Geometrie eine mittlere Leistungsdichte von ca. 30 MW/m³ im Brennstoff. Mit der Annahme, daß bei einer mittleren Leistungsdichte in einem Brennstoffzylinder von 30 MW/m³ die anfallende Wärme jeweils zur Hälfte durch eine der beiden Wände abgeführt wird, sind in Tabelle 5.2 die mittleren Kühlmitteltemperaturen zwischen zwei Brennstoffzylinder eines Brennelementes sowie die Ergebnisse der erforderlichen Zwischenrechnungen zusammengestellt. Es wurde eine Kühlmittelgeschwindigkeit von $v_{km} = 1,9$ m/s angenommen. Bei einer Außenwandtemperatur von $\vartheta_{w,a} = 585$ °C stellt sich eine mittlere Kühlmitteltemperatur von $\vartheta_{km} = 565$ °C ein. Diese Temperatur entspricht der Kühlmiteleintrittstemperatur. Die Berechnung der Reynoldszahl zeigt, daß es sich bei der Kühlmittelströmung zwischen den Brennelementzylindern um eine turbulente Strömung handelt. Die Berechnung des α -Wertes nach Gleichung 5.17 ist demnach zulässig. Weiterhin zeigt sich, daß eine Unterscheidung zwischen äußerer und innerer Wand eines Brennstoffzylinders keine Unterscheidung hinsichtlich des Wärmetransportes erforderlich ist.

Für die Berechnung der Kühlmittel-Aufheizspanne ist von einem Gleichgewicht zwischen dem aus dem Brennstoffzylinder abzuführenden und dem mit dem Kühlmittel abführbaren Wärmestrom auszugehen. Die in den Brennstoffzylindern freigesetzte Leistung berechnet sich bei einer bestimmten Leistungsdichte $\dot{q}'''$ und dem Brennstoffvolumen $2\pi(r_{bs,a}^2 - r_{bs,i}^2) \cdot L_{be}$ mit Gleichung 5.18.

$$\dot{Q} = \dot{q}''' \cdot 2\pi(r_{bs,a}^2 - r_{bs,i}^2) \cdot L_{be} \quad (5.18)$$

Tabelle 5.2: Berechnung des Wärmeübergangskoeffizienten α für die Kühlmittelströmung zwischen zwei Brennstoffzylindern nach [Dwy76] (am Beispiel des Kühlmittelspaltes zwischen Brennstoffzylinder 1 und 2 sowie 5 und 6, vgl. Abbildung 5.1).

Angaben Kühlmittel/ Kühlmittelspalt			Zylinder 1-2	Zylinder 5-6
Wandtemperatur (außen)	$\vartheta_{bs,a}$	°C	585	585
Kühlmittelgeschwindigkeit	v_{km}	m/s	1,900	1,900
Innenradius	r_1	m	0,1320	0,2900
Außenradius	r_2	m	0,1395	0,2975
Hydraulischer Durchmesser	d_{hyd}	m	0,0150	0,0150
Stoffdaten Pb-Bi (bei $\vartheta = 600$ °C)				
Wärmeleitfähigkeit	λ	W/(m · K)	15,780	15,780
Dichte	ρ	kg/m ³	9,120	9,120
Dynamische Viskosität	η	kg/(m · s)	1,55E-03	1,55E-03
Wärmekapazität	c	J/(kg · K)	144,000	144,000
Ähnlichkeitskennzahlen				
Reynolds-Zahl	Re		18.210	18.210
Prandl-Zahl	Pr		0.0142	0.0142
Peclet-Zahl	Pe		2.577	2.577
Ergebnisse				
Nusselt-Zahl	Nu		22,836	22,718
Wärmeübergangskoeffizient	α	W/(m ² · K)	24.077	23.905
mittlere Kühlmitteltemperatur	ϑ_{km}	°C	567	566

Mit dem Kühlmittel kann die Leistung entsprechend Gleichung 5.19 abgeführt werden.

$$\begin{aligned}
 \dot{Q} &= \dot{m} \cdot c_p \cdot (\vartheta_{km,aus} - \vartheta_{km,ein}) \\
 &= \rho_{km} \cdot v_{km} \cdot (\vartheta_{km,aus} - \vartheta_{km,ein})
 \end{aligned}
 \tag{5.19}$$

$$\dot{m} = \text{Massenstrom}$$

$$c_p = \text{spez. Wärmekapazität}$$

$$\rho_{km} = \text{Kühlmitteldichte}$$

$$v_{km} = \text{Kühlmittelgeschwindigkeit}$$

Bei der mittleren Leistungsdichte $\dot{q}''' = 30 \text{ MW/m}^3$, einer Strömungsgeschwindigkeit $v_{km} = 1,9 \text{ m/s}$, der Kühlmiteleintrittstemperatur $\vartheta_{km,ein} = 566$ °C stellt sich mit Gleichung 5.18 und 5.19 bei einer Brennelementlänge von $L_{be} = 2 \text{ m}$ eine Kühlmittelaustrittstemperatur von $\vartheta_{km,aus} = 653$ °C ein.

5.1.4 Zusammenfassung

Für den Fall der mittleren Leistungsdichte $\dot{q}''' = 30 \text{ MW/m}^3$ sind in Tabelle 5.3 der Brennstofftemperaturverlauf, die mittlere Kühlmitteltemperatur und die Kühlmittelaufheizspanne für einen Brennstoffzylinder berechnet und zusammengefaßt dargestellt.

Tabelle 5.3: Temperaturen in Brennstoff, Wand und Kühlmittel eines Brennstoffzylinders für den Fall der mittleren Leistungsdichte in einem Brennstoffzylinder $\dot{q}''' = 30 \text{ MW/m}^3$.

Brennstoffzylinder			
Leistungsdichte	$\dot{q}'''$	MW/m ³	30
max. Brennstofftemperatur	$\vartheta_{bs,max}$	°C	814
max. Änderung Brennstofftemp.	$\Delta T_{bs,max}$	K	214
Zylinderwand			
Wandtemperatur min. (innen)	$\vartheta_{w,i}$	°C	600
Wandtemperatur min. (außen)	$\vartheta_{bs,a}$	°C	585
Temperaturgradient	ΔT_w	K/mm	15
Kühlmittel			
Kühlmittelgeschwindigkeit	v_{km}	m/s	1,9
Kühlmiteleintrittstemp.	$\vartheta_{km,ein}$	°C	566
Kühlmittelaustrittstemp.	$\vartheta_{km,aus}$	°C	653
Aufheizspanne	ΔT_{km}	K	87

5.2 Wärmestromdichte- und Leistungsverteilung im Blanket

In diesem Abschnitt soll anhand von Modell *be-hfmts.ma025pu275* die Wärmestromdichte- und Leistungsverteilung im Blanket des *BE-HFMTS*-Konzeptes näher untersucht werden. Für eine sinnvolle Darstellung der Berechnungsergebnisse sind einige Anmerkungen zur Nomenklatur erforderlich. In Abbildung 5.2 ist ein x-y-Schnitt durch die *BE-HFMTS*-Geometrie dargestellt. Die Brennelemente werden in jeder Brennstoffzone, beginnend mit den in Abbildung 5.2 gekennzeichneten Brennelementen 1, 7 und 19 im Uhrzeigersinn durchnummeriert.

Das Blanketkonzept weist mehrere Heterogenitäten auf, die jeweils durch einen Peakfaktor f erfasst werden können. Es sind folgende Heterogenitätseffekte zu unterscheiden :

1. Blanket → Brennstoffzone :

Hierbei wird der radiale Abfall des Neutronenflusses und der Leistungserzeugung je Brennelement einer Brennstoffzone über dem Radius des Blankets berücksichtigt. Ausdruck eines ausgeglichenen radialen Leistungsprofils ist es, wenn die Brennelemente der unterschiedlichen Brennstoffzonen die gleiche Leistung erzeugen.

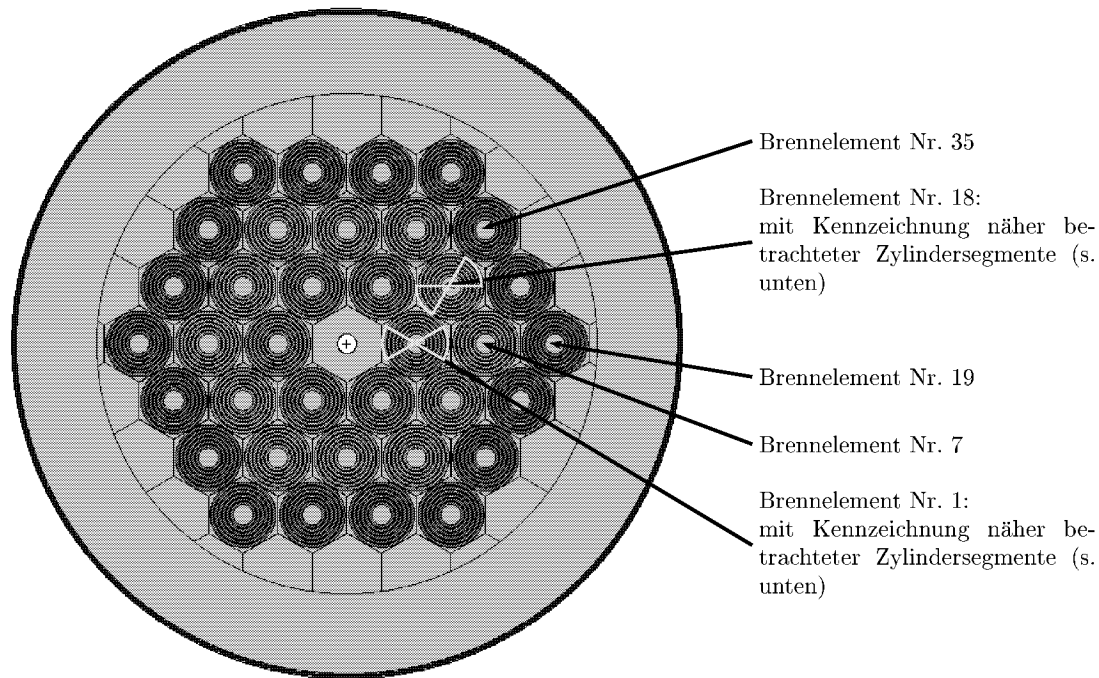


Abbildung 5.2: Kennzeichnung der Brennstoffzylinder anhand eines X-Y-Schnittes durch eine BE-HFMTS-Geometrie

$$f_{radial,Blanket} = \frac{\text{mittlere Leistung je Brennelement einer Brennstoffzone}}{\text{mittlere Leistung je Brennelement des Blankets}}$$

2. Brennstoffzone → Brennelement :

Aufgrund der Brennelementgeometrie haben die Brennelemente einer Brennstoffzone unterschiedliche Abstände vom Zentrum der Anlage, dem Spallationstarget. Zur Verdeutlichung sei beispielhaft auf die Brennelemente 7 und 18 in Brennstoffzone 2 verwiesen (s. Abbildung 5.2).

$$f_{max,BZ} = \frac{\text{maximale Leistung eines Brennelements einer Brennstoffzone}}{\text{mittlere Leistung je Brennelement einer Brennstoffzone}}$$

3. Brennelement → Brennstoffzylinder :

Die radiale Ausdehnung der Brennstoffzylinder, mit einem maximalen Durchmesser von ca. 60 cm, führt zu einem ungleichen Leistungsprofil innerhalb der Brennstoffzylinder. Der Teil eines Brennstoffzylinders, der dem Zentrum des Blankets zugewandt ist, wird einem höheren Neutronenfluß ausgesetzt. In Abbildung 5.2 sind die Zylindersegmente (Öffnungswinkel von ca. 60 °), in denen die größten Belastungen erwartet werden, gekennzeichnet.

$$f_{radial,BE} = \frac{\text{Leistungsdichte des maximal belasteten Zylindersegmentes}}{\text{mittlere Leistungsdichte des Brennelements}}$$

4. Brennstoffzylinder → axiales Leistungsprofil :

Die bisher angeführten Leistungsspitzen werden zusätzlich noch von dem axialen Leistungsprofil in jedem Brennstoffzylinder überlagert.

$$f_{axial,BE} = \frac{\text{Leistungsdichte der maximal axial belasteten Zylinderscheibe}}{\text{mittlere Leistungsdichte des Brennelement-Zylinders}}$$

Tabelle 5.4: Eigenschaften des Modells *be-hfmts.ma025pu275* bei einer thermischen Leistung des Gesamtsystems von 500 MW

		Zone 1	Zone 2	Zone 3	Gesamt
Brennstoffzylinder		6	12	18	36
Brennstoffvolumen	cm ³	2,92E+06	5,83E+06	8,74E+06	1,75E+07
Thermische Leistung	MW	151,81	189,16	159,28	500,25
Leistung je BE	MW	25,30	15,76	9,04	13,89
Leistungsdichte je BE	MW/m ³	52,09	32,45	18,22	28,61
Wärmestromdichte	W/cm ²	149,76	103,30	59,26	89,03
Neutronenfluß	n/(cm ² · s)	2,55E+15	1,61E+15	8,53E+14	-

Die unter Punkt 2 und 3 aufgeführten Peakfaktoren können zum Peakfaktor $f_{max,radial,BE}$ zusammengefasst werden, indem die unter 3 angegebene Berechnungsvorschrift für das Brennelement mit der höchsten Belastung durchgeführt wird. Der Gesamt-Peakfaktor für die Leistung kann somit nach Gleichung 5.20 berechnet werden. Analog läßt sich nach Gleichung 5.21 auch ein Gesamt-Peakfaktor für die Wärmestromdichte ermitteln.

$$\dot{Q}_{peak} = f_{\dot{Q},radial,Blanket} \cdot f_{max,radial,BE} \cdot f_{axial,BE} \quad (5.20)$$

$$\dot{q}_{peak}'' = f_{\dot{q}'',radial,Blanket} \cdot f_{max,radial,BE} \cdot f_{axial,BE} \quad (5.21)$$

In Tabelle 5.4 sind für das Gesamtsystem die wichtigsten Ergebnisse bezüglich der Leistung, Wärmestromdichte und des Neutronenflusses bei einer Gesamtleistung von 500 MW_{th} zusammengestellt. Es wird deutlich, daß bei diesem Blanketkonzept eine ausgeprägt heterogene Leistungsverteilung vorliegt. Die Brennelemente in der Brennstoffzone 1 liefern je ca. 25 MW_{th} während die Brennelemente der äußeren Zone 3 jeweils lediglich je ca. 9 MW_{th} zur Gesamtleistung beitragen. Die mittlere Leistungsdichte in Zone 1 beträgt ca. 52 MW/m³, in Zone 2 ca. 32 MW/m³ und in Zone 3 ca. 18 MW/m³.

Für die detaillierte Analyse der Leistungsverteilung bzw. Wärmestromdichte in den Brennelementzonen und Brennelementen wurden diejenigen ausgewählt, bei denen die größten Belastungen zu erwarten sind. In Zone 1 sind alle Brennelemente gleichen Belastungen ausgesetzt. Stellvertretend für alle Brennelemente der Zone 1 sind daher in Tabelle 5.5 die berechneten Leistungs- und Wärmestromdichten für das Brennelement 1 dargestellt. Entsprechend der Kennzeichnung in Abbildung 5.2 sind die dem Zentrum des Blankets zugewandten Zylindersegmente in Tabelle 5.5 mit „vorn“, die abgewandten Zylindersegmente mit „hinten“ bezeichnet. Tabelle 5.5 verdeutlicht, daß zwischen den Brennelementzylindern eines Brennelementes keine nennenswerten Unterschiede in der Leistungsdichte bestehen. Die Leistungsdichte in den der Spallationsquelle zugewandten Zylindersegmenten ist ca. 41% höher als die entsprechende mittlere Leistungsdichte des Brennelementzylinders.

In der Brennstoffzone 2 sind alle Brennelemente, die sich näher am Zentrum des Blankets befinden, zusätzlichen Belastungen ausgesetzt. Beispielhaft für diese Brennelemente sind in Tabelle 5.5 die Ergebnisse von Brennelement 18 zusammengestellt. Brennstoffzone 3 ist wegen des geringeren Niveaus der Leistungsdichte für die Untersuchung möglicher Leistungsspitzen nicht so

Tabelle 5.5: Leistungsdichten in den Brennelementen 1 (oben) und 18 (unten), Modell *be-hfmts.ma025pu275*, ges: gesamter Brennstoffzylinder, vorn: der Spallationsquelle zugewandte Zylindersegmente (s. Abbildung 5.2), hinten: der Spallationsquelle abgewandte Zylindersegmente

Brennelement 1								
Zylinder	Leistung	Wärmestromdichte	Leistungsdichte			Leistungsspitzen		
	MW	W/cm ²	ges	vorn	hinten	ges	vorn	hinten
1 (innen)	2,15	147,39	49,13	56,69	49,84	0,98	1,15	1,01
2	2,90	148,49	49,50	56,99	49,24	0,99	1,15	0,99
3	3,66	149,38	49,79	58,39	45,56	0,99	1,17	0,91
4	4,42	150,07	50,02	62,91	43,37	1,00	1,26	0,87
5	5,18	150,42	50,14	66,87	42,45	1,00	1,33	0,85
6 (außen)	6,02	152,80	50,93	71,92	42,4	1,02	1,41	0,83

Brennelement 18								
1 (innen)	1,52	104,16	34,72	37,89	30,35	1,01	1,09	0,87
2	2,04	104,15	34,72	39,23	29,80	1,01	1,13	0,86
3	2,51	102,34	34,11	40,61	28,89	0,99	1,19	0,85
4	3,02	102,59	34,20	41,50	27,79	0,99	1,21	0,81
5	3,54	102,79	34,26	43,45	26,46	1,00	1,27	0,77
6 (außen)	4,09	103,79	34,60	43,81	25,91	1,01	1,27	0,75

relevant wie die beiden anderen Zonen. Die Ergebnisse für ein Brennelement dieser Brennstoffzone sind deshalb in Tabelle 5.7 nur der Vollständigkeit halber aufgeführt.

In Abbildung 5.3 ist der axiale Verlauf der Leistungsdichte in Brennstoffzylinder 2 der Brennelemente 1, 18 und 35 bezogen auf die mittlere Leistungsdichte im betrachteten Brennelementzylinder dargestellt. Die ab Seite 90 definierten Peakfaktoren für die drei Brennstoffzonen dieses Blanketkonzepts sind in Tabelle 5.6 zusammengestellt (s. auch Abbildung 5.4 auf S. 95).

Tabelle 5.6: Peakfaktoren des Modells *be-hfmts.ma025pu275*

	Zone 1	Zone 2	Zone 3
$f_{\dot{Q},radial,Blanket}$	1,82	1,13	0,64
$f_{\dot{q}'',radial,Blanket}$	1,68	1,16	0,67
$f_{max,radial,BE}$	1,41	1,27	1,31
$f_{axial,BE}$	1,24	1,26	1,20
Q_{peak}	3,18	1,82	1,01
$\dot{q}_{peak}''$	2,94	1,86	1,06

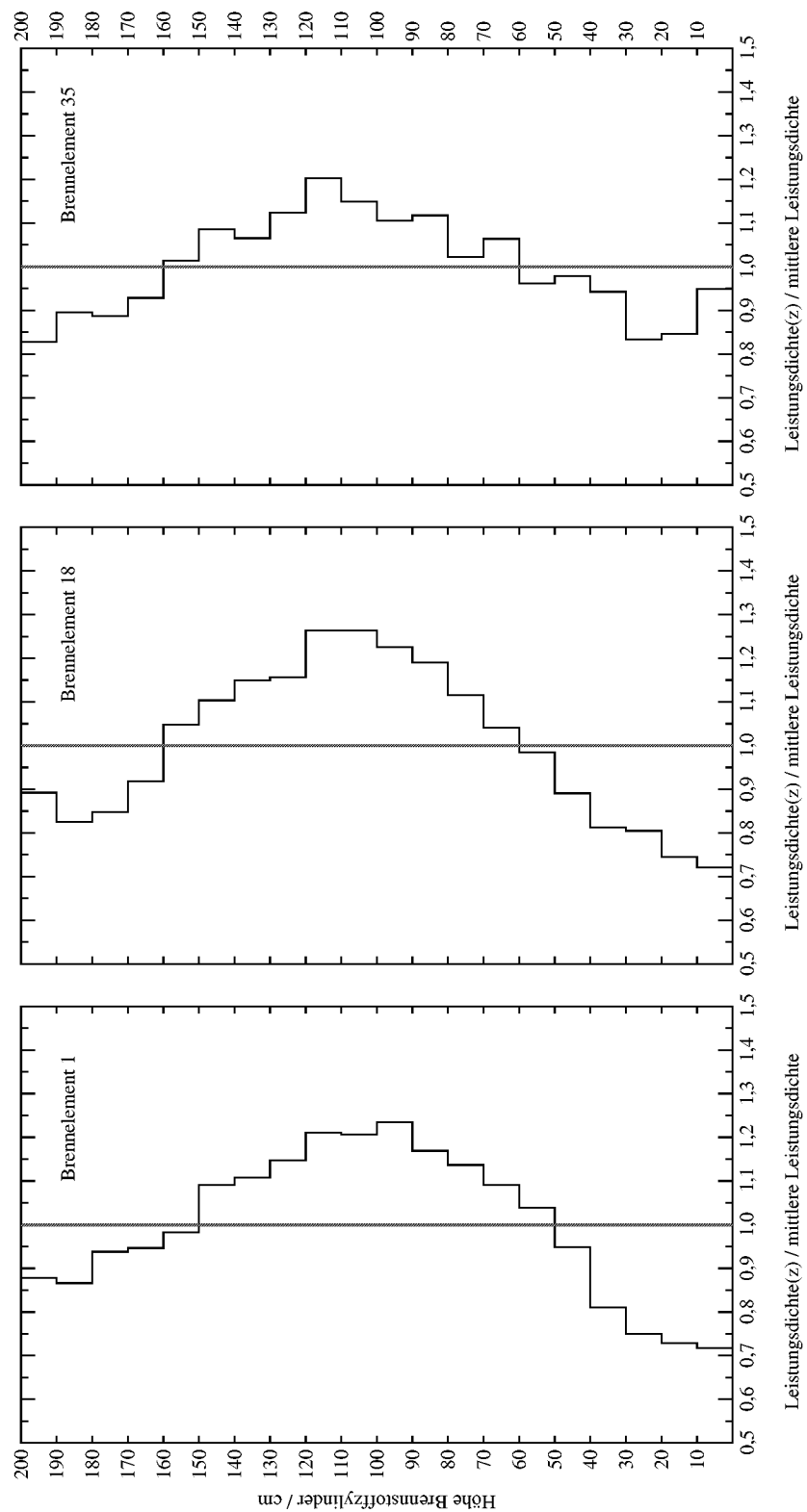


Abbildung 5.3: Axiale Leistungsdichteprofile der Brennelemente 1, 18 und 35 (Brennstoffzylinder 2), Modell: *be-hfmts.ma025pu275*

Tabelle 5.7: Leistungsdichten in Brennelement 35, Modell *be-hfmts.ma025pu275*, ges: gesamter Brennstoffzylinder, vorn: der Spallationsquelle zugewandte Zylindersegmente (s. Abbildung 5.2), hinten: der Spallationsquelle abgewandte Zylindersegmente

Zylinder	Leistung	Wärmestromdichte	Leistungsdichte			Leistungsspitzen		
1 (innen)	0,85	58,55	19,52	21,05	18,09	0,98	1,08	0,93
2	1,15	59,02	19,67	22,87	18,08	0,99	1,16	0,92
3	1,44	58,78	19,59	22,93	17,09	0,99	1,17	0,87
4	1,73	58,59	19,53	24,49	15,75	0,99	1,25	0,81
5	2,07	60,01	20,00	25,07	16,71	1,01	1,25	0,84
6 (außen)	2,39	60,62	20,21	26,57	17,47	1,02	1,31	0,86

5.3 Fazit

Bei homogener Beladung und gleichmäßiger Brennelementgeometrie in allen drei Brennstoffzonen, ergibt sich für das *BE-HFMTS*-Blankettkonzept, wie in Abbildung 5.4 dargestellt, ein starker radialer Abfall der Wärmestromdichte und der Leistung je Brennelement einer Brennstoffzone. Am stärksten belastet sind die Brennelemente der Brennstoffzone 1, wobei die Peakfaktoren der Leistung $\dot{Q}_{peak} = 3,18$ und der Wärmestromdichte $\dot{q}_{peak}'' = 2,94$ ermittelt wurden (s. auch Tabelle 5.4 auf Seite 92).

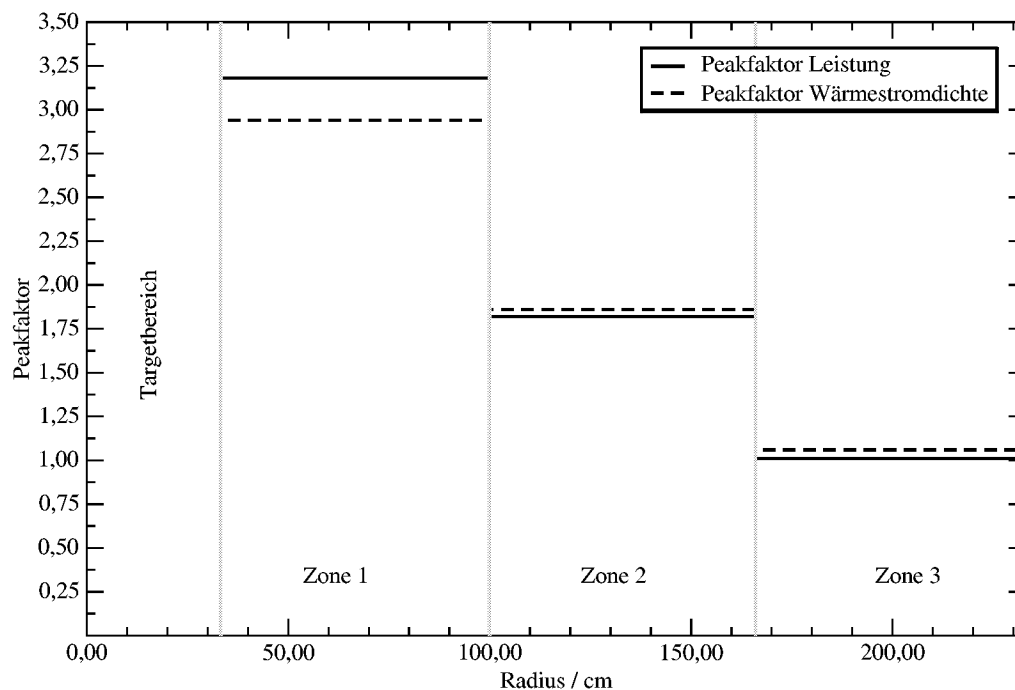


Abbildung 5.4: Peakfaktoren für die Leistung und Wärmestromdichte in den drei Brennstoffzonen, Modell: *be-hfmts.ma025pu275*

Die Ergebnisse dieses Abschnittes machen deutlich, daß für das *BE-HFMTS*-Blanketkonzept bezüglich der Leistungs- und Wärmestromdichteverteilung Optimierungen möglich sind. Dafür stehen zwei Lösungsansätze zur Verfügung, die im anschließenden Kapitel diskutiert werden:

1. Variation der Anreicherung in den drei Brennstoffzonen
2. Änderung der Geometrie der Brennelemente (Anzahl und Dicke der Brennstoffzylinder)

Für die Bewertung der optimierten Blanketkonzepte können die folgenden Kriterien herangezogen werden:

- Die Leistungsfreisetzung je Brennelement und Brennstoffzone sollte möglichst konstant sein, um einen gleichmäßigen Kühlmitteldurchsatz im Blanket zu erreichen.
- Eine gleichmäßige Wärmestromdichte $\dot{q}''$ in allen Brennelementen führt zu einer anzustrebenden ausgeglichenen Materialbeanspruchung.
- Vor allem auch technische Aspekte, wie die Brennstoffhandhabung (Befüllung, Aufarbeitung etc.), müssen bei der Bewertung eines optimierten Blanketkonzeptes berücksichtigt werden. Für die Realisierbarkeit des optimierten Konzeptes ist es natürlich ebenfalls von Bedeutung, ob und wie sich ein ausreichend hoher Multiplikationsfaktor einstellen läßt.

Kapitel 6

Zur Realisierung der Transmutationsanlage

6.1 Anpassung des *BE-HFMTS*-Blanketkonzeptes

6.1.1 Anpassung der Spaltstoffanreicherung

Im vorigen Kapitel wurde für die Weiterentwicklung dieses Blanketkonzeptes zum Erreichen eines ausgeglicheneren Wärmestromdichte- und Leistungsprofils als eine Möglichkeit die Variation der Spaltstoffanreicherung empfohlen. Hierbei sind zwei unterschiedliche Vorgehensweisen, die stark von der Zielsetzung des Transmutationssystems abhängen, möglich.

Tabelle 6.1: k_{eff} -Werte bei verschiedenen heterogenen Pu-Anreicherungen, TRU-Isotopenvektor: Thorium 2-fach rezykliert (s. Tabelle B.4)

Modell:	Zone 1		Zone 2		Zone 3		k_{eff}	Fehler
	MA at%	Pu at%	MA at%	Pu at%	MA at%	Pu at%		
ma0pu200-ma0pu300-ma0pu300 ¹	0,00	2,00	0,00	3,00	0,00	3,00	0,965	1,79E-03
ma0pu175-ma0pu300-ma0pu300	0,00	1,75	0,00	3,00	0,00	3,00	0,952	1,64E-03
ma0pu150-ma0pu300-ma0pu300	0,00	1,50	0,00	3,00	0,00	3,00	0,947	1,72E-03
ma0pu125-ma0pu300-ma0pu300	0,00	1,25	0,00	3,00	0,00	3,00	0,936	1,69E-03
ma0pu100-ma0pu300-ma0pu300	0,00	1,00	0,00	3,00	0,00	3,00	0,928	1,73E-03
ma0pu175-ma0pu275-ma0pu300	0,00	1,75	0,00	2,75	0,00	3,00	0,933	1,72E-03

Zum einen kann das System auf Plutoniumvernichtung zum anderen auf TRU-Vernichtung optimiert werden. Tabelle 6.1 ist zu entnehmen, daß für ein Optimierungsprozeß unter dem Gesichts-

¹Anmerkung zur Nomenklatur: Heterogenes Flüssigmetall Transmutationssystem mit Brennelementen. Die Anreicherungsangaben sind für jede Brennstoffzone (von innen nach außen) durch einen Bindestrich getrennt. maApuB = TRU-Anreicherung: A/100 at% MA bzw. B/100 at%Pu

punkt der Plutoniumvernichtung ein weites Spektrum an Anreicherungsvariationen möglich und bezüglich des k_{eff} -Wertes noch keine untere Grenze (s. S. 40 in Abschnitt 4) erreicht ist.

Bei der Optimierung des *BE-HFMTS*-Blankets auf die Vernichtung von Transuranen (Plutonium und Minore Actinide) hin, kann neben der Variation der Plutonium-Anreicherung zum Einstellen einer gleichmäßigeren Wärmestromdichte- und Leistungsverteilung auch die absorbierende Wirkung der Minoren Actiniden genutzt werden. Durch den Einsatz von Minoren Actiniden in bestimmten Regionen des Blankets können lokale Leistungsspitzen ausgeglichen werden. Bei den in Tabelle 6.2 zusammengestellten Modellen wurden ausschließlich in der Brennstoffzone 1 Minore Actiniden verwendet. Hierfür gibt es zwei Gründe. Zum einen wird nach der Analyse des Modelles *be-hfmts.ma025pu275* im vorigen Kapitel die Spitzenleistung in dieser Brennstoffzone erreicht. Zum anderen befindet sich in der ersten Brennstoffzone das härteste Neutronenspektrum, sie ist somit für die Transmutation am besten geeignet.

Tabelle 6.2: k_{eff} -Werte bei verschiedenen heterogenen TRU-Anreicherungen, TRU-Isotopenvektor: Thorium 2-fach rezykliert (s. Tabelle B.4)

Modell:	Zone 1		Zone 2		Zone 3		k_{eff}	Fehler
	MA at%	Pu at%	MA at%	Pu at%	MA at%	Pu at%		
ma100pu200-ma0pu300-ma0pu300	1,00	2,00	0,00	3,00	0,00	3,00	0,933	1,34E-03
ma100pu200-ma0pu275-ma0pu300	1,00	2,00	0,00	2,75	0,00	3,00	0,913	1,32E-03
ma050pu250-ma0pu200-ma0pu300	0,50	2,50	0,00	2,00	0,00	3,00	0,897	1,34E-03
ma050pu250-ma0pu250-ma0pu300	0,50	2,50	0,00	2,50	0,00	3,00	0,928	1,25E-03
ma050pu250-ma0pu300-ma0pu300	0,50	2,50	0,00	3,00	0,00	3,00	0,963	1,41E-03

Von den in den Tabellen 6.1 und 6.2 vorgestellten Modellen interessieren vor allem die Modelle zur Vernichtung von Plutonium und Minoren Actiniden. Letztlich beinhalten Untersuchungen dieser Modelle auch die Modelle zur reinen Plutoniumvernichtung. In Tabelle 6.3 sind daher die Peakfaktoren nur für die Modelle zur TRU-Vernichtung zusammengestellt. Außerdem ist die maximale Wärmestromdichte $\dot{q}_{\text{max}}''$, die für ein Brennelementzylinder eines Brennelementes berechnet wurde, enthalten. Modell *ma050pu250-ma0pu300-ma0pu300* weist neben dem höchsten k_{eff} -Wert der betrachteten Modelle auch das ausgeglichene radiale Leistungs- und Wärmestromdichteprofil sowie eine geringe maximale Wärmestromdichte auf. Damit ist dieses von den Modellen mit optimierter Spaltstoffanreicherung am besten für eine abschließende Systembeurteilung geeignet.

Tabelle 6.3: Peakfaktoren für Leistung und Wärmestromdichte, maximale Wärmestromdichte eines Brennstoffzylinders $\dot{q}_{max}''$ bei einer thermischen Blanketleistung von 500 MW, Verschiedene *BE-HFMTS*-Blanketmodelle

Modell:		Zone 1	Zone 2	Zone 3	$\dot{q}_{max}''$
ma100pu200-ma0pu300-ma0pu300	$\dot{Q}_{peak}$	1,99	1,70	1,54	-
	$\dot{q}_{peak}''$	2,13	1,88	1,31	110 W/cm ²
ma100pu200-ma0pu275-ma0pu300	$\dot{Q}_{peak}$	2,44	1,66	1,70	-
	$\dot{q}_{peak}''$	2,48	1,83	1,50	112 W/cm ²
ma050pu250-ma0pu200-ma0pu300	$\dot{Q}_{peak}$	3,26	1,38	1,44	-
	$\dot{q}_{peak}''$	3,22	1,47	1,37	157 W/cm ²
ma050pu250-ma0pu250-ma0pu300	$\dot{Q}_{peak}$	2,38	1,58	1,46	-
	$\dot{q}_{peak}''$	2,35	1,68	1,39	135 W/cm ²
ma050pu250-ma0pu300-ma0pu300	$\dot{Q}_{peak}$	1,83	1,69	1,35	-
	$\dot{q}_{peak}''$	1,90	1,75	1,27	114 W/cm ²

6.1.2 Anpassung der Brennelementgeometrie

Neben der Anpassung der Spaltstoffanreicherung kann auch durch Veränderung der Brennelementgeometrie ein ausgeglicheneres Leistungs- und Wärmestromdichteprofil erreicht werden. Die Untersuchung des Einflusses der Brennelementgeometrie auf die Leistungs- und Wärmestromdichteverteilung basieren auf Modell *be-hfmts.ma025pu275*, das bereits im vorigen Kapitel Gegenstand der Betrachtungen war. Wie aus Tabelle 6.4 hervorgeht, wurden die Anzahl der Brennelementzylinder je Brennelement (Zyl. je BE) und die Dicke der Brennstoffschicht verändert. Bei den Brennelementen mit 6 Brennstoffzylindern á 15 mm Brennstoffdicke wurde

Tabelle 6.4: k_{eff} -Werte bei verschiedenen Brennelementgeometrien, Brennstoff: ma025pu275 in allen Brennelementen, TRU-Isotopenvektor: Thorium 2-fach rezykliert (s. Tabelle B.4)

	Zone 1		Zone 2		Zone 3		k_{eff}	Fehler
Modell:	Zyl.	Dicke	Zyl.	Dicke	Zyl.	Dicke		
ma025pu275	je BE	mm	je BE	mm	je BE	mm		
5-30mm_4-49mm_3-60mm ²	5	30	4	49	3	60	0,926	1,35E-03
6-15mm_6-30mm_6-30mm	6	15	6	30	6	30	0,877	1,30E-03
6-15mm_6-30mm_3-60mm	6	15	6	30	3	60	0,869	1,15E-03
6-15mm_6-30mm_3-68mm	6	15	6	30	3	68	0,899	1,25E-03
6-15mm_6-30mm_2-95mm	6	15	6	30	2	95	0,882	1,20E-03
6-30mm_4-46mm_2-95mm	6	30	4	46	2	95	0,939	1,22E-03
6-30mm_4-49,5mm_2-106mm	6	30	4	49,5	2	106	0,977	1,40E-03

Tabelle 6.5: Peakfaktoren für Leistung und Wärmestromdichte, maximale Wärmestromdichte eines Brennstoffzylinders $\dot{q}_{max}''$ bei einer thermischen Blanketleistung von 500 MW, Verschiedene *BE-HFMTS*-Blanketmodelle, Brennstoff: ma025pu275 in allen Brennelementen

Modell: ma025pu275		Zone 1	Zone 2	Zone 3	$\dot{q}_{max}''$
5-30mm_4-49mm_3-60mm	Q_{peak}	2,58	2,27	1,03	-
	$\dot{q}_{peak}''$	2,04	1,87	1,44	168 W/cm ²
6-15mm_6-30mm_6-30mm	Q_{peak}	2,51	2,28	1,14	-
	$\dot{q}_{peak}''$	2,50	2,26	1,16	122 W/cm ²
6-15mm_6-30mm_3-60mm	Q_{peak}	2,50	2,25	0,99	-
	$\dot{q}_{peak}''$	1,76	1,61	1,55	137 W/cm ²
6-15mm_6-30mm_3-68mm	Q_{peak}	2,19	2,02	1,18	-
	$\dot{q}_{peak}''$	1,54	1,42	1,72	152 W/cm ²
6-15mm_6-30mm_2-95mm	Q_{peak}	2,44	2,19	1,07	-
	$\dot{q}_{peak}''$	1,35	1,22	1,94	212 W/cm ²
6-30mm_4-46mm_2-95mm	Q_{peak}	3,00	1,76	0,97	-
	$\dot{q}_{peak}''$	1,51	1,42	1,62	178 W/cm ²
6-30mm_4-495mm_2-106mm	Q_{peak}	1,97	1,69	1,13	-
	$\dot{q}_{peak}''$	0,90	1,23	1,79	233 W/cm ²

zusätzlich der Kühlmittelspalt von 7,5 auf 20 mm vergrößert. Die Wandstärke der Brennstoffzylinder bleibt unverändert. Neben den Geometriedaten sind in Tabelle 6.4 auch die k_{eff} -Werte der untersuchten Modelle dargestellt.

Aus der Analyse der k_{eff} -Werte (Tabelle 6.4) geht Modell *6-30mm_4-495mm_2-106mm* mit dem höchsten k_{eff} -Wert von 0,977 hervor. Der k_{eff} -Wert der Modelle wird vor allem durch das Brennstoffvolumen bestimmt. So erreicht das Modell mit dem größten Brennstoffvolumen auch den höchsten k_{eff} -Wert. Betrachtet man die Peakfaktoren für dieses Modell in Tabelle 6.5, wird deutlich, daß der hohe k_{eff} -Wert auf Kosten einer ungünstigen Wärmestromdichteverteilung und der höchsten maximalen Wärmestromdichte $\dot{q}_{max}''$ der betrachteten Modelle erreicht wird.

Ein anderer Ansatz wird bei den Modellen *6-15mm_6-30mm_3-60mm* und *6-15mm_6-30mm_3-68mm* verfolgt. Durch Verringerung des Brennstoffvolumens in Brennstoffzone 1 werden die Leistung und Wärmestromdichte abgesenkt und in Relation zum Mittelwert ein ausgeglicheneres Profil erreicht. Als Folge des verringerten Brennstoffvolumens sind bei diesen zwei Modellen auch die k_{eff} -Werte mit 0,869 bzw. 0,899 wesentlich geringer als beim Modell mit dem maximalen Brennstoffvolumen (s. oben). Modell *6-15mm_6-30mm_3-60mm* weist das ausgeglichene Wärmestromdichteprofil und die geringste maximale Wärmestromdichte auf. Die Leistungsverteilung ist dagegen bei Modell *6-30mm_4-495mm_2-106mm* am günstigsten ausgeprägt.

Die Auswahl eines geeigneten Modells für weitere Betrachtungen hängt stark davon ab, wie

²Anmerkung zur Nomenklatur: *BE-HFMTS*-Blanketkonzept ma025pu275: 2,5 at% MA und 2,75 at% Pu; **nz-drmm_nz-drmm_nz-drmm**: Brennelementgeometrie mit **nz** Zylindern je Brennelement á **dr** mm Zylinderdicke

Tabelle 6.6: Eigenschaften des Modells *ma050pu250-ma0pu300-ma0pu300* bei einer thermischen Leistung des Gesamtsystems von 500 MW, TRU-Isotopenvektor: Thorium 2-fach rezykliert (s. Tabelle B.4)

		Zone 1	Zone 2	Zone 3	Gesamt
Brennstoffzylinder		6	12	18	36
Brennstoffvolumen	cm ³	2,915E+06	5,829E+06	8,744E+06	1,75E+07
Thermische Leistung	MW	107,86	198,74	193,66	500,27
Leistung je BE	MW	17,98	16,56	10,76	13,90
Leistungsdichte je BE	MW/m ³	37,01	34,10	22,15	28,61
Wärmestromdichte	W/cm ²	114,23	105,17	62,12	85,16
Neutronenfluß	n/(cm ² · s)	1,94E+15	1,58E+15	9,71E+14	
$f_{\dot{Q},radial,Blanket}$		1,29	1,19	0,77	
$f_{\dot{q}'',radial,Blanket}$		1,34	1,24	0,73	
$f_{max,radial,BE}$		1,16	1,14	1,43	
$f_{axial,BE}$		1,22	1,24	1,22	
$\dot{Q}_{peak}$		1,83	1,69	1,35	
$\dot{q}_{peak}''$		1,90	1,75	1,27	

die Vor- und Nachteile der einzelnen Modelle gewichtet werden. Einerseits ist ein ausgeglichenes Leistungsprofil anzustreben, andererseits kann durch geeignete Führung der Kühlmittelströmung eine gewisse Heterogenität kompensiert werden kann. Im Gegensatz dazu sind die negativen Effekte einer ungleichmäßigen Wärmestromdichteverteilung weniger leicht auszugleichen. Unter Berücksichtigung dieser Randbedingungen gelingt die Optimierung des *BE-HFMTS*-Blankets durch Geometrieangepassung am besten bei Modell *6-15mm_6-30mm_3-60mm*. Es ist allerdings festzuhalten, daß durch Verringerung des Brennstoffvolumens der k_{eff} -Wert deutlich unter 0,9 liegt. Das bedeutet, daß dieses optimierte Blanket nur schwer mit dem TRU-Isotopenvektor, der den bisherigen Untersuchungen zu Grunde lag, betrieben werden kann.

6.1.3 Auswahl eines optimierten Blankets

In diesem Abschnitt werden das Blanketmodell mit optimierter Anreicherung *ma050pu250-ma0pu300-ma0pu300* und das Blanketmodell mit optimierter Geometrie *6-15mm_6-30mm_3-60mm* miteinander verglichen und das geeignetste Modell für eine abschließende Analyse eines Transmutationssystems mit *BE-HFMTS*-Blanket ausgewählt. In den Tabellen 6.6 und 6.7 sind die ausführlichen Ergebnisse für die beiden Modelle bei einer Gesamtleistung von 500 MW_{th} gegenübergestellt.

Der Vergleich der optimierten Modelle mit dem Ausgangsmodell in Abbildung 6.1 und 6.2 zeigt deutlich die verbesserte Wärmestromdichte- und Leistungsverteilung. Während *ma050pu250-ma0pu300-ma0pu300* das ausgeglichene Leistungsprofil hat, kann durch Anpassung der Geometrie das ausgeglichene Wärmestromdichteprofil erreicht werden. Dabei ist jedoch anzumerken, daß die maximale Wärmestromdichte $\dot{q}_{max}''$ eines Brennelementringes bei Modell *6-15mm_6-30mm_3-60mm* ca. 20 % höher als bei *ma050pu250-ma0pu300-ma0pu300* ist. Modell

Tabelle 6.7: Eigenschaften des Modells *6-15mm_6-30mm_3-60mm* bei einer thermischen Leistung des Gesamtsystems von 500 MW, Brennstoff: ma025pu275 in allen Brennelementen, TRU-Isotopenvektor: Thorium 2-fach rezykliert (s. Tabelle B.4)

		Zone 1	Zone 2	Zone 3	Gesamt
Brennstoffzylinder		6	12	18	36
Brennstoffvolumen	cm ³	1,364E+06	5,829E+06	8,163E+06	1,536E+07
Thermische Leistung	MW	107,76	224,24	168,3	500,3
Leistung je BE	MW	17,96	18,69	9,35	13,90
Leistungsdichte je BE	MW/m ³	79,00	38,47	20,62	36,30
Wärmestromdichte	W/cm ²	118,52	125,84	137,53	130,47
Neutronenfluß	n/(cm ² · s)	3,35E+15	1,84E+15	9,66E+14	
$f_{\dot{Q},radial,Blanket}$		1,29	1,34	0,67	
$f_{q'',radial,Blanket}$		0,91	0,96	1,05	
$f_{max,radial,BE}$		1,50	1,35	1,28	
$f_{axial,BE}$		1,29	1,24	1,15	
$\dot{Q}_{peak}$		2,50	2,25	0,99	
q''_{peak}		1,76	1,61	1,55	

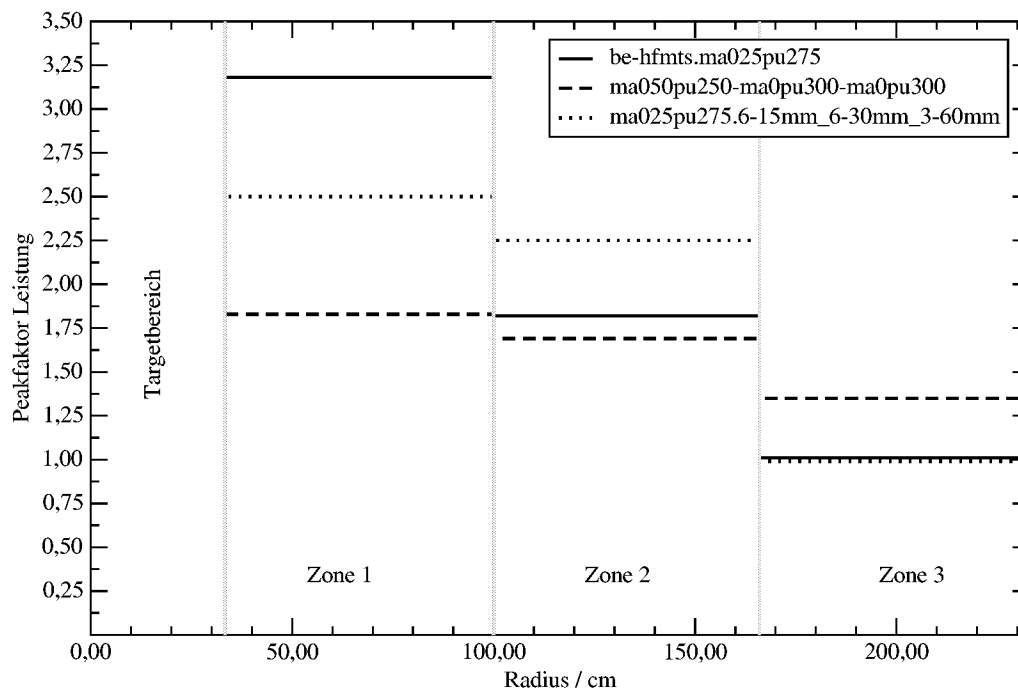


Abbildung 6.1: Peakfaktoren der Leistung der optimierten Blanketmodelle *ma050pu250-ma0pu300-ma0pu300* und *6-15mm_6-30mm_3-60mm* sowie des Ausgangsmodells *be-hfmts.ma025pu275*

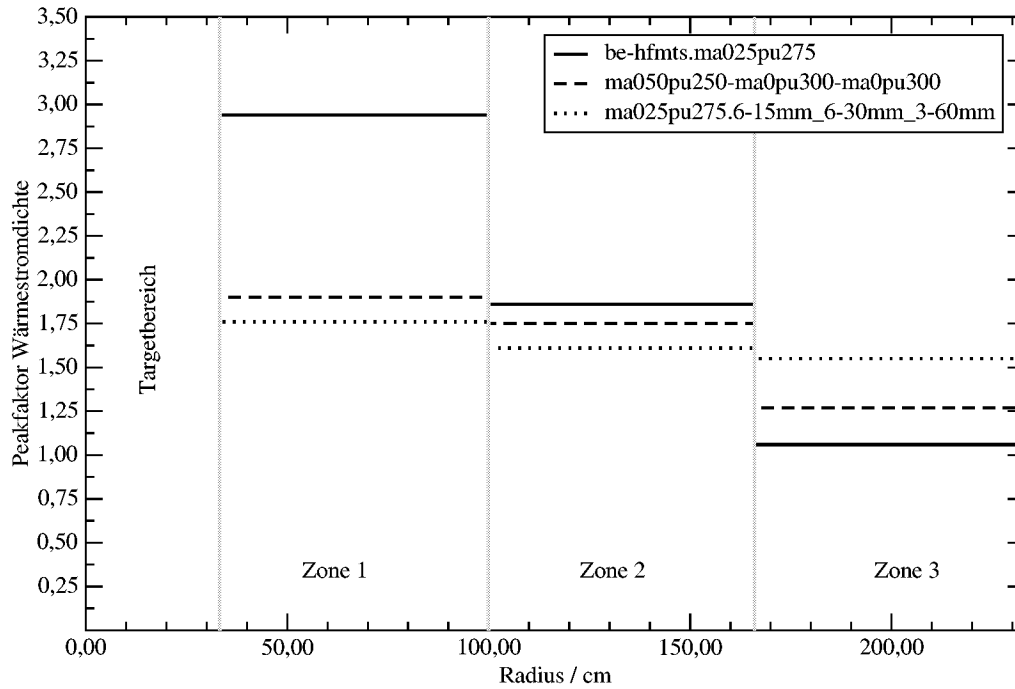


Abbildung 6.2: Peakfaktoren der Wärmestromdichte der optimierten Blanketmodelle *ma050pu250-ma0pu300-ma0pu300* und *6-15mm_6-30mm_3-60mm* sowie des Ausgangsmodells *be-hfmts.ma025pu275*

ma050pu250-ma0pu300-ma0pu300 hat mit $k_{\text{eff}} = 0,96$ einen um 9,4 nile deutlich höheren k_{eff} -Wert als *6-15mm_6-30mm_3-60mm*. Beim Vergleich der k_{eff} -Werte darf aber nicht vernachlässigt werden, daß sich, gemittelt über das gesamte Blanket, unterschiedliche Spaltstoffmengen und Nuklidvektoren für die zwei Modelle ergeben. So ist für das System mit dem höheren k_{eff} -Wert festzustellen, daß ein größeres Brennstoffvolumen und ein günstigeres Verhältnis von MA zu Plutonium vorliegt. Um zumindest dem unterschiedlichen MA-Pu-Verhältnis gerecht zu werden, müsste der Brennstoff von Modell *6-15mm_6-30mm_3-60mm* mit 0,1 at% MA und 2,9 at% Pu angereichert sein. Bei dieser Zusammensetzung ergibt sich dann ein k_{eff} -Wert von 0,914 ($\pm 9,7\text{E-}04$). Damit liegt der k_{eff} -Wert im Vergleich zur bisher betrachteten Anreicherung (*ma025pu275*) ca. 4,5 nile höher (vgl. Tabelle 6.4 auf Seite 99), gegenüber dem Modell mit angepaßter Anreicherung allerdings noch immer 4,9 nile niedriger.

Geht man davon aus, daß man eine heterogene Leistungsverteilung durch konstruktive Maßnahmen ausgleichen kann, so ist Modell *6-15mm_6-30mm_3-60mm* auch wenn es eine höhere maximale Wärmestromdichte als *ma050pu250-ma0pu300-ma0pu300* aufweist, doch hinsichtlich der technischen Umsetzung zu bevorzugen. Das *BE-HFMTS*-Blanketkonzept *6-15mm_6-30mm_3-60mm* hat den großen Vorteil, daß nur ein Brennstoff für das gesamte System verwendet wird. Damit wird die erforderliche Wiederaufarbeitung und Brennstoffherstellung am Ort der Anlage wesentlich vereinfacht bzw. eventuell erst möglich. Außerdem werden Leistung und Wärmestromdichte durch die Brennelementgeometrie dominiert und so kann bei Veränderung des Brennstoffes ein ähnlich ausgeglichenes Leistungs- und Wärmestromdichteprofil wie beim hier betrachteten Konzept erwartet werden.

6.2 Transmutationsanlage mit *BE-HFMTS*-Blanket

Bei der Analyse des *BE-HFMTS*-Blanketkonzeptes *6-15mm_6-30mm_3-60mm* im vorigen Abschnitt ist deutlich geworden, daß wegen des verringerten Brennstoffvolumens mit den bisher betrachteten Brennstoffzusammensetzungen kein ausreichend hoher k_{eff} -Wert erreicht werden kann. Daher steht zu Beginn dieses Abschnittes zunächst die Auswahl einer geeigneten, weiterhin auf den bisher verwendeten Brennstoffvektoren (s. Anhang B.1 Tabelle B.4) beruhenden, Brennstoffkomposition für dieses Blanketmodell. Dabei wird das Verhältnis von Plutonium- zu MA-Nuklidvektor oder auch der einzelnen MA zueinander variiert.

Aus den in Tabelle 6.8 zusammengestellten Ergebnissen geht hervor, das für das Blanketkonzept *6-15mm_6-30mm_3-60mm* im günstigsten Fall bei Anreicherung aller Brennstoffzonen mit den maximal zulässigen 3 at% Plutonium (*ma000pu300*) ein k_{eff} -Wert von 0,949 ($\pm 1,34\text{E-}03$) erreicht werden kann.

Tabelle 6.8: k_{eff} -Werte für das Blanketkonzept *6-15mm_6-30mm_3-60mm* bei verschiedenen TRU-Anreicherungen, TRU-Isotopenvektor: Thorium 2-fach rezykliert (s. Tabelle B.4)

Modell: 6-15mm_6-30mm_3-60mm	Abtrennfaktor			k_{eff}	Fehler
	Np	Am	Cm		
ma000pu300	0	0	0	0,949	1,34E-03
ma000pu275	0	0	0	0,910	1,44E-03
ma025pu275	1	1	1	0,911	1,31E-03
ma025pu275_np0_am0_cm1	0	0	1	0,931	1,33E-03
ma025pu275_np0_am1_cm0	0	1	0	0,864	1,24E-03
ma025pu275_np1_am0_cm0	1	0	0	0,866	1,33E-03
ma000pu295	0	0	0	0,941	1,39E-03
ma005pu295	1	1	1	0,931	1,35E-03
ma005pu295_np0_am0_cm1	0	0	1	0,943	1,43E-03
ma005pu295_np0_am1_cm0	0	1	0	0,929	1,38E-03
ma005pu295_np1_am0_cm0	1	0	0	0,930	1,37E-03
ma0000pu2975	0	0	0	0,943	1,47E-03
ma0025pu2975	1	1	1	0,939	1,28E-03
ma0025pu2975_np0_am0_cm1	0	0	1	0,946	1,36E-03
ma0025pu2975_np0_am1_cm0	0	1	0	0,936	1,39E-03
ma0025pu2975_np1_am0_cm0	1	0	0	0,941	1,26E-03

Bei Verringerung der Plutoniumanreicherung sinkt der k_{eff} -Wert. Wird der verringerte TRU-Anteil durch MA entsprechend des im Anhang beschriebenen MA-Nuklidvektors (s. Anhang B.1, Tabelle B.4) auf 3 at% erhöht, so kann dadurch der ursprüngliche k_{eff} -Wert trotzdem nicht mehr erreicht werden. Dieses Verhalten wurde bereits bei den anderen Blanketkonzepten festgestellt und ist auf verstärkte Absorptionen durch die MA zurückzuführen. Um den Einfluß der MA auf die Reaktivität etwas genauer aufzulösen, wurde unter Annahme der in Tabelle 6.8 angegebenen Abtrennfaktoren der MA-Anteil am Brennstoff verändert.

Am Beispiel der Brennstoffkomposition *ma0025pu2975_np0_am0_cm1* soll kurz die Nomenklatur erläutert werden. Der TRU-Anteil des Brennstoffes setzt sich aus 2,975 at% Plutonium und 0,025 at% Curium zusammen, womit in der Summe die maximale Anreicherung von 3 at% erreicht wird. Der MA-Nuklidvektor besteht in diesem Fall, ausgedrückt über den Abtrennfaktor 1, vollständig aus Curium in der Isotopenzusammensetzung entsprechend der im Anhang enthaltenen Tabelle B.4.

Es wird in allen untersuchten Fällen deutlich, daß bei Zugabe von Curium der k_{eff} -Wert auf dem gleichen Niveau wie beim ausschließlichen Einsatz von Plutonium gehalten oder sogar etwas erhöht werden kann. Im Gegensatz dazu führt die Anreicherung mit Neptunium oder Americium zur Senkung des k_{eff} -Wertes. Hieraus kann die Schlußfolgerung gezogen werden, daß für weiterführende Abbrandberechnungen der Brennstoff neben Plutonium nur noch aus Curium bestehen sollte. Es dürfen hierbei aber nicht die Handhabungsprobleme beim Umgang mit Curium vergessen werden, vor allem wenn man berücksichtigt, daß selbst bei dem in Tabelle 6.8 enthaltenen Fall mit dem geringsten MA-Anteil *ma0025pu2975_np0_am0_cm1* im Blanket eine Curiummasse von 50 kg erreicht würde.

Unter Berücksichtigung eines möglichst hohen k_{eff} -Wertes zu Beginn des Abbrandes und der bereits kurz erwähnten Probleme bei der Handhabung großer Curiummengen wird deshalb für eine abschließende einfache Analyse eines Transmutationssystems mit dem *BE-HFMTS*-Blanket *6-15mm_6-30mm_3-60mm* die Brennstoffkomposition *ma0025pu2975* ausgewählt. Neben den Abbrandeigenschaften sind hierbei auch Überlegungen zur Sicherheit und zu den erforderlichen Leistungsdaten der angeschlossenen Anlagen (Protonenbeschleuniger) erforderlich.

6.2.1 Blanket- und Abbrandeigenschaften

Die energieabhängigen Gruppenflußdichten sowie die Peakfaktoren der Leistung und Wärmestromdichte in den drei Brennstoffzonen dieses Blankets sind in den Abbildungen 6.3 bzw. 6.4 dargestellt. Über den Radius des Blankets lassen sich kaum spektrale Unterschiede beobachten. Die Peakfaktoren der Leistung und Wärmestromdichte der drei Brennstoffzonen verdeutlichen, daß durch die Geometrie der Brennelemente ein ausgeglichenes Leitungs- und Wärmestromdichteprofil erreicht wird, auch wenn im Gegensatz zur Brennstoffkomposition *ma025pu2975* (vgl. Abbildungen 6.1 und 6.2, S. 102f) der Maximalwert der Leistung nun in der zweiten und der Wärmestromdichte in der dritten Brennstoffzone liegen.

Zu Beginn der Untersuchung des Abbrandverhaltens eines Transmutationssystems mit *BE-HFMTS*-Blanket wird unter den gegebenen Rahmenbedingungen bzw. Forderungen:

- Brennstoffzusammensetzung zu Beginn des Abbrandes: *ma0025pu2975*
- Erzeugte thermische Leistung: 500MW_{th}
- Stabiler k_{fs} -Wert über der Zeit
- Maximal zulässige TRU-Anreicherung: 3 at%

ein einfaches Beladeschema entworfen. Die Be- und Entladung könnte in den folgenden Schritten erfolgen:

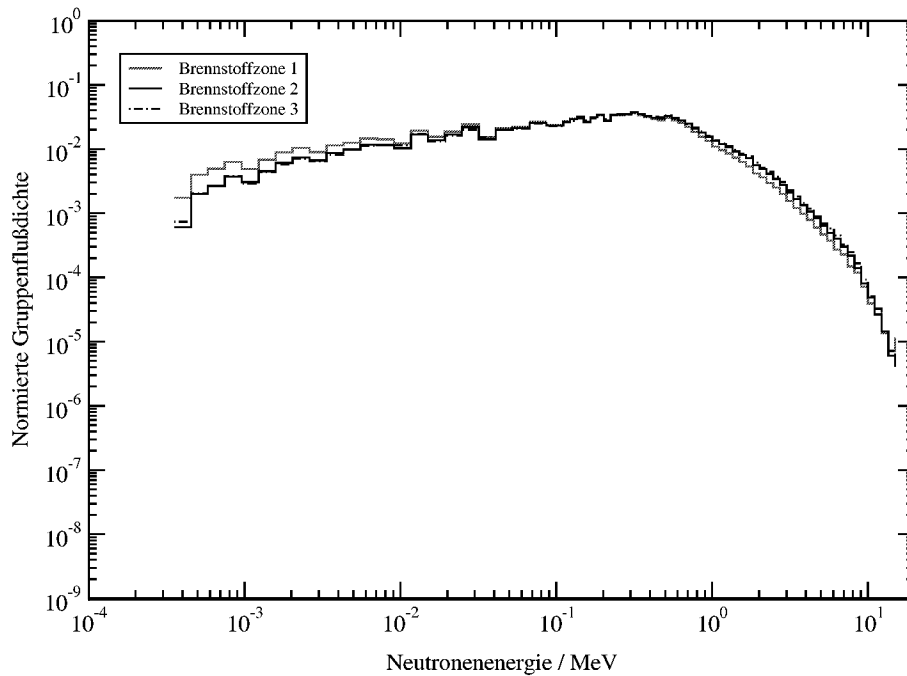


Abbildung 6.3: Normierte energieabhängige Verteilung der Gruppenflußdichte in den drei Brennstoffzonen, Modell 6-15mm_6-30mm_3-60mm, Brennstoffzusammensetzung: *ma0025pu2975*, Leistung des Systems: 500 MW_{th}

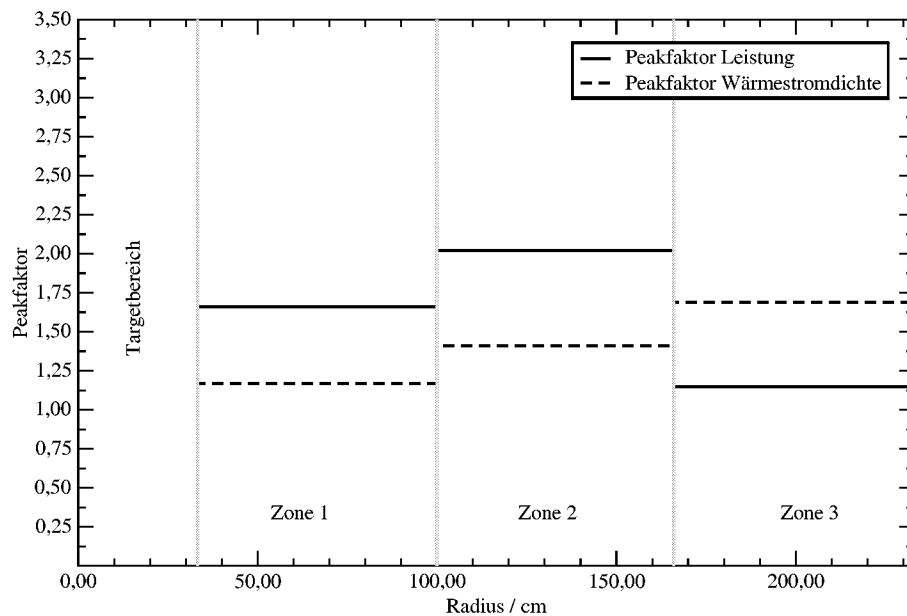


Abbildung 6.4: Peakfaktoren der Leistung und Wärmestromdichte in den drei Brennstoffzonen, Modell 6-15mm_6-30mm_3-60mm, Brennstoffzusammensetzung: *ma0025pu2975*, Leistung des Systems: 500 MW_{th}

1. Entleeren (z.B. durch Abpumpen) der Brennstoffzylinder
2. Wiederaufarbeitung des Brennstoffes:
 - (a) Zusammenführen und Vermischen der Brennstoffe aus den drei Brennstoffzonen
 - (b) Abzug der Spaltprodukte
 - (c) Anreicherung zum Ausgleich des verbrauchten Spaltstoffes
3. Wiederbefüllen der Brennelemente

Bei dieser Vorgehensweise werden die gegebenenfalls durch verschiedene Abbrände in den Brennstoffzonen hervorgerufenen TRU-Anreicherungsunterschiede ausgeglichen, da nach der Wiederaufarbeitung wieder ein homogenes Brennstoffgemisch in die Brennstoffzylinder eingefüllt wird.

Betrachtet man den zeitlichen Verlauf des k_{fs} -Wertes in Abbildung 6.5, wie er sich für die ersten 600 Tage ohne Wiederaufarbeitung entwickelt, so ist ein Abfall des k_{fs} -Wertes von 0,936 ($\pm 4,00E-03$) um 9,4 nile zu beobachten. In der selben Abbildung sind außerdem die k_{fs} -Verläufe für drei Wiederaufarbeitungsvarianten dargestellt.

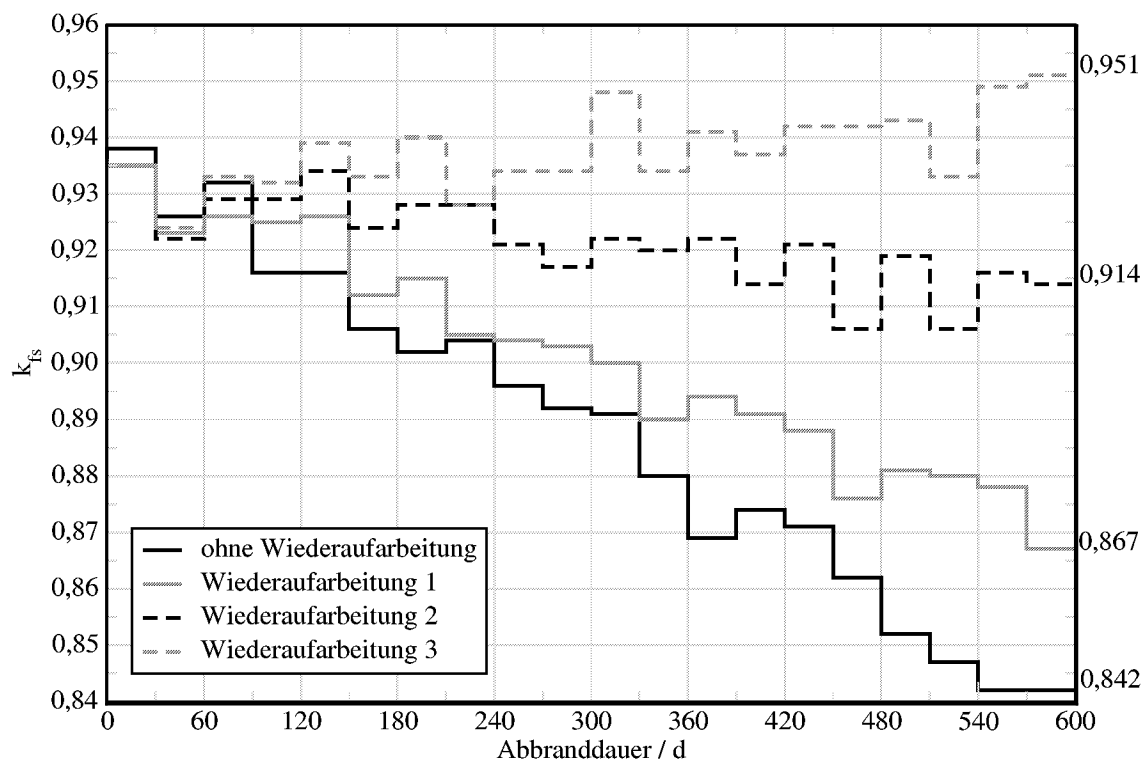


Abbildung 6.5: Zeitlicher Verlauf des k_{fs} -Wertes bei verschiedenen Wiederaufbereitungsvarianten Modell:*BE-HFMTS* Brennstoffzusammensetzung: *ma0025pu2975*, Abbrand: 600 Tage bei 500 MW_{th}, maximaler relativer Fehler der k_{fs} -Werte: 4,00E-03

Die Wiederaufarbeitung kann nach Tabelle 6.9 durch die Länge des Entladeintervalls, den zugeführten TRU-Nuklidvektor und den Abbrandkorrekturfaktor charakterisiert werden. Bei der

Tabelle 6.9: Beschreibung der Wiederaufarbeitungs-Varianten, Beladung mit TRU-Nuklidvektoren entsprechend Tabelle B.4 in Anhang B.1

Variante	Entladeintervall in Tagen	zugeführter TRU-Nuklidvektor	Abbrandkorrektur- faktor
1	60	Pu	1,0
2	60	Pu	3,0
3	60	Pu	4,6

Festlegung des Entladeintervalls sind vor allem zwei Punkte ausschlaggebend. Zum einen kann man davon ausgehen, daß die Be- und Entladung recht zeitaufwendig ist. Daher wird ein kleineres Intervall als das ausgewählte von 60 Tagen als nicht praktikabel angesehen. Für die Länge des Intervalls ist neben der Machbarkeit der Be- und Entladung auch von Bedeutung, wie stark der Protonenbeschleuniger zum Erreichen der gewünschten Leistung nachgeregelt werden muß bzw. kann. Hierauf wird im Anschluß, bei der Betrachtung des Gesamtsystems, noch einmal eingegangen. Die Bedeutung des zugeführten TRU-Nuklidvektors ist eng verbunden mit dem dritten Parameter zur Beschreibung der Wiederaufarbeitung, dem Abbrandkorrekturfaktor, da durch die Zusammensetzung des TRU-Nuklidvektors der Spaltstoffanteil des zugeführten Materials bestimmt ist. Bei allen betrachteten Wiederaufarbeitungsvarianten wird wegen des höheren Spaltstoffanteils ausschließlich der Plutoniumvektor nach Tabelle B.4 in Anhang B.1 verwendet. Der Abbrandkorrekturfaktor ist der Quotient aus der Masse des neu zugefügten TRU-Nuklidvektors und der abgetrennten Spaltproduktmasse. Das bedeutet für die erste Wiederaufarbeitungsvariante, daß der Abbrandkorrekturfaktor 1 dem Ersatz des verbrauchten Spaltmaterials mit Plutonium entspricht. Bei Analyse des zugefügten Plutoniumvektors aus Tabelle B.4 wird deutlich, daß in diesem stark degradierten Brennstoffvektor der Spaltstoffanteil (^{239}Pu und ^{241}Pu) bei ca. 22 % liegt. Soll das verbrauchte Spaltmaterial vollständig durch den Zusatz dieses Plutoniumvektors ersetzt werden, so muß bei der Wiederaufarbeitung dementsprechend das 4,6-fache der abgetrennten Spaltproduktmasse zugeführt werden. Dieser Fall wird mit Wiederaufarbeitungsvariante 4 erfaßt und stellt die obere Abschätzung für die zur Stabilisierung des k_{fs} -Wertes erforderliche Menge an frischem Pu-Nuklidvektor dar. Variante 2 beschreibt einen Zwischenschritt, mit dem untersucht werden soll, ob eventuell durch Brutprozesse Spaltstoff entstanden ist und so nicht die gesamte Menge an Spaltstoff durch die Wiederaufarbeitung nachgeliefert werden muß.

Die Auswertung von Abbildung 6.5 zeigt, daß bei Variante 1 durch den Ersatz des verbrauchten Spaltstoffes mit dem Pu-Nuklidvektor unter Einhaltung der maximal zulässigen TRU-Anreicherung von 3 at% der k_{fs} -Wert gegenüber dem Fall ohne Wiederaufarbeitung weniger stark, aber über dem betrachteten Intervall von 600 Tagen immer noch um 6,8 nile sinkt. Bei Wiederaufarbeitungsvariante 2 sinkt der k_{fs} -Wert auch, allerdings lediglich um 2,1 nile. Es wird deutlich, daß die maximale Abschätzung durch Variante 3 im Verlauf des Abbrandes zu einem steigenden k_{fs} -Wert führt. Das ist wahrscheinlich auf die Erbrütung neuen Spaltstoffes, z.B. durch Neutroneneinfang in ^{240}Pu , zurückzuführen. Zusammenfassend kann festgehalten werden, daß der k_{fs} -Wert zwar bei dem Anfangswert von 0,94 konstant gehalten werden kann, jedoch erst bei einem Abbrandkorrekturfaktor zwischen 3 und 4,6. Solch ein hoher Abbrandkorrekturfaktor

führt aber zu einer TRU-Anreicherung, die wesentlich höher als die maximal zulässigen 3 at% ist. Das bedeutet, daß es mit dem im Rahmen dieser Arbeit verwendeten TRU-Nuklidvektor (s. Tabelle B.4 in Anhang B.1) und dem *BE-HFMTS*-Blanket *6-15mm-6-30mm-3-60mm* nicht gelingt, einen über den Abbrand stabilen k_{fs} -Wert einzustellen.

Auch wenn der TRU-Nuklidvektor nach dieser Betrachtung nicht für den Einsatz in diesem Blanketkonzept geeignet ist, werden, auch um mit den bisher ermittelten Ergebnissen konsistent zu bleiben, keine anderen TRU-Nuklidvektoren auf ihre Eignung untersucht, sondern es wird die Analyse der TRU-Umsatzraten anhand der Wiederaufarbeitungsvariante 2 durchgeführt.

Tabelle 6.10 gibt einen Überblick über die Massenbilanz von MA, Plutonium und den Actiniden. Das MA-Inventar erhöht sich während des 600-tägigen Abbrandzeitraumes von 43 kg auf 168 kg. Während der anschließenden Abklingphase von 3 Jahren steigt die MA-Masse durch radioaktive Zerfallsreaktionen verschiedener Pu-Isotope weiter auf 261 kg. Die Plutoniummasse inklusive der während der Wiederaufarbeitung zugeführten Mengen kann während des Einsatzes in der Transmutationsanlage von 5923 kg auf 5482 kg reduziert werden. Damit wird im Gesamtsystem ein Actiniden-Umsatz, bezogen auf den Abbrand, von -374 kg/GWa erreicht.

Tabelle 6.10: Massenbilanzen *BE-HFMTS*-Blanket *6-15mm-6-30mm-3-60mm* mit Brennstoffkomposition *ma0025pu2975* und Wiederaufarbeitungsvariante 2, zwischen BOB (Begin of Burn), EOB (End of Burn) und EOB^{+3a} (3 Jahre Lagerung nach Entladung), Abbrand: 600 Tage bei 500MW_{th}

	BOB	EOB	FEED	Δm /erzeugte Energie	EOB ^{+3a}	Δm^{+3a} /erzeugte Energie
	kg	kg	kg	kg/GWa	kg	kg/GWa
MA	43	168	0	152	261	265
Pu	5.159	5.482	764	-536	5.380	-661
Actiniden	5.202	5.657	764	-377	5.657	-377

Abschließend sind in Abbildung 6.6 die Umsätze, für einige Isotope aufgelöst, dargestellt. Der Bilanzzeitraum umfaßt die Abbrandzeit des Brennstoffes im Blanket von 600 Tagen sowie eine Zwischenlagerung von 3 Jahren im Anschluß an die Entladung. Aus dieser Darstellung kann man den Aufbau der MA aus Plutonium entnehmen. Die MA-Zunahme wird von den Americium-Isotope ²⁴¹Am und ²⁴³Am, die zum großen Teil durch (n, γ)-Reaktionen von ²⁴⁰Pu bzw. ²⁴²Pu mit anschließendem β^- -Zerfall entstehen, dominiert. Diese beiden Pu-Isotope sind die Hauptbestandteile des zu Beginn des Abbrandes und bei der Wiederaufarbeitung zugeführten Pu-Nuklidvektors (FEED). Von den MA wird nur ²³⁷Np vernichtet.

Aus den in Tabelle 6.10 und Abbildung 6.6 dargestellten Ergebnissen kann man ableiten, daß mit dem *BE-HFMTS*-Blanket *6-15mm-6-30mm-3-60mm* und der Brennstoffkomposition *ma0025-pu2975* Plutonium vernichtet werden kann. Dabei werden aber MA, vor allem ²⁴¹Am und ²⁴³Am aufgebaut. Für weiterführende Betrachtungen wäre es daher von Interesse, nicht das ganze Blanket mit MA und Pu, sondern ein einzelnes Brennelement ausschließlich mit MA zu beladen.

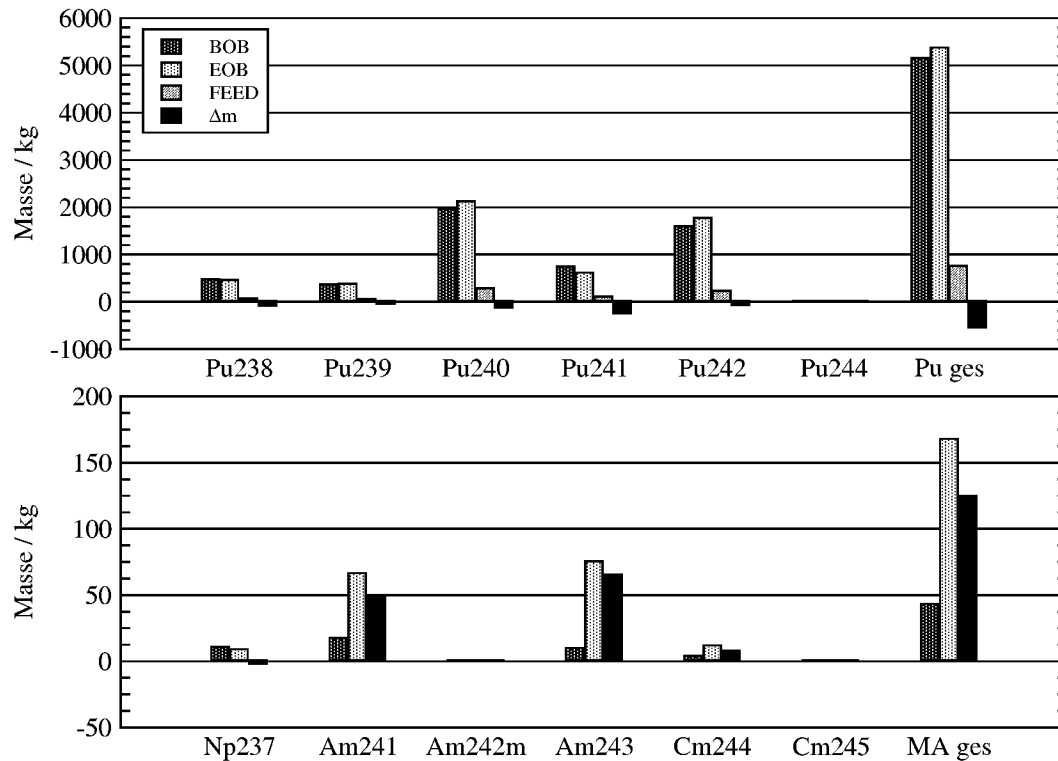


Abbildung 6.6: Absolute TRU-Massenumsätze im *BE-HFMTS*-Blanket *6-15mm-6-30mm-3-60mm* mit Brennstoffkomposition *ma0025pu2975*, Abbrand: 600 Tage bei 500 MW_{th}, Wiederaufarbeitungsvariante 2, anschließend 3 Jahre Lagerung

6.2.2 Gesamtsystem

In Tabelle 6.11 sind die Eigenschaften eines Transmutationssystems mit *BE-HFMTS*-Blanket *6-15mm-6-30mm-3-60mm* zusammengestellt. Der k_{fs} -Wert der Anlage kann mit optimaler Beladestrategie und dem TRU-Nuklidvektor aus Tabelle B.4 bei $k_{fs} = 0,94$ eingestellt werden. Bei dieser Brennstoffkomposition wird allerdings, wie im vorigen Abschnitt dargestellt, die maximal zulässige Anreicherung von 3 at% überschritten. Bei diesem k_{fs} -Wert ist bei einer Beschleunigerspannung von 1,6 GeV ein Protonenstrom von 15,15 mA erforderlich. Prinzipiell kann der k_{fs} -Wert mit jedem beliebigen Entladeintervall konstant gehalten werden, so lange zum Ende der Betrachtungen die insgesamt zugeführte der verbrauchten Spaltstoffmenge entspricht. Die obere Grenze des Entladeintervalls wird lediglich durch die Leistungsfähigkeit des Protonenbeschleunigers gesetzt. Sinkt z.B. der k_{fs} -Wert von 0,94 um 1 nile, ist zum Erhalt der Leistung der Protonenstrom von 15,15 mA auf ca. 17,9 mA zu erhöhen.

Die erzeugte thermische Leistung $P_{th} = 500$ MW kann bei Kühlmittelaustrittstemperaturen um ca. 700 °C (s. Abschnitt 5.1.3) mit einem Wirkungsgrad von mindestens 0,4 in eine elektrische Leistung $P_{el} = 200$ MW umgewandelt werden. Der Eigenbedarf der Anlage für den Protonenbeschleuniger liegt bei einem Beschleunigerwirkungsgrad von $\eta_{acc} = 0,5$ bei ca. 49 MW_{el}. Mit

dem Transmutationssystem könnte unter diesen Voraussetzungen eine elektrische Nettoleistung von 151 MW_{el} erzeugt werden. Das entspricht einem Wirkungsgrad der Anlage von $\eta = 30\%$.

Tabelle 6.11: Eigenschaften eines Transmutationssystems mit einem *BE-HFMTS*-Blanket 6-15mm-6-30mm-3-60mm, Bilanzzeitraum: 600 Tage

Multiplikationswerte		
k _{fs} (Start)		0,94 ± 1,45E-03
Protonenbeschleuniger		
Targetmaterial		Blei
Y (Neutronen/Proton)		34,00
Beschleunigerwirkungsgrad		0,50
Beschleunigerspannung	GeV	1,60
Beschleunigerstrom	mA	15,15
Quellstärke der Spallationsquelle	n/s	3,2E+18
Leistung der Transmutationsanlage		
Wirkungsgrad der Energieumwandlung		0,4
thermische Blanketleistung	MW _{th}	500
Blanketleistung	MW _{el}	200
Leistungsaufnahme Beschleuniger	MW _{el}	49
Nettoleistung	MW _{el}	151
Inventare der Transmutationsanlage (BOB)		
Np	kg	10,80
Pu	kg	5.159,00
Am	kg	28,10
Cm	kg	4,50
TRU-ges	kg	5.202,00
TRU-Konzentration in Pb-Bi	at%	3
Verbrauch der Transmutationsanlage (EOB+3a)		
Np	kg/Gwa	-1,33
Pu	kg/Gwa	-661,00
Am	kg/GWa	257,00
Cm	kg/GWa	8,91
Actiniden	kg/GWa	-377,00

6.2.3 Sicherheitseigenschaften

Bei der Betrachtung der Sicherheitseigenschaften eines Transmutationssystems mit *BE-HFMTS*-Blanket ist zwischen den Anlagenbestandteilen Protonenbeschleuniger und Blanket zu unterscheiden. Sicherheitsfragen des Protonenbeschleunigers werden u.a. in [MM98] und [KGV99] diskutiert und sind nicht Gegenstand dieser Betrachtung.

Weiterführende Sicherheitsanalysen sind nur aufgrund eines detaillierteren Anlagenkonzeptes möglich. Vor allem Reaktivitätskoeffizienten hängen sehr stark von der Brennstoffzusammenset-

zung ab. Deshalb erfolgt eine Beschränkung auf Störfallszenarien, die diesem Blanketkonzept eigen sind. Das sind vor allem folgende Störfallszenarien:

- Ausfall der Kühlung eines Brennelementes
- Ausfall des Kühlmittelumlaufes im Gesamtsystem

Durch die unterstellte Blockade der Kühlkanäle eines Brennelementes kommt es zum Stillstand des Kühlmitteldurchflusses für dieses Brennelement. In den Kühlmittelspalten wird sich eine stehende Kühlmittelsäule einstellen. Geht man für diesen Fall in einer konservativen Annahme davon aus, daß kein Wärmeaustausch mit der Umgebung außerhalb des Brennelementes stattfindet, so gilt für das Brennelement folgende adiabate Zustandsgleichung:

$$0 = -m_{bs} \cdot c_{p,bs} \cdot \frac{dT}{dt} + \dot{q}''' \cdot V_{bs} \quad (6.1)$$

$$\begin{aligned} m_{bs} &= \text{Masse des Brennstoffes} \\ c_{p,bs} &= \text{Wärmekapazität des Brennstoffes} \\ \dot{q}''' &= \text{Leistungsdichte im Brennstoff} \\ V_{bs} &= \text{Brennstoffvolumen} \end{aligned}$$

Für die Änderung der Brennstofftemperatur nach Ausfall der Kühlmittelumwälzung ergibt sich folgende konservative Abschätzung:

$$\frac{dT}{dt} = \frac{\dot{q}''' \cdot V_{bs}}{m_{bs} \cdot c_{p,bs}} = \frac{\dot{q}'''}{\rho_{bs} \cdot c_{p,bs}} \quad (6.2)$$

Bei einer mittleren Leistungsdichte in den Brennelementen mit 15 mm dicken Brennstoffzylindern $\dot{q}''' = 60 \text{ MW/m}^3$ (in Brennelementen mit 30 mm dicken Brennstoffzylindern maximal $\dot{q}''' = 38 \text{ MW/m}^3$), einer Wärmekapazität von ca. $c_{p,bs} = 140 \text{ J/(kg} \cdot \text{K)}$ und einer mittleren Brennstoffdichte von $\rho_{bs} = 9,9 \cdot 10^3 \text{ kg/m}^3$ kann man eine Temperaturtransiente von maximal 43 K/s (27 K/s) erwarten, falls der Brennstoff (das Brennelement) als Wärmespeicher angenommen wird. Geht man von einer mittleren Wandtemperatur $\vartheta_w = 700 \text{ }^\circ\text{C}$ aus, so würde die Schmelztemperatur des Wandmaterials $\vartheta_{s,w} \approx 1200 \text{ }^\circ\text{C}$ nach ca. 12 s (18 s) erreicht. Innerhalb dieser Zeit sind durch eine geeignete Meßtechnik die ausgefallene Kühlung des Brennelementes zu detektieren und entsprechende Gegenmaßnahmen zu ergreifen, um eine Zerstörung des Brennelementes zu vermeiden. Die wichtigste Maßnahme ist das Abschalten des Protonenbeschleunigers. Innerhalb weniger Sekunden ist dann nur noch die Nachwärmeabfuhr aus dem Brennelement zu bewerkstelligen. Sollte ein Versagen der Brennelementstrukturen auftreten, so ist die schwerwiegendste Folge die Kontamination des Kühlmittels infolge der Zerstörung der Strukturmaterialien. Reaktivitätseffekte sind wegen der starken Verdünnung des Brennstoffes im Kühlmittel nicht zu erwarten, ebenso wenig Auswirkungen außerhalb der Anlage. Für das *BE-HFMTS-Blanket 6-15mm-6-30mm-3-60mm* mit der Brennstoffzusammensetzung *ma0025pu2975* wurde der Brennstoff-Temperaturkoeffizient (Doppler-Koeffizient) für das Gesamtsystem Γ_{bs} entsprechend der in Gleichung 6.3 formulierten Rechenvorschrift zu $\Gamma_{bs} = -0,37 \text{ pcm/K}$ bestimmt.

$$\Gamma_{bs} = \frac{1}{T_1 - T_0} \cdot \frac{k_{fs}(T_1) - k_{fs}(T_0)}{k_{fs}(T_1) \cdot k_{fs}(T_0)} \quad (6.3)$$

$$\begin{aligned}
T_0 &= \text{Brennstofftemperatur vor der Temperaturerhöhung} \\
T_1 &= \text{Brennstofftemperatur nach der Temperaturerhöhung} \\
k_{fs}(T_0) &= k_{fs} - \text{Wert vor der Temperaturerhöhung} \\
k_{fs}(T_1) &= k_{fs} - \text{Wert nach der Temperaturerhöhung}
\end{aligned}$$

Dieser negative Rückkopplungskoeffizient bedeutet, daß bei Brennstofftemperaturerhöhung die nukleare Rückkopplung durch den Dopplerkoeffizienten negativ ist und der k_{fs} -Wert kontinuierlich sinken wird. Bei einem kritischen System würde dieser Mechanismus zum selbsttätigen Abschalten des Reaktors führen. Ein ADS wird allerdings weiterhin durch das Spallationstarget mit Spallationsneutronen gespeist und erzeugt eine, infolge der negativen Rückkopplung geringfügig verringerte, nukleare Leistung. Es ist festzustellen, daß der Dopplerkoeffizient mit $-0,37$ pcm/K bei diesem Konzept selbst für ein System mit schnellem Neutronenspektrum sehr klein ist³. Da der Brennstoff ausschließlich aus TRU besteht, sollte zur Verbesserung dieses wichtigen Rückkopplungskoeffizienten bei weiterführenden Untersuchungen der zusätzliche Einsatz von Resonanzabsorbern untersucht werden. Ein weiterer möglicher Störfall, der Ausfall des Kühlmittelumlaufes, kann viele Ursachen haben, wobei das Versagen der Kühlmittelpumpen die wahrscheinlichste ist. Die oben durchgeführte Berechnung für den maximal zu erwartenden Temperaturanstieg im Brennstoff gilt natürlich auch bei Ausfall der Kühlung des Gesamtsystems, wenn auch der Kühlmitteldurchfluß nicht abrupt endet. Vielmehr entsteht ein deutlich verminderter Kühlmitteldurchsatz, der sich auf Naturkonvektionsniveau ausbilden würde. Deshalb hat auch bei diesem Störfallszenario die Abschaltung des Protonenstrahles bei zu ergreifenden Gegenmaßnahmen oberste Priorität.

Sollte das Abschalten des Beschleunigers nicht rechtzeitig erfolgen, ist von einem Versagen der Brennelemente auszugehen. Es ist sehr wahrscheinlich, daß die Brennelemente der Brennstoffzone 2 oder 3 wegen der höheren Peak-Faktoren zuerst versagen. Danach wird der k_{fs} -Wert sehr stark abfallen. In den noch intakten Brennelementen werden unter diesen Umständen nur noch wenige Spaltreaktionen stattfinden. Ob die bis dahin noch intakten Brennelemente unter diesen Bedingungen auch versagen werden, ist nur schwer abzuschätzen und kann nur in einer detaillierten numerischen Analyse ermittelt werden.

Ein großer Vorteil des Kühlmittels und Brennstoffträgermaterials ist die hohe Verdampfungstemperatur von über 1700 °C. Wenn infolge fehlender Wärmeabfuhr die Temperatur steigt, werden zuerst die Strukturmaterialien versagen. Dazu gehört auch die Protonenstrahlröhre und insbesondere das diese abschließende Protonenfenster. Bei Zerstörung des Vakuums in der Beschleunigeröhre wird sich der Protonenstrahl selbsttätig abschalten. Somit sinkt die Anlagenleistung auf Nachwärmenniveau.

Wenn es zum Versagen der Brennelementstrukturen kommt, so werden sich die Brennelementmaterialien und der Brennstoff im Kühlmittel auflösen und die TRU-Konzentration auf ca. $0,8$ at% sinken. Durch die starke Verdünnung des Brennstoffes ist nicht mit negativen Reaktivitätseffekten zu rechnen. Hinweise hierzu sind aus der Analyse der homogenen Blanketkonzepte ableitbar (Abschnitt 4.2.2), da bei keinem der betrachteten Fälle bei dieser geringen Anreicherung ein k_{eff} -Wert größer $0,95$ erreicht wurde.

³Zum Vergleich seien nach [DH76] die Dopplerkoeffizienten für SWR (-4 bis -1 pcm/K), DWR (-4 bis -1 pcm/K), HTGR (-7 pcm/K) und LMFBR ($-0,6$ bis $-2,5$ pcm/K) angegeben.

Ist zu diesem Zeitpunkt der Protonenstrahl noch nicht abgeschaltet worden (durch aktive Maßnahmen oder selbsttätig wegen eines defekten Strahlfensters), wird aber weiterhin kontinuierlich Spaltungsenergie produziert, die wegen der blockierten Wärmeabfuhr bei fehlenden Gegenmaßnahmen zum Versagen der Gesamtanlage führen.

Wird der Beschleuniger nach Versagen der Brennelemente abgeschaltet, so wird sich aufgrund der Nachwärmefreisetzung in dem Brennstoff-Kühlmittel-Gemisch Naturkonvektion einstellen. Unter welchen Randbedingungen die Nachwärme abgeführt werden kann (z.B. über die Gefäßoberfläche mittels Wärmestrahlung und Naturkonvektion), sollte Gegenstand weiterführender Untersuchungen sein. Eine Anforderung an das System sollte sein, daß ein Versagen des Gefäßes bei diesem Störfallszenario auszuschließen ist und das radioaktive Inventar innerhalb der Anlage verbleibt.

6.3 Bewertung des *BE-HFMTS*-Blanketkonzeptes

Das *BE-HFMTS*-Blanketkonzept ist von den untersuchten Blanketkonzepten das vielversprechendste. Das liegt in der Möglichkeit begründet, sowohl die Brennstoffzylinder der Brennelemente geometrisch unterschiedlich zu gestalten als auch verschiedene Brennstoffe zu verwenden.

Bei der Entwicklung eines geeigneten Blanketmodells und der anschließenden Untersuchung des *BE-HFMTS*-Konzeptes wurde als Brennstoff-TRU-Nuklidvektor der durch zweimalige Rezyklierung in einem Thorium-Brennstoffkreislauf entstehende (s. Anhang B.1 insbesondere Tabelle B.4), verwendet.

Mit dem vorgestellten Blanketkonzept ist es bei Einsatz dieses TRU-Nuklidvektors sowohl bei einer homogenen als auch heterogenen Beladung der Brennstoffzonen nicht möglich, netto Minoren Actiniden zu vernichten. Die Verwendung der Minoren Actiniden erfordert wegen deren negativen Einflusses auf die Reaktivität des Gesamtsystems einen mindestens ebenso großen Zusatz an Plutonium. Der Einsatz von Minoren Actiniden in allen Brennelementen einer Brennstoffzone ist unter diesen Bedingungen nicht sinnvoll. Von den eingesetzten Minoren Actiniden wird lediglich ^{237}Np vernichtet. Durch den großen Anteil höherer Plutonium-Isotope werden alle eventuellen MA-Verluste durch Aufbaureaktionen infolge von Neutroneneinfang und/oder dem radioaktiven Zerfall der Plutonium-Isotope überlagert, so daß die MA-Bilanz positiv ist. Es ist hervorzuheben, daß das *BE-HFMTS*-Blanketkonzept aber gut zur Vernichtung der im Thorium-Brennstoffkreislauf anfallenden Plutonium-Isotope geeignet ist, die alternativ endzulagern wären.

Kapitel 7

Zusammenfassung und Ausblick

7.1 Grundlagen

Beim Betrieb kerntechnischer Anlagen zur Stromerzeugung fielen im Jahr 2000 weltweit in 438 Reaktorblöcken ca. 9500 t abgebrannter Brennelemente an, die als hochradioaktiver Abfall entsorgt werden müssen.

An die Entsorgung der hochradioaktiven Abfälle wird die Anforderung gestellt, einen zuverlässigen Abschluß dieser Stoffe vom biologischen Lebensraum der Erde bis zum Erreichen eines tolerierbaren Gefährdungspotentials sicherzustellen. Als akzeptabel wird das Gefährdungspotential des unverbrauchten, angereicherten Brennstoffes angesehen. Dieser Wert ist als Referenz für die natürliche Gefährdung sinnvoll, da eine Erhöhung des Gefährdungspotentials des Brennstoffes durch den Menschen erst mit dem Einsatz im Reaktor erfolgt.

Entsprechend des Umganges mit dem Brennstoff und den hochradioaktiven Abfällen können drei prinzipielle Brennstoffkreislaufkonzepte unterschieden werden:

- Konzept der Direkten Endlagerung (Once Through Fuel Cycle - OTC)
- Konzept der Wiederaufarbeitung (Reprocessing Fuel Cycle - RFC)
- Konzept eines mit Partitioning und Transmutation (P&T) erweiterten Brennstoffkreislaufes (Advanced Fuel Cycle - AFC)

Das Konzept der Direkten Endlagerung sieht den Einsatz des Brennstoffes im Reaktor und danach die Endlagerung der abgebrannten Brennelemente in einer stabilen geologischen Formation vor. Das Gefährdungspotential abgebrannter Brennelemente wird direkt nach der Entladung aus dem Reaktor durch Spaltprodukte und höhere Actiniden (Plutonium, Americium und Curium) bestimmt. Die Spaltprodukte haben in der Regel eine kurze Halbwertszeit und ihr Anteil am Gefährdungspotential ist nach ca. 500 Jahren Lagerzeit im Endlager vernachlässigbar klein. Aufgrund der hohen Halbwertszeiten der Actiniden wird erst nach mehreren hunderttausend Jahren die von unverbrauchtem Brennstoff ausgehende Gefährdung unterschritten. Der Zeitraum bis zum Erreichen eines tolerierbaren Gefährdungspotentials ist unüberschaubar und läßt sich daher nur schwer mit der Zielsetzung vereinbaren, den Einschluß der hochradioaktiven

Abfälle für diese Zeitspanne sicherzustellen, zumal man auf die Stabilität der Wirtsformation angewiesen ist, die nicht zuverlässig vorhergesagt werden kann.

Das Langzeit-Gefährdungspotential der Actiniden kann dadurch vermindert werden, daß die einzulagernde Actinidenmenge so stark reduziert wird, daß das Referenzniveau des unverbrauchten Brennstoffes bereits nach tausend Jahren erreicht wird. Für diesen Zeitraum können technische Barrieren zum sicheren Einschluß der hochradioaktiven Abfälle gefertigt werden.

Bei dem bereits heute praktizierten Verfahren der Wiederaufarbeitung wird das im abgebrannten Brennstoff enthaltene Spaltmaterial abgetrennt und dem Brennstoffkreislauf wieder zugeführt. Das Gefährdungspotential des verbleibenden hochradioaktiven Abfalles ist bereits wesentlich geringer als bei der direkten Endlagerung. Aber da noch Curium- und Americium-Isotope im hochradioaktiven Abfall verbleiben und ein geringer Anteil der Plutonium-Isotope verloren geht, kann das Referenzniveau des unverbrauchten Brennstoffes erst nach über 10.000 Jahren unterschritten werden. Die daraus entstehende Forderung einer höheren Abtrennrates der Plutonium-Isotope sowie nach Abtrennung von Curium und Americium soll mit dem Konzept eines mit P&T erweiterten Brennstoffkreislaufes erfüllt werden.

Während bei Spaltreaktionen in der Regel Nuklide mit einer geringeren Halbwertszeit als die der Ausgangsnuklide entstehen, führt bei nicht spaltbaren, schweren Atomkernen die Umwandlung durch Neutroneneinfang zum Aufbau höherer Nuklide. Dabei können Nuklide mit radiologisch schlechteren Eigenschaften entstehen. Einen wesentlichen Einfluß auf die Umwandlung der Actiniden hat das Neutronenspektrum. In einem System mit schnellem Neutronenspektrum ist das Verhältnis von Absorptionsreaktionen, die zum Aufbau höherer Isotope führen, zu Spaltreaktionen wesentlich günstiger als in thermischen Systemen.

Transmutation kann in einer kritischen Anordnung mit selbsterhaltender Kettenreaktion oder in einer unterkritischen Anordnung mit externer Neutronenquelle stattfinden. Es wurden bereits eine Vielzahl von kritischen und unterkritischen Systemen auf ihre Eignung zur Transmutation untersucht.

7.2 Ergebnisse

Im Rahmen dieser Arbeit wurde ein Konzept für ein unterkritisches Transmutationssystem mit schnellem Neutronenspektrum, Flüssigmetallkühlung und metallischem Flüssigbrennstoff erarbeitet.

Für die Flüssigmetallkühlung und als Träger des Brennstoffes ist das eutektische Gemisch aus Blei und Wismut (56,5 w/o Bi) geeignet. Um für den Betrieb einer Transmutationsanlage bis 3 at% Transurane lösen zu können, ist eine minimale Brennstofftemperatur von 600 °C erforderlich. Die Flüssigmetalle Blei und Wismut sind sehr korrosiv. Die Korrosivität steigt mit der Temperatur. Der Schutz von Strukturmaterialien und Rohrleitungen vor Korrosionsangriff durch das Blei-Wismut-Eutektikum kann mit der Bildung oxidischer Schutzschichten erreicht werden. Die Ergebnisse russischer Wissenschaftler legen für ein Transmutationssystem mit Blei-Wismut-Schmelzen den Einsatz des Stahles EP823 als Strukturmaterial nahe. Durch die Kontrolle des Sauerstoffpotentials in der Schmelze kann eine selbstheilende, oxidische Schutzschicht als Korrosionsschutz etabliert werden.

Bei der Beurteilung der untersuchten Blanketmodelle und Auswahl eines geeigneten Blanketkonzeptes stehen die neutronenphysikalischen Anforderungen an die Modelle im Vordergrund.

Dabei ist vor allem der k_{fs} -Wert des Systems relevant. Er wird nach oben durch die geforderte Unterkritikalität und nach unten durch einen „ökonomisch sinnvollen“ Betrieb der Anlage begrenzt. Damit ist ein k_{fs} -Wert zwischen 0,80 und 0,98 möglich.

Während des Entwurfes und der Untersuchung der Blanketmodelle wird als Brennstoff-TRU-Vektor der Nuklidvektor, der durch zweimalige Rezyklierung in einem Thorium-Brennstoffkreislauf stark degradiert wurde (s. Anhang B.1 insbesondere Tabelle B.4), verwendet. Bei den Abbranduntersuchungen gelten für alle untersuchten Modelle die gleichen Randbedingungen. Mit dem Blanket ist für ein Jahr Abbranddauer eine Leistung von 500 MW_{th} zu erzeugen. Während dieser Zeit erfolgt keine Be- oder Entladung.

Beim Entwurf eines geeigneten Blanketkonzeptes wurde prinzipiell zwischen Blanketkonzepten mit homogener und heterogener Brennstoffanordnung unterschieden. Homogene Blankets mit externer Kühlung zeichnen sich durch eine sehr einfache Gestaltung aus. Sie haben allerdings den Nachteil, daß sich jederzeit große Spaltstoffmengen außerhalb des Blankets befinden und somit viele Komponenten des Kühlkreislaufes radioaktiv belastet werden. Außerdem sind umfangreiche Abschirmeinrichtungen und -maßnahmen erforderlich.

Bei den untersuchten homogenen Blankets mit interner Kühlung sind die Wärmetauscher im Blanket untergebracht. Durch Reflektoren wird ein vor Neutronenstrahlung abgeschirmter Bereich geschaffen, in dem sich die Wärmetauscher befinden. Es wurden drei Materialien (Graphit, Blei und eine B_4C -Eisen-Kombination) auf ihre Eignung als Reflektormaterial untersucht. Von den betrachteten Reflektorkonzepten ist der Graphitreflektor bezüglich der Flußabsenkung zum Schutz der wärmetechnischen Einrichtungen am effektivsten. Der Graphit führt auch zu einer starken Thermalisierung der Neutronen. Vor und hinter dem Graphitreflektor treten daher starke Leistungsspitzen auf.

Alle betrachteten Modelle mit homogenem Blanket können hinsichtlich des erreichbaren k_{eff} - Wertes mit dem stark degradierten Plutonium-Isotopenvektor, der sich nach zweifacher Rezyklierung im Thorium-Brennstoffkreislauf ergibt (s. Abschnitt B.1 im Anhang), im Rahmen der Löslichkeitsgrenzen¹ betrieben werden. Der Zusatz an Minoren Actiniden führt bei allen Systemen zu einer Absenkung der Reaktivität, der durch eine erhöhte Plutonium-Anreicherung entgegengewirkt werden muß. Der Einsatz des Graphitreflektors hat einen positiven Einfluß auf die Reaktivität des Systems. Die untersuchten Modelle mit Graphitreflektor können auch noch mit einer hohen Anreicherung an Minoren Actiniden einen k_{eff} -Wert über 0,90 erreichen.

Bis auf das Modell mit Graphitreflektor weisen alle Modelle ähnliche Abbrandcharakteristika auf. Das ist damit zu begründen, daß Graphitreflektor für das Gesamtsystem zu einem abweichenden Neutronenspektrum führt. Die Thermalisierung der Neutronen durch den Graphitreflektor hat einen positiven Einfluß auf das Abbrandverhalten. Obwohl bei diesem Modell ca. 2-3 mal mehr Minore Actiniden in der Anfangsbeladung vorhanden sind, nimmt das MA-Inventar während des betrachteten Abbrandzeitraumes mit anschließender Lagerung des Brennstoffes nur um ca. 1,6 % zu, während die anderen Modelle ca. 18% MA aufbauen. Das Plutonium-Inventar nimmt bei den homogenen Blanketkonzepten mit interner Kühlung um 4-6 % , das TRU-Gesamtinventar um ca. 4% ab. Die relativen Änderungen der TRU-Massen bei dem homogenen Modell mit externer Kühlung weichen stark von den anderen Modellen ab. Das liegt vor allem daran, daß ein wesentlich kleineres Blanketvolumen vorliegt. Drei Jahre nach der Entladung des Brennstoffes

¹Die maximale TRU-Anreicherung überschreitet in keinem Fall 3 at%.

ist das MA-Inventar um 28 % gestiegen. Die Plutonium-Massen sind um ca. 13%, die TRU-Gesamt-Masse um ca. 10% reduziert.

Die heterogenen Blanket-Modelle sind wesentlich komplizierter aufgebaut als die homogenen. Es wurden zwei verschiedene Modelle erstellt. Das Modell *HFMTS* (Heterogenes Flüssigmetall Transmutationssystem) besteht aus konzentrisch um das Spallationstarget angeordneten ringförmigen Brennelementen. Das zweite heterogene Blanketmodell *BE-HFMTS* (Heterogenes Flüssigmetall Transmutationssystem mit Brennelementen) orientiert sich an dem Core-Design schneller flüssigmetallgekühlter Reaktoren. Es besteht aus hexagonalen Brennelementen, in denen 6 ringförmige Brennstoffzylinder angeordnet sind. Aufgrund der hexagonalen Geometrie der Brennelemente ergeben sich konzentrisch um das Spallationstarget drei Brennstoffzonen mit 6, 12 bzw. 18 Brennelementen je Zone. Die Abbrandeigenschaften der heterogenen Blanketkonzepte unterscheiden sich nicht wesentlich voneinander. Bei allen betrachteten Modellen hat sich nach der dreijährigen Lagerzeit das MA-Inventar um ca. 25% erhöht. Die Pu- und TRU-Gesamt-Inventare werden um ca. 5-8 % bzw. 3-5% verringert.

Von den homogenen Entwürfen ist das Blanket mit externer Kühlung und Graphitreflektor, von den heterogenen Modellen das *BE-HFMTS*-Blanket am besten für die Transmutation geeignet. Stellt man diese beiden Konzepte gegenüber, so geht es um die prinzipielle Wahl zwischen einem homogenen und einem heterogenen Blanketdesign. Das heterogene Brennstoffsystem hat einige wesentliche Vorteile gegenüber dem homogenen:

- Einrichtung und Nutzung thermischer Inseln z.B. zur Umwandlung von Isotopen mit größerem thermischen Absorptionsquerschnitt,
- Bessere Kontrolle und Handhabung bei Be- und Entladung des Brennstoffes durch kleinere Brennstoffvolumina der Brennelemente,
- Trennung von Kühlmittel und Brennstoffträger und dadurch kleineres Umlaufvolumen des Brennstoffes,
- Im Brennstoff lokalisierte Aktivität und dadurch Vermeidung eines Spaltprodukt-Transportes im gesamten Transmutationssystem,
- Möglichkeit der unterschiedlichen Beladung einzelner Sektionen des Transmutationssystems, z.B. Brennelemente nur mit Minoren Actiniden beladen oder radial unterschiedliche TRU-Konzentrationen.

Das heterogene Blanketkonzept *BE-HFMTS* verbindet die positiven Eigenschaften eines Festbrennstoffsystems (z.B. bessere Kontrolle des Brennstoffes und der Reaktivität durch kleine abgeschlossene Brennstoffvolumina) mit denen von Flüssigbrennstoffsystemen (kontinuierliche Be- und Entladung, Spaltproduktabzug) und ist daher weitergehend untersucht worden.

Das *BE-HFMTS*-Blanketkonzept weist bei der Wärmestromdichte- und Leistungsverteilung starke Heterogenitäten auf. Neben dem radialen Wärmestromdichte- und Leistungsprofil gibt es auch Spitzenbelastungen innerhalb der Brennstoffzonen und Brennelemente. Die größten Peakfaktoren für Leistung und Wärmestromdichte wurden für die Brennelemente der Brennstoffzone 1 ermittelt. Sie betragen 3,18 bzw. 2,94 bezogen auf den Brennelement-Mittelwert.

Vergleichende Rechnungen mit unterschiedlichen Anreicherungen haben diesen Wert bestätigt und gezeigt, daß dieser Peakfaktor durch die Geometrie des Brennelementes bestimmt wird. Durch Variation der Anreicherung in den Brennstoffzonen oder Änderung der Brennelementzylindergeometrie ist es möglich, ein radial ausgeglicheneres Wärmestromdichte- und Leistungsprofil gemittelt über das Blanket einzustellen.

Wegen der zu erwartenden besseren technischen Umsetzbarkeit wurde für eine abschließende Analyse eines Transmutationssystems mit *BE-HFMTS*-Blankets im Rahmen dieser Arbeit das Modell mit optimierter Geometrie und gleichmäßiger Anreicherung in allen drei Brennstoffzonen ausgewählt. Die Möglichkeit der Verwendung von thermischen Inseln oder eine heterogene Beladung des Blankets (s.o.) ist in diesem Blanketkonzept natürlich noch immer enthalten.

7.3 Ausblick

Bei den durchgeführten Untersuchungen wurde, auch um die Vergleichbarkeit der Ergebnisse gewährleisten zu können, ausschließlich mit dem TRU-Nuklidvektor aus dem Thoriumkreislauf nach zweimaliger Rezyklierung (s. Abschnitt B.1 im Anhang) gearbeitet. Nachdem gezeigt wurde, daß das *BE-HFMTS*-Konzept mit diesem „schlechten“ Nuklidvektor betrieben werden kann, sollte in weiterführenden Studien der Einsatz verschiedener Brennstoffe untersucht werden. Durch die Brennelementstruktur ist auch die Verwendung von mehreren Brennstoffzusammensetzungen vorstellbar. Dabei ist vor allem die Möglichkeit, einzelne Brennelemente mit Minoren Actiniden zu beladen, von Interesse. Eng verbunden mit der Verwendung verschiedener Brennstoffe ist die Einrichtung von Blanketbereichen mit unterschiedlichem Neutronenspektrum, wie z.B. thermische Inseln. Das *BE-HFMTS*-Blanketkonzept bietet hier eine Vielzahl von Kombinationsmöglichkeiten, deren Wirkung im einzelnen noch zu belegen ist.

Neben den weiterführenden Untersuchungen des Potentials des *BE-HFMTS*-Blankets als Blanket einer Transmutationsanlage aus neutronenphysikalischer Sicht, sollten vor allem auch Betrachtungen zur technischen Umsetzung dieses Konzeptes Gegenstand weiterer Forschungsarbeiten sein. Von besonderem Interesse wäre eine wärmetechnische Auslegung der Brennelemente und Optimierung des Blanketkonzeptes. Eng verbunden mit der Untersuchung der wärmetechnischen Eigenschaften des *BE-HFMTS*-Blankets ist die Analyse möglicher Störfallszenarien und die Folgenabschätzung. Ferner erfordert die abschließende Bewertung dieses Konzeptes auch Untersuchungen zur Befüllung / Entladung der Brennelemente mit besonderem Blick auf die Einhaltung vorgegebener TRU-Konzentrationen.

Es wäre auch das Potential des *BE-HFMTS*-Konzeptes als ein Transmutationssystem in einem AFC-Brennstoffkreislauf in Kombination mit anderen Reaktor- oder Transmutationskonzepten zu untersuchen und der hieraus resultierende Einfluß auf den Nuklidvektor zu bewerten. Des weiteren sind Analysen zur Aufbereitung des flüssigen Brennstoffes mit Blick auf neuere Verfahren der Abtrennung radioaktiver Stoffe in die Betrachtung einzubeziehen.

Anhang A

Berechnungsmodelle und Programme

A.1 Spallationsneutronenquelle

Die Wechselwirkungsprozesse als Folge des Beschusses des Targetmaterials mit hochenergetischen Protonen, können mit dem Programmsystem HERMES erfaßt werden. HERMES (High Energy Radiation Monte Carlo Elaborate System) ist ein im Forschungszentrum Jülich entwickeltes Programmsystem, mit dem durch Einsatz und Koppelung verschiedener Teilchen-Monte Carlo Computerprogramme Teilchentransport und Wechselwirkung dieser Teilchen mit Materie simuliert und gelöst wird. Innerhalb des Programmsystems HERMES werden die Daten der einzelnen Programmodule über einen „Submission File“ allen anderen Programmodulen zur Verfügung und für die Auswertung bereitgestellt.

Das HERMES-Programmsystem umfaßt die folgenden Programme:

- HETC (High Energy Transport Code):
Behandlung hochenergetischer Wechselwirkungen von Hadronen mit Materie. Es wird hierbei das theoretische INCE-Modell („Intra-Nuclear-Cascade-Evaporation“) verwendet. Energiebereich für Neutronen: 15 MeV bis einige GeV. Geladene Teilchen werden von unter 1 MeV bis zu einigen GeV betrachtet.
- EGS4-KFA:
Modell zur Simulation elektromagnetischer Kaskaden oder Schauer. Monte Carlo Berechnung des gekoppelten Transports von Elektronen und Photonen in Materie im Energiebereich bis zu einigen TeV.
- NDEM:
Modell zur Berechnung der Gammaquellen angeregter Restkerne.
- MORSE-CG-KFA:
Modul zur Berechnung des gekoppelten Neutronen-Photonentransportes für den Energiebereich unterhalb 100 MeV. Das Programm basiert zum größten Teil auf MORSE-CG. Es sind jedoch einige Anpassungen an das HERMES-System durchgeführt worden, so daß

z.B. anstelle der “Fixed Point Source“ eine Teilchenquelle nach Ort, Zeit und Energie vom „Submission File“ eingelesen werden kann. Außerdem wurden erweiterte Detektoroptionen implementiert.

Für die Berechnung der Spallationsneutronenquelle wird das Programm HETC verwendet. HETC liefert die Koordinaten der Entstehungsorte der Spallationsneutronen und deren Energie. Wegen des eingeschränkten Funktionsumfangs von MORSE mussten die Untersuchungen des Neutronentransportes im Energiebereich unter 100 MeV im Rahmen dieser Arbeit mit einem alternativen Monte Carlo System, nämlich MCNP (s. Abschnitt A.2) erfolgen.

Die Daten müssen für die weitere Verwendung in MCNP entsprechend aufbereitet werden. Um die für MCNP erforderliche Häufigkeitsfunktion für die Startpunkte der Spallationsneutronen erstellen zu können, wird eine zylinderförmige Anordnung, wie in Bild A.1 dargestellt, in NR Radienintervalle und NZ Z-Intervalle unterteilt. Die Neutronen werden in dieses Gitter und dabei zusätzlich in Abhängigkeit der Neutronenenergie in NE Energieintervalle eingeordnet.

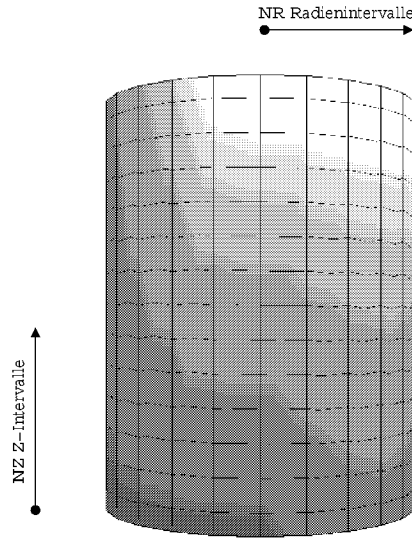


Abbildung A.1: Einteilung der Anordnung in R-Z-Intervalle

Für diese Geometrie werden folgende relative Häufigkeiten berechnet. Die weitere Verwendung dieser Werte und die Beschreibung der Implementierung der Spallationsneutronenquelle in MCNP erfolgt in Abschnitt A.2

1. Relative Häufigkeit der Neutronen in jeder Z-Schicht:

$$H_Z = \frac{\sum_{i=1}^{NR} \sum_{k=1}^{NE} N_{i,Z,k}}{\sum_{i=1}^{NR} \sum_{j=1}^{NZ} \sum_{k=1}^{NE} N_{i,j,k}} \quad (\text{A.1})$$

2. Relative Häufigkeit der Neutronen in jedem (R,Z)-Intervall:

$$H_{R,Z} = \frac{\sum_{k=1}^{NE} N_{R,Z,k}}{\sum_{i=1}^{NR} \sum_{j=1}^{NZ} \sum_{k=1}^{NE} N_{i,j,k}} \quad (\text{A.2})$$

3. Relative Häufigkeit der Neutronenenergie in jedem Energieintervall, für jede Z-Schicht:

$$H_{Z,E} = \frac{\sum_{i=1}^{NR} N_{i,Z,E}}{\sum_{i=1}^{NR} \sum_{k=1}^{NE} N_{i,Z,k}} \quad (\text{A.3})$$

A.2 Kritikalität und Flußverteilung

Für die Berechnung der Kritikalität und der weitergehenden Untersuchung der neutronenphysikalischen Eigenschaften der Blanketmodelle wird das Programm “MCNP - A General Monte Carlo N-Particle Transport Code“ in den Versionen 4B und 4C verwendet [mcn97],[mcn00a].

MCNP ist ein vielfältig einsetzbares Rechenprogramm zur Berechnung von Neutronen, Photonen, Elektronen oder gekoppeltem Neutron/Photon/Elektron-Transport. Es bietet darüber hinaus die Möglichkeit den Eigenwert eines Systems zu berechnen. Der Einsatz der Monte Carlo Methode erlaubt die dreidimensionale Modellierung der zu betrachtenden Geometrie. Die im Rahmen dieser Arbeit erstellten MCNP-Geometriemodelle sind an den entsprechenden Stellen dargestellt.

Bei der Monte Carlo Methode werden statistische Prozesse, wie z.B. die Wechselwirkung von Neutronen mit Materie, theoretisch nachgebildet. Mit der Monte Carlo Methode werden Angaben zu Systemeigenschaften (z.B. Neutronenfluß) durch die wiederholte Simulation des Verhaltens einzelner Partikel erhalten. Bei der Simulation des Teilchentransportes hat die Anwendung der Monte Carlo Methode den Charakter eines theoretischen Experimentes. Dabei werden die Partikel von der Entstehung an einem definierten Ort bis zu ihrem Verschwinden (Verlassen der Geometrie, Absorption etc.) verfolgt. Bei jeder Interaktion des betrachteten Partikels wird anhand einer Zufallszahl und einer durch physikalische Gesetzmäßigkeiten aufgestellten Verteilungsfunktion der Ausgang der Interaktion bestimmt. In Abbildung A.2 sind zur Verdeutlichung der Vorgehensweise, mögliche Wechselwirkungen beim Durchtrittes eines Neutrons durch spaltbares Material zu simulieren, dargestellt.

Um die gewünschten Informationen über das zu untersuchende System zu erhalten, müssen in Monte-Carlo-Programmen Detektoren verwendet werden. In MCNP stehen sieben verschiedenen Neutronen-Detektortypen zum detektieren von:

- Neutronenstrom durch eine Fläche
- Neutronenfluß gemittelt über eine Fläche
- Neutronenfluß gemittelt über ein Volumen
- Neutronenfluß an einem Punkt (semideterministisch)

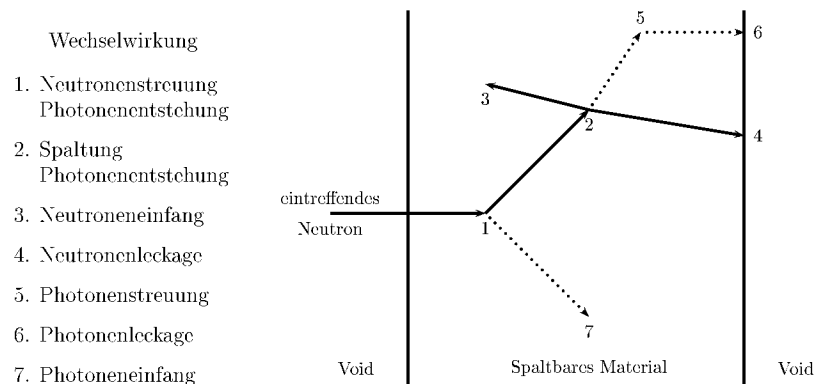


Abbildung A.2: Beispiel für die Wechselwirkung von Neutronen in Materie im Rahmen einer MCNP-Rechnung, nach [mcn00a] Seite 1-3

- Energiedeposition gemittelt über ein Volumen
- Spaltenergiedeposition gemittelt über ein Volumen

zur Verfügung. Aus detektierten Neutronenflüssen Φ kann schließlich jede andere Größe C

$$C = \int \Phi(E) f(E) dE \quad (\text{A.4})$$

berechnet werden. Die Funktion $f(E)$ können dabei z.B. Wirkungsquerschnitts- oder andere Antwortfunktionen sein.

Eine Grundvoraussetzung für die Berechnung eines Transmutationsblankets, ist die Möglichkeit eine Spallationsneutronenquelle einzubinden. In MCNP kann sehr flexibel eine eigene räumliche und energetische Startneutronenverteilung definiert werden. Zur Verwendung der aus den Ergebnissen der HETC-Rechnung erstellen Häufigkeitsverteilungen (s. oben) in MCNP, müssen diese zunächst entsprechend aufbereitet werden. Die relativen Häufigkeiten der Z-Achse wurden normiert und in eine Summenhäufigkeitsfunktion umgewandelt. Mit dieser Funktion wird das axiale Intervall für den Startpunkt des Neutrons ausgewählt. Die relativen Häufigkeitsfunktionen für die radiale Position und die Energieverteilung der Startneutronen in jedem Z-Intervall wurden ebenfalls normiert und in Summenhäufigkeitsfunktionen umgewandelt.

Bei der Bestimmung der Starteigenschaften der Neutronen wird in MCNP entsprechend der eingebundenen Summenhäufigkeitsfunktionen wie folgt vorgegangen:

1. Bestimmung des Z-Intervalls.
2. In Abhängigkeit vom Z-Intervall: Bestimmung des radialen Intervalls. Durch eine Zufallszahl wird der genaue Startpunkt innerhalb des Intervalles ermittelt.
3. Die Neutronen werden isotrop verteilt gestartet.
4. Bestimmung des Neutronenenergieintervalls entsprechend der Summenhäufigkeitsfunktion. Die genaue Neutronenenergie innerhalb des Energieintervalles wird wiederum durch eine Zufallszahl bestimmt.

A.3 Abbrandberechnung

Die Abbrandberechnung erfolgt mit dem Programm ORIGEN2 [RSI91], [Gro80]. ORIGEN2 führt Abbrandberechnungen unter Verwendung der Matrix Exponential Methode durch. Das Programm berücksichtigt den zeitabhängigen Aufbau, die Zerstörung und den Zerfall von Nukliden. ORIGEN2 erfordert als Eingaben:

- Eingangskonzentrationen und absolute Massenangaben
- 1-Gruppen mikroskopische Wirkungsquerschnitte für jedes Nuklid
- Länge der Abbrandschritte
- Neutronenfluß oder Leistung

Für die Berechnung zeitabhängiger Abbrandvorgänge ist es erforderlich, die Wirkungsquerschnitte in Abhängigkeit von der Veränderung der Nukliddichten anzupassen.

Dieser Vorgang wird von dem Programm Monteburns [PT99] durchgeführt. Monteburns verbindet das Monte-Carlo Teilchentransport-Programm MCNP mit dem Programm für radioaktiven Zerfall und Abbrand ORIGEN2.

Die wesentliche Vorgehensweise bei der Koppelung von MCNP und ORIGEN2 durch Monteburns besteht darin, daß MCNP Eingruppen-Wirkungsquerschnitte und den Neutronenfluß für ORIGEN2 bereitstellt. Nach Abschluß eines Abbrandschrittes werden entsprechende Daten zur Auswertung erstellt und die Isotopenzusammensetzung, die man aus ORIGEN2 erhält, wird zur Erstellung einer neuen MCNP-Eingabedatei benutzt.

Anhang B

Parameter

B.1 TRU-Isotopenvektor

Neben einem TRU-Isotopenvektor, der durch den Abbrand von UO_2 -Brennstoff mit 47,5 GWd/(t SM) entsteht (s. Tabelle B.1), wird in dieser Arbeit ein TRU-Isotopenvektor aus der Arbeit von I. Neuhaus [Neu00], der im Rahmen eines Forschungsprogramms der Europäischen Union Einsatzmöglichkeiten von Thorium im Brennstoffkreislauf untersucht, benutzt. Dieser TRU-Isotopenvektor entsteht durch folgende Abbrandhistorie:

- Abbrand 1:
Einsatz von normalem DWR-Brennstoff in einem DWR mit einem Abbrand von 47,5 GWd/(t SM). Dem Abbrand schließt sich eine Abklingzeit von 7 Jahren an (Der TRU-Isotopenvektor nach der Abklingzeit ist in Tabelle B.1 aufgeführt). Danach werden Plutonium- und MA-Fractionen aus dem abgebrannten DWR-Brennstoff abgetrennt und das Plutonium mit Thorium zu Th-Pu(1. Rezyklierung)-MOX-Brennstoff verarbeitet.
- Abbrand 2:
Nach der *1. Rezyklierung* wird der Th-Pu(1. Rezyklierung)-Brennstoff in einem DWR mit 60 GWd/(t SM) abgebrannt. Nach 7 Jahren Abklingzeit werden in der *2. Rezyklierung* wiederum die Plutonium- und MA-Fractionen aus dem abgebrannten Brennstoff abgetrennt (Der TRU-Isotopenvektor nach der Abklingzeit ist in Tabelle B.2 zusammengestellt). Aus dem Plutonium der *2. Rezyklierung* und Thorium wird Th-Pu(2-Rezyklierung)-Brennstoff hergestellt.
- Abbrand 3:
Im abschließenden 3. Abbrandschritt werden Th-Pu(2. Rezyklierung)-Brennelemente und U-Pu(1.Rezyklierung)-Brennelemente in einem DWR mit 60 GWd/(t SM) abgebrannt (s. Tabelle B.3).

Der TRU-Isotopenvektor in Tabelle B.4 ergibt sich unter Berücksichtigung der Massenbilanzen aus den Minoren Actiniden, die nach jedem Abbrandschritt aus dem Brennstoff abgetrennt wurden, und den Plutonium-Isotopen, die nach dem abschließenden Abbrandschritt aus dem Brennstoff abgetrennt wurden. Dieser TRU-Isotopenvektor ist insofern interessant, als daß er

bereits M.Piontek [Pio00] untersucht, inwieweit man mit diesem Vektor in einem thermischen Transmutationssystem arbeiten kann.

Tabelle B.1: TRU-Isotopenvektor DWR-Brennstoff 47,5 GWd UO₂-Abbrand, 7 Jahre Abklingzeit, getrennt nach MA und Plutonium dargestellt. Der TRU-Vektor setzt sich zusammen aus 11,64 % MA und 88,36 % Pu [Neu00].

Isotop	Atom %	Isotop	Atom %
²³⁷ Np	46,37	²³⁸ Pu	2,57
²⁴¹ Am	36,28	²³⁹ Pu	51,60
^{242m} Am	0,07	²⁴⁰ Pu	26,83
²⁴³ Am	13,03	²⁴¹ Pu	10,83
²⁴³ Cm	0,03	²⁴² Pu	8,17
²⁴⁴ Cm	3,95	Pu Gesamt	100,00
²⁴⁵ Cm	0,23		
²⁴⁶ Cm	0,04		
MA Gesamt	100,00		

Tabelle B.2: TRU-Isotopenvektor Thorium 1.Rezyklierung, 60 GWd Schwermetallabbrand, 7 Jahre Abklingzeit, getrennt nach MA und Pu dargestellt. Der TRU-Vektor setzt sich zusammen aus 11,26 at% MA und 88,74 at% Pu [Neu00].

Isotop	Atom %	Isotop	Atom %
²³⁷ Np	0,56	²³⁸ Pu	6,96
²⁴¹ Am	54,01	²³⁹ Pu	21,44
^{242m} Am	0,80	²⁴⁰ Pu	37,80
²⁴³ Am	29,66	²⁴¹ Pu	14,38
²⁴³ Cm	0,18	²⁴² Pu	19,42
²⁴⁴ Cm	12,73	Pu Gesamt	100,00
²⁴⁵ Cm	1,92		
²⁴⁶ Cm	0,14		
MA Gesamt	100,00		

Tabelle B.3: TRU-Isotopenvektor Thorium nach 2. Rezyklierung, 60 MWd Schwermetallabbrand, 7 Jahre Abklingzeit, getrennt nach MA und Pu dargestellt. Der TRU-Vektor setzt sich zusammen aus 12,59 at% MA und 87,41 at% Pu. [Neu00].

Isotop	Atom %	Isotop	Atom %
²³⁷ Np	0,93	²³⁸ Pu	9,50
²⁴¹ Am	48,94	²³⁹ Pu	7,23
²⁴³ Am	34,18	²⁴⁰ Pu	38,16
²⁴³ Cm	0,20	²⁴¹ Pu	14,43
²⁴⁴ Cm	13,05	²⁴² Pu	30,67
²⁴⁵ Cm	1,83	Pu Gesamt	100,00
²⁴⁶ Cm	0,14		
MA Gesamt	100,00		

Tabelle B.4: TRU-Isotopenvektor Thorium nach 2. Rezyklierung, 60 MWd Schwermetallabbrand, 7 Jahre Abklingzeit, getrennt nach MA und Pu dargestellt. Der TRU-Vektor setzt sich zusammen aus 38,17 at% MA und 61,83 at% Pu. Der MA-Anteil ist eine Akkumulation aller MA des UO₂-Abbrandschrittes sowie der bei 1. und 2. Rezyklierung anfallenden MA [Neu00].

Isotop	Atom %	Isotop	Atom %
²³⁷ Np	25,34	²³⁸ Pu	9,50
²⁴¹ Am	40,84	²³⁹ Pu	7,23
^{242m} Am	0,43	²⁴⁰ Pu	38,16
²⁴³ Am	23,19	²⁴¹ Pu	14,43
²⁴³ Cm	0,11	²⁴² Pu	30,67
²⁴⁴ Cm	8,91	Pu Gesamt	100,00
²⁴⁵ Cm	1,09		
²⁴⁶ Cm	0,09		
MA Gesamt	100,00		

B.2 Wirkungsquerschnitte

B.2.1 MCNP

In MCNP wird für Neutronenreaktionen eine große Vielfalt an Wirkungsquerschnittsdaten im Energiebereich von 10^{-11} - 20 MeV bereitgestellt [mcn00b]. Es werden

- kontinuierliche,
- diskrete und
- thermische Wirkungsquerschnitte sowie
- Dosimetriedaten und
- Mehrgruppenquerschnitte

angeboten, die auf den ENDF/B-V oder ENDF/B-VI Wirkungsquerschnitt-Bibliotheken basieren.

Da aber nicht für alle in dieser Arbeit relevanten Isotope auch bei jeder Temperatur Daten vorliegen, wurde in diesen Fällen mit dem Programmsystem NJOY [MD94] Wirkungsquerschnitte für MCNP erstellt. Das NJOY „Nuclear Data Processing System“ ist ein modulares Computerprogramm, um bewertete nukleare Daten im ENDF-Format (wie z.B. in den Wirkungsquerschnitts-Bibliotheken: JENDL in Japan, JEF in Europa, BROND in Rußland oder ENDF/B-VI in den U.S.A.) einzulesen und in einer Weise umzuwandeln, so daß sie in verschiedenen nuklearen Anwendungsprogrammen wie z.B. MCNP verwendet werden können. Im Rahmen dieser Arbeit wurden folgende Wirkungsquerschnitts-Bibliotheken benutzt:

- JENDL3.2:
Die japanische Wirkungsquerschnitt-Bibliothek wurde für das ^{244}Am -Isotop, die Blei- und die Mangan-Isotope verwendet.
- JEFF2.2:
Daten dieser Bibliothek wurden für Kohlenstoff- und Chrom-Isotope genutzt.
- ENDF/B-VI:
Für alle anderen verwendeten Elemente und Isotope basieren die für MCNP erstellten Wirkungsquerschnitte auf dieser Wirkungsquerschnitts-Bibliothek.

B.2.2 HERMES

Für die Berechnung der Kaskadenreaktionen werden in HETC Nukleon-Nukleon-Wirkungsquerschnitte für elastische und inelastische Streuung, der Pion-Nukleon-elastische Wirkungsquerschnitt, der Ladungsaustausch- und Pionenproduktionquerschnitt benötigt. Nach [Fil92] sind diese Daten zum größten Teil als experimentelle Werte ausreichend gut bekannt. In den Berechnungen werden die im Programmsystem HERMES bereitgestellten Bibliotheken verwendet.

B.2.3 ORIGEN2

Für die Berechnung der Abbrandreaktionen wird in ORIGEN2 zwischen den Nuklidgruppen:

- Aktivierungsprodukte,
- Actiniden und

- Spaltprodukte

unterschieden. Für jede dieser Gruppen werden drei verschiedene Bibliotheken angeboten:

- Daten des radioaktiven Zerfalls
- Wirkungsquerschnitte und Spaltprodukt-Yield
- Photon-Daten

Zu Beginn der Abbrandrechnung wird die in ORIGEN2 enthaltene Bibliothek für schnelle Flüssigmetallreaktoren (LMFBR) verwendet. Von MCNP können mit Monteburns die mikroskopischen Wirkungsquerschnitte für (n, γ) -, $(n, fiss)$ -, $(n, 2n)$ -, $(n, 3n)$ -, (n, α) und (n, p) -Reaktionen an ORIGEN2 übergeben werden.

Anhang C

Abkürzungen und Formelzeichen

C.1 Abkürzungen

AFC	Advanced Fuel Cycle
Am	Element Americium
Bi	Element Wismut
BE-HFMTS	Heterogenes Flüssigmetall Transmutationssystem mit Brennelementen
BOB	Begin of Burn
Cm	Element Curium
Cs	Element Cäsium
EOB	End of Burn
HAW	Hochradiaktiver Abfall
HFMTS	Heterogenes Flüssigmetall Transmutationssystem
I	Element Jod
MA	Minore Actiniden (Np,Am,Cm)
MOX	Mischoxidbrennstoff
Np	Element Neptunium
OTC	Once Through Fuel Cycle
P&T	Partitioning und Transmutation
Pu	Element Plutonium
Pb	Element Blei
RFC	Reprocessing Fuel Cycle
SNQ	Spallationneutronen Quelle
TRU	Transuranelemente (Np, Pu, Am, Cm)
Tc	Element Technetium
U	Element Uran

C.2 Formelzeichen

Formelzeichen	Einheit	Benennung
A	-	Massenzahl
α	-	Neutroneneinfang / Spaltwirkungsquerschnitt
α	1/K	Wärmeausdehnungskoeffizient
α	$W/(m^2 \cdot K)$	Wärmeübergangskoeffizient
c_p	$J/(kg \cdot K)$	spez. Wärmekapazität
E	N/mm^2	Elastizitätsmodul
E_p	GeV	Protonenenergie
ε	%	Dehnung
Φ	$n/(cm^2 \cdot s)$	Neutronenfluß
Γ	pcm/K	Temperaturkoeffizient
I	A	Protonenstrom
k_{eff}	-	Multiplikationsfaktor, Eigenwert
k_{fs}	-	Multiplikationsfaktor, mit externer Neutronenquelle
L	cm	Länge
λ	$W/(m \cdot K)$	Wärmeleitfähigkeit
M	kg	Transmutationsinventar
M	-	Multiplikationswert
$\dot{m}$	kg/s	Massenstrom
n_{fiss}	-	Zahl der Spaltneutronen
n_{spall}	-	Zahl der Spallationsneutronen
n_{tot}	-	Gesamtzahl der Neutronen
η	$kg/(m \cdot s)$	dynamische Viskosität
ν	-	Querkontraktionszahl
P_{th}	MW	Thermische Leistung
$\dot{Q}$	W	Wärmestrom
$\dot{q}'''$	MW/m^3	Leistungsdichte
r	cm	Radius
ρ	kg/m^3	Dichte
S_M	at%	Löslichkeit
σ	N/mm^2	Spannung
σ_f	barn	mikroskopischer Spalt-Wirkungsquerschnitt
σ_γ	barn	mikroskopischer Neutroneneinfang-Wirkungsquerschnitt
$\tau_{\frac{1}{2}}$	Jahre, Minuten, Sekunden	Halbwertszeit
T	$kg \cdot s^{-1}$	Transmutationsrate
ϑ_{Siede}	°C	Siedetemperatur
T	K	Temperatur
v	m/s	Geschwindigkeit
V	m^3	Volumen
$y(E_p)$	Neutron/Proton	effektive Neutronenausbeute

Abbildungsverzeichnis

1.1	Klassifizierung radioaktiver Abfälle in Deutschland [Phl97]	1
1.2	Gefährdungspotential abgebrannten UO_2 -Brennstoffs im OTC-Brennstoffkreislauf, 47,5 GWd/t SM Abbrand im DWR, 10 Jahre Abklingzeit, Dosiskoeffizienten für Ingestion nach ICRP 68 [ICR94]	2
1.3	Multibarrierenkonzept bei der Endlagerung radioaktiver Abfälle [Neu00]	3
1.4	Brennstoffkreislaufkonzept der Direkten Endlagerung	6
1.5	Gefährdungspotential einzelner Elemente abgebrannten UO_2 -Brennstoffs im OTC-Brennstoffkreislauf, 47,5 GWd/t SM Abbrand im DWR, 10 Jahre Abklingzeit, Dosiskoeffizienten für Ingestion nach ICRP 68 [ICR94]	7
1.6	Brennstoffkreislaufkonzept der Wiederaufarbeitung	8
1.7	Gefährdungspotential einzelner Elemente abgebrannten UO_2 -Brennstoffs im RFC-Brennstoffkreislauf, 47,5 GWd/t SM Abbrand im DWR, Abtrennung nach 10 Jahren Abklingzeit, Dosiskoeffizienten für Ingestion nach ICRP 68 [ICR94]	9
1.8	Brennstoffkreislaufkonzept mit P & T	10
1.9	Gefährdungspotential einzelner Elemente abgebrannten UO_2 -Brennstoffs im AFC-Brennstoffkreislauf, 47,5 GWd/t SM Abbrand im DWR, Abtrennung nach 10 Jahren Abklingzeit, Dosiskoeffizienten für Ingestion nach ICRP 68 [ICR94]	11
1.10	Gefährdungspotential abgebrannten UO_2 -Brennstoffs mit einem Abbrand im DWR von 47,5 GWd/t SM in verschiedenen Brennstoffkreislaufkonzepten, 10 Jahre Abklingzeit. Dosiskoeffizienten für Ingestion nach ICRP 68 [ICR94] Für die Abtrennverluste im RFC und AFC gelten die oben gemachten Angaben.	12
2.1	Aufbaupfade höherer Actiniden ausgehend von ^{238}U	15
2.2	Schematische Darstellung einer beschleunigergetriebenen, unterkritischen Transmutationsanlage (ADS)	19
2.3	ITEP-Konzept eines Transmutationssystems mit schnellem und thermischem Neutronenspektrum [SMK ⁺ 97]	20
2.4	ATW-Salzschmelzenkonzept [BVW ⁺ 97]	21
2.5	JAERI Salzschmelzenkonzept [Tak97]	23

3.1	Löslichkeiten verschiedener Metalle in Blei und Wismut bei $T=873$ K. Ausschnitt aus [Gum90]	31
3.2	Temperaturabhängige Löslichkeit von Plutonium in Wismut [Gme70b]	32
3.3	Löslichkeiten von Metallen in Quecksilber bei $T = 298$ K [Gum89].	32
4.1	Übersicht über die betrachteten Blanketdesigns	39
4.2	Vergleich der Energiespektren der Spallationsneutronen in unterschiedlichen Z-Schichten.	42
4.3	Axiale und radiale Verteilung der Spallationsneutronen. Die Energie der auftreffenden Protonen beträgt 1,6 GeV. Der Auftreffpunkt des Protonenstrahls liegt bei (0,0,180)cm	43
4.4	MCNP-Modell des Blankets mit homogener Brennstoffanordnung und externer Kühlung	44
4.5	Normierte energieabhängige Verteilung der Gruppenflußdichte an verschiedenen Positionen im Blanket, Modell <i>mod4.ext-fmts.ma025pu250</i>	46
4.6	Radialer Verlauf der Leistungsdichte (oben) und des Neutronenflusses (unten) im Brennstoff, Modell <i>mod4.ext-fmts.ma025pu250</i> , Neutronenquellstärke = 10^{18} n/s	47
4.7	Zeitlicher Verlauf des k_{fs} -Wertes (oben) und des Neutronenflusses (unten) im Brennstoff, Modell <i>mod4.ext-fmts.ma025pu250</i> , Abbrand: 360 Tage bei 500 MW _{th}	48
4.8	Absolute TRU-Massenumsätze, Modell <i>mod4.ext-fmts.ma025pu250</i> , Abbrand: 360 Tage bei 500 MW _{th} anschließend 3 Jahre Lagerung	48
4.9	MCNP-Modell des Blankets mit homogener Brennstoffanordnung und interner Kühlung	49
4.10	Normierte energieabhängige Verteilung der Gruppenflußdichte an verschiedenen Positionen im Blanket, Modell <i>mod4-5.int-fmts.ma050pu200</i>	53
4.11	Radialer Verlauf des Neutronenflusses, Modell <i>mod4-5.int-fmts.ma050pu200</i> , Neutronenquellstärke = 10^{18} n/s	54
4.12	Zeitlicher Verlauf des k_{fs} -Wertes (oben) und des Neutronenflusses (unten) im Brennstoff, Modell <i>mod4-5.int-fmts.ma050pu200</i> , Abbrand: 360 Tage bei 500 MW _{th}	55
4.13	TRU-Massenumsätze, Modell <i>mod4-5.int-fmts.ma050pu200</i> , Abbrand: 360 Tage bei 500 MW _{th} anschließend 3 Jahre Lagerung	55
4.14	Normierte energieabhängige Verteilung der Gruppenflußdichte an verschiedenen Positionen im Blanket, Modell <i>mod4-7.int-fmts.ma025pu225</i>	57
4.16	Zeitlicher Verlauf des k_{fs} -Wertes (oben) und des Neutronenflusses (unten) im Blanket, Modell <i>mod4-7.int-fmts.ma025pu225</i> , Abbrand: 360 Tage bei 500 MW _{th}	57
4.15	Radialer Verlauf des Neutronenflusses und der Leistungsdichte, Modell <i>mod4-7.int-fmts.ma025pu225</i> , Neutronenquellstärke = 10^{18} n/s	58
4.17	Absolute TRU-Massenumsätze, Modell <i>mod4-7.int-fmts.ma025pu225</i> , Abbrand: 360 Tage bei 500 MW _{th} anschließend 3 Jahre Lagerung	58

4.18	Normierte energieabhängige Verteilung der Gruppenflußdichte an verschiedenen Positionen im Blanket, Modell <i>mod4-9.int-fmts.ma025pu225</i>	60
4.19	Radialer Verlauf des Neutronenflusses und der Leistungsdichte, Modell <i>mod4-9.int-fmts.ma025pu225</i> , Neutronenquellstärke = 10^{18} n/s	61
4.20	Zeitlicher Verlauf des k_{fs} -Wertes (oben) und des Neutronenflusses (unten) im Blanket, Modell <i>mod4-9.int-fmts.ma025pu225</i> , Abbrand: 360 Tage bei 500 MW _{th}	62
4.21	TRU-Massenumsätze, Modell <i>mod4-9.int-fmts.ma025pu225</i> , Abbrand: 360 Tage bei 500 MW _{th} anschließend 3 Jahre Lagerung	62
4.22	Vergleich der energiebezogenen TRU-Massenumsätze homogener Blanketmodelle zwischen BOB (Begin of Burn) und EOB (End of Burn), TRU-Isotopenvektor: Thorium 2-fach rezykliert (s. Tabelle B.4)	64
4.23	MCNP-Modell des heterogenen Blanketkonzeptes: <i>Heterogenes Flüssigmetalltransmutationssystem (HFMTS)</i>	66
4.24	Radialer Verlauf der Leistungsdichte, Modell <i>mod6-1.hfmts.ma025pu275</i> (oben), Modell <i>mod9-1.hfmts.ma025pu275</i> (Mitte), Modell <i>mod9.hfmts.ma025pu275</i> (unten), Neutronenquellstärke = 10^{18} n/s	71
4.25	Radialer Verlauf des Neutronenflusses, Modell <i>mod6-1.hfmts.ma025pu275</i> (oben), Modell <i>mod9-1.hfmts.ma025pu275</i> (Mitte), Modell <i>mod9.hfmts.ma025pu275</i> (unten), Neutronenquellstärke = 10^{18} n/s	72
4.26	TRU-Massenumsätze, Modell <i>mod6-1.hfmts.ma025pu275</i> , Abbrand: 360 Tage bei 500 MW _{th} anschließend 3 Jahre Lagerung	73
4.27	TRU-Massenumsätze, Modell <i>mod9-1.hfmts.ma025pu275</i> , Abbrand: 360 Tage bei 500 MW _{th} anschließend 3 Jahre Lagerung	73
4.28	MCNP-Modell des heterogenen Blanketkonzeptes: <i>Heterogenes Flüssigmetalltransmutationssystem mit Brennelementen (BE-HFMTS)</i>	74
4.29	Normierte energieabhängige Verteilung der Gruppenflußdichte in den drei Brennstoffzonen, Modell <i>be-hfmts.ma025pu275</i>	77
4.30	Leistungsdichte (oben) und Neutronenfluß (unten) in den drei Brennstoffzonen, Modell <i>be-hfmts.ma025pu275</i> , Neutronenquellstärke = 10^{18} n/s	77
4.31	Zeitlicher Verlauf des k_{fs} -Wertes (oben) und des Neutronenflusses (unten) im Blanket, Modell <i>be-hfmts.ma025pu275</i> , Abbrand: 360 Tage bei 500 MW _{th}	78
4.32	TRU-Massenumsätze, Modell <i>be-hfmts.ma025pu275</i> , Abbrand: 360 Tage bei 500 MW _{th} anschließend 3 Jahre Lagerung	78
4.33	Vergleich der energiebezogenen TRU-Massenumsätze heterogener Blanketmodelle zwischen BOB (Begin of Burn) und EOB (End of Burn), TRU-Isotopenvektor: Thorium 2-fach rezykliert (s. Tabelle B.4)	80
5.1	Geometriebeschreibung eines <i>BE-HFMTS</i> -Brennelementes mit 6 Brennstoffzylindern	84
5.2	Kennzeichnung der Brennstoffzylinder anhand eines X-Y-Schnittes durch eine <i>BE-HFMTS</i> -Geometrie	91

5.3	Axiale Leistungsdichteprofile der Brennelemente 1, 18 und 35 (Brennstoffzylinder 2), Modell: <i>be-hfmts.ma025pu275</i>	94
5.4	Peakfaktoren für die Leistung und Wärmestromdichte in den drei Brennstoffzonen, Modell: <i>be-hfmts.ma025pu275</i>	95
6.1	Peakfaktoren der Leistung der optimierten Blanketmodelle <i>ma050pu250-ma0pu300-ma0pu300</i> und <i>6-15mm_6-30mm_3-60mm</i> sowie des Ausgangsmodells <i>be-hfmts.ma025pu275</i> 102	
6.2	Peakfaktoren der Wärmestromdichte der optimierten Blanketmodelle <i>ma050pu250-ma0pu300-ma0pu300</i> und <i>6-15mm_6-30mm_3-60mm</i> sowie des Ausgangsmodells <i>be-hfmts.ma025pu275</i>	103
6.3	Normierte energieabhängige Verteilung der Gruppenflußdichte in den drei Brennstoffzonen, Modell <i>6-15mm_6-30mm_3-60mm</i> , Brennstoffzusammensetzung: <i>ma0025pu2975</i> , Leistung des Systems: 500 MW _{th}	106
6.4	Peakfaktoren der Leistung und Wärmestromdichte in den drei Brennstoffzonen, Modell <i>6-15mm_6-30mm_3-60mm</i> , Brennstoffzusammensetzung: <i>ma0025pu2975</i> , Leistung des Systems: 500 MW _{th}	106
6.5	Zeitlicher Verlauf des k_{fs} -Wertes bei verschiedenen Wiederaufbereitungsvarianten Modell: <i>BE-HFMTS</i> Brennstoffzusammensetzung: <i>ma0025pu2975</i> , Abbrand: 600 Tage bei 500 MW _{th} , maximaler relativer Fehler der k_{fs} -Werte: 4,00E-03	107
6.6	Absolute TRU-Massenumsätze im <i>BE-HFMTS</i> -Blanket <i>6-15mm_6-30mm_3-60mm</i> mit Brennstoffkomposition <i>ma0025pu2975</i> , Abbrand: 600 Tage bei 500 MW _{th} , Wiederaufarbeitungsvariante 2, anschließend 3 Jahre Lagerung	110
A.1	Einteilung der Anordnung in R-Z-Intervalle	122
A.2	Beispiel für die Wechselwirkung von Neutronen in Materie im Rahmen einer MCNP-Rechnung, nach [mcn00a] Seite 1-3	124

Tabellenverzeichnis

1.1	Uranisotope, deren Halbwertszeiten und Dosiskoeffizienten für Ingestion [ICR94]; UO ₂ -Brennstoff, 7 Jahre Abklingzeit, 47,5 GWd/t SM Abbrand im DWR	4
1.2	Für P & T relevante langlebige Spaltprodukte, deren Halbwertszeiten und Dosiskoeffizienten für Ingestion [ICR94]; UO ₂ -Brennstoff, 7 Jahre Abklingzeit, 47,5 GWd/t SM Abbrand im DWR	5
1.3	Für P & T relevante Transurane, deren Halbwertszeiten und Dosiskoeffizienten für Ingestion [ICR94]; UO ₂ -Brennstoff, 7 Jahre Abklingzeit, 47,5 GWd/t SM Abbrand im DWR	5
2.1	Mittlere Wirkungsquerschnitte für Spalt- und Neutroneneinfang-Reaktionen einiger Actiniden und der α -Wert bei thermischem Neutronenspektrum (links) und schnellem Neutronenspektrum (rechts) [NEA99]	16
2.2	Vergleich von Flüssig- und Festbrennstoffsystemen: Neutronik Normal- und Störfallverhalten	24
2.3	Vergleich von Flüssig- und Festbrennstoffsystemen: Betriebsverhalten	25
2.4	Vergleich von wasserbasierten , Salzschnmelzen- und Flüssigbrennstoffsystemen . .	26
3.1	Physikalische Eigenschaften einiger Flüssigmetalle [Gme70a] ,[Tip60]	30
3.2	Eigenschaften Stahl EP823 nach [BIK ⁺ 98]	37
3.3	Zusammensetzung Stahl EP823 nach [BIK ⁺ 98]	37
4.1	k_{eff} -Werte Homogenes Blanket mit externer Kühlung bei unterschiedlichen Abmessungen, TRU-Isotopenvektor: Thorium 2-fach rezykliert (s. Tabelle B.4) . . .	45
4.2	k_{eff} -Werte bei verschiedenen Anreicherungen, <i>mod4.ext-fmts</i> - Homogenes Blanket mit externer Kühlung, TRU-Isotopenvektor: Thorium 2-fach rezykliert (s. Tabelle B.4)	45
4.3	k_{eff} -Werte verschiedener Blanketentwürfe mit interner Kühlung, Anreicherung: 3 at% Pu-Vektor, Pu-Isotopenvektor: Thorium 2-fach rezykliert (s. Tabelle B.4), Höhe Graphitreflektor: 100 cm, Spalt hinter Reflektor: 50 cm	50
4.4	k_{eff} -Werte Modell <i>mod4.int.fmts</i> bei Variation der Corehöhe und verschiedenen Pu-Anreicherungen, Pu-Isotopenvektor: Thorium 2-fach rezykliert (s. Tabelle B.4), Breite Graphitreflektor: 30 cm, Spalt hinter Reflektor 50 cm	51

4.5	k_{eff} -Werte Modell <i>mod4-5.int-fmts</i> und verschiedene TRU-Anreicherungen, TRU-Isotopenvektor: Thorium 2-fach rezykliert (s. Tabelle B.4), Höhe Graphitreflektor: 140 cm, Breite Graphitreflektor: 30 cm, Spalt hinter Reflektor 50 cm	52
4.6	Veränderung der TRU-Massenbilanz durch die dreijährige Lagerzeit, Modell <i>mod4-5.int-fmts.ma05.pu200</i> , Abbrand: 360 Tage bei 500 MW _{th} anschließend 3 Jahre Lagerung	54
4.7	k_{eff} -Werte Modell <i>mod4-7.int-fmts</i> und verschiedene TRU-Anreicherungen, TRU-Isotopenvektor: Thorium 2-fach rezykliert (s. Tabelle B.4), Höhe Bleireflektor: 140 cm, Breite Bleireflektor: 30 cm, Spalt hinter Reflektor 50 cm	56
4.8	k_{eff} -Werte verschiedene Modelle mit Eisen/B ₄ C-Reflektor, Pu-Anreicherung: 2 at%, TRU-Isotopenvektor: Thorium 2-fach rezykliert (s. Tabelle B.4), Höhe Reflektor: 140 cm, Spalt hinter Reflektor 50 cm	59
4.9	k_{eff} -Werte Modell <i>mod4-9.int-fmts</i> mit Eisen/B ₄ C-Reflektor bei verschiedenen TRU-Anreicherungen, TRU-Isotopenvektor: Thorium 2-fach rezykliert (s. Tabelle B.4), Höhe Reflektor: 140 cm, Spalt hinter Reflektor: 50 cm	60
4.10	Vergleich der MA-Massenbilanz der untersuchten homogenen Modelle zwischen BOB (Begin of Burn), EOB (End of Burn) und <i>EOB</i> ^{+3a} (3 Jahre Lagerung nach Entladung), Abbrand: 360 Tage bei 500 MW _{th} TRU-Isotopenvektor: Thorium 2-fach rezykliert (s. Tabelle B.4)	65
4.11	Vergleich der Pu-Massenbilanz der untersuchten homogenen Modelle zwischen BOB (Begin of Burn), EOB (End of Burn) und <i>EOB</i> ^{+3a} (3 Jahre Lagerung nach Entladung), Abbrand: 360 Tage bei 500 MW _{th} TRU-Isotopenvektor: Thorium 2-fach rezykliert (s. Tabelle B.4)	65
4.12	Vergleich der TRU-Massenbilanz der untersuchten homogenen Modelle zwischen BOB (Begin of Burn), EOB (End of Burn) und <i>EOB</i> ^{+3a} (3 Jahre Lagerung nach Entladung), Abbrand: 360 Tage bei 500 MW _{th} TRU-Isotopenvektor: Thorium 2-fach rezykliert (s. Tabelle B.4)	65
4.13	k_{eff} -Werte für Heterogenes Blanket mit 60 konzentrischen ringförmigen Brennelementen bei verschiedenen Abmessungen. Die angegebene Breite der Hohlzylinder bezieht sich immer auf die Hohlzylinder einer Zone. Jede Zone umfaßt 10 Brennelemente. Brennelementhöhe = 200 cm, Hohlzylinderwanddicke: 0,1 cm, Kühlmittelspalt: 0,75 cm, TRU-Isotopenvektor: Thorium 2-fach rezykliert (s. Tabelle B.4)	67
4.14	Vergleich der k_{eff} -Werte bei verschiedenen Pu-Anreicherungen und Reflektormaterialien, Modell <i>mod6.hfmts</i> -Bleireflektor, Modell <i>mod6-1.hfmts</i> -Graphitreflektor, TRU-Isotopenvektor: Thorium 2-fach rezykliert (s. Tabelle B.4)	68
4.15	Vergleich der k_{eff} -Werte bei verschiedenen Pu-Anreicherungen und Reflektormaterialien, Modell <i>mod9.hfmts</i> -Bleireflektor, Modell <i>mod9-1.hfmts</i> -Graphitreflektor, TRU-Isotopenvektor: Thorium 2-fach rezykliert (s. Tabelle B.4)	68
4.16	Vergleich der k_{eff} -Werte bei verschiedenen Pu-Anreicherungen und Reflektormaterialien, Modell <i>mod6-1.hfmts</i> , Modell <i>mod9-1.hfmts</i> , TRU-Isotopenvektor: Thorium 2-fach rezykliert (s. Tabelle B.4)	69

4.17	Vergleich der k_{fs} -Werte der Modelle <i>mod6-1.hfmts.ma025pu275</i> , <i>mod9-1.hfmts.ma025pu275</i> und Modell <i>mod9.hfmts.ma025pu275</i> zu Beginn (BOB) und am Ende des Abbrandes (EOB),	70
4.18	Geometriedaten des heterogenen Blanketkonzeptes: BE-HFMTS	75
4.19	Vergleich der k_{eff} -Werte bei verschiedenen homogenen MA- und Pu-Anreicherungen, TRU-Isotopenvektor: Thorium 2-fach rezykliert (s. Tabelle B.4)	76
4.20	Vergleich von Massenbilanzen der untersuchten heterogenen Modelle zwischen BOB (Begin of Burn), EOB (End of Burn) und EOB^{+3a} (3 Jahre Lagerung nach Entladung), Abbrand: 360 Tage bei $500MW_{th}$ TRU-Isotopenvektor: Thorium 2-fach rezykliert (s. Tabelle B.4)	79
5.1	Eigenschaften Stahl EP823 bei verschiedenen Temperaturen nach [BIK ⁺ 98] . . .	86
5.2	Berechnung des Wärmeübergangskoeffizienten α für die Kühlmittelströmung zwischen zwei Brennstoffzylindern nach [Dwy76] (am Beispiel des Kühlmittelspaltes zwischen Brennstoffzylinder 1 und 2 sowie 5 und 6, vgl. Abbildung 5.1).	89
5.3	Temperaturen in Brennstoff, Wand und Kühlmittel eines Brennstoffzylinders für den Fall der mittleren Leistungsdichte in einem Brennstoffzylinder $\dot{q}''' = 30 MW/m^3$	90
5.4	Eigenschaften des Modells <i>be-hfmts.ma025pu275</i> bei einer thermischen Leistung des Gesamtsystems von 500 MW	92
5.5	Leistungsdichten in den Brennelementen 1 (oben) und 18 (unten), Modell <i>be-hfmts.ma025pu275</i> , ges: gesamter Brennstoffzylinder, vorn: der Spallationsquelle zugewandte Zylindersegmente (s. Abbildung 5.2), hinten: der Spallationsquelle abgewandte Zylindersegmente	93
5.6	Peakfaktoren des Modells <i>be-hfmts.ma025pu275</i>	93
5.7	Leistungsdichten in Brennelement 35, Modell <i>be-hfmts.ma025pu275</i> , ges: gesamter Brennstoffzylinder, vorn: der Spallationsquelle zugewandte Zylindersegmente (s. Abbildung 5.2), hinten: der Spallationsquelle abgewandte Zylindersegmente	95
6.1	k_{eff} -Werte bei verschiedenen heterogenen Pu-Anreicherungen, TRU-Isotopenvektor: Thorium 2-fach rezykliert (s. Tabelle B.4)	97
6.2	k_{eff} -Werte bei verschiedenen heterogenen TRU-Anreicherungen, TRU-Isotopenvektor: Thorium 2-fach rezykliert (s. Tabelle B.4)	98
6.3	Peakfaktoren für Leistung und Wärmestromdichte, maximale Wärmestromdichte eines Brennstoffzylinders $\dot{q}''_{max}$ bei einer thermischen Blanketleistung von 500 MW, Verschiedene <i>BE-HFMTS</i> -Blanketmodelle	99
6.4	k_{eff} -Werte bei verschiedenen Brennelementgeometrien, Brennstoff: <i>ma025pu275</i> in allen Brennelementen, TRU-Isotopenvektor: Thorium 2-fach rezykliert (s. Tabelle B.4)	99
6.5	Peakfaktoren für Leistung und Wärmestromdichte, maximale Wärmestromdichte eines Brennstoffzylinders $\dot{q}''_{max}$ bei einer thermischen Blanketleistung von 500 MW, Verschiedene <i>BE-HFMTS</i> -Blanketmodelle, Brennstoff: <i>ma025pu275</i> in allen Brennelementen	100

6.6	Eigenschaften des Modells <i>ma050pu250-ma0pu300-ma0pu300</i> bei einer thermischen Leistung des Gesamtsystems von 500 MW, TRU-Isotopenvektor: Thorium 2-fach rezykliert (s. Tabelle B.4)	101
6.7	Eigenschaften des Modells <i>6-15mm_6-30mm_3-60mm</i> bei einer thermischen Leistung des Gesamtsystems von 500 MW, Brennstoff: <i>ma025pu275</i> in allen Brennelementen, TRU-Isotopenvektor: Thorium 2-fach rezykliert (s. Tabelle B.4) . . .	102
6.8	k_{eff} -Werte für das Blanketkonzept <i>6-15mm_6-30mm_3-60mm</i> bei verschiedenen TRU-Anreicherungen, TRU-Isotopenvektor: Thorium 2-fach rezykliert (s. Tabelle B.4)	104
6.9	Beschreibung der Wiederaufarbeitungs-Varianten, Beladung mit TRU-Nuklidvektoren entsprechend Tabelle B.4 in Anhang B.1	108
6.10	Massenbilanzen <i>BE-HFMTS</i> -Blanket <i>6-15mm_6-30mm_3-60mm</i> mit Brennstoffkomposition <i>ma0025pu2975</i> und Wiederaufarbeitungsvariante 2, zwischen BOB (Begin of Burn), EOB (End of Burn) und EOB^{+3a} (3 Jahre Lagerung nach Entladung), Abbrand: 600 Tage bei 500MW_{th}	109
6.11	Eigenschaften eines Transmutationssystems mit einem <i>BE-HFMTS</i> -Blanket <i>6-15mm_6-30mm_3-60mm</i> , Bilanzzeitraum: 600 Tage	111
B.1	TRU-Isotopenvektor DWR-Brennstoff 47,5 GWd UO_2 -Abbrand, 7 Jahre Abklingzeit, getrennt nach MA und Plutonium dargestellt. Der TRU-Vektor setzt sich zusammen aus 11,64 % MA und 88,36 % Pu [Neu00].	128
B.2	TRU-Isotopenvektor Thorium 1.Rezyklierung, 60 GWd Schwermetallabbrand, 7 Jahre Abklingzeit, getrennt nach MA und Pu dargestellt. Der TRU-Vektor setzt sich zusammen aus 11,26 at% MA und 88,74 at% Pu [Neu00].	128
B.3	TRU-Isotopenvektor Thorium nach 2. Rezyklierung, 60 MWd Schwermetallabbrand, 7 Jahre Abklingzeit, getrennt nach MA und Pu dargestellt. Der TRU-Vektor setzt sich zusammen aus 12,59 at% MA und 87,41 at% Pu. [Neu00]. . . .	129
B.4	TRU-Isotopenvektor Thorium nach 2. Rezyklierung, 60 MWd Schwermetallabbrand, 7 Jahre Abklingzeit, getrennt nach MA und Pu dargestellt. Der TRU-Vektor setzt sich zusammen aus 38,17 at% MA und 61,83 at% Pu. Der MA-Anteil ist eine Akkumulation aller MA des UO_2 -Abbrandschrittes sowie der bei 1. und 2. Rezyklierung anfallenden MA [Neu00].	129

Literaturverzeichnis

- [atw01] ATW: Kernenergie, Kernkraftwerke: atw Schnellstatistik für 2000. In: *Atomwirtschaft* 46.Jg, Heft 2 (2001), Februar, S. 133
- [BBFR01] BARBIER, F. ; BENAMATI, G. ; FAZIO, C. ; RUSANOV, A.: Compatibility tests of steels in flowing liquid lead-bismuth. In: *Journal of Nuclear Materials* 295 (2001), S. 149–156
- [BBI⁺00] BENAMATI, G. ; BUTTOL, P. ; IMBENI, V. ; MARTINI, C. ; PALOMBARINI, G.: Behaviour of materials for accelerator driven systems in stagnant molten lead. In: *Journal of Nuclear Materials* 279 (2000), S. 308–316
- [Ber71] BERRY, Warren E.: *Corrosion In Nuclear Applications*. New York : John Willey and Sons, 1971
- [BFPR02] BENAMATI, G. ; FAZIO, C. ; PIANKOVA, H. ; RUSANOV, A.: Temperature effect on the corrosion mechanism of austenitic and martensitic steels in lead-bismuth. In: *Journal of Nuclear Materials* 301 (2002), S. 23–27
- [BIK⁺98] BIBILASHVILI, U.K. ; IOLTUKHOVSKY, A.G. ; KAZENNOV, Y.I. ; LEONT'EVA-SMIRNOVA, M.V. ; ISTISHOV, N.A. ; KONDRAT'EV, V.P.: 12 % Chromium Steels Working Characteristics with Reference to the Conditions of Operating the Core Elements of Reactors Using Lead and Lead-Bismuth Coolants. In: *HLMC - Heavy Liquid Metal Coolants*. IPPE,Obninsk, Russia, 1998
- [BKP⁺98] BESPALOV, A.G. ; KONOBEV, Yu.V. ; POROLLO, C.I. ; RUDENKO, V.A. ; KHABAROV, V.C. ; SHULEPIN, C.V.: Irradiation Performance of Structural Materials in Reactors with the Pb-Bi Coolant. In: *HLMC - Heavy Liquid Metal Coolants*. IPPE,Obninsk, Russia, 1998
- [BP79] BORGSTEDT, H.U. ; POLITIS, C. *Bleiwismutkorrosion von Werkstoffen für das Target der Spallationsquelle*. Realisierungsstudie zur Spallations-Neutronenquelle Teil III,Annex E, Untersuchte Alternative: Flüssigmetalltarget. 1979
- [BVW⁺97] BOWMAN, Charles D. ; VENNERI, F. ; WILLIAMSON, M.A. ; NING, L. ; WENDER, S. ; ET AL.: *Los Alamos National Laboratory ADS projects*. Vienna : IAEA, 1997 (IAEA-TECDOC-985), S. 139–187. – Accelerator driven systems: Energy generation and transmutation of nuclear waste

- [CW81] COMPER, W. ; WLEKLINSKI, H. *Berechnung der wichtigsten bei der Spallation entstehenden Nuklide und ihrer Aktivität*. Realisierungsstudie zur Spallations-Neutronenquelle Teil III, Annex E, Untersuchte Alternative: Flüssigmetalltarget. 1981
- [DH76] DUDERSTADT, James J. ; HAMILTON, Louis J.: *Nuclear Reactor Analysis*. New York, London, Sydney, Toronto : John Wiley & Sons, Inc., 1976
- [DOE99] DOE: A Roadmap for Developing Accelerator Transmutation of Waste (ATW) Technology / Department of Energy (DEO) of the United States of America. Washington, U.S.A., 1999 (DOE/RW-0519). – A Report to Congress
- [Dwy76] DWYER, O.E.: *Liquid Metal Heat Transfer*. New York, London, Paris : Gordon and Breach, Science Publishers, Inc., 1976 (Sodium-NaK Engineering Handbook)
- [EB95] EHRMAN, Ch.S. ; BOARDMAN, Ch.E.: System Consideration for Actinide Recycle in Fast Reactors. In: *Proceedings of International Conference on Evaluation of Emerging Nuclear Fuel Cycle Systems*, 1995, S. 1934
- [Fil92] FILGES, Detlef: Moderne Monte Carlo Teilchentransport-Simulationsverfahren für sicherheitstechnische Anwendungen und Fragestellungen in der Beschleunigertechnik und in der Raumfahrt / Institut für Kernphysik. Jülich, 1992 (2609). – Berichte des Forschungszentrums Jülich
- [Gme70a] GMELIN (Hrsg.): *Gmelins Handbuch der anorganischen Chemie*. Bd. Blei, Bismuth. Verlag Chemie, 1970
- [Gme70b] GMELIN (Hrsg.): *Gmelins Handbuch der anorganischen Chemie*. Bd. Transurane Vol. B3. Verlag Chemie, 1970
- [Gro80] GROFF, A.G.: A User's Manual for ORIGEN2 Computer Code / Oak Ridge National Laboratory (ORNL). Oak Ridge, U.S.A., 1980 (ORNL/TM-7175). – Manual
- [GS00] GRUPPELAR, H. (Hrsg.) ; SCHAPIRA, J.P. (Hrsg.): *Thorium as a waste management option*. Brüssel : European Commission, 2000 (Project report: Nuclear Science and Technologie). – EUR 19142 EN
- [Gum89] GUMINSKI, C.: Selected properties of simple amalgams. In: *Journal of Materials Science* 24 (1989), S. 2661–2676
- [Gum90] GUMINSKI, C.: Solubility of Metals in Liquid Low Melting Metals. In: *Z. Metallkunde* Band 81 H.2 (1990)
- [Hub80] HUBER, P.E. *Untersuchungen zur Kühlmöglichkeit eines Flüssigmetalltargets für eine Spallationsneutronenquelle*. Realisierungsstudie zur Spallations-Neutronenquelle Teil III, Annex E, Untersuchte Alternative: Flüssigmetalltarget. 1980
- [Hug95] HUGON, H.: Assessments of the Benefits of Partitioning and Transmutation for the Safety of Nuclear Waste Management. In: *Proceedings of International Conference on Evaluation of Emerging Nuclear Fuel Cycle Systems*, 1995, S. 361

-
- [ICR94] ICRP: Dose Coefficients for Intakes of Radionuclides by Workers: A Replacement of ICRP Publication 61 / ICRP. 1994 (Annals of the ICRP 24, No.4). – ICRP Publication 68
- [JP95] JANSEN, Christoph ; PHILIPPEN, Peter-W.: Protonenfenster und Flüssigmetalltarget für eine beschleunigergetriebene Transmutationsanlage / Institut für Sicherheitsforschung und Reaktortechnik. Jülich, 1995 (3152). – Berichte des Forschungszentrums Jülich
- [KGV99] KLÜGEL, J. U. ; GILLI, R. ; VIGFUSSEN, J.: Ergebnisse einer ersten sicherheitstechnischen Beurteilung eines bleigekühlten Energy Amplifiers aus behördlicher Sicht. In: *Atomwirtschaft* 44.Jg, Heft 11 (1999), November, S. 664–669
- [KKG99] KESSLER, G. ; KIM, Jae-Il ; GOMPPER, K.: Wohin mit dem deutschen Plutonium ? In: *Atomwirtschaft* 44.Jg, Heft 3 (1999), März, S. 156–164
- [LA97] LIZANA-ALLENDE, Pablo: Unterkritische Systeme in der Nukleartechnik - Energieproduktion, Transmutation und Spaltstofferzeugung / Institut für Sicherheitsforschung und Reaktortechnik. Jülich, 1997 (3387). – Berichte des Forschungszentrums Jülich
- [LK93] LEE, J.S. ; KEIL, H. ; ET AL.: Research and Development Program KAERI for DUPIC (Direct Use of Spent PWR Fuel in CANDU Reactors). In: *Proceedings of the International Conference and Technical Exposition GLOBAL 93*. Seattle, Washington, 12. -17. September 1993, S. 733–739
- [LMM58] LANE, J.A. ; MACPHERSON, H.G ; MASLAN, F.: *Fluid Fuel Reactors*. Reading Massachusetts : Addison-Wesley Publishing Company, Inc., 1958
- [Lyp96] LYPSCHE, Frank: Aspekte zum Einsatz von Systemen zur Transmutation radioaktiver Stoffe - Neutronik, Technik, Sicherheitsverhalten / Institut für Sicherheitsforschung und Reaktortechnik. Jülich, 1996 (3181). – Berichte des Forschungszentrums Jülich
- [mcn97] BRIESTMEISTER, Judith F. (Hrsg.): MCNP - A General Monte Carlo N-Particle Transport Code, Version 4B / Los Alamos National Laboratory (LANL). Los Alamos, U.S.A., 1997 (LA-12625-M). – Manual
- [mcn00a] BRIESTMEISTER, Judith F. (Hrsg.): MCNP - A General Monte Carlo N-Particle Transport Code, Version 4C / Los Alamos National Laboratory (LANL). Los Alamos, U.S.A., 2000 (LA-13709-M). – Manual
- [mcn00b] LANL (Hrsg.): MCNPDATA - RSICC DATA LIBRARY COLLECTION - Standard Neutron, Photon and Electron Libraries for MCNP4C / Los Alamos National Laboratory (LANL). Los Alamos, U.S.A., 2000 (DLC-200). – Manual
- [MD94] MACFARLANE, R. E. ; D.W.MUIR: The NJOY Nuclear Data Processing System Version 91 / Los Alamos National Laboratory (LANL). Los Alamos, U.S.A., 1994 (LA-12740-M). – Manual

- [MHK⁺02] MÜLLER, G. ; HEINZEL, A. ; KONYS, J. ; SCHUMACHER, G. ; WEISENBURGER, A. ; ZIMMERMANN, F. ; ENGELKO, V. ; RUSANOV, A. ; MARKOV, V.: Results of steel corrosion tests in flowing liquid Pb/Bi at 420 - 600 °C after 2000 h. In: *Journal of Nuclear Materials* 301 (2002), S. 40–46
- [MM98] MASCHEK, W. ; MERK, B. *Comparison of severe accident behaviour of accelerator driven subcritical and conventional critical reactors*. Forschungszentrum Karlsruhe. 1998
- [MPR⁺95] MALDAGUE, Th. ; PILATE, S. ; RENARD, A. ; HARISLUR, A. ; MOUNEY, H. ; ROME, M.: Core Physics Aspects and Possible Loadings for Actinide Recycling in Light Water Reactors. In: *International Conference on Evaluation of Emerging Nuclear Fuel Cycle Systems*. Versailles France, September 1995
- [MSZ00] MÜLLER, G. ; SCHUMACHER, G. ; ZIMMERMANN, F.: Investigation on oxygen controlled liquid lead corrosion of surface tested steels. In: *Journal of Nuclear Materials* 278 (2000), S. 85–95
- [Mü00] MÜLLER, G.: Korrosionsverhalten von Stählen in flüssigem Blei nach Behandlung mit hochenergetischen gepulsten Elektronenstrahlen / Forschungszentrum Karlsruhe. Karlsruhe, 2000 (FZKA 6422). – Forschungsbericht
- [NEA99] NEA (Hrsg.): *Actinide and Fission Product Partitioning Transmutation*. NEA-OECD, 1999. – Status and Assessment Report
- [Neu00] NEUHAUS, Ingo: *Plutoniumverbrennung mittels Thorium Einsatz im Druckwasserreaktor*. Aachen, RWTH Aachen, Diss., 2000
- [Phl95] PHLIPPEN, Peter-W.: Gefährdungspotential radioaktiver Abfälle. In: *Atomwirtschaft* 40.Jg, Heft 6 (1995), Juni, S. 384ff
- [Phl97] PHLIPPEN, Peter-W. *Sicherheitsfragen im Nuklearen Brennstoffkreislauf*. Vorlesungsunterlagen. 1997
- [Pio00] PIONTEK, Michael: *Umwandlung radioaktiver Schwermetalle in unterkritischen thermischen Systemen*. Aachen, RWTH Aachen, Diss., 2000
- [PT99] POSTON, David I. ; TRELLUE, Holly R.: USER'S MANUAL, VERSION 2.0 FOR MONTEBURNS, VERSION 1.0 / Los Alamos National Laboratory (LANL). Los Alamos, U.S.A., 1999 (LA-UR-99-4999). – Manual
- [RRB⁺95] RUBBIA, C. ; RUBIO, J.A. ; BUONO, S. ; F.CARMINATI ; FIETIER, N. ; GALVEZ, J. ; GELES, C. ; KADI, Y. ; KLAPISCH, R. ; REVOL, J.P. ; ROCHE, Ch.: *Conceptual Design of a Fast Neutron Operated High Power Energy Amplifier*. Genf : European Organization for Nuclear Research - CERN, 1995 (CERN-AT-95-44)
- [RSI91] RSICC: ORIGEN2.1: Isotope Generation and Depletion Code - Matrix Exponential Model / RSICC. Oak Ridge, U.S.A., 1991 (CCC-371). – RSICC report

-
- [RT94] RIEF, H. ; TAKAHASHI, H.: Safety and Control of Accelerator-Driven Subcritical Systems. In: *Proceedings of the International Conference on Accelerator-Driven Transmutation Technologies and Applications*. Las Vegas, July 1994
- [RTB⁺98] RUSANOV, A.E. ; TROYANOV, V.M. ; BELOMYTSCEV, U.S. ; SMIRNOV, A.A. ; YACHMENYOV, G.S. ; GIBADULLIN, R.H. ; SUGANYAEV, V.N. ; PYTHIN, V.M.: Developing and Studying the Cladding Steels for the Fuel Elements of the NPIs with Heavy Coolant. In: *HLMC - Heavy Liquid Metal Coolants*. IPPE, Obninsk, Russia, 1998
- [Sch85] SCHILLING, T.: *Neutronenphysikalische und Thermohydraulische Untersuchung zur Spaltstoffproduktion mit Spallationsreaktionen*. Aachen, RWTH Aachen, Diss., 1985
- [SMK⁺97] SHVEDOV, O.V. ; MURIN, B.P. ; KOCHUROV, B.P. ; SHUBIN, Yu.N. ; VOLK, V.I. ; BOGDANOV, P.V.: *Weapon Plutonium in Accelerator driven Power System*. Vienna : IAEA, 1997 (IAEA-TECDOC-985), S. 313–376. – Accelerator driven systems: Energy generation and transmutation of nuclear waste
- [Tak97] TAKIZUKA, Takakazu: *JAERI Accelerator Driven System Project*. Vienna : IAEA, 1997 (IAEA-TECDOC-985), S. 87–106. – Accelerator driven systems: Energy generation and transmutation of nuclear waste
- [Tip60] TIPTION, C.R. (Hrsg.): *Reactor Handbook*. Bd. I-Materials. New York : Interscience Publishers, INC., 1960
- [Tit97] TITTELBACH, S. *Untersuchung heterogener Brennstoffanordnungen auf ihre Eignung zur Transmutation und Spaltstoffherzeugung*. Studienarbeit an der Bergischen Universität GH Wuppertal. 1997
- [Tit98] TITTELBACH, S.: *Abbrandverhalten unterkritischer beschleunigergetriebener Systeme mit schnellem Neutronenspektrum und Bleikühlung*. Wuppertal, Bergische Universität GH Wuppertal, Diplomarbeit, 1998
- [Tor] Kap. Fundamentals of High-Temperature Corrosion in Liquid Metals In: TORTELLI, P.F.: *Metals Handbook*. Bd. 13. Ninth Edition. Ohio,
- [TR92] TAKAHASHI, H. ; RIEF, H.: Concepts of Accelerator Based Transmutation Systems. In: *Specialist's Meeting on Accelerator-Based Transmutation*. PSI Schweiz, 1992
- [Wee71] WEEKS, J.R.: Lead, Bismuth, Tin and their alloys as nuclear coolants. In: *Nuclear Engineering and Design* Vol 15 (1971), S. 363 –372
- [Zie85] ZIEGLER, A.: *Lehrbuch der Reaktortechnik*. Bd. 2 - Reaktortechnik. Berlin, New York, Tokyo : Springer Verlag, 1985

Forschungszentrum Jülich
in der Helmholtz-Gemeinschaft



Jül-4011
November 2002
ISSN 0944-2952