

Forschungszentrum Jülich

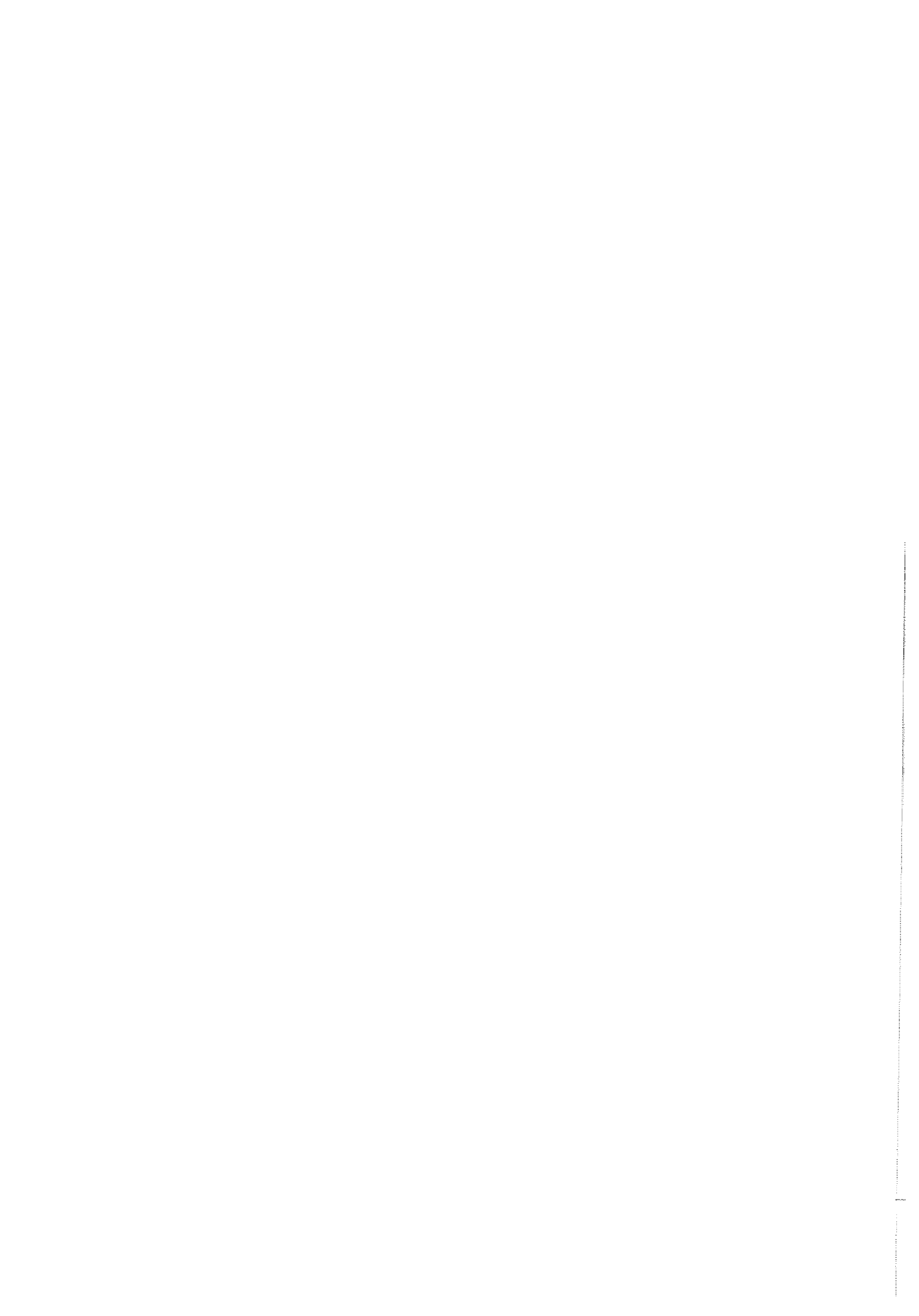


Institut für Sicherheitsforschung  
und Reaktortechnik

***Plutoniumverbrennung  
mittels Thorium Einsatz  
im Druckwasserreaktor***

*Ingo Neuhaus*

Jül-3740







***Plutoniumverbrennung  
mittels Thorium Einsatz  
im Druckwasserreaktor***

*Ingo Neuhaus*

**Berichte des Forschungszentrums Jülich ; 3740**  
ISSN 0944-2952  
Institut für Sicherheitsforschung und Reaktortechnik Jül-3740  
D 82 (Diss. RWTH Aachen, 1999)

Zu beziehen durch: Forschungszentrum Jülich GmbH · Zentralbibliothek  
D-52425 Jülich · Bundesrepublik Deutschland  
☎ 02461/61-6102 · Telefax: 02461/61-6103 · e-mail: [zb-publikation@fz-juelich.de](mailto:zb-publikation@fz-juelich.de)

# Plutoniumverbrennung mittels Thoriumeinsatz im Druckwasserreaktor

von

Ingo Neuhaus

## Kurzfassung

Die weltweite Akkumulation von Plutonium aus der zivilen Nutzung der Kernenergie gelangt immer deutlicher als Sicherheitsproblem in das politische Bewußtsein. Eine zuverlässige Beseitigung sowohl des zivilen als auch des aus der Zerstörung von Kernwaffen stammenden Plutoniums kann nur durch dessen Spaltung erfolgen; Zwischen- und Endlagerkonzepte bieten – wenn überhaupt – nur eine befristete “Beseitigung” dieses kernwaffenfähigen Materials an.

Die Spaltung des Plutoniums kann sowohl in heutigen oder speziell zu diesem Zweck ausgelegten zukünftigen Reaktoren, als auch zukünftig in beschleunigergetriebenen Systemen erfolgen. Der Einsatz von thoriumbasierten Kernbrennstoffen, denen Plutonium als Spaltstoff zugegeben wird, ermöglicht eine besonders effiziente Umsetzung des Plutoniums, da aus dem Thorium kein neues Plutonium mehr erbrütet wird; vielmehr wird der Kernbrennstoff  $^{233}\text{U}$  erzeugt, der in mancher Hinsicht als sehr viel ungefährlicher eingestuft wird als Plutonium.

Im vorliegenden Bericht wird der Einsatz von thoriumbasierten Brennstoffen in Druckwasserreaktoren untersucht. Neben einem Vergleich der materialtechnischen Eigenschaften von thoriumbasierten Brennstoffen mit uranbasierten Brennstoffen wird ein Überblick über den derzeitigen Erfahrungsstand mit Thorium als Kernbrennstoff gegeben.

Das Abbrandverhalten von thoriumbasierten Brennstoffen wird basierend auf validierten Zellrechnungen mit den Ergebnissen von herkömmlichen uranbasierten Brennstoffen für Abbrände bis zu  $100 \text{ GWd}/t_{\text{SM}}$  verglichen. Als Vergleichskriterien dienen zunächst die Umsatzraten sowohl für Plutonium alleine als auch für die Transuranelemente. Hier zeigt sich, daß der Einsatz von Thorium die Umwandlungsraten gegenüber der Verwendung von Uran als Träger für Plutonium verdoppelt. Dies wird auch deutlich, wenn man die Massenbilanzen hinsichtlich der erzeugten Kernspaltenergie auswertet. Hierbei zeigt der thoriumbasierte Brennstoff mit über 90 % der aus der Spaltung von Plutonium erzeugten Energie ebenfalls seine Vorzüge. Nachteilig ist aber, daß die abgebrannten Brennelemente noch große Mengen an Transuranen enthalten und somit nicht im Sinne einer Lösung des Plutoniumproblems endgelagert werden können.

Neben der Bewertung der Umsatzraten sind auch die Rückwirkungen des Brennstoffwechsels auf das Sicherheitsverhalten des Reaktors zu betrachten. Anhand der Rückkopplungskoeffizienten für die Brennstoff- und Moderatortemperatur, die Borkonzentration und ausgedampftes Kühlmittel (void) konnte gezeigt werden, daß der thoriumba-

sierte Mischoxidbrennstoff günstigere Bedingungen aufweist als der uranbasierte Mischoxidbrennstoff. Allerdings deuten sich für beide Brennstofftypen bei sehr hohen Abbränden positive Void-Koeffizienten aufgrund der sehr hohen Plutoniumkonzentrationen an. Zur abschließenden Beurteilung dieser Problematik sind detaillierte Kernberechnungen erforderlich.

Hinsichtlich der Endlagerung sowohl der Wiederaufarbeitungsabfälle aus dem  $\text{UO}_2$ -Brennstoff als auch der abgebrannten Mischoxidbrennstoffe ergeben sich keine wesentlichen Unterschiede für die drei Brennstofftypen. Einerseits verbleiben mehr als 40 % des ursprünglichen Plutoniums in den abgebrannten Mischoxidbrennstoffen, andererseits werden keine Minor Actinides aus dem abgebrannten  $\text{UO}_2$ -Brennstoff abgetrennt, die ca. 10 % aller Transurane ausmachen. Somit kann sich das Toxizitätspotential nicht nennenswert gegenüber abgebrannten  $\text{UO}_2$ -Brennstoffen reduzieren. Da die langlebigen Transurane die erforderliche Einschlußzeit im Endlager bestimmen, sind die zuvor beschriebenen Maßnahmen bezüglich einer Reduktion der Einschlußzeit neutral. Eine signifikante Reduktion dieses Parameters erreicht man erst durch die Abtrennung und Spaltung aller Transurane. Hierzu bedarf es allerdings neben einer Erweiterung der Wiederaufarbeitung auf die Abtrennung von Minor Actinides auch des Einsatzes beschleunigergetriebener Systeme zur Verbrennung der in kritischen Systemen nicht mehr verwertbaren Restbestände an Transuranen.

Bei einem umfassenden Vergleich der beiden Brennstoffbasismaterialien Thorium / Uran dürfen die Aspekte der Proliferation und der Nachwärmeproduktion der abgebrannten Brennstoffe nicht vernachlässigt werden. Die Analyse zeigt für diese beiden Aspekte, keine nennenswerten qualitativen Unterschiede, so daß ein Wechsel auf Thorium diesbezüglich als neutral angesehen werden kann.

Ein Vergleich der Umsatzraten von Druckwasserreaktoren mit thoriumbasierten Mischoxidbrennstoff zu anderen Systemen, die zur Plutoniumvernichtung eingesetzt werden sollen verdeutlicht, daß die hier vorgestellte Methode sowohl hinsichtlich des Netto-Transuranverbrauchs mit ca. 90 % nur noch von den Inert-Matrix-Brennstoffen übertroffen wird, wobei die Realisierung der letztgenannten technisch noch nicht geklärt ist. Auch das für eine einmalige Plutoniumrecycling wichtige Entladeverhältnis liegt mit ca. 80 % sehr hoch und wird nur noch von Inert-Matrix-Brennstoffen, optimierten Hochtemperaturreaktoren und beschleunigergetriebenen Systemen übertroffen.

Zusammenfassend bleibt festzuhalten, daß die Einführung von thoriumbasierten Mischoxidbrennstoffen in Reaktoren eine sehr effiziente und schnell zu realisierende Maßnahme ist, die Menge akkumulierten Plutoniums zu verringern. Allerdings bedarf es zur Lösung der Plutoniumfrage noch weiterer Ergänzungen im nuklearen Brennstoffkreislauf.

# Use of Thorium fuels for the incineration of Plutonium in the Pressurised Water Reactor

by

Ingo Neuhaus

## Abstract

The accumulation of civil Plutonium from nuclear energy production continuously attracts attention as a world wide safety concern. A reliable elimination of the civil Plutonium as well as that from dismantling of nuclear war heads may be achieved only by its fission; intermediate storage or deep underground disposal – whatever technical line is followed – allows only a temporary limited “elimination” of that weapons grade material.

Plutonium can be fissioned either in today's nuclear reactors or with future reactors or accelerator driven systems being constructed especially for this task. The application of Thorium based nuclear fuels, containing Plutonium as a fissile material, allows a very efficient consumption of Plutonium as the breeding chain of Thorium produces no Plutonium.  $^{233}\text{U}$  is bred instead, which in some ways is classified less dangerous than Plutonium.

This paper analyses the basic features of Thorium based fuels in pressurised water reactors. A comparison of the material behaviour between Uranium based and Thorium based fuels has been done. A literature survey shows the experience already existing for Thorium as a nuclear fuel.

The burn-up behaviour of Thorium based mixed oxide fuels is compared with the Uranium ones by well benchmarked cell calculations up to burn-ups of  $100 \text{ GWd/t}_{\text{HM}}$ . First, consumption ratios for Plutonium and Transuranium elements are compared. It turned out that the application of Thorium based fuel doubles the consumption ratio of Plutonium in comparison to Uranium mixed oxide fuel. This also becomes evident evaluating the mass balances with respect to the generated nuclear energy. Also in this case the Thorium based fuel demonstrates its superior performance; it generates more than 90 % of the energy due to Plutonium fissioning, thus performing approximately 40 % better than Uranium based mixed oxide fuel. But the large amounts of Transuranium elements remaining in both types of fuel are disadvantageous; thus these fuels may not be seen as a solution of the Plutonium problem for the purposes of avoiding large Plutonium amounts to be disposed off.

Besides the valuation of consumption ratios the feed back due to the change of fuel must be evaluated with respect to the safety behaviour of the reactor. Basing on the reactivity feedback coefficients of the fuel temperature, the moderator temperature, the boron concentration and the voided core, it can be shown, that Thorium based mixed oxide fuel performs better than Uranium based mixed oxide fuel. But both types of fuel run into trouble, if very high burn-ups are desired. Due to high initial Plutonium concentrations

the void coefficient tends to become positive. A final judgement of this result needs a more detailed core layout analysis.

With respect to final disposal both the reprocessing residuals from the  $\text{UO}_2$ -fuel and the spent mixed oxide fuels do not perform significantly different. On the one hand more than 40 % of the initial Plutonium remains in the spent mixed oxide fuel, on the other hand no Minor Actinides are separated from  $\text{UO}_2$  fuel, which contribute to 10 % to the mass of Transuranium elements. That's why the toxicity potential may not change significantly with respect to spent  $\text{UO}_2$  fuel. As the long lived Transuranium elements determine the enclosure time span of the final repository, the aforementioned measures are more or less invariant with respect to the enclosure time span. A dramatic reduction of this time span can only be achieved by extraction and fission of all kind of Transuranium elements. But this requires besides the extension of the reprocessing task to include Minor Actinides also the introduction of accelerator driven systems. The later ones will burn these residual Transuranium elements, which no longer can be recycled into reactors.

The aspects of proliferation and after heat generation during disposal may not be neglected. No fundamental differences regarding to this aspects have been found, so that the use of Thorium in stead of Uranium will be possible without disadvantages in this field.

Comparing pressurised water reactors feed with Thorium based mixed oxide fuels to burn Plutonium to other systems demonstrate, that this method is very effective. The net consumption of Transuranium elements of approximately 90 % may only be exceeded by inert matrix fuelled systems, which technical realisation is questionable presently. Also the discharge ratio, which marks a significant characteristic of a once through Plutonium recycling strategy, performs well with approximately 80 % and will be exceeded only by inert matrix fuels, optimised high temperature reactors or accelerator driven systems applying Thorium based fuels.

Finally one can conclude, that the introduction of Thorium based mixed oxide fuels in reactors will help very well to reduce the Plutonium stock piles. But a final solution of that problem needs additional measures in the nuclear fuel cycle.

# Inhaltsverzeichnis

<b>1</b>	<b>EINLEITUNG.....</b>	<b>1</b>
1.1	WELTWEITER PRIMÄRENERGIEBEDARF.....	1
1.1.1	Wasserkraft.....	1
1.1.2	Fossile Energieträger.....	1
1.1.3	Kernenergie.....	2
1.1.4	Alternative Energieträger.....	2
1.2	HEUTIGER ENERGIEVERBRAUCH.....	3
1.3	PROGNOSEN ZUM WELTENERGIEVERBRAUCH.....	4
1.4	INHALTE DIESER ARBEIT.....	6
<b>2</b>	<b>MOTIVATION FÜR PARTITIONING UND TRANSMUTATION.....</b>	<b>9</b>
2.1	BISHERIGE KONZEPTE ZUR ENTSORGUNG VON KERNKRAFTWERKEN.....	9
2.1.1	Direkte Endlagerung.....	9
2.1.2	Wiederaufarbeitung.....	10
2.1.3	Kritik an den bisherigen Konzepten.....	10
2.2	PARTITIONING UND TRANSMUTATION ALS ELEMENTE DES BRENNSTOFFKREISLAUFS.....	12
2.3	KONZEPTE ZUR TRANSMUTATION.....	13
2.3.1	Inertmatrices zur Verhinderung eines Aufbaus von Transuranen.....	13
2.3.2	Reaktorkonzepte zur Transuran-Vernichtung.....	13
2.4	THORIUM ALS INSTRUMENT DER PLUTONIUMBEHERRSCHUNG.....	15
2.4.1	Quelle der Transurane.....	15
2.4.2	Ersatz des Nuklids $^{238}\text{U}$ im Brennstoff.....	15
2.4.3	Vorteile des Thoriums.....	16
2.4.4	Abschätzung Realisierbarkeit.....	17
<b>3</b>	<b>ASPEKTE DES THORIUMBRENNSTOFFKREISLAUFS.....</b>	<b>19</b>
3.1	THORIUM ALS BRUTSTOFF IM KERNREAKTOR.....	19
3.2	KERNPHYSIKALISCHE GRUNDLAGEN - THEORETISCHE ARBEITEN.....	20
3.2.1	Nuklid $^{232}\text{Th}$ .....	20
3.2.2	Nuklid $^{232}\text{U}$ .....	21
3.2.3	Nuklid $^{233}\text{Pa}$ .....	21
3.2.4	Nuklid $^{233}\text{U}$ .....	22
3.2.5	Transurane.....	23
3.3	F&E-FELDER DER VERGANGENHEIT.....	23
3.4	ENTWICKLUNG VON REAKTORKONZEPTEN FÜR THORIUM EINSATZ.....	24
3.4.1	Leichtwasserreaktoren.....	24
3.4.2	Schwerwassermoderierte Reaktoren.....	25
3.4.3	Hochtemperaturreaktoren.....	28
3.4.4	Schnelle Reaktoren.....	28
3.4.5	Homogene Reaktorsysteme.....	28
3.5	MATERIALQUALIFIZIERUNG UND BESTRAHLUNGSTESTS.....	29
3.5.1	Überblick.....	29
3.5.2	$\text{ThO}_2$ .....	29
3.5.3	$\text{ThO}_2\text{-UO}_2$ .....	33
3.5.4	$\text{ThO}_2\text{-PuO}_2$ .....	34
3.5.5	Andere chemische Verbindungen des Thoriums.....	34
3.6	UNTERSUCHUNGEN ZUM BRENNSTOFFKREISLAUF.....	35
3.6.1	Gewinnung des Thoriums aus Monazit.....	35
3.6.2	Brennelementfertigung.....	37
3.6.3	Wiederaufarbeitung von Thorium Brennstoffen.....	38
3.6.4	Endlagerung von Thorium Brennstoffen.....	39

<b>4</b>	<b>BESCHREIBUNG DER NUMERISCHEN SIMULATIONSTECHNIK.....</b>	<b>41</b>
4.1	ZIELSETZUNG.....	41
4.2	BESCHRÄNKUNG AUF ZELLRECHNUNGEN.....	41
4.3	BESCHREIBUNG DES BRENNELEMENTBÜNDELS UND DER EINHEITZELLE.....	43
4.4	REZYKLIERUNGSSTRATEGIE.....	43
4.5	INHALTE DER RECHNUNGEN.....	43
4.5.1	<i>Berechnung des <math>k_{\infty}</math> Wertes</i> .....	44
4.5.2	<i>Berechnung der Nuklidvektoren und <math>k_{\infty}</math> Werte als Funktion des Abbrandes.</i> .....	44
4.5.3	<i>Berechnung der Reaktivitätskoeffizienten</i> .....	45
4.5.4	<i>Berechnung der Toxizitätspotentiale</i> .....	46
4.5.5	<i>Berechnung der Nachzerfallswärmeleistung</i> .....	47
4.5.6	<i>Simulation der Rezyklierung</i> .....	47
<b>5</b>	<b>BENCHMARKING.....</b>	<b>49</b>
5.1	EIGENWERTE.....	49
5.2	NUKLIDVEKTOREN.....	51
5.3	KLÄRUNG DER ABWEICHUNGEN.....	55
<b>6</b>	<b>REDUZIERUNGSPOTENTIALE FÜR PLUTONIUM.....</b>	<b>61</b>
6.1	EINFÜHRUNG.....	61
6.2	BERECHNUNG DER BENÖTIGTEN ANREICHERUNGEN.....	61
6.3	PLUTONIUM UMSATZRATEN BEI EINER REZYKLIERUNG.....	65
6.4	SICHERHEITVERHALTEN – ERSTE REZYKLIERUNG.....	66
6.5	ZWEITER REZYKLIERUNGSSCHRITT.....	70
6.5.1	<i>Abbrandverhalten</i> .....	70
6.5.2	<i>Plutoniumbilanzierung über beide MOX-Stufen</i> .....	72
6.5.3	<i>Sicherheitsverhalten</i> .....	73
6.6	GESCHLOSSENER PLUTONIUMKREISLAUF.....	74
<b>7</b>	<b>REDUZIERUNGSPOTENTIALE FÜR TRANSURANELEMENTE.....</b>	<b>77</b>
7.1	ZUSÄTZLICHE REZYKLIERUNG VON MINOR ACTINIDES.....	77
7.2	SICHERHEITVERHALTEN DER TRU-BRENNSTOFFE.....	78
7.3	STRATEGIE ZUR VERNICHTUNG VON $^{244}\text{Cm}$ .....	80
7.3.1	<i>Grenzen des Druckwasserreaktors</i> .....	80
7.3.2	<i>Entstehung des <math>^{244}\text{Cm}</math></i> .....	80
7.3.3	<i>Zerfall des <math>^{244}\text{Cm}</math> und Transmutation des <math>^{240}\text{Pu}</math></i> .....	80
7.3.4	<i>Abschätzung der Leistungsverteilung</i> .....	82
7.3.5	<i>Ausblick</i> .....	84
<b>8</b>	<b>TOXIZITÄTSBILANZEN.....</b>	<b>85</b>
8.1	UNTERSUCHUNGEN EINZELNER BRENNSTOFFSYSTEME.....	85
8.2	BILANZIERUNG DES ZWEISTUFIGEN BRENNSTOFFZYKLUS.....	88
<b>9</b>	<b>WÄRMEFREISETZUNG DES ABGEBRANNTEN BRENNSTOFFS.....</b>	<b>91</b>
9.1	ALLGEMEINES.....	91
9.2	NACHWÄRMEPRODUKTION DER EINZELNEN BRENNSTOFFE.....	92
9.2.1	<i>Uranbrennstoffe mit unterschiedlichem Abbrand</i> .....	92
9.2.2	<i>Vergleich des Uranbrennstoffs mit U-MOX und Th-MOX</i> .....	93
9.3	SPEZIFISCHE NACHWÄRMEPRODUKTION DES ZWEISTUFIGEN BRENNSTOFFKREISLAUFES.....	94
9.4	BETRACHTUNG DER ZWEITEN MOX STUFE.....	97

<b>10</b>	<b>PROLIFERATIONSASPEKTE</b> .....	<b>99</b>
10.1	ALLGEMEINES.....	99
10.2	PLUTONIUM FÜR DIE MOX BRENNSTOFFE DER ERSTEN STUFE.....	99
10.3	ABGEBRANNTER BRENNSTOFF DER ERSTEN MOX STUFE.....	100
10.3.1	<i>Vergleich der Proliferationspotentiale</i> .....	100
10.3.2	<i>Variation des Abbrandes</i> .....	102
10.3.3	<i>Reduzierungsmöglichkeit des Proliferationspotentials der Uranfraktion</i> .....	103
10.3.4	<i>Grenzen dieses Vorgehens</i> .....	103
<b>11</b>	<b>ZUSAMMENFASSUNG UND AUSBLICK</b> .....	<b>105</b>
11.1	GRUNDLAGEN.....	105
11.2	ERGEBNISSE AUS DEN ABBRAND UND KRITIKALITÄTSSTUDIEN.....	106
11.2.1	<i>Nukleare Stabilität</i> .....	106
11.2.2	<i>Umsatzraten für Transuranelemente</i> .....	107
11.3	TOXIZITÄTSPOTENTIALE.....	110
11.4	SONSTIGE ASPEKTE BEI DER EINFÜHRUNG DES THORIUM BRENNSTOFFKREISLAUFS.....	111
11.5	AUSBLICK.....	112
<b>12</b>	<b>LITERATURVERZEICHNIS</b> .....	<b>115</b>
	<b>ANHANG A - ABKÜRZUNGEN UND FORMELZEICHEN</b> .....	<b>121</b>
A-1	ABKÜRZUNGEN.....	121
A-2	FORMELZEICHEN.....	121
	<b>ANHANG B - RECHENVERFAHREN</b> .....	<b>123</b>
B-1	SCALE PROGRAMMSYSTEM.....	123
B-1.1	<i>BONAMI-S</i> .....	123
B-1.2	<i>NITAWL-II</i> .....	125
B-1.3	<i>XSDRNPM-S</i> .....	127
B-1.4	<i>COUPLE</i> .....	128
B-1.5	<i>ORIGEN-S</i> .....	128
B-2	STEUERMODULE.....	129
B-2.1	<i>CSASIX</i> .....	129
B-2.2	<i>SAS2</i> .....	130
	<b>ANHANG C - BENCHMARKING</b> .....	<b>133</b>
C-1	VERGLEICH MIT BENCHMARKDATEN.....	133
	<b>ANHANG D – SICHERHEITSV ERHALTEN</b> .....	<b>137</b>
	<b>ANHANG E – TOXIZITÄTSPOTENTIALE</b> .....	<b>159</b>
	<b>ANHANG F – WÄRM EFREISETZUNG DER ABFÄLLE</b> .....	<b>161</b>



## Abbildungsverzeichnis

- Abb. 1-1:** Derzeitiger pro Kopf Nettoverbrauch an elektrischer Energie in wichtigen Staaten nach /Kug 98/.
- Abb. 1-2:** Prognose der Energiewandlung nach /Hei 97/ bis 2050. (Die mit \* gekennzeichneten Werte sind nach dem Erdgas Weltkongreß, 1997 bzw. bei Kennzeichnung mit \*\* nach der Weltenergiekonferenz WEC 1995 eingezeichnet.).
- Abb. 1-3:** Prognostizierter Anstieg des Bedarfs an elektrischer Energie der Weltbevölkerung nach /Hei 97/.
- Abb. 1-4:** Anteil der Kernenergie am Primärenergiebedarf und dessen prognostizierte Entwicklung nach /Wel 98/.
- Abb. 2-1:** Barrierenkonzept der Endlagerung (heute).
- Abb. 2-2:** Verlauf der Radiotoxizität der abgebrannten Brennelemente mit und ohne Actinidenabtrennung und Vergleichsniveau des frischen Brennstoffes /Phl 95/.
- Abb. 2-3:** Flußdiagramm eines beschleunigergetriebenen Transmutationsreaktors.
- Abb. 3-1:** Wirkungsquerschnittsverläufe von  $^{232}\text{Th}$  und  $^{238}\text{U}$  für (n, $\gamma$ ) bzw. (n,f) Reaktionen /Tho 79/.
- Abb. 3-2:** Verlauf des (n,f) Wirkungsquerschnitts des  $^{233}\text{U}$ .
- Abb. 3-3:** Verlauf des  $\eta$  Wertes von  $^{233}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$ ,  $^{239}\text{Pu}$  und von  $^{238}\text{U}$ ,  $^{232}\text{Th}$  /OEC89/.
- Abb. 3-4:** Einführung von Thorium in Brennstoffkreisläufe des Candu Reaktors.
- Abb. 3-5:** Darstellung der Reduktion der benötigten Uranmengen bei Einführung des Thorium Brennstoffkreislaufes.
- Abb. 3-6:** Phasendiagramm für  $\text{ThO}_2$ - $\text{UO}_2$  Mischkristalle.
- Abb. 3-7:** Thermische Dehnung als Funktion der Temperatur für  $\text{ThO}_2$  und  $\text{UO}_2$
- Abb. 3-8:** Wärmeleitfähigkeit von  $\text{ThO}_2$  in Abhängigkeit von der Temperatur.
- Abb. 4-1:** Aufbau des Brennelementbündels des N4 Kerns und der in allen neutronischen Rechnungen simulierten Einheitszelle.
- Abb. 5-1:**  $k_{\infty}$ -Werte für die Einheitszelle des N4 Brennelementes von FZJ-ISR für die Randbedingungen "Reflected" oder "White" und von /Klo 97/.
- Abb. 5-2:**  $k_{\infty}$ -Werte für die Einheitszelle des N4 Brennelementes mit Th-MOX Brennstoff von FZJ-ISR und von diversen Instituten nach /Rüt 96/.
- Abb. 5-3:** Entwicklung der Plutoniumkernzahldichten während des Einsatzes im DWR. (Werte des FZJ durch Rauten und von /Klo 97/ durch Dreiecke gekennzeichnet).
- Abb. 5-4:** Zeitliche Entwicklung der relativen Abweichungen zwischen den Ergebnissen der Forschungszentrum Jülich GmbH (FZJ) und von /Klo 97/ ECN für die Plutoniumisotope.
- Abb. 5-5:** Zeitliche Entwicklung der relativen Abweichungen zwischen den Ergebnissen der Forschungszentrum Jülich GmbH (FZJ) und von /Klo 97/ ECN für die Uranisotope.

- Abb. 5-6:** Zeitliche Entwicklung der relativen Abweichungen zwischen den Ergebnissen der Forschungszentrum Jülich GmbH (FZJ) und von /Klo 97/ ECN für die „Minor Actinides“ (MA).
- Abb. 5-7:** Entwicklung der Plutoniumkernzahldichten während des Einsatzes im DWR. (Werte des FZJ durch Rauten und von /Klo 97/ durch Dreiecke gekennzeichnet).
- Abb. 5-8:** Ergebnisse zu den /NEA 96/ Benchmarkdaten für einen Abbrand von 27,35 GWd/t<sub>SM</sub> nach /Phl 99/.
- Abb. 5-9:** Ergebnisse zu den /NEA 96/ Benchmarkdaten für einen Abbrand von 37,12 GWd/t<sub>SM</sub>.
- Abb. 5-10:** Ergebnisse zu den /NEA 96/ Benchmarkdaten für einen Abbrand von 44,34 GWd/t<sub>SM</sub>.
- Abb. 6-1:** Verlauf der  $k_{\infty}$  Werte bei Entladeabbränden von 47,5 GWd/t<sub>SM</sub>, 60 GWd/t<sub>SM</sub> und 100 GWd/t<sub>SM</sub> bei Uranbrennstoff.
- Abb. 6-2:** Abhängigkeit des k-Wertes vom Stababstand und Spaltstoff.
- Abb. 6-3:** Verlauf der k-Werte für U-MOX und Th-MOX mit 60 GWd/t<sub>SM</sub> unter Nominalzustand und unter veränderten Parameter zur Festlegung der nuklearen Stabilität.
- Abb. 6-4:** Vergleich der Reaktivitätskoeffizienten von U-MOX und Th-MOX Brennstoff.
- Abb. 6-5:** Flußdiagramm des geschlossenen Plutoniumkreislaufs.
- Abb. 6-6:** Entwicklung des Nuklidvektors zum Start des U-MOX Kernes während der einzelnen Iterationen.
- Abb. 6-7:** Entwicklung des Nuklidvektors zum Start des Th-MOX Kernes während der einzelnen Iterationen.
- Abb. 7-1:** Flußdiagramm eines Brennstoffkreislaufes mit primärer TRU Rezyklierung im DWR und sekundärer in einer unterkritischen und/oder schnellen Anlage.
- Abb. 8-1:** Toxizitätspotentiale des frischen bzw. abgebrannten Uranbrennstoffs für alle untersuchten Entladeabbrände (Schwermetalle).
- Abb. 8-2:** Toxizitätspotentiale der U-MOX Brennstoffe für die drei verschiedenen Entladeabbrände (Schwermetalle).
- Abb. 8-3:** Toxizitätspotentiale der U-MOX Brennstoffe für die drei verschiedenen Entladeabbrände (Schwermetalle).
- Abb. 8-4:** Toxizitätsverhältnisse der MOX Brennstoffe bezogen auf U-MOX mit einem Entladeabbrand von 47,5 GWd/t<sub>SM</sub>.
- Abb. 8-5:** Massenströme in einem kombinierten System aus Uransystemen, Wiederaufarbeitung und einem anschließenden Einsatz in einem U-MOX bzw. Th-MOX System.
- Abb. 8-6:** Toxizitätsverläufe aller Massenströme des zweistufigen Brennstoffzyklus mit einem Entladeabbrand von 47,5 GWd/t<sub>SM</sub>.
- Abb. 8-7:** Toxizitätsverläufe bei U-MOX Brennstoff und zweifacher Rezyklierung des Plutoniums mit jeweils 60 GWd/t<sub>SM</sub> Entladeabbrand

- Abb. 8-8:** Toxizitätsverläufe bei Th-MOX Brennstoff und zweifacher Rezyklierung des Plutoniums bzw. Uran und Plutoniums mit jeweils 60 GWd/t<sub>SM</sub> Entladeabbrand (Schwermetalle).
- Abb. 8-9:** Vergleich der relativen Toxizitätsverläufe von MOX-Brennstoffen bezogen auf den Referenz Uranbrennstoff bei jeweils 60 GWd/t<sub>SM</sub> Entladeabbrand
- Abb. 9-1:** Nachzerfallswärme des Uranbrennstoffs mit einem Abbrand von 47,5 GWd/t<sub>SM</sub> insgesamt und aufgeteilt nach Strukturmaterial, Actiniden und Spaltprodukten, als auch der gesamten  $\gamma$ -Leistung.
- Abb. 9-2:** Verhältnisse der Nachwärmeproduktion bei Uranbrennstoffen bei einer Steigerung des Abbrandes.
- Abb. 9-3:** Verhältnisse der Nachwärmeproduktion von U-MOX und Th-MOX Brennstoffen mit 47,5 GWd/t<sub>SM</sub> Abbrand.
- Abb. 9-4:** Reduzierung der Nachwärmeleistung durch Abtrennung von 99,9 % der Pu-Fraktion bei abgebrannten Uranbrennstoffen.
- Abb. 9-5:** Spezifische Nachwärmeproduktion des U-MOX Zyklus und dessen Komponenten.
- Abb. 9-6:** Spezifische Nachwärmeproduktion des Th-MOX Zyklus und dessen Komponenten.
- Abb. 9-7:** Vergleich der Nachwärmeproduktion der U-MOX bzw. Th-MOX Brennstoffkreisläufe mit 60 GWd/t<sub>SM</sub> Abbrand mit dem Uranbrennstoff mit einem Abbrand von 47,5 GWd/t<sub>SM</sub>.
- Abb. 9-8:** Spezifische Nachwärmeproduktion der zweistufigen U-MOX und Th-MOX Zyklen und des Uranreferenzbrennstoffs.
- Abb. 9-9:** Vergleich der Nachwärmeproduktion der U-MOX bzw. Th-MOX Brennstoffkreisläufe mit 60 GWd/t<sub>SM</sub> Abbrand mit dem Uranbrennstoff mit einem Abbrand von 47,5 GWd/t<sub>SM</sub>.
- Abb. 10-1:** Zeitlicher Verlauf der Gamma-Dosisleistung in einem Meter Abstand von der kritischen Masse des im Th-MOX Brennstoff erbrüteten Urans nach /Mag 98/.
- Abb. 11-1:** Vergleich der Transuran-Vernichtungspotentiale von verschiedenen Reaktorkonzepten.
- Abb. 11-2:** Toxizitätsverläufe des frischen Uranbrennstoffs und der Wiederaufarbeitungsabfälle bei Rezyklierung der Transuranelemente
- Abb. B-1:** Programmflußschema für CSAS1X.
- Abb. B-2:** Programmflußschema für SAS2.
- Abb. C-1:** Vergleich des Verhältnisses von Plutonium zu Plutonium im frischen Brennstoff.
- Abb. C-2:** Anteil der thermisch gut spaltbaren Plutoniumisotope am gesamten Plutonium.
- Abb. C-3:** Anteil des erbrüteten <sup>233</sup>Pa und <sup>233</sup>U bezogen auf die Zahl der zu Beginn im Brennstoff enthaltenen thermisch gut spaltbaren Plutoniumisotope.
- Abb. C-4:** Verhältnis der erbrüteten MA-Elemente zum anfänglichem Pu-Gehalt.
- Abb. D-1:** Verlauf der k-Werte bei Uran Brennstoff mit einem Entladeabbrand von 47,5 GWd/t<sub>SM</sub>.

- Abb. D-2:** Reaktivitätskoeffizienten des Uran Brennstoffes mit einem Entladeabbrand von  $47,5 \text{ GWd}/t_{\text{SM}}$  in pcm/K für Brennstofftemperatur, in  $1/10$  pcm/K für Moderatortemperatur, in  $1/10000$  pcm für den Void-Koeffizienten und pcm/ppm Bor für die Borwirksamkeit.
- Abb. D-3:** Verlauf der k-Werte bei U-MOX Brennstoff mit einem Entladeabbrand von  $47,5 \text{ GWd}/t_{\text{SM}}$ .
- Abb. D-4:** Reaktivitätskoeffizienten des U-MOX Brennstoffes mit einem Entladeabbrand von  $47,5 \text{ GWd}/t_{\text{SM}}$  in pcm/K für Brennstofftemperatur, in  $1/10$  pcm/K für Moderatortemperatur, in  $1/10000$  pcm für den Void-Koeffizienten und pcm/ppm Bor für die Borwirksamkeit.
- Abb. D-5:** Verlauf der k-Werte bei Th-MOX Brennstoff mit einem Entladeabbrand von  $47,5 \text{ GWd}/t_{\text{SM}}$ .
- Abb. D-6:** Reaktivitätskoeffizienten des Th-MOX Brennstoffes mit einem Entladeabbrand von  $47,5 \text{ GWd}/t_{\text{SM}}$  in pcm/K für Brennstofftemperatur, in  $1/10$  pcm/K für Moderatortemperatur, in  $1/10000$  pcm für den Void-Koeffizienten und pcm/ppm Bor für die Borwirksamkeit.
- Abb. D-7:** Verlauf der k-Werte bei Uran Brennstoff mit einem Entladeabbrand von  $60 \text{ GWd}/t_{\text{SM}}$ .
- Abb. D-8:** Reaktivitätskoeffizienten des Uran Brennstoffes mit einem Entladeabbrand von  $60 \text{ GWd}/t_{\text{SM}}$  in pcm/K für Brennstofftemperatur, in  $1/10$  pcm/K für Moderatortemperatur, in  $1/10000$  pcm für den Void-Koeffizienten und pcm/ppm Bor für die Borwirksamkeit.
- Abb. D-9:** Verlauf der k-Werte bei U-MOX Brennstoff mit einem Entladeabbrand von  $60 \text{ GWd}/t_{\text{SM}}$ .
- Abb. D-10:** Reaktivitätskoeffizienten des U-MOX Brennstoffes mit einem Entladeabbrand von  $60 \text{ GWd}/t_{\text{SM}}$  in pcm/K für Brennstofftemperatur, in  $1/10$  pcm/K für Moderatortemperatur, in  $1/10000$  pcm für den Void-Koeffizienten und pcm/ppm Bor für die Borwirksamkeit.
- Abb. D-11:** Verlauf der k-Werte bei U-MOX Brennstoff mit einem Entladeabbrand von  $60 \text{ GWd}/t_{\text{SM}}$ .
- Abb. D-12:** Reaktivitätskoeffizienten des U-MOX Brennstoffes mit einem Entladeabbrand von  $60 \text{ GWd}/t_{\text{SM}}$  in pcm/K für Brennstofftemperatur, in  $1/10$  pcm/K für Moderatortemperatur, in  $1/10000$  pcm für den Void-Koeffizienten und pcm/ppm Bor für die Borwirksamkeit.
- Abb. D-13:** Verlauf der k-Werte bei Th-MOX Brennstoff mit einem Entladeabbrand von  $60 \text{ GWd}/t_{\text{SM}}$ .
- Abb. D-14:** Reaktivitätskoeffizienten des U-MOX Brennstoffes mit einem Entladeabbrand von  $60 \text{ GWd}/t_{\text{SM}}$  in pcm/K für Brennstofftemperatur, in  $1/10$  pcm/K für Moderatortemperatur, in  $1/10000$  pcm für den Void-Koeffizienten und pcm/ppm Bor für die Borwirksamkeit.
- Abb. D-15:** Verlauf der k-Werte bei Th-MOX Brennstoff mit einem Entladeabbrand von  $60 \text{ GWd}/t_{\text{SM}}$ .
- Abb. D-16:** Reaktivitätskoeffizienten des U-MOX Brennstoffes mit einem Entladeabbrand von  $60 \text{ GWd}/t_{\text{SM}}$  in pcm/K für Brennstofftemperatur, in  $1/10$  pcm/K für Moderatortemperatur, in  $1/10000$  pcm für den Void-Koeffizienten und pcm/ppm Bor für die Borwirksamkeit.

- Abb. D-17:** Verlauf der k-Werte bei Uran Brennstoff mit einem Entladeabbrand von  $100 \text{ GWd}/t_{\text{SM}}$ .
- Abb. D-18:** Reaktivitätskoeffizienten des U-MOX Brennstoffes mit einem Entladeabbrand von  $100 \text{ GWd}/t_{\text{SM}}$  in pcm/K für Brennstofftemperatur, in  $1/10$  pcm/K für Moderatortemperatur, in  $1/10000$  pcm für den Void-Koeffizienten und pcm/ppm Bor für die Borwirksamkeit.
- Abb. D-19:** Verlauf der k-Werte bei U-MOX Brennstoff mit einem Entladeabbrand von  $100 \text{ GWd}/t_{\text{SM}}$ .
- Abb. D-20:** Reaktivitätskoeffizienten des U-MOX Brennstoffes mit einem Entladeabbrand von  $100 \text{ GWd}/t_{\text{SM}}$  in pcm/K für Brennstofftemperatur, in  $1/10$  pcm/K für Moderatortemperatur, in  $1/10000$  pcm für den Void-Koeffizienten und pcm/ppm Bor für die Borwirksamkeit.
- Abb. D-21:** Verlauf der k-Werte bei U-MOX Brennstoff mit einem Entladeabbrand von  $100 \text{ GWd}/t_{\text{SM}}$ .
- Abb. D-22:** Reaktivitätskoeffizienten des U-MOX Brennstoffes mit einem Entladeabbrand von  $100 \text{ GWd}/t_{\text{SM}}$  in pcm/K für Brennstofftemperatur, in  $1/10$  pcm/K für Moderatortemperatur, in  $1/10000$  pcm für den Void-Koeffizienten und pcm/ppm Bor für die Borwirksamkeit.
- Abb. D-23:** Verlauf der k-Werte bei U-MOX Brennstoff mit einem Entladeabbrand von  $100 \text{ GWd}/t_{\text{SM}}$ .
- Abb. D-24:** Reaktivitätskoeffizienten des U-MOX Brennstoffes mit einem Entladeabbrand von  $100 \text{ GWd}/t_{\text{SM}}$  in pcm/K für Brennstofftemperatur, in  $1/10$  pcm/K für Moderatortemperatur, in  $1/10000$  pcm für den Void-Koeffizienten und pcm/ppm Bor für die Borwirksamkeit.
- Abb. D-25:** Verlauf der k-Werte bei Th-MOX Brennstoff mit einem Entladeabbrand von  $100 \text{ GWd}/t_{\text{SM}}$ .
- Abb. D-26:** Reaktivitätskoeffizienten des Th-MOX Brennstoffes mit einem Entladeabbrand von  $100 \text{ GWd}/t_{\text{SM}}$  in pcm/K für Brennstofftemperatur, in  $1/10$  pcm/K für Moderatortemperatur, in  $1/10000$  pcm für den Void-Koeffizienten und pcm/ppm Bor für die Borwirksamkeit.
- Abb. D-27:** Verlauf der k-Werte bei Th-MOX Brennstoff mit einem Entladeabbrand von  $100 \text{ GWd}/t_{\text{SM}}$ .
- Abb. D-28:** Reaktivitätskoeffizienten des Th-MOX Brennstoffes mit einem Entladeabbrand von  $100 \text{ GWd}/t_{\text{SM}}$  in pcm/K für Brennstofftemperatur, in  $1/10$  pcm/K für Moderatortemperatur, in  $1/10000$  pcm für den Void-Koeffizienten und pcm/ppm Bor für die Borwirksamkeit.
- Abb. D-29:** Verlauf der k-Werte bei Th-MOX Brennstoff mit einem Entladeabbrand von  $100 \text{ GWd}/t_{\text{SM}}$ .
- Abb. D-30:** Reaktivitätskoeffizienten des Th-MOX Brennstoffes mit einem Entladeabbrand von  $100 \text{ GWd}/t_{\text{SM}}$  in pcm/K für Brennstofftemperatur, in  $1/10$  pcm/K für Moderatortemperatur, in  $1/10000$  pcm für den Void-Koeffizienten und pcm/ppm Bor für die Borwirksamkeit.
- Abb. D-31:** Verlauf der k-Werte bei U-MOX Brennstoff der zweiten Rezyklierung mit einem Entladeabbrand von  $60 \text{ GWd}/t_{\text{SM}}$ .

- Abb. D-32:** Reaktivitätskoeffizienten des U-MOX Brennstoffs der zweiten Rezyklierung (nur Plutonium rezykliert) mit einem Entladeabbrand von  $60 \text{ GWd}/t_{\text{SM}}$  in pcm/K für Brennstofftemperatur, in  $1/10$  pcm/K für Moderatortemperatur, in  $1/10000$  pcm für den Void-Koeffizienten und pcm/ppm Bor für die Borwirksamkeit.
- Abb. D-33:** Verlauf der k-Werte bei Th-MOX Brennstoff (nur Plutonium rezykliert) der zweiten Rezyklierung mit einem Entladeabbrand von  $60 \text{ GWd}/t_{\text{SM}}$ .
- Abb. D-34:** Reaktivitätskoeffizienten des Th-MOX Brennstoffes der zweiten Rezyklierung (nur Plutonium rezykliert) mit einem Entladeabbrand von  $60 \text{ GWd}/t_{\text{SM}}$  in pcm/K für Brennstofftemperatur, in  $1/10$  pcm/K für Moderatortemperatur, in  $1/10000$  pcm für den Void-Koeffizienten und pcm/ppm Bor für die Borwirksamkeit.
- Abb. D-35:** Verlauf der k-Werte bei Th-MOX Brennstoff (Plutonium und Uran von Th-MOX rezykliert) der zweiten Rezyklierung mit einem Entladeabbrand von  $60 \text{ GWd}/t_{\text{SM}}$ .
- Abb. D-36:** Reaktivitätskoeffizienten des Th-MOX Brennstoffes der zweiten Rezyklierung (Plutonium und Uran von Th-MOX rezykliert) mit einem Entladeabbrand von  $60 \text{ GWd}/t_{\text{SM}}$  in pcm/K für Brennstofftemperatur, in  $1/10$  pcm/K für Moderatortemperatur, in  $1/10000$  pcm für den Void-Koeffizienten und pcm/ppm Bor für die Borwirksamkeit.
- Abb. D-37:** Verlauf der k-Werte bei U-TRU-MOX mit einem Entladeabbrand von  $60 \text{ GWd}/t_{\text{SM}}$  und einer auf 49 erhöhten Zahl an Leerstäben.
- Abb. D-38:** Reaktivitätskoeffizienten des U-TRU-MOX Brennstoffs mit einem Entladeabbrand von  $60 \text{ GWd}/t_{\text{SM}}$  und 49 Leerstäben in pcm/K für Brennstofftemperatur, in  $1/10$  pcm/K für Moderatortemperatur, in  $1/10000$  pcm für den Void-Koeffizienten und pcm/ppm Bor für die Borwirksamkeit.
- Abb. D-39:** Verlauf der k-Werte bei Th-TRU-MOX mit einem Entladeabbrand von  $60 \text{ GWd}/t_{\text{SM}}$  und einer auf 49 erhöhten Zahl an Leerstäben.
- Abb. D-40:** Reaktivitätskoeffizienten des Th-TRU-MOX Brennstoffs mit einem Entladeabbrand von  $60 \text{ GWd}/t_{\text{SM}}$  und 49 Leerstäben in pcm/K für Brennstofftemperatur, in  $1/10$  pcm/K für Moderatortemperatur, in  $1/10000$  pcm für den Void-Koeffizienten und pcm/ppm Bor für die Borwirksamkeit.
- Abb. E-1:** Toxizitätspotentiale aller Massenströme des zweistufigen Brennstoffzyklus mit einem Entladeabbrand von  $60 \text{ GWd}/t_{\text{SM}}$ .
- Abb. E-2:** Toxizitätspotentiale aller Massenströme des zweistufigen Brennstoffzyklus mit einem Entladeabbrand von  $100 \text{ GWd}/t_{\text{SM}}$ .
- Abb. E-3:** Toxizitätspotentiale der zweistufigen Brennstoffkreisläufe bezogen auf den mit  $47,5 \text{ GWd}/t_{\text{SM}}$  abgebrannten Referenzuranbrennstoff.
- Abb. F-1:** Abnahme der Nachzerfallswärmeproduktion des Uranbrennstoffs mit  $60 \text{ GWd}/t_{\text{SM}}$  Entladeabbrand.
- Abb. F-2:** Abnahme der Nachzerfallswärmeproduktion des U-MOX Brennstoffs mit  $60 \text{ GWd}/t_{\text{SM}}$  Entladeabbrand.
- Abb. F-3:** Abnahme der Nachzerfallswärmeproduktion des Th-MOX Brennstoffs mit  $60 \text{ GWd}/t_{\text{SM}}$  Entladeabbrand.
- Abb. F-4:** Abnahme der Nachzerfallswärmeproduktion des U-MOX Brennstoffs (zweite Rezyklierung) mit  $60 \text{ GWd}/t_{\text{SM}}$  Entladeabbrand.

- Abb. F-5:** Abnahme der Nachzerfallswärmeproduktion des Th-MOX Brennstoffs (zweite Rezyklierung) mit  $60 \text{ GWd/t}_{\text{SM}}$  Entladeabbrand.
- Abb. F-6:** Abnahme der Nachzerfallswärmeproduktion der WAA Abfälle bei der Aufarbeitung von Uranbrennstoff mit  $60 \text{ GWd/t}_{\text{SM}}$  Entladeabbrand.
- Abb. F-7:** Abnahme der Nachzerfallswärmeproduktion der WAA Abfälle bei der Aufarbeitung von U-MOX Brennstoff mit  $60 \text{ GWd/t}_{\text{SM}}$  Entladeabbrand.
- Abb. F-8:** Abnahme der Nachzerfallswärmeproduktion der WAA Abfälle bei der Aufarbeitung von Th-MOX Brennstoff mit  $60 \text{ GWd/t}_{\text{SM}}$  Entladeabbrand.



## Tabellenverzeichnis

- Tab. 1-1:** Energiemix in der BRD 1996 /BMW 97/.
- Tab. 2-1:** Jährliche Entlademengen eines DWR mit 1460 MW.
- Tab. 2-2:** Abtrennraten an TRU bei der WAA heute und beispielsweise zur Transmutation.
- Tab. 3-1:** Übersicht über durchgeführte Bestrahlungen von Thoriumbrennstoffen.
- Tab. 3-2:** Vergleich der Materialkennwerte von ThO<sub>2</sub> mit UO<sub>2</sub> nach /Das 90/.
- Tab. 4-1:** Auslegungsdaten des N4 Reaktors
- Tab. 4-2:** Daten der Einheitszelle des N4 Reaktors.
- Tab. 5-1:** Vergleich der Plutonium und Uran Vektoren bei Verwendung verschiedener Datenbanken innerhalb des SCALE Programmsystems.
- Tab. 5-2:** Verringerung des Moderationsverhältnisses und sein Einfluß auf die Ergebnisse bei Verwendung unterschiedlicher Datenbanken. Die ECN Werte beziehen sich auf das Moderationsverhältnis des N4 Brennelementbündels mit Leerstäben.
- Tab. 5-3:** Vergleich der mit SCALE (123 Gruppen mit JEF 1 und JEF 2.2 Wirkungsquerschnitten) berechneten Nuklidvektoren mit Eckdaten des /NEA 96/ Benchmarks, C=Berechnung; E=Experimentelle Daten; B=Benchmarkmittelwert.
- Tab. 6-1:** Isotopenzusammensetzung des Uranoxid Referenzbrennstoffs für 47,5 GWd/t<sub>SM</sub> Abbrand.
- Tab. 6-2:** Abbrandschemata für die drei untersuchten Entladeabbrände.
- Tab. 6-3:** Plutonium-Nuklidvektoren die als Spaltstoffen in MOX Brennstoffen verwendet werden.
- Tab. 6-4:** Erforderliche Anreicherung an spaltbaren Isotopen für die untersuchten Brennstoffe.
- Tab. 6-5:** Erforderliche Borkonzentration im Moderator zu Beginn der Zyklen für die untersuchten Brennstoffe.
- Tab. 6-6:** Umsatzraten von Plutonium und Minor Actinides (MA) bei U-MOX Brennstoffen.
- Tab. 6-7:** Umsatzraten von Plutonium und Minor Actinides (MA) bei Th-MOX Brennstoffen.
- Tab. 6-8:** Reaktivitätskoeffizienten für Uran, U-MOX und Th-MOX Systeme, die mit Plutonium Vektoren aus Uranbrennstoff des gleichen Endabbrandes getrieben werden in pcm/K für Brennstoff-/ Moderatortemperatur, pcm für Void und pcm/ppm für die Borwirksamkeit.
- Tab. 6-9:** Reaktivitätskoeffizienten für das U-MOX System – Endabbrand ist in der ersten Zeile der Überschrift und der Abbrand des Plutonium liefernden Uran Systems in der zweiten Zeile gegeben- in pcm/K für Brennstoff-/ Moderatortemperatur, pcm für Void und pcm/ppm für die Borwirksamkeit.

- Tab. 6-10:** Reaktivitätskoeffizienten für das Th-MOX System – Endabbrand ist in der ersten Zeile der Überschrift und der Abbrand des Plutonium liefernden Uran Systems in der zweiten Zeile gegeben- in pcm/K für Brennstoff-/ Moderator temperatur, pcm für Void und pcm/ppm für die Borwirksamkeit.
- Tab. 6-11:** Nuklidvektoren der treibenden Brennstofffraktionen und den kompletten Nuklidvektor für die zweite Rezyklierung.
- Tab. 6-12:** Umsatzraten von Plutonium und Minor Actinides (MA) bei zweifach rezyklierten Brennstoffen mit einem Entladeabbrand von 60 GWd/t<sub>SM</sub>.
- Tab. 6-13:** Vergleich der Pu- und TRU-Umsatzraten des gesamten Brennstoffzyklus bis einschließlich der ersten Rezyklierung
- Tab. 6-14:** Reaktivitätskoeffizienten für die zweifach rezyklierten Brennstoffe, die mit Plutonium (und Uran) Vektoren aus der jeweiligen ersten MOX-Stufe mit einem Endabbrand von 60 GWd/t<sub>SM</sub> getrieben werden in pcm/K für Brennstoff-/ Moderator temperatur, pcm für Void und pcm/ppm für die Borwirksamkeit.
- Tab. 7-1:** Nuklidvektoren der Transuran-Spaltstofffraktion und des frischen U-MOX bzw. Th-MOX Brennstoffs.
- Tab. 7-2:** Umsatzraten von Plutonium und Minor Actinides (MA) bei TRU Rezyklierung und Verwendung von Uran und Thorium als Basismaterial.
- Tab. 7-3:** Reaktivitätskoeffizienten für TRU Rezyklierung mit Uran und Thorium als Basismaterial und einem Entladeabbrand von 60 GWd/t<sub>SM</sub>.
- Tab. 7-4:** Zusammensetzung des Kraftwerkparcs bei Rezyklierung von ausschließlich Plutonium bzw. von Pu, Np und Am im Th-MOX Brennstoff.
- Tab. 10-1:** Vergleich des in den abgebrannten MOX Brennstoffen der ersten Rezyklierung enthaltenen Plutoniums mit dem im Uransystem erbrüteten Plutonium hinsichtlich dessen Eignung zu Proliferationszwecken nach /Mag 98/.
- Tab. 10-2:** Uranvektor im abgebrannten Th-MOX Brennstoff.
- Tab. 11-1:** Umgesetzte Masse an Plutonium bezogen auf die im frischen Brennstoff vorhandene Plutoniummasse für MOX Brennstoffe.
- Tab. 11-2:** Umgesetzte Masse an Transuranen bezogen auf die im frischen Brennstoff vorhandene Transuranmasse für MOX Brennstoffe.

# **1 Einleitung**

## **1.1 Weltweiter Primärenergiebedarf**

Seit dem Beginn der Industrialisierung im 19. Jahrhundert ist sowohl die Weltbevölkerung als auch deren Energiebedarf – mit Ausnahme zur Zeit der Weltkriege – kontinuierlich gestiegen. Seit Beginn der sechziger Jahre des 20. Jahrhunderts ist die Kernenergie in den meisten Industrienationen zur Marktreife entwickelt und deren Anteil an der Energiewandlung ausgebaut worden. Neben der Stromerzeugung aus fossilen Energieträgern und Wasserkraft, hat nur die Kernenergie das Potential im relevanten Umfang als Primärenergieträger eingesetzt werden zu können.

### **1.1.1 Wasserkraft**

Eine weitere Nutzung der Wasserkraft über das bisherige Maß hinaus ist in vielen – insbesondere industrialisierten - Ländern nicht mehr möglich, da eine entsprechende Topographie vorausgesetzt werden muß. Neue Staudammprojekte sind mit der Überflutung von zum Teil erheblichen Gebieten verbunden. Dies führt zu sozial gesellschaftlichen Problemen (erforderliche Umsiedlungen) als auch unter Umständen zur Beeinflussung des lokalen Klimas. Ein massiver Ausbau der Wasserkraft ist zumindest innerhalb Europas aus diesen Gründen nicht zu erwarten.

### **1.1.2 Fossile Energieträger**

Die drei fossilen Energieträger, die im wesentlichen in der Energiewirtschaft genutzt werden, sind Kohle, Öl und Gas. Bei der Verbrennung dieser Energieträger wird Kohlendioxid ( $\text{CO}_2$ ) freigesetzt. Der Einfluß eines Anstiegs des  $\text{CO}_2$  Gehaltes in der Atmosphäre auf das globale Klima ist bei den Experten umstritten. Eine globale Erwärmung und die zugehörige Verschiebung der Klimazonen auf der Erde durch eine Erhöhung der  $\text{CO}_2$  Konzentration können zumindest nicht ausgeschlossen werden. Dies hätte fatale Folgen, da die Wüsten sich ausdehnen und die Ernährung der wachsenden Weltbevölkerung noch schwieriger – wenn nicht

gänzlich – unmöglich würde. Bei den Primärenergieträgern wird bei Gas anteilig am wenigsten  $\text{CO}_2$  produziert. Deshalb wird Gas sehr oft als umweltfreundlicher Primärenergieträger bezeichnet und dessen Nutzung forciert, um die zum Teil ehrgeizigen  $\text{CO}_2$  Reduktionspläne einiger Industrienationen, die von der Weltklimakonferenz gefordert werden, zu erreichen. Man darf bei der Einschätzung der Umweltverträglichkeit die Leckageverluste an  $\text{CH}_4$  und den Gasverbrauch zur Kompensation der Reibungsverluste beim Transport der Erdgases nicht vernachlässigen, denn die Klimarelevanz von  $\text{CH}_4$  ist ungleich größer als die von  $\text{CO}_2$ .

### 1.1.3 Kernenergie

Nach Störfällen in Kernkraftwerken – insbesondere nach TMI (USA) und der Havarie in Tschernobyl (UdSSR) – ist die Nutzung der Kernenergie zunehmend mit Akzeptanzproblemen innerhalb der Bevölkerung behaftet. Eine Lösung kann hier in der Entwicklung von Reaktorkonzepten, bei denen die Auswirkungen von Störfällen und Havarien mit inneren Ursachen naturgesetzlich auf das Betriebsgelände begrenzt wird, liegen. Neben einigen evolutionären Ansätzen der großen Reaktorhersteller, die im wesentlichen die etablierte Leichtwasser Reaktorlinie weiterentwickeln, sind auch innovative Konzepte von Reaktoren in der Diskussion, die diesen Ansprüchen gerecht werden, z. B. der modulare Hochtemperaturreaktor (HTR).

Ein erheblicher Teil der Akzeptanzprobleme der Kerntechnik ist nicht nur bei den Risiken während des Reaktorbetriebes zu begründen, sondern liegt in der Entsorgungsfrage, deren Lösung in Politik und Gesellschaft diskutiert wird. Hier fällt insbesondere dem Plutonium eine große Aufmerksamkeit zu, da dessen sichere Verwahrung bzw. Vernichtung auch aus Proliferationsgründen gewährleistet sein muß. Möchte man auf den erforderlichen Abschluß des Plutoniums und der wärmeerzeugenden Abfälle insgesamt von vielen Millionen Jahren von der Biosphäre verzichten, so muß man die langlebigen, radiotoxischen Nuklide in kurzlebige umwandeln. Dieser Vorgang wird als Transmutation bezeichnet.

Die Zukunft der Kernenergie wird mit der Klärung der langfristigen Entsorgungsfrage und der Entwicklung von Reaktoren mit einer neuen Sicherheitsqualität verknüpft sein.

### 1.1.4 Alternative Energieträger

Bei den alternativen Energieträgern stehen die Nutzung der Windkraft und der Sonnenenergie im Mittelpunkt der öffentlich meist emotional geführten Diskussion. Bei der Sonnenenergie muß unterschieden werden zwischen solarthermischen und photovoltaischen Kraftwerken. Allen alternativen Energieträgern gemeinsam ist eine im Vergleich zu den oben genannten Primärenergieträgern sehr geringe Energiedichte. Um ein Kraftwerk mit einer entsprechenden Leistung zu errichten sind entsprechend große oder viele modulare Anlagen erforderlich. Dies führt zu relativ großen Stoffströmen bei der Errichtung der Anlagen und meistens noch zu hohen Investitionskosten. Die großen Stoffströme führen zu langen

Tab. 1-1: Energiemix in der BRD 1996 /BMW 97/.

Energieträger	Primärenergieverbrauch	Stromerzeugung
Mineralöl	39,4 %	66,7 %
Steinkohle	13,8 %	
Braunkohle	11,5 %	
Erdgas	21,5 %	
Kernenergie	12,0 %	29,4 %
Wasserkraft	0,5 %	3,9 %
Sonstige	1,4 %	0 %

Energierückflußzeiten und zu vergleichsweise geringen Erntefaktoren. Dies stellt in vielen Fällen unmittelbar den ökologisch und wirtschaftlich sinnvollen Einsatz dieser Energiequellen in Frage. Auch unabhängig von allen Kostenfragen kann die Einführung solcher Energieträger wegen der hohen Rückflußzeiten ohne Zuführung zusätzlicher Energie aus

konventionellen Kraftwerken nur sehr langsam erfolgen, so daß diese auf absehbare Zeit nur einen untergeordneten Anteil an der Energiebereitstellung haben werden.

## 1.2 Heutiger Energieverbrauch

Die Anteile der Primärenergieträger sowohl am gesamten Energieverbrauch als auch an der Stromerzeugung sind für die Bundesrepublik Deutschland in Tab. 1-1 aufgeführt. Der gesamte weltweite Energiebedarf liegt derzeit bei  $13 \cdot 10^9$  t<sub>SKE</sub>/a um den Bedarf von ca.  $5,8 \cdot 10^9$  Menschen zu decken. Der Nettoverbrauch an elektrischer Energie pro Kopf ist nach /Kug 98/ für die relevantesten Nationen in Abb. 1-1 gezeigt. Man erkennt daß Länder mit sehr hoher Bevölkerungszahl

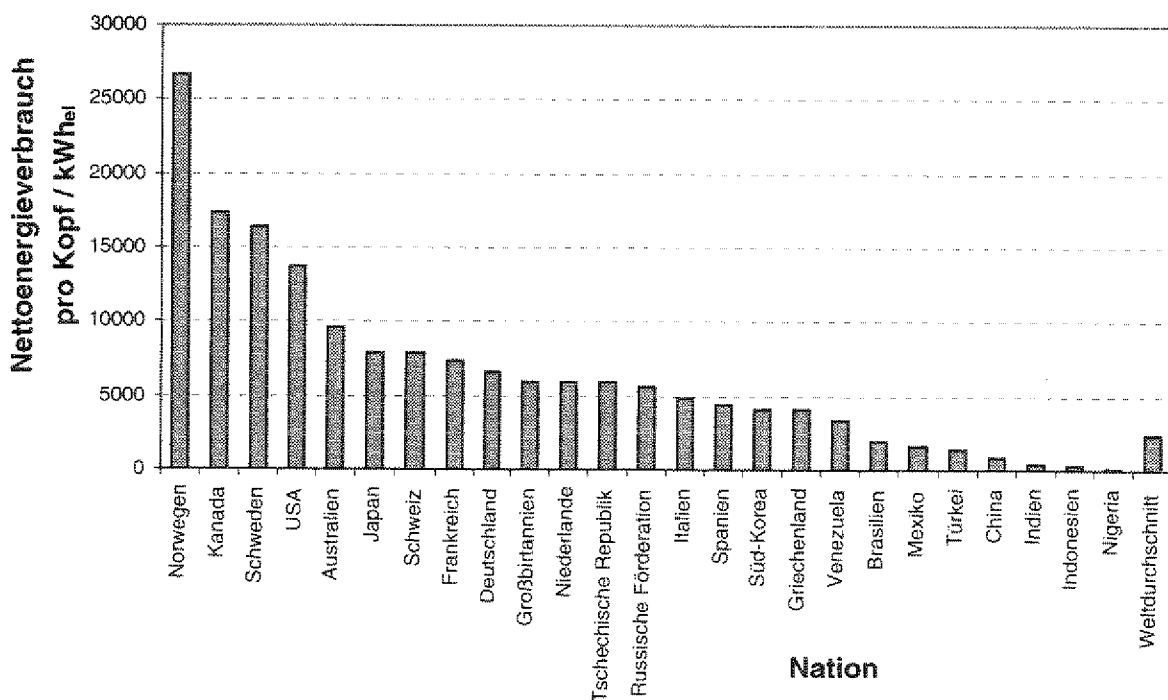
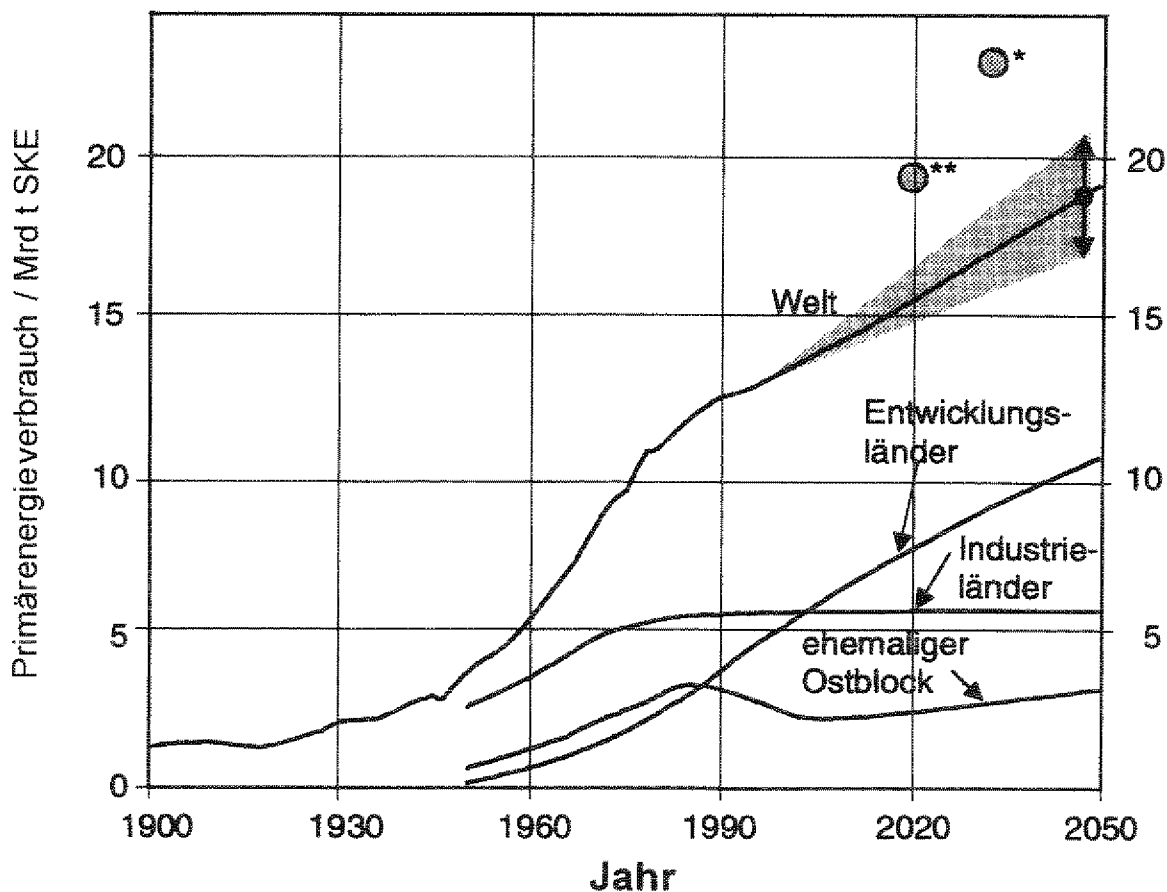


Abb. 1-1: Derzeitiger pro Kopf Nettoverbrauch an elektrischer Energie in wichtigen Staaten nach /Kug 98/.

(z. B. China) einen noch sehr geringen spezifischen Verbrauch von elektrischer Energie aufweisen. Entsprechend kann davon ausgegangen werden, daß ein Wirtschaftswachstum in diesen Nationen viel enger mit dem Energieverbrauch verknüpft ist, als in den bereits hoch industrialisierten Staaten wie z. B. der Bundesrepublik Deutschland. Dementsprechend stehen den Einsparzielen an Kohlendioxid von 25 % im Fall der BRD enorme Steigerungspotentiale in den Ländern der dritten Welt gegenüber, wenn die Stromerzeugung dort überwiegend aus fossilen Energieträgern gedeckt werden sollte. Unterstrichen wird dies durch das überproportional hohe Bevölkerungswachstum in diesen Nationen. In diesem Zusammenhang wird erkennbar, daß die Energiefrage in absehbarer Zukunft nicht durch Einsparungen in den Industrieländern allein gelöst werden kann. Die Lösung der Problematik liegt insbesondere in der Bereitstellung umweltfreundlicher Energiewandlungsmethoden in den Schwellenländern.

### 1.3 Prognosen zum Weltenergieverbrauch

Die Entwicklung des Weltenergiebedarfs ist an die erwartete Zunahme der Weltbevölkerung gekoppelt. /Hei 97/ prognostiziert die in **Abb. 1-2** dargestellte Zunahme des Primärenergieverbrauchs bis zum Jahr 2050.



**Abb. 1-2:** Prognose der Energiewandlung nach /Hei 97/ bis 2050. (Die mit \* gekennzeichneten Werte sind nach dem Erdgas Weltkongreß, 1997 bzw. bei Kennzeichnung mit \*\* nach der Weltenergiekonferenz WEC 1995 eingezeichnet.).

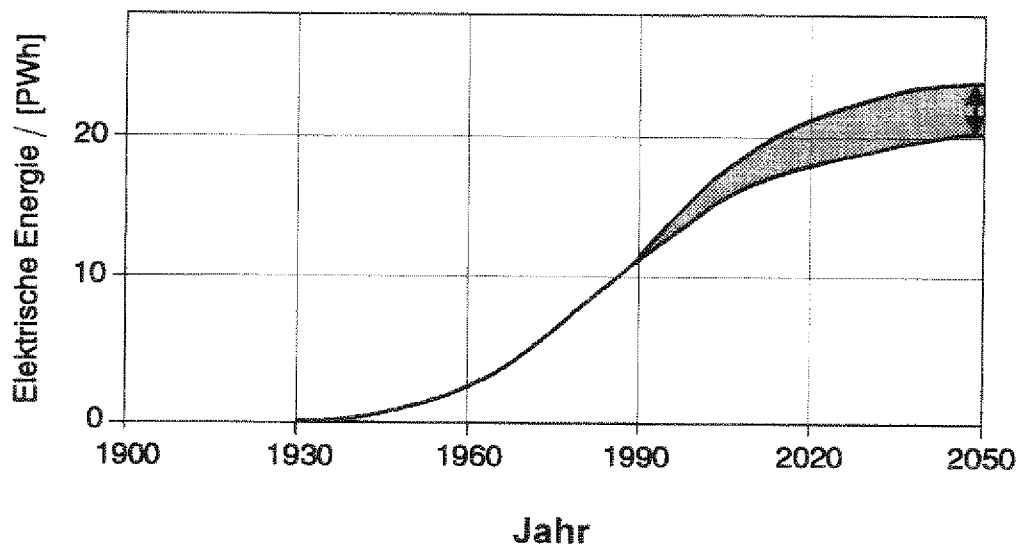


Abb. 1-3: Prognostizierter Anstieg des Bedarfs an elektrischer Energie der Weltbevölkerung nach /Hei 97/.

Korrespondierend wird in **Abb. 1-3** die Zunahme des Bedarfs an elektrischer Energie nach /Hei 97/ gezeigt. In einer Prognose vom September 1998 /WEL 98/ geht der Weltenergieerat übereinstimmend mit /Hei 97/ von einer Zunahme der Weltbevölkerung von

derzeit sechs Milliarden Menschen auf zehn Milliarden Menschen im Jahr 2050 aus. Es werden auch 2050 alle heute genutzten Primärenergieträger eingesetzt werden müssen, um den Bedarf decken zu können. Der relative Anteil der Kernenergie an allen Primärenergieträgern 1998 und dessen prognostizierte Entwicklung ist in

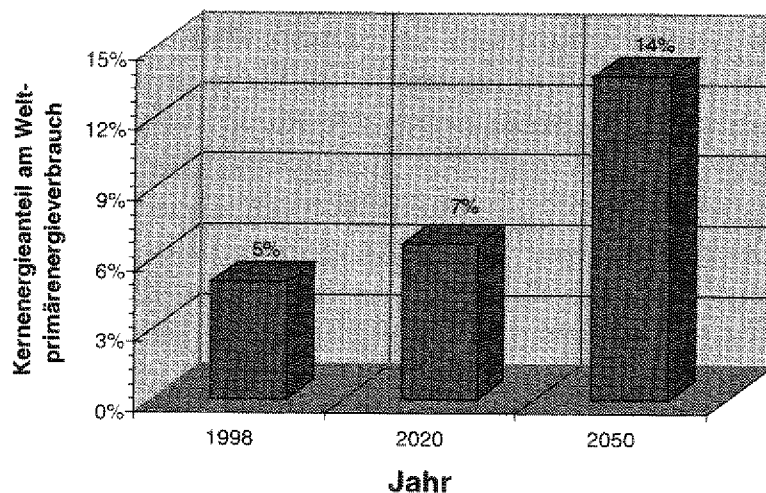


Abb. 1-4: Anteil der Kernenergie am Primärenergiebedarf und dessen prognostizierte Entwicklung nach /Wel 98/.

**Abb. 1-4** gezeigt. Man erkennt eine Steigerung des Anteils der Kernenergie am gesamten Primärenergiebedarf um einen Faktor von größer als 2,5 bis zum Jahr 2050. Da der gesamte Energiebedarf sich in dieser Zeit ebenfalls um prognostizierte 40 % erhöht, ist davon auszugehen, daß die installierte nukleare Leistung in den nächsten 50 Jahren mindestens verdreifacht werden wird. Vor diesem Hintergrund ist das weltweit steigende Interesse an Kernreaktoren mit gesteigerter Sicherheit, als auch an innovativen Wegen zur Lösung der Entsorgungs-

problematik wie zum Beispiel der Toxizitätsreduzierung des hochradioaktiven Abfalls durch Partitioning und Transmutation zu sehen.

## 1.4 Inhalte dieser Arbeit

Nachdem in dieser Einführung deutlich gemacht wurde, daß zur Zeit davon ausgegangen wird, daß auf die friedliche Nutzung des Primärenergieträgers Kernkraft in der ersten Hälfte des nächsten Jahrhunderts weltweit nicht verzichtet werden kann, werden in Kapitel 2 die Ziele, Möglichkeiten und Grenzen der Transmutation und des dazugehörenden Partitioning diskutiert. Dabei erfolgt eine Gegenüberstellung der heutigen Entsorgungskonzepte mit innovativen Brennstoffkreisläufen. Der Schwerpunkt der Arbeit ist die Untersuchung des etablierten Druckwasserreaktors in Verbindung mit Thorium als Basismaterial der Brennelemente mit dem Ziel, das Gefährdungspotential des abgebrannten Brennstoffs zu reduzieren. Die Zusammenfassung einer umfangreichen Literaturrecherche zu Thorium als Brennstoffmaterial ist in Kapitel 3 enthalten. Anschließend werden in Kapitel 4 die angewendeten Rechenverfahren beschrieben, mit denen das neutronische Verhalten der untersuchten Brennstoffe im Reaktor modelliert wird. Um die Qualität der numerischen Simulationen sicherzustellen, wurden umfangreiche Benchmarkrechnungen durchgeführt. Die Auswertung dieser Studien wird in Kapitel 5 vorgestellt.

Das Kapitel 6 enthält vergleichende Abbrandrechnungen. Dabei wurden als Referenz sowohl reine Uran Brennstoffe als auch bereits übliche uranbasierte Plutonium-Mischoxidbrennstoffe (U-MOX) berechnet und mit den thoriumbasierten Plutonium-MOX-Brennstoffen (Th-MOX) verglichen. Ziel ist eine möglichst vollständige Vernichtung des Plutoniums. Die Realisierbarkeit der Brennstoffe hängt unmittelbar vom Sicherheitsverhalten des Kerns ab. Dieses wird für den Druckwasserreaktor durch Bestimmung der Reaktivitätskoeffizienten geprüft. Neben der ersten Rezyklierung des Plutoniums wird auch die zweite Rezyklierungsstufe hinsichtlich ihrer Plutonium Umsatzraten und ihrer Reaktivitätskoeffizienten untersucht. Ausblickend auf eventuelle, zukünftige geschlossene Plutoniumkreisläufe wird ein Szenario eines entsprechenden Brennstoffkreislaufs entwickelt und die Möglichkeiten einer eventuellen Realisierung geprüft. Das Kapitel 7 ist analog aufgebaut, mit dem Unterschied, daß neben Plutonium auch die wichtigen Minor Actinides (MA) nämlich Neptunium, Americium und Curium bei der Wiederaufarbeitung zurückgewonnen und rezykliert werden. Auch hier werden die Reaktivitätskoeffizienten berechnet, um das Sicherheitsverhalten dieser Transuranbrennstoffe beurteilen zu können. In Kapitel 8 werden die zeitlichen Verläufe der Toxizitätspotentiale der abgebrannten Brennstoffe mit denen der frischen Brennstoffe verglichen. Auf diese Weise wird erkennbar, welche Toxizität durch den menschlichen Eingriff bei der Energiewandlung im Reaktor zusätzlich erzeugt wurde. Ebenfalls kann man die Zeitspanne ablesen, nach der die Toxizität wieder das Niveau des frischen Brennstoffs erreicht hat. Diese Angabe ermöglicht die Beurteilung, wie lange der Abschluß der Ab-

fälle von der Biosphäre durch das Endlager sichergestellt werden muß. Für die Stabilität der Formation eines Endlagers ist der Wärmeeintrag der abgebrannten Brennstoffe relevant. Dieser sollte so gering wie möglich sein beziehungsweise möglichst schnell während der überirdischen Zwischenlagerung abfallen. In Kapitel 9 befindet sich die vergleichende Betrachtung aller untersuchten Brennstoffe hinsichtlich dieses Kriteriums. Ein weiterer zu berücksichtigender Aspekt bei der Einführung des thoriumbasierten Brennstoffkreislaufs ist die Proliferationsgefahr. Aus diesem Grunde werden der Uran- und der Thorium-Brennstoffkreislauf auf die Möglichkeiten der Abtrennung von waffenfähigem Material hin in Kapitel 10 untersucht.

Das Kapitel 11 faßt die Ergebnisse zusammen und beinhaltet die entsprechenden Schlußfolgerungen. Ebenso wird hier ein Vergleich der Potentiale des Druckwasserreaktors in Bezug auf die Plutonium Vernichtung mit anderen Reaktorkonzepten gezeigt. In den Anhängen befinden sich für den interessierten Leser weitere Rechenergebnisse zu den einzelnen Themen der Arbeit.



## **2 Motivation für Partitioning und Transmutation**

### **2.1 Bisherige Konzepte zur Entsorgung von Kernkraftwerken**

Die bei der Nutzung der Kernenergie entstehenden Abfälle können je nach ihrem Aktivitätsinventar in schwach-, mittel- und hochaktive Abfälle unterteilt werden. Dabei liegt das Problem des erforderlichen Abschlusses von der Biosphäre für Jahrhunderttausende bei den hochaktiven Abfällen (HAW), die im wesentlichen die entladenen Brennelemente eines Kraftwerkes bzw. den verglasten Abfall aus der Wiederaufarbeitung darstellen. Bisher werden von den Nationen, die die Kernenergie nutzen, zwei verschiedene Entsorgungspfade für den hochradioaktiven Abfall vorgeschlagen,

- Direkte Endlagerung abgebrannter Brennelemente und,
- Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen und Endlagerung der Abfälle.

#### **2.1.1 Direkte Endlagerung**

Sowohl bei der direkten Endlagerung als auch bei dem Weg der Wiederaufarbeitung wird der aus dem Reaktor entladene Brennstoff für einige Jahre in das Kompaktlager gebracht. Dieses Lager befindet sich bei den Reaktoren in der BRD im Reaktorcontainment. Es ist ein sogenanntes Naßlager, d. h. die Brennelemente werden unter Wasser gelagert. Dieses Wasser übernimmt sowohl die Aufgabe der Abschirmung der radioaktiven Strahlung als auch die der Nachwärmeabfuhr. Um letzteres zu gewährleisten, muß das Becken durch aktive Komponenten gekühlt werden. Nach dieser Lagerzeit werden die Brennelemente in einen Transportbehälter z. B. vom Typ CASTOR verladen. Die noch vorhandene Nachzerfallswärme ist so gering, daß sie inhärent durch Wärmestrahlung und Naturkonvektion aus dem gerippten Transportbehälter abgeführt werden kann. Sinnvoll ist eine Zwischenlagerung in diesem Behälter für einige Jahrzehnte, jedoch ist dies keine technische Grenze. Dann ist die Nachwärmeproduktion nochmals stark abgeklungen. Die Brennstäbe sollen anschließend konditioniert, in einen Endlagerbehälter umgeladen und in einer geologisch stabilen von der Biosphäre abgeschlossenen Formation eingelagert werden. Dabei fällt dieser

geologischen Formation des Endlagers die Aufgabe der langfristigen Rückhaltung des Aktivitätsinventars zu.

### 2.1.2 Wiederaufarbeitung

**Tab. 2-1:** Jährliche Entlademengen eines DWR mit 1460 MWe nach 10 Jahren Abklingzeit.

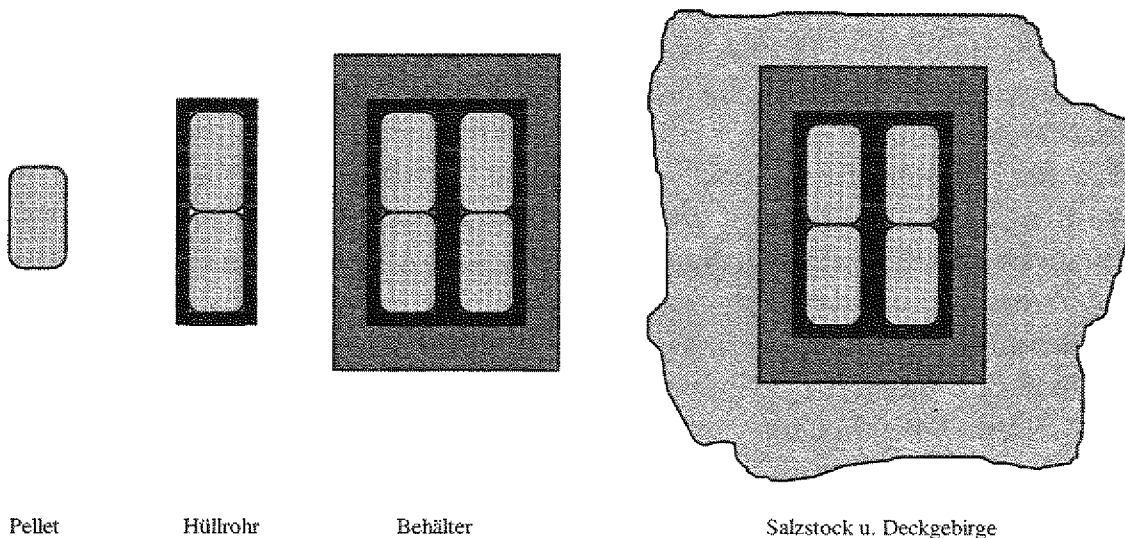
Material	Menge
Strukturmaterialien	15.000 kg
Spaltprodukte	1.350 kg
Transurane ohne Pu	37 kg
Uran	33600 kg
Plutonium	333 kg

Beim Weg der Wiederaufarbeitung werden die Brennelemente nach einer Zwischenlagerzeit von einigen Jahren in einer Wiederaufarbeitungsanlage zerlegt. Die Zusammensetzung einer Jahresentladung des N4 Druckwasserreaktors mit 1460 MWe zehn Jahre nach der Entnahme aus dem Reaktor mit einem Abbrand von 35 GWd/t<sub>SM</sub> ist in der **Tab. 2-1** gezeigt. In der Wiederaufarbeitungsanlage werden die Strukturteile vom Brennstoff getrennt. Aus den Brennstoffpellets werden die Uran- und Plutoniumfraktion von den Spaltprodukten und den verbleiben-

den Actiniden abgetrennt. Die Spaltprodukte und die Actiniden sollen als endlagerfähiges, verglastes Gebinde konditioniert und anschließend in ein geologisch geeignetes Endlager verbracht werden. Sein geologischer Aufbau soll die Rückhaltung des radioaktiven Inventars sicherstellen. Uran bzw. Plutonium werden als Mischoxid zu neuen Brennelementen, sogenannten MOX-Brennelementen, verarbeitet und erneut in einen Kernreaktor eingesetzt.

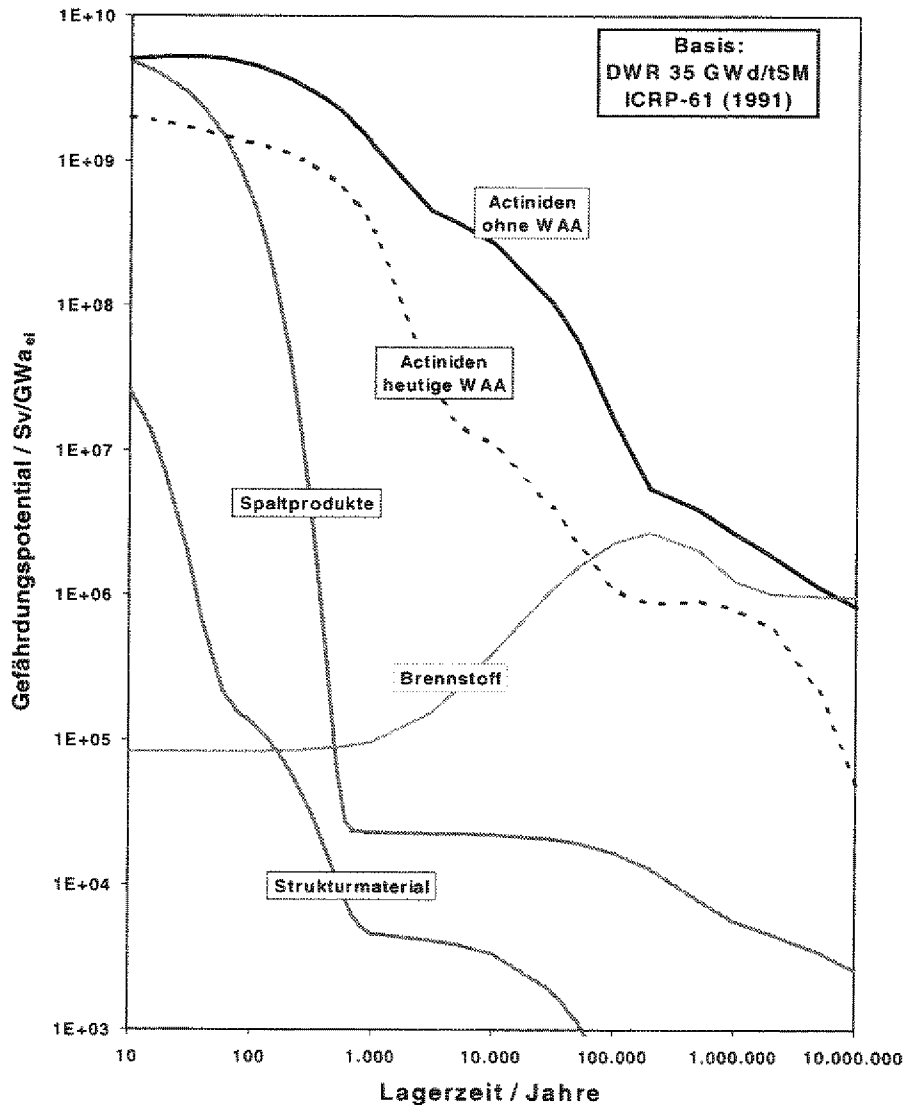
### 2.1.3 Kritik an den bisherigen Konzepten

Bei beiden Konzepten ist die langfristige Rückhaltung der Actiniden (einige 10<sup>6</sup> Jahre) erforderlich. Dabei versucht man den Austritt von aktivem Inventar durch ein Konzept von mehreren gestaffelten Barrieren sicherzustellen, siehe **Abb. 2-1**.



**Abb. 2-1:** Barrierenkonzept der Endlagerung (heute).

Dabei sind die ersten drei Barrieren von Menschen hergestellt und werden als „ingenieurtechnische Barrieren“ bezeichnet. Für diese wird heute eine Lebensdauer in der Größenordnung von ca. 1000 Jahren garantiert. Die Toxizitäten der Spaltprodukte und Strukturmaterialien sind in dieser Zeit weitgehend abgeklungen und tragen nicht mehr nennenswert zur gesamten Toxizität der abgebrannten Brennstoffe bei. Sie liegen dann sogar bei den Spaltprodukten eine bzw. bei den Strukturmaterialien zwei Größenordnungen unter denen des frischen Uranbrennstoffs. Nach dieser Zeitspanne muß man sich auf die geologischen Rückhalteeigenschaften der Endlagerformation für die Rückhaltung der Transuranelemente verlassen. Die zeitliche Abnahme der Radiotoxizitäten des abgebrannten Uranbrennstoffs mit einem Abbrand von 35 GWd/t<sub>SM</sub> wird in **Abb. 2-2** gezeigt. Zwar ist der erforderliche Zeitraum von einigen 10<sup>6</sup> Jahren klein im Vergleich zu geologischen Zeiträumen, aber dennoch befürchten Kritiker eine Gefährdung des zukünftigen Lebens durch das Endlager. Ihre wesentlichen Kritikpunkte umfassen im Einzelnen:



**Abb. 2-2:** Verlauf der Radiotoxizität der abgebrannten Brennelemente mit und ohne Actinidenabtrennung und Vergleichsniveau des frischen Brennstoffes /Phl 95/.

- Die Endlagerformation könnte durch den menschlichen Eingriff und die Nachwärmeabführung des Abfalls ihre Rückhalteeigenschaften verlieren.
- Das „Leben“ in ferner Zukunft ist sensitiver gegenüber ionisierender Strahlung, so daß heute akzeptierte Dosisgrenzwerte für radioaktive Stoffe dann keine Gültigkeit mehr besitzen.
- Die Dosisbewertung sowie die Dosisgrenzwerte sind heute noch Gegenstand von Veränderung.
- Es können Störfälle durch äußere Einwirkungen auftreten, die heute nicht berücksichtigt werden und noch nicht vorstellbar sind.

## 2.2 Partitioning und Transmutation als Elemente des Brennstoffkreislaufs

Das Ziel der Transmutation ist, die Radiotoxizität der Abfälle so zu verringern, daß deren Gefährdungspotential nach *technisch beherrschbaren Zeiträumen* von ca. 1000 Jahren dem des nicht in den Reaktor eingesetzten Brennstoffes entspricht. Dann brauchten die Anforderungen an die Rückhalteeigenschaften des Endlagers nur denen der Uranerzlagerstätte zu entsprechen, um eine zusätzliche Langzeitgefährdung durch die Energieumwandlung bei der Nutzung der Kernenergie im Vergleich zur natürlich vorhandenen Gefährdung der Uranerzlagerstätte zu vermeiden. Dieser nicht in den Reaktor eingesetzte Brennstoff ist ein geeignetes Vergleichsmedium, denn bei der Herstellung der Brennelemente ist durch den menschlichen Eingriff weder neues radioaktives Material entstanden noch beseitigt worden. Der zeitliche Verlauf seiner Radiotoxizität ist in **Abb. 2-2** zum Vergleich eingezeichnet. Um dieses Ziel zu erreichen, müssen die Stoffe mit den extrem langen Halbwertszeiten (dies sind im wesentlichen die Transurane) umgewandelt werden (vgl. **Abb. 2-2**). Wenn sich in der Gesellschaft ein Konsens finden sollte, die hochaktiven Abfälle der Kerntechnik zu transmutieren, ist das gleichbedeutend mit dem Einstieg in die Wiederaufarbeitung in großem Umfang. Dazu bedarf es zunächst einiger Forschungs- und Entwicklungsarbeiten auf dem Gebiet der Trennung der einzelnen Elemente aus dem abgebrannten Brennstoff (Partitioning). Die bei der bisherigen Wiederaufarbeitung erreichten Abtrennraten sind nicht ausreichend, um das Vergleichsniveau der Radiotoxizität in technisch beherrschbaren Zeiträumen zu erreichen. Außerdem werden heute noch keine sonstigen Actiniden zurückgewonnen. Einen Überblick über den Stand der Technik und die erforderlichen Trennraten für die Trans-

**Tab. 2-2:** Abtrennraten an TRU bei der WAA heute und beispielsweise zur Transmutation. Erforderliche.

Element	Restanteil im HAW (heute)	Restanteil im HAW zur Transmutation
U	0,5 %	1 %
Np	100 %	1 %
Pu	0,5 %	0,01 %
Am	100 %	0,01 %
Cm	100 %	1 %

mutation gibt die **Tab. 2-2**. Die Transurane müssen nahezu vollständig abgetrennt werden, um die Endlagerzeiten entsprechend reduzieren zu können. Anschließend müssen die Transurane in einer **Transmutationsanlage**, möglichst vollständig umgesetzt werden.

## 2.3 Konzepte zur Transmutation

Um das Ziel der Reduzierung der erforderlichen Abschlußzeiten der hochradioaktiven Abfälle von der Biosphäre auf ingenieurtechnisch beherrschbare Zeiträume zu erreichen, gibt es zwei grundsätzliche Möglichkeiten:

- Entwickeln von Brennstoffen, bei denen nur in stark vermindertem Maße langlebige Transurane aufgebaut werden.
- Entwicklung von Brennstoffkreisläufen, bei denen die langlebigen Transuranelemente rezykliert und bei einem erneuten Einsatz in einem Reaktor umgesetzt werden. Dieser Weg kann auch dazu genutzt werden, bereits vorhandene Transuraninventare zu reduzieren.

### 2.3.1 Inertmatrices zur Verhinderung eines Aufbaus von Transuranen

Das Erbrüten von langlebigen Transuranen kann völlig verhindert werden, wenn man ein neutronisch inertes Material verwendet. Neben der dann praktisch nicht mehr vorhandenen Proliferationsrelevanz des abgebrannten Brennstoffs würde so die Toxizitätsbilanz nicht durch ein erbrütetes Material belastet. Die Realisierbarkeit eines solchen Brennstoffes ist aber zur Zeit nicht sichergestellt, in jedem Fall wären enorme F & E Arbeiten zu inertem Brennstoffen erforderlich. Neben den Materialqualifizierungsfragen stehen hier auch Fragen der nuklearen Stabilität eines solchen Reaktorkerns im Vordergrund. Vermutlich bedarf es umfangreicher konstruktiver Innovationen bei der Kernausslegung, um zu einem adäquaten Sicherheitsverhalten zu gelangen. Die Nutzung solcher Brennstoffe ist daher mittelfristig nicht zu erwarten. Hinsichtlich der Erzeugung von Transuranen kann man Thorium als Inert-Matrix einstufen. Auf die Thoriumoption wird detailliert in Abschnitt 2.4 eingegangen.

### 2.3.2 Reaktorkonzepte zur Transuran-Vernichtung

Für eine mögliche Transmutationsanlage werden weltweit unterschiedliche Konzepte diskutiert. Einen umfassenden Überblick über die derzeit innerhalb der EU durchgeführten Studien gibt /Lel 97/. Eine Möglichkeit ist eine Weiterentwicklung der etablierten, thermischen Reaktoren. Durch Veränderungen der Brennstoffzusammensetzung ist eine Erhöhung der Umsatzraten an Transuranelementen (TRU), bzw. eine Verringerung der Brutraten neuer TRU Elemente denkbar. Es könnten auch in der üblichen Stabanordnung des Brennstoffes der Leichtwasserreaktoren einige Brennstäbe durch Stäbe, die Actiniden mit relativ zum Plutonium geringem Anteil am TRU Gemisch, sogenannte „Minor-Actinides (MA)“, in einer Inert-Matrix enthalten, ersetzt werden. Diese Brennstäbe dienen dann

zur Transmutation bereits aufgebauter Transuraninventare und werden dem für den Reaktor üblichen Neutronenspektrum ausgesetzt.

Die Umsetzung von TRU in Reaktoren mit schnellen Neutronenspektren wird ebenfalls z. B. in /FRA 93/ diskutiert. Der Vorteil liegt in der relativ hohen Neutroneneffizienz schneller Systeme. Allerdings ist die weltweite Erfahrung mit schnellen Reaktoren wesentlich geringer als mit thermischen Systemen. Bei diesen Reaktorkonzepten sind auf jeden Fall umfangreiche F&E-Arbeiten erforderlich, um Werkstoffe, insbesondere für die Brennelemente, zu qualifizieren und eine Auslegung des Systems zu erreichen, die ein adäquates Sicherheitsniveau aufweist. Die Effizienz des TRU-Umsatzes rechtfertigt F&E Arbeiten für diese Systeme.

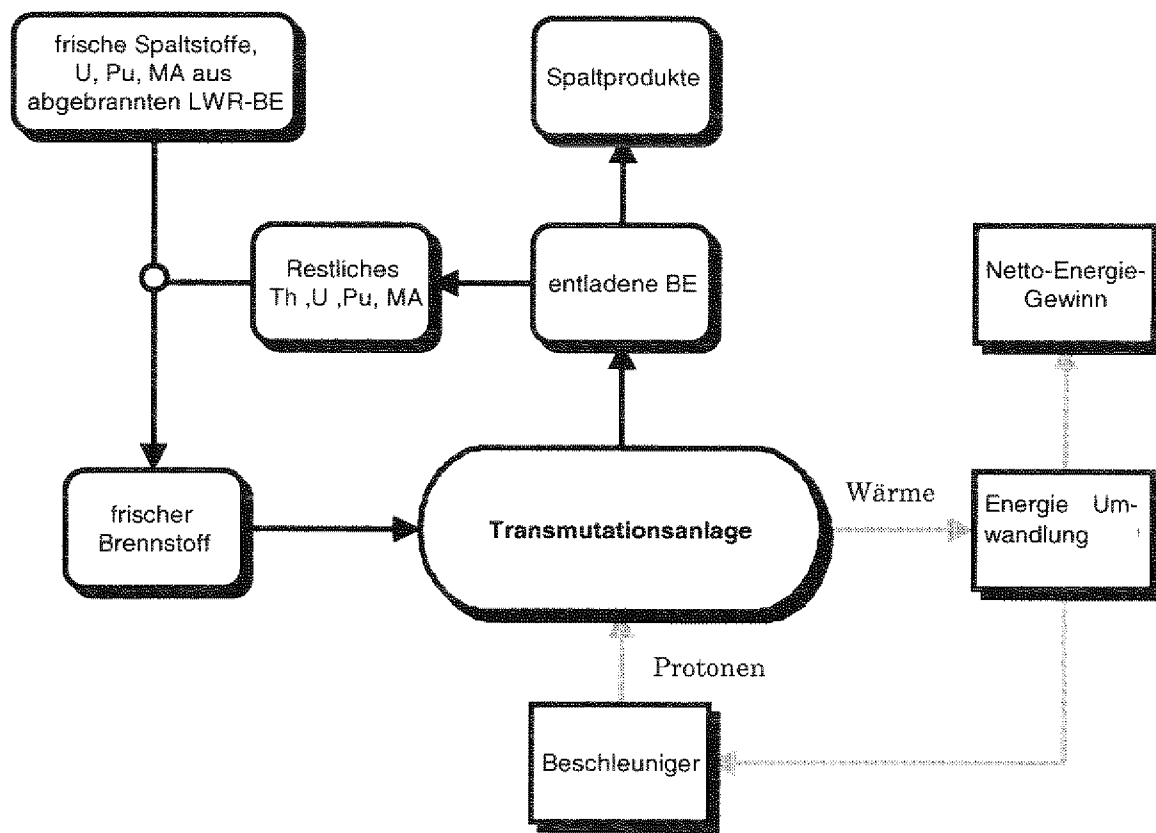


Abb. 2-4: Flußdiagramm eines beschleunigergetriebenen Transmutationsreaktors.

Unterkritische Transmutationsanlagen werden von vielen Nationen weltweit ebenfalls diskutiert. Sie bestehen aus einer externen Spallationsneutronenquelle und einem unterkritischen Blanket, in dem die umzuwandelnden Stoffe eingesetzt werden. Diese bieten aus sicherheitstechnischen Überlegungen einige Vorteile. Die Verringerung von Resonanzabsorbern im Core, die im Hinblick auf hohe Umsatzraten im Reaktor erforderlich werden kann, ist bei einem ausreichenden Abstand vom kritischen Zustand verhältnismäßig unproblematisch. Die nukleare Energiewandlung kann, da keine sich selbsterhaltende Kettenreaktion vorliegt, durch Abschalten des Beschleunigers gestoppt werden. Zum Erreichen des erforderlichen hohen Neutronenflusses wird ein im Beschleuniger erzeugter

Protonenstrahl in ein Bleitarget geleitet. Um einen Protonenstrahl entsprechender Stärke zu erzeugen, bedarf es auf dem Gebiet der Beschleuniger noch umfangreicher F&E-Arbeiten. In diesem Bleitarget beispielsweise werden durch **Spallationsreaktionen** Neutronen erzeugt. Diese Neutronen werden dann für die eigentliche Umwandlung der TRU im Blanket genutzt. Das Blanket ist in den bisher vorgeschlagenen Konzepten verschieden strukturiert. Neben der Verwendung etablierter fester Brennstoffe wird auch das Einbringen der Minor Actinides (MA) in Form einer Suspension /GLO 93/ z. B. mit Blei vorgeschlagen. Hier kann wieder mit einem schnellen z. B. /Liz 93/ als auch einem thermischen Spektrum z. B. /Lyp 93/ oder einer Kombination aus den beiden gearbeitet werden. Die Neutronen können durch Graphit, welches mit Bohrungen für die MA Suspension versehen ist, thermalisiert werden. Die MA-Suspension übernimmt dann auch die Aufgabe des Abtransportes der erzeugten Wärme. Diese kann in einem Dampfkraftprozeß genutzt werden, so daß über den Bedarf des Beschleunigers hinaus elektrische Energie erzeugt werden kann. Zur Verdeutlichung sind die Stoff- und Energieströme in **Abb. 2-3** eingezeichnet. Die direkte Vernichtung von TRU durch Spallationsreaktionen bei Beschuß durch Protonen scheint zur Zeit schwierig. Um nennenswerte Umsatzraten zu erreichen, müßten Protonenstrahlintensitäten vorliegen, die um Größenordnungen über denen liegen, die heute erreichbar sind.

Die Lösung des Langzeitproblems wird nicht in der Wahl einer dieser genannten Wege liegen, sondern in einer sinnvollen Kombination von einzelnen Systemen, bei denen den Reaktoren eine entscheidende Bedeutung, insbesondere zur Minimierung oder gar Vermeidung langlebiger, radioaktiver Stoffe zukommt.

## 2.4 Thorium als Instrument der Plutoniumbeherrschung

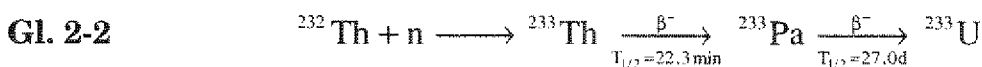
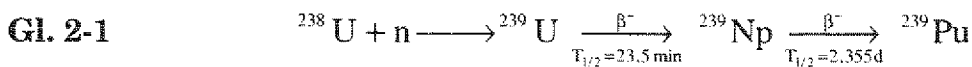
### 2.4.1 Quelle der Transurane

Bei der Nutzung von Uranbrennstoff bzw. von auf uranbasierten Mischoxidbrennstoffen erfolgt die Produktion des Plutoniums im wesentlichen aus der parasitären Neutronenabsorptionen innerhalb des  $^{238}\text{U}$ ; dies ist bisher aus Gründen der Neutronen- und Spaltstoffökonomie ein gewünschter Prozeß. Der Aufbau der höheren Actiniden Americium und Curium ist wiederum an die Plutoniumkonzentration innerhalb des Brennstoffs geknüpft. Ein einfach zu realisierender Ansatz zur Verhinderung dieses Aufbaus an Transuranelementen im Reaktor ist die Substitution des  $^{238}\text{U}$  durch eine anderes Nuklid. Dieses Nuklid muß ähnliche neutronenphysikalische Eigenschaften haben, denn das  $^{238}\text{U}$  ist für die nukleare Stabilität von Reaktoren von außerordentlicher Bedeutung.

### 2.4.2 Ersatz des Nuklids $^{238}\text{U}$ im Brennstoff

Ein Nuklid, das sich ähnlich wie das  $^{238}\text{U}$  im Reaktor verhält, ist das  $^{232}\text{Th}$ . Natürliches Thorium besteht zu 100 % aus diesem Isotop. Da Thorium häufig zusammen mit Uran vorkommt, sind dessen Thoriumtöchter je nach Lagerstätte

zusammen mit dem  $^{232}\text{Th}$  zu finden, spielen aber eine untergeordnete Rolle. Dem auf thoriumbasierten Brennstoff muß natürlich weiterhin zur Aufrechterhaltung der Kritikalität ein thermisch gut spaltbares Nuklid zugesetzt werden. Das einzige in der Natur existierende Nuklid mit ausreichend hohem Spaltwirkungsquerschnitt ist  $^{235}\text{U}$ , welches zu 0,7 % im natürlichen Isotopengemisch des Urans enthalten ist. Würde es, wie üblich, zusammen mit dem Isotop  $^{238}\text{U}$  in den Reaktor eingesetzt, wird auf Grund der (n, $\gamma$ )-Reaktion das Nuklid  $^{239}\text{U}$  gebildet. Dieses ist ein  $\beta$ -Strahler und zerfällt mit einer Halbwertszeit von 23,5 Minuten /KFK 95/ in  $^{239}\text{Np}$ , welches ebenfalls unter  $\beta$ -Zerfall (Halbwertszeit 2,55 Tage /KFK 95/ ) in  $^{239}\text{Pu}$  zerfällt. Diese Aufbaukette des  $^{239}\text{Pu}$  ist in **Gl. 2-1** gezeigt und wird im Reaktor immer durchlaufen, wenn  $^{238}\text{U}$  im Brennstoff enthalten ist. Ein auf Thorium basierender Brennstoff, der als Spaltstoff hochangereichertes Uran (HEU) verwendet, enthält vergleichsweise wenig  $^{238}\text{U}$ , was zu einer deutlich verringerten Bruterate an  $^{239}\text{Pu}$  führt. Untersuchungen hierzu finden sich in /Klo 99/. Das  $^{232}\text{Th}$  verfügt über ähnliche Bruteigenschaften wie das  $^{238}\text{U}$ . Die entsprechende (n, $\gamma$ )-Reaktionskette ist in **Gl. 2-2** gezeigt. Statt des  $^{239}\text{Pu}$  wird bei der Verwendung von Thorium das Isotop  $^{233}\text{U}$  erbrütet. Auf diese Weise wird der Plutonium, Americium und Curiumaufbau weitestgehend verhindert. Ein Unterschied zwischen den beiden Brutreaktionen besteht in den unterschiedlichen Halbwertszeiten von  $^{239}\text{Np}$  und  $^{233}\text{Pa}$ . Die Halbwertszeit des  $^{233}\text{Pa}$  liegt mit 27 Tagen /KFK 95/ deutlich über der des  $^{239}\text{Np}$  im Uranzyklus. Von daher müssen Neutroneneinfangreaktionen im  $^{233}\text{Pa}$  verstärkt als Verlustquelle berücksichtigt werden. Neutronenabsorptionen innerhalb des  $^{233}\text{Pa}$  führen über  $^{234}\text{Pa}$  zu Aufbau des  $^{234}\text{U}$ . Die erbrüteten Isotope  $^{239}\text{Pu}$  und  $^{233}\text{U}$  besitzen ebenfalls zum Erhalt einer Kettenreaktion ausreichend hohe Spaltquerschnitte. Hinsichtlich der Neutronenausbeute gilt  $^{233}\text{U}$  als optimaler thermischer Spaltstoff.



### 2.4.3 Vorteile des Thoriums

Durch die Verwendung von Thorium in Verbindung mit hoch angereichertem Uran als Spaltstoff, kann der weitere Aufbau von Plutonium und Transplutoniumelementen weitgehend verhindert werden. Eine Verwendung von Plutonium als Spaltstofffraktion zusammen mit Thorium führt auf eine Plutoniumvernichtung durch Spaltung unter Vermeidung von in situ Brüten von neuem Plutonium. An dieser Stelle liegt ein Potential des Thoriumkreislaufs im Bereich der Transmutationsbemühungen. Plutonium kann effizienter vernichtet werden, als dies mit den etablierten, auf uranbasierten Mischoxid (MOX) Brennstoffen möglich ist. Der Thoriumkreislauf kann so als Option gesehen werden, das weltweit als Problem eingestufte, immer größer werdende Plutoniuminventar in den Brennstoffkreisläufen nachhaltig zu reduzieren. Dabei muß neben den aus der

Abrüstung vorhandenen Plutoniuminventaren militärischen Ursprungs auch das ständig in den mit Uran betriebenen Kernreaktoren neu erbrütete Plutonium betrachtet werden. So werden weltweit jährlich ca. 110 t Plutonium in kommerziellen Kernreaktoren erbrütet, also genauso viel wie durch die SALT II Verträge an militärischem Plutonium abgebaut werden soll. Neben der Isotopenzusammensetzung bildet die Einbettung in Spaltprodukten aber einen wesentlichen Unterschied. Plutonium stellt neben seiner Radiotoxizität auch hinsichtlich seiner Proliferationsaspekte eine latente Gefahr dar. An dieser Stelle darf natürlich das durch das Thorium erbrütete ebenfalls unter Proliferationsaspekten brisante  $^{233}\text{U}$  nicht vernachlässigt werden. Ein ausführliche Diskussion dieser Problematik erfolgt – wie schon erwähnt – in Kapitel 10.

#### 2.4.4 Abschätzung Realisierbarkeit

Wegen seiner Ähnlichkeit zum etablierten Uranzyklus ist der Aufwand für die Einführung eines Thoriumbrennstoffkreislaufes im Vergleich zu inerten Brennstoffen deutlich geringer. In dieser Arbeit werden die einzelnen Aspekte des Thoriumbrennstoffkreislaufes insbesondere für den Typ des Druckwasserreaktors untersucht und geprüft, ob ein Wechsel ohne Modifikation an den Anlagen möglich ist. Die Thorium Option wäre dann relativ kurzfristig realisierbar und stellt einen ersten Schritt zur Lösung des Plutoniumproblems dar. Da auf einen weit verbreiteten Reaktortyp zurückgegriffen wird, sind keine Neukonstruktionen erforderlich und es entstehen an dieser Stelle auch keine Kosten, die einer Einführung des Thoriumkreislaufs entgegenstehen würden. Da die Leistung der Reaktoren bei den untersuchten Brennstoffen ebenfalls konstant gehalten wird, können Kostennachteile bei einem eventuellen Umstieg auf Thorium nur im Brennstoffkreislauf selbst liegen. Diese müßten dann dem Gewinn einer effizienteren Plutoniumvernichtung gegenübergestellt werden.

.....

### 3 Aspekte des Thoriumbrennstoffkreislaufs

Dieses Kapitel enthält in den Abschnitten 3.1 und 3.2 einen Überblick über die grundsätzlichen kernphysikalischen Eigenschaften des Thoriums als Brutmaterial. Ebenso werden die bei der Nutzung von thoriumbasierten Brennstoffen wichtigen Nuklide innerhalb der Brennstoffkreislaufs und deren Eigenschaften analysiert. In den Abschnitten 3.3 und 3.4 wird ein Überblick über die oftmals schon in den Gründerjahren der friedlichen Nutzung der Kernenergie durchgeführten Studien, gegeben. Darin wurde Thorium meistens neben dem Uran als Kernenergieträger bewertet und hinsichtlich seiner Bruteigenschaften in diversen Reaktorkonzepten untersucht. Einen Überblick über die als Reaktorwerkstoff relevanten Materialkennwerte der für den Reaktoreinsatz in Frage kommenden Verbindungen des Thoriums enthält der Abschnitt 3.5. Die Aspekte der einzelnen Schritte innerhalb des Thoriumbrennstoffkreislaufs, zu denen es auch aktuelle Untersuchungen gibt, sind in Abschnitt 3.6 enthalten.

#### 3.1 Thorium als Brutstoff im Kernreaktor

Nach erfolgreichem Betrieb der ersten Demonstrationskraftwerke wurde der Kernenergie Ende der 50er Jahre ein deutliches Wachstum prognostiziert. Vor dem Hintergrund eines stark steigenden globalen Energiebedarfs und eines steigenden relativen Anteils der Kernenergie sah man es als dringlich an, Studien anzufertigen, ob und wie der Spaltstoffbedarf für die Reaktoren sichergestellt werden kann. Da die Thoriumvorkommen auf mindestens das gleiche Maß wie die weltweiten Uranvorkommen geschätzt werden, bzw. einige Staaten (z. B. Indien) deutlich mehr Ressourcen an Thorium als an Uran besitzen, ist das weltweite Interesse, das Thorium als Brutstoff zur Erzeugung des spaltbaren  $^{233}\text{U}$  wirtschaftlich zu nutzen, geweckt worden. Vor diesem Hintergrund wurden in vielen Staaten (Australien, Brasilien, BRD, Frankreich, Großbritannien, Kanada, Indien, Italien, Japan, Niederlande, Saudiarabien, Schweden, Sowjetunion und den USA) in den Aufbaujahren der Kernenergie F&E-Programme gestartet, die die Möglichkeiten der praktischen Nutzung des Thoriums zur Kernenergieerzeugung abschätzen sollten.

## 3.2 Kernphysikalische Grundlagen - theoretische Arbeiten

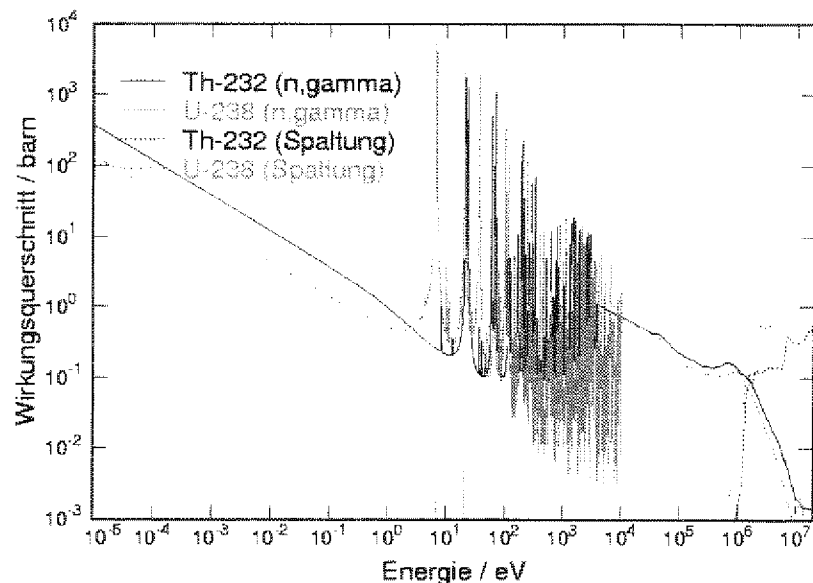
### 3.2.1 Nuklid $^{232}\text{Th}$

Nicht durch Uran verunreinigtes Thorium besteht zu 100 % aus dem Nuklid  $^{232}\text{Th}$ , welches als Brutmaterial verwendet werden kann. Es besitzt eine Halbwertszeit /KFK 95/ von  $1,405 \cdot 10^{10}$  Jahren und ist damit als primordiales Nuklid natürlich in der Erdkruste vorhanden. Es hat einen ca. dreimal größeren Wirkungsquerschnitt für die  $(n,\gamma)$  Reaktion als das  $^{238}\text{U}$  im thermischen Energiebereich. Dadurch erhöht sich dessen Brutpotential, was aber im Vergleich zu dem auf uranbasierten Brennstoff gleichzeitig eine höhere Anreicherung mit Spaltstoffen ( $^{233}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$ ,  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Pu}$ ) zur Aufrechterhaltung der Kettenreaktion in thermischen Reaktoren erfordert. Die erreichbare Verdopplungszeit wird wegen dieser erforderlichen erhöhten Anreicherung vergrößert. Die Wirkungsquerschnittsverläufe des  $^{232}\text{Th}$  sind im Vergleich zum  $^{238}\text{U}$  in **Abb. 3-1** gezeigt.

Neutronische Zellrechnungen sind in /Tak 90/ beschrieben. Dabei wird insbesondere der Umfang und der Einfluß der Spektralverschiebung durch die Brutstäbe auf das neutronische Verhalten des Cores erfaßt. Die Thorium Brutstäbe führen wegen ihres größeren Einfangquerschnitts zu einer Härtung des Spektrums. Die Rechnungen wurden mit einer sehr feinen Gruppenstruktur im Resonanzbereich durchgeführt. Als Referenzreaktor wurde ein 1300 MWe DWR mit oxidischem Brennstoff gewählt. Die über den Abbrand berechneten Reaktivitätsverluste beim  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$  Brennstoff sind kleiner als die des  $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$  Brennstoffs, was durch den höheren  $\eta$  Wert des  $^{233}\text{U}$  begründet werden kann. Dies wird noch dadurch verstärkt /Ros 66/, daß das Spaltprodukt-Yield für Nuklide mit Massenzahl 149 bei  $^{233}\text{U}$  geringer ist. Spaltprodukte mit Massenzahl 149 sind im Mittel besonders starke Absorber.

Bei der Betrachtung des Blasenkoeffizienten ergibt sich folgende Situation,

- ein Ersetzen des  $^{238}\text{U}$  durch  $^{232}\text{Th}$  führt zu einer betragsmäßigen Vergrößerung des negativen Blasenkoeffizienten, da der Wirkungsquerschnitt für Schnellsplaltungen im  $^{232}\text{Th}$  kleiner ist,



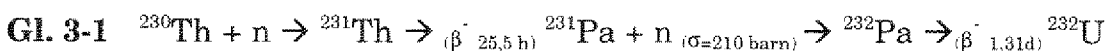
**Abb. 3-1:** Wirkungsquerschnittsverläufe von  $^{232}\text{Th}$  und  $^{238}\text{U}$  für  $(n,\gamma)$  bzw.  $(n,f)$  Reaktionen /Tho 79/.

- jedoch führt ein Ersetzen des  $^{235}\text{U}$  durch  $^{233}\text{U}$  zur betragsmäßigen Verkleinerung des Blaskoeffizienten, da das  $^{233}\text{U}$  den größeren  $\eta$  Wert besitzt.

Das gehärtete Spektrum ermöglicht eine Kompensation der Überschußreaktivität des Cores durch Hinzufügen einiger  $^{238}\text{U}$  Stäbe, da deren Absorptionen in einem solchen Spektrum einen deutlich größeren Einfluß haben. So wird während des Einsatzes des Brennstoffs im Reaktor mehr  $^{239}\text{Pu}$  erbrütet, wodurch der Reaktivitätsverlust des Reaktors über dem Abbrand abnimmt, was einen höheren Abbrand bei anfangs gleicher Überschußreaktivität ermöglicht. Nach den Berechnungen von /Tak 90/ kann durch ein weiteres Härten des Spektrums (durch Vergrößern des Durchmessers der Brutstäbe, was zusätzlich auf ein kleineres  $V_{\text{Mod}}/V_{\text{Br}}$  führt) im LWR eine Konversionsrate von über eins erreicht werden.

### 3.2.2 Nuklid $^{232}\text{U}$

Das aus Thorium erbrütete Uranisotop  $^{233}\text{U}$  ist mit einem Anteil an  $^{232}\text{U}$  vermischt. Dieses entsteht einerseits durch die (n,2n) Reaktion am  $^{233}\text{U}$ , die proportional zum Fluß zunimmt. Zum anderen hat man in den seltensten Fällen reines  $^{232}\text{Th}$  als Brutstoff zur Verfügung, da Thorium enthaltende Erze in der Regel von einem Urananteil begleitet werden. Innerhalb der sich im Gleichgewicht befindenden Zerfallsreihe des  $^{238}\text{U}$  existiert als Tochter das Nuklid  $^{230}\text{Th}$ . Dieses  $^{230}\text{Th}$  wäre, wenn es nicht ständig durch den Zerfall des  $^{238}\text{U}$  neu gebildet worden wäre, wegen seiner relativ zu den primordialen Elementen kurzen Halbwertszeit von  $7,54 \cdot 10^4$  Jahren /KFK 95/ in reinem Thorium nicht vorhanden. Bei den chemischen Trennverfahren zur Gewinnung des Thoriums aus dem Erz kann das  $^{230}\text{Th}$  natürlich nicht isoliert werden, so daß in der Realität ein Gemisch aus  $^{230}\text{Th}$  und  $^{232}\text{Th}$  in den Reaktor eingesetzt wird. Über die Kette nach Gl. 3-1 wird im Reaktor zusätzlich  $^{232}\text{U}$  erbrütet,



Die Problematik des  $^{232}\text{U}$  bei der Einführung von Thorium in den Brennstoffkreislauf liegt bei dessen stark  $\gamma$ -strahlenden Töchtern, wodurch das Brennelementhandling erschwert wird. Andererseits wird das  $^{233}\text{U}$  durch diese begleitenden Verunreinigungen leicht detektierbar, was die Proliferationssicherheit im Thorium- $^{233}\text{U}$  Zyklus erhöht.

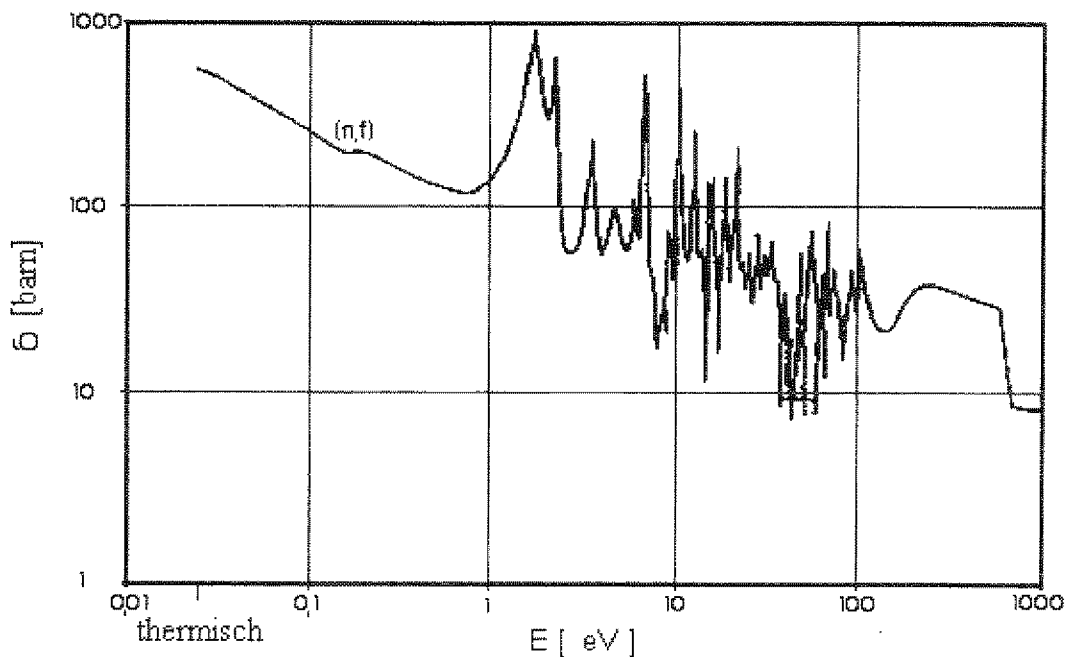
### 3.2.3 Nuklid $^{233}\text{Pa}$

Das Nuklid  $^{233}\text{Pa}$  entsteht unmittelbar aus der (n, $\gamma$ )-Reaktion des Brennstoffbasiematerials  $^{232}\text{Th}$ . Es hat eine mit 27 Tagen deutlich größere Halbwertszeit als das bei der dominierenden Brutreaktion von uranbasierten Brennstoffen entsprechende „Schwesternuklid“  $^{239}\text{Np}$ , dessen Halbwertszeit nur ca. 2,35 Tage beträgt. Die daraus resultierende höhere Konzentration an  $^{233}\text{Pa}$  im Brennstoff während des Einsatzes im Reaktor führt zu einer relativ hohen Brutrate an  $^{234}\text{Pa}$ , welches seinerseits quasi sofort in unerwünschtes  $^{234}\text{U}$  zerfällt. Ein weiteres Problem durch die größere Halbwertszeit des  $^{233}\text{Pa}$  ist die so vereinfachte Abtren-

nung von Protactinium. Dieses zerfällt dann in  $^{233}\text{U}$ , welches dann isotopenweise vorliegt und hochgradig waffentauglich ist. Hierzu wird in Kapitel 10 noch detailliert bei der Untersuchung der Proliferationsaspekte der untersuchten Brennstoffe eingegangen.

### 3.2.4 Nuklid $^{233}\text{U}$

Der Spaltstoff, der aus Thorium erbrütet wird, ist das  $^{233}\text{U}$ . In **Abb. 3-2** ist der Verlauf seines Spaltwirkungsquerschnitts gezeigt. Für die Qualität eines Spaltstoffs entscheidend ist der Verlauf des  $\eta(E)$  Wertes. Dieser Wert gibt an, wie viele Neutronen pro im Nuklid eingefangenen Neutron im Mittel entstehen. Wenn das Ziel ist, Spaltstoff Netto zu erbrüten, muß der  $\eta$  Wert größer als zwei sein, denn ein Neutron wird benötigt, um die nächste Spaltung zu induzieren, und das andere um aus dem Brutstoff für das zerfallene spaltbare Nuklid ein neues zu brüten. In einem realen Reaktor treten zusätzlich sowohl Neutronenverluste durch parasitäre Absorptionen in Strukturmaterialien als auch durch Leckagen auf. In **Abb. 3-3** ist der Verlauf des  $\eta$  Werts über der Energie für verschiedene Spaltstoffe aufgeführt. Man erkennt, daß  $^{233}\text{U}$  im thermischen Energiebereich das größte Brutpotential aller Spaltstoffe besitzt. In Japan wurden außerdem Untersuchungen zu den Wirkungsquerschnittsverläufen von  $^{233}\text{U}$  und  $^{232}\text{Th}$  durchgeführt, um über eine ausreichend sichere Datenbasis für thoriumbasierte Brennstoffe zu verfügen.



**Abb. 3-2:** Verlauf des (n,f) Wirkungsquerschnitts des  $^{233}\text{U}$ .

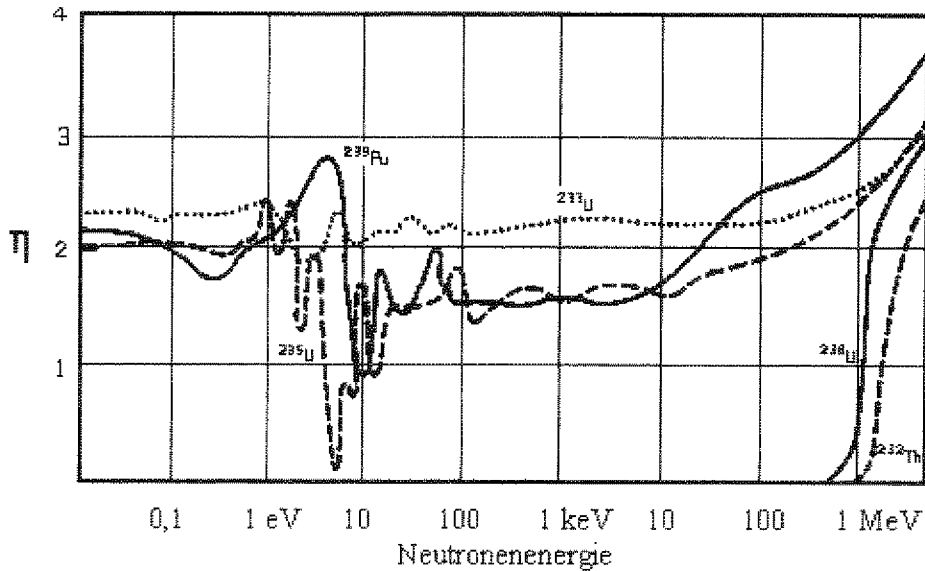


Abb. 3-3: Verlauf des  $\eta$  Wertes von  $^{238}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$ ,  $^{239}\text{Pu}$  und von  $^{233}\text{U}$ ,  $^{232}\text{Th}$  /OEC89/.

### 3.2.5 Transurane

Beim Thoriumzyklus werden Transuranelemente in wesentlich geringeren Konzentrationen gebildet als bei der Verwendung des  $^{238}\text{U}$  als Brutstoff. Es ergibt sich daher in Bezug auf die Entsorgung speziell der langlebigen Actiniden ein Vorteil für den Thoriumzyklus. Die Motivation zur Einführung des Thoriumzyklus lag bis vor einigen Jahren aber nicht in dieser Überlegung, sondern in der Ressourcennutzung, evtl. Kostenvorteilen und für einige Staaten aus Unabhängigkeitsüberlegungen. In /Fur 90/ wird aber bereits als Vorteil des Thorium- $^{233}\text{U}$  Brennstoffs auf den verminderten Transuranaufbau hingewiesen. Dieser könnte bei Wiederaufarbeitung aller anderen wertvollen Nuklide zur Abfallminimierung beitragen. In /Teu 86/ werden Brennstoffzyklen in Hochtemperaturreaktoren untersucht. Neben anderen Aspekten wird auf die Verringerung der Toxizität der hochradioaktiven Abfälle bei einer Nutzung von Thorium hingewiesen.

### 3.3 F&E-Felder der Vergangenheit

Die in den Gründerjahren der Kerntechnik durchgeführten Untersuchungen im Bereich des Thoriums erstreckten sich auf folgende zentrale Aspekte /IAE 66/:

- Validierung von Wirkungsquerschnittsdaten, insbesondere im Resonanzbereich,
- Bestimmung des  $\eta$  Werts von  $^{233}\text{U}$ ,
- Sicherheitstechnische Aspekte, z.B. Vergleich der Resonanzintegrale des  $^{232}\text{Th}$  mit denen des  $^{238}\text{U}$ ,

- Erreichbarkeit des Nettobrütens in thermischen / schnellen Reaktorsystemen,
- Materialtechnische Seiten des Thorium Brennstoffs (Bestrahlungsverhalten, Wärmetechnik),
- Realisierbarkeit des geschlossenen Brennstoffkreislaufs.

### 3.4 Entwicklung von Reaktorkonzepten für Thorium Einsatz

In diesem Abschnitt wird ein möglichst umfassender Überblick über Überlegungen der verschiedenen Nationen zu einer möglichen Nutzung von Thorium in Reaktoren gegeben. Die Gliederung der Sammlung erfolgt nach Reaktortyp. Im einzelnen wurden die Leichtwasserreaktoren, Schwerwasserreaktoren, Hochtemperaturreaktoren, schnelle Reaktoren und Reaktoren mit homogenen Reaktorkernen für den Einsatz von Thorium - zum Teil frühzeitig - auf ihre Eignung hinsichtlich thoriumbasierter Brennstoffe untersucht.

#### 3.4.1 Leichtwasserreaktoren

Seit 1979 wurde von Brasilien ein Gemeinschaftsprogramm /Mal 88/ mit der BRD gestartet, das das Ziel hatte,  $^{233}\text{U}$  zur Energiewandlung im DWR unter wirtschaftlichen Aspekten zu nutzen. Die Wirtschaftlichkeitsforderung führt auf einen zu erreichenden hohen Abbrand im Reaktor bei sonst niedrigen Brennstoffkreislaufkosten. Da Thorium ohne Zusetzen eines Spaltstoffs ähnlich wie  $^{238}\text{U}$  nicht zum Spalten geeignet ist, muß zunächst ein spaltbares Nuklid zugeetzt werden. Im Falle des brasilianisch - deutschen Konzeptes ist dies entweder Plutonium mit einer für den LWR typischen Zusammensetzung oder hoch angereichertes Uran. Niedrig angereichertes Uran wurde wegen des nur erreichbaren niedrigen Abbrands nicht betrachtet.

Neutronische Rechnungen wurden mit dem Programmcode SAV79A durchgeführt. Das gewünschte Ziel der Verringerung des Spaltstoffverbrauchs läßt sich trotz hoher Abbrände nur in Verbindung mit einer Wiederaufarbeitung erreichen. Zu Beginn des Gleichgewichtszyklus ist der Moderator-Temperaturkoeffizient bei Thorium/HEU positiv (der resultierende Koeffizient jedoch bleibt während des gesamten Zyklus negativ), während sich bei Thorium/Plutonium ein durchgehend negativer Moderator-Koeffizient erreichen läßt. Dies kann durch die starke Absorptionsresonanz des  $^{240}\text{Pu}$  erklärt werden. In /Mal 88/ ist man der Meinung, daß eine dem Uran DWR ebenbürtige sicherheitstechnische Auslegung realisierbar ist. Die thermodynamische Auslegung der Brennstäbe erfolgt analog zu den Uranstäben. Auf Ergebnisse von Bestrahlungstests wird in Abschnitt 3.5 eingegangen.

In den USA begann man ebenfalls sehr früh die Frage der Reichweite des Urans zu diskutieren. Die bereits eingeführten LWR Reaktoren sind auf eine kostengünstige Stromproduktion ausgelegt und nicht auf einen möglichst effizienten Umgang mit spaltbarem Material. In /Lan 66/ wird vorgeschlagen, die Neutronenökonomie des LWR zu verbessern, um überschüssige Neutronen für Brutre-

aktionen zu nutzen. In Verbindung mit der Einführung des Thoriumzyklus ließen sich dann hoch konvertierende LWRs realisieren. Eine weitere Reduktion des Spaltstoffverbrauchs läßt sich anschließend durch den Übergang auf PHWRs erreichen.

In der BRD sind neben der Zusammenarbeit im deutsch-brasilianischen Gemeinschaftsprojekt theoretische Arbeiten zum Thorium-<sup>233</sup>U Zyklus in DWRs erstellt worden. Insbesondere wurde von /Sch 79/ gemischte Cores mit ThO<sub>2</sub>-PuO<sub>2</sub> Stäben zwischen den UO<sub>2</sub> Stäben untersucht. Die hohe Löslichkeit von PuO<sub>2</sub> in ThO<sub>2</sub> ermöglicht eine Reduktion der erforderlichen Plutonium Stäbe, was zu verringerten Kosten führt. Eine Parameterstudie zeigt am Beispiel des Kernkraftwerks Stade, daß dessen unveränderte Gitterstruktur auch für den Thoriumzyklus optimal ist. /Sch 79/ stellt neutronische Berechnungen vor, in denen ThO<sub>2</sub>-PuO<sub>2</sub> Stäbe statt der üblichen UO<sub>2</sub>-PuO<sub>2</sub> MOX Elemente am Beispiel des Kernkraftwerks Obrigheim (KWO) untersucht werden. Dabei werden insbesondere die sich einstellenden Reaktivitätskoeffizienten, Leistungsspitzen und Stabwirksamkeiten betrachtet. Am vorteilhaftesten sind Thorium/Plutonium Voll-Brennelemente mit Uran-Stabecken.

In Japan wurden Abbrandrechnungen /Aki 90/ für ein hoch konvertierendes LWR System durchgeführt, dessen Brennstoff aus Thorium-<sup>233</sup>U besteht. Dabei wurde besonderer Augenmerk auf ein sicherheitstechnisch adäquates Verhalten gelegt. Beim DWR ergibt sich ein negativer Blaskoeffizient. Die errechnete maximal erreichbare Konversionsrate liegt bei 0,95...0,98.

### 3.4.2 Schwerwassermoderierte Reaktoren

In Indien sind Schwerwasserreaktoren installiert worden, da diese über eine so gute Neutronenökonomie verfügen, daß Natururan eingesetzt werden kann. Diese gute Neutronenökonomie (geringe Absorptionen im Moderator) eröffnen diesem System gute Chancen für den Thorium Einsatz als netto brütendes System. Es gibt zur Zeit drei potentielle Zyklen, wie Thorium in PHWRs genutzt werden kann. Welcher sich davon durchsetzt, hängt stark von den wirtschaftlichen Bedingungen ab, unter denen der entsprechende Brennstoffkreislauf in Indien durchgeführt werden kann.

#### Selbsterhaltender Thoriumzyklus

Bei diesem Zyklus werden selektiv die Druckröhren der Schwerwasserreaktoren (PHWR) mit MOX bzw. ThO<sub>2</sub> Elementen beschickt. Nach /Chi 90/ ist die Standzeit der ThO<sub>2</sub> Elemente wegen des größeren  $\eta$  Werts des erbrüteten <sup>233</sup>U größer als bei Uran Plutonium MOX-Elementen. Im Grenzfall läßt sich ein selbsterhaltender <sup>233</sup>U-Zyklus erreichen, bei dem die entladenen Brennelemente soviel <sup>233</sup>U enthalten, wie zur Fertigung von neuen benötigt wird. Nach /Chi 90/ kann bei diesem Zyklus jedoch nur ein Abbrand von 13 MWd/kg<sub>SM</sub> erreicht werden. Ziel ist es, einen fortschrittlichen PHWR zu entwickeln, der ein zwei Zonen Core (MOX und ThO<sub>2</sub> Zone) besitzt. Dieser Reaktor verfügt bei geeigneter Auslegung über einen resultierenden negativen Blaskoeffizienten und erzeugt 80 % der Lei-

stung aus der Thoriumzone. Das System hat in der Zentralzone ein gehärtetes Spektrum (günstig für Plutonium) und in der Blanket Brutzone ein thermisches Spektrum. In Indien gibt es ein in /Kak 90/ beschriebenes Konzept, einen solchen PHWR so zu modifizieren, daß das Schwerwasser als Kühlmittel - das  $D_2O$  bleibt als Moderator im Tank, der die Druckröhren umgibt - durch siedendes Leichtwasser ersetzt wird. Ebenfalls wird der Moderatortank bei diesem Konzept in vertikale Richtung gedreht. Ein Problem stellt der sich dann ergebende positive Blasenoeffizient des Kühlmittels dar. Sicherheitstechnisch von Vorteil ist, daß die Nachwärme durch Vergrößern der Kernhöhe aus den nun vertikal verlaufenden Druckröhren durch Naturkonvektion abgeführt werden kann. Wirtschaftlich positiv ist der verringerte Bedarf an Schwerwasser und eine Verkleinerung der entstehenden Tritiummengen.

#### Hochkonvertierender, hochabbrennender Thoriumzyklus

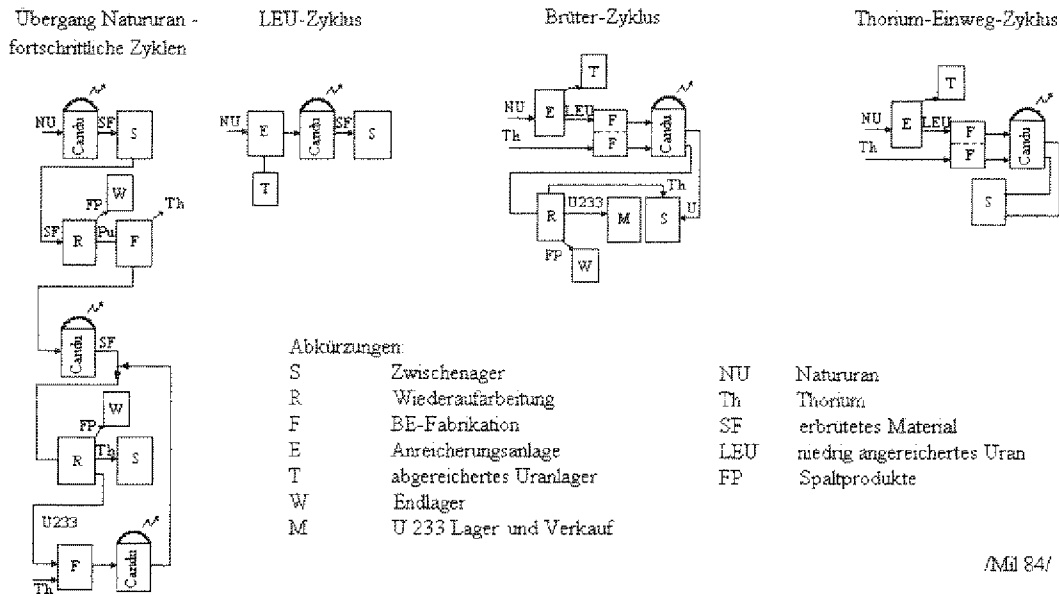
Alternativ wird ein Konzept verfolgt, das einen höheren Abbrand zuläßt, dafür aber nicht brütend, sondern nur hoch konvertierend ist. Dabei wird Thorium mit Plutonium oder mit  $^{235}U$  angereichertem Uran als Spaltstoff in den PHWR eingesetzt. Der dabei erreichbare Abbrand ist nach /Bal 901/  $50 \text{ MWd/kg}_{SM}$ . Das hierbei nach der Entladung erbrütete  $^{233}U$  kann dann zum Starten der nächsten Reaktoren verwendet werden. Ein „Plutonium Topping“, bei dem zusätzlich zum  $^{233}U$  noch weiteres Plutonium als Spaltstoff hinzugefügt wird, ermöglicht den hohen Abbrand.

#### Thorium Einwegzyklus

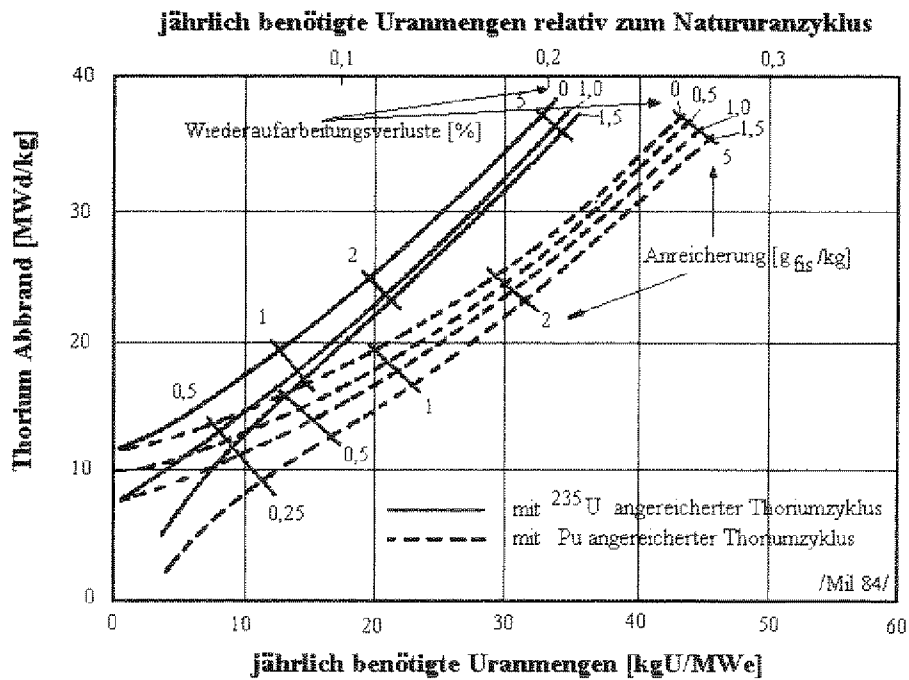
Als dritte Möglichkeit wird der Thorium Einwegzyklus im PHWR diskutiert. Dabei soll der Spaltstoff in Form von Uran Plutonium MOX-Elementen in das System gebracht werden. In einigen Druckröhren werden Thorium Brennelemente verwendet, deren Standzeit deutlich höher als die der MOX-Elemente ist. Das dort erbrütete und nicht in situ gespaltene  $^{233}U$  kann verwendet werden, um einen kleineren Reaktor zu betreiben.

Zur Zeit werden die CANDU Reaktoren in Kanada mit Natururan solange betrieben, wie Kritikalität erreicht werden kann. Die Uranreserven, zumindest die kostengünstig gewinnbaren, sind begrenzt. Daher ist ein möglichst effizienter Umgang mit Spaltstoffen bzw. das Erbrüten neuen spaltbaren Materials wünschenswert. In Kanada wurden Studien angefertigt, ob und wann der Thoriumkreislauf /Mil 84/ wirtschaftlich im Vergleich zum Urankreislauf in den schwerwassermoderierten Systemen eingeführt werden kann. In Chalk River /IAE 66/ wurde hierzu ein reaktor-physikalisches Programm durchgeführt. Im Mittelpunkt der Thoriumnutzung in Kanada steht der Candu Reaktor. Bei gleichen Randbedingungen ist bei der Thoriumnutzung das höhere Inventar an Spaltstoff von Nachteil, was wegen des größeren Absorptionsquerschnitts des  $^{232}Th$  gegenüber dem  $^{238}U$  erforderlich wird. Hier muß durch eine entsprechende zusätzliche Anreicherung zwischen Abbrandmaximierung, Inventarminimierung und Spaltstoffausnutzung optimiert werden. In /Mil 94/ werden verschiedene denkbare

Brennstoffkreisläufe diskutiert, die den Einstieg in den Thoriumkreislauf mit dem zuvor nötigen Erbrüten des  $^{233}\text{U}$  realisieren. In **Abb. 3-4** sind die denkbaren Konfigurationen für fortschrittliche Brennstoffkreisläufe gezeigt. Die erreichbare Reduktion des Uranverbrauches ist **Abb. 3-5** gezeigt.



**Abb. 3-4:** Einführung von Thorium in Brennstoffkreisläufe des Candu Reaktors.



**Abb. 3-5:** Darstellung der Reduktion der benötigten Uranmengen bei Einführung des Thorium Brennstoffkreislaufes.

In den 60er Jahren hat Schweden den PHWR für das System gehalten, das für den Thoriumzyklus am besten geeignet ist. Neben theoretischen Untersuchungen /IAE 66/ auf dem Gebiet der Grundlagen des Thoriums kooperierte es in der Reaktorentwicklung mit Indien zusammen.

### 3.4.3 Hochtemperaturreaktoren

In einigen Staaten wurde als Alternative zu den etablierten Leichtwasserreaktoren an der Entwicklung von Hochtemperaturreaktoren (HTR) für den Einsatz von Thorium gearbeitet. Die Zielsetzung war eine Steigerung des Wirkungsgrades des Dampfprozesses zur Schonung der Spaltstoffressourcen, als auch eine Erweiterung der nuklearen Energiewandlung auf Wärmeanwendungen. In /Teu 82/ werden als Vorteile des HTR ein um 70 % reduzierter Uranverbrauch verglichen mit einem Leichtwasserreaktor und verglichen mit dem schnellen Brüter eine Verringerung des erforderlichen Inventars um 60 % genannt. Dadurch hält /Teu 82/ et. al. sie für eine Übergangsphase, in der noch nicht genügend Plutonium für eine große Zahl von Brütern vorhanden ist, als auch später in Symbiose mit den Brütern für erfolgversprechend. In der BRD wurde über Jahre der AVR Kugelhaufenreaktor in der KFA Jülich (heute Forschungszentrum Jülich) erfolgreich mit Thorium-HEU Brennelementen betrieben. Ebenso wurde eine größere Demonstrationsanlage in Hamm-Uentrop (THTR) errichtet. Beide Systeme verfügten über Thorium-<sup>235</sup>U Brennstoffe unterschiedlicher Anreicherung, die gut konvertierend waren und das erbrütete <sup>233</sup>U in situ umsetzten. Der Brennstoff lag in oxidischer Form als kleine beschichtete Teilchen (coated particles) in einer graphitischen Matrix vor. Trotz umfangreicher Bemühungen war es nicht gelungen, im HTR eine Konversionsrate größer als eins zu realisieren. In den USA wurde parallel ein HTR mit blockförmigen Brennelementen entwickelt. Die Brennstoffform des beschichteten Partikels (coated particles) hat den Vorteil einer guten Spaltproduktrückhaltung, was aber für die anschließende, zur optimalen Nutzung der Ressourcen notwendige Wiederaufarbeitung der HTR Brennelemente von Nachteil ist.

### 3.4.4 Schnelle Reaktoren

Obwohl Indien die Schwerwasserreaktorlinie von Anfang an favorisiert hat, sind auch frühzeitig Überlegungen zu Reaktoren mit schnellen Spektren angestellt worden. Dabei nehmen diese Systeme eine Übergangsposition zwischen den thermischen Brütern der letzten Phase und den üblichen PHWRs ein. Aufgabe dieser schnellen Systeme ist es, genügend Spaltstoff in möglichst kurzer Zeit zu erbrüten, um die Thorium Systeme der Phase 3 betreiben zu können.

### 3.4.5 Homogene Reaktorsysteme

Vorteil der homogenen Reaktorsysteme ist die Erreichbarkeit des Nettobrütens von <sup>233</sup>U aus Thorium, was realisierbar wird /IAE 66/, wenn die die Neutronen absorbierenden Spaltprodukte kontinuierlich entfernt werden. In den USA wurden insbesondere am Oak Ridge National Laboratory Untersuchungen und Expe-

perimente zu Salzschnelzenreaktoren gemacht. Dabei wurde im Rahmen des „Molten Salt“ Experimentes Thorium Brennstoffsalz im 10 MW<sub>e</sub> Testreaktor untersucht. Nach /Lun 96/ waren die gewonnenen Ergebnisse mit <sup>233</sup>U und Thorium im Salzschnelzenreaktor während einer Einsatzzeit von 1,5 Jahren durchaus positiv und weckten ziviles als auch militärisches Interesse. Allerdings wurden die Arbeiten in den USA nach dem Wiederaufarbeitungsverbot von 1975 endgültig eingestellt.

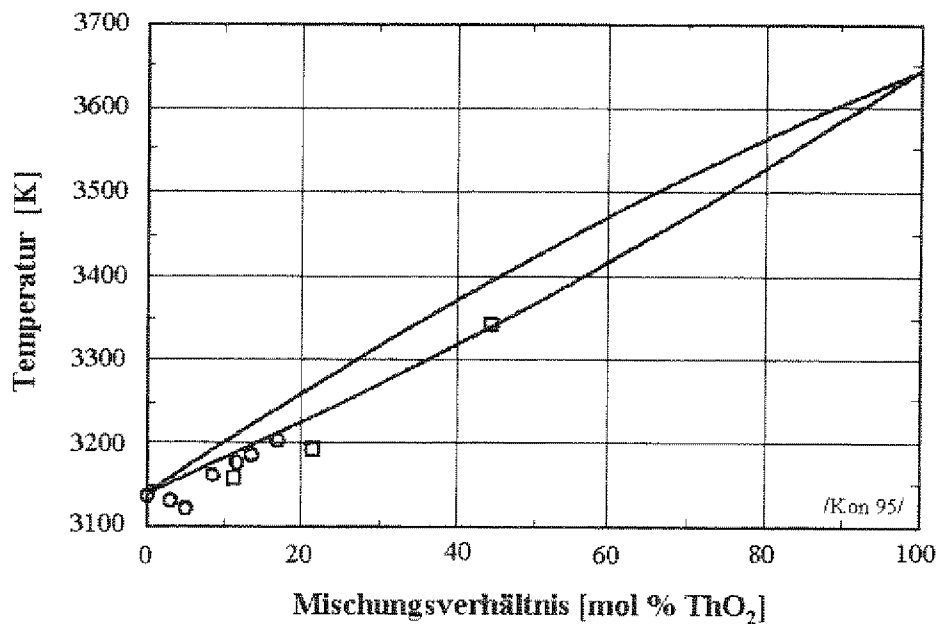
## 3.5 Materialqualifizierung und Bestrahlungstests

### 3.5.1 Überblick

Seit den 60er Jahren bis heute sind einige Bestrahlungstests in unterschiedlichen Staaten in verschiedenen Bestrahlungseinrichtungen bzw. Reaktoren durchgeführt wurden, um Erfahrungen über das Bestrahlungsverhalten von Thorium zu erhalten. Einen Überblick über die durchgeführten Versuche gibt die **Tab. 3-1**. Man erkennt, daß die meisten Bemühungen zur Qualifizierung von Thorium als nuklearen Brennstoff in der BRD, Brasilien, Indien und den USA durchgeführt worden sind. Ebenso wird deutlich, daß die Versuche in jüngerer Zeit umfassender sind (zum Teil ganze Brennelemente), dafür aber die linearen Stabileistungen niedriger liegen als bei den ersten Versuchen in kleineren Maßstäben.

### 3.5.2 ThO<sub>2</sub>

Von den für den Reaktoreinsatz in Frage kommenden Verbindungen ist das Thoriumdioxid am genauesten untersucht. Es besitzt die gleiche Struktur wie Uranoxid und kann von daher mit diesem Feststoff Lösungen eingehen, wie das entsprechende Phasendiagramm der **Abb. 3-6** zeigt. Der Schmelzpunkt des ThO<sub>2</sub> liegt ca. 500 °C über dem des UO<sub>2</sub> und ist damit der höchste Schmelzpunkt eines Oxids überhaupt. Das ThO<sub>2</sub> besitzt eine einzige kubische Phase bis zum Erreichen des Schmelzpunktes und ist auch bei hohen Temperaturen in oxidierender Atmosphäre stabil. Die **Abb. 3-7** vergleicht die lineare thermische Dehnung des ThO<sub>2</sub> mit der des UO<sub>2</sub>. Wegen seiner Kompatibilität und der Stabilität eignet sich Thorium unabhängig von seinem nuklearen Potential als Brutstoff als Trägermatrix für den Spaltstoff. Weitere für den Einsatz im Reaktor entscheidende Materialdaten sind in **Tab. 3-2** im Vergleich zu UO<sub>2</sub> gezeigt.

Abb. 3-6: Phasendiagramm für ThO<sub>2</sub>-UO<sub>2</sub> Mischkristalle.

Tab. 3-1: Übersicht über durchgeführte Bestrahlungen von Thorium-Brennstoffen.

Datum	Land	Brennstoff	Bestrahlungseinrichtung	Umfang	Eckdaten - Bemerkungen
ca. 1966	USA	ThO <sub>2</sub> -UO <sub>2</sub> ThO <sub>2</sub> -PuO <sub>2</sub>	MTR, ETR, NRX, ORR	diverse Brennstäbe	Abbrände bis 100 MWd/kg, einzeln bis 650 W/cm lineare Stableistung /Ols 66/
1963-1968	USA	ThO <sub>2</sub> -UO <sub>2</sub>	Elk-River BWR	unbekannt	58 MW <sub>th</sub> Siedewasserreaktor, Graphit-Reflektor
ca. 1968	USA	ThO <sub>2</sub> -PuO <sub>2</sub>	unbekannt	unbekannt	Abbrand 3*10 <sup>20</sup> Spaltungen/cm <sup>3</sup> , maximale lineare Stableistungen von 1000 W/cm <sup>3</sup> , /Fre 68/
1967-1989	BRD	ThO <sub>2</sub> -UO <sub>2</sub>	AVR	Kompletter Reaktorkern	Kugelhaufenreaktor mit 15 MW <sub>e</sub> Leistung
1971	China	unbekannt	unbekannt	unbekannt	unbekannt
1966-1973	Great Britain	ThC-UC	DRAGON HTR	komplettes Core	mit der Zeit Übergang zu Uran Brennstoff, Abbrand größer 100 MWd/kg, 1500°C Brennstofftemperatur
1962-1980	USA	ThO <sub>2</sub> -UO <sub>2</sub>	Indian Point PWR	unbekannt	285 MWe; Thorium Einsatz nur für kurze Zeit /IAE 70/.
bis 1982	USA	unbekannt	Shippingport PWR	40 t U-233/Th Brennelemente	100 MWe DWR im Rahmen des Light Water Breeding Konzeptes mit geringerem Moderationsverhältnis, „Seed-Blanket-Konzept“

Datum	Land	Brennstoff	Bestrahlungseinrichtung	Umfang	Eckdaten - Bemerkungen
1974-1977	Niederlande	ThO <sub>2</sub> -UO <sub>2</sub> Partikel	KSTR (SUS-POP)	Suspension	In Kema, Arnheim, kontinuierlicher Abzug des <sup>135</sup> Xe, /HER 63/
1979/82	Frankreich	unbekannt	unbekannt	unbekannt	unbekannt
1983-1985	BRD	ThO <sub>2</sub> -5%UO <sub>2</sub>	FRJ-2 (DI-DO)	sechs Brennstäbe	Abbrand bis 10 MWd/kg, maximale lineare Stableistung 438 W/cm, /Mal 88/
Jan. 1984	Kanada	ThO <sub>2</sub> -PuO <sub>2</sub> 1,4% spaltbar	NRU-Loop	sechs Brennelemente	Teilweise H <sub>2</sub> O, teilweise luftgekühlt /Jon 84/
Mai 1985 - Jan. 1988	Indien	ThO <sub>2</sub> -4%PuO <sub>2</sub>	PWL-Loop des CIRUS	fünf Brennstäbe	513 K Kühlmitteltemperatur, max. 380 W/cm lineare Stableistung, Abbrand ohne Ausfall bis 18,4 MWd/kg, thermischer Fluß: 5*10 <sup>13</sup> n/(cm <sup>2</sup> s), /Ana 90/
1985-1988	BRD	ThO <sub>2</sub> -UO <sub>2</sub>	THTR	Kompletter Reaktorkern	Kugelhaufenreaktor mit 300 MW <sub>e</sub> Leistung
November 1990	Indien	U-233/Al Legierung	PURNIMA III	Brennelemente	unbekannt
	Indien	U-233/Al Legierung	KAMINI	unbekannt	30 kW Testreaktor
Mai 1985 - Dez. 1986	Indien	ThO <sub>2</sub>	MAPS	vier Brennelemente	271 °C Kühlmitteltemperatur, 300 effektive Vollasttage, Abbrand 1,7 MWd/kg /Ana 90/
	Indien	ThO <sub>2</sub>	Dhruva Reaktor	einige Brennelemente	Aluminium und Zirkaloy Hüllrohre, 100 effektive Vollasttage, /Ana 90/
1994-1995	Indien	unbekannt	KAPS-1 KAPS-2	je 500 kg Thorium	Thorium Brennstoff in Zentralregion zwecks Flußabflachung
Zukunft ?	Indien	ThO <sub>2</sub>	NAPS-2	35 - 40 Brennelemente	

Bestrahlungstests von /Ols 66/ haben gezeigt, daß das Brennstoffschwellen bei auf Thorium basierenden Brennstoffen unter Neutronenbestrahlung nur halb so groß ist, wie bei den Uranbrennstoffen. /Ols 66/ und Mitarbeiter halten ThO<sub>2</sub> bzw. Feststofflösungen von ThO<sub>2</sub>-UO<sub>2</sub> als DWR Brennstoff geeignet. /Pet 66/ et. al. haben über Empfindlichkeiten des ThO<sub>2</sub> gegenüber Thermoschockbeanspruchungen berichtet.

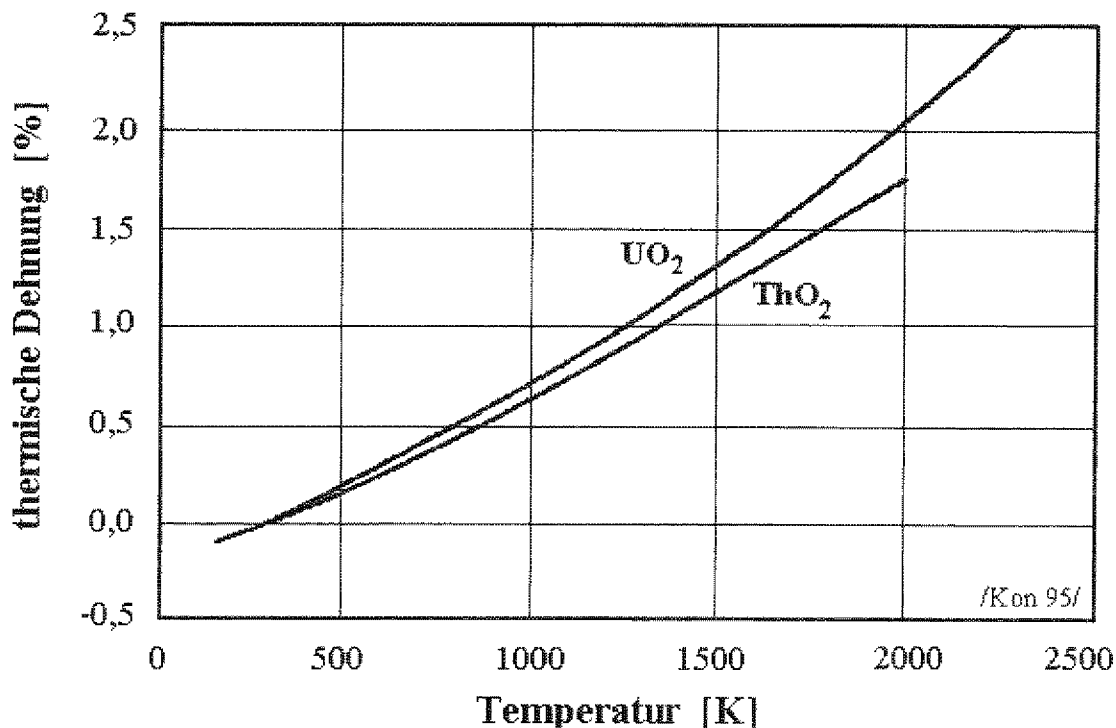


Abb. 3-7: Thermische Dehnung als Funktion der Temperatur für ThO<sub>2</sub> und UO<sub>2</sub>.

Tab. 3-2: Vergleich der Materialkennwerte von ThO<sub>2</sub> mit UO<sub>2</sub> nach /Das 90/.

Parameter	UO <sub>2</sub>	ThO <sub>2</sub>
Schmelzpunkt [°K]	3134	3663
Dichte bei 25 °C [g/(cm <sup>3</sup> )]	10,96	10,0001
Wärmeleitfähigkeit bei 1000°K [W/(cm°K)]	0,02	0,03
thermische Dehnung [10 <sup>-5</sup> /°K]	10,1	9,32
spezifische Wärmekapazität [J//kg°K]	272	293

In Indien wurden umfangreiche Bestrahlungstests mit reinem ThO<sub>2</sub> durchgeführt. So wurden vier Brennelemente in verschiedenen Kühlkanälen des MAPS-1 Reaktors (PHWR) zwischen Mai 1985 und Dezember 1986 entsprechend 300 effektiver Vollasttage bestrahlt. Die Kühlmitteltemperatur beträgt in MAPS-1 271 °C. Als Hüllrohrmaterial wurde Zirkaloy-4 verwendet, die 19 Brennstäbe wurden analog zum üblichen Urelement zu einem Bündel gruppiert. Die Pellets besitzen eine hohe Dichte (94 % -97 % der theoretischen Dichte). Auf ein Gas Plenum im Stab wurde verzichtet. Die Wärmeleitfähigkeit des ThO<sub>2</sub> fällt bei 1000 °C auf 40 % des Wertes bei Raumtemperatur ab. Meßwerte verschiedener Autoren zeigt die **Abb. 3-8**. ThO<sub>2</sub> reagiert nicht so sensitiv mit seinem thermodynamischen Verhalten auf das stöchiometrische Verhältnis von Schwermetall und Sauerstoff wie UO<sub>2</sub>. Die erreichbaren linearen Stableistungen können noch etwas über denen der UO<sub>2</sub>-Brennstoffmatrixen liegen. Die Ergebnisse des Bestrahlungsverfahrens werden in /Das 90/ als positiv bezeichnet.

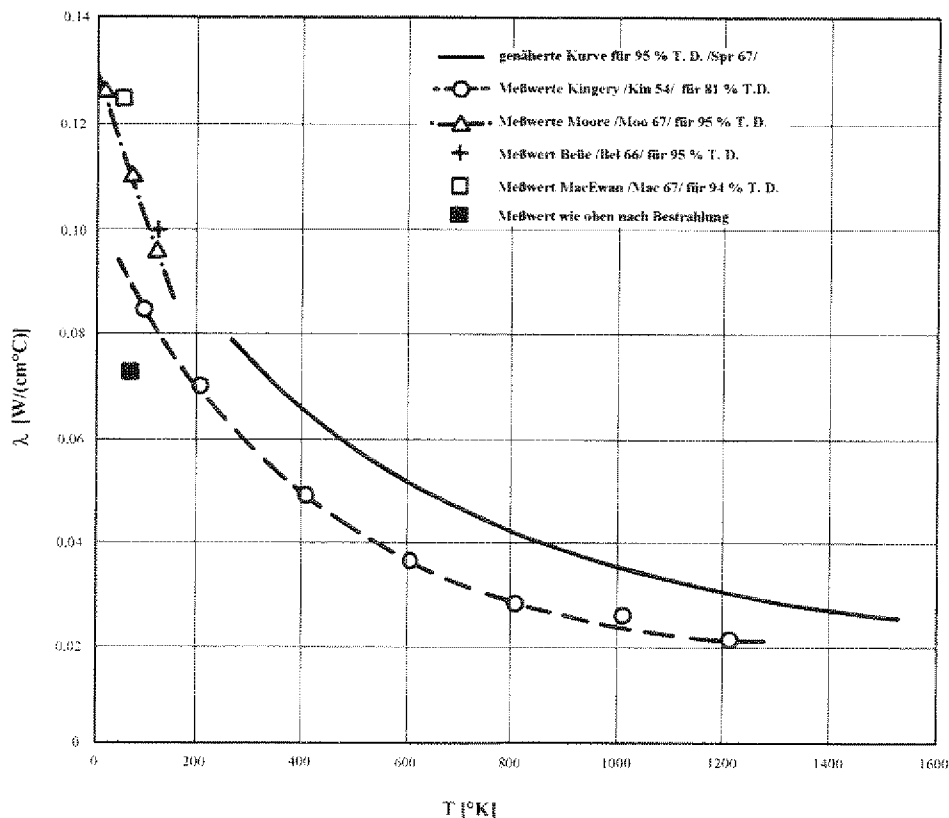


Abb. 3-8: Wärmeleitfähigkeit von  $\text{ThO}_2$  in Abhängigkeit von der Temperatur.

Für die Zukunft ist geplant, 35 - 40 Brennelemente in den Erstkern des NAPS-2 Reaktors einzusetzen. Diese dienen zur Flußabflachung im Zentralbereich des Cores, was üblicherweise durch den Einsatz von angereichertem Uran erreicht wurde.

Ein weiteres Experiment führte Indien durch, indem die Überschußreaktivität des Dhruva Reaktors zu Beginn genutzt wurde, indem einige metallische Natururan Elemente gegen  $\text{ThO}_2$  ausgetauscht wurden. Diese Elemente wurden bis zu 100 äquivalenten Vollasttagen ohne Probleme in den Reaktor eingesetzt.

### 3.5.3 $\text{ThO}_2\text{-UO}_2$

Im Rahmen der deutsch-brasilianischen Studie /Mal 88/ zum Thorium Einsatz in DWRs wurden zwischen 1983 und 1985 Bestrahlungsexperimente im FRJ-2 DI-DO der Kernforschungsanlage Jülich durchgeführt. Die erreichten Abbrände des  $\text{ThO}_2\text{-UO}_2$  Brennstoffs mit einem Urananteil von 5,03% (davon 44,95%  $^{235}\text{U}$ ) lagen im Bereich von 1,26  $\text{MWd/kg}_{\text{SM}}$  bis zu 10  $\text{MWd/kg}_{\text{SM}}$ . Einige Pellets wurden mit einer Zentralbohrung versehen, gemessen wurden Brennstofftemperaturen und Innendruck.

Von besonderem Interesse der nach der Bestrahlung durchgeführten Untersuchungen waren Spaltgasfreisetzungen, eventuelle Strukturänderungen des Gefüges, Nachsinterung, Porengrößen, Kornwachstum, Wechselwirkungen zwischen Brennstoff und Hülle, Verformungen der Hülle, Korrosion und Verteilung der Spaltprodukte.

Während der Bestrahlung sind selbst in den Zonen höchster linearer Stableistungen von über 400 W/cm keine mikroskopischen Gefügeveränderungen des Brennstoffs aufgetreten. Das „dishing“ des Brennstoffs ist nicht verformt worden. Ein Hüllrohrschaden ist gefunden worden, so daß der Thorium/Uran Brennstoff mit dem unter Druck stehenden Schwerwasser des Forschungsreaktors in Verbindung gekommen ist. Das Verhalten des Brennstoffs bei Druckwasserkontakt war dem des Uran Brennstoffs ähnlich und zeigte kein nachteiliges Verhalten. Das Brennstoffvolumen sinkt um  $1,7 \pm 0,7\%$  unabhängig von Temperatur (900 K bis 1550 K) und Abbrand (0,6 MWd/kg bis 9,6 MWd/kg). Die Freisetzung des Spaltgase aus dem Brennstoff beträgt 0,17 %, was geringer als beim reinen Uranbrennstoff ist. Aufgrund des Innendrucks während des Betriebs (ca. 70 bar) kommt es zu einer Durchmesserzunahme der Hüllrohre aus Zirkaloy von im Mittel ca. 13  $\mu\text{m}$ . Diese Veränderungen führen nach /Mal 88/ auf eine Abnahme des Innendrucks des kalten Brennstabes von ca. 21 bar auf 12 bar.

Mit den positiven Ergebnissen aus den Bestrahlungstests im FRJ-2 waren die Voraussetzungen für das Folgeexperiment geschaffen. Zur Durchführung der nächsten ursprünglich geplanten Bestrahlungstests im brasilianischen Leistungsreaktor ANGRA-1 über vier Zyklen bis zum Erreichen eines Abbrandes von 45 MWd/kg<sub>SM</sub> ist es wegen einer Änderung im Nuklearprogramm Brasiliens bisher nicht gekommen.

### 3.5.4 ThO<sub>2</sub>-PuO<sub>2</sub>

In Indien ist von Mai 1985 bis Januar 1988 ein Bestrahlungsexperiment von fünf Brennstäben mit ThO<sub>2</sub>-PuO<sub>2</sub> Pellets am Druckwasser Loop des 40 MW<sub>th</sub> CIRUS Forschungsreaktors durchgeführt worden. Der dabei erreichte Abbrand beträgt 18,5 MWd/kg<sub>SM</sub> bei linearen Stableistungen bis 380 W/cm. Nach /Ana 90/ verlief das Experiment ermutigend für weitere Tests von ThO<sub>2</sub>-PuO<sub>2</sub> Brennstoffen, so daß Indien in Zukunft eine Linie von fortschrittlichen PHWRs entwickelt, mit deren Hilfe die Thoriumreserven des Landes genutzt werden können.

Von /Ols 66/ wurden neben den Bestrahlungsversuchen mit ThO<sub>2</sub>-UO<sub>2</sub> ebenfalls auch Experimente mit Thorium/Plutonium als Brennstoff durchgeführt. Dabei wurden drei Brennstäbe bis zu einem Abbrand von 29 MWd/kg<sub>SM</sub> bei maximalen linearen Stableistungen von 245 W/cm bestrahlt. Die Spaltgasfreisetzung lag unter 5 %. Die mikroskopische Gefügestruktur ähnelt der des ThO<sub>2</sub>-UO<sub>2</sub> Brennstoffs.

### 3.5.5 Andere chemische Verbindungen des Thoriums.

#### 3.5.5.1 Thorium - Legierungen

Eine hohe Schwermetalldichte und geringe Herstellungskosten sprechen für einen Thoriumbrennstoff in metallischer Form. Thoriummetall hat eine kubisch flächenzentrierte Struktur. /Ols 66/ et. al. weisen aber daraufhin, daß ab einer gewissen Temperatur drastisches Brennstoffschwellen auftritt, was Brennstabversagen zur Folge haben kann. Die physikalisch technischen Eigenschaften sind

denen des Urans weitgehend ähnlich. Als Vorteil des Thoriums gegenüber Uran ist seine kubische Kristallstruktur zu sehen, die sich im Gegensatz zur orthorhombischen des Urans isotrop verhält. Ebenso liegt die Wärmeleitfähigkeit des Thoriums über der des Urans. Die mechanischen Daten hängen stark von den legierten Elementen ab. So sind C, Zr, Al, In, Mo und U stark härtend. Trotz Diffusion zwischen dem metallischen Thorium und dem Hüllrohr, geht /Pet 66/ davon aus, daß Zirkaloy-2 als Hüllwerkstoff geeignet ist. Man erhofft sich eine Stabilisierung der Legierung durch das sich bei Brutprozessen bildende  $^{233}\text{U}$ . Trotz dieser Stabilisierung werden aber keine hohen Abbrände mit metallischen Thorium realisiert werden können.

#### 3.5.5.2 Thorium - Nitride

Zu den grundsätzlichen Eigenschaften, die die Thorium - Nitride als Reaktorwerkstoff qualifizieren, werden in /Miy 90/ eine hohe Thoriumdichte, hohe Wärmeleitfähigkeit und für das „Back-End“ des Brennstoffkreislaufs eine gute Löslichkeit in  $\text{HNO}_3$  genannt. Eingehend wird der Oxidationsprozeß beschrieben, mit dem Thorium - Nitride in das sehr stabile  $\text{ThO}_2$  (siehe Abschnitt 3.5.2) überführt werden können.

#### 3.5.5.3 Thorium - Karbide

Die Thorium - Karbide ( $\text{ThC}$ ,  $\text{ThC}_2$ ) besitzen eine hohe Schwermetалldichte, eine hohe Wärmeleitfähigkeit und eine hohe Zusammensetzungsfähigkeit, so daß auch sie als Brennstoffmaterial in Betracht zu nehmen sind. Problematisch scheint ihr reaktives Verhalten /Pet 66/ zu Wasser und Luft. Die chemische Herstellung erfolgt durch Reduktion von  $\text{ThO}_2$ . Daten über das Bestrahlungsverhalten von Thorium - Karbiden sind sehr begrenzt. /Yam 90/ vermutet aber wegen der höheren Zusammensetzungsfähigkeit ein stabileres Verhalten im Vergleich zu den Uran - Karbiden. Mit steigender Bestrahlung steigt der Anteil des Dikarbids. Die Spaltprodukte sind in einer sich bildenden zweiten Phase zu erwarten. Nach Rechnungen hält /Yam 90/ eine Integrität des Brennstabs bis zu einem Abbrand von  $100 \text{ MWd/kg}_{\text{SM}}$  realisierbar.

## 3.6 Untersuchungen zum Brennstoffkreislauf

### 3.6.1 Gewinnung des Thoriums aus Monazit

Die Möglichkeiten, Thorium im Reaktor zu nutzen, sind besonders von den Staaten untersucht worden, die über große Vorräte verfügen. So besitzen Brasilien und Indien große Mengen an Monazit, der zu 8 % bis 10 % Thorium enthält. Zur Zeit fällt Thorium aus diesem Monazit, der ebenfalls viele seltene Erden enthält, als Beiprodukt /Ken 90/ an. Von dem bei der Trennung aus dem Monazit anfallenden Nitrat ist eine einfache Überführung zu  $\text{ThO}_2$  möglich. Die Trennung zwischen Thorium und Uran sollte möglichst genau erfolgen, um eine Verdünnung

des zu erbrütenden  $^{233}\text{U}$  mit  $^{238}\text{U}$  zu vermeiden, wenn man nicht durch  $^{238}\text{U}$  gezielt die Proliferationsgefahr (siehe Kapitel 10) reduzieren möchte.

Die bei der Aufarbeitung der Erze abgetrennten Elemente enthalten auch die meisten Töchter der natürlichen Zerfallsreihen. Diese haben einen nicht zu vernachlässigenden Einfluß auf die Umwelt, so daß auch an dieser Stelle der Thoriumbrennstoffkreislauf mit dem Uranbrennstoffkreislauf verglichen werden muß. Umfassende Untersuchungen dazu hat /Sch 99/ durchgeführt. /Sch 99/ stellt fest, daß folgende wesentliche Unterschiede zwischen der Uran- und Thoriumaufbereitung liegen:

- Höhere Konzentrationen an Thorium in den entsprechenden Erzen.
- Kürzere Halbwertszeiten der Thoriumtöchter (insbesondere Radium- und Radonisotope)
- Unterschiede in den mittleren  $\gamma$ -Energien der Zerfallsreihen
- Unterschiedliche Dosisfaktoren.

Daraus werden in /Sch 99/ die folgenden Schlußfolgerungen hergeleitet:

- Große Thoriumressourcen sind verfügbar, es ist möglich die Kosten für die Thoriumgewinnung durch die gemeinsame Produktion seltener Erden zu senken.
- Der spezifische Thoriumbedarf für Reaktoren ist geringer als der derzeitige Bedarf an Natururan.
- Der Anfall an Abraum ist bei Thorium geringer, da die Konzentrationen in den Erzen höher liegen.
- Die Menge an radioaktiven Abfall ist bei der Thoriumgewinnung um ca. zwei Größenordnungen geringer als bei der Urangebung. Es besteht daher die Möglichkeit die Tailings der Thoriumgewinnung als mittelaktiven, alphahaltigen Abfall in Behältern endzulagern.
- Wegen der deutlich kürzeren Halbwertszeiten (Halbwertszeiten der Thoriumtöchter  $^{228}\text{Ra}$  /  $^{228}\text{Th}$  sind 5,7 / 1,9 a gegenüber den Urantöchtern  $^{226}\text{Ra}$  /  $^{230}\text{Th}$  mit 1600 / 77000 a) erfolgt eine Reduzierung der langfristigen Radiotoxizität der Abfallprodukte bei der Thoriumaufbereitung um ca. zwei Größenordnungen.
- Vereinfachte Rückhaltung des kurzlebigen  $^{220}\text{Rn}$  (Thoriumtochter, Halbwertszeit 55,6 s) gegenüber dem  $^{222}\text{Rn}$  (Urantochter, Halbwertszeit 3,8 d)
- Die Inhalations- und Ingestionsdosisfaktoren von Thorium sind fünffach respektive zweifach so groß wie die des Urans, was eine intensivere Überwachung der Beschäftigten und der Bevölkerung erfordert.

### 3.6.2 Brennelementfertigung

Zur Herstellung von thoriumbasierten Brennelementen ( $\text{ThO}_2\text{-PuO}_2$  bzw.  $\text{ThO}_2\text{-UO}_2$ ) /Gan 90/ wurde das „sol Gel“-, das Tabletten-Imprägnations- und auch das konventionelle Pulver-Pellet-Verfahren untersucht. Der zugemischte Schwermetallanteil liegt zwischen zwei und fünf Prozent. Erschwerend für die Fertigung von  $^{233}\text{U}$  enthaltenden Brennelementen sind die  $\gamma$ -strahlenden Töchter des  $^{232}\text{U}$ , die eine automatisierte, voll abgeschirmte Fertigung erfordern.

Beim Pulver-Pellet-Verfahren werden die Schwermetalloxide in Pulverform gemischt und nach dem Kaltpressen gesintert. /Gan 90/ hält Zusätze von  $\text{MgO}$  sinnvoll, um eine möglichst homogene, dichte Brennstofftablette zu erhalten. Das sol-Gel Verfahren wurde in Zusammenarbeit mit der Kernforschungsanlage Jülich entwickelt. Hierbei liegt das Schwermetall zunächst in gelöster Form zusammen mit Kohlenteer vor. Der tropfenförmige Brennstoff wächst so beim anschließenden Sintern besser zusammen, da die Mikrosphären durch den Kohlenteer eine weichere Oberfläche erhalten. Die erreichbare Dichte des Brennstoffs wird so deutlich erhöht. Der sol Gel Prozeß ist relativ einfach automatisierbar und kommt so den Anforderungen des  $^{232}\text{U}$  und seiner Zerfallskette entgegen. Der Vorteil beim Tabletten-Imprägnationsverfahren liegt im Vermeiden von feinen aktiven Stäuben. Hier wird das  $\text{ThO}_2$  mit einer Uranyl-Nitrat-Lösung vor dem Sintern bestrichen und auf diese Art der Uranteil in den Brennstoff eingebracht.

Das eigentliche Sintern /Vij 90/ kann wegen der Stabilität des  $\text{ThO}_2$  in jeder Atmosphäre durchgeführt werden. Zum Erreichen einer hohen Sinterdichte ( $> 96\%$  /Gan 90/ der theoretischen Dichte) sind Zusätze erforderlich. Während des Sinterns wird die Homogenität durch die Eigendiffusion der Elemente weiter verbessert.

Für die Herstellung von  $\text{ThO}_2\text{-PuO}_2$  Brennstoffen sind im Rahmen des deutsch-brasilianischen Gemeinschaftsprojekts in der BRD von /Mal 88/ Untersuchungen durchgeführt worden, bei denen das Plutonium durch das materialtechnisch sehr verwandte Cer ersetzt wurde. Die chemisch physikalische Machbarkeit von  $\text{ThO}_2\text{-PuO}_2$  Brennelementen ist im Bereich von  $(\text{Th}_{0,75}\text{Ce}_{0,25})\text{O}_{1,97-1,89}$  bis zu  $(\text{Th}_{0,2}\text{Ce}_{0,8})\text{O}_{1,82-1,62}$  als Grenzzusammensetzungen für Einphasensysteme mit Cer als Substitut für Plutonium bewiesen.

Neuere Untersuchung zur Fertigung thoriumbasierter Brennstoffe hat /Ren 99/ durchgeführt. Die Fertigung von frischen Uran/Thorium und Th-MOX Brennstoffen kann unter den gleichen Abschirmbedingungen wie die etablierte Fertigung von U-MOX Brennstoffen erfolgen. Mit einigen Verbesserungen der Abschirmung hinsichtlich der Neutronendosis können auch einfach rezyklierte Th-MOX Brennstoffe zur Brennelementfabrikation verwendet werden. Soll das aus Thorium erbrütete Uran als Brennstoff rezykliert werden, erfordert dies die Fertigung in heißen Zellen, wegen der hoch  $\gamma$ -aktiven Töchter des  $^{232}\text{U}$ .

### 3.6.3 Wiederaufarbeitung von Thorium Brennstoffen

Beim Thoriumzyklus muß bei der Wiederaufarbeitung das  $^{233}\text{U}$ , das Thorium und für eine Rezyklierung der Transurane auch diese von den Spaltprodukten getrennt werden. In Indien wurden von /Bal 902/ Untersuchungen zu Thorium Brennstoffen mit Hüllrohren aus Aluminium durchgeführt. Der erste Schritt ist die Auflösung der Aluminiumhülle in NaOH. Bei Verwendung von Hüllrohren aus Zirkaloy kann beim Thoriumbrennstoff das etablierte Head-End des Uran-Plutonium Kreislaufs übernommen werden. Der auf thoriumbasierte Brennstoff wird anschließend in  $\text{HNO}_3$  gelöst, wobei die erforderliche Lösungsdauer von der Mikrostruktur des Brennstoffs abhängt. Mit steigender Dichte des Brennstoffs nimmt die erforderliche Lösungszeit zu, während ein höherer Abbrand eher verkürzend wirkt. Die Übertragbarkeit von Versuchen zum THOREX-Prozeß mit unbestrahltem Brennstoff auf die Realität des späteren Brennstoffkreislaufs ist daher fraglich. Thorium erfordert eine höhere Säurekonzentration als Uran. Mit 30% TBP soll dann durch deren unterschiedliche Löslichkeit Uran und Thorium getrennt werden. Die Umsetzungsraten sind langsamer als bei Uran. Kritikalitätsfragen gewinnen wegen der bei Thorium Brennelementen höheren Anreicherung an Bedeutung. Wegen der Strahlenschutzproblematik bei der Fertigung der MOX Brennstoffe aus den rezyklierten Stoffen ist eine weitgehende Dekontamination des  $^{233}\text{U}$  und des Thoriums wünschenswert. In /Mal 88/ werden Dekontaminationsfaktoren für Thorium und Uran von  $10^3$  für realistisch gehalten. Ein Problem stellt das  $^{228}\text{Th}$  dar, welches eine starke  $\gamma$  und  $\alpha$  aktive Tochter des  $^{232}\text{U}$  ist und ebenso wie dieses (vom  $^{233}\text{U}$ ) chemisch nicht vom  $^{232}\text{Th}$  getrennt werden kann. In /Rob 66/ werden die Uran- bzw. Thoriumverluste mit weniger als 0,4 % angegeben. Bei einer mechanischen Vortrennung könnten die Rückgewinnungsraten von Thorium und Uran auf 99,8 % gesteigert werden. Eine Zwischenlagerung, bei der das  $^{228}\text{Th}$  weitgehend zerfällt, könnte vor der erneuten Brennelementfertigung sinnvoll sein, führt aber zu Kostensteigerungen. Nach 20 Jahren Zwischenlagerung wäre das Aktivitätsniveau des natürlichen Thorium Isotopengemischs erreicht. Der bei Thorium erforderliche Mehraufwand führt nicht zwangsläufig zur Unwirtschaftlichkeit des Brennstoffs, da Thoriumbrennelemente bis zu einem höheren Abbrand betrieben werden können.

Neuere Untersuchungen zur Wiederaufarbeitung von auf thoriumbasierten Brennstoffen hat /Mod 99/ durchgeführt. Es wird darauf hingewiesen, daß zur Rezyklierung von thoriumbasierten Brennstoffen der THOREX Prozeß verwendet werden würde, der aber industriell nicht soweit entwickelt ist wie der analoge PUREX Prozeß. Insbesondere fehlen immer noch Erfahrungen mit der Wiederaufarbeitung von hochabgebrannten Thoriumbrennstoffen. Bisher lag das Wiederaufarbeitungsinteresse hauptsächlich in der Trennung von Thorium und Uran, während die Transuranabtrennung außer acht gelassen wurde. Für die Trennung von Uran, Thorium, Plutonium, Neptunium und das dreiwertige Americium und Curium sind noch keine komplexen Flußdiagramme in der Literatur zu finden. Die erreichbaren Abtrennraten sind nach /Mod 99/ beim THOREX Prozeß mit denen des PUREX Prozesses vergleichbar und werden für Uran und

Thorium mit 0,1 % und für Protactinium mit 1 % bis 2 % angegeben. Bisher sind allenfalls oberflächliche Resultate zur trockenen Wiederaufarbeitung von thoriumbasierten Brennstoffen vorhanden. Vielversprechende Potentiale hat nach /Mod 99/ der pyrochemische Prozeß, der bisher an Korrosions- und Hochtemperaturproblemen scheiterte.

In den oben erwähnten Arbeiten wird abschließend darauf hingewiesen, daß die Kosten für die Wiederaufarbeitung einen großen Anteil an den gesamten Brennstoffkreislaufkosten haben. Die Chancen der wirtschaftlichen Thoriumnutzung hängen deshalb stark von der Wirtschaftlichkeit des „Head-Ends“ ab. Deshalb wird in /Lot 66/ neben einer großtechnisch, rationell ausgelegten Wiederaufarbeitungsanlage bereits eine Berücksichtigung des „Head-Ends“ beim Brennelementdesign gefordert.

### 3.6.4 Endlagerung von Thorium Brennstoffen

Der langlebige Abfall wird nach den üblichen Entsorgungskonzepten in einem speziellen Behälter in eine tiefe geologische Formation verbracht. Nach tausend Jahren kann die Integrität des Behälters nicht mehr vorausgesetzt werden, dem Wirtsgestein der Lagerstätte fällt dann die Aufgabe zu, die Radionuklide möglichst zu immobilisieren und sie so von der Biosphäre fernzuhalten. Entsprechend ist das Migrationsverhalten des Brennstoffmaterials entscheidend. Bei der Einführung von Th-MOX Brennstoffen ist einerseits die Trägermatrix ( $\text{ThO}_2$ ) neu zu untersuchen, andererseits sind auch einige Nuklide, die innerhalb der Uranzyklus nicht vorkommen, wie zum Beispiel  $^{231}\text{Pa}$ ,  $^{229}\text{Th}$  und  $^{230}\text{U}$ , einzubeziehen. Dabei wird die - für die Migrationsgeschwindigkeit relevante - Löslichkeit auch von dem Fertigungsverfahren /Fou 98/ des Matrixmaterials und seinen pulvermetallurgischen Eigenschaften abhängen. Nach /Fou 98/ kann  $\text{ThO}_2$  welches aus Thorium-Oxalate durch Kalzinierung bei  $1600^\circ\text{C}$  hergestellt wurde, auf Grund seiner kleinen Löslichkeit ( $c_{\text{Th}}$  kleiner als  $2 \cdot 10^{-10}$  M bei  $25^\circ\text{C}$ ) favorisiert werden. Damit ist es deutlich immobilere als  $\text{UO}_2$ , dessen Löslichkeitswerte  $c_{\text{U}}$  zwischen  $2 \cdot 10^{-4}$  unter oxidierenden Bedingungen bzw.  $10^{-6}$  bis  $10^{-8}$  unter reduzierenden Bedingungen liegen. /Fou 98/ hält einen Wert für  $c_{\text{Th}}$  von  $10^{-8}$  für ausreichend konservativ, um dem Einfluß von Temperaturen bis zu  $90^\circ\text{C}$ , dem Eindringen von Wässern und der mechanischen Zerstörung von Brennstofftabletten Rechnung zu tragen. Nach numerischen Rechnungen zum Ausbreitungsverhalten von thoriumbasierten Brennstoffen in Endlagern, stellt /Fou 98/ fest, daß die mobilen Spaltprodukte ( $^{129}\text{I}$  und  $^{135}\text{Cs}$ ) gefolgt von den Aktivierungsprodukten ( $^{59}\text{Ni}$ ,  $^{94}\text{Nb}$ ) den größten Anteil an der zu erwartenden Dosisbelastung haben. Da die Quellterme der Thoriumbrennstoffe ähnlich denen der Uranbrennstoffe sind, ist auch die zu erwartende Dosisbelastung durch ein Endlager nicht signifikant unterschiedlich. Größere Unterschiede treten nur im Bereich der Actiniden auf, die für sehr große Zeiten mehr in den Vordergrund rücken. Da die Betrachtungen in /Fou 98/ sich auf Thorium Brennstoffe mit hochangereichertem Uran beziehen, in denen dementsprechend nur sehr wenig Transurane enthalten sind, kann hier noch kein realistischer Vergleich gezogen werden.



## **4 Beschreibung der numerischen Simulationstechnik**

### **4.1 Zielsetzung**

In den folgenden Kapiteln wird der Thorium-Brennstoffkreislauf durch numerische Simulationen des neutronischen Geschehens im Reaktor mit dem Uranbrennstoffkreislauf verglichen. Ziel ist die Prüfung der Realisierbarkeit eines thoriumbasierten Brennstoffs im Druckwasserreaktor unter Beibehaltung der Brennelementgeometrie. Im einzelnen stehen folgende Aspekte im Mittelpunkt:

- Ermitteln der Inventare in den Reaktoren und in den abgebrannten Brennstoffen
- Bestimmung der erreichbaren Abbrände
- Beurteilung des Sicherheitsverhaltens
- Bestimmung der Toxizität in den Abfallströmen
- Berechnung der Nachzerfallswärmeleistung

Im Druckwasserreaktor ist das Neutronenspektrum weitgehend unabhängig von der Position des Brennelementes im Reaktor, ferner ist die mittlere freie Weglänge der Neutronen wegen der guten Moderationseigenschaften des Wassers gering. Das hat zur Folge, daß das neutronische Geschehen innerhalb eines Brennelements weitgehend unabhängig von den umgebenden Brennelementen ist. Deshalb können die numerischen Simulationen in Form von Zellrechnungen durchgeführt werden. Heterogenitäten im Kern, wie z. B. eine Variation der Brennelementanreicherung in radialer Richtung zur Glättung des radialen Neutronenflusses können dadurch allerdings nicht erfaßt werden.

### **4.2 Beschränkung auf Zellrechnungen**

Alle neutronischen Rechnungen in dieser Arbeit werden in Form von Zellrechnungen durchgeführt. Dabei wurde durch die Annahme, daß der Netto-Neutronenstrom an der Grenze der Einheitszelle null ist eine quasi unendlich

ausgedehnte Anordnung simuliert. Vorteil dieser Vorgehensweise ist die Begrenzung des numerischen Aufwandes auf ein Maß, das es erlaubt diverse Brennstoffe in vertretbaren Zeiten zu simulieren. Der nicht berücksichtigten Neutronenleckage wird dadurch Rechnung getragen, daß man durch Wahl der richtigen Anreicherung die ermittelten  $k_{\infty}$  Werte fünf Prozent oberhalb des kritischen Multiplikationsfaktors des realen Reaktors festlegt. Ein Vergleich der entsprechenden Multiplikationsfaktoren des etablierten Uranbrennstoffs rechtfertigt diese Annahme, da dessen  $k_{\infty}$  Werte ebenfalls fünf Prozent oberhalb derer des endlichen Reaktors liegen.

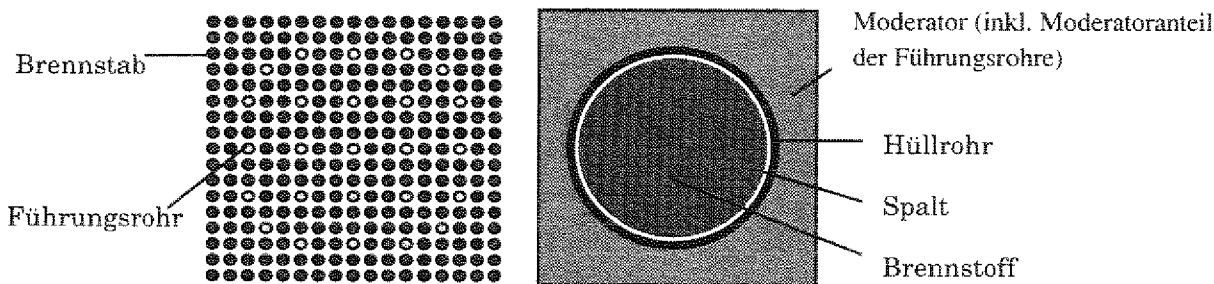


Abb. 4-1: Aufbau des Brennelementbündels des N4 Kerns und der in allen neutronischen Rechnungen simulierten Einheitszelle.

Tab. 4-1: Auslegungsdaten des N4 Reaktors

Allgemeine Daten		
Thermische Leistung	/MW <sub>th</sub>	4250
Kühlmittel		H <sub>2</sub> O
Strukturmaterial		Zirc-4
Kerndaten		
Aktive Höhe	/cm	427
Aktiver Durchmesser	/cm	347
Masse Schwermetall	/t <sub>SM</sub>	110
spez. Leistung	/MW/t <sub>SM</sub>	38,60
BE-Bündel Daten		
Zahl der Bündel		205
Bündelstruktur		17x17
Brennstäbe/Bündel		264
Kontrollstäbe/Bündel		24
Führungsstäbe/Bündel		1
Bündel Außenmaß	/cm	22,522
Materialdichten		
Hüllrohr	/g/cm <sup>3</sup>	6,55
Moderator	/g/cm <sup>3</sup>	0,6977

Tab. 4-2: Daten der Einheitszelle des N4 Reaktors.

Geometriedaten		
Pellet Ø	/cm	0,4127
Spalt Ø	/cm	0,4174
Hüllrohr Ø	/cm	0,4744
Stababstand	/cm	1,3248
Brennstoff-Vol.	/cm <sup>2</sup>	0,5350
Hüllrohr-Vol.	/cm <sup>2</sup>	0,1597
Moderator-Vol.	/cm <sup>2</sup>	1,0483
Temperaturen		
Brennstoff	/K	930
Hüllrohr	/K	586
Moderator	/K	586
Hüllrohrdichte		
<sup>Nat</sup> Zr	/1/(barn*cm)	4,3*10 <sup>-2</sup>
Moderatordichten		
<sup>1</sup> H	/1/(barn*cm)	4,664*10 <sup>2</sup>
<sup>16</sup> O	/1/(barn*cm)	2,332*10 <sup>2</sup>
Borkonzentration	/ppm	1000

### 4.3 Beschreibung des Brennelementbündels und der Einheitszelle

Für alle Berechnungen wurde das Brennelement des französischen Druckwasserreaktors N4 gewählt. Dies erscheint sinnvoll, da die Brennelemente des geplanten zukünftigen europäischen Druckwasserreaktors EPR den gleichen Bündelaufbau besitzen. Das Design des Brennelementes und der daraus resultierende Aufbau der Einheitszelle mit entsprechenden Daten sind in **Abb. 4-1** und in den **Tab. 4-1 / Tab. 4-2** gezeigt. Während des Abbrandes wird zur Erhaltung der Kritikalität die Borkonzentration innerhalb eines Zyklus von ihrem Anfangswert linear auf null reduziert. Die anfängliche Borkonzentration ist abhängig vom jeweiligen Brennstoff bzw. vom innerhalb eines Zyklusses auftretenden Reaktivitätsverlust des jeweiligen Brennstoffs.

### 4.4 Rezyklierungsstrategie

Die MOX-Brennstoffe bestehen aus einem Brennstoffbasismaterial (hier Uran oder Thorium) und einer treibenden Brennstofffraktion, zumeist Plutonium. Diese Brennstofffraktion ist zuvor in einem mit anderem Brennstoff getriebenen Reaktor erbrütet worden und wird während der Wiederaufarbeitung abgetrennt. Da sowohl die Aktivität, als auch die Nachzerfallswärmeleistung unmittelbar nach dem Einsatz im Reaktor sehr hoch sind, ist eine sofortige Aufarbeitung des Brennstoffs nicht realisierbar. In allen Brennstoffzyklen wird eine Abklingzeit von sieben Jahren vor der Wiederaufarbeitung unterstellt. In der Wiederaufarbeitung wird das Plutonium und im Fall von abgebrannten thoriumbasierten MOX-Brennstoffen auch das Uran rezykliert. Für beide Elemente werden Rezyklierungsverluste von 0,1 % dieser Elemente unterstellt. Diese Rezyklierungsverluste werden zusammen mit dem Abfallstrom aus der Wiederaufarbeitung bei der Betrachtung ihres Toxizitätspotentials und ihrer Nachzerfallswärmeleistung erfaßt. Die rezyklierten Materialien werden dann mit dem Basismaterial zu neuen Brennstoffen verarbeitet. Nach der Brennelementfertigung wird in den Simulationen immer ein Zeitraum von drei Jahren bis zum erneuten Einsatz im Reaktor unterstellt. Während dieser Zeit wird der radioaktive Zerfall der rezyklierten, treibenden Brennstofffraktion berücksichtigt, so daß sich neben Plutonium auch geringe Mengen von  $^{234}\text{U}$  und  $^{241}\text{Am}$  im Brennstoff befinden.

### 4.5 Inhalte der Rechnungen

Im den folgenden Kapiteln dieser Arbeit werden mit Hilfe von numerischen Berechnungen die folgenden Aspekte einer Einführung des Thoriumkreislaufs untersucht,

- Bestimmung der Eigenwerte der unendlich ausgedehnten multiplizierenden Anordnung zur Bestimmung von erforderlichen Anreicherungen der Brennstoffe und Borkonzentrationen innerhalb des Moderators zur Kompensation der Reaktivitätsverluste.

- Beurteilung des Abbrandverhaltens von thoriumbasierten Brennstoffen im Vergleich zu uranbasierten Brennstoffen durch Vergleich der zeitabhängigen Nuklidvektoren.
- Beurteilung der nuklearen Stabilität des Reaktorkerns anhand von Rückwirkungskoeffizienten für Änderungen der Brennstofftemperatur, Moderator-temperatur, sowie des Dampfblasen- (Void) und des Borgehaltes,
- Bestimmung der Radiotoxizitäten als Funktion der Zeit für die Abfallströme der Brennstoffkreisläufe,
- und die Bestimmung der zeitabhängigen Nachzerfallswärmeleistungen der Abfallströme der Brennstoffkreisläufe.

#### **4.5.1 Berechnung des $k_{\infty}$ Wertes**

Alle neutronischen Berechnungen werden mit dem SCALE Programmpaket /ORN 93/ der Version 4.2 durchgeführt. Die einzelnen Programmmodule des Programmpaketes, die für die Berechnungen innerhalb dieser Arbeit genutzt worden sind, werden in Anhang B-1 vorgestellt. Nach Eingabe der Brennstoffzusammensetzung und der Geometrie der Einheitszelle und einiger weiterer Parameter zur Steuerung des Rechenablaufs berechnet das SCALE unter Anwendung des Steuermoduls CSAS1X den Eigenwert des Problems, das heißt die Neutronenproduktion pro Absorption innerhalb der Einheitszelle. Die Rechnungen erfordern eine umfangreiche Wirkungsquerschnitts-Datenbank. Die hier verwendete Datenbank hat eine 123 Energiegruppenstruktur mit Datenmaterial aus JEF 2.2 und bei einigen Nukliden auch aus JEF 1 Ursprüngen. Ausnahme hiervon sind einige Abbrandrechnungen während der Benchmarkphase, um gezielt die Qualität der verwendeten Datenbank zu prüfen und den Einfluß von anderen Wirkungsquerschnittsdaten auf die berechneten Nuklidvektoren zu prüfen. Zunächst wird durch die Programmmodule BONAMI-S und NITAWL-S, die ebenfalls im Anhang B-1 beschrieben werden, ein problemspezifischer Wirkungsquerschnittsdatensatz erstellt, der die Selbstabschirmung der Resonanzen bei gegebener Geometrie und Brennstoffzusammensetzung berücksichtigt. Anschließend wird die Boltzmann Gleichung durch das Modul XSDRNPM-S eindimensional gelöst und somit der gesuchte Eigenwert des infiniten Mediums bestimmt.

#### **4.5.2 Berechnung der Nuklidvektoren und $k_{\infty}$ Werte als Funktion des Abbrandes.**

Die Berechnung erfolgt zunächst mit SCALE durch Aufruf der Module BONAMI-S, NITAWL-S und XSDRNPM-S analog zu Abschnitt 4.5.1. Durch XSDRNPM-S werden die Wirkungsquerschnitte ausgehend von der 123 Energiegruppenstruktur auf drei Energiegruppen kondensiert. Anschließend liest diese das Modul COUPLE-S und kondensiert sie weiter zu Eingruppenquerschnitten, die auf den thermischen Fluß normiert sind. Für Nuklide deren kondensierte Wirkungsquerschnitte nicht auf der kompletten Spektralinformation der Einheitszelle basieren, erfolgt die Flußanpassung auf implizitem Weg über die Einführung von

Flußfaktoren für die drei Energiegruppen thermisch (THERM), Resonanzbereich (RES) und schnell (FAST), die ihrerseits durch XSDRNPM-S bestimmt werden. Damit erhält man einen Datensatz, der von dem eigentlichen Abbrandprogramm des SCALEs, dem Modul ORIGEN-S, gelesen werden kann. Da sich die Nuklidvektoren während des Abbrandes kontinuierlich verändern, beschreibt der zu einem diskreten Zeitpunkt generierte Wirkungsquerschnittsdatsatz das Problem mit zunehmenden Abbrand immer weniger exakt. Die sich verändernden Wirkungsquerschnitte haben ebenfalls Rückwirkungen auf den  $k_{\infty}$  Wert des Problems. Deshalb muß der Abbrandprozeß innerhalb von ORIGEN-S mehrfach unterbrochen werden, um mit dem jeweiligen aktuellen Nuklidvektor erneut die Wirkungsquerschnitte zu wichten. Dabei wird der Eigenwert ebenfalls neu bestimmt. Dieses rekursive Vorgehen wird während des gesamten Abbrandverlaufes wiederholt. Es ist hier zwischen Genauigkeit der Ergebnisse und Rechenzeit zu optimieren.

### 4.5.3 Berechnung der Reaktivitätskoeffizienten

Um einen Brennstoff zu realisieren muß sichergestellt sein, daß sich der Reaktorkern nuklear stabil verhält. Im einzelnen müssen die Rückwirkungen von Brennstofftemperaturänderungen, Moderatortemperaturänderungen mit entsprechenden Änderung der Moderatorichte, Dampfblasenbildung und der Borsäurekonzentration im Moderator untersucht werden. Die Reaktivitätsänderungen des Reaktors auf Veränderungen dieser Parameter müssen immer in die umgekehrte Richtung laufen wie deren Ursprung und auf diese Weise die Abweichungen von den Nominalwerten selbständig kompensieren („negatives Feed Back“). Das bedeutet, daß z. B. eine Leistungserhöhung im Reaktor durch ein beliebiges Initialereignis selbst kompensiert werden muß. Eine Erhöhung der Leistung führt zu einer Erhöhung der Brennstofftemperatur. Dies hat wiederum Rückwirkungen auf die Reaktivität des Kerns, da sich durch Resonanzverbreiterung die effektiven Wirkungsquerschnitte für Spaltung und Absorption verändern. Ein sicheres Verhalten wird erreicht, wenn durch Verstärkung der Absorptionen im Brennstoff die nukleare Leistungsproduktion und damit auch die Temperatur fällt. In den Rechnungen wird die Veränderung der Reaktivität bei einer um 10 K erhöhten Brennstofftemperatur bezogen auf die Normtemperatur nach Gl. 4-1 betrachtet. Mit den mit „‘“ markierten Größen ist jeweils der Nominalzustand gemeint.

$$\text{Gl. 4-1} \quad \alpha = \frac{d\rho}{dT} = \frac{1}{(T - T')_{Fuel}} \frac{k_{\infty} - k'_{\infty}}{k_{\infty} k'_{\infty}}$$

Einen weiteren Einfluß hat eine durch Leistungssteigerung oder verringerte sekundäre Wärmeabfuhr erhöhte Moderatortemperatur. Mit der Temperaturänderung des Moderators, die in den Rechnungen ebenfalls zu 10 K angenommen wird, korrespondiert bei gleichem Druck eine Verringerung der Dichte auf den Faktor 0,963. Dadurch verändert sich sowohl das Moderations- als auch das Absorptionsverhalten des Moderators. Stabile System besitzen hier auch Reaktivitäts-

tätsänderungen mit negativem Vorzeichen. Wegen der variablen Borkonzentration im Moderator ist das Verhalten zu Beginn eines Zyklus wegen der dann verstärkten absoluten Wirksamkeit des Bors besonders kritisch zu betrachten. Die Reaktivitätsänderung wird nach **Gl. 4-2** ausgedrückt. Mit  $D$  wird die veränderte Moderatorichte bezeichnet. Beträgsmäßig zu große Werte dieses Koeffizienten werden im Störfall des plötzlichen Einbruchs von kaltem Wasser problematisch.

$$\text{Gl. 4-2} \quad \alpha = \frac{d\rho}{d(T * D)} = \frac{1}{(T - T')_{Mod}} \frac{k_{\infty} - k'_{\infty}}{k_{\infty} k'_{\infty}}$$

Ebenfalls relevant ist die Betrachtung des Dampfblasenkoeffizienten. Hier wird von einer auf 1 % reduzierten Moderatorichte ausgegangen, wie sie unter Umständen bei Verdampfen des Kühlmittels (zumindest partiell) auftreten kann. Mit der Moderatorichte wird ebenfalls der Inhalt des darin gelösten Bors auf 1 % der Nominalkonzentration reduziert. Dieser Koeffizient wird nach **Gl. 4-3** bestimmt.

$$\text{Gl. 4-3} \quad \alpha = d\rho = \frac{k_{\infty} - k'_{\infty}}{k_{\infty} k'_{\infty}}$$

Der letzte untersuchte Koeffizient ist Wirksamkeit des Bors. Um ein instabiles Verhalten beim Eindringen von unboriertem Kühlmittel zu verhindern, darf der Anteil der durch Bor gebundenen Aktivität nicht zu hoch sein. Auf der anderen Seite muß dieser Koeffizient stets negativ sein, da sonst ein Ausgleich der Reaktivitätsverluste des Kerns innerhalb eines Zyklusses nicht realisierbar wäre. Die **Gl. 4-4** beschreibt die relative Borwirksamkeit. In den Rechnungen wurde eine um 100 ppm erhöhte Borkonzentration unabhängig vom Abbrand unterstellt.

$$\text{Gl. 4-4} \quad \alpha = \frac{d\rho}{dc_{Boron}} = \frac{1}{(c - c')_{Boron}} \frac{k_{\infty} - k'_{\infty}}{k_{\infty} k'_{\infty}}$$

#### 4.5.4 Berechnung der Toxizitätspotentiale

Für diese Rechnungen wird ebenfalls das ORIGEN-S Modul des SCALE 4.2 /ORN 93/ Programmpaketes genutzt. Durch ORIGEN-S erhält man die zeitabhängigen Nuklidvektoren auch außerhalb des Reaktors. Die Veränderungen der Vektoren resultieren dementsprechend ausschließlich aus radioaktivem Zerfall. Zusätzlich ist es erforderlich, die unterschiedliche Toxizität der einzelnen Nuklide für den Menschen zu erfassen. Die unterschiedliche Toxizität der Nuklide hat im wesentlichen zwei Ursachen. Sie entsteht einerseits durch das verschiedene chemische Verhalten der Elemente im Organismus und die davon abhängende Verteilung der Nuklide im Menschen und deren unterschiedliche Verweildauer bzw. biologische Halbwertszeiten. Andererseits hängt die Toxizität von der Art des radioaktiven Zerfalls ( $\alpha$ ,  $\beta$  und  $\gamma$ ) und der dabei freigesetzten Energie ab. Durch die Dosisfaktoren wird die pro Zerfall des jeweiligen Nuklids resultierende Äquivalentdosis beschrieben. Die Äquivalentdosen werden gemäß den Dosisfak-

toren der ICRP- 68 /ICR 94/ ermittelt. Die Dosisfaktoren sind in der Vergangenheit durch die ICRP öfters korrigiert wurden und die verwendeten Werte der ICRP-68 stellen die zur Zeit der Arbeit (1998) aktuellsten verfügbaren Werte dar. Die Aktivitäten der im Brennstoff enthaltenen Nuklide werden mit den entsprechenden Dosisfaktoren multipliziert und die so bestimmten Anteile an der Äquivalentdosis für jedes Nuklid summiert. Gl. 4-5 zeigt diesen Zusammenhang,

$$\text{Gl. 4-5} \quad H = \sum_i (D_i c_i),$$

wobei der Index  $i$  für die einzelnen Nuklide verwendet wird,  $D$  der entsprechende Dosisfaktor in Sv/Bq und  $c$  die Aktivitätskonzentration des Nuklids  $i$  im abgebrannten und / oder endzulagernden Brennstoff ist.

#### 4.5.5 Berechnung der Nachzerfallswärmeleistung

Gemäß den Ausführungen in Abschnitt 4.5.4 werden durch das ORIGEN-S Modul des SCALE 4.2 Programmpaketes /ORN 93/ die zeitabhängigen Nuklidvektoren nach dem Einsatz im Reaktor bestimmt. Diese Nuklidvektoren verändern sich ausschließlich durch den radioaktiven Zerfall der instabilen Isotope. Die bei den Zerfällen freigesetzte Energie ( $\alpha$ ,  $\beta$  und  $\gamma$ ) wird zu einem großen Teil direkt im Brennstoff deponiert. Die Angabe der Energiefreisetzung erfolgt im ORIGEN-S Elementweise. Für die Auswertung innerhalb dieser Arbeit werden die Elemente den drei Gruppen „Leichte Elemente“, „Spaltprodukte“ und „Actiniden“ zugeordnet und in dieser Struktur ausgewertet. Ferner wird der Anteil der Energieproduktion durch  $\gamma$ -Leistung getrennt aufgeführt. Ausführlich wird auf die Problematik der Nachwärmeleistung in Kapitel 9 eingegangen.

#### 4.5.6 Simulation der Rezyklierung

Die Rezyklierungsstrategie wurde bereits in Abschnitt 4.4 diskutiert. Hier wird die numerische Realisierung mit Hilfe des ORIGEN-S Moduls des SCALE 4.2 /ORN 93/ Programmpaketes kurz umrissen. Da der radioaktive Zerfall während der Abklingzeit und während der unterstellten Zeitspanne für die Fertigung neuer MOX Brennelemente berücksichtigt werden soll, wird der Einsatz des ORIGEN-S Moduls erforderlich. Ausgehend von dem Datensatz, der die Zusammensetzung des der Rezyklierung vorhergehenden Brennstoffs zum Abbrandende enthält, werden die Veränderungen des Nuklidvektor während der siebenjährigen Abklingzeit berechnet. Anschließend wird unterschieden, ob

- Das Interesse auf den rezyklierten Elementen (Plutonium oder Uran und Plutonium) liegt, oder
- In der Zusammensetzung des WAA Abfallstroms.

Im ersten Fall werden die rezyklierten Elemente zu 99,9 % von den übrigen Stoffen abgetrennt und einer weiteren, dreijährigen Zerfallszeit unterworfen, die bis zum erneuten Einsatz im Reaktor unterstellt wird. Für den zweiten Fall werden alle Nuklide mit Ausnahme von 99,9 % der abgetrennten Elemente für weitere

Betrachtungen (z. B. Abnahme der Toxizitäten und der Nachzerfallswärmeleistung von WAA Abfallströmen) berücksichtigt. In beiden Fällen erstellt das ORIGEN-S den Nuklidvektor in maschinenlesbarer Form, so daß weitere Simulationen mit dem SCALE 4.2 Programmpaket ohne größeren Aufwand möglich sind.

## 5 Benchmarking

Um die Qualität der Rechenergebnisse möglichst weit abzusichern, sind zu Beginn der Arbeiten umfangreiche Rechnungen mit bekannten Brennstoffen durchgeführt und die Ergebnisse mit denen anderer Institute, insbesondere mit denen der ECN /Klo 97/ in Petten (Niederlande), verglichen worden. Im Mittelpunkt dieser Benchmarkrechnungen standen dabei die Multiplikationsfaktoren und die Transuranvektoren, die in einem DWR mit Uranbrennstoff erbrütet worden sind. Bei diesen Benchmarkrechnungen mit der ECN wurde eine Einheitszelle zugrundegelegt, die das Brennelement des französischen N4 Druckwasserreaktors, wie es bereits in Abschnitt 4.3 detailliert beschrieben wurde, simuliert.

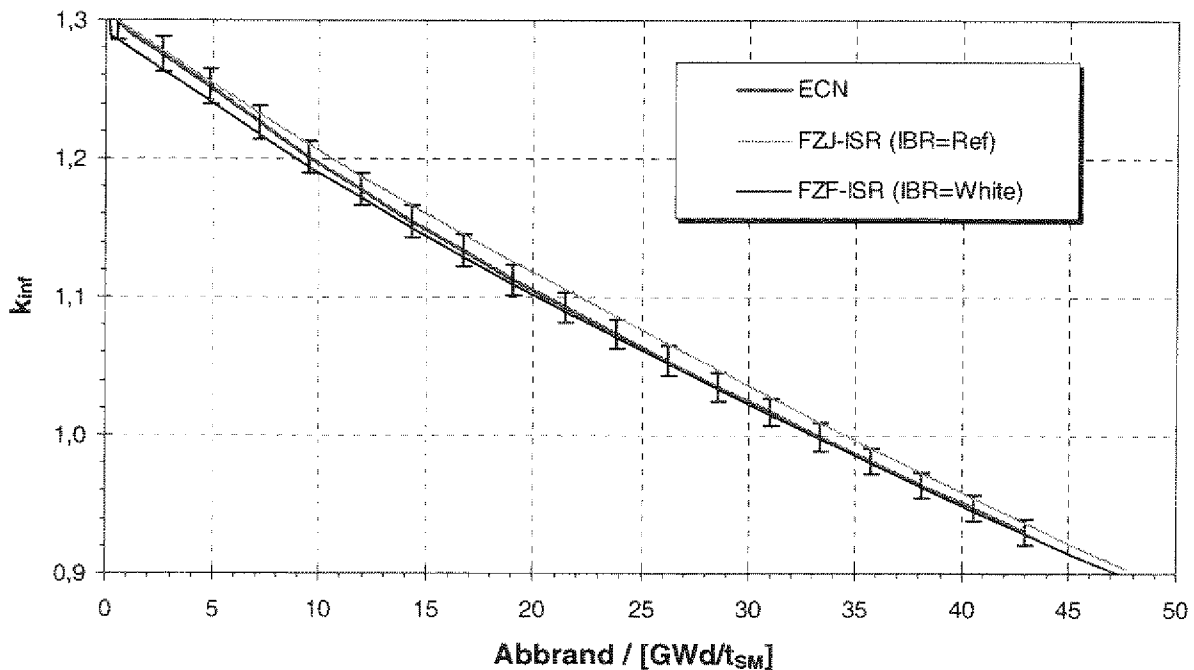
### 5.1 Eigenwerte

Die Berechnung der Multiplikationsfaktoren (hier zunächst für den Uranreferenzbrennstoff mit 47,5 GWd/tSM Endabbrand) erfolgt mit Hilfe des SCALE 4.2 Programms /ORN 93/, wie in Abschnitt 4.5.1 beschrieben. Bei der Eingabe hat man die Wahl der Randbedingung für den äußeren Neutronenleakagestrom der Einheitszelle. Die Ergebnisse für die Randbedingungen „White“ oder „Reflected“, die für eine infinite Anordnung in Frage kommen, liefern gute Übereinstimmung mit den Ergebnissen von /Klo 97/. Dabei ist zu erwähnen, das /Klo 97/ nicht mit dem Programmpaket SCALE 4.2 sondern mit WIMS arbeitet. Ebenfalls wird statt der hier verwendeten Wirkungsquerschnitts-Datenbank mit 123 Neutronenenergiegruppen von /Klo 97/ eine mit 172 Energiegruppen verwendet, die sich ausschließlich auf JEF 2.2 Daten stützt.

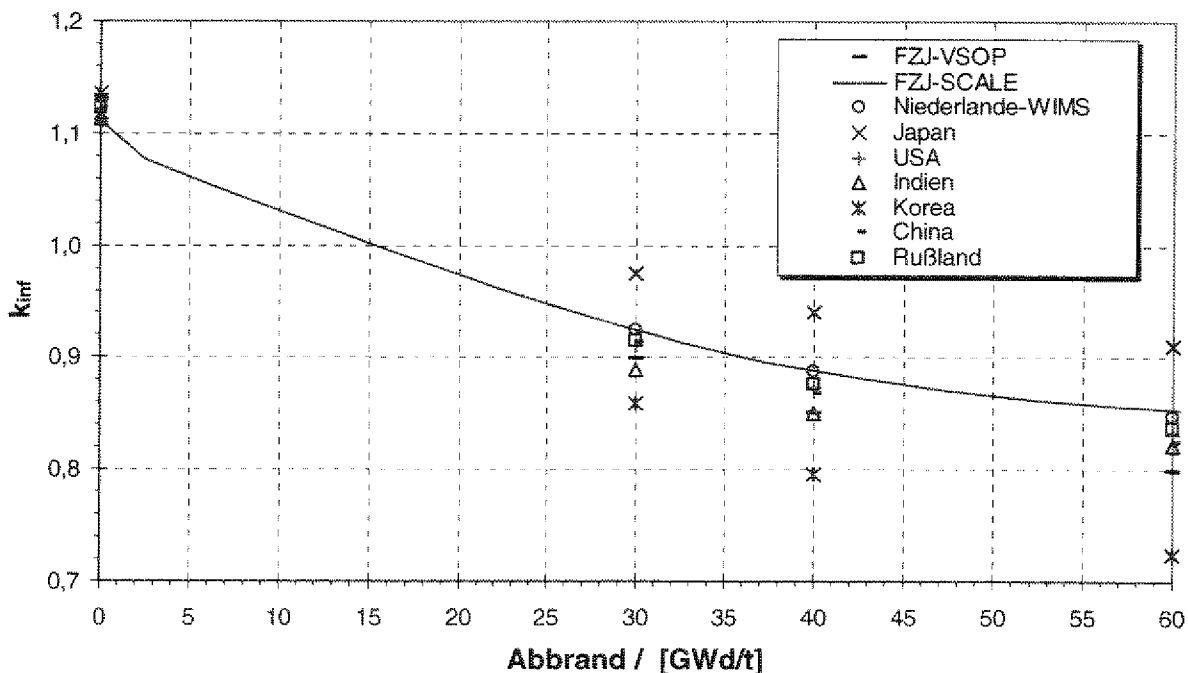
Bei „Verwendung“ der Randbedingung „Reflected“ werden die aus der Einheitszelle austretenden Neutronen an der Grenzfläche zur benachbarten Einheitszelle reflektiert, während bei Annahme der Randbedingung „White“ davon ausgegangen wird, daß die die Einheitszelle verlassenden Neutronen in gleicher Zahl isotrop von den benachbarten Zellen zurückgestreut werden. Die Ergebnisse der Randbedingung „Reflected“ stimmen mit den von /Klo 97/ bestimmten Werten für kleine Abbrände besser überein, während die Werte von „White“ für größere Abbrände die bessere Übereinstimmung zeigen. In **Abb. 5-1** ist bei den mit WIMS

bestimmten Werten der ECN der Fehlerbalken in y-Richtung eingetragen, der einen relativen Fehler von 1 % darstellt. Für alle weiteren Rechnungen wurde die Randbedingung „White“ gewählt.

Zusätzlich wurden Ergebnisse von einer internationalen Benchmarkrechnung der IAEA /Rüt.96/ zur Validation der Ergebnisse herangezogen. Bei dieser Rechnung wurde von diversen Forschungsinstituten unter anderem die Eigenwerte von thoriumbasiertem und Plutonium getriebenen Brennstoff untersucht. Die Ergebnisse dieses Benchmarks und die von SCALE ermittelten Werte sind in **Abb. 5-2** dargestellt. Es wird deutlich, daß die Abweichungen zwischen den einzelnen Instituten durchaus größer als 1 % sind. Die mit dem Programmpaket SCALE 4.2 berechneten Werte liegen innerhalb dieses Vergleichs im Mittelfeld, wo auch die meisten Werte der anderen Benchmark Teilnehmer sind. Die Eigenwertberechnung mit SCALE nach dem angewendeten Verfahren, welches ausführlich in den Abschnitten B-1 und B-2.1 des Anhangs beschrieben wird, kann daher – im Rahmen der international erreichbaren Genauigkeit – als gesichert angesehen werden.



**Abb. 5-1:**  $k_{\infty}$ -Werte für die Einheitszelle des N4 Brennelementes von FZJ-ISR für die Randbedingungen "Reflected" oder "White" und von /Klo 97<sub>1</sub>/.



**Abb. 5-2:**  $k_{\infty}$ -Werte für die Einheitszelle des N4 Brennelementes mit Th-MOX Brennstoff von FZJ-ISR und von diversen Instituten nach /Rüt 96/.

## 5.2 Nuklidvektoren

In diesem Teil des Benchmarks stehen die zeitlichen Veränderungen der Nuklidvektoren über dem Abbrand im Vordergrund. Die Rechnungen basieren wiederum auf den in Abschnitt 4.3 beschriebenen Referenzbündel mit der zugehörigen Einheitszelle. Der Vergleich der Ergebnisse mit denen von /Klo 97/ in **Abb. 5-3** und **Abb. 5-4** zeigt insbesondere Abweichungen bei den Isotopen  $^{238}\text{Pu}$  und  $^{239}\text{Pu}$ . Dabei sind für den Plutoniumvektor in **Abb. 5-3** die Verläufe der Kernzahldichten direkt angegeben, während **Abb. 5-4** den relativen Fehler zwischen den Ergebnissen der Forschungszentrums Jülich GmbH und der ECN (Petten) zeigt. Hier beginnt die Zeitachse bei 200 Tagen, da darunter die Kernzahldichten nahe Null liegen und so keine sinnvollen Aussagen möglich sind. Der Fehler bei  $^{239}\text{Pu}$  erreicht gegen Ende des Abbrandes (bei ca. 47,5  $\text{GWd}/t_{\text{SM}}$ ) einen Fehler von ca. 7 %. Der Fehler bei  $^{238}\text{Pu}$  von ca. 12 % überschreitet diesen deutlich, jedoch ist die Relevanz des  $^{238}\text{Pu}$  nicht so hoch wie die des  $^{239}\text{Pu}$ . Generell wachsen die Abweichungen in den Ergebnissen mit Abbrand. In **Abb. 5-5** sind analog die relativen Abweichungen innerhalb des Uranvektors aufgeführt. Hier tritt die größte Unsicherheit bei dem Isotop  $^{235}\text{U}$  für das die SCALE Werte des FZJ gegen Ende des Abbrandes um ca. 7 % unterhalb derjenigen von /Klo 97/ liegen. Um die Ursache dieser Abweichungen zu klären, oder festzustellen ob diese Abweichungen sich im international üblichen Maß befinden, wurden diverse Rechnungen mit modifizierten Parametern bzw. Datenbanken durchgeführt.

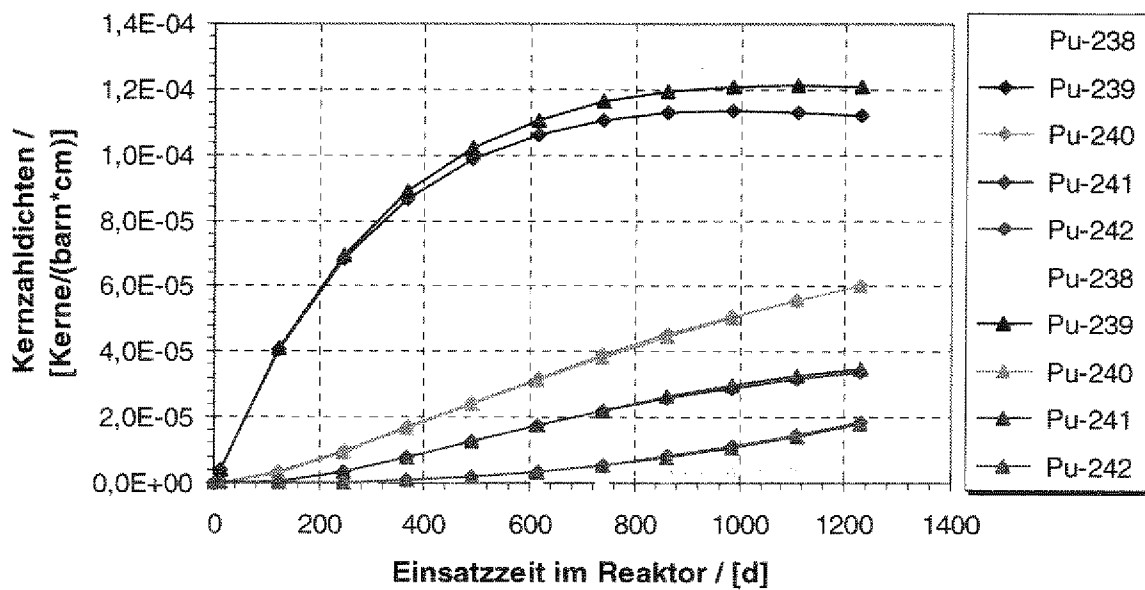


Abb. 5-3: Entwicklung der Plutoniumkernzahldichten während des Einsatzes im DWR. (Werte des FZJ durch Rauten und von /Klo 97/ durch Dreiecke gekennzeichnet).

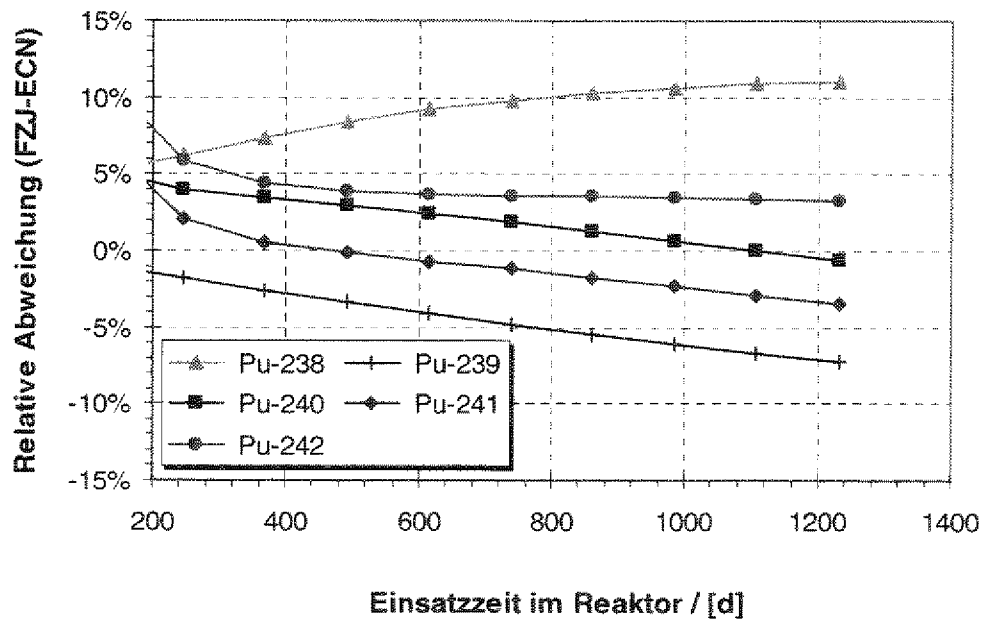
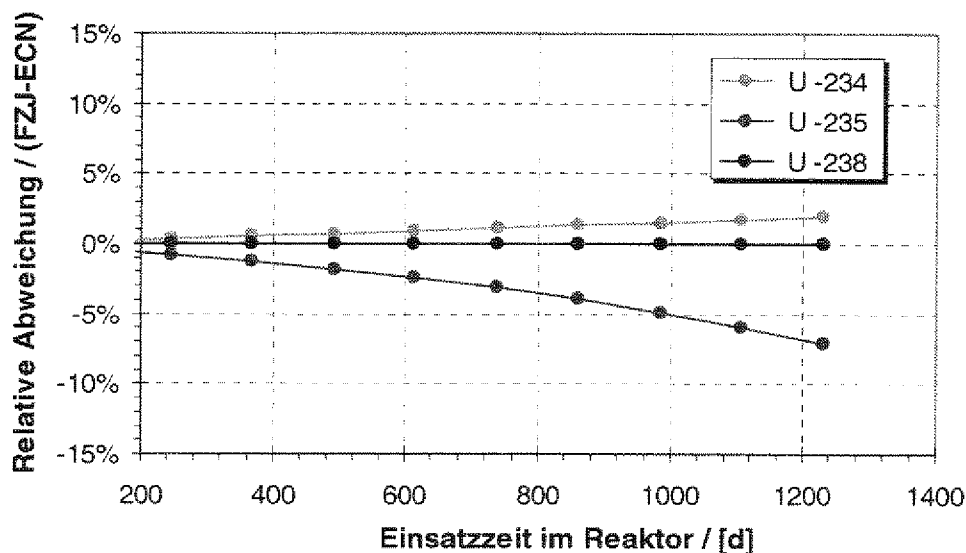


Abb. 5-4: Zeitliche Entwicklung der relativen Abweichungen zwischen den Ergebnissen der Forschungszentrum Jülich GmbH (FZJ) und von /Klo 97/ ECN für die Plutoniumisotope.



**Abb. 5-5:** Zeitliche Entwicklung der relativen Abweichungen zwischen den Ergebnissen der Forschungszentrum Jülich GmbH (FZJ) und von /Klo 97/ ECN für die Uranisotope.

Zusammenfassend kann festgestellt werden, daß die Konzentrationen der Nuklide  $^{235}\text{U}$  und  $^{239}\text{Pu}$ , welche beide einen großen integralen Spaltwirkungsquerschnitt für thermische Neutronen haben, in den FZJ Rechnungen unterhalb der Werte von /Klo 97/ liegen. Für das Nuklid  $^{235}\text{U}$  bleiben als Kernreaktionen mit hinreichendem Wirkungsquerschnitt entweder die Spaltung oder der  $(n,\gamma)$ -Einfang zu berücksichtigen. Da sich das  $^{236}\text{U}$  nach den im FZJ durchgeführten Rechnungen schneller aufbaut und insbesondere das  $^{237}\text{Np}$  (vgl. **Abb. 5-7**), welches seinerseits durch einen erneuten  $(n,\gamma)$ -Einfang innerhalb des  $^{236}\text{U}$  und anschließendem Zerfall des sehr kurzlebigen  $^{237}\text{U}$  gebildet wird, stärker aufbaut als nach den Rechnungen der ECN wird der Wirkungsquerschnitt für die  $(n,\gamma)$ -Reaktion des  $^{235}\text{U}$  durch die Rechnungen mit SCALE größer eingeschätzt. Die gesamte Anzahl an Spaltungen, muß bei beiden Rechnungen konstant sein, da die gleiche Arbeit geleistet werden soll. Entsprechend dem zusätzlichen Verlust an  $^{235}\text{U}$  Kernen durch parasitäre Absorptionen wird das Verhältnis der Spaltungen mit zunehmenden Abbränden zwischen Plutonium und Uran zu Seiten des Plutoniums verschoben, so daß die geringere  $^{239}\text{Pu}$  Konzentration durch vermehrtes Spalten dieses Nuklids erklärt werden kann. Diese These wird dadurch unterstützt, daß die  $^{238}\text{U}$  Konzentrationen in beiden Rechnungen kaum variieren. Da  $^{239}\text{Pu}$  nahezu ausschließlich durch Absorptionen im  $^{238}\text{U}$  erbrütet wird, kann von einer identischen Bildungsrate nach beiden Rechnungen ausgegangen werden. Die relativen Abweichungen innerhalb der „Minor Actinides“ (MA) sind in **Abb. 5-6** aufgeführt. Man erkennt Abweichungen in den Rechnungen von bis zu 20 %. Hier muß allerdings darauf hingewiesen werden, daß ihre Konzentrationen innerhalb des Brennstoffes verhältnismäßig gering sind, so daß kleine absolute Fehler unmittelbar zu großen relativen Fehlern führen. In **Abb. 5-7** sind die absoluten Verläufe der Kernzahldichten der „Minor Actinides“ (MA) Elemente auf-

gezeigt. Man erkennt hier die mit Abstand dominierende Rolle des Nuklids  $^{237}\text{Np}$ , so daß die höhere Einschätzung der Konzentrationen dieses Nuklids in den FZJ Rechnungen die These des erhöhten  $^{235}\text{U}$  Verbrauchs durch Neutroneneinfang stärkt.

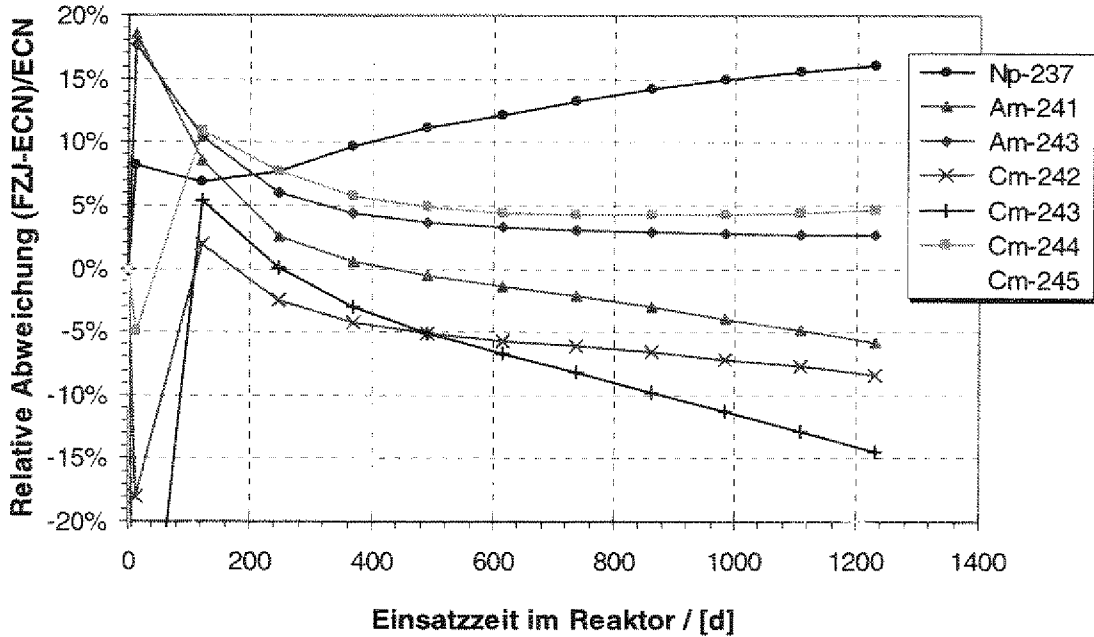


Abb. 5-6: Zeitliche Entwicklung der relativen Abweichungen zwischen den Ergebnissen der Forschungszentrum Jülich GmbH (FZJ) und von /Klo 97/ ECN für die „Minor Actinides“ (MA).

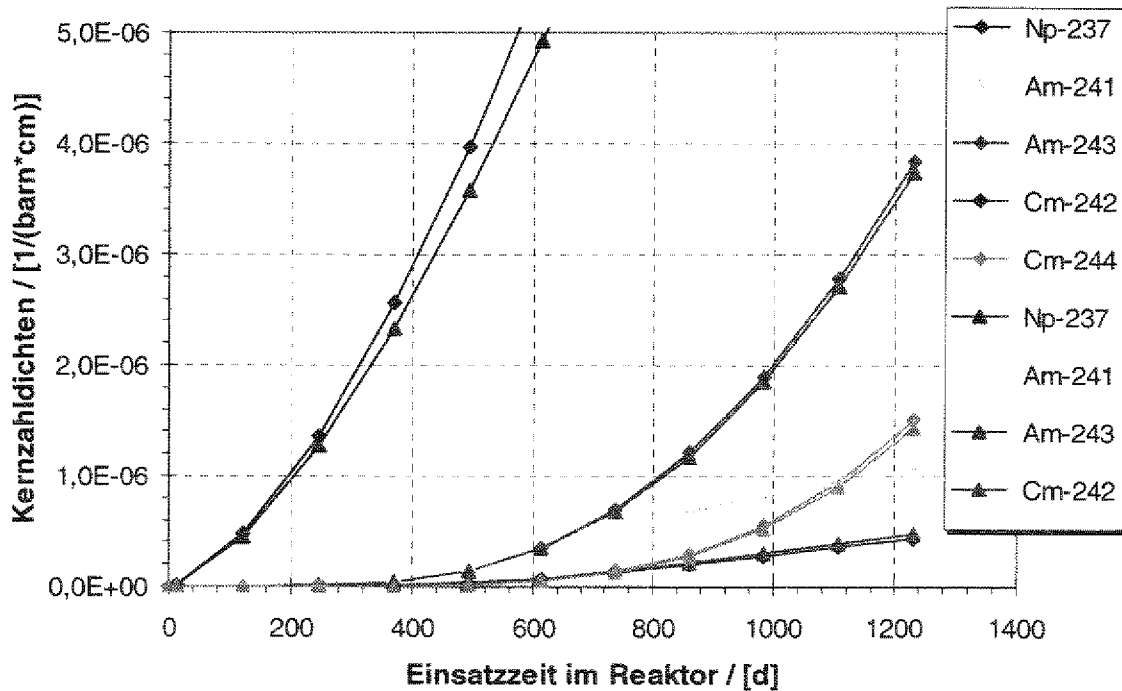


Abb. 5-7: Entwicklung der Plutoniumkernzahlidichten während des Einsatzes im DWR. (Werte des FZJ durch Rauten und von /Klo 97/ durch Dreiecke gekennzeichnet).

### 5.3 Klärung der Abweichungen

Die bei den Berechnungen innerhalb des FZJ verwendete Datenbank, welche hauptsächlich auf die JEF 2.2 Daten in einer 123 Energiegruppenstruktur basiert ist, enthält unter anderen für die wichtigen Nuklide  $^{235}\text{U}$ ,  $^{238}\text{U}$  und  $^{239}\text{Pu}$  noch Datensätze, die auf Daten von JEF 1 basiert sind. Um den Einfluß dieses Sachverhaltes auf die Qualität der Rechenergebnisse zu prüfen, wurden Vergleichsrechnungen mit anderen Wirkungsquerschnittsdatenbanken durchgeführt. So wurden Rechnungen mit einer 172 Energiegruppen umfassenden Datenbank /Sta 96/, die sich ausschließlich auf JEF 2.2 Daten stützt, als auch mit

**Tab. 5-1:** Vergleich der Plutonium und Uran Vektoren bei Verwendung verschiedener Datenbanken innerhalb des SCALE Programmsystems.

Nuklid	123 Gruppen	172 Gruppen	44 Gruppen
	Jül-Lib JEF 2.2/1	ELJ-XMASS JEF 2.2	SCALE 4.3 ENDBF/B VI
Pu-238	2,47 %	2,26 %	2,42 %
Pu-239	49,05 %	50,09 %	49,79 %
Pu-240	25,88 %	25,47 %	25,36 %
Pu-241	14,66 %	14,54 %	14,45 %
Pu-242	7,93 %	7,65 %	7,98 %
Pu ges.	1,10 %	1,13 %	1,15 %
U-234	0,02 %	0,02 %	0,02 %
U-235	0,72 %	0,73 %	0,73 %
U-236	0,58 %	0,56 %	0,57 %
U-238	98,68 %	98,70 %	98,67 %

den auf ENDF/B VI (44 Energiegruppen) und ENDBF/B IV (27 Energiegruppen) basierten Datenbanken des SCALE 4.3 respektive SCALE 4.2 Programmsystems durchgeführt. Die Ergebnisse sind für die Elemente Uran und Plutonium in **Tab. 5-1** aufgeführt. Die relativen Abweichungen liegen bei Plutonium mit Ausnahme des  $^{238}\text{Pu}$  (8,5 %) unterhalb des 3 % Bereiches, die von Uran liegen unterhalb von 4 % wobei insbesondere für  $^{235}\text{U}$  die Abweichung kleiner als 2 % ist.

Eine weitere Möglichkeit für Abweichungen kann in der Implementierung der Leerstäbe liegen. Zusätzliche Rechnungen mit dem SCALE Programmsystem mit diversen Datenbanken ohne Berücksichtigung des in den Leerstabpositionen zusätzlich vorhanden Moderators wurden durchgeführt, um die Sensibilität der Nuklidvektoren auf die exakte Implementierung des Moderationsverhältnisses zu prüfen. Die Ergebnisse faßt **Tab. 5-2** zusammen. Man erkennt, daß die Ergebnisse wenig von der verwendeten Datenbank abhängen, jedoch im Vergleich zu den - mit Berücksichtigung des zusätzlichen vorhandenen Druckwassers in der Leerstabpositionen - von /Klo 97<sub>1</sub>/ mit WIMS 7 berechneten Vektoren deutliche Differenzen zeigen. Deshalb kann gefolgert werden, daß die Implementierung des exakten Moderationsverhältnisses von besonderer Bedeutung für die Qualität der berechneten Nuklidvektoren ist.

**Tab. 5-2:** Verringerung des Moderationsverhältnisses und sein Einfluß auf die Ergebnisse bei Verwendung unterschiedlicher Datenbanken. Die ECN Werte beziehen sich auf das Moderationsverhältnis des N4 Brennelementbündels mit Leerstäben.

Nuklid	123 Gruppen	172 Gruppen	44 Gruppen	123 Gruppen	ECN WIMS7 Moderator mit Leerst.
	Jül-Lib.	EIJ-XMASS	SCALE 4.3	Jül-Lib. Pu-239	
	JEF 2.2/1	JEF 2.2	ENDBF/BVI	aus ENDBF/BVI	
Pu-238	2,47 %	2,40 %	2,19 %	2,52 %	2,30 %
Pu-239	51,57 %	52,27 %	52,01 %	50,96 %	53,13 %
Pu-240	24,09 %	23,52 %	24,76 %	24,50 %	22,74 %
Pu-241	14,93 %	14,76 %	14,42 %	15,01 %	15,11 %
Pu-242	6,94 %	7,06 %	6,61 %	7,01 %	6,72 %
<b>Pu ges.</b>	<b>1,240 %</b>	<b>1,284 %</b>	<b>1,213 %</b>	<b>1,245 %</b>	

Um ein möglichst deutliches Bild von der Qualität der mit SCALE und der verwendeten 123 Energiegruppen Datenbank auf Basis von JEJ 1 und JEF 2.2 Wirkungsquerschnitten berechneten Nuklidvektoren zu erhalten, wurden zusätzliche Rechnungen zum Vergleich /Phl 99/ mit Ergebnissen des /NEA 96/ Benchmarks, an dem international 16 verschiedene Institute teilnahmen, durchgeführt. Dieser Benchmark umfaßt berechnete Nuklidvektoren als auch nach Abbrand im Reaktor gemessene. Zum Vergleich wurde der Mittelwert aus den Berechnungen der einzelnen Teilnehmer des Benchmarks gewählt. Das Referenzbündel für diesen Benchmark ist vom Druckwassertyp mit 14 x 14 Stabpositionen. Bei der Implementierung der neuen Einheitszelle in SCALE wurde das Moderationsverhältnis durch Wahl eines geeigneten Stababstandes exakt abgebildet. Die Ergebnisse sind in **Tab. 5-3** aufgeführt, als auch in den **Abb. 5-8** bis **Abb. 5-10** für die drei betrachteten Abbrände von 27,35 GWd/t<sub>SM</sub>, 37,12 GWd/t<sub>SM</sub> und 44,34 GWd/t<sub>SM</sub> gezeigt. Der Vergleich der SCALE Ergebnisse mit den Meßwerten des /NEA 96/ Benchmarks treten größere Diskrepanzen nur bei den Isotopen <sup>235</sup>U und <sup>238</sup>Pu auf. Die gemittelten Ergebnisse der Benchmark Rechnungen zeigen aber ebenfalls hier deutliche Diskrepanzen zu den Meßwerten, was insbesondere für das <sup>235</sup>U verwundert. Ebenfalls erkennt man, daß die SCALE Ergebnisse für die Nuklide <sup>237</sup>Np, <sup>240</sup>Pu und <sup>242</sup>Pu besser mit den Meßwerten übereinstimmen, als die gemittelten Ergebnisse der Benchmark Teilnehmer. Sehr deutliche Abweichungen zwischen den SCALE Werten und dem mittleren Benchmarkergebnis gibt es lediglich beim genannten <sup>237</sup>Np, wo die Benchmarkergebnisse wiederum selbst deutlich von den Meßwerten abweichen. Diese Aussage gilt ebenfalls für den gesamten Gehalt an Plutonium und an Minor Actinides (MA), wenn man von dem Nuklid <sup>237</sup>Np absieht.

**Tab. 5-3:** Vergleich der mit SCALE (123 Gruppen mit JEF 1 und JEF 2.2 Wirkungsquerschnitten) berechneten Nuklidvektoren mit Eckdaten des /NEA 96/ Benchmarks, C=Berechnung; E=Experimentelle Daten; B=Benchmarkmittelwert.

Abbrand	C <sub>FZJ</sub> /E			B/E			C <sub>FZJ</sub> /B		
	27,35	37,12	44,34	27,35	37,12	44,34	27,35	37,12	44,34
U-234	0,08%	-1,21%	3,49%	-5,69%	-2,64%	1,25%	6,11%	1,47%	2,22%
U-235	-4,04%	-6,91%	-11,15%	-3,31%	-5,63%	-9,58%	-0,76%	-1,36%	-1,74%
U-236	3,11%	3,39%	2,73%	2,68%	2,92%	2,14%	0,43%	0,46%	0,58%
U-238	-0,60%	-0,31%	-0,07%	-0,59%	-0,28%	-0,02%	-0,01%	-0,04%	-0,05%
Np-237	-0,08%	8,82%	-0,56%	8,66%	17,50%	6,94%	-8,04%	-7,39%	-7,01%
Pu-238	-12,44%	-9,93%	-11,16%	-10,80%	-7,77%	-8,78%	-1,84%	-2,35%	-2,61%
Pu-239	-3,53%	-3,96%	-4,31%	-0,80%	-0,99%	-1,24%	-2,75%	-3,00%	-3,11%
Pu-240	0,06%	-1,35%	-2,91%	-0,52%	-2,23%	-4,17%	0,59%	0,91%	1,31%
Pu-241	-1,40%	-3,09%	-4,82%	-1,69%	-1,87%	-3,02%	0,30%	-1,24%	-1,85%
Pu-242	0,42%	0,93%	-0,83%	-4,33%	-2,92%	-4,95%	4,96%	3,97%	4,34%
Am-241							-1,88%	-3,00%	-3,38%
Am-243							-2,45%	-4,60%	-5,12%
Pu ges.	-2,41%	-2,95%	-3,85%	-1,10%	-1,71%	-2,84%	-1,32%	-1,26%	-1,05%
MA ges.							-5,04%	-5,39%	-5,46%

Abschließend kann man feststellen, daß die Differenzen innerhalb der Berechnungen mit verschiedenen Programmen größer sind, als man unter Umständen annimmt. Dies gilt insbesondere bei Nukliden, die auch in der bereits etablierten Reaktortechnik von fundamentaler Bedeutung sind, wie z. B. <sup>235</sup>U oder <sup>239</sup>Pu. Es kann aber auch festgestellt werden, daß die Werte die durch das SCALE Programmsystem unter Verwendung der 123 Energiegruppeneckdatenbank mit JEF 1 und JEF 2.2 Wirkungsquerschnitten generierten Nuklidvektoren innerhalb der international üblichen Genauigkeiten liegen, was die folgenden Rechnungen ausreichend validiert. Weitere Ergebnisse zu den Benchmarkrechnungen sind im Anhang C-1 enthalten.

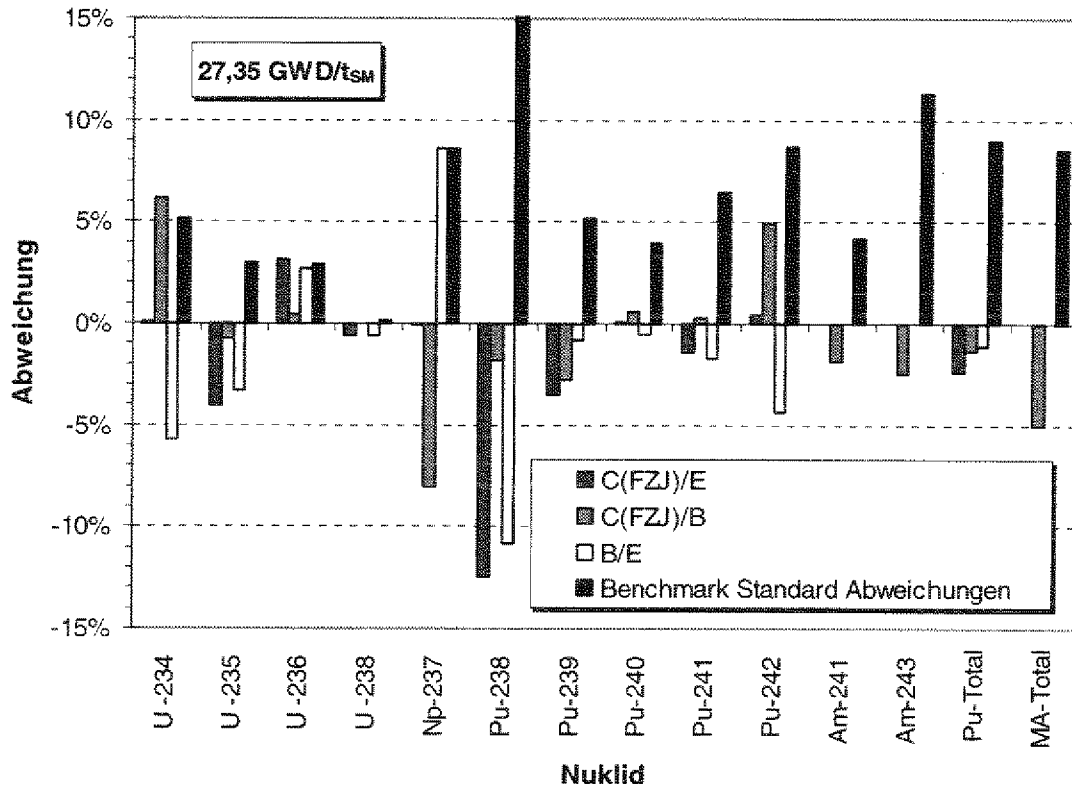


Abb. 5-8: Ergebnisse zu den /NEA 96/ Benchmarkdaten für einen Abbrand von 27,35 GWd/t<sub>SM</sub> nach /Phl.99/.

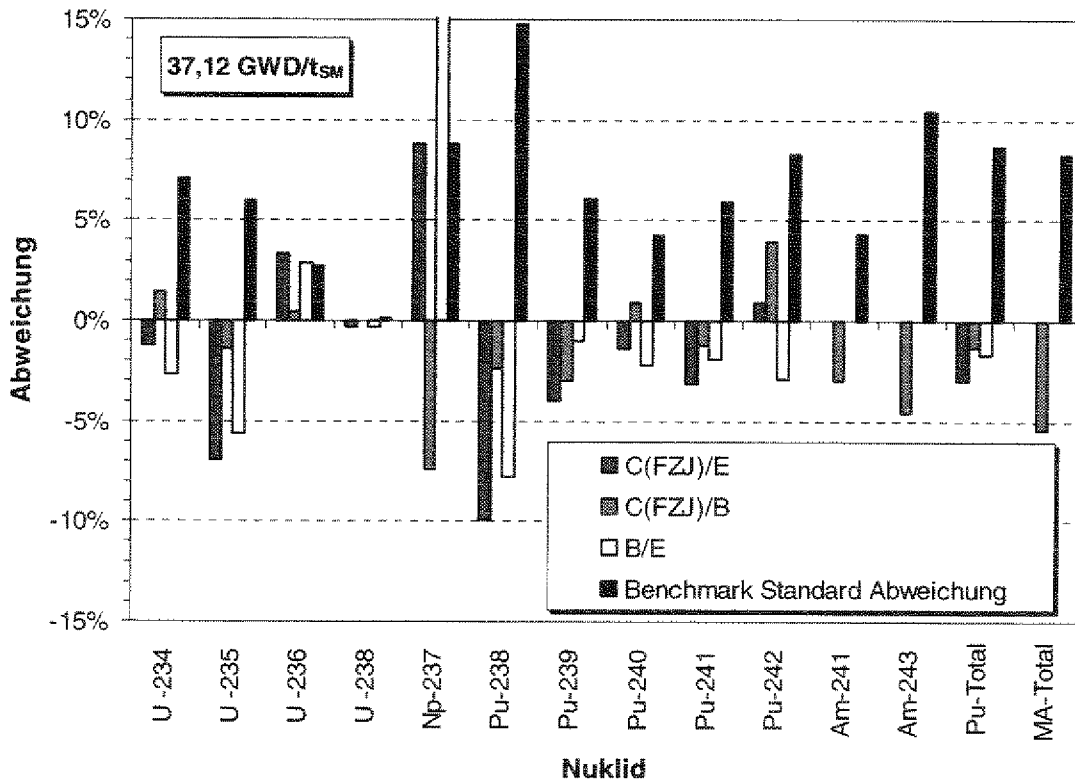


Abb. 5-9: Ergebnisse zu den /NEA 96/ Benchmarkdaten für einen Abbrand von 37,12 GWd/t<sub>SM</sub> nach /Phl.99/.

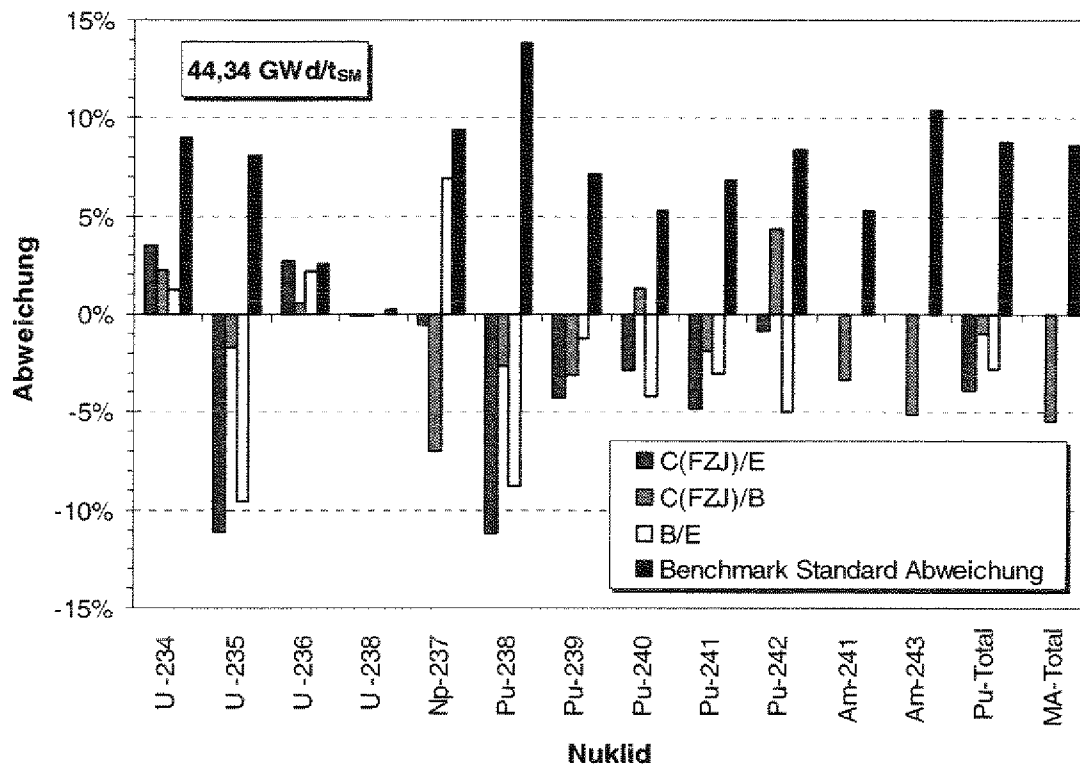


Abb. 5-10: Ergebnisse zu den /NEA 96/ Benchmarkdaten für einen Abbrand von 44,34 GWd/t<sub>SM</sub> nach /Phl 99/.



## 6 Reduzierungspotentiale für Plutonium

### 6.1 Einführung

Die Berechnungen zur Abschätzung der Reduzierungspotentiale wurden anhand des in Abschnitt 4.3 beschriebenen Referenzbrennelementbündels des N4 Druckwasserreaktors durchgeführt. Die Rechnungen lassen sich in zwei Teile gliedern.

Im ersten Teil werden die erforderlichen Anreicherungen für den Uranbrennstoff, den Uran-Plutonium Mischoxidbrennstoff (U-MOX) und den Thorium-Plutonium Mischoxidbrennstoff (Th-MOX) jeweils für Entladeabbrände von  $47,5 \text{ GWd/t}_{\text{SM}}$ ,  $60 \text{ GWd/t}_{\text{SM}}$  und  $100 \text{ GWd/t}_{\text{SM}}$  betrachtet. Der Entladeabbrand von  $47,5 \text{ GWd/t}_{\text{SM}}$  orientiert sich am aktuellen Stand der Technik, der  $60 \text{ GWd/t}_{\text{SM}}$  Abbrand ist eine realistische Option für die Zukunft, insbesondere wenn man an die überlegenen Materialeigenschaften des Thorium denkt. Das  $100 \text{ GWd/t}_{\text{SM}}$  Szenario wird als Grenze für einen zukünftigen DWR angesehen und es wird in mittelbarer Zukunft nicht realisierbar sein.

Im zweiten Teil der Rechnungen werden die Reaktivitätskoeffizienten der betrachteten Brennstoffe geprüft, um das sicherheitstechnische Verhalten der Brennstoffe beurteilen zu können.

### 6.2 Berechnung der benötigten Anreicherungen

Zur Bestimmung des benötigten spaltbaren Materials in einer Zellrechnung ist es erforderlich, die jeweils berechneten Multiplikationsfaktoren ohne Leckage ( $k_{\infty}$ ) mit denen des Referenzbeispiels zu vergleichen. Auf diese Weise kann die Reaktivitätsdifferenz, die durch die Neutronenleckage am Rande der Reaktorkerns verursacht wird abgeschätzt werden, wenn als Referenz Brennstoff eine in der Realität kritische Zusammensetzung gewählt wurde. Der für diesen Zweck genutzte Brennstoff hat die in **Tab. 6-1** gegebene Zusammensetzung. Der Brennstoff wird in fünf Zyklen bis zu seinem Entladeabbrand von  $47,5 \text{ GWd/t}_{\text{SM}}$  abge-

brannt. Die anfängliche Borkonzentration im Moderator beträgt 1000 ppm. Wie in **Abb. 6-1** gezeigt, erkennt man einen durchschnittlichen Wert von 1,05, der für  $k_{\infty}$  im mittleren Zyklus berechnet wird. Die Wahl der Anreicherung aller anderen Brennstoffe muß so gewählt werden, daß sich bei gleicher Kerengeometrie bei Erreichen der Hälfte des Entladeabbrandes ebenfalls dieser  $k_{\infty}$  Wert einstellt. Das Abbrandschema für die drei untersuchten Abbrände ist in **Tab. 6-2** aufgeführt. Die anfängliche Borkonzentration muß so gewählt werden, daß durch ihren Entzug der Reaktivitätsverlust innerhalb eines Zyklus kompensiert werden kann. Im Mittel wird der k-Wert des gesamten Kerns dem der dritten, mittleren Abbrandstufe entsprechen, da sich die Überschußreaktivitäten der Brennelemente des ersten und zweiten mit den kleineren Reaktivitäten der Brennelemente aus dem vierten und fünften Zyklus kompensieren.

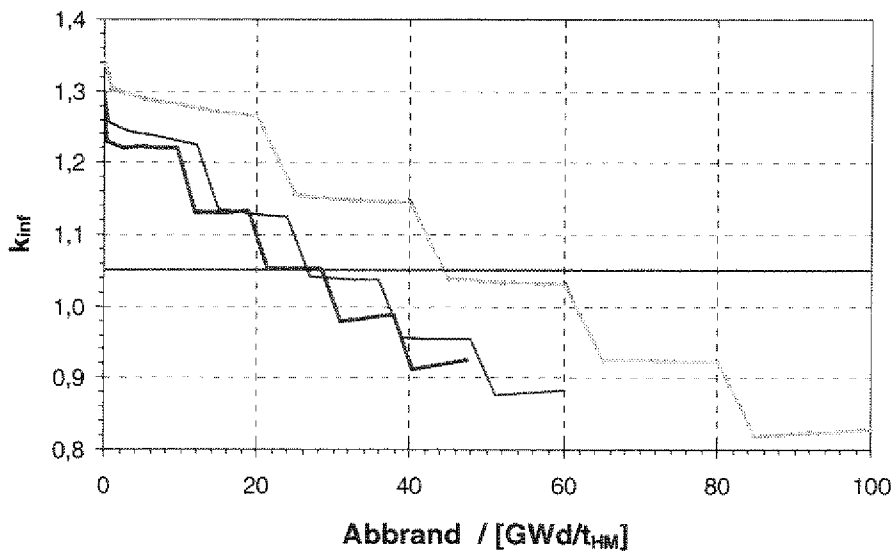
**Tab. 6-1:** Isotopenzusammensetzung des Uranoxid Referenzbrennstoffs für 47,5 GWd/t<sub>SM</sub> Abbrand.

Nuklid	Isotopenverteilung		Isotopenvektor
<sup>234</sup> U	/ 1/(barn*cm)	9,1356*10 <sup>6</sup>	0,04 % wt.
<sup>236</sup> U	/ 1/(barn*cm)	9,0968*10 <sup>4</sup>	4,00 % wt.
<sup>238</sup> U	/ 1/(barn*cm)	2,1548*10 <sup>2</sup>	95,96 % wt.
<sup>16</sup> O	/ 1/(barn*cm)	4,4933*10 <sup>2</sup>	

**Tab. 6-2:** Abbrandschemata für die drei untersuchten Entladeabbrände.

Entlade-abbrand	47.5 GWd/t <sub>SM</sub> /[Vollasttage]	60 GWd/t <sub>SM</sub> /[Vollasttage]	100 GWd/t <sub>SM</sub> /[Vollasttage]	Borkonz. / Bor-konz. <sub>(t=0)</sub>
1. Zyklus	12,95	16,36	27,27	1,00
	55,05	69,54	115,9	0,94739
	55,05	69,54	115,9	0,72371
	61,53	77,72	129,53	0,50
	61,53	77,72	129,53	0,25
	0,01	0,01	0,01	0,0001
2. bis 5. Zyklus	61,53	77,72	129,53	1,00
	61,53	77,72	129,53	0,75
	61,53	77,72	129,53	0,50
	61,53	77,72	129,53	0,25
	0,01	0,01	0,01	0,0001

Um in Abschnitt 6.4 bei der Beurteilung der nuklearen Stabilität des Systems Vergleichswerte für die beiden höheren Abbrandstufen zu erhalten, werden auch Uranbrennstoffe mit den Abbränden von 60 GWd/t<sub>SM</sub> und 100 GWd/t<sub>SM</sub> untersucht und deren erforderliche anfängliche Anreicherung noch oben beschriebenen Verfahren bestimmt. Die Ergebnisse der  $k_{\infty}$  Verläufe sind in **Abb. 6-1** ebenfalls eingezeichnet.



**Abb. 6-1:** Verlauf der  $k_{eff}$  Werte bei Entladeabbränden von 47,5 GWd/t<sub>HM</sub>, 60 GWd/t<sub>HM</sub> und 100 GWd/t<sub>HM</sub> bei Uranbrennstoff.

Die erforderliche Anreicherung des frischen Uranoxidbrennstoffs beträgt 4,00 Gew.-%, 4,45 Gew.-% bzw. 7,35 Gew.-%. Die am Beginn der Zyklen erforderlichen Borkonzentrationen müssen bei unterstellten Entladeabbränden von 60 GWd/t<sub>SM</sub> und 100 GWd/t<sub>SM</sub> auf 1000 ppm respektive 1800 ppm eingestellt werden, um die Reaktivitätsverluste während des Abbrandes innerhalb eines Zyklusses kompensieren zu können.

**Tab. 6-3:** Plutonium-Nuklidvektoren die als Spaltstoffen in MOX Brennstoffen verwendet werden.

Nuklid	47.5 GWd/t <sub>SM</sub>	60 GWd/t <sub>SM</sub>	100 GWd/t <sub>SM</sub>
<sup>234</sup> U	0.060 %	0.088 %	0.180 %
<sup>235</sup> U	0.004 %	0.004 %	0.004 %
<sup>236</sup> U	0.008 %	0.009 %	0.008 %
<sup>238</sup> Pu	2.561 %	3.717 %	7.633 %
<sup>239</sup> Pu	51.561 %	47.265 %	42.307 %
<sup>240</sup> Pu	26.834 %	27.361 %	25.688 %
<sup>241</sup> Pu	9.333 %	9.436 %	9.498 %
<sup>242</sup> Pu	8.187 %	10.655 %	13.206 %
<sup>241</sup> Am	1.451 %	1.466 %	1.476 %

Die Plutoniumvektoren, die für die Mischoxidbrennstoffe (MOX) als Spaltstoff dienen, entstehen aus in einem DWR abgebrannten Uranbrennstoffen. Zunächst wird eine Abklingzeit des Brennstoffes von sieben Jahren angenommen, anschließend eine Wiederaufarbeitung bei der 99,9 % des Plutoniums rezykliert werden. Bis zum erneuten Einsatz im

Reaktor wird eine Zeitspanne von drei Jahren für die Fertigung der Brennelemente und den Transport simuliert. Die Zusammensetzungen sind in **Tab. 6-3** aufgeführt. Die erforderlichen anfänglichen Anreicherungen aller Brennstoffe sind in **Tab. 6-4** aufgeführt. Dabei werden jeweils neben den reinen Uran und

thoriumbasierten MOX Brennstoffen (Th-MOX) die entsprechenden uranbasierten MOX Brennstoffe (U-MOX) betrachtet. Man erkennt, daß die erforderlichen Anreicherungen den Spezifikationen von niedrig angereicherten Brennstoffen (LEU) entsprechen. In **Tab. 6-5**, die analog zu **Tab. 6-4** aufgebaut ist, sind die erforderlichen Anfangsborkonzentrationen aufgelistet, die benötigt werden, um den Reaktivitätsverlust innerhalb eines Zyklusses zu kompensieren.

Wie aus **Tab. 6-4** hervorgeht muß die Anreicherung bei Plutonium getriebenen Brennstoffen deutlich erhöht werden. Dabei fällt diese Erhöhung bei den Th-MOX Brennstoffen größer als bei den U-MOX Brennstoffen aus. Eine Parameterstudie, bei der das Moderationsverhältnis durch eine simulierte Vergrößerung des Stababstandes erhöht wurde, zeigt die Abhängigkeit der  $k$ -Werte für die drei Brennstoffe Uran, U-MOX und Th-MOX. Bei einer eventuellen Realisierung des erhöhten Moderationsverhältnisses im Reaktor würde statt der Vergrößerung des Stababstandes eine Erhöhung der Anzahl der Leerstäbe erfolgen. Das DWR Brennelementbündel ist für Uran als Spaltstoff ausgelegt wie in **Abb. 6-2** zu erkennen ist, denn beim realisierten Stababstand ist die Neutronenökonomie für Uran nahezu optimal<sup>1</sup>. Die maximalen  $k_{\infty}$ -Werte werden bei Plutonium getriebenen Brennstoffen bei höheren Moderationsverhältnissen erreicht, da sich das Moderations zu Absorptionsverhältnis verbessert. Die Verringerung der Anzahl der Brennstäbe innerhalb eines Bündels führt entweder zu einer verringerten Leistung oder zu einer erhöhten linearen Stableistung. Letztere kann aus

**Tab. 6-4:** Erforderliche Anreicherung an spaltbaren Isotopen für die untersuchten Brennstoffe. Die Anteile der gesamten Plutoniumfraktionen sind in **Tab. 6-6** und **Tab. 6-7** gegeben.

Entladeabbrand / [GWd/t <sub>HM</sub> ]	47,5	60		100		
Pu-Vektor von Uran Brennstoff mit	47,5	47,5	60	47,5	60	100
Uran / Gew.-% <sup>235</sup> U	4,00	xxx	4,45	xxx	xxx	7,36
U-MOX / Gew.-% <sup>235</sup> U, <sup>239</sup> Pu, <sup>241</sup> Pu	5,87	7,28	7,67	11,05	11,62	12,23
Th-MOX. / Gew.-% <sup>235</sup> U, <sup>239</sup> Pu, <sup>241</sup> Pu	6,91	7,90	8,72	11,82	12,37	12,97

**Tab. 6-5:** Erforderliche Borkonzentration im Moderator zu Beginn der Zyklen für die untersuchten Brennstoffe.

Entladeabbrand / GWd/t <sub>HM</sub>	47,5	60		100		
Pu-Vektor von Uran Brennstoff mit ei-	47,5	47,5	60	47,5	60	100
Uran / [ppm]	1000	xxx	1000	xxx	xxx	1800
U-MOX / [ppm]	1000	1200	1200	2000	2200	2200
Th-MOX / [ppm]	1000	1200	1200	2000	2000	2200

wärmetechnischen Gründen selbst bei thoriumbasierten Brennstoffen trotz der guten Materialeigenschaften des Thoriums nicht nennenswert gesteigert werden, da die Heizflächenbelastung des Hüllrohrs dies verbietet. Dabei hat das Basismaterial des Brennstoffs (Uran oder Thorium) kaum einen Einfluß. Um einen Plutonium getriebenen Brennstoff hinsichtlich der Neutronenökonomie optimal auszulegen müßte der Stababstand von 1,37 cm auf

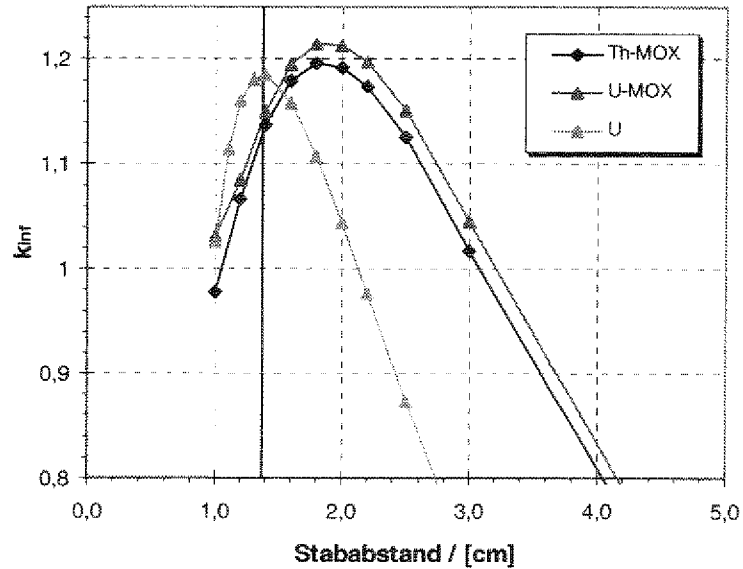


Abb. 6-2: Abhängigkeit des  $k_{inf}$ -Wertes vom Stababstand und Spaltstoff.

ca. 1,8 cm gesteigert werden, was einer Erhöhung der Zahl der Leerstäbe innerhalb eines Brennelementbündels von 25 auf 133 bei unverändertem Stababstand entspricht. Wegen verstärkter Absorptionen im Thorium gegenüber dem Uran, liegt das Niveau der  $k_{inf}$ -Werte für den Th-MOX Brennstoff unter dem des U-MOX Brennstoffes.

### 6.3 Plutonium Umsatzraten bei einer Rezyklierung

Im folgenden werden die beiden MOX Brennstoffe in Bezug auf deren Potential zur Plutoniumvernichtung verglichen. Die erreichbaren Umsatzraten sind in **Tab. 6-6** für U-MOX bzw. **Tab. 6-7** für Th-MOX aufgeführt. Alle Angaben beziehen sich auf den einfachen Durchlauf der Brennstoffe im Reaktor. Dabei sind die Brennstoffanteile an Plutonium als auch der Anteil der Minor Actinides (MA) aufgeführt. Ebenso sind die Umsatzraten der Transuranelemente (TRU) insgesamt aufgeführt. Die Verringerung der Plutoniuminventare erfolgt neben der Spaltung auch durch den Aufbau von höheren Actiniden. Da diese ein ähnliches Toxizitätspotential besitzen wie Plutonium selbst und durch Zerfall zumeist wieder zu Plutonium werden, werden sie bei dem Vergleich mit aufgeführt. Durch diesen Aufbau ist zu erklären, daß die Umsatzraten an Plutonium oberhalb der theoretisch möglichen liegen. Für die theoretisch möglichen Umsatzraten wird angenommen, daß aus 1 g gespaltenem Material eine Arbeit von 1 MWd<sub>th</sub> erzeugt wird. Der entsprechende Abbrand in GWd/t<sub>SM</sub> entspricht damit direkt der umsetzbaren TRU Masse in kg/GWd. Die erreichbaren TRU Umsatzraten liegen bei Th-MOX Brennstoff über 90 % und damit deutlich oberhalb der U-MOX Brennstoffe mit 45 % bis 60 %.

<sup>1</sup> Die Auslegung erfolgt stets knapp unterhalb des optimalen Verhältnisses, um sicherzustellen, daß beim Kühlmittelverluststörfall der Reaktor automatisch unterkritisch wird.

**Tab. 6-6:** Umsatzraten von Plutonium und Minor Actinides (MA) bei U-MOX Brennstoffen.

Entladeabbrand / [GWd/t <sub>HM</sub> ]	47,5	60		100		
		47,5	60	47,5	60	100
Pu-Vektor von Uran Brennstoff mit einem Entladeabbrand von:	47,5	47,5	60	47,5	60	100
Pu Anteil zu BOB / Gew.-%	9,20	11,49	13,01	17,61	19,89	22,92
Pu Anteil zu EOB / Gew.-%	6,73	8,14	9,48	11,28	13,23	15,82
Pu <sub>umgesetzt</sub> /Pu <sub>Anfang</sub> / %	26,85	29,16	27,13	35,95	33,48	30,98
ΔPu/ΔPu <sub>theo</sub> / %	52,00	55,83	58,85	63,38	66,6	71,00
MA Anteil zu BOB / Gew.-%	0,14	0,17	0,19	0,26	0,30	0,34
MA Anteil zu EOB / Gew.-%	0,51	0,67	0,78	1,15	1,34	1,54
TRU Reduzierung / Gew.-%	2,1	2,85	2,94	5,44	5,62	5,90
TRU <sub>umgesetzt</sub> /TRU <sub>Anfang</sub> / Gew.-%	22,48	24,44	22,27	30,44	27,84	25,37
ΔTRU/ΔTRU <sub>theo</sub> / %	44,21	47,50	49,00	54,40	56,20	59,40

**Tab. 6-7:** Umsatzraten von Plutonium und Minor Actinides (MA) bei Th-MOX Brennstoffen.

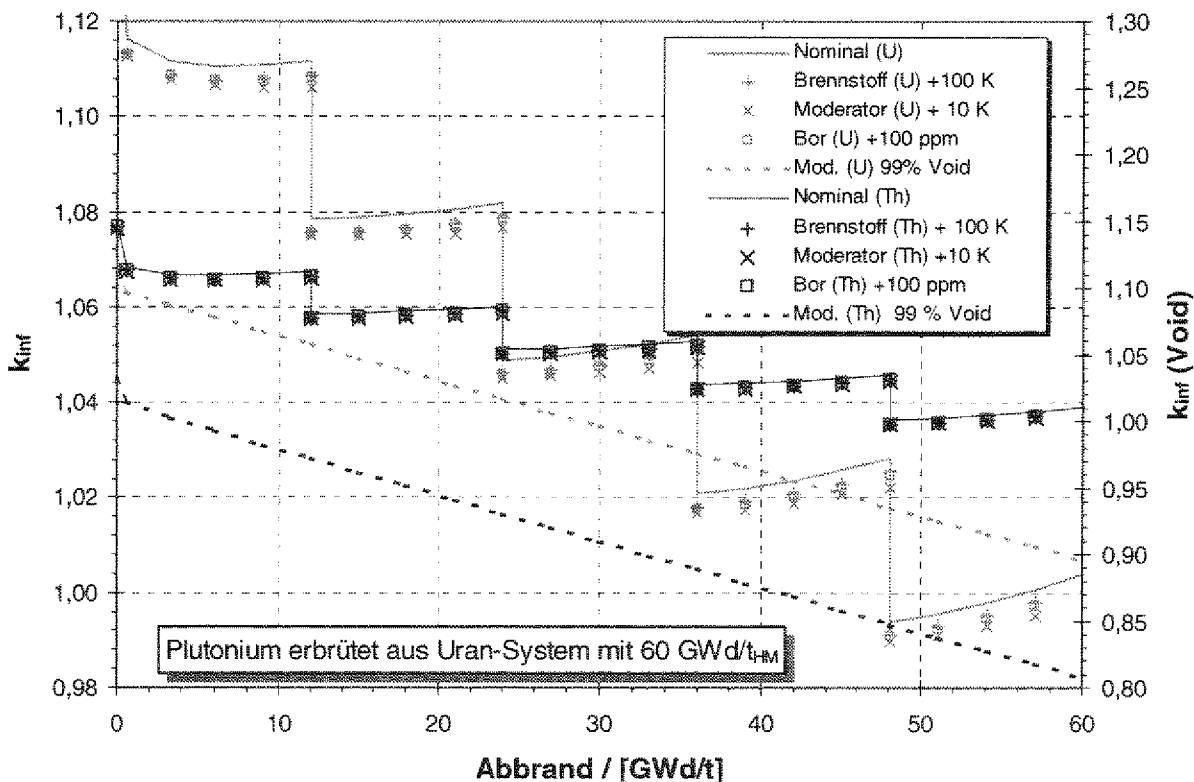
Entladeabbrand / [GWd/t <sub>HM</sub> ]	47,5	60		100		
		47,5	60	47,5	60	100
Pu-Vektor von Uran Brennstoff mit einem Entladeabbrand von:	47,5	47,5	60	47,5	60	100
Pu Anteil zu BOB / Gew.-%	11,18	12,77	15,14	19,11	21,47	24,61
Pu Anteil zu EOB / Gew.-%	6,39	6,79	8,94	9,18	11,25	14,04
Pu <sub>umgesetzt</sub> /Pu <sub>Anfang</sub> / %	42,84	46,23	40,95	51,96	47,60	42,95
ΔPu/ΔPu <sub>theo</sub> / %	100,8	99,67	103,3	99,30	102,2	105,7
MA Anteil zu BOB / Gew.-%	0,16	0,19	0,23	0,28	0,32	0,37
MA Anteil zu EOB / Gew.-%	0,56	0,69	0,84	1,16	1,36	1,57
TRU Reduzierung / Gew.-%	4,39	5,48	5,59	9,05	9,18	9,37
TRU <sub>umgesetzt</sub> /TRU <sub>Anfang</sub> / Gew.-%	38,71	42,28	36,37	46,67	42,13	37,48
ΔTRU/ΔTRU <sub>theo</sub> / %	92,42	91,33	93,16	90,50	91,80	93,70

## 6.4 Sicherheitsverhalten – erste Rezyklierung

Die nukleare Stabilität wird entsprechend den Ausführungen in Kapitel 4 mit den vier Rückwirkungskoeffizienten Brennstofftemperatur, Moderatortemperatur / dichte, Void und Borwirksamkeit überprüft. Für die MOX Brennstoffe mit einem Entladeabbrand von 60 GWd/t<sub>SM</sub>, deren Plutoniuminventar aus dem Uran-system mit ebenfalls 60 GWd/t<sub>SM</sub> stammt sind die Verläufe der k<sub>∞</sub> Werte und der

Rückkopplungskoeffizienten in **Abb. 6-3** respektive **Abb. 6-4** aufgeführt. Abbildungen gleichen Aufbaus, die die berechneten Ergebnisse zur Kritikalitätssicherheit detailliert darstellen, befinden sich im Anhang D. In den **Tab. 6-8** bis **Tab. 6-10** sind der jeweils konservativste Koeffizient für den ersten, dritten und fünften Zyklus der Brennelemente gezeigt. Positive Werte sind kursiv und unterstrichen hervorgehoben.

Zusammenfassend kann man feststellen, daß alle Rückkopplungskoeffizienten bis zu einem Entladeabbrand von 60 GWd/t<sub>SM</sub> negativ sind. Ebenfalls liegen die Werte der beiden MOX Systeme (U-MOX, Th-MOX) in der gleichen Größenordnung, so daß ein Übergang von Uran auf thoriumbasierten Brennstoff keine negativen Auswirkungen auf die nukleare Stabilität des Systems hat. Es ist sogar zu erkennen, daß der Moderator-Temperaturkoeffizient während des Abbrandes eine kleinere Schwankungsbreite bei Th-MOX im Vergleich zum entsprechenden U-MOX Brennstoff hat. Da Plutonium für die Spaltung durch schnelle Neutronen den deutlich größeren Wirkungsquerschnitt im Vergleich zu Uran besitzt, werden die negativen Werte der Moderator-Temperatur und Dichtekoeffizienten betragsmäßig kleiner. Hier ist Th-MOX ebenfalls dem U-MOX überlegen, denn die Void-Koeffizienten bleiben hier stärker negativ. Bei Entladeabbränden von 100 GWd/t<sub>SM</sub> werden Moderator bzw. Void-Koeffizienten positiv. Auch hier ist das weniger instabile Verhalten des Th-MOX Brennstoffs im direkten Vergleich zum U-MOX zu erkennen. In wieweit die nukleare Instabilität aus den positiven Void-



**Abb. 6-3:** Verlauf der k-Werte für U-MOX und Th-MOX mit 60 GWd/t<sub>SM</sub> unter Nominalzustand und unter veränderten Parameter zur Feststellung der nuklearen Stabilität.

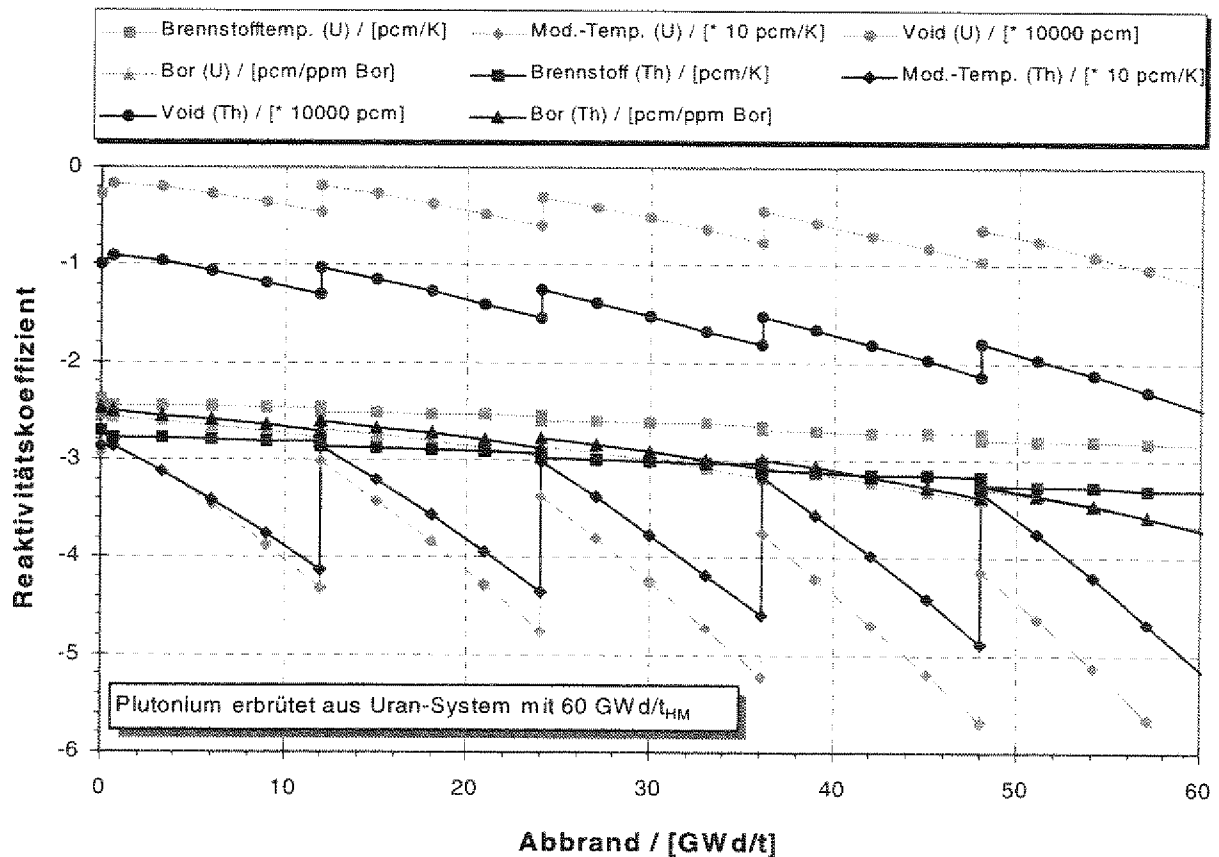


Abb. 6-4: Vergleich der Reaktivitätskoeffizienten von U-MOX und Th-MOX Brennstoff.

Koeffizienten gefolgert werden muß, kann nicht abschließend geklärt werden. Alle Rechnungen basieren, wie in Abschnitt 4.3 beschrieben, auf Zellrechnungen einer unendlich großen Anordnung, simuliert durch die Nutzung der Randbedingung „weiß“ (isotrope Rückstreuung des die Einheitszelle verlassenden Neutronenstroms). Bei fehlendem Moderator allerdings, wachsen die freien Weglängen  $\bar{\lambda}$  der Neutronen stark an. Die freien Weglängen  $\bar{\lambda}$  berechnen sich nach Gl. 6-1 zu,

$$\text{Gl. 6-1} \quad \bar{\lambda} = \frac{1}{\Sigma} ,$$

wobei mit  $\Sigma$  der makroskopische Wirkungsquerschnitt gemeint ist. Der makroskopische Wirkungsquerschnitt der Einheitszelle reduziert sich in erster Näherung korrespondierend mit der Dichteänderung auf 1 % des ursprünglichen Wertes. Daraus folgt nach Gl. 6-1, daß die freien Weglängen  $\bar{\lambda}$  um bis zwei Größenordnungen ansteigen. Dadurch vergrößert sich beim realen, endlichen Kern die Neutronenleckage. Der Unterschied zwischen dem  $k_{\infty}$ -Wert des realen Kerns und dem  $k_{\infty}$ -Wert der in den Rechnungen simulierten Anordnung wird größer als die üblich angenommenen 5 %. Dies führt zu einer Verringerung der Reaktivität des Kerns und damit evtl. zu den erforderlichen negativen Void-Koeffizienten.

**Tab. 6-8:** Reaktivitätskoeffizienten für Uran, U-MOX und Th-MOX Systeme, die mit Plutonium Vektoren aus Uranbrennstoff des gleichen Endabbrandes getrieben werden in pcm/K für Brennstoff-/ Moderator Temperatur, pcm für Void und pcm/ppm für die Borwirksamkeit.

Brennstoff / Endabbrand	Zeitpunkt	Uran			U-MOX			Th-MOX		
		BOB	MOB	EOB	BOB	MOB	EOB	BOB	MOB	EOB
Brennstoff	47,5 GWd/t <sub>HM</sub>	-1,7	-2,2	-2,8	-2,5	-2,7	-2,8	-2,8	-3,1	-3,3
Moderator	47,5 GWd/t <sub>HM</sub>	-0,1	-14	-20	-39	-44	-51	-38	-39	-40
Void	47,5 GWd/t <sub>HM</sub>	-61000	-76000	-99000	-16000	-19000	-24000	-27000	-32000	-39000
Bor	47,5 GWd/t <sub>HM</sub>	-7,3	-8,1	-10	-2,7	-3,0	-3,5	-2,5	-2,8	-3,4
Brennstoff	60 GWd/t <sub>HM</sub>	-1,6	-2,3	-2,9	-2,4	-2,6	-2,8	-2,7	-3,0	-3,3
Moderator	60 GWd/t <sub>HM</sub>	-3,7	-18	-24	-29	-34	-41	-29	-30	-33
Void	60 GWd/t <sub>HM</sub>	-56000	-74000	-100000	-1600	-3000	-6300	-9000	-12000	-18000
Bor	60 GWd/t <sub>HM</sub>	-6,7	-7,8	-10	-2,5	-2,9	-3,3	-2,5	-2,8	-3,2
Brennstoff	100 GWd/t <sub>HM</sub>	-1,5	-2,3	-3,1	-2,0	-2,3	-2,6	-2,3	-2,7	-3,0
Moderator	100 GWd/t <sub>HM</sub>	+0,8	-11	-14	+0,2	-3,4	-11	-2,6	-4,0	-8,6
Void	100 GWd/t <sub>HM</sub>	-31000	-44000	-75000	+16000	+18000	+17000	+12000	+12000	+9100
Bor	100 GWd/t <sub>HM</sub>	-7,5	-9,9	-15	-2,9	-3,4	-4,0	-3,0	-3,5	-4,2

**Tab. 6-9:** Reaktivitätskoeffizienten für das U-MOX System – Endabbrand ist in der ersten Zeile der Überschrift und der Abbrand des Plutonium liefernden Uran Systems in der zweiten Zeile gegeben- in pcm/K für Brennstoff -/ Moderator Temperatur, pcm für Void und pcm/ppm für die Borwirksamkeit.

U-MOX Entladeabbrand Abbrand des Pu liefernden U	60 GWd/t <sub>HM</sub> 47,5 GWd/t <sub>HM</sub>			100 GWd/t <sub>HM</sub> 60 GWd/t <sub>HM</sub>			100 GWd/t <sub>HM</sub> 47,5 GWd/t <sub>HM</sub>		
	BOB	MOB	EOB	BOB	MOB	EOB	BOB	MOB	EOB
Zeitpunkt									
Brennstoff	-2,4	-2,6	-2,8	-2,1	-2,4	-2,7	-2,1	-2,4	-2,7
Moderator	-31	-37	-45	-4,7	-9,4	-18	-9,9	-16	-26
Void	-5800	-8000	-12000	+13000	+13000	+12000	+9400	+9200	+6500
Bor	-2,7	-3,1	-3,6	-3,2	-3,7	-4,5	-3,1	-3,7	-4,5

**Tab. 6-10:** Reaktivitätskoeffizienten für das Th-MOX System – Endabbrand ist in der ersten Zeile der Überschrift und der Abbrand des Plutonium liefernden Uran Systems in der zweiten Zeile gegeben- in pcm/K für Brennstoff -/ Moderatortemperatur, pcm für Void und pcm/ppm für die Borwirksamkeit.

Th-MOX Entladeabbrand Abbrand des Pu liefernden U	60 GWd/t <sub>HM</sub> 47,5 GWd/t <sub>HM</sub>			100 GWd/t <sub>HM</sub> 60 GWd/t <sub>HM</sub>			100 GWd/t <sub>HM</sub> 47,5 GWd/t <sub>HM</sub>		
	BOB	MOB	EOB	BOB	MOB	EOB	BOB	MOB	EOB
Zeitpunkt									
Brennstoff	-2,8	-3,0	-3,3	-2,4	-2,7	-3,2	-2,4	-2,8	-3,2
Moderator	-32	-34	-36	-9,1	-11	-16	-13	-15	-20
Void	-17000	-23000	-30000	+7300	+5200	+1000	+3400	+130	-5800
Bor	-2,7	-3,1	-3,8	-3,0	-3,5	-4,3	-3,1	-3,7	-4,7

## 6.5 Zweiter Rezyklierungsschritt

### 6.5.1 Abbrandverhalten

Für die Untersuchung einer zweiten Rezyklierung wird von einem Plutoniumvektor ausgegangen, der aus den MOX Brennstoffen der ersten Rezyklierung mit einem Abbrand von 60 GWd/t<sub>SM</sub> generiert wurde. Die entsprechenden Nuklidvektoren sind in **Tab. 6-11** gezeigt. Bei der Wiederaufarbeitung der Brennstoffe der ersten Rezyklierung wird die gleiche Strategie wie in Abschnitt 6.2 angenommen. Im Fall des Th-MOX Brennstoffs wird zusätzlich eine Rezyklierung des Urans zusammen mit dem Plutonium in den Rechnungen simuliert. Dies ist deshalb sinnvoll, da die erforderlichen Plutonium Anreicherungen zum Start des zweifach rezyklierten Brennstoffs indiskutabel hoch sind (vgl. **Tab. 6-11**). Die Ursache hierfür ist der sehr unsaubere Plutoniumvektor, da bei thoriumbasierten Brennstoffen ein Brüten des <sup>239</sup>Pu nicht in nennenswertem Umfang erfolgt. Alle Brennstoffe der zweiten Rezyklierung werden bis zu einem Entladeabbrand von 60 GWd/t<sub>SM</sub> eingesetzt. Die erforderlichen Anreicherungen des Brennstoffs für die zweite Rezyklierung mit der treibenden Brennstofffraktion hängen stark von dem Anteil der Elemente mit einem großen Spaltwirkungsquerschnitt innerhalb dieser Fraktion ab. Die **Tab. 6-11** zeigt die Zusammensetzung der Brennstoffe der zweiten Rezyklierung, die einen Entladeabbrand von 60 GWd/t<sub>SM</sub> erreichen. Man erkennt, daß für den thoriumbasierten Brennstoff die Nutzung des erbrüteten <sup>233</sup>U unvermeidbar ist, da sonst ein anfänglicher Plutoniumgehalt von 36,17 % erforderlich ist, der – wie die Berechnung der Reaktivitätskoeffizienten in Abschnitt 6.4.3 zeigt – sicherheitstechnisch indiskutabel ist. Die Eckdaten über das Abbrandverhalten der MOX Brennstoffe der zweiten Stufen faßt die **Tab. 6-12** zusammen. Man erkennt bei den beiden Brennstoffen, bei denen ausschließlich Plutonium rezykliert wurde, eine um 9 % höhere Umsatzrate an Plutonium gegenüber den entsprechenden Brennstoffen der ersten MOX Stufe.

**Tab. 6-11:** Nuklidvektoren der treibenden Brennstofffraktionen und den kompletten Nuklidvektor für die zweite Rezyklierung.

MOX-Kat.:	Vektor der wiederaufgearbeiteten ersten MOX Stufe			Brennstoffzusammensetzung der zweiten MOX Stufe		
	U-MOX	Th-MOX		U-MOX	Th-MOX	
	Rez. Mat.:	Pu	Pu	U+Pu	Pu	Pu
Th-232	0,00 %	0,00 %	0,00 %	0,00	63,03 %	83,00 %
U-232	0,00 %	0,00 %	0,01 %	0,00	0,00 %	0,02 %
U-233	0,00 %	0,00 %	19,69 %	0,00	0,00 %	3,26 %
U-234	0,11 %	0,15 %	2,28 %	0,02 %	0,05 %	0,38 %
U-235	0,00 %	0,00 %	0,41 %	0,16 %	0,00 %	0,07 %
U-236	0,01 %	0,01 %	0,09 %	0,00 %	0,00 %	0,02 %
U-238	0,00 %	0,00 %	0,00 %	78,48 %	0,00 %	0,00 %
Np-237	0,00 %	0,01 %	0,00 %	0,00 %	0,00 %	0,00 %
Pu-238	4,69 %	6,17 %	4,79 %	0,99 %	2,26 %	0,81 %
Pu-239	35,13 %	20,41 %	15,83 %	7,47 %	7,50 %	2,70 %
Pu-240	34,39 %	40,14 %	31,15 %	7,35 %	14,83 %	5,33 %
Pu-241	10,63 %	12,77 %	9,94 %	2,28 %	4,74 %	1,70 %
Pu-242	13,39 %	18,36 %	14,27 %	2,89 %	6,84 %	2,46 %
Am-241	1,65 %	1,98 %	1,54 %	0,35 %	0,74 %	0,26 %

**Tab. 6-12:** Umsatzraten von Plutonium und Minor Actinides (MA) bei zweifach rezyklierten Brennstoffen mit einem Entladeabbrand von 60 GWd/t<sub>SM</sub>.

Brennstoff Kategorie	U-MOX	Th-MOX	
	Rez. Material.	Pu	Pu
Anreicherung / Gew. %	9,91	12,24	7,73
Anfängliche Borkonzentration	1100	1400	1000
Pu Anteil zu BOB / Gew. %	20,98	36,17	12,99
Pu Anteil zu EOB / Gew. %	16,72	28,76	8,46
$Pu_{umgesetzt}/Pu_{Anfang} / \%$	20,31	20,49	34,87
$\Delta Pu/\Delta Pu_{theo} / \%$	71,00	123,5	75,50
MA Anteil zu BOB / Gew. %	0,36	0,74	0,27
MA Anteil zu EOB / Gew. %	1,21	2,16	0,95
TRU Reduzierung / Gew. %	3,41	5,99	3,85
$TRU_{umgesetzt}/TRU_{Anfang} / Gew. - \%$	15,98	16,23	29,03
$\Delta TRU/\Delta TRU_{theo} / \%$	56,83	99,83	64,17

Bei der zusätzlichen Nutzung des erbrüteten Urans in der ersten Th-MOX Stufe verschlechtert sich die Umsetzung an Plutonium in der zweiten Stufe jedoch um ca. 28 % gegenüber dem Wert der ersten Rezyklierung. Die Erklärung liegt darin, daß mit 3,3 %  $^{233}\text{U}$  Anteil im Brennstoff gegenüber 7,7 % insgesamt, fast die Hälfte der Spaltungen aus Uran geleistet wird.

### 6.5.2 Plutoniumbilanzierung über beide MOX-Stufen

Bei der Bilanzierung über beide Rezyklierungsschritte wird berücksichtigt, daß die Anzahl der Reaktoren, die in den verschiedenen Stufen (Uransystem, erste MOX Stufe und zweite MOX Stufe) betrieben werden, aus dem jeweiligen Spaltstoffbedarf der nächsten Stufe festgelegt werden. So müssen so viele Uransysteme betrieben werden, die ausreichend sind, um den Spaltstoffbedarf der ersten MOX-Stufe zu decken. Für das Verhältnis der Systeme, die mit MOX Brennstoff der ersten Rezyklierung betrieben werden zu denen der zweiten MOX Stufe gilt das Gleiche. In **Tab. 6-13** sind die erbrüteten Plutonium- bzw. Transuranrestgehalte der untersuchten Brennstoffe normiert auf die Plutoniumbrutrate des reinen Uransystems mit einem Entladeabbrand von  $47,5 \text{ GWd}/_{\text{SM}}$  gezeigt. Wie in **Tab. 6-13** gezeigt, besitzt auch hier der thoriumbasierte Brennstoff das größere Potential sowohl in Bezug auf die Plutoniumvernichtung als auch auf die TRU Vernichtung insgesamt. Selbst wenn man die aus dem Thorium erbrütete Uranfraktion mit berücksichtigt, verschlechtert sich das Bild nicht wesentlich. Mit der Zielsetzung einer möglichst hohen Umsetzung von Plutonium ist es allerdings sinnvoller den Abbrand der ersten MOX Stufe zu erhöhen anstatt eine weitere Rezyklierung durchzuführen. Diese Lösung umgeht die technischen Probleme, die mit der Rezyklierung des ersten MOX Brennstoffs verbunden sind. Hier ist insbesondere auf das Isotop  $^{232}\text{U}$  hinzuweisen, das wegen seiner stark  $\gamma$ -strahlenden Töchter besonders problematisch ist. Eine Variation des Brennelementbündels speziell in Hinblick auf hohe Entladeabbrände ist unter Umständen weniger problematisch. Wie ebenfalls aus **Tab. 6-13** hervorgeht, kann die Betrachtung nur eines Schrittes eines komplexeren Brennstoffkreislaufs irreführend sein. Zum Beispiel zeigt die Berechnung der zweiten Rezyklierung für Uran und Plutonium Aufarbeitung bei Th-MOX Brennstoffen eine um 28 % schlechtere TRU Vernichtungsleistung als die erste Rezyklierung, während die gesamte Bilanzierung, ausgehend vom reinen Uransystem für diesen Brennstoffkreislauf um 10 % verringerte Restgehalte an TRU Elementen zeigt.

**Tab. 6-13:** Vergleich der Pu- und TRU-Umsatzraten des gesamten Brennstoffzyklus bis einschließlich der ersten Rezyklisierung (100 % = 237 kg Plutonium).

Abbrand MWd/kg <sub>SM</sub>	UO <sub>2</sub>		UO <sub>2</sub> + U-MOX		UO <sub>2</sub> + Th-MOX		
	Pu	TRU	Pu	TRU	Pu	TRU	U+TRU
47,5	100 %	110 %	66 %	79 %	52 %	65 %	78 %
60,0	87 %	97 %	58 %	72 %	48 %	61 %	70 %
100,0	66 %	79 %	43 %	59 %	28 %	44 %	51 %
<b>Brennstoffkategorie</b>					<b>UO<sub>2</sub> + 2 mal MOX</b>		
<b>Entladeabbrand 60 GWd/t<sub>SM</sub></b>					<b>Pu</b>	<b>TRU</b>	<b>U+TRU</b>
UO <sub>2</sub> - Pu rez. – 1. U-MOX – Pu rez. 2. U-MOX					45 %	63 %	
UO <sub>2</sub> - Pu rez. – 1. Th-MOX – Pu rez. 2. Th-MOX					38 %	53 %	63,5 %
UO <sub>2</sub> - Pu rez. – 1. Th-MOX – U + Pu rez. 2. Th-MOX					27 %	43 %	63,3 %

### 6.5.3 Sicherheitsverhalten

Die hohen Plutoniumgehalte der Brennstoffe, insbesondere bei ausschließlicher Rezyklisierung des Plutoniums (21,0 % für die U-MOX und 36,2 % für die Th-MOX Brennstoffe) lassen diese Brennstoffe sehr problematisch werden. Die hohen Plutoniumgehalte werden erforderlich, um bei schlechter werdendem Plutoniumvektor dem Reaktor ausreichend Reaktivität zuzuführen, um Kritikalität innerhalb der Reaktorzyklen zu erreichen. Aus diesem Grund ist eine Betrachtung einer zweiten Rezyklierungsstufe, die ihre Spaltstofffraktion aus einer ersten MOX Stufe mit 60 GWd/t<sub>SM</sub> statt 47,5 GWd/t<sub>SM</sub> bezieht nicht sinnvoll, da dies eine weitere Verschlechterung des Plutoniumvektors zur Folge hätte. Dies hätte eine weitere Erhöhung des erforderlichen Plutoniuminventars zur Folge. Insbesondere im Fall des Th-MOX wird der Plutonium Vektor stark durch die Isotope <sup>240</sup>Pu und <sup>242</sup>Pu geprägt (vgl. **Tab. 6-11**), da ein in situ Erbrüten des <sup>239</sup>Pu aus <sup>238</sup>U nicht stattfindet. Die beiden Nuklide <sup>240</sup>Pu und <sup>242</sup>Pu sind mit thermischen Neutronen schlecht, mit schnellen jedoch relativ gut spaltbar, was zu einem nicht akzeptierbaren Void-Koeffizienten führt. In **Tab. 6-14** sind jeweils konservativsten (größten) Werte für die Reaktivitätskoeffizienten angegeben. Man erkennt, daß bei der ausschließlichen Rezyklisierung des Plutoniums auch bei U-MOX die Void-Koeffizienten stark positiv werden, und daß der Brennstoff aus diesem Grund nicht realisierbar ist. Allerdings zeigen die Werte aller Reaktivitätskoeffizienten negative Werte für den thoriumbasierten zweifach rezyklierten Brennstoff bei zusätzlicher Rückgewinnung des aus <sup>232</sup>Th erbrüteten Urans. Die Probleme liegen hier in der Fertigung des Brennstoffs, die wegen seiner hohen Aktivität neue, fernbediente Fertigungstechnologien erfordert.

**Tab. 6-14:** Reaktivitätskoeffizienten für die zweifach rezyklierten Brennstoffe, die mit Plutonium (und Uran) Vektoren aus der jeweiligen ersten MOX-Stufe mit einem Endabbrand von 60 GWd/t<sub>SM</sub> getrieben werden in pcm/K für Brennstoff-/Moderatortemperatur, pcm für Void und pcm/ppm für die Borwirksamkeit.

Brennstoff 2. Rez.		U-MOX			Th-MOX			Th-MOX		
Rez. Mat. 47,5 GWd/t <sub>SM</sub>		Pu			Pu			U + Pu		
Endabbrand	Zeitpunkt	BOB	MOB	EOB	BOB	MOB	EOB	BOB	MOB	EOB
Brennstoff	60 GWd/t <sub>HM</sub>	-2,3	-2,4	-2,6	-2,3	-2,5	-2,6	-2,8	-3,1	-3,4
Moderator	60 GWd/t <sub>HM</sub>	-12	-15	-20	13	14	11	-11	-16	-22
Void	60 GWd/t <sub>HM</sub>	13000	14000	13000	22000	23000	24000	-5500	-7800	-12000
Bor	60 GWd/t <sub>HM</sub>	-1,7	-1,9	-2,1	-1,7	-1,8	-1,9	-2,0	-2,3	-2,8

## 6.6 Geschlossener Plutoniumkreislauf

An dieser Stelle wird überlegt, ob ein geschlossener Plutoniumkreislauf aus reaktortechnischer Sicht im DWR denkbar ist. Dabei wird nicht auf die Möglichkeiten einer evtl. Realisierung der einzelnen Schritte – insbesondere Wiederaufarbeitung und Brennelementfertigung – eines solchen Kreislaufs eingegangen. Wie in Abschnitt 6.5.3 diskutiert wurde, müssen mit Blick auf die Reaktivitätskoeffizienten hohe Plutoniumanteile im Brennstoff vermieden werden. Aus diesem Grund muß ein Brennstoffkreislauf entwickelt werden, bei dem das Verhältnis der thermisch gut spaltbaren Plutoniumisotope im Plutoniumvektor möglichst hoch ist. Die Idee ist daher „frisches“ Plutonium aus dem Uransystem mit der Plutoniumfraktion, die aus der Rezyklierung der ersten MOX Stufe generiert wurde zu verblenden. Es wird erwartet, daß sich innerhalb der MOX-Stufe ein Gleichgewicht einstellt, d. h. die Plutoniumvektoren und der erforderliche Anteil an Plutonium ändert sich nicht mehr. Die Rezyklierungsstrategie wird in **Abb. 6-5** verdeutlicht. Für den U-MOX Brennstoff sind 14 Iterationsschritte in Richtung auf den Gleichgewichtskern durchgeführt wurden. Dabei wurde jeweils dem entladenen Plutonium genau die ausreichende Menge an frischem Plutonium zugeführt, um Kritikalität über 60 GWd/t<sub>SM</sub> zu erreichen. Um die übliche Schwermetалldichte des dioxidischen Brennstoffs zu erreichen, wird entsprechend weniger an Resonanzabsorber (<sup>232</sup>Th oder abgereichertes Uran) verwendet. Die Ergebnisse für den frischen U-MOX Brennstoff sind in **Abb. 6-6** gezeigt. Man erkennt, daß die Brennstoffzusammensetzung sich während der durchgeführten 14 Iterationsschritte nur langsam in Richtung des Gleichgewichts bewegt. Der erforderliche Plutoniumgehalt steigt stark an, so daß dieser für einen eventuellen Gleichgewichtskern in sicherheitstechnisch nicht tolerierbaren Bereichen liegen wird. Die ähnlichen Ergebnisse ergeben sich für den Fall des thoriumbasierten Brennstoff. Da hier aus Thorium kein neues <sup>239</sup>Pu gebildet wird, ist die Untersuchung nur dann sinnvoll, wenn die erbrütete Uranfraktion ebenfalls rezykliert wird, um das Nuklid <sup>233</sup>U als Spaltstoff zu nutzen und so die Plutoniumgehalte

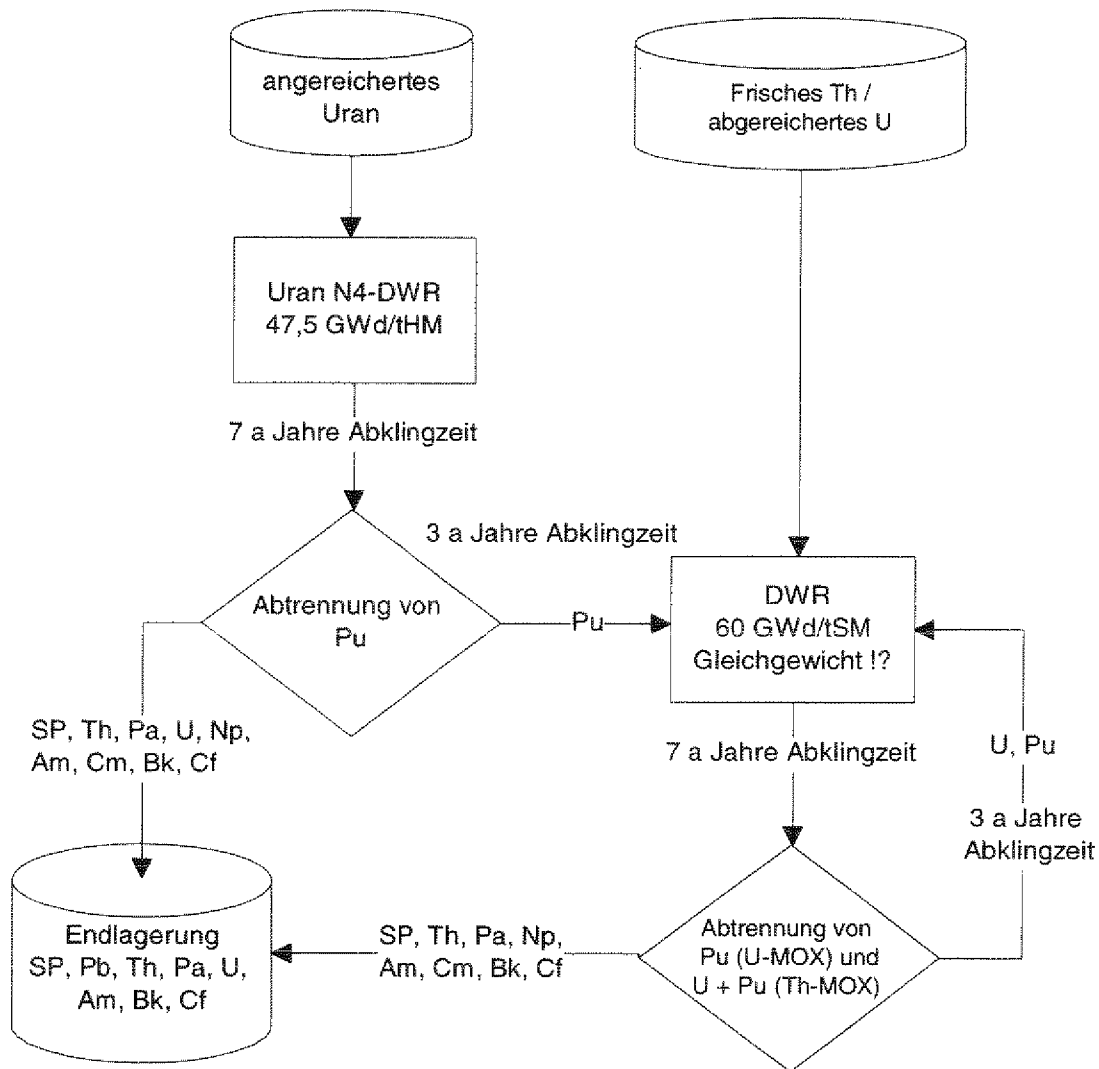
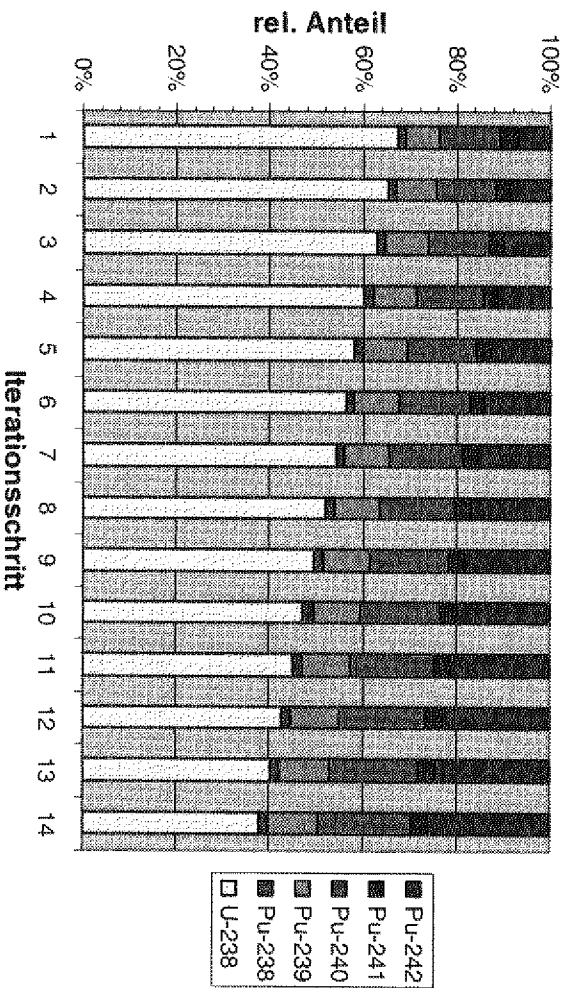
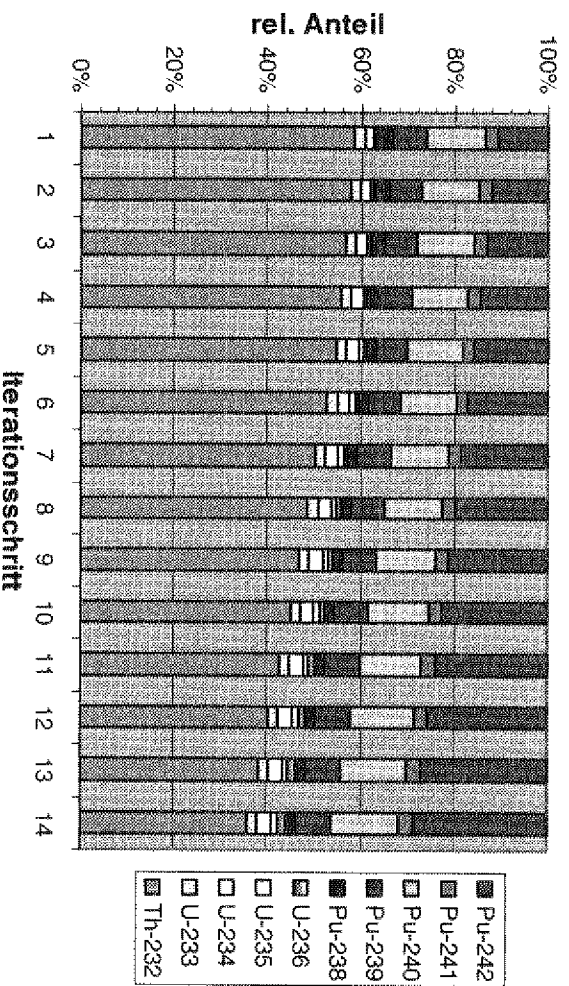


Abb. 6-5: Flußdiagramm des geschlossenen Plutoniumkreislaufs.

nicht noch größer werden zu lassen. Wie jedoch aus **Abb. 6-7** entnommen werden kann, ist die Problematik ähnlich wie bei dem U-MOX basierten Brennstoff und das Gleichgewicht wird – wenn es überhaupt für realistische Kritikalitätswerte für einen Abbrand von  $60 \text{ GWd}/t_{\text{SM}}$  existiert – bei Plutoniumgehalten erreicht, die auch bei thoriumbasiertem Brennstoff nicht toleriert werden können.



**Abb. 6-6:** Entwicklung des Nuklidvektors zum Start des U-MOX Kernes während der einzelnen Iterationen.



**Abb. 6-7:** Entwicklung des Nuklidvektors zum Start des Th-MOX Kernes während der einzelnen Iterationen.

## 7 Reduzierungspotentiale für Transuranelemente

Wie bereits in Kapitel 2 erwähnt und in Kapitel 8 detailliert gezeigt wird, reicht eine Vernichtung des Plutoniums nicht aus, um das Toxizitätsniveau in technisch beherrschbaren Zeiten auf das des frischen Brennstoffs zu reduzieren. Dies liegt im wesentlichen an den Actiniden Neptunium (Np), Americium (Am) und Curium (Cm) die zusammen als Minor Actinides (MA) bezeichnet werden. Um das Toxizitätsniveau der abgebrannten Brennstoffe entscheidend zu verringern ist eine möglichst vollständige Abtrennung und anschließende Transmutation dieser Elemente erforderlich.

### 7.1 Zusätzliche Rezyklierung von Minor Actinides

Basis für diese Szenarien ist wieder das reine Uransystem. Bei der anschließenden Wiederaufarbeitung werden neben Plutonium auch das Neptunium, Americium und Curium abgetrennt. Der Nuklidvektor, der nun als Spaltstofffraktion für die erste MOX Stufe fungiert, ist in **Tab. 7-1** in der zweiten Spalte aufgeführt. Hier wird nur der Abbrand von  $47,5 \text{ GWd/t}_{\text{SM}}$  des Uransystems untersucht, um einen TRU Nuklidvektor zu erhalten, der einen relativ hohen Anteil an  $^{239}\text{Pu}$  und  $^{241}\text{Pu}$  hat. Dies scheint in Hinblick auf eine adäquates Sicherheitsverhalten unumgänglich, da durch die zusätzlichen Neutronenverluste innerhalb der MA Elemente der Anteil der Spaltstofffraktion am Brennstoff zum Erreichen der Kritikalitätsforderung erhöht werden muß. Daß hohe Plutoniumgehalte im thermischen Spektrum insbesondere mit Blick auf den Void-Koeffizienten problematisch sind, wurde in Kapitel 6 deutlich. Deshalb wurde die Zahl der Leerstäbe innerhalb des Bündels bei diesen Berechnungen von 25 auf 49 erhöht. Dadurch erhöht sich das Moderationsverhältnis, was für Plutonium getriebenen Brennstoffen zu einer verbesserten Neutronen Ökonomie führt.(vgl. Abschnitt 6.2, **Abb. 6-2**) Die Zusammensetzung der TRU-MOX Kerne sowohl für Uran als auch für Thorium als Basismaterial sind ebenfalls in **Tab. 7-1** aufgelistet. Man erkennt, daß trotz des relativ frischen Plutoniumvektors und des erhöhten Moderationsverhältnis innerhalb der Spaltstofffraktion des Brennstoffs die erforderlichen Plutoniumgehalte mit 16,6 % für U-MOX und 18,8 % für Th-MOX hoch sind. Das

**Tab. 7-1:** Nuklidvektoren der Transuran-Spaltstofffraktion und des frischen U-MOX bzw. Th-MOX Brennstoffs.

	Spaltstofffraktion	U-MOX	Th-MOX
Nuklid	Rel. Anteil	Rel. Anteil	Rel. Anteil
Th-232	0,00 %	0,00 %	78,46 %
U-234	0,05 %	0,01 %	0,01 %
U-235	0,00 %	0,16 %	0,00 %
U-236	0,01 %	0,00 %	0,00 %
U-238	0,00 %	80,73 %	0,00 %
Np-237	5,57 %	1,06 %	1,20 %
Pu-238	2,28 %	0,44 %	0,49 %
Pu-239	45,66 %	8,73 %	9,84 %
Pu-240	23,71 %	4,53 %	5,11 %
Pu-241	8,19 %	1,57 %	1,77 %
Pu-242	7,16 %	1,37 %	1,54 %
Am-241	5,43 %	1,04 %	1,17 %
Am-242m	0,01 %	0,00 %	0,00 %
Am-243	1,49 %	0,28 %	0,32 %
Cm-244	0,40 %	0,08 %	0,09 %
Cm-245	0,03 %	0,00 %	0,01 %

$^{239}\text{Pu}$  aus  $^{238}\text{U}$  entsprechend. Sowohl bei Uran, als auch bei thoriumbasierten Brennstoffen wird integral eine Netto Vernichtung der MA Elemente erreicht, so daß die relativen Umsatzraten bilanziert über alle TRU Elemente im Vergleich zu denen bei ausschließlicher Plutonium Rezyklierung noch weiter steigen. Im Fall des thoriumbasierten Brennstoffs können 97,4 % erreicht werden. Die elementweise Betrachtung der MA Vernichtungsraten bzw. Brutraten zeigt allerdings, daß das  $^{244}\text{Cm}$  nicht abgebrannt werden kann. Sein Anteil am Nuklidgemisch erhöht sich während des Einsatz im Reaktor bei U-MOX von 0,08 % auf 0,29 % und bei Th-MOX von 0,09 % auf 0,30 %.

## 7.2 Sicherheitsverhalten der TRU-Brennstoffe

Das Sicherheitsverhalten der oben untersuchten TRU Brennstoffe wurde mit Blick auf die Reaktivitätskoeffizienten untersucht. Die Ergebnisse der jeweils konservativsten Koeffizienten sind in **Tab. 7-3** zusammengefaßt. Man erkennt, daß trotz der bereits vorgenommenen Optimierungen die Void-Koeffizienten sehr stark positiv sind. Daraus muß gefolgert werden, daß ein Einsatz von TRU Brennstoffen im DWR in der Weise sicherheitstechnisch nicht tolerabel er-

Abbrandverhalten der TRU-Brennstoffe in den beiden MOX Brennelementen wird in **Tab. 7-2** beschrieben. Zum direkten Vergleich der Brennstoffe, bei denen nur das Plutonium rezykliert wurde, ist in **Tab. 7-2** der entsprechende Brennstoff aufgeführt. Man erkennt, daß die Plutonium Umsatzraten bei U-MOX Brennstoff kaum sinken während sie bei Th-MOX um 9 % zurückgehen. Die Begründung hierfür liegt in den Neutronenabsorptionen in den MA Elementen, deren über dem Abbrand gemittelte Konzentration bei TRU Rezyklierung deutlich höher liegt, als bei ausschließlicher Rezyklierung des Plutoniums. Während bei thoriumbasierten Brennstoffen diese zusätzlichen Absorptionen ausschließlich auf Kosten des Plutoniums gehen, verringert sich bei U-MOX das Brüten von

scheint, da eine derartig starke Reduktion auch durch die Einführung eines endlichen Systems nicht erwartet wird. Gegebenenfalls kann die Struktur des Brennelementbündels noch weiter auf den Einsatz von Brennstoffen mit hohen TRU Gehalten optimiert werden. In diesem Bereich besteht noch weiterer F&E Bedarf, der mit den hohen TRU Umsatzraten, die bei TRU Rezyklierung mit thoriumbasierten Brennstoffen erreicht werden können, zu rechtfertigen ist. In diesem Zusammenhang sei nochmals darauf hingewiesen, dass die Zellrechnungen, die den Berechnungen zu Grunde liegen, die Void-Koeffizienten wegen nicht berücksichtigter Leckage überschätzt (vgl. Abschnitt 6.4).

**Tab. 7-2:** Umsatzraten von Plutonium und Minor Actinides (MA) bei TRU Rezyklierung und Verwendung von Uran und Thorium als Basismaterial.

Brennstoffbasismaterial:	Uran		Thorium	
	Pu	TRU	Pu	TRU
Rezykliertes Material:				
Pu Anteil zu BOB / Gew.-%	11,49%	16,63%	12,77%	18,74%
Pu Anteil EOB / Gew.-%	8,14%	13,31%	6,79%	13,32%
$Pu_{umgesetzt}/Pu_{Anfang} / \%$	29,16%	19,97%	46,83%	28,94%
$\Delta Pu/\Delta Pu_{theo.} / \%$	55,83%	55,33%	99,67%	90,39%
MA Anteil zu BOB / Gew.-%	0,17%	2,47%	0,19%	2,79%
MA Anteil zu EOB / Gew.-%	0,67%	2,12%	0,69%	2,37%
TRU Reduzierung / Gew.-%	2,85%	3,67%	5,48%	5,84%
$TRU_{umgesetzt}/TRU_{Anfang} / \%$	24,44%	19,20%	42,28%	27,15%
$\Delta TRU/\Delta TRU_{theo.} / \%$	47,50%	61,12%	91,33%	97,40%

**Tab. 7-3:** Reaktivitätskoeffizienten für TRU Rezyklierung mit Uran und Thorium als Basismaterial und einem Entladeabbrand von 60 GWd/t<sub>SM</sub>.

Brennstoffbasismaterial	Uran			Thorium		
	TRU			TRU		
Rezykliertes Material:						
Zeitpunkt	BOB	MOB	EOB	BOB	MOB	EOB
Brennstoff	-2,0	-2,1	-2,3	-2,2	-2,5	-2,7
Moderator	-25	-28	-33	-26	-28	-33
Void	12000	11000	10000	8300	5700	3100
Bor	-2,1	-2,3	-2,6	-2,0	-2,3	-2,5

## 7.3 Strategie zur Vernichtung von $^{244}\text{Cm}$

### 7.3.1 Grenzen des Druckwasserreaktors

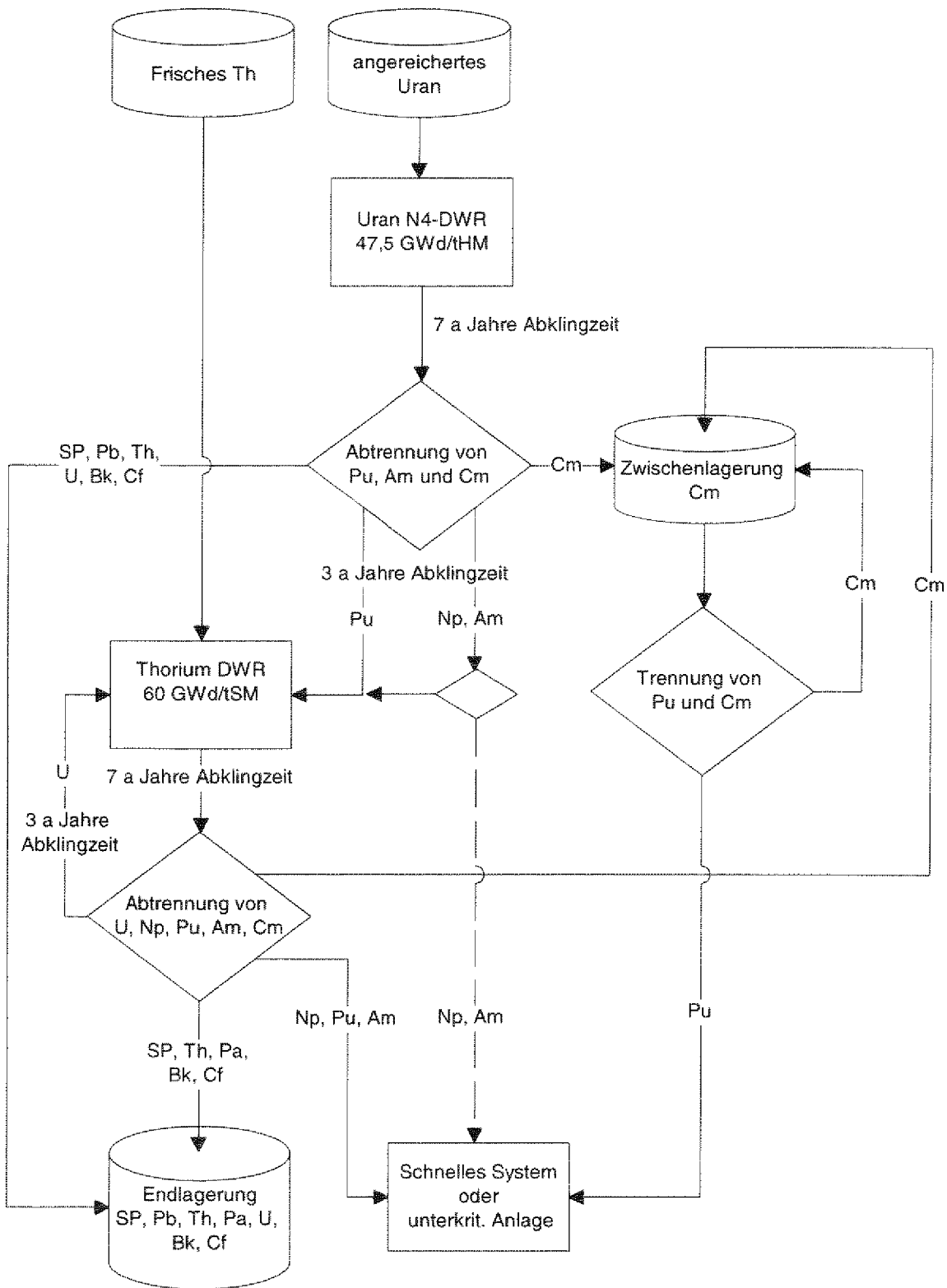
Wie in Abschnitt 7.1 bereits erörtert wurde, wird das Curium als einziges Element der Minor Actinides kontinuierlich aufgebaut. Dabei rückt das Nuklid  $^{244}\text{Cm}$  wegen seines dominierenden Anteils am Curium in den Vordergrund. Nach /Neu 96/ scheint die Umsetzung des Nuklids  $^{244}\text{Cm}$  im Druckwasserreaktor selbst bei Vernachlässigung des Sicherheitsverhaltens des Reaktors nicht möglich. Diese Aussage behält nach /Neu 96/ auch für Brennstoffe mit inertem Trägermaterial ihre Gültigkeit. Eine sicherheitstechnische Optimierung, die für Brennstoffe mit hohen TRU Anteilen erforderlich wird, schafft demnach keine Lösung zur Vernichtung des  $^{244}\text{Cm}$ .

### 7.3.2 Entstehung des $^{244}\text{Cm}$

Der wesentliche Aufbau des  $^{244}\text{Cm}$  erfolgt durch den  $\beta$ -Zerfall des sehr kurzlebigen  $^{244}\text{Am}$ . Die anderen möglichen Quellen zur Bildung des  $^{244}\text{Cm}$  sind der Neutroneneinfang innerhalb des  $^{243}\text{Cm}$  oder der  $\alpha$ -Zerfall des  $^{248}\text{Cf}$ . Da die Nuklidkonzentrationen dieser beiden Nuklide trotz einer im Vergleich zur Einsatzzeit im Reaktor großen Halbwertszeit sehr klein sind, können diese Bildungspfade des  $^{244}\text{Cm}$  nicht im Vordergrund stehen. Das  $^{244}\text{Am}$  entsteht seinerseits ausschließlich aus dem Neutroneneinfang des  $^{243}\text{Am}$ . Somit fällt dem  $^{243}\text{Am}$  für den Aufbau des  $^{244}\text{Cm}$  eine Schlüsselrolle zu. Da die Wirkungsquerschnittsresonanzen des  $^{243}\text{Am}$  im gleichen Energiebereich liegen wie die des  $^{244}\text{Cm}$  und deren Maxima die des  $^{244}\text{Cm}$  noch überschreiten, baut ein Spektrum, das die Resonanzen nutzt, in noch stärkerer Weise  $^{244}\text{Cm}$  aus  $^{243}\text{Am}$  auf, solange dieses in ähnlichen Konzentrationen im Brennstoff vorhanden ist. Für die Bildung des  $^{243}\text{Am}$  ist der  $\beta$ -Zerfall des kurzlebigen  $^{243}\text{Pu}$  aus den gleichen Gründen wie oben die dominierende Kernreaktion. Diese  $^{243}\text{Pu}$  entsteht nahezu ausschließlich aus der  $(n,\gamma)$ -Reaktion des  $^{242}\text{Pu}$ . Dessen Resonanzen sind kleiner als die des  $^{243}\text{Am}$ , was erklärt, daß ein Nettoabbrand dieses Nuklids im DWR möglich wird. Demnach ist eine Transmutation des  $^{244}\text{Cm}$  bei gleichzeitigem Vorhandensein von Plutonium in einem thermischen bis epithermischen Spektrum nicht möglich.

### 7.3.3 Zerfall des $^{244}\text{Cm}$ und Transmutation des $^{240}\text{Pu}$

Die Halbwertszeit von  $^{244}\text{Cm}$ , das selbst durch einen  $\alpha$ -Zerfall in  $^{240}\text{Pu}$  zerfällt, ist mit 18,1 Jahren allerdings relativ gering. Eine technisch realistische Lagerung des  $^{244}\text{Cm}$  und Abtrennung des  $^{240}\text{Pu}$  bei konstantem  $^{244}\text{Cm}$  Inventar in Zwischenlagern des Brennstoffkreislaufes ist daher denkbar. Dieses  $^{240}\text{Pu}$  kann – zumindest theoretisch – wieder dem Reaktor zugeführt und dort zum Teil umgesetzt werden. Diese Umsetzung erfolgt im wesentlichen durch eine  $(n,\gamma)$ -Reaktion des  $^{240}\text{Pu}$  und anschließender Spaltung des  $^{241}\text{Pu}$ . Die Stoffströme eines möglichen Brennstoffkreislaufes sind in **Abb. 7-1** gezeigt.



**Abb. 7-1:** Flußdiagramm eines Brennstoffkreislaufes mit primärer TRU Rezyklierung im DWR und sekundärer in einer unterkritischen und/oder schnellen Anlage.

Die gestrichelte Verbindung für Neptunium und Americium nach der Wiederaufarbeitung des abgebrannten Uranbrennstoffs zur weiteren Umsetzung in einer unterkritischen Anlage und bzw. oder einem schnellen Neutronenspektrum wird für den Teil des Am/Np Stoffstromes benötigt, der aus Gründen des positiv werdenden Void Koeffizienten nicht wieder dem DWR zugeführt werden kann. Evtl. kann auf ihn durch eine weitere Optimierung der Brennelemente auf TRU Brennstoffe und eine Verringerung der Abbrände (sowohl des Uransystems als auch des noch folgenden Th-MOX Systems) auf die Aufteilung dieses Stoffstromes und der Zuführung zu einem weiteren Reaktorsystem verzichtet werden. Unter Umständen kann auch ein Teil der TRU Elemente aus der MOX Stufe nach der Rezyklierung wieder dem DWR zugeführt werden. Auch hierzu bedarf es Veränderungen speziell mit Blick auf Brennstoffe mit hohen TRU Anteilen. Die Problematik des positiven Void Koeffizienten steht hier ebenfalls wieder im Vordergrund, wie bereits bei den mehrfachen Rezyklierungen des Plutoniums in Kapitel 6 deutlich wurde.

#### 7.3.4 Abschätzung der Leistungsverteilung

In diesem Abschnitt befindet sich eine Abschätzung der Stoffströme, um feststellen zu können, in welchem Umfang „innovative“ Systeme eingesetzt werden müssen, um die in Druckwasserreaktoren nicht umgewandelten Transurane zu spalten. Abweichungen zwischen den hier aufgeführten Werten und denen für die abgebrannten Brennstoffe in **Tab. 7-2** sind in der in dieser Betrachtung berücksichtigten Abklingzeit bis zur Rezyklierung der Brennstoffe begründet.

Uransystem:

Die mit dem Referenz Uranbrennstoff betriebenen Reaktoren enthalten 1,03 % Plutonium nach einer Abklingzeit von sieben Jahren, was demnach ca. 10,3 kg/t<sub>SM</sub> bzw. 10,3 kg/47,5 GWd geleisteter Arbeit entspricht. Diese Plutoniummenge gilt es in den nachfolgenden Reaktoren vollständig umzusetzen. Aus diesen 0,22 kg/GWd wird bei vollständiger Spaltung nochmals eine Energie von ca. 0,22 GWd pro im Uransystem gewandeltem GWd freigesetzt. Neben dem Plutonium enthalten die Brennelemente des Referenzreaktors noch 0,261 kg/GWd an Minor Actinides (MA), davon 1,26 g/GWd Curium, welches zum Zerfall in <sup>240</sup>Pu zwischengelagert wird. Dieses <sup>240</sup>Pu wird dem innovativen Reaktorsystem zugeführt. Die anderen Minor Actinides (MA) können in Abhängigkeit vom Brennelementdesign mehr oder weniger dem Th-MOX System zugeführt werden (vgl. gestrichelte Linie in **Abb. 7-1**). Der restliche Stoffstrom dieser Elemente wird ebenfalls dem innovativen Reaktorsystem zugeführt. Im folgenden werden die beiden Extremfälle analysiert (vollständige Zuführung zum Th-MOX Brennstoff im DWR bzw. vollständige Rezyklierung im innovativen System).

Th-MOX System (Fall A):

Der mit Th-MOX (Endabbrand 60 GWd/t<sub>SM</sub>) betriebene Druckwasserreaktor benötigt einen Plutoniumanteil von 12,8 % – entsprechend 2,1 kg/GWd gewandelter Arbeit innerhalb des *Th-MOX Brennstoffs* – der gegebenen Zusammensetzung,

wenn nur Plutonium rezykliert wird. Es werden in einem im Gleichgewicht betriebenen Kraftwerkspark, demnach ca. die zwölffache Leistung an Uransystemen wie Th-MOX Systeme benötigt. Das Th-MOX System reduziert das Plutoniuminventar auf einen Anteil von 6,5 % (entsprechend 1,1 kg/GWd) im abgebrannten Brennstoff nach der Abklingzeit. Aus dem Plutonium entstehen durch (n, $\gamma$ )-Reaktionen bei Verwendung von Th-MOX 0,15 kg/GWd Minor Actinides (MA), davon 0,022 kg/GWd Curium. Letzteres zerfällt während der nachfolgenden Abklingzeit und Zwischenlagerung in  $^{240}\text{Pu}$ .

#### Th-MOX System (Fall B):

Bei der vollständigen Rezyklierung aller Transurane bis auf Curium, muß der Plutoniumanteil im frischen Th-MOX Brennstoff auf ca. 19 % gesteigert werden, um die zusätzlichen Neutronenverluste durch die parasitären Absorptionen innerhalb der Transurane zu kompensieren. Entsprechend wird ca. die 19-fache Menge an Uransystemen benötigt. Nach der unterstellten Abklingzeit nach Abbrandende befinden sich noch ca. 2,32 kg/GWd Plutonium neben 0,46 kg/GWd an Minor Actinides (MA) - davon 0,037 kg/GWd Curium - im abgebrannten Th-MOX Brennstoff. Die Normierung erfolgte hier auf im *Th-MOX Brennstoff* gewandelte Arbeit.

#### Innovatives System zur Vernichtung der restlichen Transuranelemente

Dieses letzte Reaktorsystem im in **Abb. 7-1** vorgeschlagenen Brennstoffkreislauf muß die folgenden, auf die im *gesamten Brennstoffkreislauf* gewandelte Energie bezogenen, Massenströme umsetzen.

*Fall A: Nur Pu wurde dem Th-MOX System zugeführt.*

- Plutonium, entladen aus dem Th-MOX System (92 g/GWd),
- In  $^{240}\text{Pu}$  zerfallenes  $^{244}\text{Cm}$  aus dem Th-MOX System (1,9 g/GWd),
- Neptunium und Americium im abgebrannten Th-MOX Brennstoff (11 g/GWd),
- In  $^{240}\text{Pu}$  zerfallenes  $^{244}\text{Cm}$  aus den Uransystemen (1,01 g/GWd),
- Neptunium / Americium aus der WAA des abgebrannten Uranbrennstoffs (21,1 g/GWd),

Damit müssen insgesamt 0,13 kg/GWd an Transuranelementen im innovativen Reaktorsystem transmutiert werden. Zur Wandlung von 1 GWd ist die Spaltung von ca. 1 kg Schwermetall erforderlich. Davon werden 0,13 kg in den innovativen Systemen gespalten, während 0,87 kg in den Druckwasserreaktoren (Uran und Th-MOX) umgesetzt werden. Das bedeutet es müssen ca. 15 % der Spaltungen in den innovativen Systemen durchgeführt werden.

*Fall B: Pu, Np und Am wurden dem Th-MOX System zugeführt.*

- Plutonium, entladen aus dem Th-MOX System (0,123 kg/GWd),
- In  $^{240}\text{Pu}$  zerfallenes  $^{244}\text{Cm}$  aus dem Th-MOX System (1,95 g/GWd),
- Neptunium und Americium im abgebrannten Th-MOX Brennstoff (22,4 g/GWd),
- In  $^{240}\text{Pu}$  zerfallenes  $^{244}\text{Cm}$  aus den Uransysteme (1,0 g/GWd).

Bei der Rezyklierung von Neptunium, Plutonium und Americium müssen im innovativen Systemen 0,148 kg/GWd umgesetzt werden. Bestimmt man das Ver-

hältnis der Energieumwandlung von diesen innovativen Systemen zu den Druckwasserreaktoren (Uransysteme und Th-MOX) so erhöht sich dieses um ca. 1 %. Diese Erhöhung korreliert mit der Verringerung des Verhältnisses der umgesetzten Transuranmenge zur im frischen Brennstoff vorhandenen Transuranmenge von 42,3 % bei ausschließlicher Reduzierung auf unter 27 % bei der Rezyklierung von Neptunium und Americium. Einziger Vorteil der Rezyklierung der Minor Actinides (MA) innerhalb des mit Th-MOX Brennstoff getriebenen Reaktors ist eine netto Vernichtung von Minor Actinides (MA), die aber durch deutlich erhöhte TRU Inventare erkauft werden muß. Diese hohen Inventare führen zu kleineren relativen Umsatzraten, was einen erhöhten Plutoniumanteil im abgebrannten Th-MOX Brennstoff bewirkt. Dieses Plutonium muß dann letztlich auch dem „innovativen“ System zugeführt werden, was den Anteil dieser Systeme erhöht. Die Verteilung der Leistungsproduktionen innerhalb der jeweiligen Kraftwerkssysteme faßt die **Tab. 7-4** zusammen. Dabei wird die Energie, die in den Uransystemen erzeugt wird, jeweils zu 100 % normiert. Zusätzlich ist in **Tab. 7-4** der Energieanteil angegeben, der durch die vollständige Spaltung des im Th-MOX Brennstoffs erbrüteten  $^{233}\text{U}$  entsteht.

**Tab. 7-4:** Zusammensetzung des Kraftwerksparks bei Rezyklierung von ausschließlich Plutonium bzw. von Pu, Np und Am im Th-MOX Brennstoff.

Rezyklierte Elemente bei Th-MOX:	Fall A: Pu	Fall B: Pu, Np und Am
Uransysteme	100 %	100 %
Th-MOX System	10,5 %	7,0 %
innov. System (TRU)	17,3 %	18,4 %
innov. System ( $^{233}\text{U}$ )	2,7 %	1,6 %

### 7.3.5 Ausblick

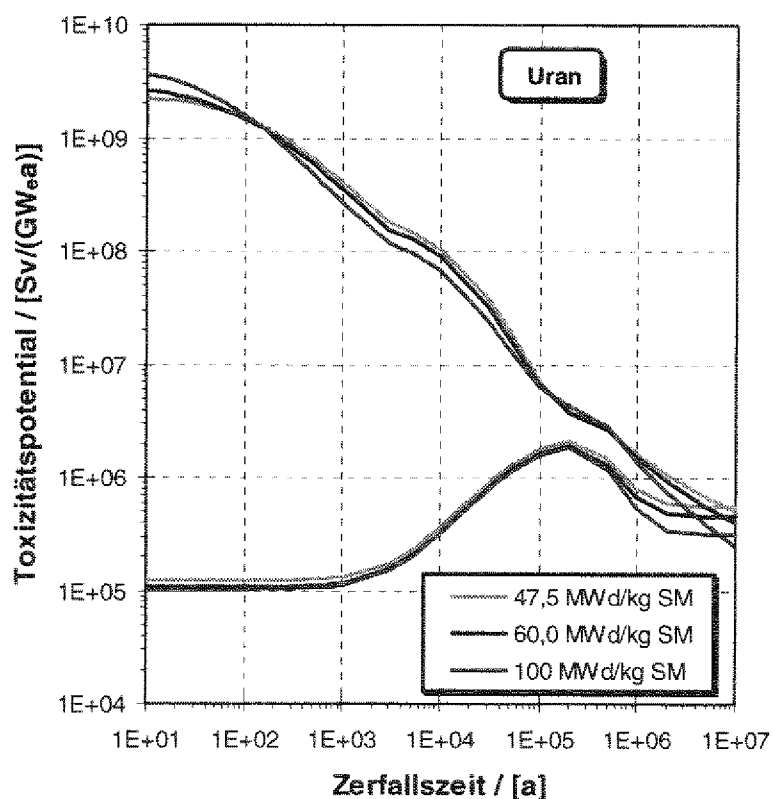
Generell besteht die Möglichkeit, das aus dem Thorium erbrütete Uran ebenfalls wieder dem Th-MOX Brennstoff beizumischen (siehe **Abb. 7-1**). Durch den hohen Spaltwirkungsquerschnitt des  $^{233}\text{U}$  verringert sich der erforderliche Plutoniumgehalt. Dies hat einen positiven Einfluß auf die nukleare Stabilität des Reaktorkerns (vgl. Ergebnisse des zweifach rezyklierten Th-MOX Brennstoffe in Abschnitt 6.5). An dieser Stelle bestehen diverse Modifikationsmöglichkeiten des Brennstoffkreislaufs, der in gewissen Grenzen speziell auf das innovative, nachgeschaltete System hin optimiert werden kann, wenn dessen Charakteristika festgelegt sind. Das Nuklidspektrum, das einem anderen System zur Transmutation zugeführt werden muß, wird in jedem Fall durch Nuklide geprägt, die im thermischen Spektrum über einen nicht ausreichend hohen Spaltwirkungsquerschnitt verfügen. Deshalb liegt es nahe, diese gezielt in Anlagen mit zumindest lokal schnellen Neutronen umzusetzen.

Der bei der Entwicklung eines solchen Brennstoffkreislaufs mit Zwischenlagerung des  $^{244}\text{Cm}$  noch zu erbringende F&E Aufwand, kann dadurch gerechtfertigt werden, daß nach /Gro 98/ die Umwandlung von  $^{244}\text{Cm}$  in schnellen Systemen ebenfalls nicht möglich ist.

## 8 Toxizitätsbilanzen

### 8.1 Untersuchungen einzelner Brennstoffsysteme

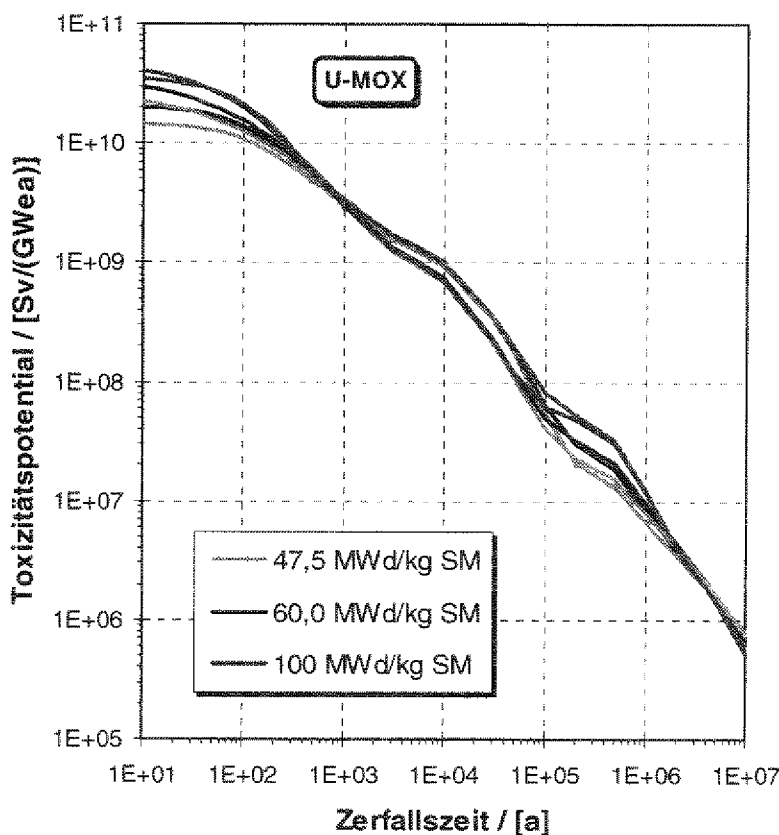
Um die Möglichkeiten der Toxizitätsreduzierung bei thoriumbasierten Brennstoffen im DWR zu prüfen, werden die zeitlichen Verläufe der Toxizitäten für jeden Brennstoff und jeden Entladeabbrand berechnet. Die Rechnungen wurden wie in Abschnitt 4.5.4 beschrieben durchgeführt. Alle Brennstoffarten (Uran, U-MOX und Th-MOX) werden für jeden Abbrand miteinander und mit dem Gefährdungspotential des frischen Brennstoffs verglichen. Der Vergleich mit dem frischen Brennstoff ist sinnvoll, da bis zum Einsatz im Reaktor durch den Menschen keine Veränderungen der Toxizitätspotentiale entstanden sind [Phl 95]. Durch dieses Vorgehen kann man die Brennstoffarten untereinander hinsichtlich ihres Toxizitätspotentials vergleichen und gleichermaßen die Erhöhung der Toxizität durch den Einsatz im Reaktor im Vergleich zum frischen Brennstoff erkennen. Die Ergebnisse für das Uran System sind in **Abb. 8-1**



**Abb. 8-1:** Toxizitätspotentiale des frischen bzw. abgebrannten Uranbrennstoffs für alle untersuchten Entladeabbrände (Schwermetalle).

gezeigt. Die Toxizitätspotentiale hängen nicht stark von den Entladeabbränden ab. Dies ist dadurch zu erklären, daß die Toxizitätspotentiale pro erzeugter elektrischer Arbeit skaliert sind. Die durch Kernspaltung erzeugte Arbeit ist proportional der Zahl der gespaltenen Schwermetallkerne, entsprechend ist auch der Quotient aus gespaltenen Kernen pro Arbeit und damit das Toxizitätspotential konstant. Die geringen Verschiebungen der Toxizitätspotentiale haben ihre Ursachen im wesentlichen in einem veränderten Schwermetallvektor durch den Aufbau höherer Transuranelemente (TRU) durch  $(n,\gamma)$  Reaktionen. Ein Vergleich mit dem frischen Brennstoff zeigt, daß die Toxizität in den ersten Jahrhunderten um Größenordnungen oberhalb derjenigen des frischen Uranbrennstoffes liegt. Erst nach einigen Jahrtausenden ist die Toxizität auf das Vergleichsniveau des frischen Brennstoffes gesunken.

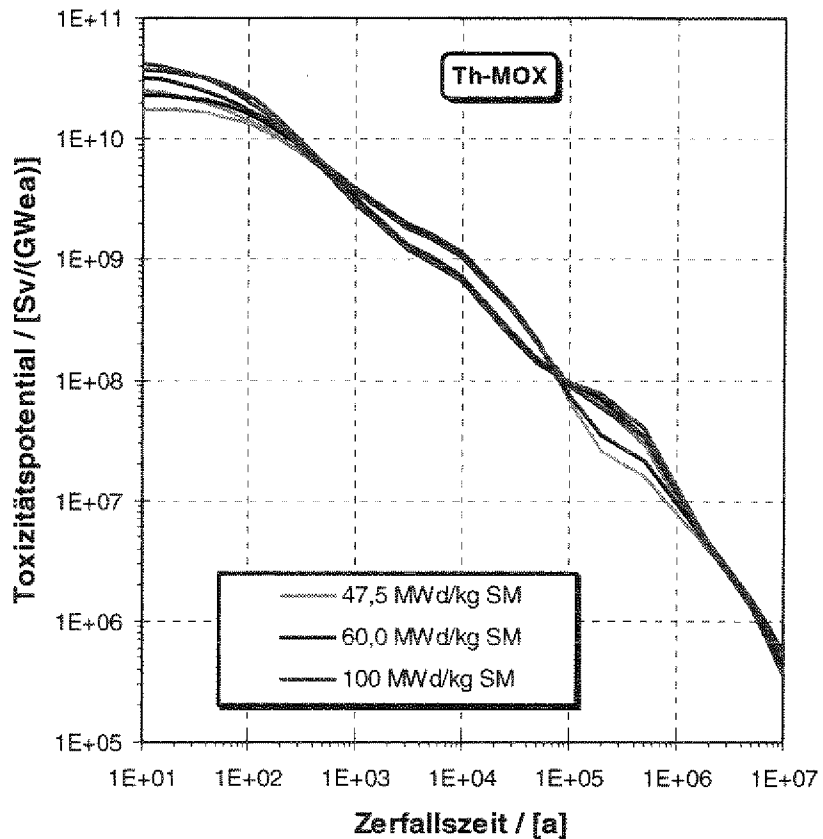
In **Abb. 8-2** sind die Toxizitätsverläufe für die U-MOX Brennstoffe - sowohl vor dem Einsatz im Reaktor als auch nachher - mit den drei verschiedenen Entladeabbränden dargestellt. Man erkennt hier, daß die sechs Toxizitätsverläufe über der gesamten Zerfallszeit alle in der gleichen Größenordnung liegen. Interessant ist insbesondere, daß sich die Toxizität während des Einsatzes im Reaktor nicht verändert, denn die Kurven unterscheiden sich nicht wesentlich zwischen frischem U-MOX und abgebranntem U-MOX Brennstoff. Das bedeutet, durch den Einsatz von U-MOX Brennstoffen kann nukleare Energie in elektrische gewandelt werden, ohne daß sich das Toxizitätspotential signifikant ändert. Auf der



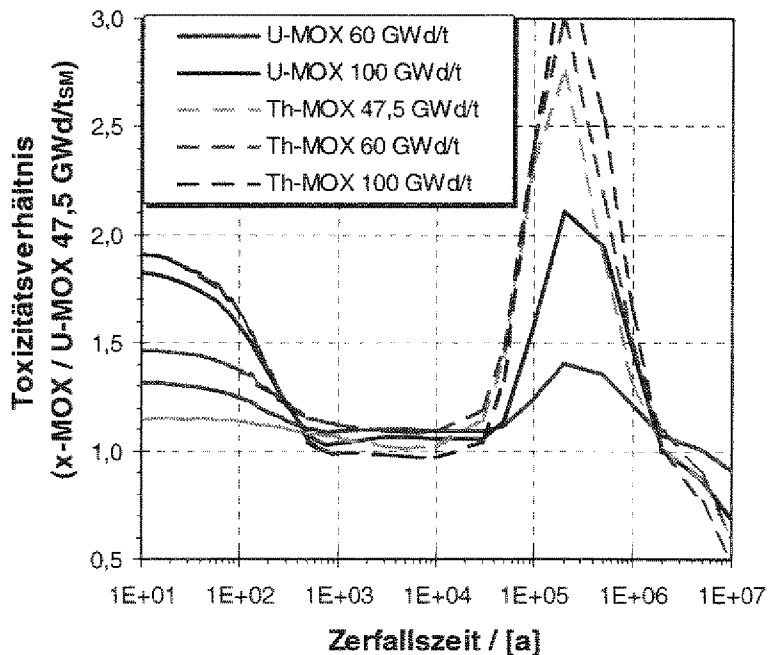
**Abb. 8-2:** Toxizitätspotentiale der U-MOX Brennstoffe für die drei verschiedenen Entladeabbrände (Schwermetalle).

andere Seite ist es im DWR nicht möglich, durch die Rezyklierung von Plutonium eine nennenswerte Reduzierung der Toxizität zu erreichen. Die weitgehende Abbrandunabhängigkeit der Toxizität läßt sich für den abgebrannten U-MOX Brennstoff analog zu oben begründen. Für den frischen U-MOX Brennstoff hat das hohe Toxizitätspotential die Ursache in einem entsprechend hohen Transurananteil, der erforderlich wird um die Kritikalität über den gesamten Abbrand sicherzustellen (vgl. Abschnitt 6.2). Andererseits wird dieser hohe TRU-Gehalt nur auf ca. 60 % abgebaut.

Die Situation für Th-MOX ist sehr ähnlich der bei U-MOX wie aus dem Vergleich der **Abb. 8-2** und **Abb. 8-3** entnommen werden kann. Dies liegt daran, daß das Toxizitätspotential durch das Plutonium bestimmt wird und nach Abschnitt 6.3 die Plutoniuminventare von U-MOX und Th-MOX sich innerhalb einer Abbrandstufe nicht nennenswert unterscheiden. Ein Übergang auf Th-MOX Brennstoff bringt daher bei der Endlagerung einfach rezyklierter Brennstoffe keinen Vorteil gegenüber U-MOX Brennstoffen. Der Unterschied der Toxizitäten wird in **Abb. 8-4** durch die Darstellung der Verhältnisse der Toxizitäten der einzelnen Brennstoffe bezogen auf die des U-MOX Brennstoffes mit einem Entladeabbrand von  $47,5 \text{ GWd/t}_{\text{SM}}$  verdeutlicht. Auffallend ist ein deutliches Ansteigen der Radiotoxizität nach einigen hunderttausend Jahren. Dieser Anstieg ist beim U-MOX Brennstoff im Zerfall des Isotops  $^{242}\text{Pu}$  mit einer Halbwertszeit von  $3,75 \cdot 10^5$  Jahren begründet, da es bei höheren Entladeabbränden einen höheren



**Abb. 8-3:** Toxizitätspotentiale der U-MOX Brennstoffe für die drei verschiedenen Entladeabbrände (Schwermetalle).

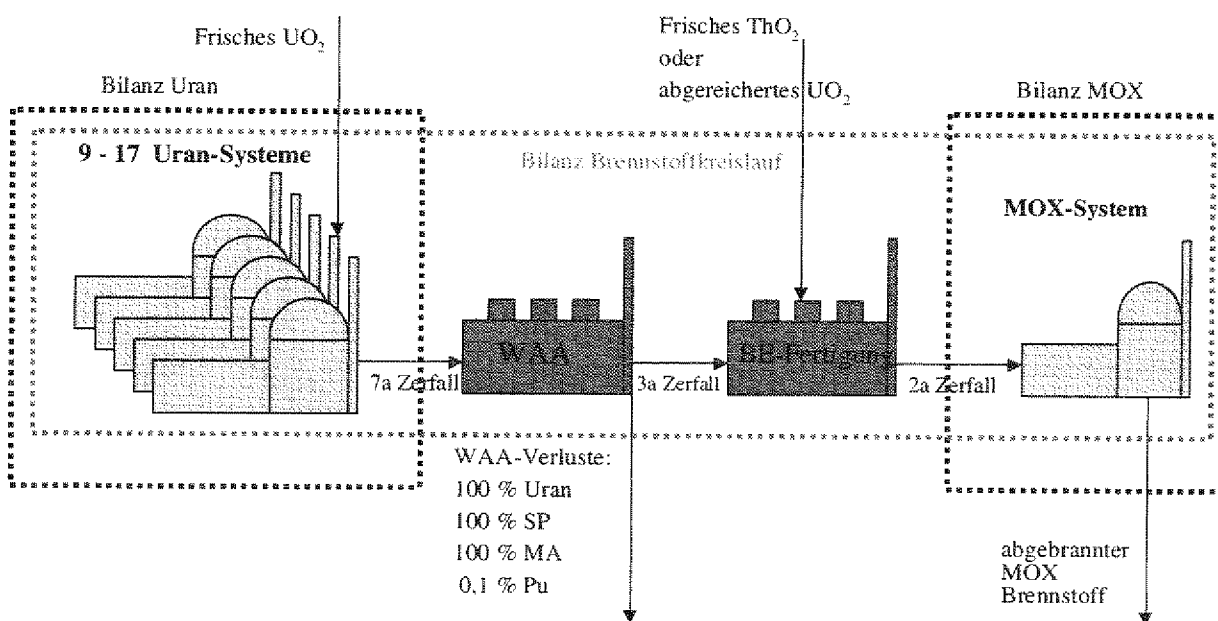


**Abb. 8-4:** Toxizitätsverhältnisse der MOX Brennstoffe bezogen auf U-MOX mit einem Entladeabbrand von  $47,5 \text{ GWd/t}_{\text{SM}}$  (nur Schwermetalle).

relativen Anteil innerhalb des Schwermetallvektors besitzt während beim thoriumbasierten System zusätzlich der Zerfall des erbrüteten  $^{233}\text{U}$  (Halbwertszeit  $1,59 \cdot 10^6$  Jahren) und die Toxizitäten seiner Töchter in dieses Zeitintervall fallen. Insgesamt ist der Einfluß des Abbrandes auf die Toxizität innerhalb dieses Zeitintervalls größer als die Wahl des Basismaterials. Der Vergleich der beiden MOX Systeme mit dem abgebrannten Brennstoff des Uransystems zeigt, der abgebrannte MOX Brennstoff eine Größenordnung oberhalb dem des Uranbrennstoffs liegt. Dies ist mit dem ca. zehnfach höheren Transurangehalt zu erklären. Erst nach Jahrmillionen unterscheiden sich die abgebrannten MOX Brennstoffe nicht mehr vom Gefährdungspotential des frischen Uranbrennstoffs.

## 8.2 Bilanzierung des zweistufigen Brennstoffzyklus

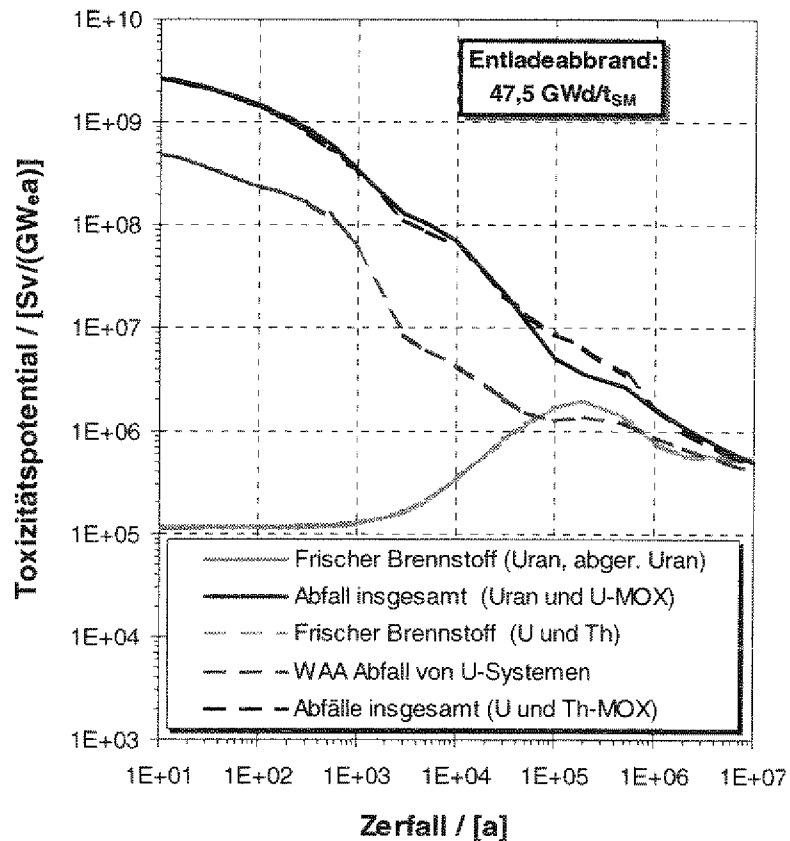
Die Bilanzierung des kompletten Brennstoffzyklus als Kombination zwischen Uransystemen und U-MOX bzw. Th-MOX ist als Fließbild in **Abb. 8-5** dargestellt. Diese Art der Betrachtung ist daher gerechtfertigt, da für eine unterstellte längerfristige Nutzung der Kernenergie ein Gleichgewicht zwischen den Plutonium liefernden mit Uran betriebenen DWRs und den MOX basierten entsteht. Das Verhältnis der Uran Systeme zu dem Verhältnis der MOX Systeme ist im wesentlichen abhängig vom angestrebten Abbrand. Die Uransysteme müssen jeweils soviel Plutonium erbrüten wie benötigt wird, um die erste MOX Stufe zu starten. Der Plutoniumgehalt des abgebrannten Uranbrennstoffs schwankt zwischen 1,05 % ( $47,5 \text{ GWd}/t_{\text{SM}}$ ) und 1,46 % ( $100 \text{ GWd}/t_{\text{SM}}$ ). Andererseits wird für die MOX Brennstoffe ein Plutoniumanteil von 9 % bis 25 % benötigt. Daraus resul-



**Abb. 8-5:** Massenströme in einem kombinierten System aus Uransystemen, Wiederaufarbeitung und einem anschließenden Einsatz in einem U-MOX bzw. Th-MOX System.

tiert das Verhältnis von Uran Reaktoren zu MOX Reaktoren zwischen neun und siebzehn.

Der Vergleich der Toxizitäten aller in das System eintretenden Schwermetallmassenströme mit den Austretenden ist für den Fall des Entladeabbrandes von  $47,5 \text{ GWd/t}_{\text{SM}}$  in **Abb. 8-6** gezeigt. Für die beiden höheren Abbrände sind die Verläufe in den **Abb. E-1** und **Abb. E-2** des Anhangs E gezeigt. Man erkennt daß die Unterschiede in den Toxizitäten der Abfälle sich insgesamt zwischen Th-MOX und U-MOX so gut wie nicht unterscheiden. Dies liegt daran, das der gesamte Brennstoffzyklus stark



**Abb. 8-6:** Toxizitätsverläufe aller Massenströme der zweistufigen Brennstoffzyklus mit einem Entladeabbrand von  $47,5 \text{ GWd/t}_{\text{SM}}$  (Schwermetalle).

durch die Uransysteme dominiert wird und hohe TRU-Gehalte im abgebrannten Brennstoff verbleiben. Die gleiche Aussage gilt für die Toxizitäten der in das System eintreten Schwermetallströme. Hier liegen die Linien in **Abb. 8-6** deckungsgleich. Die Toxizität der Wiederaufarbeitungsverluste bei der Rückgewinnung des Plutoniums erreichen das Niveau des frischen Brennstoffs erst nach ungefähr hunderttausend Jahren. Eine Rezyklierung von Plutonium allein kann also nicht ausreichen, die Endlagerzeit auf technisch beherrschbare Zeiträume zu verkürzen, selbst wenn man für die MOX Brennstoffe eine (natürlich hypothetische) hundertprozentige Vernichtung aller Transuranelemente beim wiederholten Einsatz im Reaktor unterstellen würde, denn obwohl der Abfall nur noch einen Anteil von  $10^{-3}$  des Plutoniums enthält, verschiebt sich das Toxizitätspotential nur um eine Größenordnung nach unten. In den **Abb. 8-7** und **Abb. 8-8** sind die Verläufe der Toxizitäten bei zweifacher Rezyklierung für die Wiederaufarbeitungsabfälle (1. und 2. Rezyklierung) und des gesamten Abfallstromes gezeigt. Um die Unterschiede der einzelnen Toxizitätsverläufe des zweistufigen Brennstoffzyklus zu verdeutlichen sind in **Abb. 8-9** deren Verhältnisse bezogen auf das reine Uran System mit einem Entladeabbrand von  $60 \text{ GWd/t}_{\text{SM}}$  gezeigt. Der stärker ausgeprägte Anstieg der Toxizität nach ungefähr  $2 \cdot 10^5$  Jahren bei den thoriumbasierten Brennstoffen ist durch den Zerfall des  $^{233}\text{U}$  und dessen Töchter zu erklären. Eine Rezyklierung des Urans und eine anschließende Umsetzung im

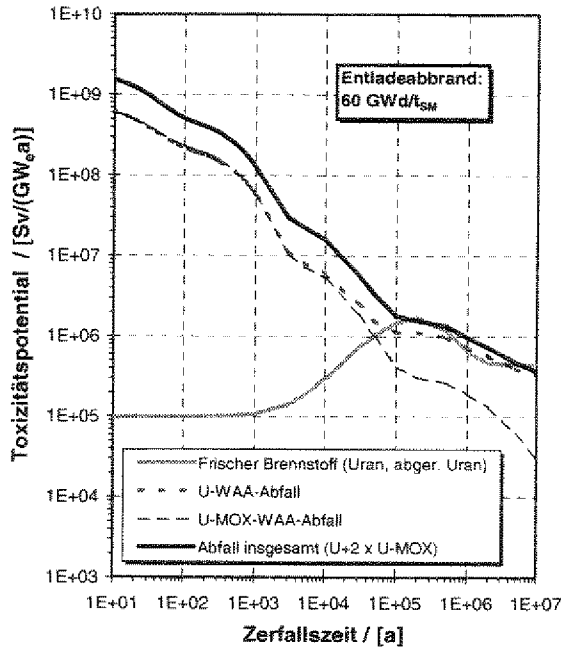


Abb. 8-7: Toxizitätsverläufe bei U-MOX Brennstoff und zweifacher Rezyklierung des Plutoniums mit jeweils 60 GWd/t<sub>SM</sub> Entladeabbrand (Schwermetalle).

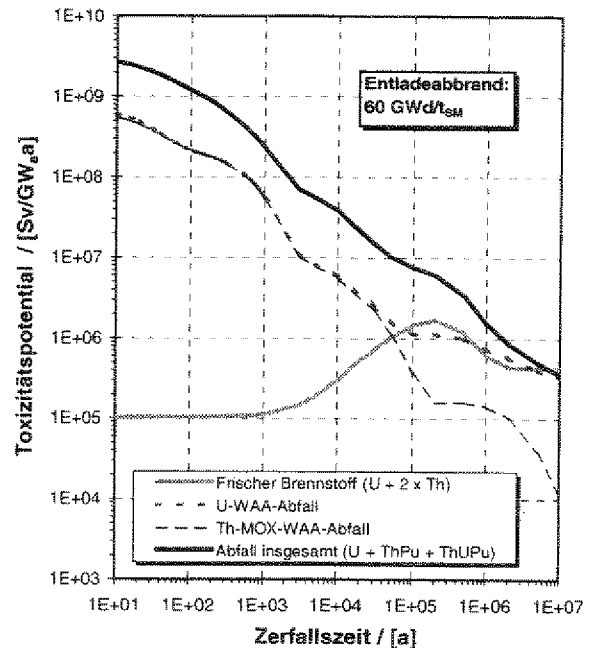


Abb. 8-8: Toxizitätsverläufe bei Th-MOX Brennstoff und zweifacher Rezyklierung des Plutoniums bzw. Uran und Plutoniums mit jeweils 60 GWd/t<sub>SM</sub> Entladeabbrand (Schwermetalle).

Reaktor würde diesen Anstieg vermeiden. Es wird deutlich, daß durch die zweifache Rezyklierung des Plutoniums eine Reduzierung der Toxizität der Abfälle auf minimal 40 % erreicht werden kann. Dies reicht natürlich nicht aus, um die für Jahrhunderttausende um mehrere Größenordnungen höhere Toxizität der abgebrannten Brennstoffe (siehe Abb. 8-7 und Abb. 8-8) verglichen mit der des frischen Uranbrennstoffs nennenswert zu reduzieren.

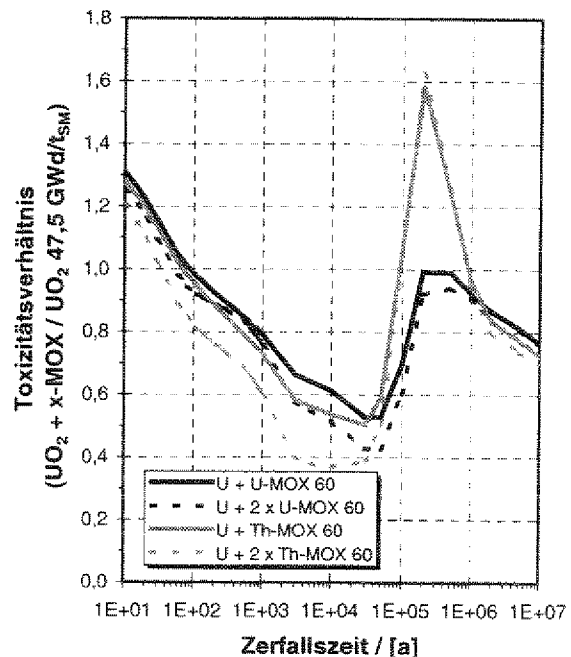


Abb. 8-9: Vergleich der relativen Toxizitätsverläufe von MOX-Brennstoffen bezogen auf den Referenz Uranbrennstoff bei jeweils 60 GWd/t<sub>SM</sub> Entladeabbrand (nur Schwermetalle).

## 9 Wärmefreisetzung des abgebrannten Brennstoffs

### 9.1 Allgemeines

In diesem Kapitel werden die zuvor untersuchten Brennstoffe hinsichtlich ihrer Nachzerfallswärmeleistung im Zeitraum bis 10 Millionen Jahren nach dem Einsatz im Reaktor verglichen. Für die Stabilität einer Endlagerformation ist ein möglichst geringer Wärmeeintrag wünschenswert. Die Kapazität einer Endlagerformation wird unter Umständen durch die eingebrachte Nachwärmeleistung beschränkt, so daß die Endlagerkosten zu einem gewissen Anteil mit der Nachzerfallswärme korrelieren. Die Angaben der Nachzerfallswärmeleistung werden auf die Menge an abgebrannten Brennstoff bezogen, die erforderlich war, um eine elektrische Arbeit von einem GW<sub>e</sub> an Kernenergie zu wandeln. Damit wird die unerwünschte Nachwärmeproduktion auf die zuvor geleistete Nutzarbeit der Brennstoffe bezogen, was in analoger Weise zum Vergleich der Toxizitäten einen objektiven Vergleich liefert. Die Rechnungen wurden mit Hilfe des Programm Moduls ORIGEN-S (siehe Anhang Abschnitt B-1.5) durchgeführt.

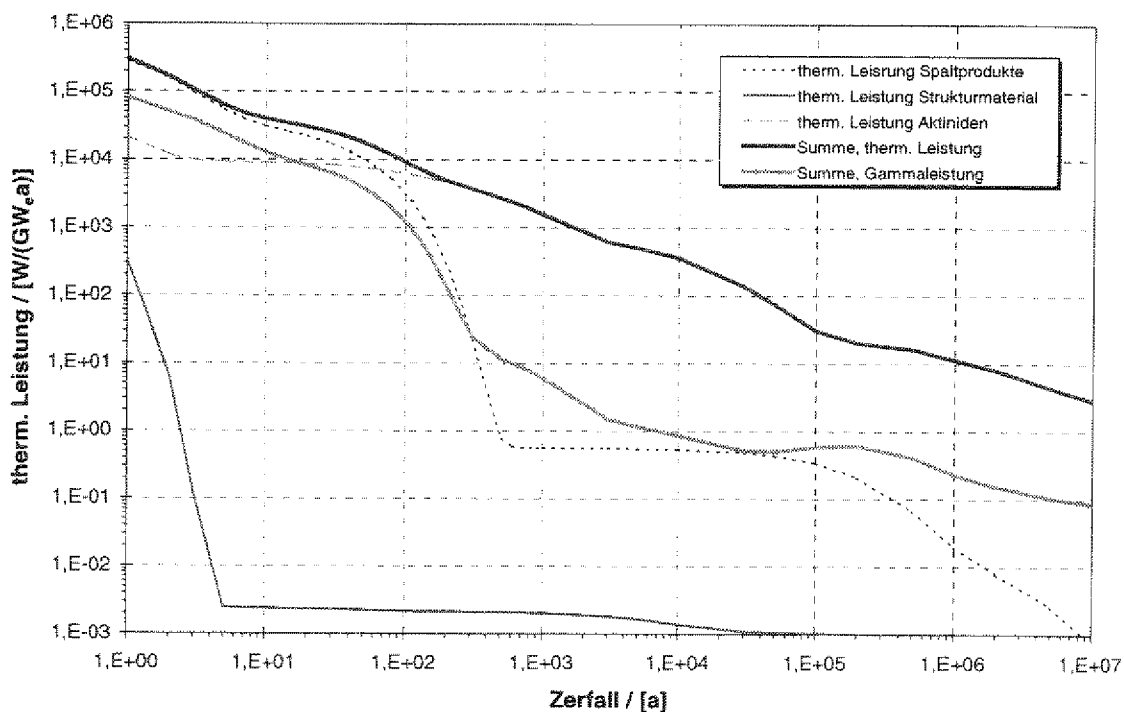
In der **Abb. 9-1** wird die gesamte thermische Leistung und die  $\gamma$ -Leistung der Brennstoffe in Form dicker Linien dargestellt. Die thermische Gesamtleistung wird jeweils noch untergliedert in die thermischen Leistungen der drei Elementgruppen „Strukturmaterialien“, „Actiniden“ und „Spaltprodukte“. Die Nachwärmeproduktion des Brennstoffs liegt tausend Jahre nach der Entladung aus dem Reaktor bereits um eine Größenordnung niedriger als zum Zeitpunkt des geplanten Einbringens des Brennstoffs ins Endlager nach einer oberirdischen Zwischenlagerzeit von z. B. hundert Jahren. In diesem Zeitraum zerfallen die Spaltprodukte weitestgehend. Man erkennt, daß bei allen Brennstoffen die Nachwärmeproduktion nach dieser Zeit fast ausschließlich durch die Actiniden bestimmt wird. Das Wirtsgestein der Endlagerformation kann bei der wärmetechnischen Betrachtung als Wärmespeicher während der von den Spaltprodukten dominierten Phase berücksichtigt werden. In diesem Zeitraum wird ein Teil der Energie durch Erwärmung des Wirtsgesteins im Endlager gespeichert. Erst nach Ablauf dieser Zeit stellt sich lokal im Endlager ein Gleichgewicht zwischen Wärmepro-

duktion der Abfälle und Abführung der Energie durch Wärmeleitung ein. Die Energie die in dieser Gleichgewichtsphase durch radioaktive Zerfälle produziert wird, führt dann nicht mehr zu einer weiteren Erwärmung. Daraus folgt, daß innerhalb dieser Gleichgewichtsphase kein zeitliches Limit für die weitere Wärme-  
produktion existiert.

## 9.2 Nachwärmeproduktion der einzelnen Brennstoffe

### 9.2.1 Uranbrennstoffe mit unterschiedlichem Abbrand

Zu Beginn wird die Nachwärmeproduktion der Uranbrennstoffe berechnet, die einen Entladeabbrand von  $47,5 \text{ GWd/t}_{\text{SM}}$ ,  $60 \text{ GWd/t}_{\text{SM}}$  und  $100 \text{ GWd/t}_{\text{SM}}$  erreichen, um den Einfluß eines höheren Abbrandes zu quantifizieren. Der Uran Brennstoff mit  $47,5 \text{ GWd/t}_{\text{SM}}$  Abbrand wird als Referenzbrennstoff herangezogen, mit dem die Wärmeproduktion der anderen Brennstoffe bzw. Brennstoffkreisläufe verglichen werden. Die **Abb. 9-1** zeigt die Nachwärmeproduktion des mit  $47,5 \text{ GWd/t}_{\text{SM}}$  abgebrannten Uranbrennstoffs. In **Abb. 9-2** werden die Verhältnisse der Wärmeproduktionen der  $60 \text{ GWd/t}_{\text{SM}}$  bzw.  $100 \text{ GWd/t}_{\text{SM}}$  Abbrände im Vergleich zum  $47,5 \text{ GWd/t}_{\text{SM}}$  Abbrand gezeigt. Zusätzlich zu der Normierung über die Menge an Brennstoff, die zur Produktion von einem  $\text{GW}_e\text{a}$  erforderlich ist, ist in **Abb. 9-2** zusätzlich das Verhältnis der Brennelementbündelleistungen dargestellt. Man erkennt, daß die Bündelleistungen zu allen Zeiten mit größer werdendem Ab-



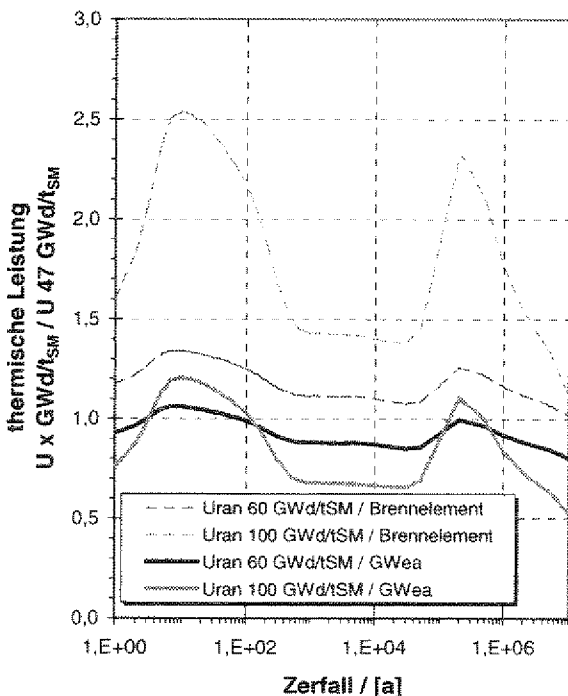
**Abb. 9-1:** Nachzerfallswärme des Uranbrennstoffs mit einem Abbrand von  $47,5 \text{ GWd/t}_{\text{SM}}$  insgesamt und aufgeteilt nach Strukturmaterial, Actiniden und Spaltprodukten, als auch der gesamten  $\gamma$ -Leistung.

brand steigen. Die Nachwärmeleistungen bezogen auf die für eine elektrische Arbeit von einem  $\text{GW}_e$ a erforderliche Brennstoffmenge allerdings liegen je nach Zeitintervall oberhalb oder unterhalb des Niveaus des Referenzbrennstoffs. Geht man von einer oberirdischen Zwischenlagerung von ca. hundert Jahren aus, so hat eine Abbranderhöhung bei Bezug auf die geleistete Nutzarbeit einen positiven Effekt auf die Endlagerung, da sich dadurch die Nachwärmeleistung des Materials verkleinert, das dann in ein Endlager verbracht wird. Der erneute Anstieg nach ca. hundertfünfzigtausend Jahren um 10 % bei einem Abbrand des Uranbrennstoffs mit  $100 \text{ GWd}/t_{\text{SM}}$  ist nicht relevant, da das absolute Niveau der Wärmeleistung zu diesen Zeiten bereits deutlich reduziert ist, wie aus **Abb. 9-1** hervorgeht.

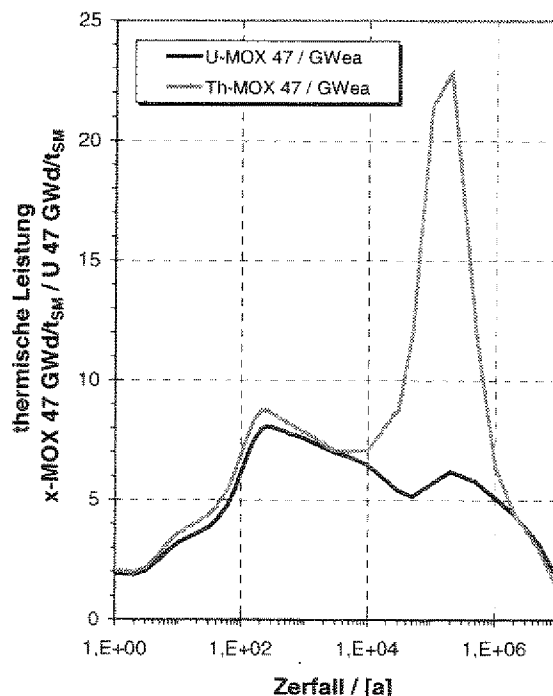
### 9.2.2 Vergleich des Uranbrennstoffs mit U-MOX und Th-MOX

In **Abb. 9-3** wird der Referenzbrennstoff mit den beiden MOX Brennstoffen gleichen Abbrandes verglichen. Dabei erkennt man den Einfluß des Übergangs auf MOX Brennstoffe hinsichtlich der Produktion an Nachzerfallswärme. Für die Einführung des Thorium Kreislaufs von besonderer Bedeutung ist der Vergleich des bereits realisierten U-MOX Brennstoffs zu Th-MOX Brennstoff. Die Nachwärmeproduktion beider MOX Brennstoffe ist ein vielfaches der Produktion des Uranbrennstoffes. Die Werte für den Th-MOX Brennstoffe liegen bis zu einer Million Jahren oberhalb der Werte für den U-MOX Brennstoff.

Besonders auffällig ist ein Anstieg des Verhältnisses der Wärmeproduktion des Th-MOX Brennstoff im Bereich einer Zerfallszeit von zweihunderttausend Jah-



**Abb. 9-2:** Verhältnisse der Nachwärmeproduktion bei Uranbrennstoffen bei einer Steigerung des Abbrandes.



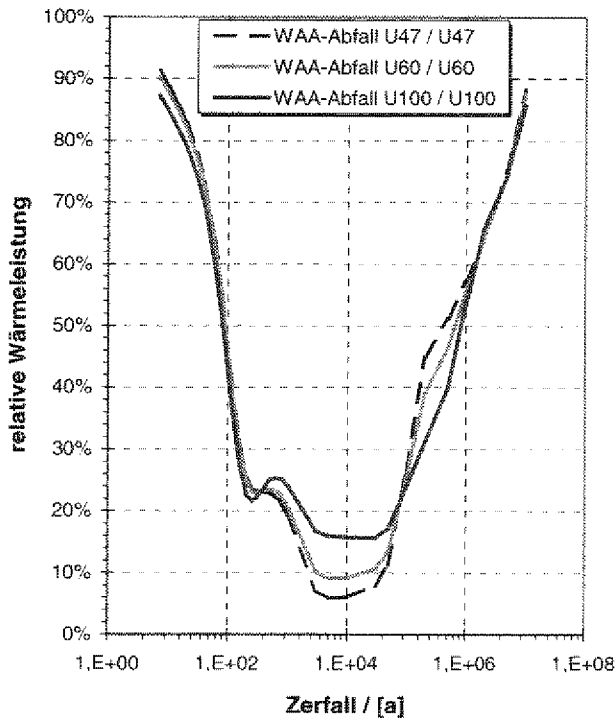
**Abb. 9-3:** Verhältnisse der Nachwärmeproduktion von U-MOX und Th-MOX Brennstoffen mit  $47,5 \text{ GWd}/t_{\text{SM}}$  Abbrand.

ren um einen Faktor von 23 relativ zum Uranbrennstoff. Dies korreliert – ebenso wie der Anstieg der Toxizität in diesem Zeitintervall – mit dem Zerfall des  $^{233}\text{U}$  und der Wärmeproduktion seiner Töchter. Zu diesen Zeiten haben sich innerhalb der Endlagerformation bereits aus wärmetechnischer Sicht lokale Gleichgewichtsverhältnisse eingestellt (siehe Abschnitt 9.1). Im Vergleich zum Beginn des lokalen wärmetechnischen Gleichgewichts nach tausend Jahren ist beim abgebrannten Referenz Uranbrennstoff die Wärmeproduktion nach hundertfünfzigtausend Jahren insgesamt um ca. zwei Größenordnungen gesunken. Die Erhöhung der spezifischen Nachzerfallswärmeleistung um einen Faktor von ca. 23 bei Th-MOX Brennstoffen führt zum Zerfallszeitraum des  $^{233}\text{U}$  lediglich auf eine Leistung von weniger als 25 % derjenigen, wie sie zu Beginn der Gleichgewichtsphase vorhanden war.

Im für die Endlagerung wichtigen Zeitintervall von einigen Jahrzehnten bis zu hundert Jahren (erst dann wird der Brennstoff in ein Endlager verbracht) unterscheiden sich die Th-MOX Brennstoffe nicht sehr von den U-MOX Brennstoffen hinsichtlich ihrer Nachzerfallswärmeproduktion, so daß diese einer Einführung des Thoriumkreislaufs nicht entgegensteht.

### 9.3 Spezifische Nachwärmeproduktion des zweistufigen Brennstoffkreislaufes

Bei der Betrachtung des zweistufigen Brennstoffzyklus müssen alle Stoffströme, die zur Endlagerung vorgesehen werden, berücksichtigt werden. Dabei fallen neben dem wärmeerzeugenden Abfall des jeweils untersuchten MOX Brennstoffes auch die Wiederaufarbeitungsverluste der vorgeschalteten mit Uranbrennstoff betriebenen Reaktoren an. In den Wiederaufarbeitungsverlusten enthalten ist der gesamte HAW mit Ausnahme der Plutoniumfraktion, die mit 99,9 % rezykliert wird. Für den jeweiligen Brennstoff wird bei der Bilanzierung die Zahl der benötigten Uransysteme berücksichtigt, die erforderlich ist, um eine entsprechende Menge an Plutonium zu erbrüten um Kritikalität während des Abbrandes der MOX Brennstoffe zu gewährleisten (vgl. Abschnitt 8.2). Da die Wiederaufarbeitung erst nach einer Abklingzeit von sieben Jahren erfolgt, ist eine Betrachtung der Nachwärmeproduktion der Wiederaufarbeitungsverluste auch erst für Zerfallszeiten von größer sieben Jahren sinnvoll. Die **Abb. 9-4** zeigt den Anteil, auf den sich die Nachwärmeproduktion der Wiederaufarbeitungsverluste im Vergleich zu den abgebrannten Uranbrennstoffen verringert. Man erkennt eine deutliche Reduktion für mittlere Zerfallszeiten, bei denen das Plutonium noch vorhanden ist, die Spaltprodukte aber weitgehend zerfallen sind. Ein objektiver Vergleich ist durch die Rezyklierung pro Brennelement nicht mehr sinnvoll, so daß die Nachwärmeleistungen der Brennstoffkreisläufe auf die Masse Schwermetall normiert werden, die erforderlich ist, um eine Arbeit von einem  $\text{GW}_a$  aus Kernenergie zu wandeln.



**Abb. 9-4:** Reduzierung der Nachwärmeleistung durch Abtrennung von 99,9 % der Pu-Fraktion bei abgebrannten Uranbrennstoffen.

Da die Kombination von Uranbrennstoffen und MOX Brennstoffen mit jeweils einem Abbrand von  $60 \text{ GWd/t}_{\text{SM}}$  nach den Rechnungen aus Abschnitt 6.4 ein adäquates Sicherheitsverhalten aufweisen, werden diese für den Vergleich der Nachzerfallsleistungen herangezogen. Um einen Reaktor mit U-MOX Brennstoff betrieben zu können, müssen 11,7 mal so viele Uranreaktoren betrieben werden um ausreichend Plutonium zu erbrüten. Dieser Faktor erhöht sich im Fall des Th-MOX Brennstoffes auf 13,6. Die Wärmeleistung des Abfalls aus den gesamten Brennstoffkreisläufen (Uran mit  $60 \text{ GWd/t}_{\text{SM}}$  und U-MOX bzw. Th-MOX mit ebenfalls jeweils  $60 \text{ GWd/t}_{\text{SM}}$ ) bezogen auf die Schwermetallmasse die für eine gewandelte Arbeit von einem  $\text{GW}_e\text{a}$  er-

forderlich war, ist für die beiden Zyklen in **Abb. 9-5** und **Abb. 9-6** gezeigt. Nennenswerte Unterschiede zwischen den beiden MOX Brennstoffen bestehen hinsichtlich der Nachwärmeproduktion ihres Abfalls nicht. Beide Zyklen sind auf Grund der hohen Anzahl an Uransystemen, die erforderlich sind, um ausreichend Plutonium zu generieren, stark durch die Wärmeleistung des WAA-Abfalls bestimmt. Bei Verwendung des U-MOX Brennstoffs erkennt man abnehmende Wärmeleistungen im Zeitintervall ca. tausend bis hunderttausend Jahren. In diesem Bereich zerfallen die Plutonium Isotope, von denen durch die Plutonium Rezyklierung netto weniger ins Endlager verbracht werden müssen. Für den Th-MOX Brennstoff erkennt man eine Abnahme der Nachzerfallsleistung nur bis zu ca. hunderttausend Jahren. Anschließend wird durch den Zerfall des  $^{233}\text{U}$  im Zeitintervall von hundert bis zweihunderttausend Jahren trotz reduzierten Plutoniuminventars im abgebrannten Th-MOX Brennstoff im Vergleich zum U-MOX Brennstoff eine größere Nachzerfallsleistung erreicht.

Die Unterschiede zwischen dem U-MOX und dem Th-MOX Zyklus werden in **Abb. 9-7** deutlich, in der die Wärmeleistungen der Brennstoffzyklen auf die des Referenz Uranbrennstoffs mit  $47,5 \text{ GWd/t}_{\text{SM}}$  Abbrand bezogen werden. Man erkennt deutlich die reduzierten Wärmeleistungen während dem ersten Teil der Plutoniumphase. Während die Wärmeleistung des U-MOX Zyklus das Niveau der Zerfallsleistung des Referenzbrennstoffs nie erreicht, kommt es bei dem Th-MOX Zyklus nach hundert- bis zweihunderttausend Jahren zu einer maximalen Verdopplung. Bei der singulären Betrachtung des Th-MOX Brennstoffs wurde

bereits dargelegt, daß dies unproblematisch wegen des niedrigen absoluten Niveaus der Wärmeproduktion in diesem Zeitintervall unproblematisch ist. Hinsichtlich der Nachwärmeproduktion ergeben sich deshalb bei Einführung des zweistufigen Thoriumbrennstoffkreislaufes keine Probleme.

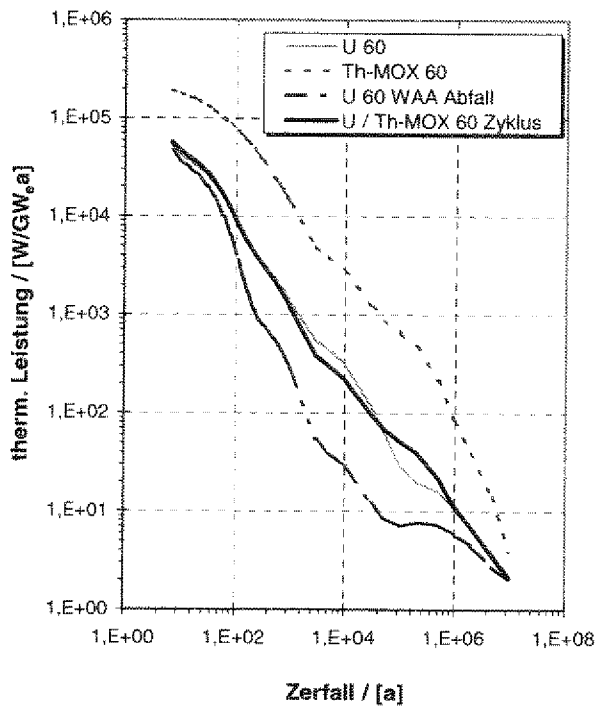
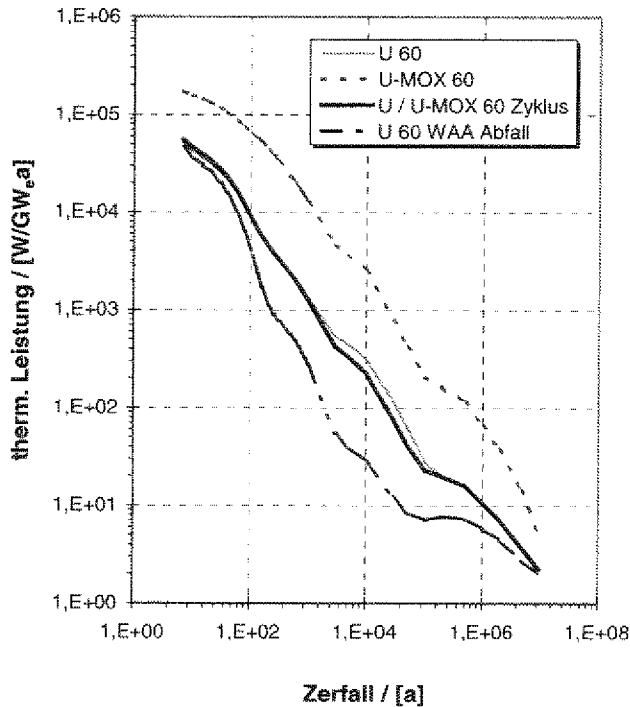


Abb. 9-5: Spezifische Nachwärmeproduktion des U-MOX Zyklus und dessen Komponenten.

Abb. 9-6: Spezifische Nachwärmeproduktion des Th-MOX Zyklus und dessen Komponenten.

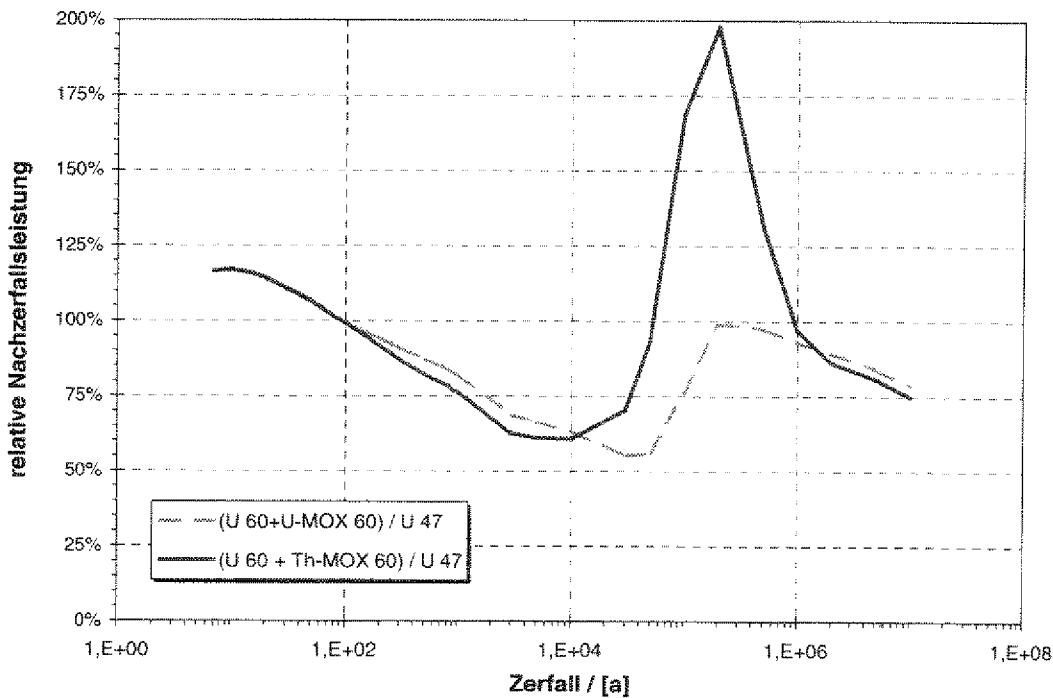


Abb. 9-7: Vergleich der Nachwärmeproduktion der U-MOX bzw. Th-MOX Brennstoffkreisläufe mit 60 GWd/t<sub>SM</sub> Abbrand mit dem Uranbrennstoff mit einem Abbrand von 47,5 GWd/t<sub>SM</sub>.

### 9.4 Betrachtung der zweiten MOX Stufe

Aus Gründen der nuklearen Stabilität ist es nur sinnvoll bei Nutzung der zweiten MOX Stufe den Abbrand der Uransysteme auf  $47,5 \text{ GWd}/t_{SM}$  zu reduzieren. Dadurch ist der erbrütete Plutoniumvektor günstiger für die Spaltung in thermischen Neutronenspektren. Die Struktur der Brennstoffkreisläufe ist dann jeweils der folgende:

- Uran ( $47,5 \text{ GWd}/t_{SM}$ ) / U-MOX ( $60 \text{ GWd}/t_{SM}$ ) / U-MOX ( $60 \text{ GWd}/t_{SM}$ ) für uranbasierte Brennstoffe bei ausschließlicher Rezyklierung des Plutoniums und
- Uran ( $47,5 \text{ GWd}/t_{SM}$ ) / Th-MOX ( $60 \text{ GWd}/t_{SM}$ ) / Th-MOX ( $60 \text{ GWd}/t_{SM}$ ) für thoriumbasierte Brennstoffe. Bei diesem Zyklus wird bei der Rezyklierung des abgebrannten Brennstoffs der ersten Th-MOX Stufe neben dem Plutonium auch das Uran rezykliert, um Kredit von den großen Spaltwirkungsquerschnitten des erbrüteten  $^{233}\text{U}$  zu nehmen. Diese Vorgehensweise reduziert den Plutonium Gehalt der zum Start des zweifach rezyklierten Brennstoff erforderlich ist von 36,2 % auf 13,0 % (vgl. Abschnitt 6.5).

Um alle Abfallströme zu erfassen, muß die Betrachtung auf die Wiederaufarbei-

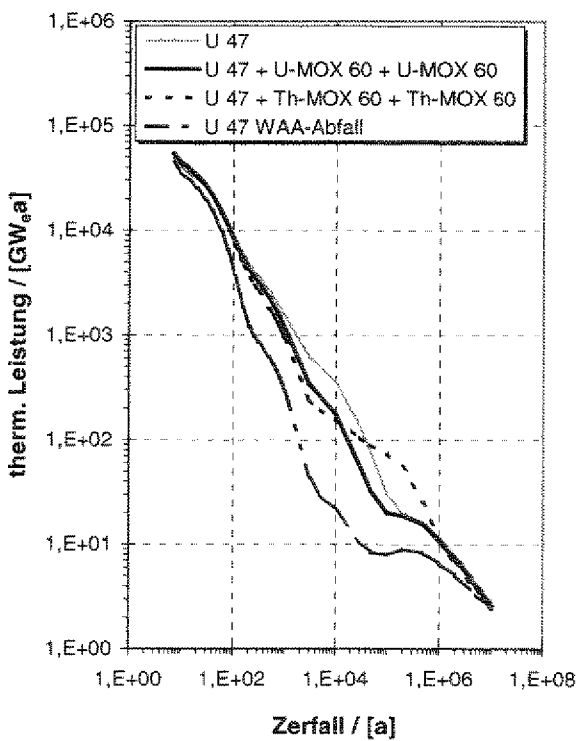


Abb. 9-8: Spezifische Nachwärmeproduktion der zweistufigen U-MOX und Th-MOX Zyklen und des Uranreferenzbrennstoffs.

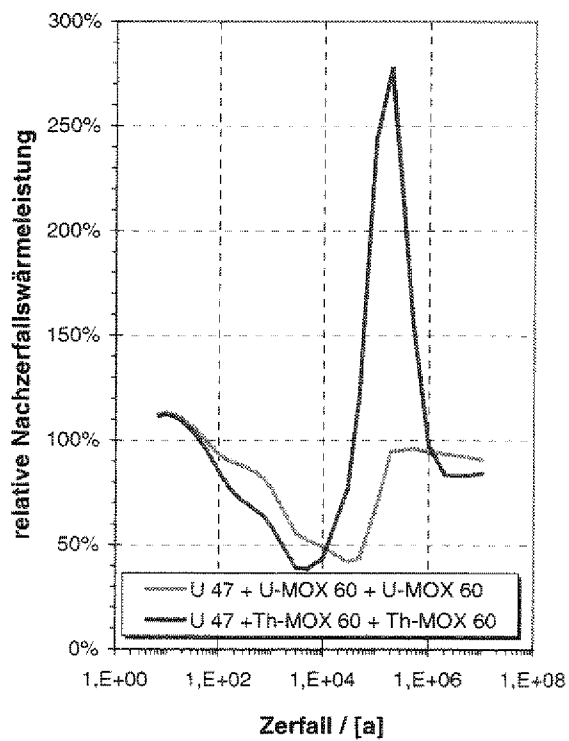


Abb. 9-9: Vergleich der Nachwärmeproduktion der U-MOX bzw. Th-MOX Brennstoffkreisläufe mit  $60 \text{ GWd}/t_{SM}$  Abbrand mit dem Uranbrennstoff mit einem Abbrand von  $47,5 \text{ GWd}/t_{SM}$ .

tungsabfälle der ersten MOX Stufe erweitert werden. Dabei wird wieder ein Zerfall des abgebrannten MOX Brennstoffes von sieben Jahren und eine anschließende Abtrennung der Plutoniumfraktion zu 99,9 % unterstellt. In **Abb. 9-8** ist die thermische Nachzerfallsleistung beider Brennstoffzyklen gezeigt. Zum Vergleich sind die Leistungen des mit  $47,5 \text{ GWd}/t_{\text{SM}}$  abgebrannten Uranbrennstoffs und dessen WAA Abfall gezeigt. Alle Leistungen werden auf die Masse an Schwermetall bezogen, die erforderlich war, um eine Arbeit von einem  $\text{GW}_e\text{a}$  zu wandeln. Wie auch bereits beim Brennstoffzyklus mit einfacher MOX Rezyklisierung festzustellen ist, ist auch der zweistufige Brennstoff stark durch die WAA Abfälle des Urans geprägt. Auch hier erkennt man eine verringerte Nachwärmeleistung in dem Zeitbereich, in dem das Plutonium zerfällt. Diese Reduzierung korreliert mit der durch die Rezyklierungen verringerten endzulagernden Plutoniummasse pro  $\text{GW}_e\text{a}$  gewandelter Arbeit. Im Fall des thoriumbasierten zweistufigen Zyklus reduziert kehrt sich diese Verringerung durch den Zerfall des erbrüteten Urans (insbesondere  $^{233}\text{U}$ ) um. Ein Vergleich der beiden Zyklen liefert die **Abb. 9-9**. Die relative Erhöhung der Zerfallsleistung zwischen hundert- und zweihunderttausend Jahren ist nicht von Bedeutung, da dann das Leistungs-niveau insgesamt sehr niedrig ist.

Bei allen untersuchten Brennstoffkreisläufen bestehen keine nennenswerten Änderungen hinsichtlich der Nachwärmeproduktion bei einem Übergang von Uran zu thoriumbasierten Systemen. Die Entsorgungseigenschaften werden hinsichtlich der Nachwärmeproduktion nicht tangiert.

## 10 Proliferationsaspekte

### 10.1 Allgemeines

Neben der Beurteilung der Potentiale des Thoriumbrennstoffkreislaufs an Hand von erreichbaren Umsatzraten von Plutonium und Transuranelementen und der damit einhergehenden Reduzierung an Toxizitätspotentialen müssen auch die Proliferationsaspekte mit in die Betrachtung einbezogen werden. Dabei müssen alle Stufen des Brennstoffkreislaufes betrachtet werden, insbesondere

- die Herstellung der treibenden Plutonium-Brennstofffraktion,
- die Stoffströme, die bei der Wiederaufarbeitung des Materials der abgebrannten Brennstoffe der ersten Rezyklierung für einen eventuellen weiteren Einsatz im Reaktor auftreten
- und die potentiellen Möglichkeiten durch Veränderungen des Abbrandes während des Einsatzes im Reaktor den Brennstoff „Proliferationstauglicher“ zu machen.

Ein Brennstoff ist nur dann proliferationsfähig, wenn eine „kleine“ kritische Masse erreichbar wird. Unter Umständen sind aber auch Brennstoffe trotz relativ kleiner Massen weitgehend „proliferationssicher“, wenn sie Eigenschaften haben, die ihre Detektion erleichtern und deren Handhabung bzw. Bearbeitung erschweren. In folgenden Abschnitten wird der Th-MOX Brennstoff daraufhin diskutiert.

### 10.2 Plutonium für die MOX Brennstoffe der ersten Stufe

Der frische Th-MOX Brennstoff besteht, wie in Kapitel 6 beschrieben wurde aus dem Basismaterial  $^{232}\text{Th}$  und einem Plutoniumanteil, der aus der Wiederaufarbeitung von abgebranntem Uranbrennstoff erbrütet wurde. An dieser Stelle bestehen hinsichtlich der Proliferationsfähigkeit keine Unterschiede zu dem bisher

etablierten U-MOX Zyklus. Aus Gründen der Vergleichbarkeit, werden dennoch die die Proliferation charakterisierenden Eckdaten nach /Mag\_98/ zitiert. Ein Brennelementbündel des N4 das mit Uranbrennstoff bis 47,5 GWd/t<sub>SM</sub> abgebrannt wurde, enthält insgesamt eine Plutonium Masse von 50,2 kg. Die minimale kritische Plutoniummasse ist bei der gegebenen Isotopenzusammensetzung 11,9 kg. Diese kritische Masse setzt eine Wärmeleistung von 217 W frei und hat eine Neutronenemissionsrate von 6,7\*10<sup>6</sup> 1/s. Es ist also pro abgebranntem Brennelement das 4,2-fache dieser kritischen Masse enthalten. Die Werte für das Reaktorplutonium für Wärmeleistung und Neutronenemission liegen damit zwar um einer Größenordnung über den Werten für Waffenplutonium, was die Handhabung des Materials erschwert, dennoch können auch hier die Aspekte einer Proliferation nicht vernachlässigt werden.

### 10.3 Abgebrannter Brennstoff der ersten MOX Stufe

#### 10.3.1 Vergleich der Proliferationspotentiale

Von den untersuchten Brennstoffen werden als Referenz zum Vergleich der beiden Brennstoffkreisläufe hinsichtlich der Proliferationsaspekte die U-MOX und Th-MOX Elemente mit einem Entladeabbrand von 60 GWd/t<sub>SM</sub> herangezogen, die mit obigem Plutoniumvektor gestartet werden. Um Kritikalität bis zum Erreichen der Entladeabbrandes zu gewährleisten, ist ein anfänglicher Plutoniumgehalt von ca. 13 % bei U-MOX bzw. 15 % bei Th-MOX erforderlich. Die Zusammensetzung der abgebrannten Brennstoffe ist in Abschnitt 6.3, **Tab. 6-6** und **Tab. 6-7** zu finden. Trotz des höheren anfänglichen Plutoniumgehalts enthalten die abgebrannten Th-MOX Brennelemente weniger Plutonium als die abgebrannten U-MOX Elemente.

Die für die Proliferation relevanten Parameter der Brennstoffe faßt die **Tab. 10-1** als Vergleich zusammen. Die Parameter für den Restplutoniumanteil im Fall des thoriumbasierten Brennstoffs zeigen eine deutlich schlechtere Eignung zur Proliferation als die des U-MOX Brennstoffs und insbesondere als die des Uranbrennstoffs. Bei dieser Betrachtung fehlt die Analyse der Proliferati-

**Tab. 10-1:** Vergleich des in den abgebrannten MOX Brennstoffen der ersten Rezyklierung enthaltenen Plutoniums mit dem im Uransystem erbrüteten Plutonium hinsichtlich dessen Eignung zu Proliferationszwecken nach /Mag 98/.

Brennstoff	Uran	U-MOX	Th-MOX
Entladeabbrand / [GWd/t <sub>SM</sub> ]	47,5	60	60
Kritische Masse / [kg]	11,9	13,9	15,6
Wärmeleistung / [W]	217	493	662
Neutronenemissionsrate / [Neutronen/s]	6,7E+6	1,2E+7	1,6E+7
Anz. an kritischen Massen / BE	4,2	3,2	2,6

onstauglichkeit der erbrüteten Uranfraktion bei Nutzung des Th-MOX Brennstoffs. So ist bei dem betrachteten Referenzbrennstoff von einem Urananteil von ca. 1,7 % auszugehen, was einer Masse von ca. 8 kg pro Brennelement entspricht. Die Isotopenverteilung innerhalb der Uranfraktion ist in Tab. 10-2 gezeigt. Für diese Uranfraktion hat /Mag 98/ ebenfalls die charakteristischen Größen zur Beurteilung der Proliferationsfähigkeit bestimmt. Die kritische Masse liegt bei 18,7 kg, die Wärmeleistung dieser kritischen Masse ist mit 59 W sehr gering, ebenso wie die Neutronenemissionsrate von 19 Neutronen je Sekunde. Das pro Brennelement nur 43 % der kritischen Masse enthalten sind, kann die hohe Proliferationsgefahr bedingt durch die geringe Wärmeleistung und die praktisch nicht vorhandene Neutronenemission bei weitem nicht kompensieren.

Tab. 10-2: Uranvektor im abgebrannten Th-MOX Brennstoff.

Isotop	Rel. Anteil
U-232	0,41 %
U-233	87,5 %
U-234	9,8 %
U-235	1,9 %
U-236	0,40 %
U-238	0,00 %

In Abb. 10-1 ist die unabgeschirmte Gamma-Dosisleistung in einem Abstand von einem Meter von der kritischen Masse als Funktion der Zeit gezeigt. Hier wird das größte Hindernis zur Nutzung der erbrüteten Uranfraktion zu Proliferationszwecken liegen, denn man erkennt eine mit der Zeit stark ansteigende Gamma-Dosisleistung, die das Handling deutlich erschweren wird. Die Lebensaltersdosis von 0,3 Sv für beruflich strahlenexponierte Personen (Kategorie A) wird für 100 Tage altes Material in weniger als 30 Minuten erreicht. Nach weiterer Erhöhung der Zerfallszeit steigt dieser Wert nach 3 Jahren nochmals um eine Größenordnung an. Entsprechend müsste die Verarbeitung des Materials unter Ab-

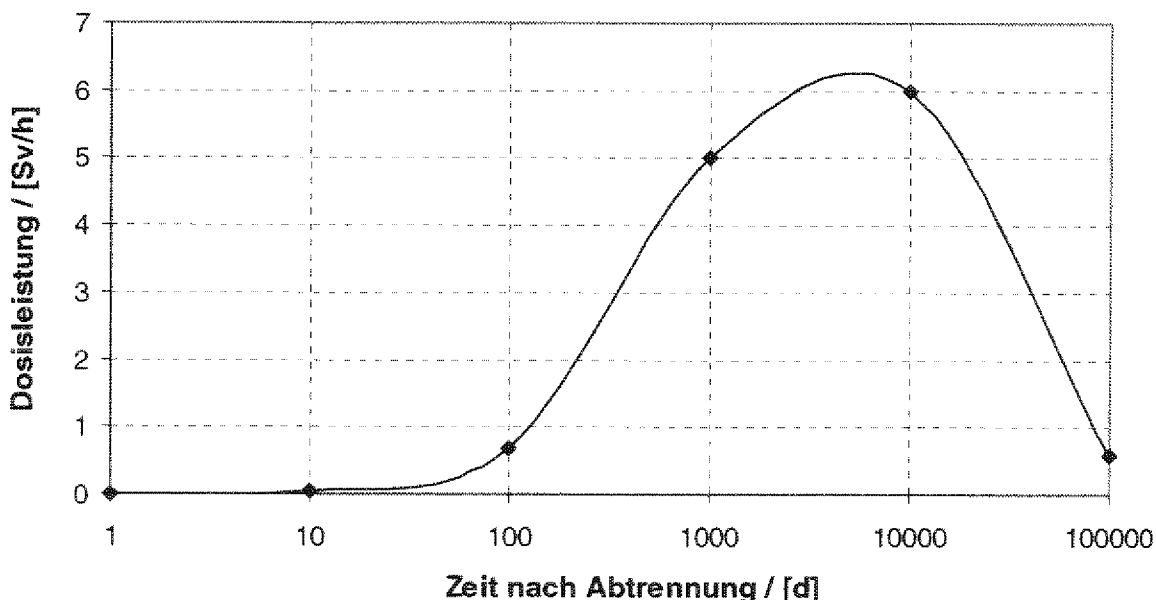


Abb. 10-1: Zeitlicher Verlauf der Gamma-Dosisleistung in einem Meter Abstand von der kritischen Masse des im Th-MOX Brennstoff erbrüteten Urans nach /Mag 98/.

schirmung erfolgen. Die Dosisleistung fällt nach einigen Jahrhunderten wieder ab, wodurch die Handhabung und Bearbeitung der kritischen Masse wieder erleichtert werden. Der Vernichtung an Plutonium steht auf der Th-MOX Seite demnach die Erzeugung von neuem waffenfähigem Uran gegenüber, welches jedoch durch die stark  $\gamma$ -aktiven Töchter des  $^{232}\text{U}$  zunächst nur unter starker Abschirmung verarbeitet werden kann.

### 10.3.2 Variation des Abbrandes

Um einen konservativen Vergleich der Proliferationsrisiken des Th-MOX Brennstoffs sicherzustellen, ist es erforderlich auch Variationen des Abbrandes der Th-MOX Brennstoffe zu betrachten, die eventuell zu einer Optimierung des Brennstoffs zur Erzeugung von waffentauglichem Material führen können. Durch dieses Vorgehen wird berücksichtigt, daß der Betreiber einer Reaktoranlage theoretisch den Brennstoff nicht bis zum geplanten Entladeabbrand im Reaktor einsetzen muß, sondern falls kleinere Abbrände für die Proliferation günstiger sind, auch diese realisiert werden können. Hier darf allerdings nicht vernachlässigt werden, daß ein Brennelementwechsel bei einem Druckwasserreaktor sehr aufwendig ist und nicht während des Betriebs erfolgen kann. Dementsprechend gut sind die Überwachungsmöglichkeiten, was bei der Einschätzung der Risiken berücksichtigt werden muß.

Für sehr kleine Abbrände ist der Anteil an erbrütetem spaltbarem Material ungefähr proportional zum Abbrand. Für sehr große Abbrände wird sich ein Gleichgewicht zwischen Brutrate an neuem spaltbarem Material und in situ Spaltungen dieses Materials einstellen, so daß für die in Frage kommenden Nuklide sich ebenfalls eine nahezu konstante Konzentration einstellen wird, siehe auch /Mag 97/. Ein darüber hinausgehender Einsatz der Brennstoffe im Reaktor macht nach Proliferationsgesichtspunkten keinen Sinn, da sich die Summe an spaltbarem Material nicht weiter erhöht und die Vermischung mit anderem (nicht gut spaltbaren) Isotopen zunimmt. Dies führt damit automatisch zu einer Vergrößerung der minimalen kritischen Masse. Für die Gleichgewichtskonzentrationen an den im Mittelpunkt stehenden Nukliden  $^{239}\text{Pu}$  bei U-MOX und  $^{233}\text{U}$  bei Th-MOX können die in Gl. 10-1 und Gl. 10-2 skizzierten Zusammenhänge angenommen werden. Dabei fällt bei beiden MOX Brennstoffen den Mutternukliden  $^{239}\text{Np}$  (U-MOX) und  $^{233}\text{Pa}$  (Th-MOX) eine Schlüsselrolle zu.

$$\text{Gl. 10-1} \quad \begin{aligned} {}^{239}\text{Np}(t \rightarrow \infty) &= \frac{\sigma_{n,\gamma}^{\text{U}238} \Phi}{\lambda_{\text{Np}239} + \sigma_a^{\text{Np}239} \Phi} \\ {}^{239}\text{Pu}(t \rightarrow \infty) &= \frac{{}^{239}\text{Np}(t \rightarrow \infty) \lambda_{\text{Np}239}}{\sigma_a^{\text{Pu}239} \Phi} \end{aligned}$$

$$\text{Gl. 10-2} \quad \begin{aligned} {}^{233}\text{Pa}(t \rightarrow \infty) &= \frac{\sigma_{n,\gamma}^{\text{Th}232} \Phi}{\lambda_{\text{Pa}233} + \sigma_a^{\text{Pa}233} \Phi} \\ {}^{233}\text{U}(t \rightarrow \infty) &= \frac{{}^{233}\text{Pa}(t \rightarrow \infty) \lambda_{\text{Pa}233}}{\sigma_a^{\text{U}233} \Phi} \end{aligned}$$

Die unmittelbar aus den (n, $\gamma$ )-Reaktionen in den Nukliden  $^{238}\text{U}$  und  $^{232}\text{Th}$  entstehenden Nuklide  $^{239}\text{U}$  respektive  $^{233}\text{Th}$  haben wegen ihrer sehr kurzen Halbwertszeiten keine Bedeutung für den Aufbau der proliferationsrelevanten Nuklide. /Mag 97/ gibt für den Zeitraum bis zum Erreichen der Gleichgewichtskonzentration für  $^{239}\text{Pu}$  bei einem Fluß von  $10^{14}$   $1/(\text{cm}^2\text{s})$  mit ca. 150 Jahren an. Dieser Punkt liegt somit nicht im Bereich der realisierbaren Abbrände, so daß der Entladeabbrand, für den die Brennelemente dimensioniert sind, die konservative Grenze für die Proliferationstauglichkeit ist. Diese Schlußfolgerung gilt auch für den Thoriumzyklus und das Nuklid  $^{233}\text{U}$ . Eine Abschätzung der Gleichgewichtskonzentration bei einem Neutronenfluß von  $10^{14}$  und mit von SCALE 4.2 /ORN 93/ bestimmten Wirkungsquerschnitten für den Th-MOX Brennstoff führt nach Gl. 10-2 auf einen  $^{233}\text{U}$  Gleichgewichtsanteil von 2,3 %. Die berechneten  $^{233}\text{U}$  Gehalte sind aber lediglich 1,5 % bei einem Abbrand von 60  $\text{GWd}/t_{\text{SM}}$  und 1,8 % bei einem Anteil von 100  $\text{GWd}/t_{\text{SM}}$ , so daß auch hier der maximale  $^{233}\text{U}$  Gehalt im Thoriumzyklus bei Erreichen des Entladeabbrandes vorliegt.

### 10.3.3 Reduzierungsmöglichkeit des Proliferationspotentials der Uranfraktion

Um das Proliferationspotential der bei thoriumbasierten Brennstoffen erbrüteten Uranfraktion zu reduzieren, könnte man dem frischen Brennstoff abgereichertes Uran beimischen. Da der Anteil von Uran im abgebrannten Th-MOX Brennstoff lediglich 1,7 % beträgt, würde eine Beimischung aus einigen Prozent abgereichertem Uran am frischen MOX Brennstoff den Anteil der spaltbaren Uranisotope  $^{233}\text{U}$  und  $^{235}\text{U}$  in der erbrüteten Uranfraktion drastisch reduzieren. Dies führt zu einer erforderlichen größeren kritischen Masse und damit zu einer Steigerung des Trennaufwandes und zu einer weiteren Steigerung der Gamma-Dosen während der Handhabung des Materials. Das bei einem solchen Vorgehen vorhandene  $^{238}\text{U}$  hat natürlich negative Auswirkungen auf die Plutonium Umsatzraten, da aus ihm ein Teil neues  $^{239}\text{Pu}$  gebildet wird. Die  $^{238}\text{U}$  Konzentrationen sind aber nicht mit denen bei U-MOX Brennstoffen vergleichbar, so daß dieser Einfluß als gering eingeschätzt werden kann.

### 10.3.4 Grenzen dieses Vorgehens

Es ist mit dem Ziel der Erzeugung von hochgradig waffenfähigem Material ein alternativer Weg denkbar, bei dem die beiden spaltbaren Isotope  $^{239}\text{Pu}$  und  $^{233}\text{U}$  sogar in nahezu reiner Form anfallen. Die in Abschnitt 10.3.3 geschilderte Möglichkeit, der Verdünnung des  $^{233}\text{U}$  durch  $^{238}\text{U}$  wird bei einem im folgenden beschriebenen Vorgehen umgangen. Die Bestrahlung des Th-MOX Brennstoffs wird nur solange fortgeführt, bis sich die  $^{239}\text{Np}$  bzw.  $^{233}\text{Pa}$  Konzentrationen auf einem konstanten Niveau befinden. Anschließend wird die Bestrahlung gestoppt und das Neptunium respektive das Protactinium bei einer Wiederaufarbeitung auf chemischem Wege von den üblichen Brennstoffen getrennt. Nach ca. zehn Halbwertszeiten sind die beiden wichtigen Isotope  $^{239}\text{Np}$  und  $^{233}\text{Pa}$ , deren Anteil am jeweiligen Element fast 100 % ist, vollständig zerfallen und man erhält quasi

reines  $^{239}\text{Pu}$  bzw.  $^{233}\text{U}$ . Der wesentliche Unterschied der beiden Brennstoffzyklen (U-MOX / Th-MOX) liegt hier in den unterschiedlichen Halbwertszeiten. Das  $^{233}\text{Pa}$  zerfällt mit einer Halbwertszeit von 27 Tagen ungefähr 11,5 mal langsamer als das  $^{239}\text{Np}$ . Die Konsequenz ist einerseits eine längere Wartezeit, bis das  $^{233}\text{U}$  entstanden ist, was aber an sich kein Proliferationshindernis darstellt. Allerdings erleichtert die Tatsache, daß die vom Abschalten des Reaktors bis zur Wiederaufarbeitung zur Verfügung stehende Zeit um eine Größenordnung höher ist, die Herstellung von hoch reinem  $^{233}\text{U}$  deutlich, was an dieser Stelle als Nachteil des Thoriumkreislaufs in Bezug auf die Proliferationssicherheit gewertet werden muß. Durch die größere Halbwertszeit erhöht sich sogar noch die Gleichgewichtskonzentration des  $^{233}\text{Pa}$ , wie aus Gl. 10-2 entnommen werden kann, was die Menge Uran, die pro Bestrahlungszyklus auf dem beschriebenen Weg gewonnen werden könnte, erhöht. Ebenfalls negative Effekte auf die Proliferationssicherheit hat die Tatsache, daß man auf diesem Weg den Anteil an  $^{232}\text{U}$  reduziert, welches hauptsächlich für die hohen Dosisleistungen verantwortlich ist. Trotzdem erschwert dieses Verfahren die Proliferation, da ein häufiges Abfahren des Reaktors leicht zu prüfen ist, wie in Abschnitt 10.3.2 bereits erläutert wurde.

## 11 Zusammenfassung und Ausblick

### 11.1 Grundlagen

Nach Energieprognosen ist ein weiterer Anstieg des Primärenergiebedarfs der Welt zu erwarten, der auch eine Vervielfachung der heute installierten nuklearen Kraftwerksleistung nach sich ziehen wird. Um die Einwirkungen der verstärkten Nutzung der Kernenergie auf die Umwelt weltweit möglichst gering zu halten, sollten einerseits Reaktoren mit einem möglichst hohen Sicherheitsniveau betrieben werden und andererseits die Toxizität der Stoffe, die ins Endlager verbracht werden müssen, möglichst gering sein und möglichst schnell abklingen.

Bei den bisherigen Brennstoffzyklen werden neben den Spaltprodukten auch noch die erbrüteten Minor Actinides (MA) zu 100 % und große Mengen an Plutonium zur Endlagerung in geologischen Formationen vorgesehen. Eine Rezyklisierung dieser Minor Actinides und des Plutoniums bis zur völligen Vernichtung würde die Toxizität der abgebrannten Brennstoffe bereits nach ca. tausend Jahren unter das Niveau des frischen Brennstoffs abklingen lassen und unter diesem Gesichtspunkt die Nutzung der Kernenergie ökologisch neutral machen. Neben dem hier untersuchten Druckwasserreaktor können auch andere Reaktoren mit z. B. härteren Neutronenspektren oder beschleunigergetriebene Anlagen zur Umwandlung der Transuranelemente eingesetzt werden. Die verschiedenen Reaktoren weisen für die einzelnen Nuklide in Bezug auf den Druckwasserreaktor andere Umsatzraten auf und können sich gegebenenfalls ergänzen.

Um ein Erbrüten von neuem Plutonium weitestgehend zu verhindern, muß das Nuklid  $^{238}\text{U}$  von welchem die Brutreaktionen des Plutoniums ausgehen durch ein neutronisch ähnliches Nuklid ersetzt werden. Ein solches Nuklid ist das  $^{232}\text{Th}$ , das in Verbindung mit einem Spaltstoff in den Druckwasserreaktor eingesetzt werden könnte. Durch den  $^{232}\text{Th}$  Einsatz wird das Erbrüten von Plutonium verhindert, wenn als Spaltstoff hochangereichertes Uran verwendet wird. Daraus resultieren sehr kleine Transuraninventare im abgebrannten Brennstoff. Alter-

nativ kann als Spaltstoff auch aus Uransystemen erbrütetes Plutonium verwendet werden, welches zu einem großen Teil transmutiert wird.

Thorium wurde bereits seit Beginn der Entwicklung der friedlichen Nutzung der Kernenergie auf seine Eignung als Reaktorwerkstoff untersucht. Damals waren Überlegungen, Thorium als Brutmaterial zu nutzen und auf diese Weise die Reichweite an spaltbarem Material zu verlängern, ausschlaggebend für das Engagement. Dabei wurde die Realisierbarkeit von thoriumbasierten Brennstoffen nachgewiesen. Die thermophysikalischen Eigenschaften einer  $\text{ThO}_2$  Matrix zeigen gegenüber denen der entsprechenden  $\text{UO}_2$  Matrix sogar ein überlegenes Verhalten, da deren thermische Dehnungen kleiner, die Wärmeleitfähigkeiten und die spezifischen Wärmekapazitäten höher sind. Ebenfalls wurden die fundamentalen Wirkungsquerschnittsverläufe der Nuklide, die für den thoriumbasierten Brennstoff von besonderer Bedeutung sind ermittelt und an Hand von Bestrahlungsexperimenten validiert. Die prinzipiellen Analogien zwischen den beiden Hauptbestandteilen des frischen Brennstoffs  $^{238}\text{U}$  respektive  $^{232}\text{Th}$ , führen zu einem ähnlichem nuklearen Verhalten. Beide Nuklide sind Resonanzabsorber und somit für die nukleare Stabilität der Reaktoren von entscheidender Bedeutung. Die Betrachtung der Wiederaufarbeitung von abgebrannten thoriumbasierten Brennstoffen zeigt auch hier sehr viele Gemeinsamkeiten zum etablierten Uranbrennstoff. Es sind lediglich geringfügige Änderungen erforderlich, um den etablierten PUREX Prozeß in einen THOREX Prozeß zu überführen. Eine 30 % TBP Säure ermöglicht die Trennung von Uran und Thorium. Die Durchsatzraten bei der Wiederaufarbeitung sind bei  $\text{ThO}_2$  allerdings etwas geringer. Der Nachweis der Brennelementfertigung ist durch die Herstellung zahlreicher Testbrennelemente demonstriert. Bei der Verwendung von rezyklierten Uran sollte auf eine möglichst reine Trennung der Uranfraktion geachtet werden, um die stark radioaktiven Töchter des  $^{232}\text{U}$  abzutrennen. Die Fertigung des frischen Brennstoffs sollte dann möglichst rasch erfolgen, um einen erneuten Aufbau dieser stark  $\gamma$ -strahlenden Töchter vor der Fertigung möglichst niedrig zu halten.

## 11.2 Ergebnisse aus den Abbrand und Kritikalitätsstudien

### 11.2.1 Nukleare Stabilität

Da hier nur die Brennstoffe aufgeführt werden, die die unabdingbare Forderung nach nuklearer Stabilität des Druckwasserreaktors erfüllen, werden zunächst die Ergebnisse aus den Simulationen von Uran, U-MOX und Th-MOX Brennstoffen hinsichtlich ihres Sicherheitsverhaltens zusammengefaßt:

- Uran Brennstoffe mit den Abbränden von  $47,5 \text{ GWd}/t_{\text{SM}}$  und  $60 \text{ GWd}/t_{\text{SM}}$  sind aus Sicht der nuklearen Stabilität vertretbar, während bei  $100 \text{ GWd}/t_{\text{SM}}$  die Moderator temperatur-Koeffizienten des frischen Brennstoffs positiv werden.
- U-MOX Brennstoffe können ebenfalls bei Entladeabbränden von  $100 \text{ GWd}/t_{\text{SM}}$  ohne weitere Modifikationen an den Brennelementbündeln im Druckwasserreaktor nicht verwendet werden, da bei den frischen Brennstoffen die Mode-

erator-temperatur-Koeffizienten positiv sind und die Void-Koeffizienten bei jedem Abbrand ebenfalls als stark positiv bestimmt worden sind. Diese Aussage behält unabhängig davon, mit welchem Abbrand des Uransystems das Plutonium erbrütet wurde. Ob Abbrände unterhalb von  $100 \text{ GWd}/t_{\text{SM}}$  und oberhalb von  $60 \text{ GWd}/t_{\text{SM}}$  einsetzbar sind, wurde hier nicht untersucht.

- Th-MOX Brennstoffe zeigen ein ähnliches Verhalten wie die U-MOX Brennstoffe und können bis zu Abbränden von  $60 \text{ GWd}/t_{\text{SM}}$  eingesetzt werden. Beim Brennstoff, dessen Anreicherung ausreicht, einen Abbrand von  $100 \text{ GWd}/t_{\text{SM}}$  zu erreichen, stellen sich auch bei Th-MOX Brennstoffen während der gesamten Einsatzzeit im Reaktor positive Void-Koeffizienten ein. Deren Betrag ist jedoch deutlich kleiner, als bei dem vergleichbaren U-MOX Brennstoff. Für den Fall, daß der Plutoniumvektor der startenden Plutoniumfraktion aus einem Uransystem mit  $47,5 \text{ GWd}/t_{\text{SM}}$  erbrütet wurde, werden die Void-Koeffizienten gegen Ende des Zyklus sogar negativ. Zu Beginn des Zyklus sind sie mit ca.  $+3400 \text{ pcm}$  nur verhältnismäßig schwach positiv. An dieser Stelle ist mit den bisher durchgeführten Untersuchungen noch keine abschließende Aussage über die nukleare Stabilität möglich, da es sich um Zellrechnungen handelt, die keinen Neutronenleakagestrom unterstellen. In der Realität wird sich dieser aber bei fehlendem Moderator erhöhen, was entsprechend nicht berücksichtigt ist. 3D Reaktorsimulationen könnten hier Aufschluß geben. Welche Abbrände unterhalb von  $100 \text{ GWd}/t_{\text{SM}}$  und oberhalb von  $60 \text{ GWd}/t_{\text{SM}}$  sicherheitstechnisch erreichbar sind, wurde hier nicht untersucht.
- Bei der Betrachtung der zweiten Rezyklierung verhält sich nur einer der untersuchten Brennstoffe nuklear stabil. Es ist ein Th-MOX Brennstoff, dessen treibende Fraktion aus der Rezyklierung von Uran und Plutonium der abgebrannten ersten MOX Stufe mit einem Endabbrand von  $47,5 \text{ GWd}/t_{\text{SM}}$  gebildet wird. Die alleinige Rezyklierung des Plutoniums oder das Nutzen eines U-MOX Brennstoffes führen zu stark positiven Void Koeffizienten während der gesamten Standzeit. Wegen des sehr hohen erforderlichen Plutoniumanteils im Falle des Th-MOX bei ausschließlicher Plutonium Rezyklierung, werden die Moderator-temperatur-Koeffizienten ebenfalls positiv. Ursache ist der außerordentlich „schmutzige“ Plutoniumvektor des zweifach abgebrannten Plutoniums, der sehr hohe Plutoniumgehalte des Brennstoffs erzwingt.
- Bei den untersuchten MOX Brennstoffen, bei denen neben dem Plutonium auch Neptunium, Americium und Curium rezykliert wurden, ergab die Berechnung der Reaktivitätskoeffizienten leicht positive Void-Koeffizienten sowohl für U-MOX als auch für Th-MOX, so daß die Frage der nuklearen Stabilität durch die Zellrechnungen abschließend nicht geklärt werden kann.

### 11.2.2 Umsatzraten für Transuranelemente

Für die untersuchten Brennstoffe sind die Umsatzraten an Plutonium bezogen auf den anfänglichen Plutoniumgehalt in **Tab. 11-1** zusammengestellt. Man erkennt, daß die erreichbaren relativen Vernichtungsraten an Plutonium bei Über-

gang von U-MOX auf Th-MOX Brennstoffe um ca. 50 % erhöht werden. Eine zweite Rezyklierung des Plutoniums ist nicht sinnvoll, wenn man möglichst hohe Vernichtungsraten erreichen will, wie an den kleineren Werten der Umsatzraten gegenüber den entsprechenden Werten der ersten Rezyklierung zu erkennen ist. Strebt man jedoch ein möglichst geringes Restinventar an Plutonium an so verringert sich dieses durch die Einführung der zweiten Rezyklierungsstufe. Betrachtet man nur nuklear stabile Brennstoffe, so verringert sich das Plutoniumrestinventar des gesamten Brennstoffzyklus bei Nutzung der zweiten Th-MOX Stufe auf 27 % des durch ein Uransystem (47,5 GWd/t<sub>SM</sub> Endabbrand) erzeugten Plutoniums. Bei Nutzung nur einer Rezyklierungsstufe ist der maximale Restgehalt bei Verwendung von Th-MOX von 60 GWd/t<sub>SM</sub> noch 48 % der durch mit Uran von 47,5 GWd/t<sub>SM</sub> erbrüteten Plutoniummenge. Betrachtet man die vernichtete Plutoniummenge im Verhältnis zur theoretisch möglichen umsetzbaren Menge aus der Beziehung daß pro 1 g gespaltenem Material ein Energie von 1 MWd umgewandelt wird, so ergeben sich für U-MOX Plutoniumumwandlungsraten zwischen 50 % und 70 % während diese bei Th-MOX Brennstoffen Werte zwischen 95 % und 105 % erreichen. Diese Umsatzraten können dadurch erklärt werden, daß nicht alles vernichtete Plutonium gespalten wird, sondern ein Teil auch zu höheren Actiniden, insbesondere Americium und Curium aufgebaut wird. Deshalb ist die zusätzliche Bilanzierung über alle Transuranelemente sinnvoll. Die **Tab. 11-2**, die analog aufgebaut zu **Tab. 11-1** ist, enthält die relativen TRU Vernichtungsraten. Diese zeigen um 5 % niedrigere Vernichtungsraten als die Werte für Plutonium, was unmittelbar mit dem Aufbau von Americium und Curium korreliert.

**Tab. 11-1:** Umgesetzte Masse an Plutonium bezogen auf die im frischen Brennstoff vorhandene Plutoniummasse für MOX Brennstoffe.

Entladeabbrand / [GWd/t <sub>HM</sub> ]	47,5		60		100	
	47,5	47,5	60	47,5	60	100
Pu-Vektor von Uran Brennstoff mit einem	47,5	47,5	60	47,5	60	100
U-MOX	26,9 %	29,1 %	27,1 %	36,0 % <sup>1</sup>	33,5 % <sup>1</sup>	31,0 % <sup>1</sup>
Th-MOX	42,8 %	46,2 %	41,0 %	52,0 % <sup>2</sup>	47,6 % <sup>1</sup>	43,0 % <sup>1</sup>
2. U-MOX Stufe (Pu aus 60 GWd/t <sub>SM</sub> der 1. U-MOX Stufe rezykliert)	- <sup>3</sup>	20,3 %	- <sup>3</sup>	- <sup>3</sup>	- <sup>3</sup>	- <sup>3</sup>
2. Th-MOX Stufe (Pu aus 60 GWd/t <sub>SM</sub> der 1. Th-MOX Stufe rezykliert)	- <sup>3</sup>	20,5 %	- <sup>3</sup>	- <sup>3</sup>	- <sup>3</sup>	- <sup>3</sup>
2. Th-MOX Stufe (Pu + U aus 60 GWd/t <sub>SM</sub> der 1. Th-MOX Stufe rezykliert)	- <sup>4</sup>	34,9 %	- <sup>3</sup>	- <sup>3</sup>	- <sup>3</sup>	- <sup>3</sup>

<sup>1</sup> nukleare Stabilität nicht gegeben

<sup>2</sup> nukleare Stabilität kann durch Zellrechnungen nicht abschließend bestimmt werden

<sup>3</sup> Rechnungen wurden nicht durchgeführt, da nukleare Stabilität nicht erreichbar ist.

<sup>4</sup> Nicht betrachtet, da 3 Rezyklierungen mit je 47,5 GWd/t<sub>SM</sub> = 142,5 GWd/t<sub>SM</sub> keinen Vorteil gegenüber Th-MOX, 1. Rezyklierung mit 100 GWd/t<sub>SM</sub> und dem vorhergehenden Uransystem mit 47,5 GWd/t<sub>SM</sub> = 147,5 GWd/t<sub>SM</sub> erwarten lassen.

**Tab. 11-2:** Umgesetzte Masse an Transuranen bezogen auf die im frischen Brennstoff vorhandene Transuranmasse für MOX Brennstoffe.

Entladeabbrand / [GWd/t <sub>HM</sub> ]	47,5		60		100	
	47,5	47,5	60	47,5	60	100
Pu-Vektor von Uran Brennstoff mit einem Entladeabbrand von: [GWd/t <sub>HM</sub> ]						
U-MOX	22,5 %	24,4 %	22,3 %	30,4 % <sup>1</sup>	27,8 % <sup>1</sup>	25,4 % <sup>1</sup>
Th-MOX	38,7 %	42,3 %	36,4 %	46,7 % <sup>2</sup>	42,1 % <sup>1</sup>	37,5 % <sup>1</sup>
2. U-MOX Stufe (Pu aus 60 GWd/t <sub>SM</sub> der 1. U-MOX Stufe rezykliert)	- <sup>3</sup>	16,0 %	- <sup>3</sup>	- <sup>3</sup>	- <sup>3</sup>	- <sup>3</sup>
2. Th-MOX Stufe (Pu aus 60 GWd/t <sub>SM</sub> der 1. Th-MOX Stufe rezykliert)	- <sup>3</sup>	16,2 %	- <sup>3</sup>	- <sup>3</sup>	- <sup>3</sup>	- <sup>3</sup>
2. Th-MOX Stufe (Pu + U aus 60 GWd/t <sub>SM</sub> der 1. Th-MOX Stufe rezykliert)	- <sup>4</sup>	29,0 %	- <sup>3</sup>	- <sup>3</sup>	- <sup>3</sup>	- <sup>3</sup>

<sup>1</sup> nukleare Stabilität nicht gegeben

<sup>2</sup> nukleare Stabilität kann durch Zellrechnungen nicht abschließend bestimmt werden

<sup>3</sup> Rechnungen wurden nicht durchgeführt, da nukleare Stabilität nicht erreichbar ist.

<sup>4</sup> Nicht betrachtet, da 3 Rezyklierungen mit je 47,5 GWd/t<sub>SM</sub> = 142,5 GWd/t<sub>SM</sub> keinen Vorteil gegenüber Th-MOX, 1. Rezyklierung mit 100 GWd/t<sub>SM</sub> und dem vorhergehenden Uransystem mit 47,5 GWd/t<sub>SM</sub> = 147,5 GWd/t<sub>SM</sub> erwarten lassen.

Ein Vergleich der Transuran-Vernichtungspotentiale des Druckwasserreaktors mit anderen Reaktoren oder Reaktorkonzepten deren Brennstoffkreisläufe hinsichtlich der TRU Vernichtung optimiert wurden, ist in **Abb. 11-1** gezeigt. Auf der Ordinate sind die erreichbaren Umsatzraten pro gewandeltem thermischen Gigawattjahr aufgetragen, während auf der Abszisse das Verhältnis dieser Masse zu der beim Entladen noch vorhandenen Masse aufgetragen wurde. Das heißt, daß Reaktoren deren „Betriebspunkt“ im Diagramm weit rechts liegen in der Lage sind, Transurane bis auf einen möglichst geringen restlichen Anteil umzuwandeln. „Betriebspunkte“, die sehr weit oben liegen zeigen das größere Potential schnell TRU Elemente abzubrennen. Man erkennt, daß die höchsten Umsatzraten bei der Verwendung von Inertmatrices erreicht werden. Dies gilt sowohl für den LWR als auch für ein CAPRA Kern. Diese Brennstoffträgermatrizen sind aber noch nicht Stand der Technik, was bei einer abschließenden Beurteilung nicht außer Acht gelassen werden darf. Der Thorium MOX Brennstoff im LWR zeigt dann die nächst höheren Vernichtungsraten, allerdings bei relativ hohen Restinventaren. Der „FEA-Burner“ nach Prof. Rubbia liegt in einer Geraden zwischen dem Thorium Druckwasserreaktor und dem Hochtemperaturreaktor dessen Brennstoff auf TRU Vernichtung bzw. möglichst geringem TRU Restinventar optimierte wurde. Die bisher eingeführten Zyklen (Uran mit 1/3 U-MOX Brennelementen im Kern) weisen deutlich niedrigere TRU Vernichtungsraten und höhere Restinventare auf. Wie aus **Abb. 11-1** hervorgeht, sind die Ergebnisse die beim DWR hinsichtlich der TRU Vernichtung erzielt werden können, ermutigend.

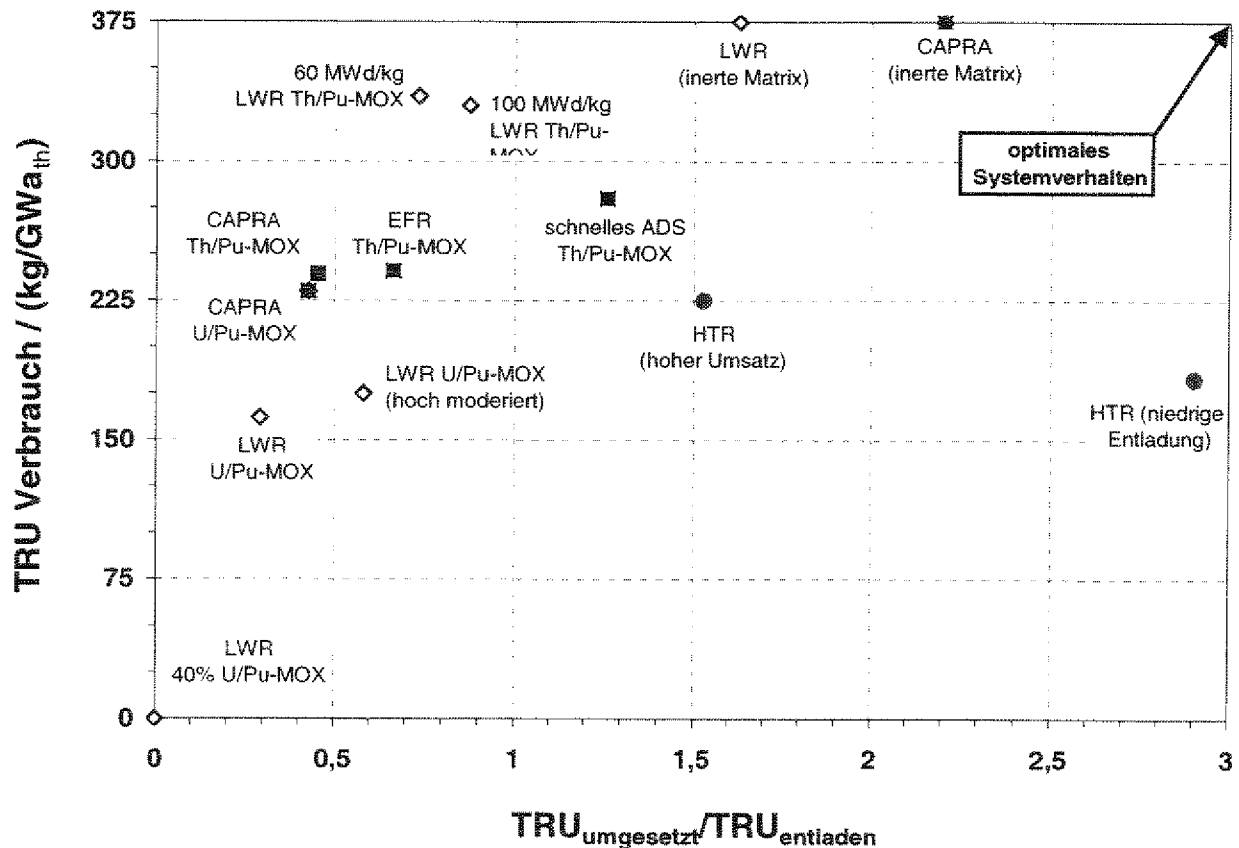


Abb. 11-1: Vergleich der Transuranvernichtungspotentiale von verschiedenen Reaktorkonzepten.

### 11.3 Toxizitätspotentiale

Eine Betrachtung der Toxizitätsbilanzen läßt sich durch einige Charakteristika, die alle Brennstoffe einer Kategorie (Uran, U-MOX, Th-MOX) unabhängig vom Abbrand haben, wie folgt beschreiben:

- Bei den Uranbrennstoffen wird das Toxizitätspotential der Schwermetalle des Brennstoffs während des Einsatzes im Reaktor um vier Größenordnungen erhöht. Ein Erreichen des Niveaus des frischen Brennstoff erfolgt erst nach einigen Millionen Jahren.
- Bei den U-MOX Brennstoffen erhöht sich das Gefährdungspotential während des Einsatzes im Reaktor nicht und zeigt während der ganzen Zeit keine relevanten Unterschiede zwischen frischen und abgebranntem Brennstoff. Nach einigen hunderttausend Jahren kommt es je nach Abbrand zu einer um 50 % bis 100 % höheren Toxizität im Vergleich zum abgebrannten Uranbrennstoff, da das bei U-MOX verstärkt vorhandene <sup>242</sup>Pu in dieser Zeit zerfällt. Positiv formuliert, kann mit U-MOX Brennelementen Elektrizität in Kernreaktoren erzeugt werden, ohne daß das Toxizitätspotential vergrößert wird. Auf der

anderen Seite erfolgt auch keine Reduzierung des Gefährdungspotential, so daß die erforderliche Abschlußzeit von der Biosphäre nicht reduziert wird.

- Bei Th-MOX Elementen können qualitativ die gleichen Aussagen wie für U-MOX gemacht werden. Man erkennt sogar eine erhöhte Toxizität nach einer Zeitspanne von einigen hunderttausend Jahren, die durch den Zerfall des  $^{233}\text{U}$  und der Toxizität seiner Tochternuklide begründet werden kann.

Neben der Betrachtung der Bilanzierung der einzelnen Stufen der Brennelementkreisläufe ist auch die integrale Bilanzierung der kompletten Zyklen für einen umfassenden Vergleich von Bedeutung. Dabei muß berücksichtigt werden, daß eine Vielzahl von Uransystemen benötigt wird, um genügend Plutonium zu erbrüten, so daß die nachfolgende MOX-Stufe damit gestartet werden kann. Die Stoffströme und damit auch die Toxizitätspotentiale sind dementsprechend stark durch die Uransysteme geprägt. Die Wiederaufarbeitungsabfälle, die bei der Rezyklierung der abgebrannten Uranbrennstoffe entstehen, weisen noch relativ hohe Toxizitätspotentiale auf. Diese erreichen das Niveau des frischen Brennstoffs erst nach ca. hunderttausend Jahren. Selbst wenn das abgetrennte Plutonium zu 100 % umgesetzt werden könnten, kann durch eine ausschließliche Rezyklierung des Uran niemals das Ziel erreicht werden, die erforderlichen Endlagerzeiten auf technische Dimensionen zu verringern. Berücksichtigt man zusätzlich die Toxizitäten der in den abgebrannten MOX Brennstoffen enthaltenen Transuranelemente, so zeigt der Toxizitätsverlauf das gewohnte Bild und weicht nur unwesentlich von den abgebrannten Brennstoffen der einzelnen Stufen ab. Die Betrachtung der Toxizität von Brennstoffen, die die Minor Actinides (MA) mit rezyklieren entfällt an dieser Stelle, da die nukleare Stabilität im Druckwasserreaktor bei diesen Brennstoffen nicht sichergestellt ist.

#### **11.4 Sonstige Aspekte bei der Einführung des Thorium Brennstoffkreislaufs**

Bei der Untersuchung der Stabilität von Endlagern ist ein wichtiger Aspekt der Einfluß der mit dem Abfall eingebrachten Wärmeproduktion. Nach den Rechnungen in Kapitel 9 zeigt sich, daß es keinen nennenswerten Unterschied hinsichtlich der Nachwärmeproduktion zwischen Uran und thoriumbasierten Brennstoffkreisläufen gibt. Bei den Thorium Brennstoffen ist das Niveau im Bereich von hundert bis zweihunderttausend Jahren durch den dann stattfindenden Zerfall des  $^{233}\text{U}$  im Vergleich zu den entsprechenden Uranbrennstoffen erhöht. Da das Leistungsniveau zu diesem Zeitpunkt aber insgesamt bereits auf ein niedriges Niveau gefallen ist, stellt der  $^{233}\text{U}$  Zerfall hinsichtlich der Wärmeproduktion im Endlager kein relevantes Problem dar.

Ein Vergleich des Thoriumbrennstoffkreislaufs mit dem Uranbrennstoffkreislauf hinsichtlich der Proliferationsaspekte erfolgt unter Betrachtung der für die Proliferation wichtigen Größen insbesondere der,

- Kritischen Masse bei gegebener Nuklidzusammensetzung,

- Wärmeleistung der kritischen Masse,
- Neutronenemission der kritischen Masse,
- Vielfaches der kritischen Masse, die im abgebrannten Brennelement enthalten ist,
- Dosisleistung der kritischen Masse.

Die ersten vier Parameter zeigen in Bezug auf die Plutoniumvektoren und Massen, die in den Brennstoffkreisläufen bearbeitet werden müssen, günstigere Werte bei thoriumbasierten Brennstoffen als bei uranbasierten. Zusätzlich muß beim Thorium Brennstoffkreislauf aber noch das erbrütete Uran hinsichtlich der Proliferationsfähigkeit geprüft werden. Niedrige Wärmeleistung und Neutronenemission begünstigen hier die Proliferation. Der hohe Anteil an  $^{233}\text{U}$  innerhalb der Uranfraktion führt auch zu einer relativ geringen kritischen Masse. Hier besteht aber die Möglichkeit, bereits bei der Fertigung der frischen Brennstoffe abgereichertes Uran zuzufügen und auf diese Weise den  $^{233}\text{U}$  Anteil wirkungsvoll zu verringern und so die kritische Masse zu erhöhen. Entsprechend steigt der zur Produktion der kritischen Masse erforderliche Wiederaufarbeitungsaufwand an. Nach relativ kurzer Zeit baut die Uranfraktion durch die Töchter des  $^{232}\text{U}$  eine hohe Gamma-Dosisleistung auf, die auch für einige tausend Jahre einen Proliferationsschutz bietet. Von daher sind beide Brennstoffkreisläufe mit Proliferationsrisiken behaftet. Rechnet man die Proliferationsgefahr von Uran und Plutonium mit 1:1, dann ergeben sich Vorteile für den Thoriumkreislauf, da dort die Uran- und Plutoniummassen kleiner als die Plutoniummasse beim Urankreislauf ist.

## 11.5 Ausblick

Um das Fernziel einer Toxizitätsreduzierung in den Ausmaßen zu erreichen, daß auf eine Langzeitendlagerung der Schwermetalle in einer geologischen Formation verzichtet werden kann, müssen neben Plutonium auch noch Neptunium, Americium und Curium abgetrennt und anschließend in einem Reaktor vollständig umgewandelt werden. Für den Fall des vollständigen Umsatz der Reststoffe müssen nur die Wiederaufarbeitungsabfälle endgelagert werden. Die entsprechenden Toxizitätsverläufe sind in **Abb. 11-2** gezeigt. Die Toxizitäten der endlagernden Abfälle aus der Wiederaufarbeitung erreichen das maximale Toxizitätsniveau des frischen Brennstoffs bereits nach einer Abklingzeit von einigen Jahrhunderten, so daß die Rückhaltung der Schwermetalle von der Biosphäre durch technische Barrieren sichergestellt werden kann.

Das zu lösende Problem ist die nahezu vollständige Umwandlung der abgetrennten Transuranelemente. Unter Umständen sind im Druckwasserreaktor weitere Potentiale zur Rezyklierung nutzbar, wenn von der jetzigen Bündelstruktur abgewichen wird. Im einzelnen sind folgende Modifikationen denkbar, die durch weiterführende Rechnungen auf ihre Realisierbarkeit geprüft werden müssen:

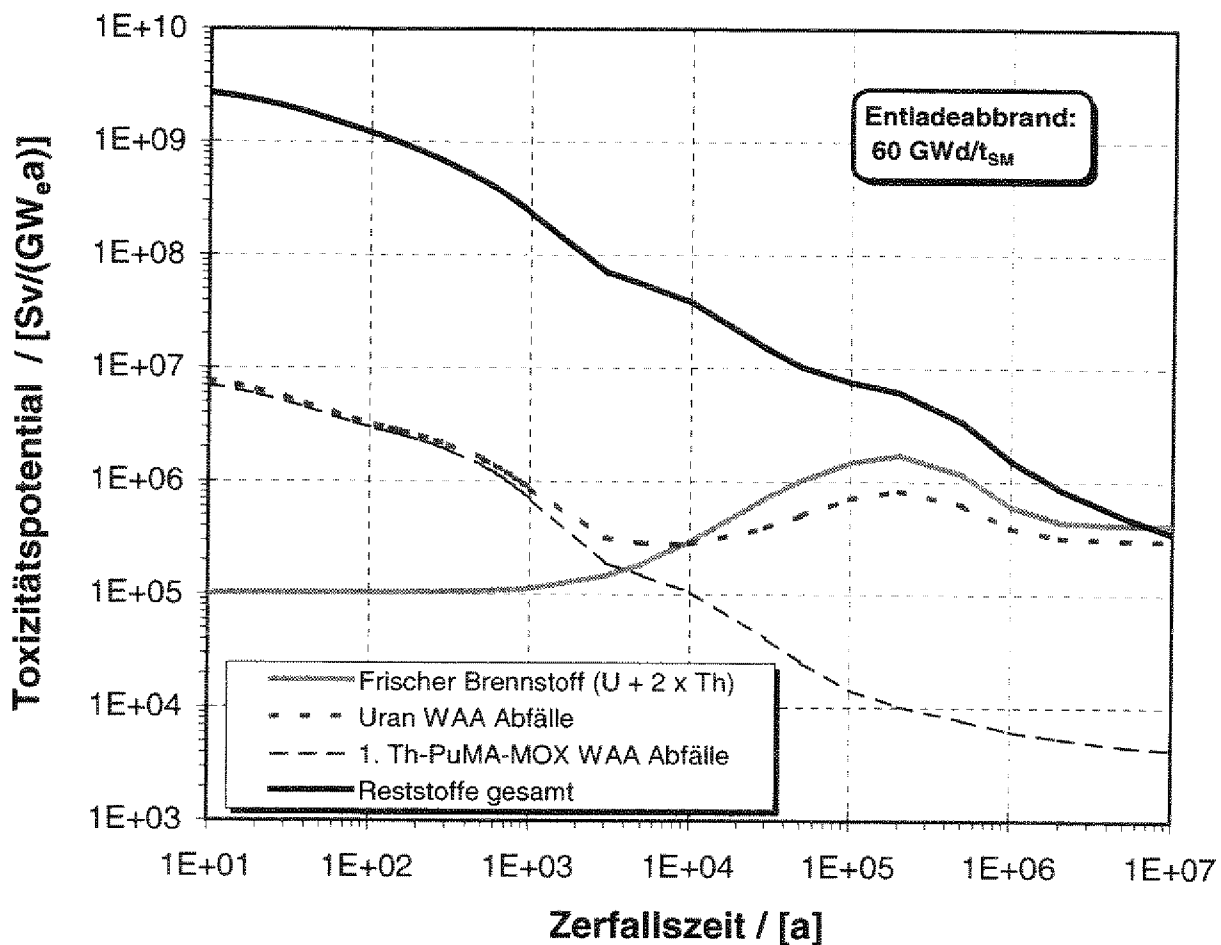


Abb. 11-2: Toxizitätsverläufe des frischen Uranbrennstoffs und der Wiederaufarbeitungsabfälle bei Rezyklierung der Transuranelemente (Schwermetalle)

- Anpassung der Moderationsverhältnisses speziell auf TRU Brennstoffe, um den TRU Gehalt zur Sicherung der Kritikalität zu senken.
- Veränderungen an den Brennstoffpellets selber. Zum Beispiel wären hohle Pellets denkbar, wodurch das Verhältnis der Schwermetallmasse zu Moderatormasse ebenfalls modifiziert werden kann.
- Betrachtung von heterogenen Reaktorkernen, die nur einige Brennelementbündel mit TRU Brennstoffen enthalten. Diese können unter Umständen auch eine geringere Standzeit haben, und bei jedem Stillstand zum Brennelementwechsel aus dem Kern entnommen werden.
- Einzelne Stäbe, die TRU Brennstoffe enthalten und sich in einer Spektralzone befinden, die wenig durch sich selbst als mehr durch die Umgebung beeinflusst wird.

Neben der vollständigen Rezyklierung im Druckwasserreaktor ist auch eine gemeinsame, vertikale Nutzung verschiedener Reaktorsysteme denkbar. So muß das Potential geprüft werden, mit denen schnelle Systeme speziell die Umwandlung von hochabgebrannten Plutoniumvektoren erreichen. Ebenso muß geprüft werden, wie schnelle Neutronenspektren mit einem Plutoniumvektor umgehen können, der durch einen hohen Anteil an  $^{240}\text{Pu}$  charakterisiert wird. Der hohe Anteil des  $^{240}\text{Pu}$  entsteht, wenn man das  $^{244}\text{Cm}$  zerfallen läßt und anschließend zusammen mit der übrigen Plutoniumfraktion rezykliert. Die Möglichkeiten von Hochtemperaturreaktoren auf deren Möglichkeiten zum Betrieb mit solchen Plutoniumvektoren sind ebenfalls zu prüfen.

Auch innovative Systeme, die Beschleuniger zur zusätzlichen Neutronengeneration durch Spallationsprozesse nutzen, müssen hinsichtlich ihrer Potentiale zur gezielten Transmutation der Transuranrestvektoren der Th-MOX Brennstoffe geprüft werden.

## 12 Literaturverzeichnis

- /Aki 90/ H. Akie, Y. Ishiguro (JAERI) „CORE BURNUP CALCULATION OF THORIUM/U233 FUELLED AXIALLY HETEROGENEOUS HCLWR“ in Proceedings of the Indo-Japan Seminar on Thorium Utilization 1990, Bombay 1991, Seiten 2 f.
- /AMP 76/ N. M. Greene, J. L. Lucius, L. M. Petrie, W. E. Ford, J. E. White and R. Q. Wright, „AMPX - A Modular Code System to Generate Coupled Multigroup Neutron-Gamma Cross Sections from ENDF/B“, ORNL/TM 3706 (AMPX-1), March 1976.
- /Ana 90/ K. Anantharaman, Reactor Engineering Division Bhabha Atomic Research Centre, Bombay 400085, Indien; „LOOP EXPERIMENTS WITH THORIA BASED FUELS“ in Proceedings of the Indo-Japan Seminar on Thorium Utilization 1990, Bombay 1991, Seiten 132 ff.
- /Bal 90<sub>1</sub>/ M. R. Balakrishnan, Bhabha Atomic Research Centre, Bombay 400 085, Indien, „GROWTH SCENARIOS WITH THORIUM FUEL CYCLES IN PHWR“ in Proceedings of the Indo-Japan Seminar on Thorium Utilization 1990, Bombay 1991, Seiten 62 ff.
- /Bal 90<sub>2</sub>/ G. R. Balasubramanian, Reprocessing Programme, Reprocessing Development Laboratory, Kalpakkam - 603102, India „REPROCESSING OF IRRADIATED THORIUM - INDIAN EXPERIENCE“ in Proceedings of the Indo-Japan Seminar on Thorium Utilization 1990, Bombay 1991, Seiten 165 ff.
- /Bel 66/ J. Belle, R. M. Berman, W. F. Bourgeois, I. Cohen and R. C. Daniel, „THERMAL CONDUCTIVITY OF BULK OXIDE FUELS“. WAPD-TM-586, September 1966
- /BMW 97/ Bundesministerium für Wirtschaft BMWi: Wirtschaft in Zahlen 1997, Stand November 1997, Referat Öffentlichkeitsarbeit.
- /Bon 64/ I.I. Bondarenko, Ed. Group Constants for Nuclear Reactor Calculations Consultants Bureau, New York (1964).
- /Chi 90/ R. Chidambaram, Bhabha Atomic Research Centre, Bombay 400085, India „OVERVIEW OF THORIUM UTILISATION PROGRAMME IN INDIA“ in Proceedings of the Indo-Japan Seminar on Thorium Utilization 1990, Bombay 1991, Seiten 7 ff.
- /Das 90/ M. Das, Nuclear Power Corporation Vikram Sarabhai Bhavan, Anushaktinagar, Bombay 400094, Indien: „DESIGN AND IRRADIATION EXPERIENCE WITH THORIUM BUNDLES IN MAPS“ in Proceedings of the Indo-Japan Seminar on Thorium Utilization 1990, Bombay 1991, Seiten 127 ff.
- /Fra 93/ „Minor Actinides Transmutation in Oxide Fuelled fast Reactors“; J. Journet, G.

- Vambeneppe, J. Vergnes EDF; F. Biagi, H. Sztark, Framatome.
- /Fre 68/ M. D. Freshley Pacific Northwest Laboratory , „IRRADIATION OF (TH,PU)O<sub>2</sub>“ in AEC Symposium Series 12, Proceedings of Second International Thorium Fuel Cycle Symposium, Gatlinburg, Tennessee
- /Fur 90/ Kazuo Furukawa, et. al., Inst. of Research and Devel. , Tokai Univ. Hiratsuka, Kanagawa, Japan 259-12 „GLOBAL NUCLEAR ENERGY SYSTEM – THORIUM MOLTEN-SALT NUCLEAR ENERGY SYNERGETICS – “ in Proceedings of the Indo-Japan Seminar on Thorium Utilization 1990, Bombay 1991, Seiten 21 ff.
- /Fou 98/ B. Fourest, et. al. Institut de Physique Nucleaire, 91406 Orsay, cedex, France. Entwurf zu Endbericht innerhalb des EU-Projektes: „Thorium as a waste management option“, FI4I-CT95-011
- /Gan 90/ C. Ganguly, Radiometallurgy Division Bhabha Atomic Research Centre Bombay 400005, Indien, „DEVELOPMENT OF THORIUM BASED FUELS FOR WATER-COOLED REACTORS“ in Proceedings of the Indo-Japan Seminar on Thorium Utilization 1990, Bombay 1991, Seiten 77 ff.
- /Glo 93/ GLOBAL '93, International Conference and Technology Exhibition, Future Nuclear Systems: Emerging Fuel Cycles & Waste Disposal Options; Proceedings; September 12-17, 1993 Seattle, Washington.
- /Gro 98/ Workshop on P&T Strategy Studies and Transmutation Experiments; J.P. Grouiller, CEA, „Scenario studies“ EU-Projekt FI4I-CT95-0006; Juni 1998; Karlsruhe.
- /Her 63/ M. E. A. Herman et. al., „THE AQUEOUS HOMOGENEOUS SUSPENSION REACTOR OF THE KEMA“, Atomwirtschaft 1963 Seiten 593-599.
- /Hei 97/ Heinloth, K.: „Die Energiefrage. Bedarf und Potentiale, Nutzen, Risiken und Kosten. Wiesbaden: Vieweg 1997.
- /IAE 66/ „SUMMARY REPORT AND RECOMMENDATIONS“ in IAEA Technical Reports Series No. 52 „Utilization of Thorium in Power Reactors.“, Wien 1966, Seite 1 ff.
- /IAE 70/ „THORIUM FUEL CYCLE“, Bibliographical Series, n° 39, IAEA, 1970.
- /ICR 94/ Dose Coefficients for Intakes of Radionuclides by Workers, ICRP-Publication 68, Annals of the ICRP 24(4) 1994.
- /Jon 84/ R.T. Jones Chalk River Nuclear Laboratories, Chalk River Ontario „EXPERIMENTS PERFORMED IN ZED-2 IN SUPPORT OF THE IRRADIATION OF (THORIUM,PLUTONIUM)O<sub>2</sub> FUEL (BDL-422) IN NRU.“; 1984
- /Kak 90/ Anil Kakodkar and Kamala Balakrishnan, Reactor Engineering Division, Bhabha Atomic Research Centre, Bombay 400 085, Indien „ADVANCED HEAVY WATER REACTOR (AHWR) in Proceedings of the Indo-Japan Seminar on Thorium Utilization 1990, Bombay 1991, Seite 72 ff.
- /Ken 90/ V. S. Keni, Chemical Engineering Division, Bhabha Atomic Research Centre, Bombay 400085, Indien, „EXTRACTION AND REFINING OF THORIUM“ in Proceedings of the Indo-Japan Seminar on Thorium Utilization 1990.
- /KFK 95/ Karlsruher Nuklidkarte; W. Seelmann-Eggebert, G. Pfennig, H. Münzel, H. Klewe-Nebenius; Institut für Radiochemie des Kernforschungszentrums Karlsruhe; 5. Auflage 1981.
- /Kin 54/ W. D. Kingery, J. Francl, R.L. Coble and T. Vasilos; J. Am. Ceram. Soc., 37 1954 „DATA FOR SEVERAL PURE OXIDE MATERIALS CORRECTED TO ZERO POROSITY“.
- /Klo 97/ J.L. Kloostermann, R. C. L. van der Stad, H. Gruppelaar; Interner Bericht der

- ECN Abteilung Nuclear Research – Nuclear & Reactor Physics: „Results of two ECN – KFA benchmarks“, Projekt-Nr. 71125; 15.5.1997
- /Klo 99/ J.L. Kloostermann, et. al.; EU Endbericht in Vorbereitung, Projekt Nr. FI4I-CT95-011; „Thorium as a Waste Management Option“; 1999
- /Kon 93/ R. J. M. Konings, P. J. A. M. Blankenvoorde, E. H. P. Cordfunke, K. Bakker, „EVALUATION OF THORIUM BASED NUCLEAR FUEL - CHEMICAL ASPECTS“, ECN-R—95-007, Juli 1995, Seiten 11-20
- /Kug 92/ K. Kugeler, et. al.; Manuskript zur Vorlesung Reaktortechnik I an der RWTH Aachen, 1992.
- /Kug 98/ K. Kugeler, M. Kugeler, Z. Alkan, S. Briem; „Erzeugung von elektrischer Energie in Kernkraftwerken mit hohem Wirkungsgrad; Institut für Sicherheitsforschung und Reaktortechnik; Forschungszentrum Jülich GmbH; Jülich, 1998.
- /Lan 66/ J. A. Lane, Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, Tenn., USA, „ECONOMIC INCENTIVE FOR THORIUM REACTOR DEVELOPMENT“ in IAEA Technical Reports Series No. 52 „Utilization of Thorium in Power Reactors.“, Wien 1966, Seiten 199 ff.
- /Lei 97/ Bericht der EU; nuclear science and technology: „Perspectives and Cost of Partitioning and Transmutation of long-lived Radionuclides“ EU Projekt: FI2W-CT91-0106, Abschlußbericht EUR 17485.
- /Liz 93/ „Berechnungen zum japanischen Transmutationskonzept“; technischer Bericht von P. Lizana-Allende; Forschungszentrum Jülich; Institut für Sicherheitsforschung und Reaktortechnik (ISR-2), 1993.
- /Lot 66/ A. L. Lot et. al., Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge Tenn., USA, „RE-FABRICATION TECHNOLOGY FOR THE THORIUM-<sup>233</sup>U FUEL CYCLE“ in IAEA Technical Reports Series No. 52 „Utilization of Thorium in Power Reactors.“, Wien 1966, Seiten 212 ff.
- /Lun 96/ Michel Lung, „The Thorium nuclear fuel cycles“; Final Report E.C. Project: F12W-CT94-0131FR); March 1996
- /Lyp 93/ „Gestaltung thermischer Systeme zur Transmutation von radioaktiven Abfällen am Beispiel des ATW Konzeptes“, technischer Bericht von F. Lypsch und P. W. Phlippen; Forschungszentrum Jülich; Institut für Sicherheitsforschung und Reaktortechnik (ISR-2), 1993.
- /Mac 69/ J. R. MacEwan and R. L. Stoute, J. Amer. Ceram. Soc., „ANNEALING OF IRRADIATION INDUCED THERMAL CONDUCTIVITY CHANGES IN THO<sub>2</sub>-1,3% WT% UO<sub>2</sub>“, Paper 11-N-68 70th Annual Meeting of American Ceramic Society. April 20-25, 1968.
- /Mag 97/ J. Magill, et. al. ANS Winter Meeting in Albuquerque, New Mexico, Nov. 16-20 1997: Accelerators and (Non-) Proliferation; Institute for Transuranium Elements Karlsruhe; European Commission, Joint Research Centre.
- /Mag 98/ J. Magill: Progress Report innerhalb des EU-Projektes: „Thorium as a waste management option“, Nr. FI4I-CT95-011, mit dem Titel: „Proliferation Analysis of Pu burning in U-MOX & Th-MOX fuels“; ITU Karlsruhe; Juni 1998
- /Mal 88/ V. Maly et. al., Kernforschungsanlage Jülich GmbH „THORIUM UTILIZATION IN PWRS“, Final Report 1979-1988 German Brazilian Cooperation, KFA-Jülich 1988.
- /Miy 90/ M. Miyake et. al., Department of nuclear Engineering, Faculty of Engineering, Osaka University, Suita, Osaka 565, Japan, „PREPARATION METHOD OF THORIUM NITRIDES AND THEIR OXIDATION BEHAVIOR“ in Proceedings of

the Indo-Japan Seminar on Thorium Utilization 1990, Bombay 1991, Seiten 91 ff.

- /Mod 99/ G. Modolo, Institut für Sicherheitsforschung und Reaktortechnik, Forschungszentrum Jülich GmbH; Reprocessing, in: H. Gruppelaar, J. P. Schapira (Hrsg.) „Thorium as a Waste Management Option“, als EUR Bericht in Vorbereitung -Projekt Nr. FI4I-CT95-011; „Thorium as a Waste Management Option“;1999
- /Moo 67/ J. P. Moore, T. G. Kollie, R. S. Graves and D. L. McElroy; „THERMAL CONDUCTIVITY MEASUREMENTS ON SOLIDS BETWEEN 20 AND 150°C USING A COMPARATIVE LONGITUDINAL APPARATUS“, ORNL-4121, Juni 1967.
- /NEA 96/ OECD/NEA Burnup Credit Calculational Criticality Benchmark, Phase I-B Results, NEA/NSC/DOC(96)-06, ORNL 6901, June 1996
- /Neu 96/ I. Neuhaus; Institut für Sicherheitsforschung und Reaktortechnik; interner Bericht (KFA-ISR-IB-1/96) „Neutronische Untersuchungen zur Transmutation von Transuranelementen, insbesondere von <sup>243</sup>Am und <sup>244</sup>Cm.“; Januar 1996
- /Neu 99/ I. Neuhaus; Institut für Sicherheitsforschung und Reaktortechnik; Forschungszentrum Jülich GmbH; interner Bericht in Vorbereitung; „Implementierung des SCALE 4.2 und einiger Tools zur Berechnung von Temperaturkoeffizienten“;Jülich 1999.
- /OEC 89/ OECD-NEA, Paris 1989: „PLUTONIUM FUEL: AN ASSESMENT“; Report by an expert group; TK 9360.P547 1989; ISBN/ISSN: 9264132651
- /Ols 66/ A. R. Olsen, Oak Ridge Tenn. USA, „IRRADIATION BEHAVIOUR OF THORIUM-URANIUM ALLOYS AND COMPOUNDS“ in IAEA Technical Reports Series No. 52 „Utilization of Thorium in Power Reactors.“, Wien 1966, Seiten 246 ff.
- /ORN 93/ Oak Ridge National Laboratory RISC COMPUTER CODE COLLECTION: SCALE 4.2 Modular Code System for Performing Standardised Computer Analyses for Licensing Evaluation, NUREG/CR-0200, Nov. 1993.
- /Pet 66/ S. Peterson et. al., Oak Ridge Tenn. USA, „PROPERTIES OF THORIUM, ITS ALLOYS AND ITS COMPOUNDS“ in IAEA Technical Reports Series No. 52 „Utilization of Thorium in Power Reactors.“, Wien 1966, Seiten 292 ff.
- /Phl 95/ GLOBAL '95 International Conference and Technology Exhibition: „BASIC CONSIDERATIONS AND PREREQUISITS FOR THE ASSESMENTS OF FUTURE FUEL CYCLES WITH SPECIAL REGARD TO P&T ISSUES“ von P.W. Phlippen et. al. Seite 1958 ff. 1995
- /Phl 99/ P.-W. Phlippen; Institut für Sicherheitsforschung und Reaktortechnik; Forschungszentrum Jülich GmbH; interner Bericht in Vorbereitung; „Ergebnisse intensiver Benchmarkrechnungen mit dem SCALE 4.2 Programmpaket zum Abbrandverhalten von Uranbrennstoffen in DWRs“;Jülich 1999.
- /Ren 99/ A. F. Renard, BelgoNucleaire, Brüssel, Belgien; EU Endbericht in Vorbereitung, Projekt Nr. FI4I-CT95-011; „Thorium as a Waste Management Option“;1999
- /Rob 66/ J. T. Roberts et. al. Oak Ridge National Laboratory Oak Ridge Tenn., USA, „REPROCESSING METHODS AND COSTS FOR SELECTED THORIUM-BEARING REACTOR FUEL TYPES“ in IAEA Technical Reports Series No. 52 „Utilization of Thorium in Power Reactors.“, Wien 1966, Seiten 313 ff.
- /Ros 66/ M.W. Rosenthal et. al. Oak Ridge National Laboratory Oak Ridge Tenn., USA, „TECHNICAL AND ECONOMIC CHARACTERISTICS OF THORIUM REACTORS“ in IAEA Technical Reports Series No. 52 „Utilization of Thorium in Power Reactors.“, Wien 1966, Seiten 353 ff.
- /Rot 60/ W. Rothenstein, Collision Probabilitities and Resonance Integrals for Lattices, Nucl.

Sci. Eng. 7, 162 (1960).

- /Rüt 96/ H. J. Rütten et. al., Forschungszentrum Jülich GmbH: Coordinated Research Programme (CRP) on the Potential of Th-based Fuel Cycles to constrain Pu and to reduce long-term Waste Toxicities, Sep. 1996.
- /Sch 79/ G. Schlosser, Kraftwerk Union Aktiengesellschaft, Reaktortechnik Erlangen, „NEUTRONENPHYSIKALISCHE UND WIRTSCHAFTLICHE UNTERSUCHUNGEN ZUM THORIUM-<sup>233</sup>U ZYKLUS IN LEICHTWASSERDRUCKWASSERREAKTOREN“, Forschungsbericht K 79-24 des Bundesministeriums für Forschung und Technologie, Dezember 1979.
- /Sch 99/ J.P. Schapira et. al., Institut de Physique Nucleaire, IN2P3, Orsay, Frankreich; EU Endbericht in Vorbereitung, Projekt Nr. FI4I-CT95-011; „Thorium as a Waste Management Option“; 1999
- /Spr 67/ J. R. Springer, E. A. Aldridge, M. U. Goodyear, T. R. Wright and J. F. Lagedorst, „FABRICATION, CHARACTERISATION AND THERMAL PROPERTY MEASUREMENTS OF THO<sub>2</sub>-UO<sub>2</sub> FUEL MATERIALS“, BMI-X-10210, Oktober 1967
- /Sta 96/ R.C.L. van der Stad, P.F.A. DE Leege, J. Oppe, „EIJ2-XMAS Contents of the JEF2.2 based neutron cross-section library in the XMAS group structure“; TU DELFT, IRI, Februar 1996
- /Tak 90/ Toshikazu Takeda, Osaka University, Suita, Osaka 565 „NEUTRONIC PROPERTIES OF SPECTRAL SHIFT IN LIGHT WATER REACTORS WITH THORIUM FUEL“ in Proceedings of the Indo-Japan Seminar on Thorium Utilization 1990, Bombay 1991, Seiten 57 ff.
- /Teu 82/ E. Teuchert, H.-J. Rütten und H. Werner; „REDUCING THE WORLD'S URANIUM REQUIREMENT BY THE THORIUM FUEL CYCLE IN HTR“, Nuclear Technology VOL. 58, Sep. 82, Seite 414 ff.
- /Teu 86/ E. Teuchert; „Brennstoffzyklen des Kugelhaufen-Hochtemperaturreaktors in der Computersimulation“; Kernforschungsanlage Jülich GmbH, Institut für Reaktorentwicklung; Jül-2069, Juni 1986; ISSN 0366-0885
- /Tho 79/ J. D. Thorn, C.T. John, Rf. Burstall, ND-R-442®, UKAEA 1979 in „THORIUM FUEL CYCLES“
- /Vij 90/ R. Vijayaraghavan, Atomic Fuels Division, Bhabha Atomic Research Centre, Bombay 400085 India, „PRODUCTION AND FABRICATION OF THORIUM FUELS AT BARC“ in Proceedings of the Indo-Japan Seminar on Thorium Utilization 1990, Bombay 1991, Seiten 99 ff.
- /Wel 98/ Zeitung „Die Welt“; Ausgabe vom 29.9.98, Autor: Jürgen Wintermann „Alle Energieträger werden für Jahrzehnte benötigt“, Prognose des Weltenergiebedarfes bis zum Jahr 2050
- /Yam 90/ M. Yamawaki, Nuclear Engineering Research Laboratory Faculty of Engineering, the University of Tokyo 7-3-1 Hongo, Bunkyo-ku, Tokyo 113, Japan, „THERMOCHEMICAL STUDY OF THORIUM AND THORIUM-URANIM MONOCARBIDES“ in Proceedings of the Indo-Japan Seminar on Thorium Utilization 1990, Bombay 1991, Seiten 148 ff.



## Anhang A - Abkürzungen und Formelzeichen

### A-1 Abkürzungen

Am	Element Americium
Cm	Element Curium
MA	Minor Actinides (Np, Am und Curium)
Np	Element Neptunium
Pa	Element Protactinium
Pu	Element Plutonium
Th-MOX	Thorium/Plutonium Mischoxidbrennstoff
TRU-Elemente	Transuranelemente (Np, Pu, Am und Curium)
U	Element Uran
U-MOX	Uran/Plutonium Mischoxidbrennstoff

### A-2 Formelzeichen

$\alpha$	Reaktivitätskoeffizienten	[-]
$\chi(r, E)$	Anteil von Neutronen der Energie $E$	[1/(eVcm)]
$c$	Borkonzentration im Moderator	[ppm]
$c'$	Nominale Borkonzentration im Moderator	[ppm]
$c_i$	Aktivitätskonzentration des Nuklids $i$	[Bq/(GW <sub>e</sub> a)]
$d\rho$	Änderung der Reaktivität	[pcm]
$D$	Dichte	[g/cm <sup>3</sup> ]
$D_i$	Dosisfaktor des Nuklid $i$	[Sv/Bq]
$\Delta$	Differenz	[-]
$\phi$	Neutronenfluß	[n/(cm <sup>2</sup> s)]
$\overline{\Phi}_g^{cell}(E)$	über Gruppe $G$ gemittelter Zell-Neutronenfluß	[n/(cm <sup>2</sup> s eV)]
$\gamma_i$	Anteil des Spaltprodukts $i$ nach Spaltung (Yield)	[-]
$\vartheta$	Temperatur	[K]
$\eta$	dynamische Viskosität	[g/(cm s)]
$k_{inf}, k_{\infty}$	Multiplikationsfaktor einer unendlichen ausgedehnten Anordnung	[-]
$k'_{inf}, k'_{\infty}$	Multiplikationsfaktor, unendliche Anordnung; Nominalzustand	[-]
$\lambda$	Wärmeleitfähigkeit	[W/(cmK)]
$\lambda$	Zerfallskonstante	[1/s]

$\nu$	durchschnittliche Anzahl Neutronen/Spaltung	[-]
$\rho$	Dichte	[g/cm <sup>3</sup> ]
$\sigma$	mikroskopischer Wirkungsquerschnitt	[barn]
$\sigma_0^i$	gesamter, mikroskopischer Wirkungsquerschnitt aller Nuklide außer Nuklid $i$	[barn]
$\bar{\sigma}_g^{cell}$	zellgemittelter, mikroskopischer Wirkungsquerschnitt der Gruppe $g$	[barn]
$\sigma_t$	mikroskopischer, totaler Wirkungsquerschnitt	[barn]
$\Sigma_f$	makroskopischer Wirkungsquerschnitt für Spaltung	[1/cm]
$\Sigma_t$	makroskopischer, totaler Wirkungsquerschnitt	[1/cm]
$\Sigma_s$	makroskopischer Wirkungsquerschnitt für elastischen Stoß	[1/cm]
$\bar{\Omega}$	Richtungsvektor	[rad <sup>2</sup> ]
$A$	Querschnittsfläche	[cm <sup>2</sup> ]
$c_p$	Wärmekapazität	[J/(gK)]
$E$	Energie	[eV]
$F(\bar{r}, E, \bar{\Omega})$	Streuquellterm innerhalb einer Neutronengruppe	[1/(eVrad <sup>2</sup> cm)]
$F_x$	gewichteter Bondarenko-Faktor	[-]
$k$	Multiplikationskonstante	[-]
$N$	Kernzahldichte eines Nuklids	[1/cm <sup>3</sup> ]
$\dot{m}$	Massenstrom	[g/s]
$P_0^*$	Dancoff korrigierte Resonanzentkommwahrscheinlichkeit	[-]
$\dot{Q}$	thermische Leistung	[W]
$S(\bar{r}, E, \bar{\Omega})$	Streuquellterm innerhalb einer Neutronengruppe	[1/(eVrad <sup>2</sup> cm)]
$T$	Temperatur	[K]
$T^*$	Nominaltemperatur	[K]
$\bar{r}$	Ortsvektor	[cm]
$u$	Lethargie	[-]
$V$	Volumen	[cm <sup>3</sup> ]
$W(E)$	Funktion, die den Neutronenfluß als $f(E)$ enthält. Hier $1/E$ im epithermischen und Maxwell-Funktion im thermischen Bereich.	

## Anhang B - Rechenverfahren

In diesem Kapitel des Anhangs werden zunächst in den Abschnitten B-1.1 bis B-1.5 die innerhalb der Berechnungen verwendeten Programmodule des SCALE 4.2 Programmpaketes /ORN 93/ beschrieben und deren Numerik umrissen. Im Anschluß daran werden die beiden Steuermodule CSASIX (Abschnitt B-2.1) und SAS2 (Abschnitt B-2.2) erläutert. Während CSASIX für die Berechnung der Eigenwerte verwendet wird, berechnet SAS2 die Nuklidvektoren als Funktion des Abbrandes. Die Beschreibung der Implementierung des SCALE 4.2 innerhalb der AIX Umgebung und der entwickelten Programmsteuermodule bzw. Fortranprogramme zur automatisierten Berechnung der Reaktivitätskoeffizienten ist in /Neu 99/ zu finden.

### B-1 SCALE Programmsystem

#### B-1.1 BONAMI-S

Diese Programmprozedur berechnet die nicht auflösbaren Resonanzen nach der Bondarenko-Methode im epithermischen und schnellen Energiebereich. Dazu wird aus einem AMPX-Master-Datensatz /AMP 76/, der die Bondarenko-Faktoren enthält, unter Berücksichtigung der Selbstabschirmung der Resonanzen, ein neuer problembezogener Master-Datensatz erstellt. Im Eingabedatensatz wird die eindimensionale Geometrie und die Zusammensetzung der drei betrachteten Zonen (Brennstoff/Hülle/Moderator) vereinbart. Das Ziel ist die Bestimmung von effektiven Wirkungsquerschnitten der Form

$$\text{Gl. B-1} \quad \bar{\sigma}_g = \frac{\int \sigma(u) \Phi(u) du}{\int \Phi(u) du}.$$

Die fundamentale Beziehung, nach der mit der Bondarenko-Methode /Bon 64/ der Neutronenfluß als Funktion der Lethargie berechnet wird, hat die folgende Proportionalität,

$$\text{Gl. B-2} \quad \Phi(u) \approx \frac{1}{\Sigma_i(u)}.$$

Für die gesamte Wechselwirkungshäufigkeit kann vereinfachend angenommen werden,

$$\text{Gl. B-3} \quad F(u) = \Sigma_i(u) \Phi(u) = \text{const.}$$

Für die spätere Iteration ist es sinnvoll die Gleichung für den effektiven Wirkungsquerschnitt wie folgt umzuformen,

$$\text{Gl. B-4} \quad \bar{\sigma}_g^i = \frac{\int_g \frac{\sigma^i(u)}{\Sigma_i(u)} du}{\int_g \frac{1}{\Sigma_i(u)} du} = \frac{\int_g \frac{\sigma^i(u)}{N_i \sigma_i^i(u) + \sum_{j \neq i} N_j \sigma_i^j(u)} du}{\int_g \frac{1}{N_i \sigma_i^i(u) + \sum_{j \neq i} N_j \sigma_i^j(u)} du}.$$

Definiert man  $\sigma_0^i$  als gesamten mikroskopischen Wirkungsquerschnitt für alle Nuklide außer  $i$  selbst nach **Gl. B-5**, erhält man nach Division des Nenners der Gl. B-4 durch  $N_i$  den Zusammenhang in **Gl. B-6**,

$$\text{Gl. B-5} \quad \sigma_0^i = \frac{\sum_{j \neq i} N_j \sigma_i^j(u)}{N_i},$$

$$\text{Gl. B-6} \quad \bar{\sigma}_g^i = \frac{\int_g \frac{\sigma^i(u)}{\sigma_i^i(u) + \sigma_0^i(u)} du}{\int_g \frac{1}{\sigma_i^i(u) + \sigma_0^i(u)} du}.$$

Zur Berechnung der effektiven Wirkungsquerschnitte nach der Bondarenko-Methode wird für  $\sigma_0$  für jede Energiegruppe ein konstanter Wert angenommen. Dadurch wird eine Vorausberechnung ohne genaues Kenntnis der Wichtung der einzelnen Komponenten ermöglicht. Für den Grenzfall der unendlichen Verdünnung  $\sigma_0^i = \infty$  wird in /ORN 93/ die **Gl. B-7** definiert, die eine vereinfachte Form von **Gl. B-6** ist,

$$\text{Gl. B-7} \quad \bar{\sigma}_g^\infty = \frac{\int_g \sigma(u) du}{\int_g du}.$$

Die Bondarenko-Faktoren werden dann für endliche  $\sigma_0$  und bei der Temperatur  $T$  folgendermaßen definiert,

$$\text{Gl. B-8} \quad \bar{\sigma}_g(\sigma_0, T) = F_g(\sigma_0, T) \bar{\sigma}_g^\infty.$$

BONAMI berechnet die Wirkungsquerschnitte für einige  $\sigma_0$  und T und interpoliert zwischen diesen Werten. Für heterogene Anordnungen werden die oben skizzierten Zusammenhänge dadurch modifiziert, daß man einen effektiven Leckage-Wirkungsquerschnitt  $\sigma_e$  zu dem  $\sigma_0$  Term addiert. Dabei wird  $\sigma_e$  durch **Gl. B-9** berechnet,

$$\text{Gl. B-9} \quad \sigma_e = \frac{1}{\bar{l}N_i} \quad .$$

mit  $\bar{l}=4*\text{Volumen}/\text{Oberfläche}$ . Um die benachbarten Einheitszellen im Reaktor zu berücksichtigen, bedient man sich bei der Bestimmung von  $\sigma_e$  des Dancoff-Faktors.

Die Bondarenko-Faktoren werden getrennt nach  $\sigma_0$  und T zwischen den berechneten Stützpunkten iteriert. Dabei besitzen die Iterationsgleichungen ähnliche Strukturen. Für die Abhängigkeit von  $\sigma_0$  gilt,

$$\text{Gl. B-10} \quad f_T(\sigma_0) = f(\sigma_i) + \frac{\sigma_0^q - \sigma_i^q}{\sigma_{i+1}^q - \sigma_i^q} [f_T(\sigma_{i+1}) - f(\sigma_i)] \quad .$$

Zur Berücksichtigung der Doppler-Verbreiterungen der Resonanzen bei Temperaturerhöhung wird jeweils für konstante  $\sigma_0$ -Werte eine Iteration durchgeführt. Dabei ist das Rechenschema analog zu **Gl. B-10**,

$$\text{Gl. B-11} \quad f(T) = f_i + \frac{T^p - T_i^p}{T_{i+1}^p - T_i^p} (f_{i+1} - f_i) \quad .$$

Das Ergebnis ist ein auf die Problemstellung bezogener, neuer Master-Datensatz, der Wirkungsquerschnitte enthält, die die Selbstabschirmung der Resonanzen im oberen epithermischen und schnellen Energiebereich berücksichtigen.

### B-1.2 NITAWL-II

Dieses Modul berücksichtigt die auflösbaren Resonanzen im oberen thermischen, sowie im epithermischen Energiebereich unter Berücksichtigung der geometrieabhängigen Selbstabschirmung. Dazu werden die Resonanzen nach der Nordheim Integralmethode berechnet. Bei der Nordheim Integralmethode ist die Bestimmung der Energieabhängigkeit des Neutronenflusses erforderlich. Für die energieabhängige Wechselwirkungshäufigkeit gilt

$$\text{Gl. B-12} \quad \Phi(E)\Sigma_i(E) = \sum_{i=1}^3 \left[ \frac{(1-P_0^*(E))^{(1-\alpha)}}{\alpha_i} \int_E^E \frac{\Phi(E')\Sigma_{si}(E')}{E'} dE' + P_0^*(E)\Sigma_{ii}(E)W(E) \right] .$$

Dabei wird über drei Materialzonen in der Einheitszelle addiert. Der erste Term auf der rechten Seite ist der Quellterm in der Energiegruppe  $E$  durch das Herabstreuen von Energien  $E'$  oberhalb von  $E$ . Dabei muß nur über den Energiebereich  $[E, E/(1-\alpha)]$  integriert werden, weil nur aus diesem Intervall Streuungen in die

Gruppe  $E$  stattfinden können. Der zweite Teil erfaßt den Quellterm, der sich aus Rückstreuungen aus anderen Zonen in die Resonanzabsorberzone ergibt. Dazu wird die Reziprozitätsbeziehung von Rothenstein /Rot 60/ ,

$$\text{Gl. B-13} \quad P_{01} \Sigma_{r1} V_1 = P_{02} \Sigma_{r2} V_2 \quad ,$$

die unter den dort genannten Randbedingungen gültig ist, verwendet. Dadurch muß der Leckagestrom aus dem Moderator nicht berechnet werden, sondern kann durch den Neutronenstrom vom Resonanzabsorber in der Brennstoffzone zum Moderator bestimmt werden. Um den Einfluß der Hüllrohre und der benachbarten Zellen zu berücksichtigen, bedient man sich, wie bei der Berechnung der nicht auflösbaren Resonanzen, des Dancoff-Faktors. Für die Übergangswahrscheinlichkeit in die Energiegruppe  $E$  ergibt sich /ORN 93/ ,

$$\text{Gl. B-14} \quad P_0^*(E) = P_0(E) \frac{(1-C)}{1 - [1 - \Sigma_r(E) \bar{l}] P_0(E) C} \quad .$$

Zur numerischen Lösung wird zunächst die Lethargie  $u = \ln(E_1/E)$  eingeführt und eine Normierung des makroskopischen Wirkungsquerschnittes durch Division mit der Nuklidichte vorgenommen. Jede Resonanz wird einzeln behandelt. Dies ermöglicht es, eine Energie  $E_1$  anzugeben, oberhalb der ein  $1/E$ - Verlauf des Flusses angenommen werden kann. Von dieser jeweiligen Energie ab wird mittels einer Summation das Integral angenähert und die Wirkungsquerschnitte innerhalb der Resonanz bestimmt. Dabei werden für jedes Intervall der Lethargie die Resonanz-Wirkungsquerschnitte und Removal-Wirkungsquerschnitte berechnet, um die Zahl der gesamten Wechselwirkungen bestimmen zu können. Nachdem dies erfolgt ist, wird die zugeordnete Flußverteilung verwendet, um die Wirkungsquerschnitte entsprechend der jeweiligen Gruppenstruktur zu wichten. Genauere Angaben über die Numerik finden sich in /ORN 93/. Zur Berücksichtigung der Doppler-Verbreiterung der Resonanzen wird zunächst der Wirkungsquerschnitt bei einer in dem Master-Datensatz enthaltenen Temperatur bestimmt. Anschließend wird dann auf die Probletemperatur umgerechnet, um den problembezogenen Neutronenfluß zu bestimmen. Die Wirkungsquerschnitte werden dafür über die Energiegruppen und Zonen nach Gl. B-15,

$$\text{Gl. B-15} \quad \bar{N} \bar{\sigma}_g^{cell} \bar{\Phi}_g^{cell} V_{cell} = \int_{Fuel} N(\bar{r}) d\bar{r} \int_g \bar{\Phi}^{Fuel}(E) \sigma(E) dE \quad ,$$

gemittelt. In NITAWL-II wird die Selbstabschirmung der Resonanzen bei einer heterogenen Anordnung berücksichtigt, indem man zunächst von den Werten für eine „unendliche Verdünnung“ ausgeht. Bei dieser unendlichen Verdünnung findet keine Selbstabschirmung statt. Zu diesen Werten wird dann ein  $\Delta\sigma$  ( $<0$ ) addiert, das die Veränderung der Wirkungsquerschnitte durch die Selbstabschirmung wiedergibt

$$\text{Gl. B-16} \quad \sigma = \sigma_{in\ unendlicher\ Verdünnung} + \Delta\sigma_{Selbstabschirmung} \quad .$$

Nach Beendigung der Wichtung der Resonanzen in der Brennstoffzone erstellt NITAWL-II einen Arbeitsdatensatz. Dieser Datensatz ist dann von den Transportprogrammen verarbeitbar und enthält die zellgewichteten Wirkungsquerschnitte für die einzelnen Energiegruppen. Die genaue Struktur dieser Datensätze ist ebenfalls in /ORN 93/ beschrieben.

### B-1.3 XSDRNPM-S

Das Modul XSDRNPM-S löst die Boltzmann-Gleichung in Kartesischen-, Zylinder- oder Kugelkoordinaten eindimensional. Das bedeutet, daß im Falle von Zylinder bzw. kartesischen Koordinaten die anderen Dimensionen als nur infinitesimal ausgedehnt betrachtet werden. Die Neutronenleckagen in diesen nicht betrachteten Dimensionen werden vernachlässigt. Im Rahmen des Programmpakets SCALE 4.2 wird das XSDRNPM-S Modul benutzt zur Eigenwertbestimmung ( $k_{\infty}$ ) und Berechnung der zellgemittelten, vom effektiven Fluß in den einzelnen Zonen abhängigen Wirkungsquerschnitte. Die so kondensierten Eingruppenquerschnitte werden von ORIGIN weiterverarbeitet. Für die Anzahl der betrachteten Zonen und Energiegruppen bzw. berücksichtigten Nuklide macht XSDRNPM-S keine direkte Beschränkung. Diese Grenzen werden nur durch die Rechnerleistung beschränkt. Zur Berechnung der Flüsse und Eigenwerte wird standardmäßig die  $S_n$ -Theorie /ORN 93/ verwendet. Optional stehen auch die  $B_n$ -Theorie, Diffusionsgleichung und die Theorie der „unendlichen Verdünnung“ zur Verfügung die ebenfalls in /ORN 93/ beschrieben werden. Diese anderen Berechnungsmethoden sind im Vergleich zur  $S_n$ -Theorie nicht so weit optimiert.

Die zeitunabhängige Transportgleichung nach Boltzmann kann geschrieben werden als,

$$\text{Gl. B-17} \quad \bar{\Omega} * \nabla \Psi(\bar{r}, E, \bar{\Omega}) + \Sigma_s(\bar{r}, E) \Psi(E, \bar{r}, \bar{\Omega}) = S(\bar{r}, E, \bar{\Omega}) .$$

Diese Gleichung drückt das Gleichgewicht zwischen Neutronenleckage aus der Zelle und Neutronenabsorption in der Zelle einerseits und dem Quellterm andererseits aus. Für die Integration ist die Bilanzgrenze jeweils ein infinitesimaler Vektorraum aus Ort  $\bar{r}$ , Energie  $E$  und Richtung  $\bar{\Omega}$ . Der Quellterm kann in Streu-, Spaltung- und äußere Quellen aufgeteilt werden. Wobei Gl. B-18 und Gl. B-19 den Streu- respektive den Spaltungsquellterm beschreiben,

$$\text{Gl. B-18} \quad S(\bar{r}, E, \bar{\Omega}) = \int_0^{4\pi} d\bar{\Omega}' \int_0^{\infty} dE' \Sigma_s(\bar{r}, E' \longrightarrow E, \bar{\Omega}' \longrightarrow \bar{\Omega}) \Psi(\bar{r}, E', \bar{\Omega}'),$$

$$\text{Gl. B-19} \quad F(\bar{r}, E, \bar{\Omega}) = \frac{1}{4\pi k} \chi(\bar{r}, E) \int_0^{4\pi} d\bar{\Omega}' \int_0^{\infty} dE' v(\bar{r}, E') \Sigma_f(\bar{r}, E') \Psi(\bar{r}, E', \bar{\Omega}') .$$

Durch die eindimensionale Betrachtung kann der Leckage Term der Transportgleichung wesentlich vereinfacht werden. Die genaue mathematische Beschreibung befindet sich in /ORN 93/. Zur Anpassung an die jeweilige Problemstellung können verschiedene Randbedingungen berücksichtigt werden. So wird insbe-

sondere für die hier durchgeführten Zellrechnungen der Neutronenfluß an der äußeren Grenze der Einheitszelle als ideal reflektiert angenommen.

Die Zellwichtung der Wirkungsquerschnitte wird nach **Gl. B-20** durchgeführt, wobei IZM die Zahl der betrachteten Materialzonen und W das entsprechend für jedes Nuklid g gewichtete Neutronenspektrum bezeichnen,

$$\text{Gl. B-20} \quad \bar{\sigma}_G = \frac{\sum_j^{IZM} N^j \sum_{g \in G} \sigma_g^j W_g^j}{N \sum_j^{IZM} \sum_{g \in G} W_g^j} .$$

Genauere Angaben über die Wichtung der Spektren sind ebenfalls in /ORN 93/ enthalten.

### B-1.4 COUPLE

Das Modul COUPLE hat die Aufgabe, die Ausgabedatensätze von XSDRNPM-S so aufzubereiten, daß sie von dem Abbrandprogrammmodul ORIGEN-S als Eingabedatensatz verwendet werden können. Dabei werden die problemspezifischen Wirkungsquerschnitte und Neutronenflußwichtungsfaktoren für drei Energiegruppen (thermisch, Resonanzbereich und schnell) für jedes Nuklid zu binären, unformatierten Datensätzen zusammengefaßt, die unmittelbar von ORIGEN-S gelesen werden können. Genauere Angaben über das Modul und seine weiteren Optionen sind in /ORN 93/ enthalten.

### B-1.5 ORIGEN-S

Die Programmprozedur ORIGEN-S berechnet die zeitabhängige Isotopenverteilung im Reaktor. Dabei werden Neutroneneinfang, Spaltung, radioaktiver Zerfall und evtl. äußere Zu- bzw. Abgaben von Nukliden berücksichtigt. Als Eingabedatensatz kann bei der SCALE-Version von ORIGEN der von COUPLE erstellte, binäre Datensatz verwendet werden. Die vier Standard Datenbanken, über die ORIGEN zur Berechnung von LWRs, LMFBRs MSBRs und HTGRs verfügt, werden automatisch dem speziellen Problem angepaßt. Damit kann jede vom Benutzer definierte Zelle innerhalb des SCALE Systems automatisch berechnet werden. Das Modul wird hier eingesetzt, um die Transuran-Mengen (TRU), die während der Bestrahlung im Reaktor gebildet werden, zu berechnen.

Die analytische Gleichung, nach der ORIGEN-S die Nuklidkonzentrationen eines jeden Nuklids  $i$  bestimmt, ist,

$$\text{Gl. B-21} \quad \frac{dN_i}{dt} = \sum_j \gamma_{ji} \sigma_{\beta j} N_j \Phi + \sigma_{n\gamma, i-1} N_{i-1} \Phi + \lambda'_i N'_i - \sigma_{\beta i} N_i \Phi - \sigma_{n\gamma, i} N_i \Phi - \lambda_i N_i .$$

Dabei ist  $\Phi$  der zonengemittelte Neutronenfluß, der sich aus den gewichteten Wirkungsquerschnitten ergibt. Die mikroskopischen Wirkungsquerschnitte in Gl. B-21 sind als Wahrscheinlichkeiten für die entsprechenden Reaktionen zu deuten. In Realität ist der Neutronenfluß in den einzelnen Zonen von den sich zeit-

lich ändernden Nuklidkonzentrationen abhängig. Wird davon ausgegangen, daß sich der Fluß für einen Zeitschritt  $\Delta t$  nicht ändert, kann unter dieser Vereinfachung die oben genannte Differentialgleichung innerhalb eines Zeitintervalls als eine lineare Differentialgleichung 1. Ordnung gelöst werden. Wegen dieser Unterteilung in Zeitintervalle, kommt es zu dem oben geschilderten Mehrfachdurchlauf der Programmodule innerhalb eines SAS2H Laufs. Die ausführliche Beschreibung der mathematischen Lösungsverfahren wie sie in ORIGEN-S implementiert sind, findet sich in der Programmbeschreibung /ORN 93/. Dort finden sich ebenfalls Beschreibungen zu verschiedenen Optionen, die ORIGEN-S anbietet.

Restunsicherheiten, die in den Berechnungen entstehen, liegen einerseits bei Nukliden, die auf Grund von Beschränkungen des Rechenaufwandes nicht berücksichtigt werden und andererseits in den verwendeten Daten der verwendeten Datenbanken. Zum ersten Punkt sei darauf hingewiesen, daß die sehr kurzlebigen Spaltprodukte nicht einzeln berechnet werden, sondern deren Anteil durch modifizierte Yields direkt den Nukliden mit größeren Halbwertszeiten zugeordnet wird. Dabei ist das Ergebnis des implementierten Algorithmus nur näherungsweise richtig, da der neutronische Einfluß dieser real im Reaktor während des Betriebes existierenden Elemente nicht erfaßt wird. Für die meisten Nuklide entsteht aber der anteilig größere Fehler durch Unsicherheiten in den verwendeten Daten die durch,

- Fehler bei den Messungen von Wirkungsquerschnitten,
- Rechenungenauigkeiten bei der numerischen Anpassung der Wirkungsquerschnitte auf das Problem,
- Numerische Fehler innerhalb von ORIGEN-S, die durch die angenäherte Zeitabhängigkeit des Flusses innerhalb eines Zeitintervalls  $\Delta t$ ,

entstehen.

## B-2 Steuermodule

Innerhalb des SCALE Programmpaketes existieren verschiedene Programmsteuermodule. Diese Module koppeln die einzelnen Programmprozeduren in unterschiedlicher Weise, je nach Zielsetzung der Rechnung. So wird der Eingabeaufwand für jede Rechnung auf den jeweiligen Eingabedatensatz begrenzt. Im Rahmen dieser Arbeit werden die Steuermodule CSAS1X und SAS2H benutzt.

### B-2.1 CSAS1X

CSAS1X dient zum Berechnen des  $k_{\infty}$ -Wertes einer Einheitszelle, wobei die zugehörigen zellgewichteten Wirkungsquerschnitte ebenfalls berechnet werden. Im einzelnen werden von CSAS1X die in **Abb. B-1** gezeigten Programmprozeduren, die in den Abschnitten B-1.1 bis B-1.3 näher erläutert werden, aufgerufen.

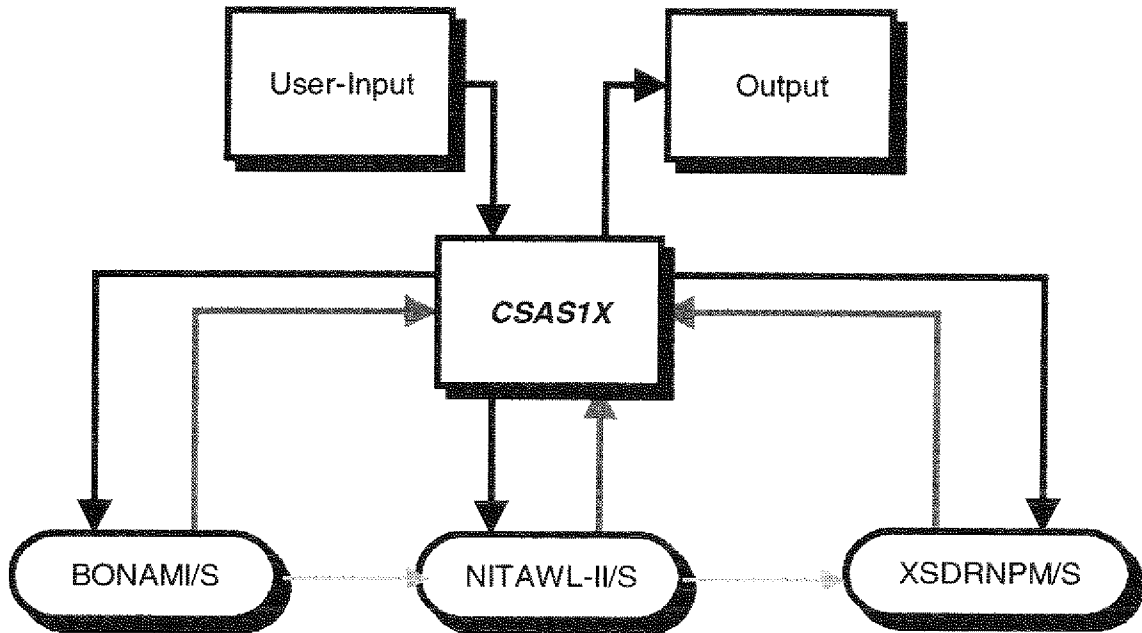


Abb. B-1: Programmflußschema für CSAS1X.

### B-2.2 SAS2

Bei dem Programmmodul SAS2H liegt das Ziel in einer Abbrandrechnung zur Bestimmung der jeweiligen Schwermetallnuklidvektoren. Die Programmprozeduren werden nach dem Schema in Abb. B-2 aufgerufen. Zu Beginn des Programms wird analog zu dem CSAS1X-Lauf das Neutronenspektrum und der  $k_{\infty}$ -Wert der Einheitszelle in der angegebenen Zusammensetzung berechnet. Die sich anschließende Rekursion wird je nach gewünschten Abbrandintervallen unterschiedlich

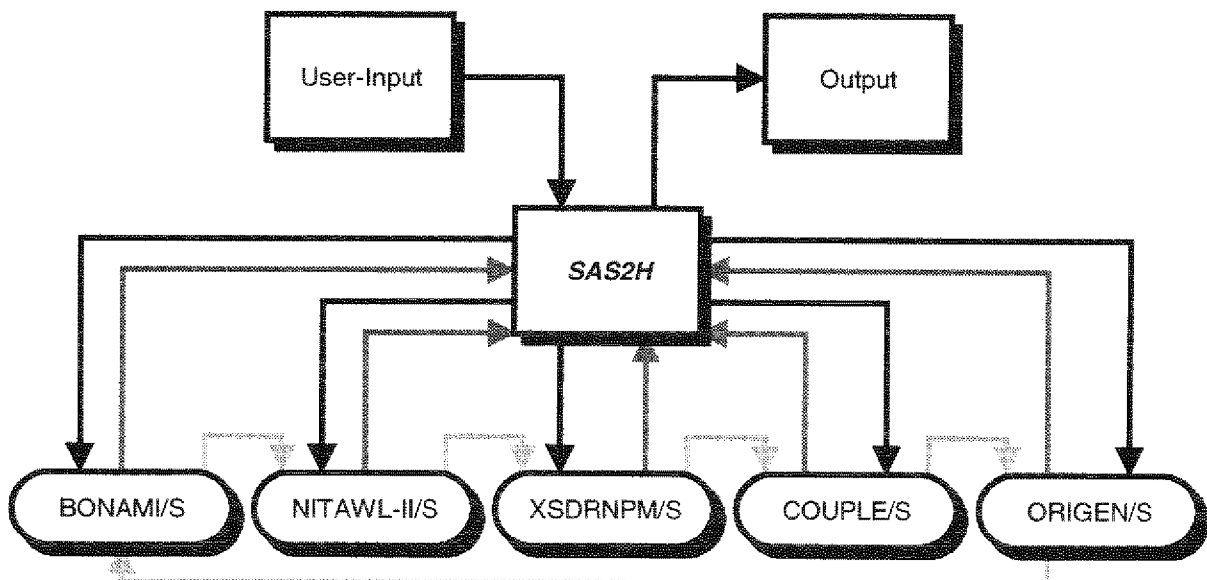


Abb. B-2: Programmflußschema für SAS2.

oft durchlaufen. In **Abb. B-2** ist der Ablauf dieser Rekursion durch die hellen Linien verdeutlicht. Die eigentliche Ablaufsteuerung wird auch während der Rekursion vom Modul SAS2H übernommen. Die jeweiligen Neutronenflüsse und auch die jeweiligen Nuklidvektoren werden jedesmal mit den entsprechend gewichteten Wirkungsquerschnitten berechnet und als neue Eingangsdaten für den nächsten Durchlauf übernommen. Das Ergebnis ist also um so genauer, je kleiner die Intervalle sind. Durch Verkleinern der Abbrandintervalle steigt der Rechenaufwand entsprechend an. Auf die zusätzliche Möglichkeit einen Transportbehälter mit entsprechender Abschirmung für das Nuklidgemisch zu berechnen, die SAS2H anbietet, wird hier verzichtet.



## Anhang C - Benchmarking

### C-1 Vergleich mit Benchmarkdaten

Neben dem in Abschnitt 5.1 dargestellten Vergleich der Kritikalitätswerte /Rüt 96/ der Benchmarkteilnehmer mit denen durch das SCALE berechneten, wurde ein Vergleich der zeitlichen Entwicklung der Anteile der Schwermetalle im Brennstoff durchgeführt. Dabei wurde insbesondere die Abnahme des Plutonium Anteils (Abb. C-1) am Schwermetall, der Anteil der thermisch gut spaltbaren Plutoniumisotope am gesamten Plutonium (Abb. C-2), das Verhältnis der Nuklide  $^{233}\text{Pa}$  und  $^{233}\text{U}$  zur Zahl der im frischen Brennstoff enthaltenen thermisch gut spaltbaren Plutoniumisotope (Abb. C-3), als auch das Verhältnis der erbrüteten Minor Actinides (MA) (Abb. C-4) zu anfänglich vorhandenem gesamten Plutonium untersucht.

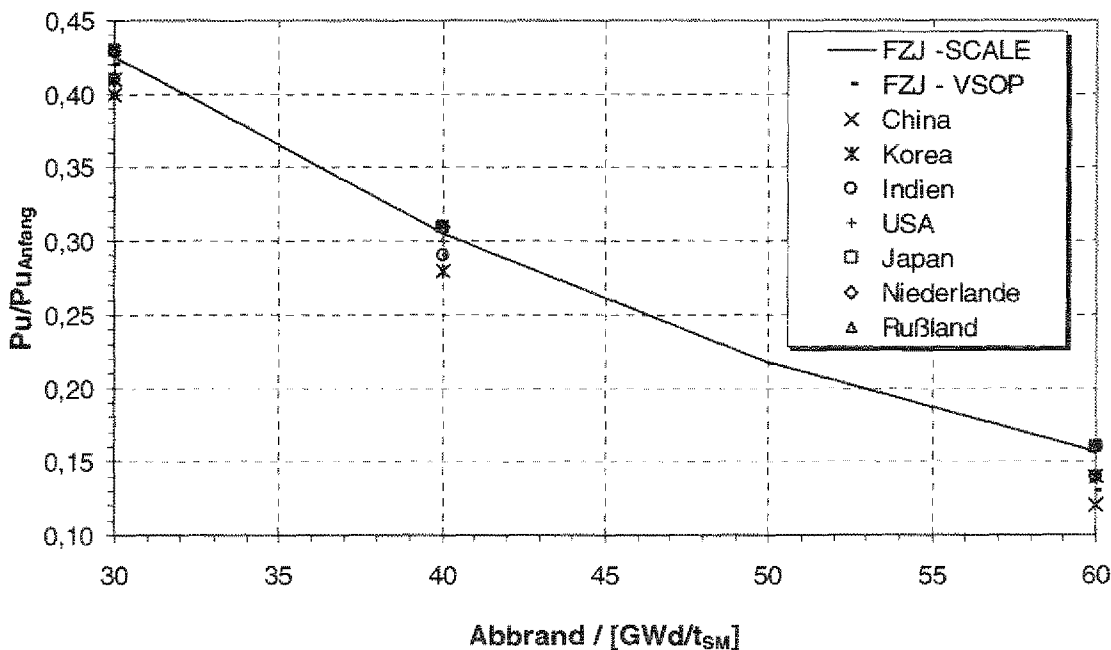


Abb. C-1: Vergleich des Verhältnisses von Plutonium zu Plutonium im frischen Brennstoff.

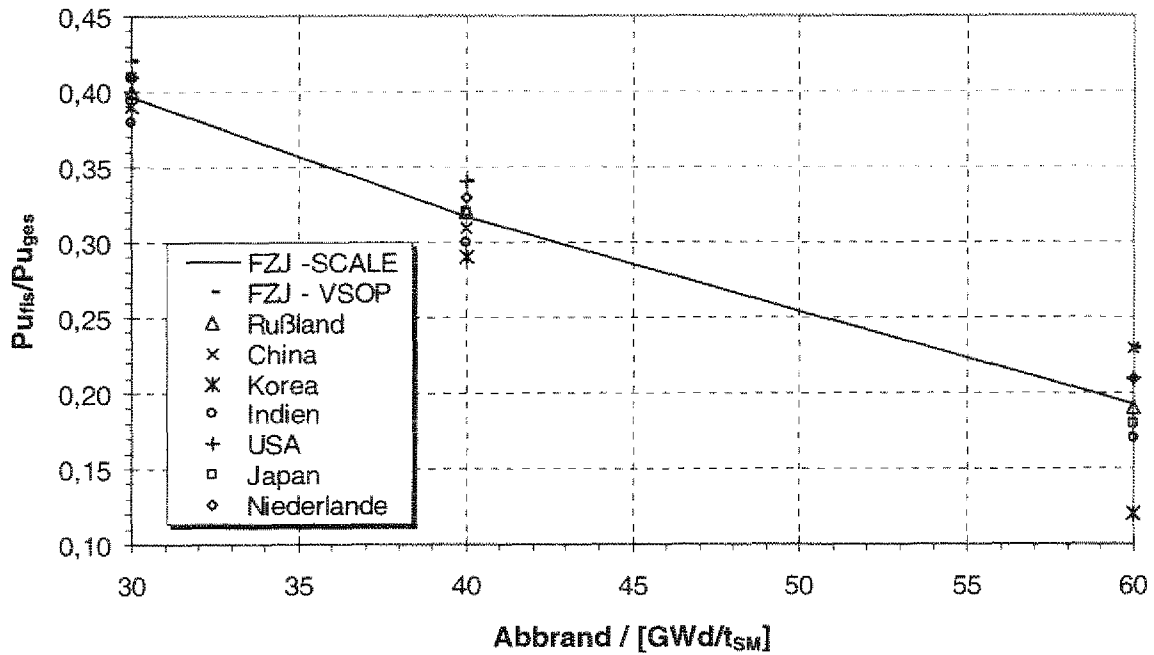


Abb. C-2: Anteil der thermisch gut spaltbaren Plutoniumisotope am gesamten Plutonium.

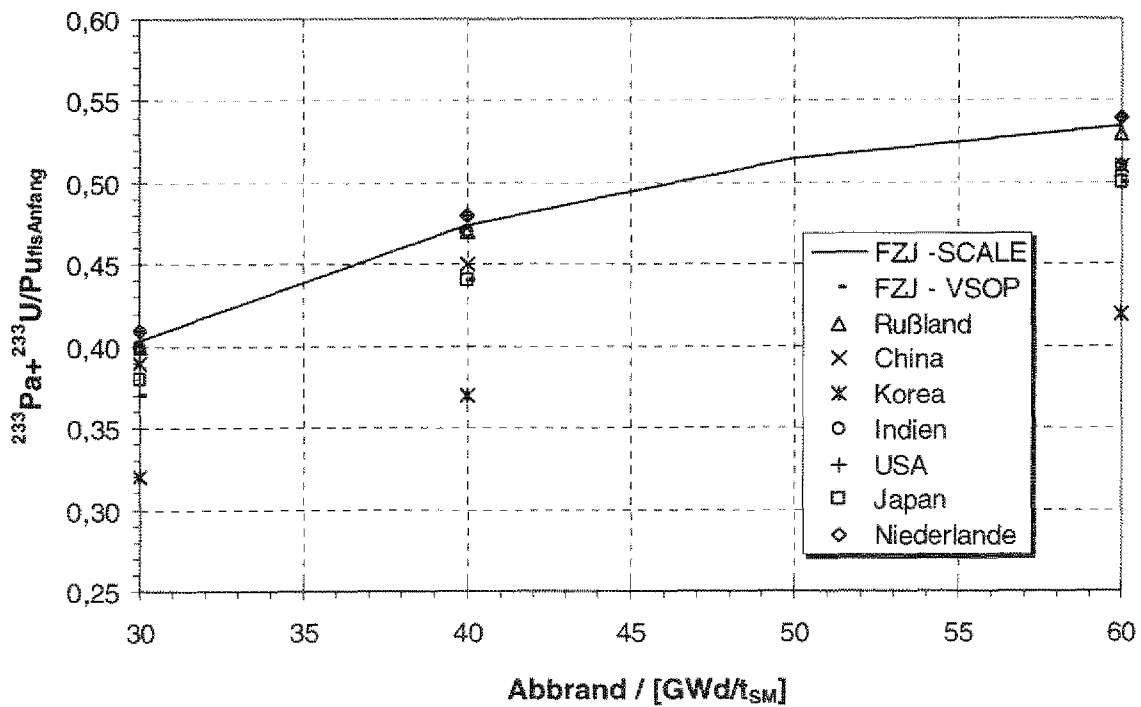


Abb. C-3: Anteil des erbrüteten  $^{233}Pa$  und  $^{233}U$  bezogen auf die Zahl der zu Beginn im Brennstoff enthaltenen thermisch gut spaltbaren Plutoniumisotope.

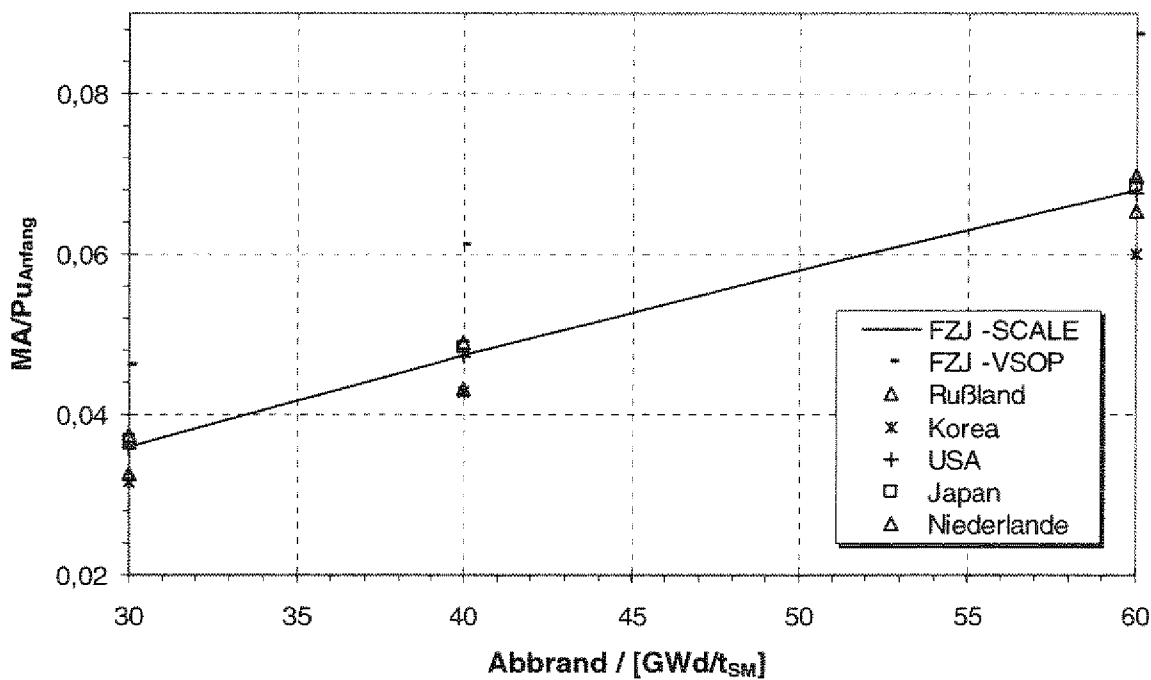


Abb. C-4: Verhältnis der erbrüteten MA-Elemente zum anfänglichem Pu-Gehalt.

Der Vergleich mit den Werten der anderen Teilnehmer an den Benchmarkrechnungen zeigt, daß die durch SCALE generierten Werte auch hier innerhalb der Streuung der anderen Institute liegen. Bei den meisten Werten befinden sich die FZJ-SCALE Werte sogar im Mittelfeld aller Rechenwerte. Auffallend ist, daß in **Abb. C-4** die FZJ VSOP Werte deutlich oberhalb der Ergebnisse der anderen Benchmarkteilnehmer liegen. Die Ursache ist eine nicht erfolgte Berücksichtigung der Selbstabschirmung des <sup>242</sup>Pu in der zum Zeitpunkt des Benchmarks verwendeten Programmversion.



## Anhang D – Sicherheitsverhalten

Für alle untersuchten Brennstoffe sind die Reaktivitätskoeffizienten bestimmt worden. Die wesentlichen Ergebnisse sind in den Abschnitten 6.4, 6.5.3 und 7.2 bereits erläutert worden. In diesem Abschnitt des Anhangs werden für die einzelnen Brennstoffe die  $k$ -Werte jeweils für die Nominal- als auch für die davon abweichenden Bedingungen (erhöhte Brennstofftemperatur, erhöhte Moderator-temperatur mit entsprechender Dichteverringern, Moderatorordichtereduzierung auf 1 % der Nominaldichte und Borwirksamkeit durch Erhöhung der Borsäurekonzentration um 100 ppm) aufgeführt. Zusätzlich werden die Reaktivitätskoeffizienten jedes Brennstoffs in Diagrammen gezeigt. Die Diagramme sind nach den untersuchten Abbränden sortiert. Die **Abb. D-1** bis **Abb. D-6** behandeln die Uran-, U-MOX und Th-MOX Brennstoffe mit einem Entladeabbrand von  $47,5 \text{ GWd}/t_{\text{SM}}$ . In **Abb. D-7** bis **Abb. D-16** sind die entsprechenden Diagramme für Entladeabbrände von  $60 \text{ GWd}/t_{\text{SM}}$  gezeigt, wobei die Plutoniumfraktion der MOX Brennstoffe jeweils aus Uran mit  $47,5 \text{ GWd}/t_{\text{SM}}$  oder  $60 \text{ GWd}/t_{\text{SM}}$  erzeugt wurde. Analog zeigen die **Abb. D-17** bis **Abb. D-30** die  $k$ -Werte und Reaktivitätskoeffizienten der Brennstoffe mit  $100 \text{ GWd}/t_{\text{SM}}$ . Hier wird der Plutonium Vektor der MOX Systeme aus Uranbrennstoffen mit den Entladeabbränden  $47,5 \text{ GWd}/t_{\text{SM}}$ ,  $60 \text{ GWd}/t_{\text{SM}}$  und  $100 \text{ GWd}/t_{\text{SM}}$  erbrütet. Die nukleare Stabilität der zweifach rezyklierten Brennstoffe kann nach den **Abb. D-31** bis **Abb. D-36** beurteilt werden, während die **Abb. D-37** bis **Abb. D-40** die Verhältnisse für die TRU-Brennstoffe widerspiegeln. Die wesentlichen Schlußfolgerungen zu den Reaktivitätskoeffizienten sind bereits in den Kapiteln 6 und 7 diskutiert worden.

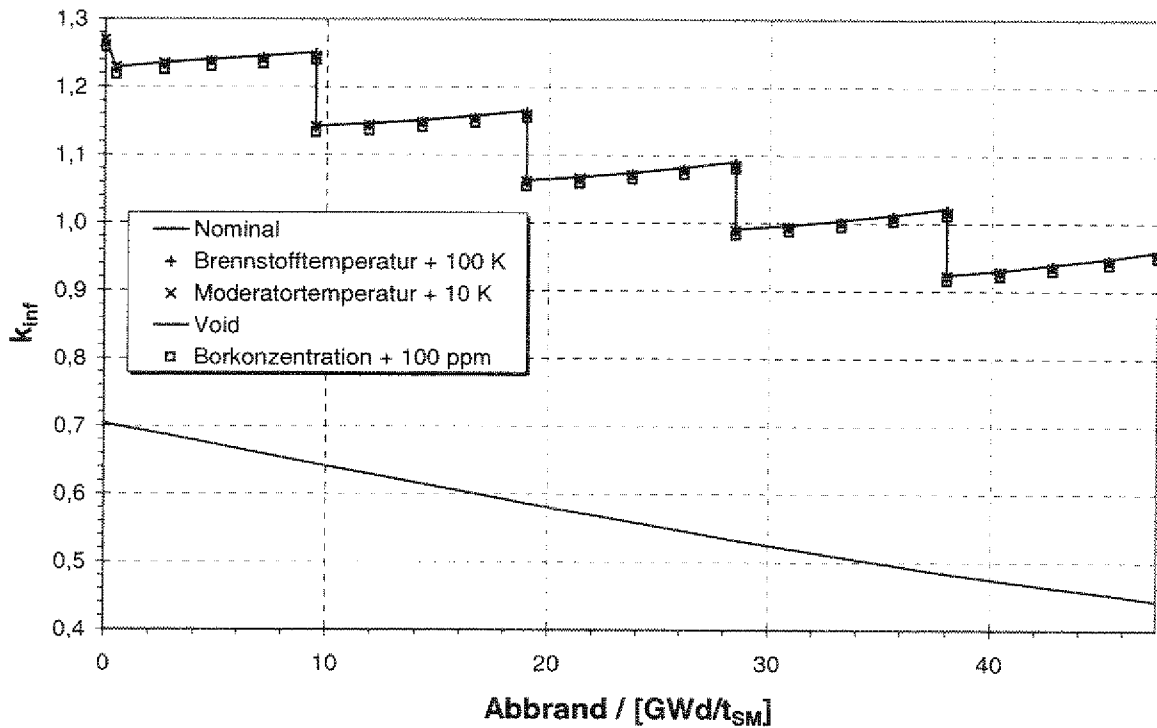


Abb. D-1: Verlauf der  $k$ -Werte bei Uran Brennstoff mit einem Entladeabbbrand von 47,5  $\text{GWd/t}_{\text{SM}}$ .

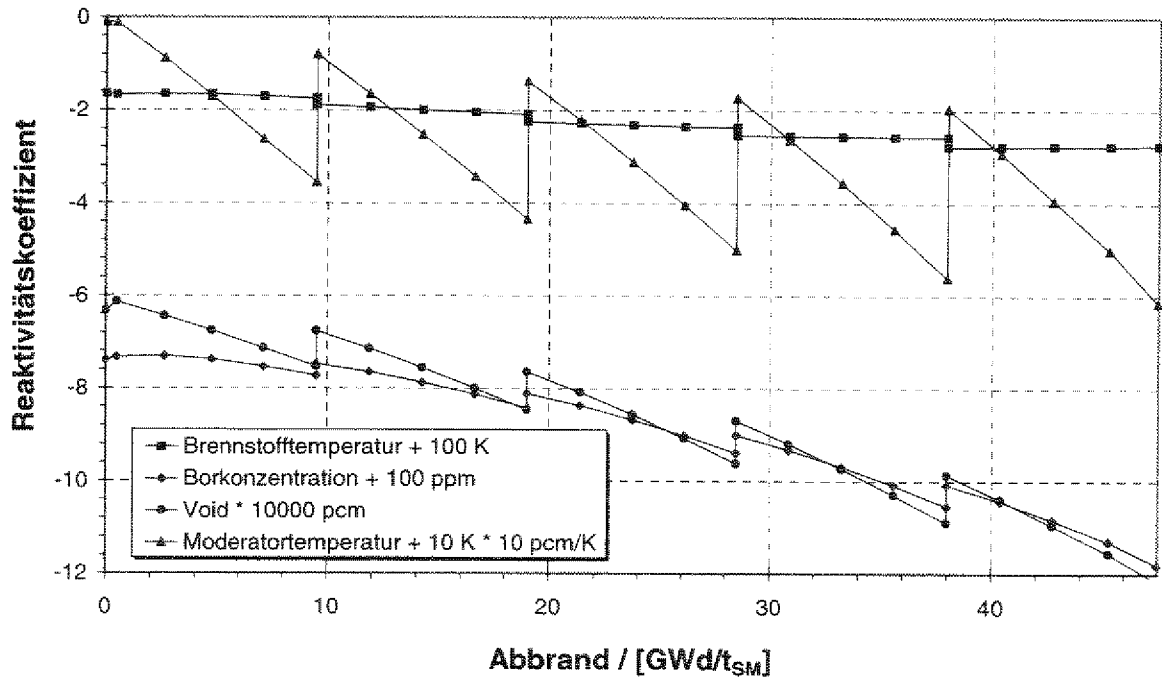


Abb. D-2: Reaktivitätskoeffizienten des Uran Brennstoffes mit einem Entladeabbbrand von 47,5  $\text{GWd/t}_{\text{SM}}$  in pcm/K für Brennstofftemperatur, in 1/10 pcm/K für Moderatortemperatur, in 1/10000 pcm für den Void-Koeffizienten und pcm/ppm Bor für die Borwirksamkeit.

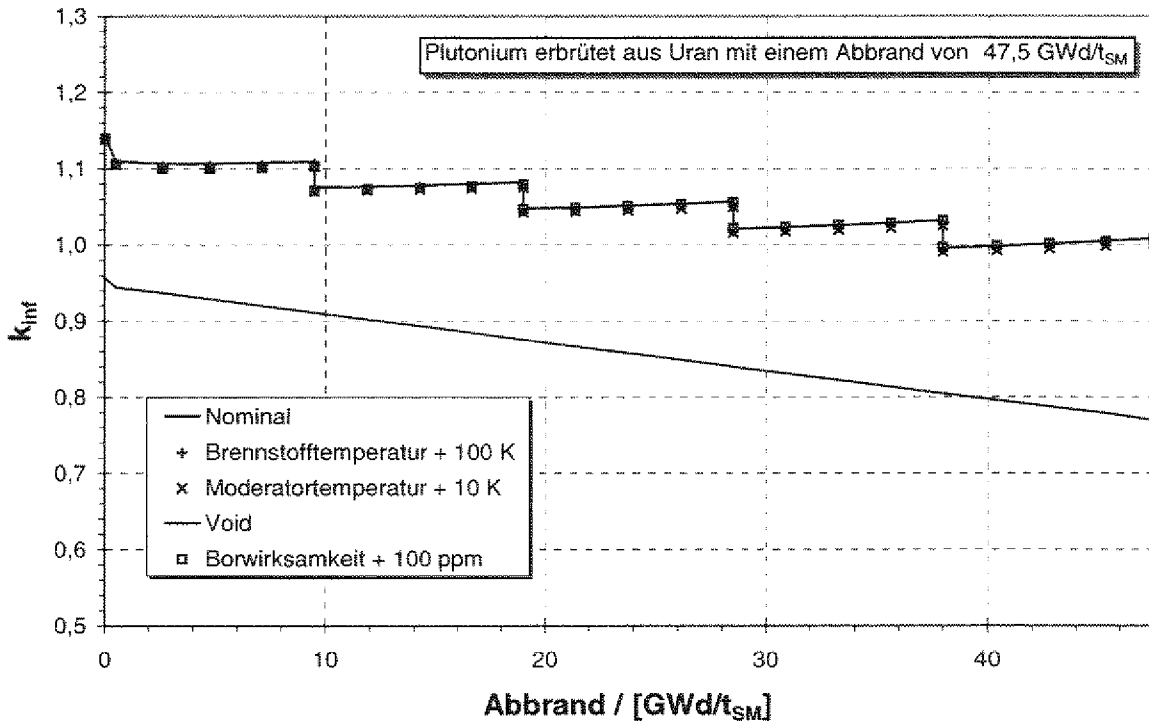


Abb. D-3: Verlauf der  $k$ -Werte bei U-MOX Brennstoff mit einem Entladeabbrand von 47,5  $\text{GWd/t}_{\text{SM}}$ .

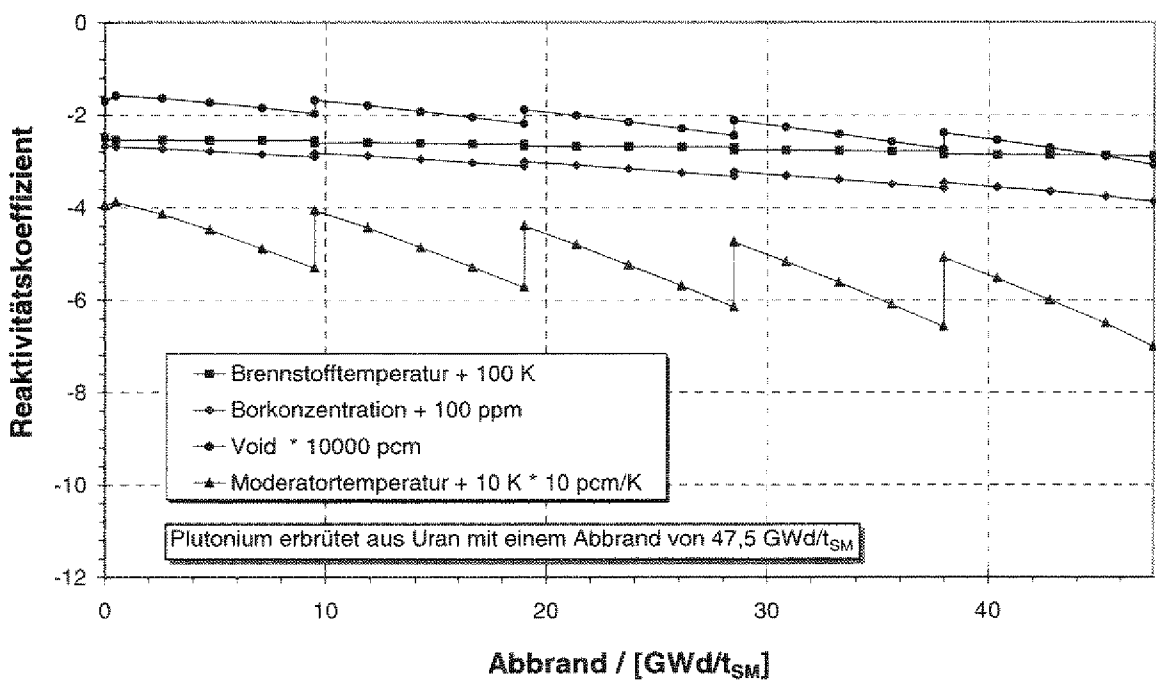


Abb. D-4: Reaktivitätskoeffizienten des U-MOX Brennstoffes mit einem Entladeabbrand von 47,5  $\text{GWd/t}_{\text{SM}}$  in pcm/K für Brennstofftemperatur, in 1/10 pcm/K für Moderatortemperatur, in 1/10000 pcm für den Void-Koeffizienten und pcm/ppm Bor für die Borwirksamkeit.

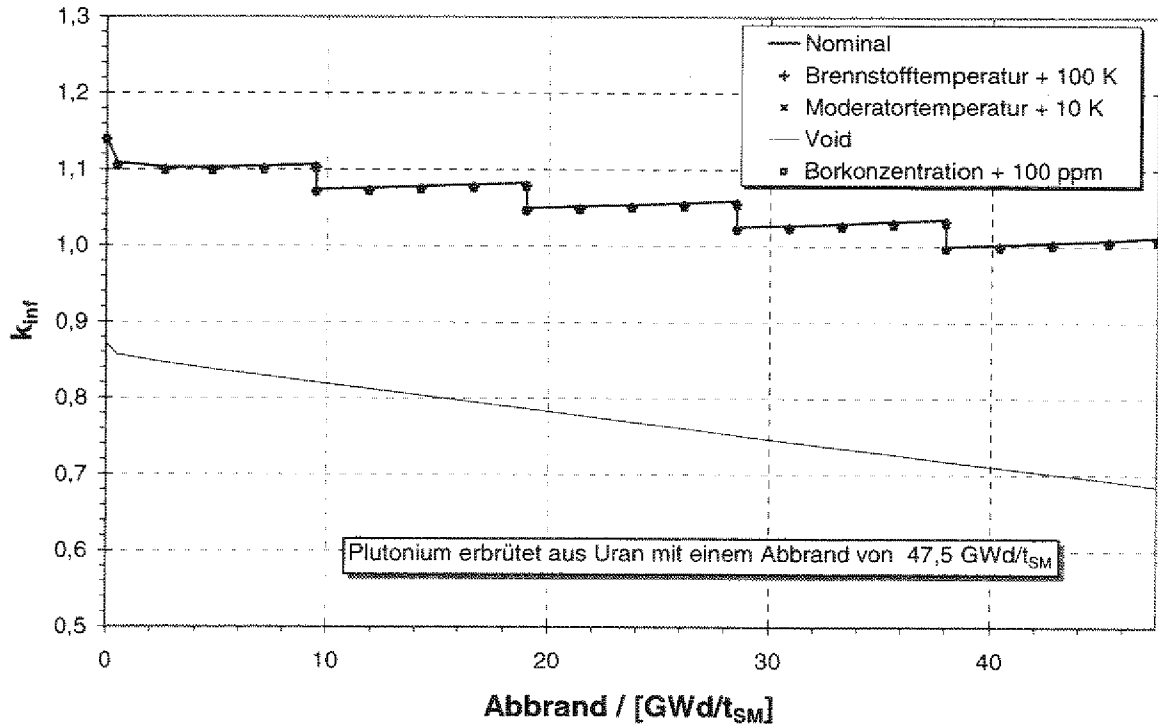


Abb. D-5: Verlauf der k-Werte bei Th-MOX Brennstoff mit einem Entladeabbrand von 47,5 GWd/t<sub>SM</sub>.

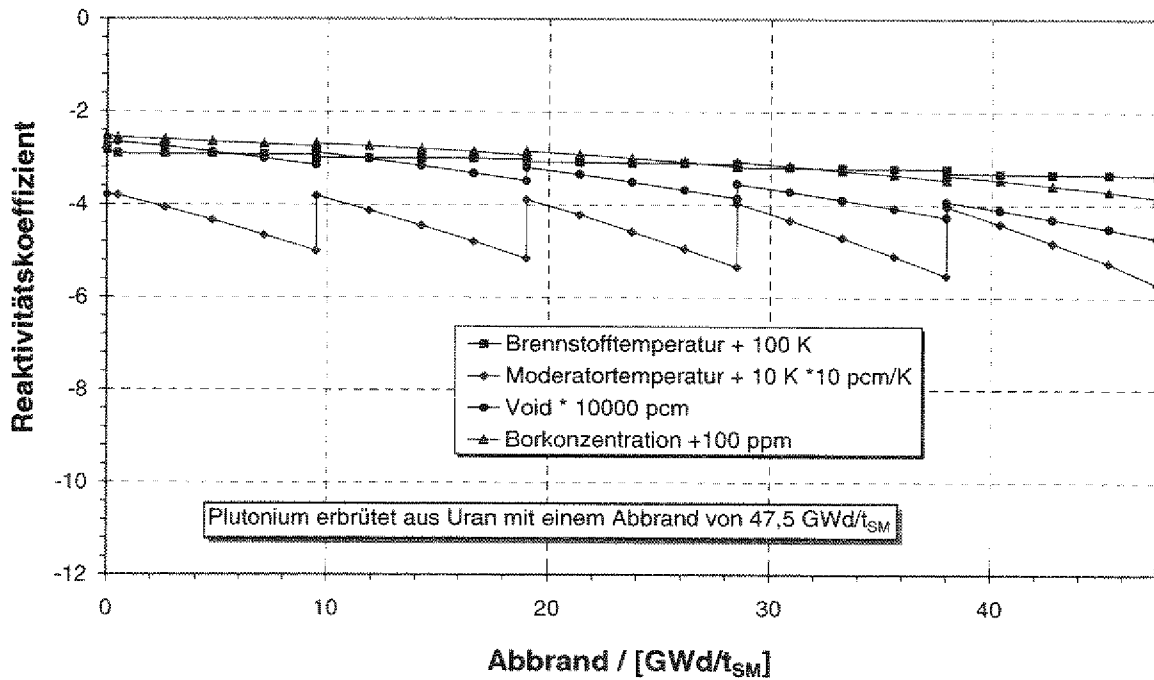


Abb. D-6: Reactivitätskoeffizienten des Th-MOX Brennstoffes mit einem Entladeabbrand von 47,5 GWd/t<sub>SM</sub> in pcm/K für Brennstofftemperatur, in 1/10 pcm/K für Moderatortemperatur, in 1/10000 pcm für den Void-Koeffizienten und pcm/ppm Bor für die Borwirksamkeit.

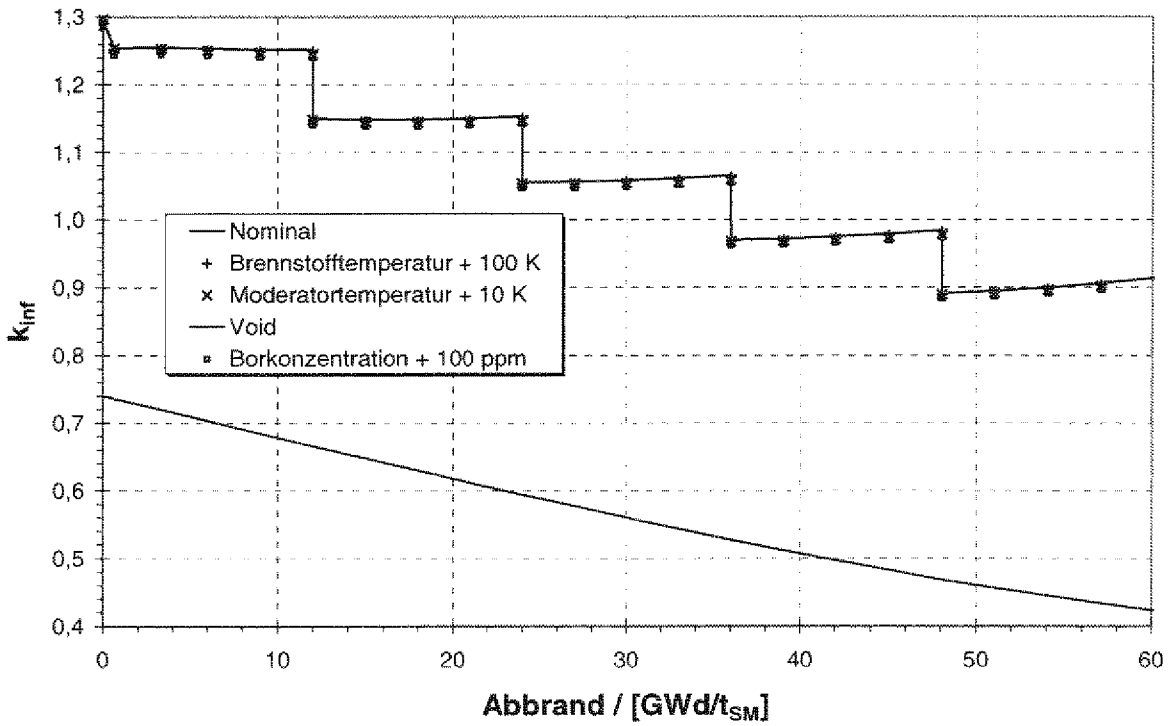


Abb. D-7: Verlauf der k-Werte bei Uran Brennstoff mit einem Entladeabbrand von 60 GWd/t<sub>SM</sub>.

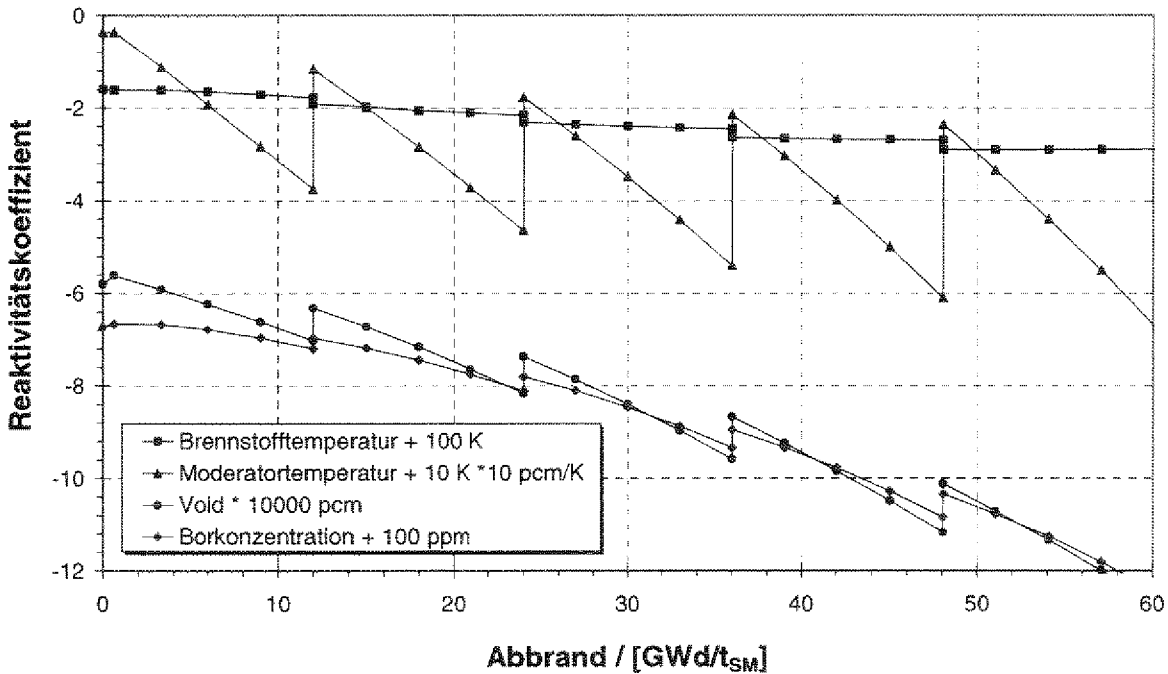


Abb. D-8: Reaktivitätskoeffizienten des Uran Brennstoffes mit einem Entladeabbrand von 60 GWd/t<sub>SM</sub> in pcm/K für Brennstofftemperatur, in 1/10 pcm/K für Moderatortemperatur, in 1/10000 pcm für den Void-Koeffizienten und pcm/ppm Bor für die Borwirksamkeit.

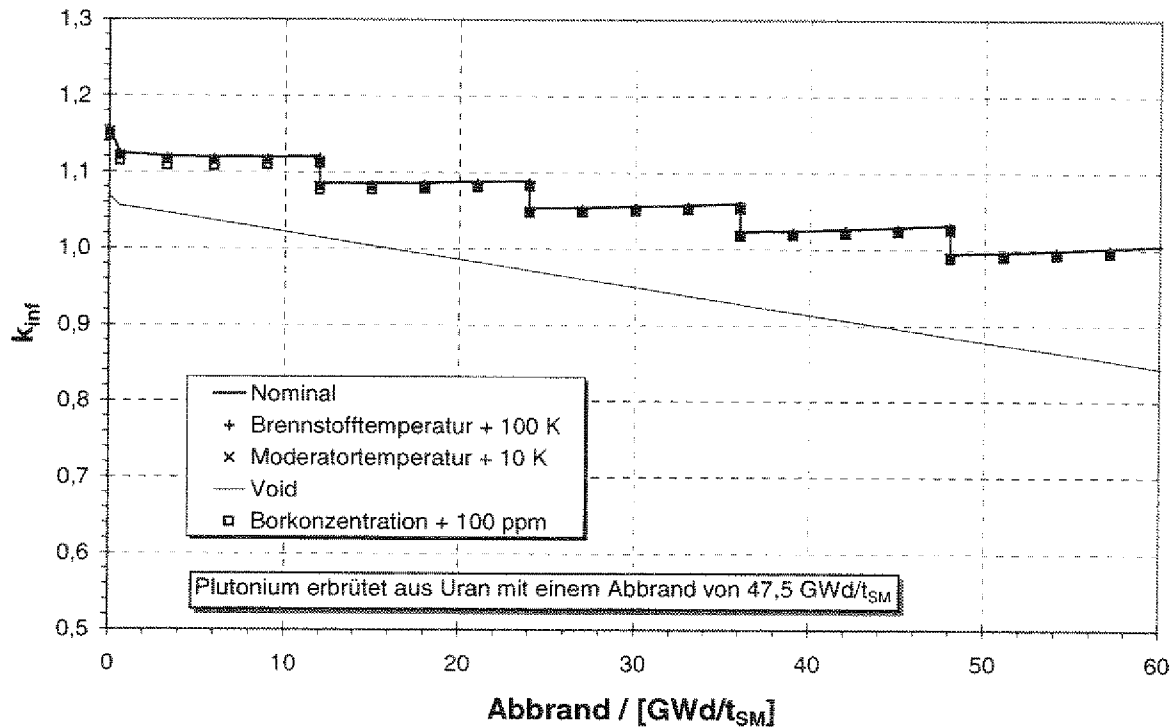


Abb. D-9: Verlauf der  $k$ -Werte bei U-MOX Brennstoff mit einem Entladeabbrand von  $60 \text{ GWd/t}_{\text{SM}}$ .

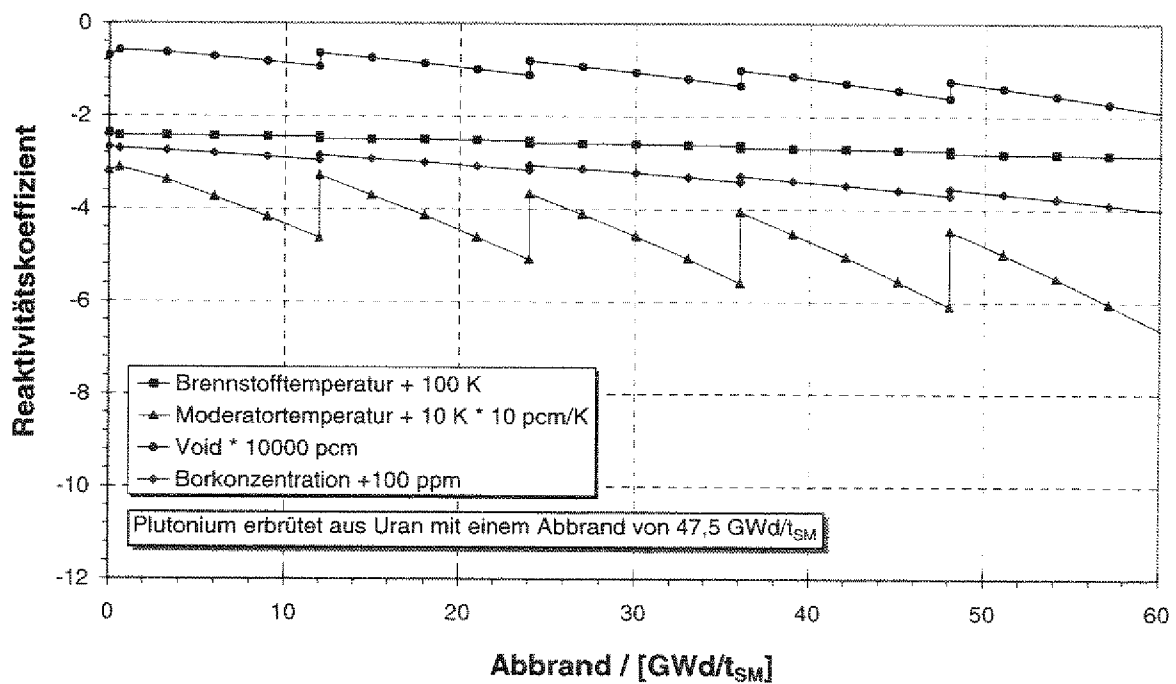


Abb. D-10: Reaktivitätskoeffizienten des U-MOX Brennstoffes mit einem Entladeabbrand von  $60 \text{ GWd/t}_{\text{SM}}$  in pcm/K für Brennstofftemperatur, in  $1/10$  pcm/K für Moderatortemperatur, in  $1/10000$  pcm für den Void-Koeffizienten und pcm/ppm Bor für die Borwirksamkeit.

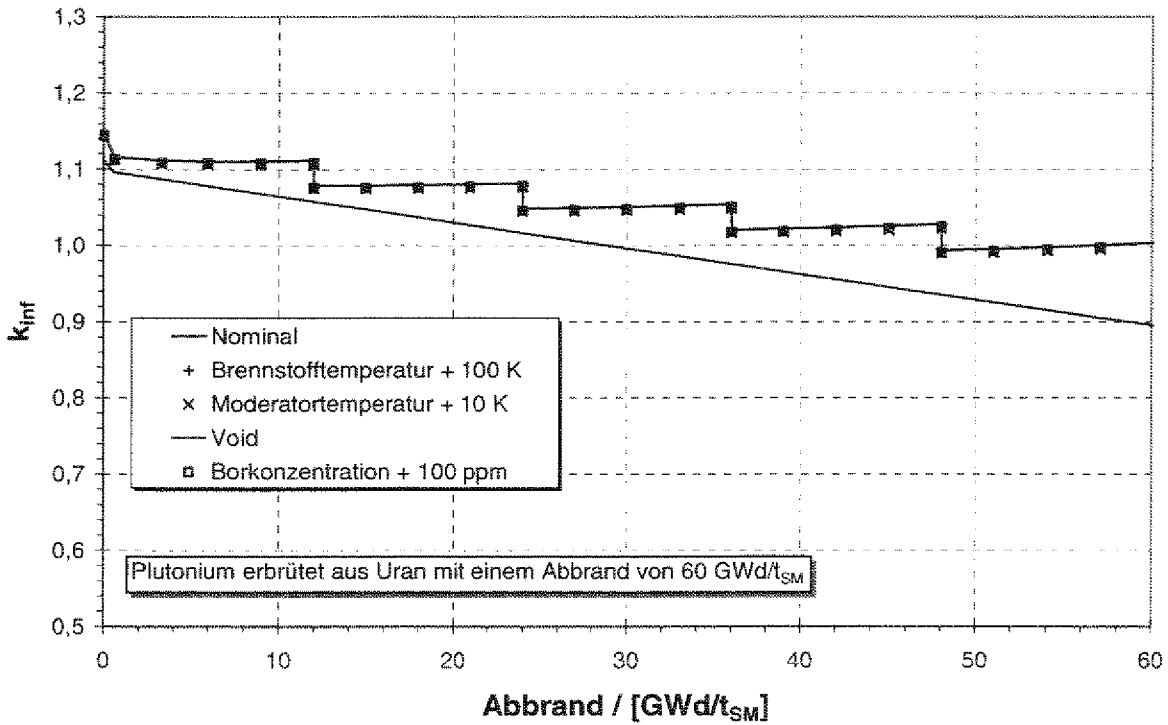


Abb. D-11: Verlauf der  $k$ -Werte bei U-MOX Brennstoff mit einem Entladeabbrand von  $60 \text{ GWd/t}_{SM}$ .

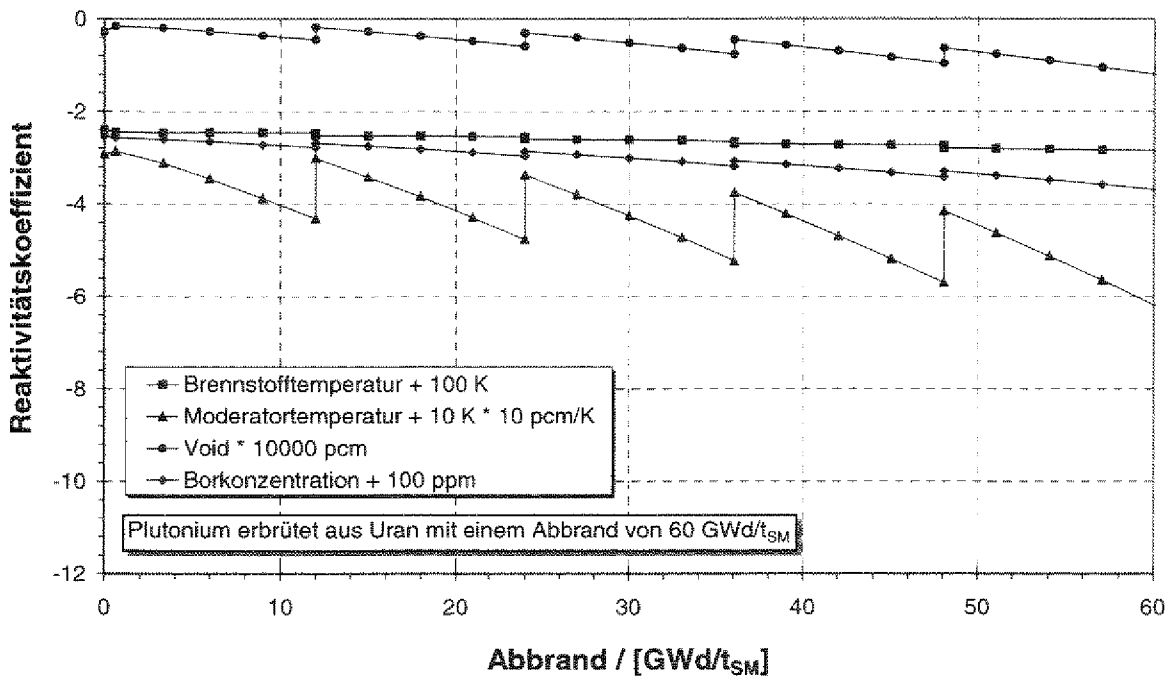


Abb. D-12: Reaktivitätskoeffizienten des U-MOX Brennstoffes mit einem Entladeabbrand von  $60 \text{ GWd/t}_{SM}$  in pcm/K für Brennstofftemperatur, in  $1/10 \text{ pcm/K}$  für Moderatortemperatur, in  $1/10000 \text{ pcm}$  für den Void-Koeffizienten und pcm/ppm Bor für die Borwirksamkeit.

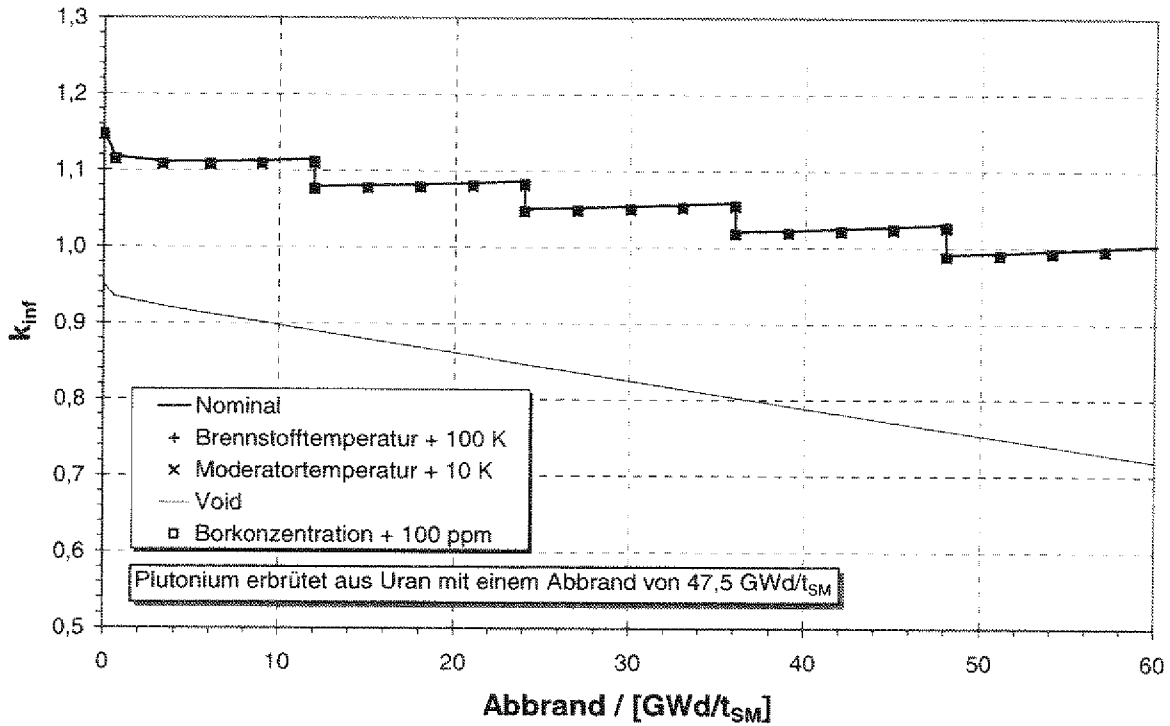


Abb. D-13: Verlauf der k-Werte bei Th-MOX Brennstoff mit einem Entladeabbrand von 60 GWd/t<sub>SM</sub>.

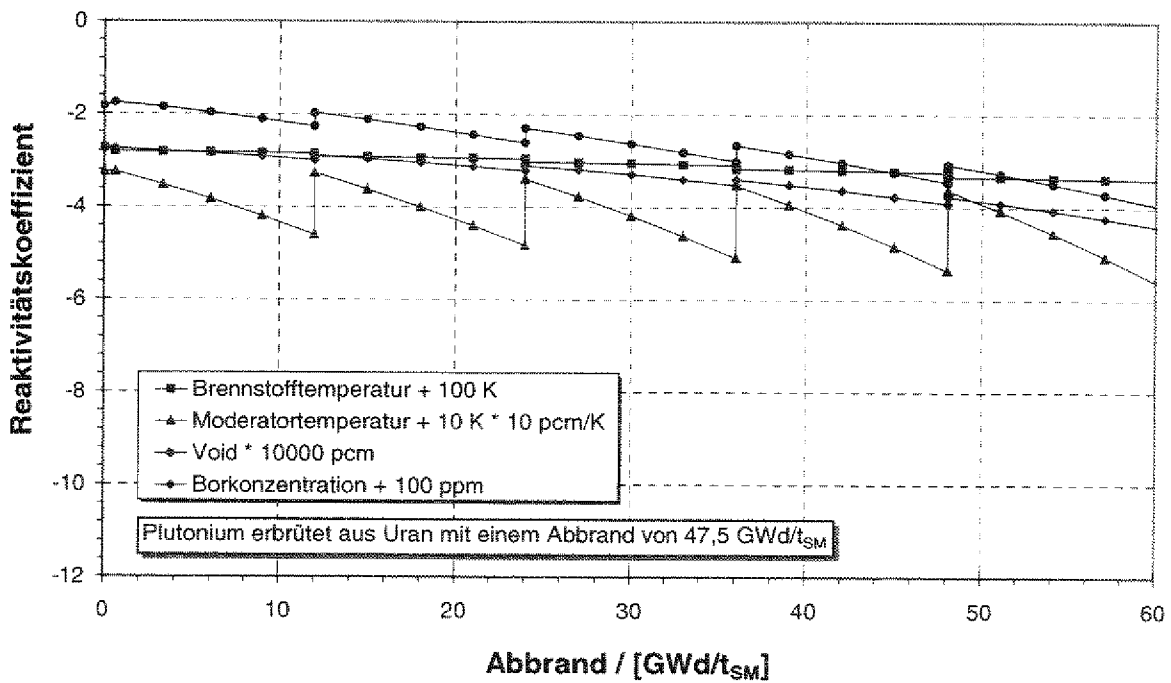


Abb. D-14: Reaktivitätskoeffizienten des U-MOX Brennstoffes mit einem Entladeabbrand von 60 GWd/t<sub>SM</sub> in pcm/K für Brennstoff-temperatur, in 1/10 pcm/K für Moderator-temperatur, in 1/10000 pcm für den Void-Koeffizienten und pcm/ppm Bor für die Borwirksamkeit.

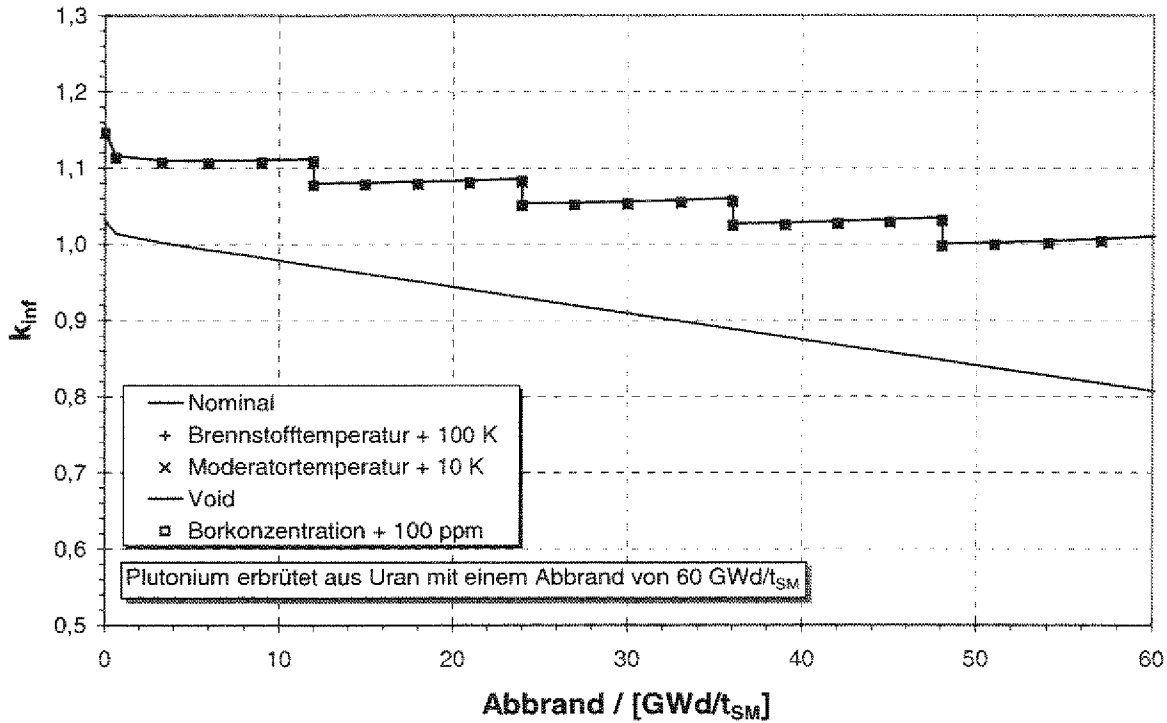


Abb. D-15: Verlauf der  $k$ -Werte bei Th-MOX Brennstoff mit einem Entladeabbrand von  $60 \text{ GWd/t}_{SM}$ .

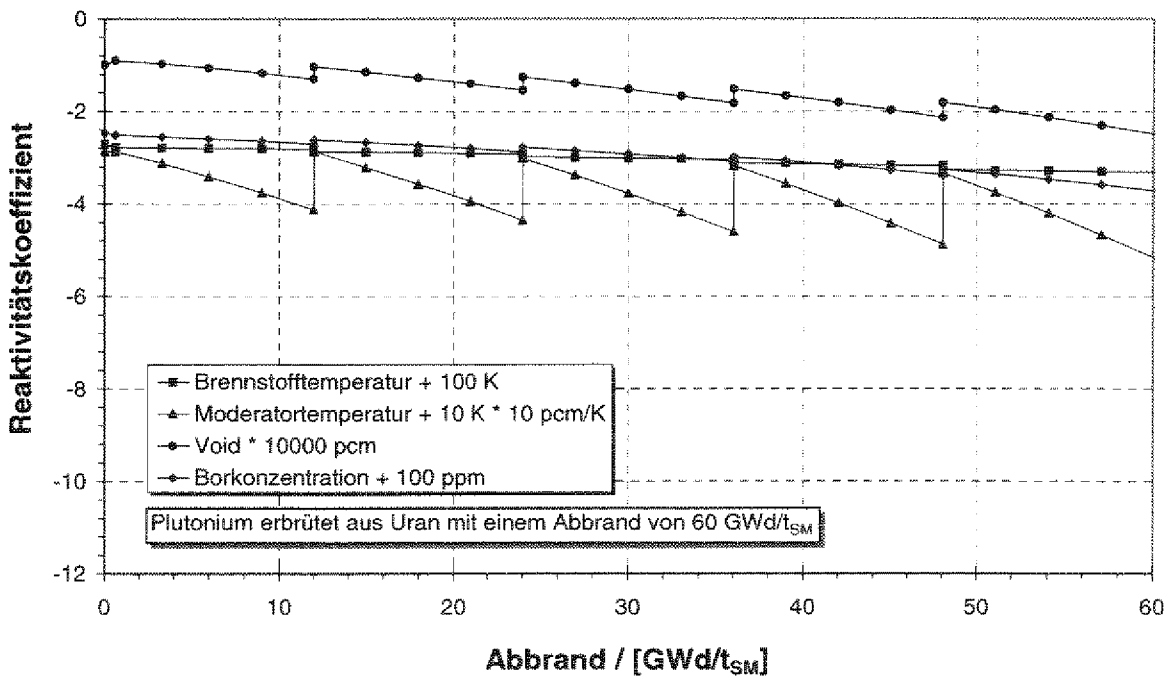


Abb. D-16: Reaktivitätskoeffizienten des U-MOX Brennstoffes mit einem Entladeabbrand von  $60 \text{ GWd/t}_{SM}$  in pcm/K für Brennstofftemperatur, in  $1/10$  pcm/K für Moderatortemperatur, in  $1/10000$  pcm für den Void-Koeffizienten und pcm/ppm Bor für die Borwirksamkeit.

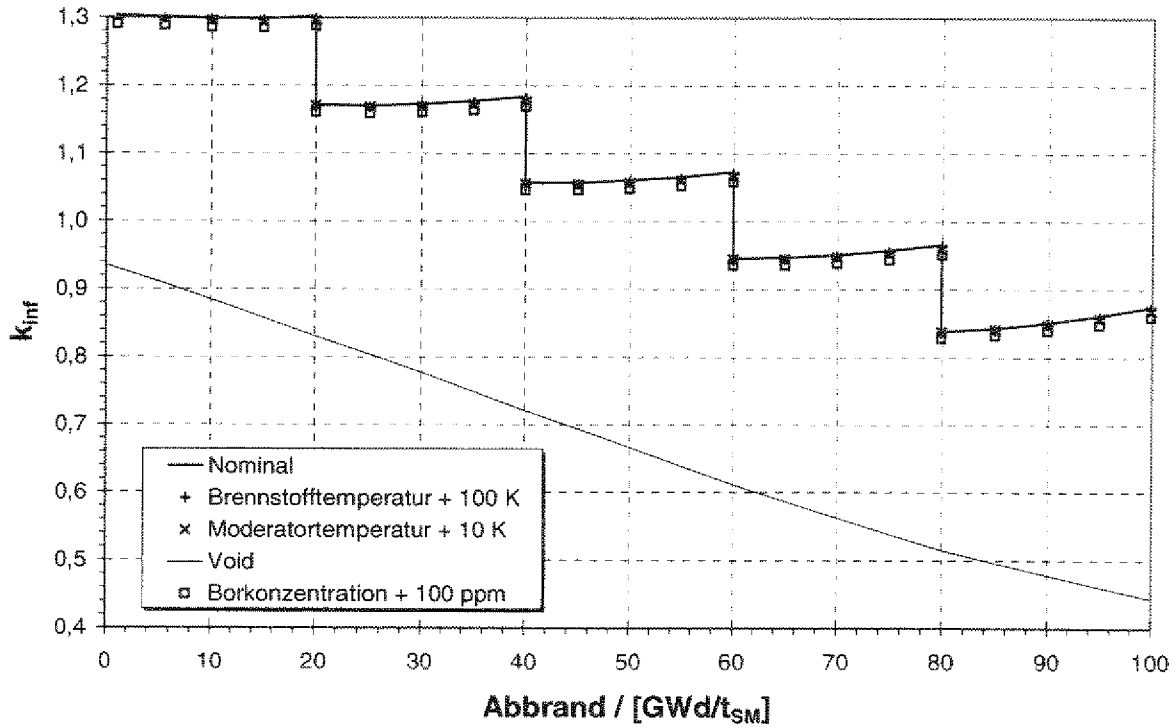


Abb. D-17: Verlauf der k-Werte bei Uran Brennstoff mit einem Entladeabbrand von 100 GWd/t<sub>SM</sub>.

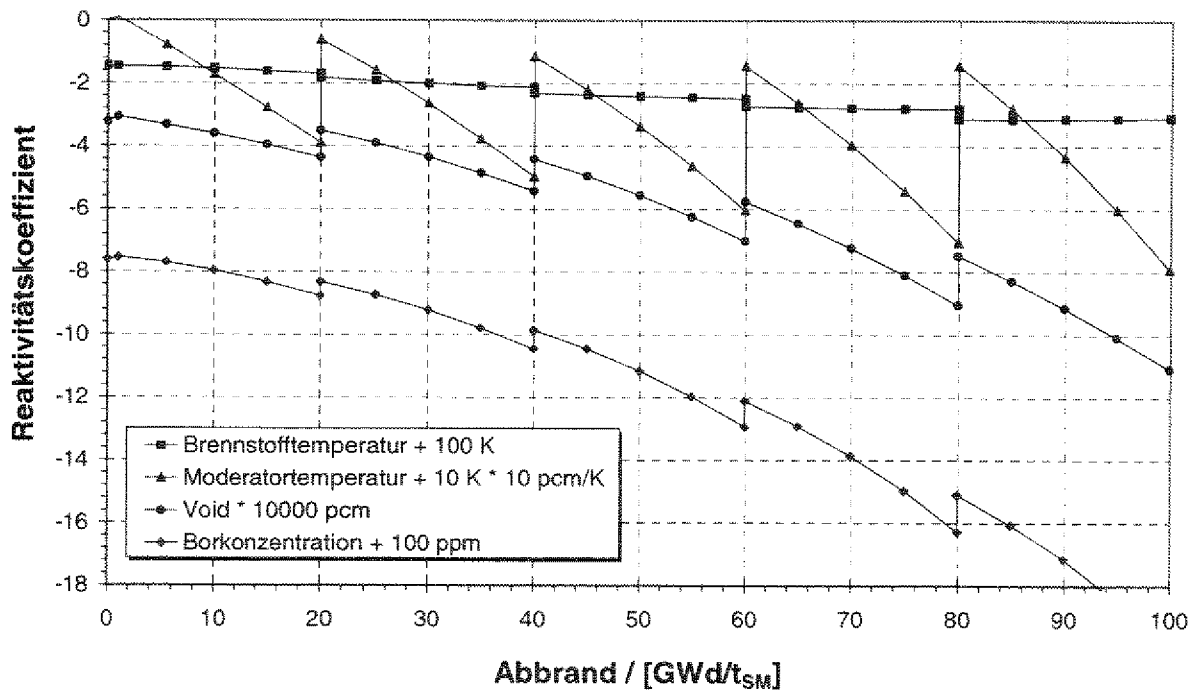


Abb. D-18: Reaktivitätskoeffizienten des U-MOX Brennstoffes mit einem Entladeabbrand von 100 GWd/t<sub>SM</sub> in pcm/K für Brennstoff-temperatur, in 1/10 pcm/K für Moderator-temperatur, in 1/10000 pcm für den Void-Koeffizienten und pcm/ppm Bor für die Borwirksamkeit.

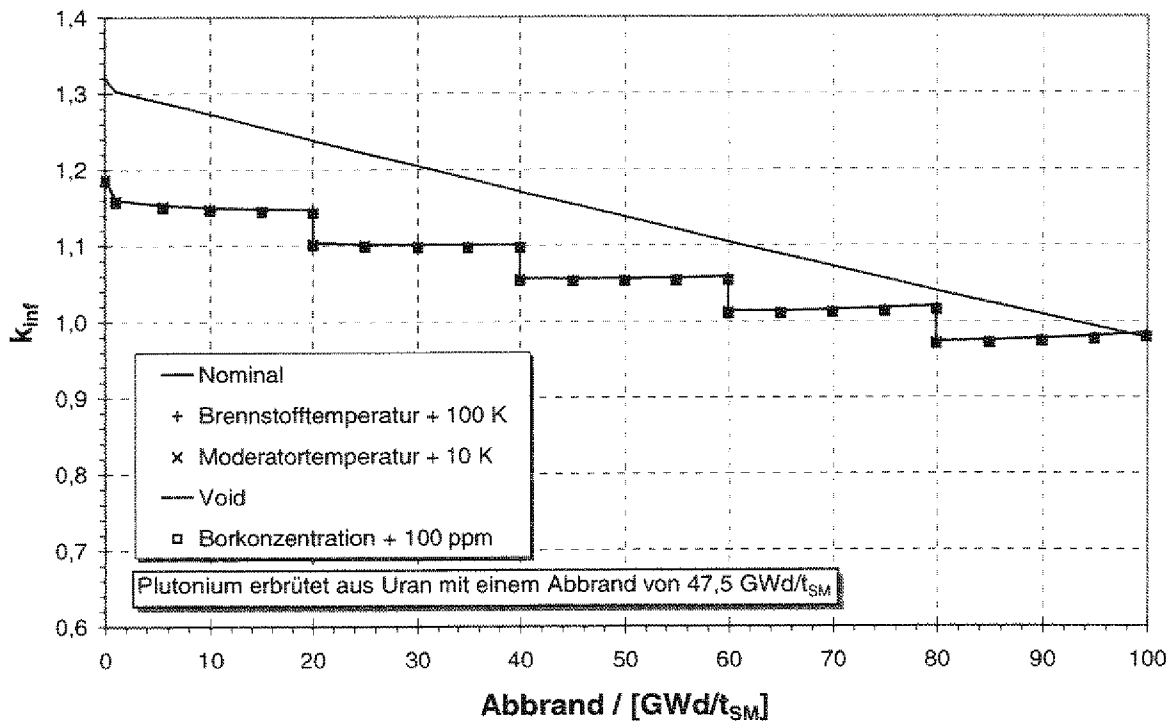


Abb. D-19: Verlauf der k-Werte bei U-MOX Brennstoff mit einem Entladeabbrand von 100 GWd/t<sub>SM</sub>.

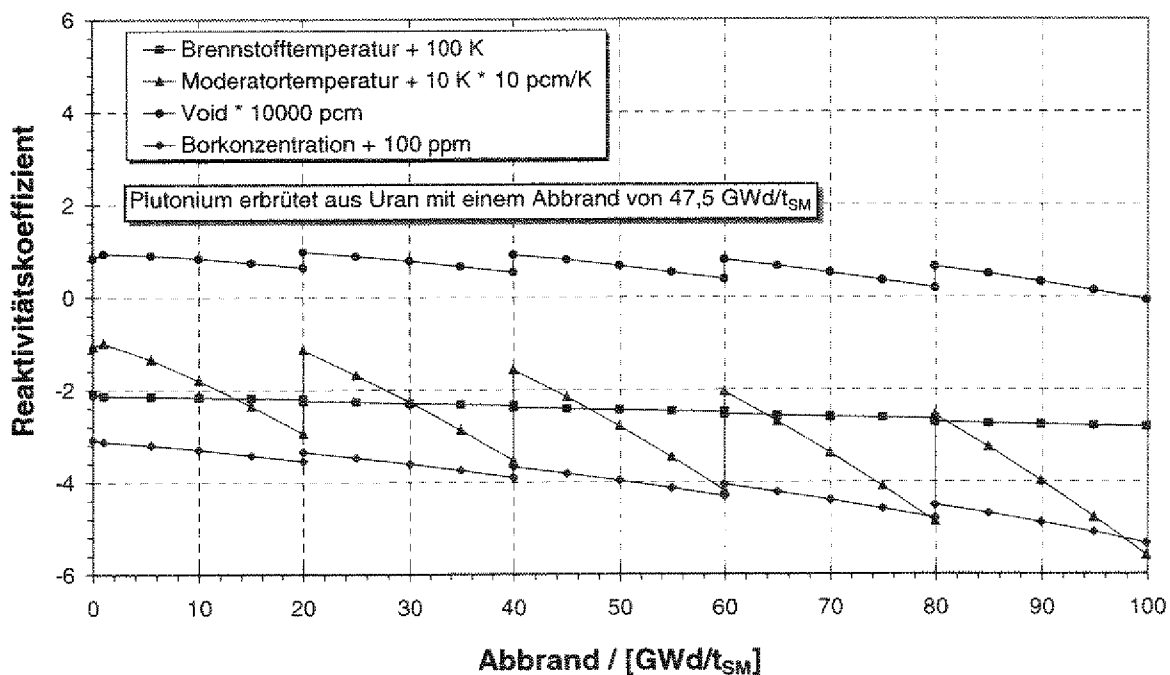


Abb. D-20: Reaktivitätskoeffizienten des U-MOX Brennstoffes mit einem Entladeabbrand von 100 GWd/t<sub>SM</sub> in pcm/K für Brennstoff-temperatur, in 1/10 pcm/K für Moderator-temperatur, in 1/10000 pcm für den Void-Koeffizienten und pcm/ppm Bor für die Borwirksamkeit.

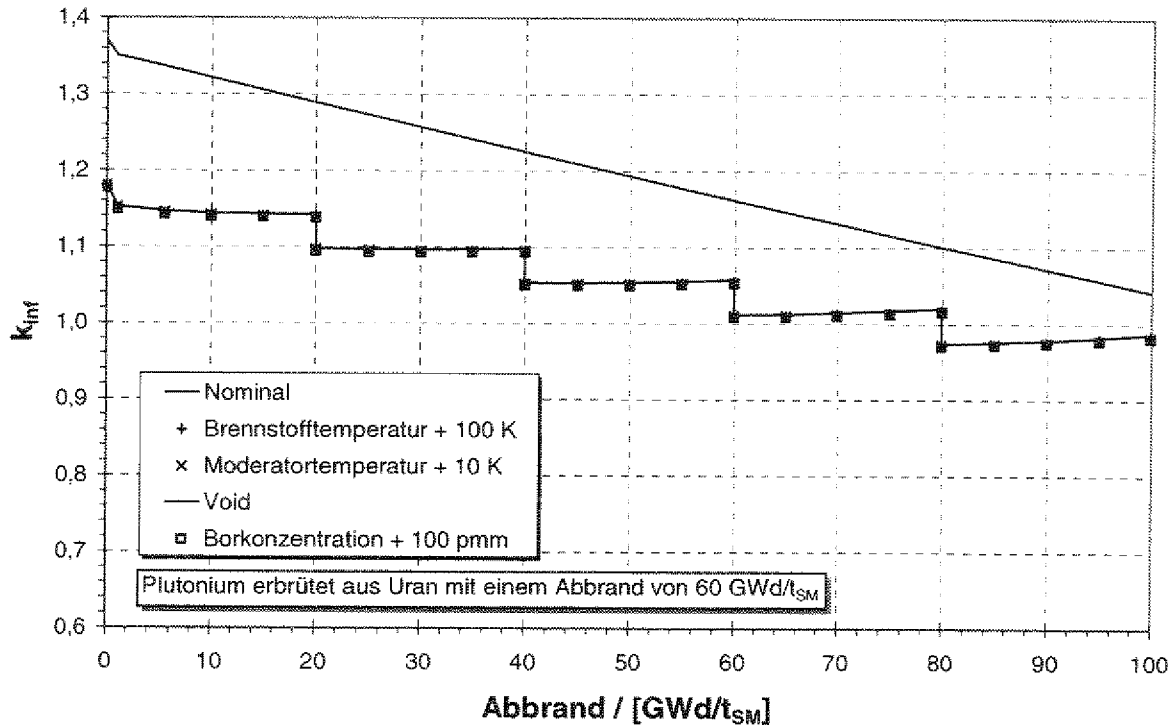


Abb. D-21: Verlauf der  $k$ -Werte bei U-MOX Brennstoff mit einem Entladeabbrand von  $100 \text{ GWd/t}_{SM}$ .

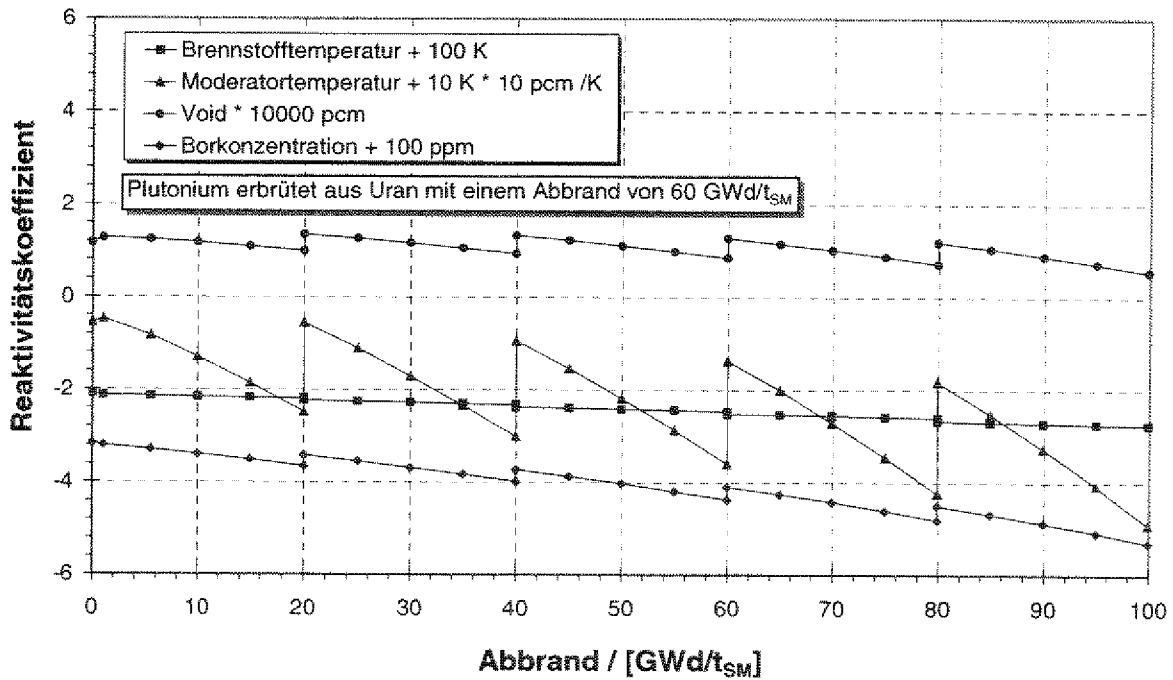


Abb. D-22: Reaktivitätskoeffizienten des U-MOX Brennstoffes mit einem Entladeabbrand von  $100 \text{ GWd/t}_{SM}$  in pcm/K für Brennstoff-temperatur, in  $1/10 \text{ pcm/K}$  für Moderatortemperatur, in  $1/10000 \text{ pcm}$  für den Void-Koeffizienten und pcm/ppm Bor für die Borwirksamkeit.

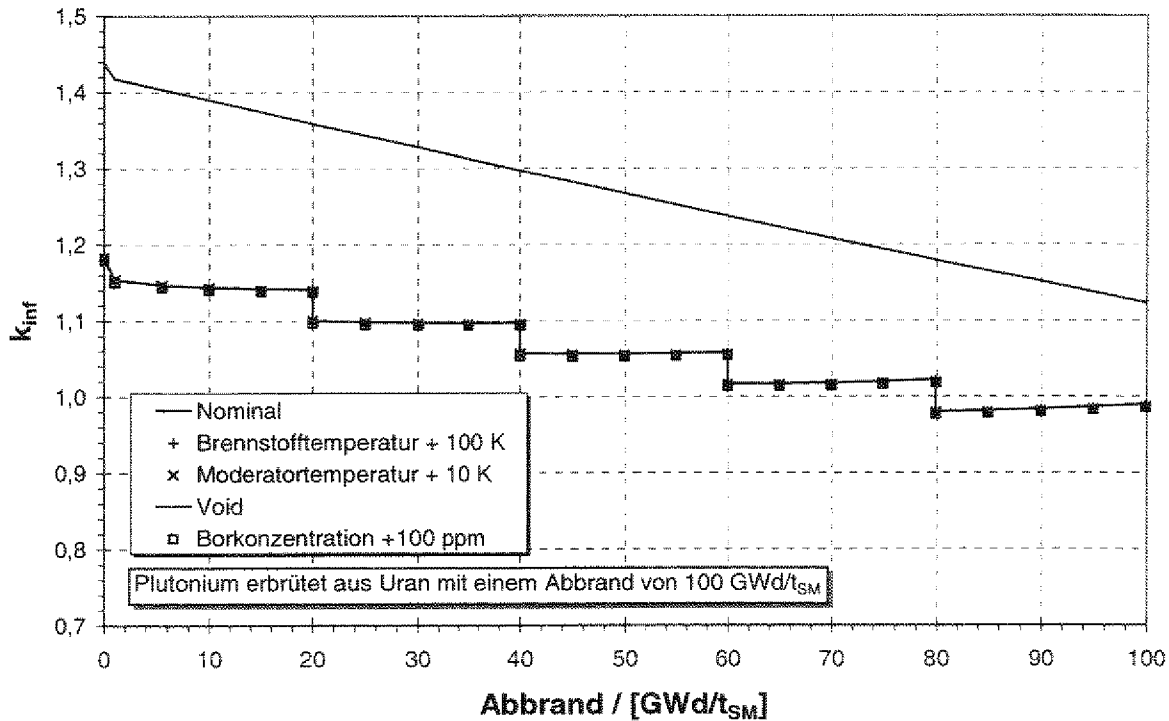


Abb. D-23: Verlauf der k-Werte bei U-MOX Brennstoff mit einem Entladeabbrand von 100 GWd/t<sub>SM</sub>.

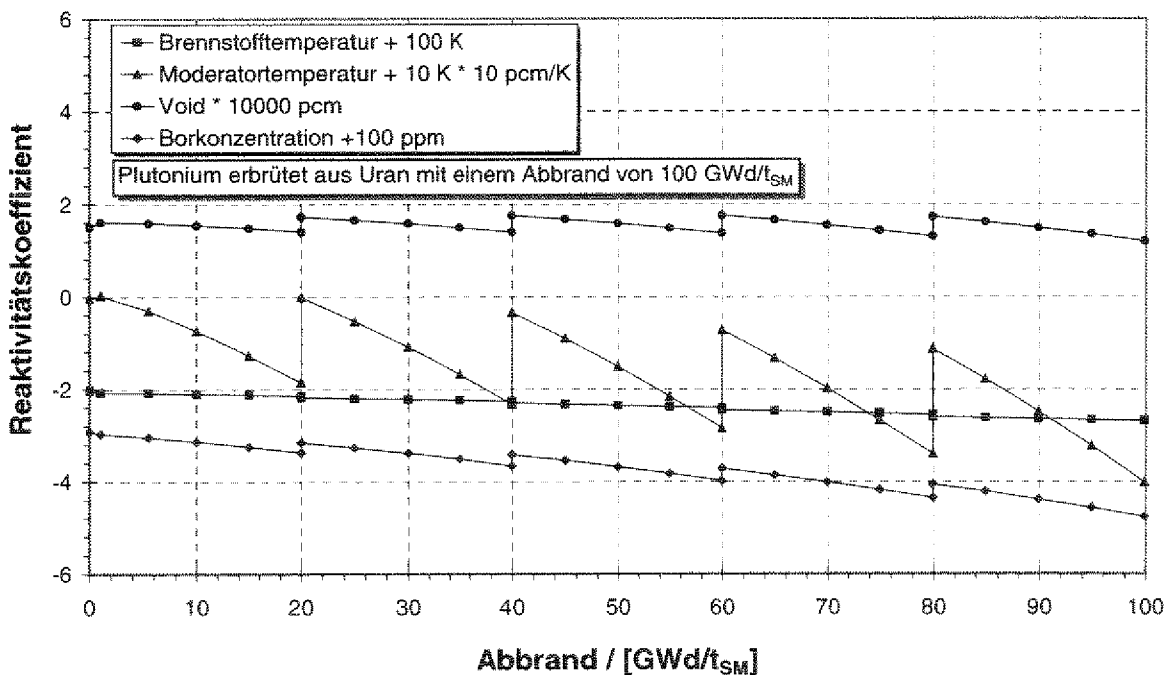


Abb. D-24: Reaktivitätskoeffizienten des U-MOX Brennstoffes mit einem Entladeabbrand von 100 GWd/t<sub>SM</sub> in pcm/K für Brennstofftemperatur, in 1/10 pcm/K für Moderatortemperatur, in 1/10000 pcm für den Void-Koeffizienten und pcm/ppm Bor für die Borwirksamkeit.

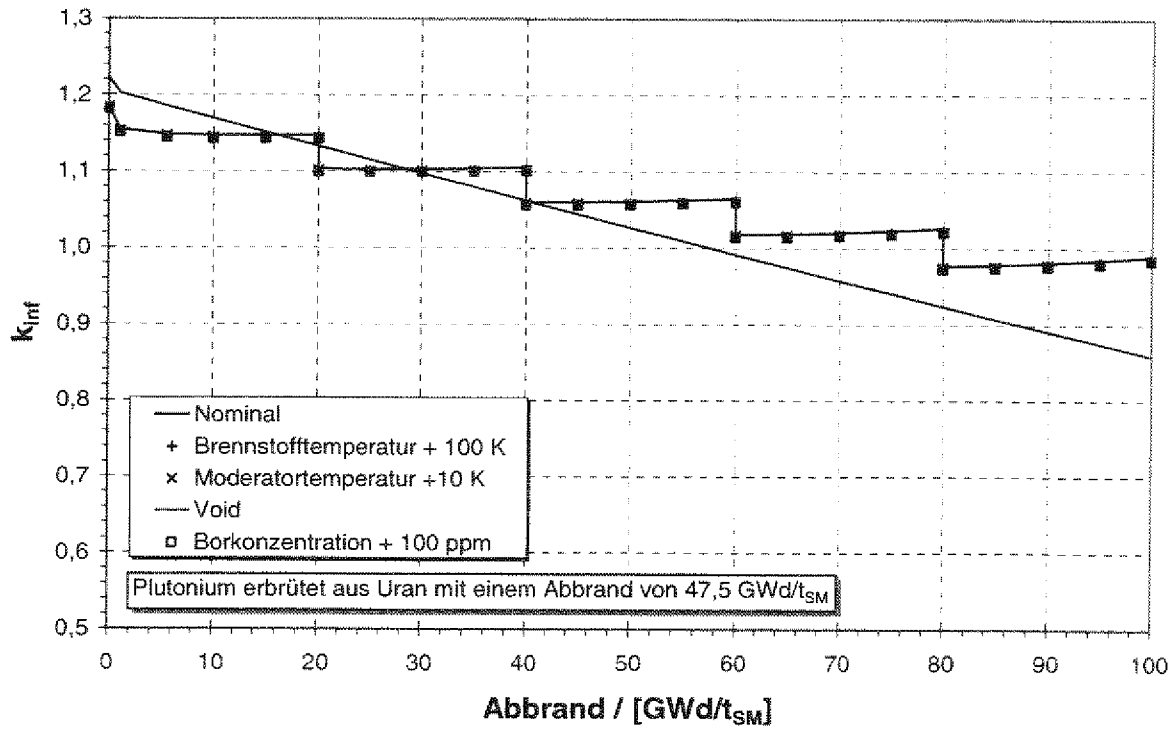


Abb. D-25: Verlauf der k-Werte bei Th-MOX Brennstoff mit einem Entladeabbrand von 100 GWd/t<sub>SM</sub>.

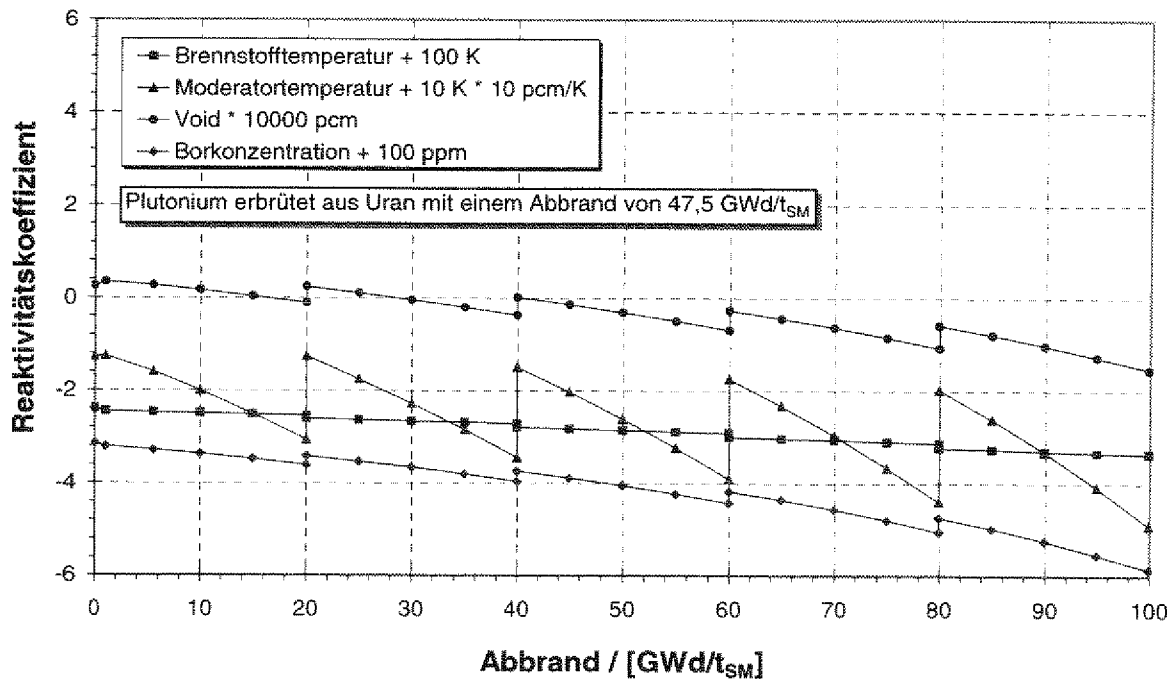


Abb. D-26: Reaktivitätskoeffizienten des Th-MOX Brennstoffes mit einem Entladeabbrand von 100 GWd/t<sub>SM</sub> in pcm/K für Brennstoff-temperatur, in 1/10 pcm/K für Moderatortemperatur, in 1/10000 pcm für den Void-Koeffizienten und pcm/ppm Bor für die Borwirksamkeit.

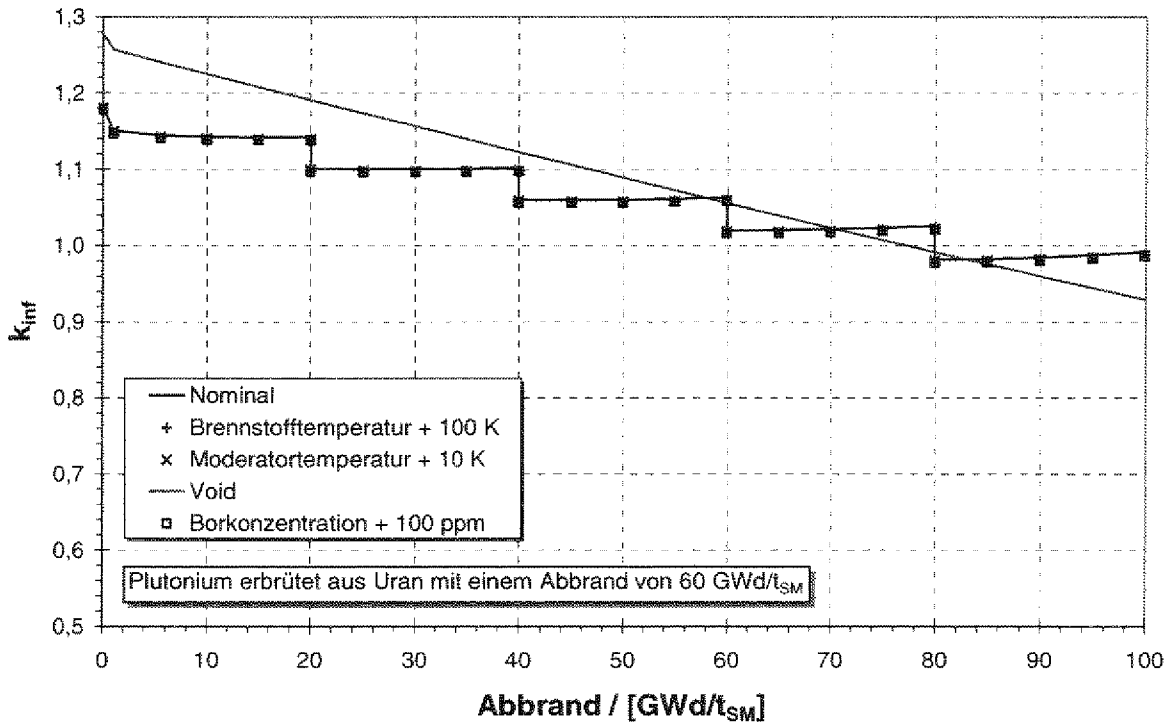


Abb. D-27: Verlauf der k-Werte bei Th-MOX Brennstoff mit einem Entladeabbrand von 100 GWd/t<sub>SM</sub>.

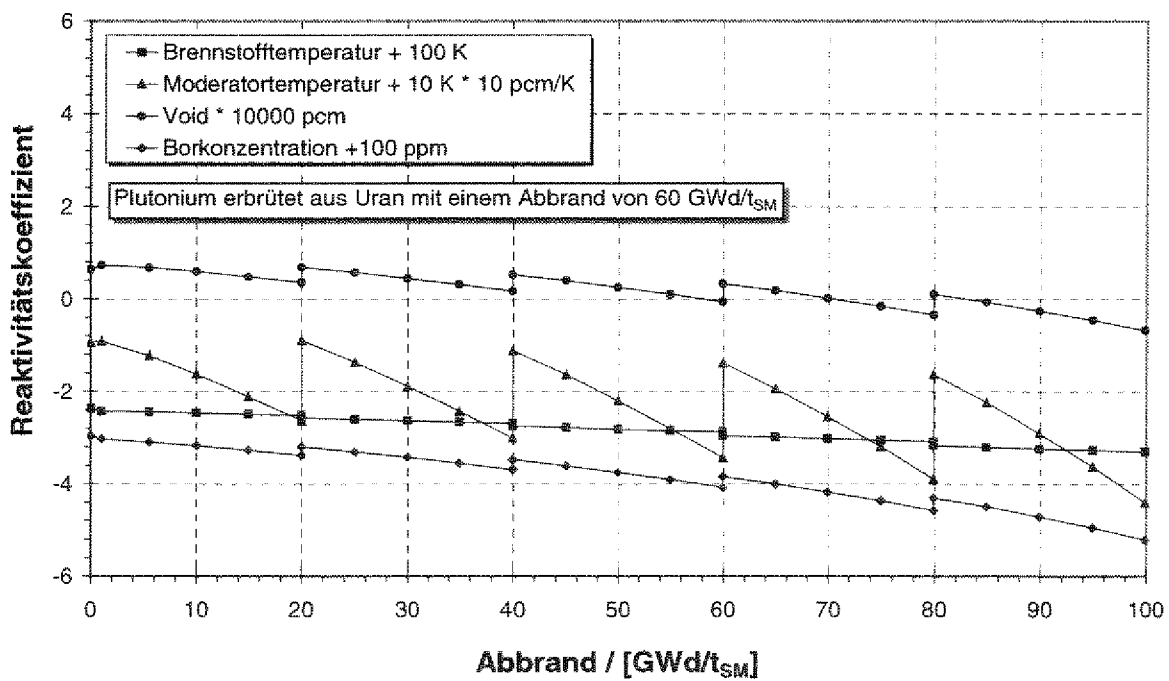


Abb. D-28: Reaktivitätskoeffizienten des Th-MOX Brennstoffes mit einem Entladeabbrand von 100 GWd/t<sub>SM</sub> in pcm/K für Brennstofftemperatur, in 1/10 pcm/K für Moderatortemperatur, in 1/10000 pcm für den Void-Koeffizienten und pcm/ppm Bor für die Borwirksamkeit.

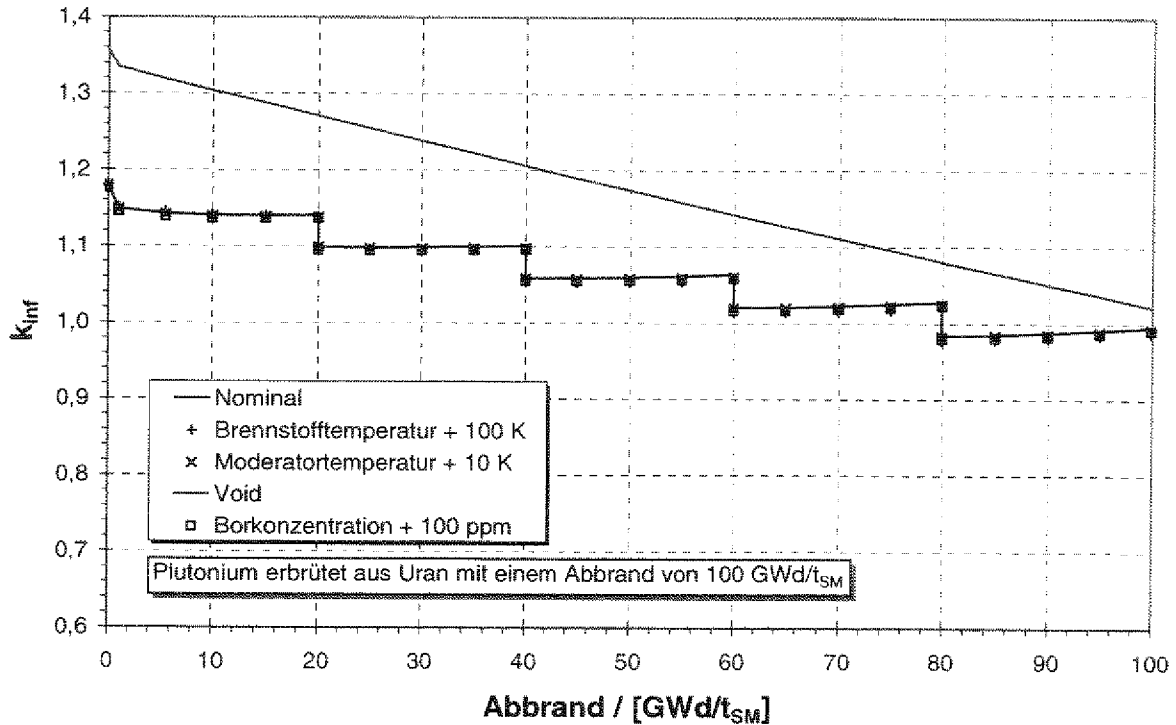


Abb. D-29: Verlauf der  $k$ -Werte bei Th-MOX Brennstoff mit einem Entladeabbrand von 100 GWd/t<sub>SM</sub>.

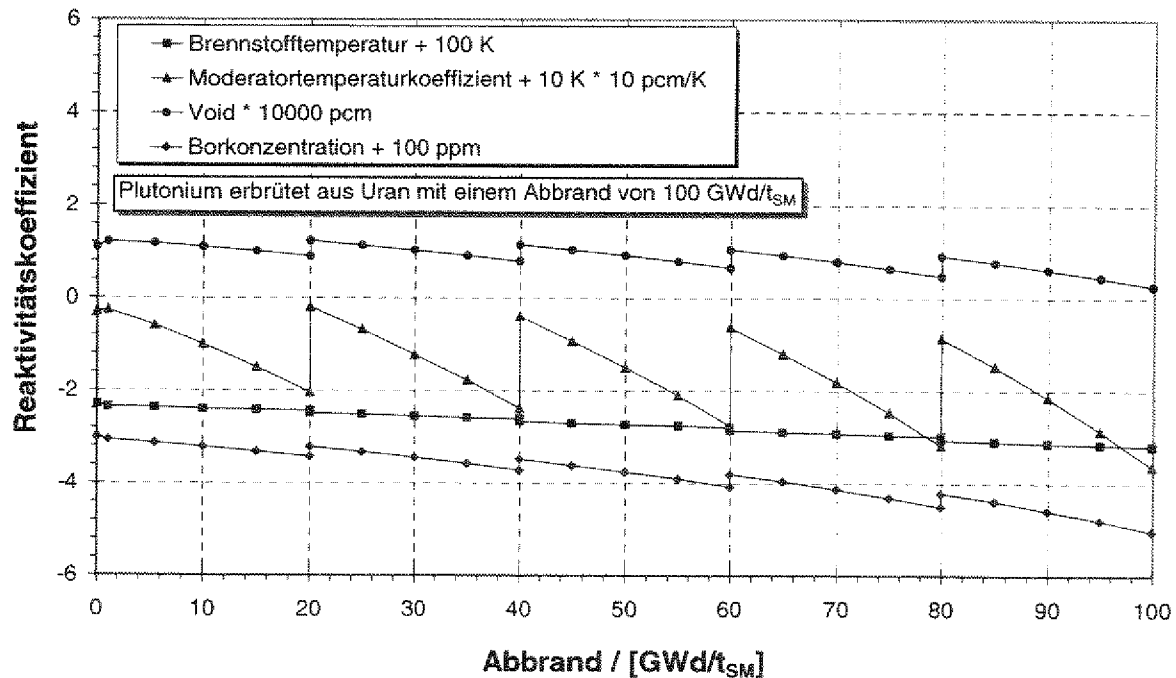


Abb. D-30: Reaktivitätskoeffizienten des Th-MOX Brennstoffes mit einem Entladeabbrand von 100 GWd/t<sub>SM</sub> in pcm/K für Brennstofftemperatur, in 1/10 pcm/K für Moderatortemperatur, in 1/10000 pcm für den Void-Koeffizienten und pcm/ppm Bor für die Borwirksamkeit.

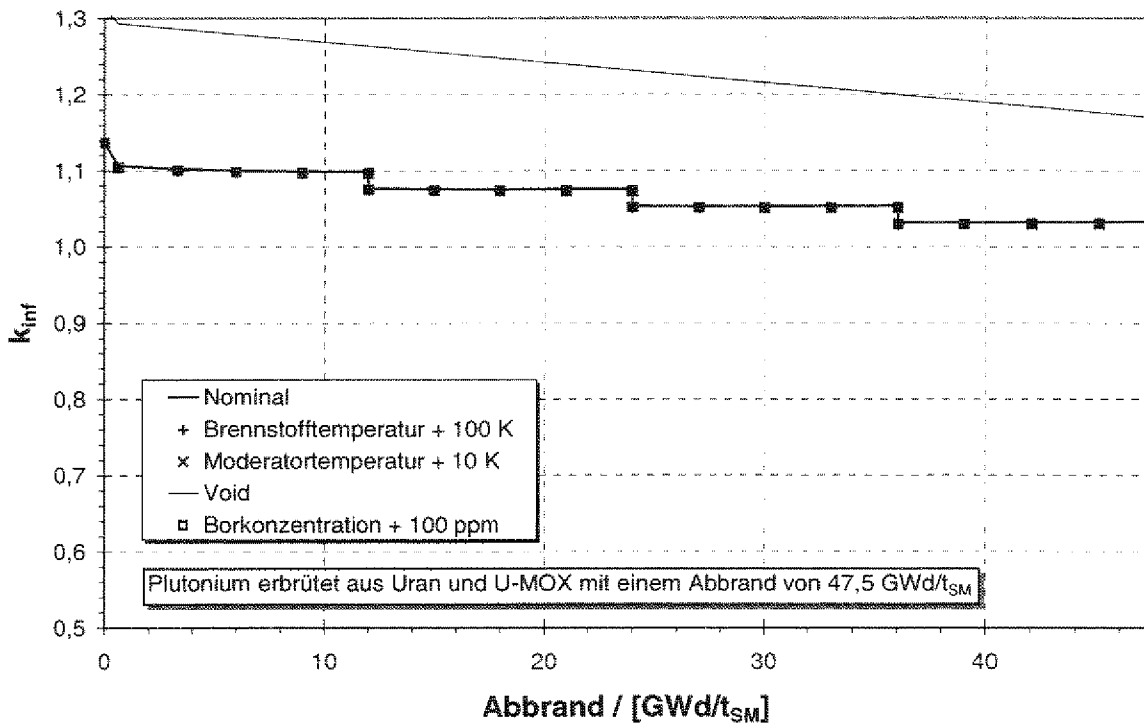


Abb. D-31: Verlauf der k-Werte bei U-MOX Brennstoff der zweiten Rezyklierung mit einem Entladeabbrand von 60 GWd/t<sub>SM</sub>.

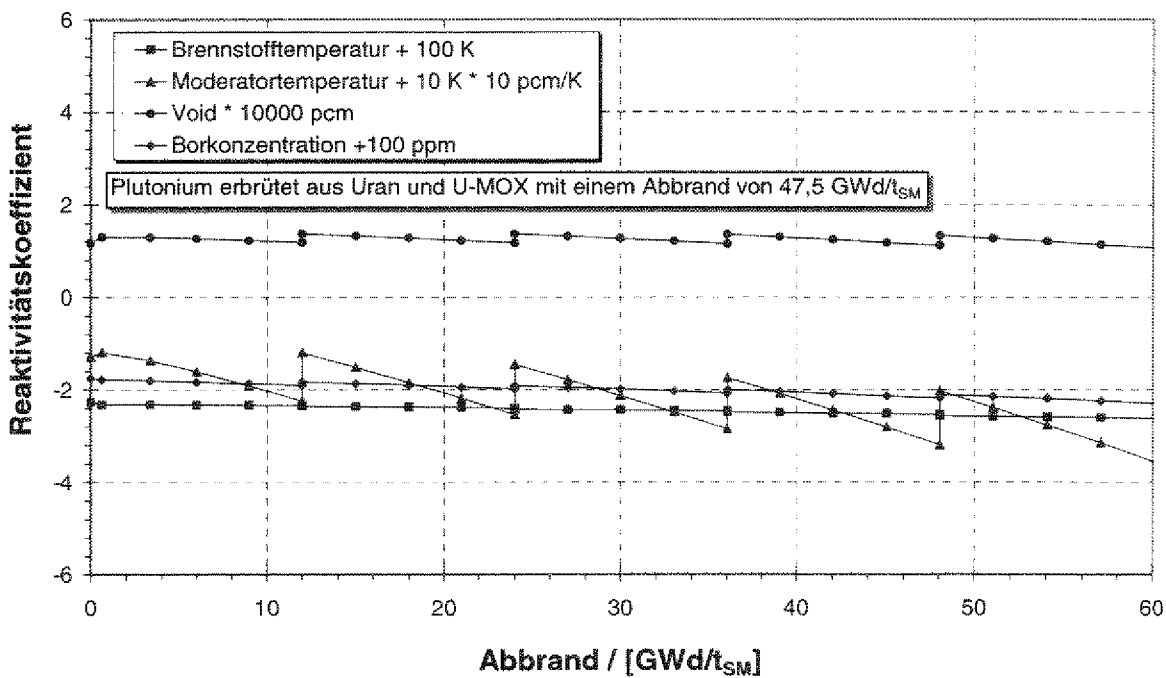


Abb. D-32: Reaktivitätskoeffizienten des U-MOX Brennstoffes der zweiten Rezyklierung (nur Plutonium rezykliert) mit einem Entlade-abbrand von 60 GWd/t<sub>SM</sub> in pcm/K für Brennstofftemperatur, in 1/10 pcm/K für Moderatortemperatur, in 1/10000 pcm für den Void-Koeffizienten und pcm/ppm Bor für die Borwirksamkeit.

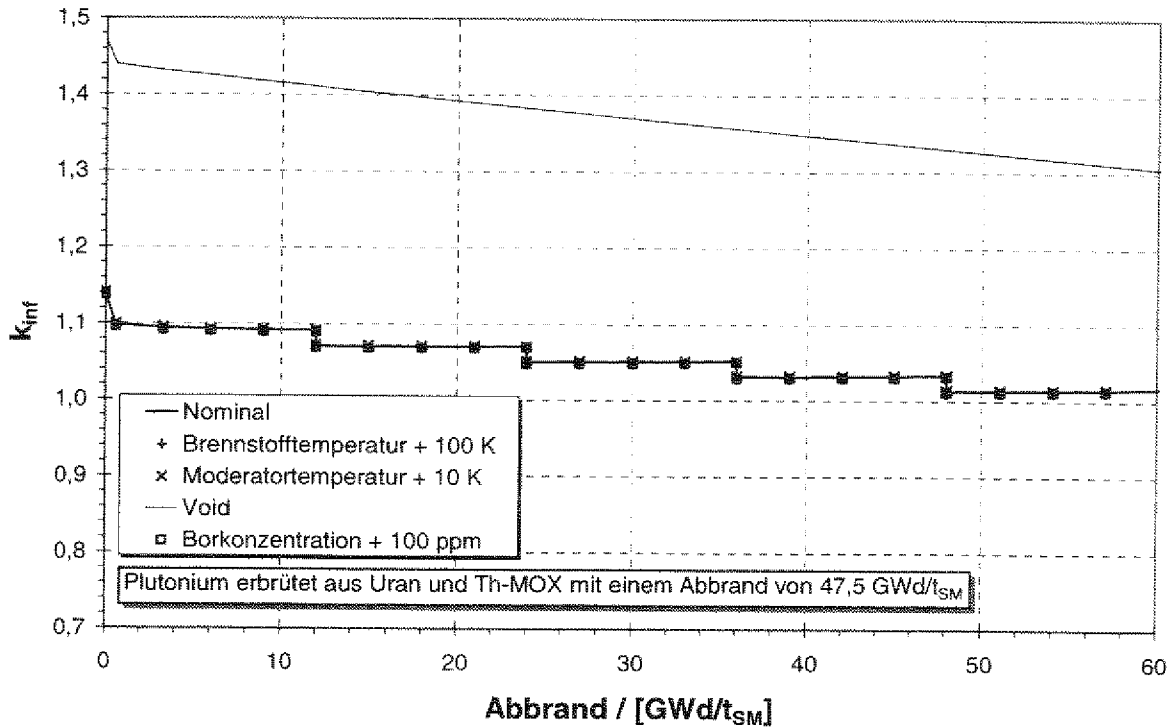


Abb. D-33: Verlauf der  $k$ -Werte bei Th-MOX Brennstoff (nur Plutonium rezykliert) der zweiten Rezyklierung mit einem Entladeabbrand von  $60 \text{ GWd/t}_{SM}$ .

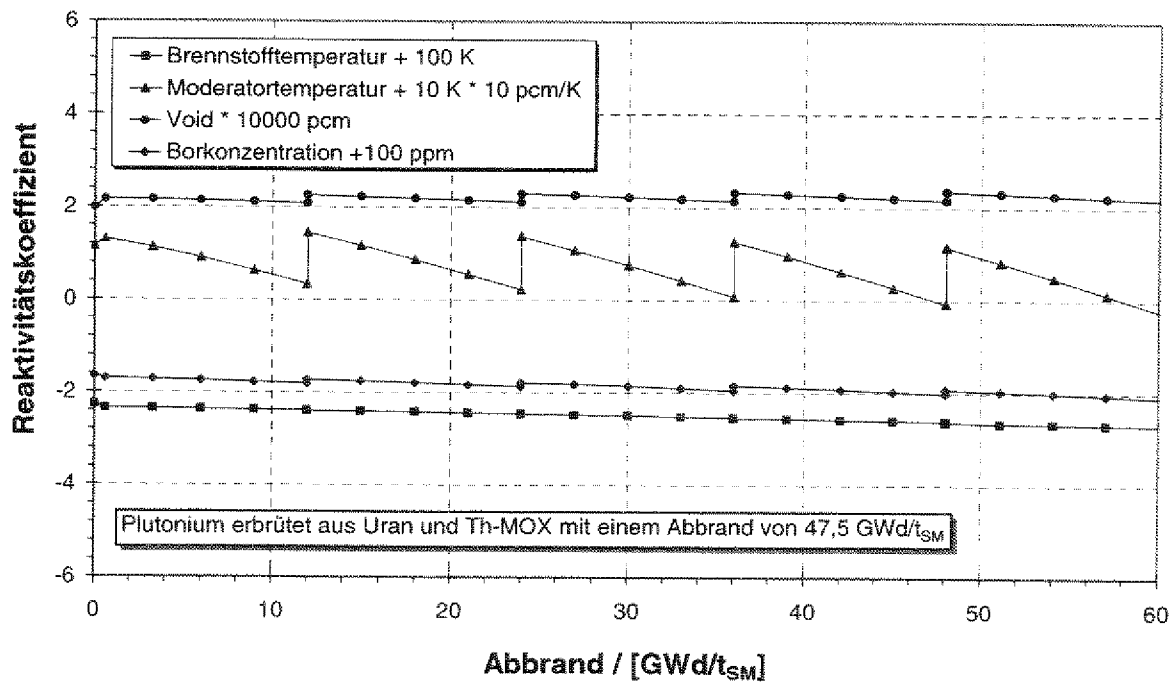


Abb. D-34: Reaktivitätskoeffizienten des Th-MOX Brennstoffes der zweiten Rezyklierung (nur Plutonium rezykliert) mit einem Entladeabbrand von  $60 \text{ GWd/t}_{SM}$  in pcm/K für Brennstofftemperatur, in  $1/10 \text{ pcm/K}$  für Moderatortemperatur, in  $1/10000 \text{ pcm}$  für den Void-Koeffizienten und pcm/ppm Bor für die Borwirksamkeit.

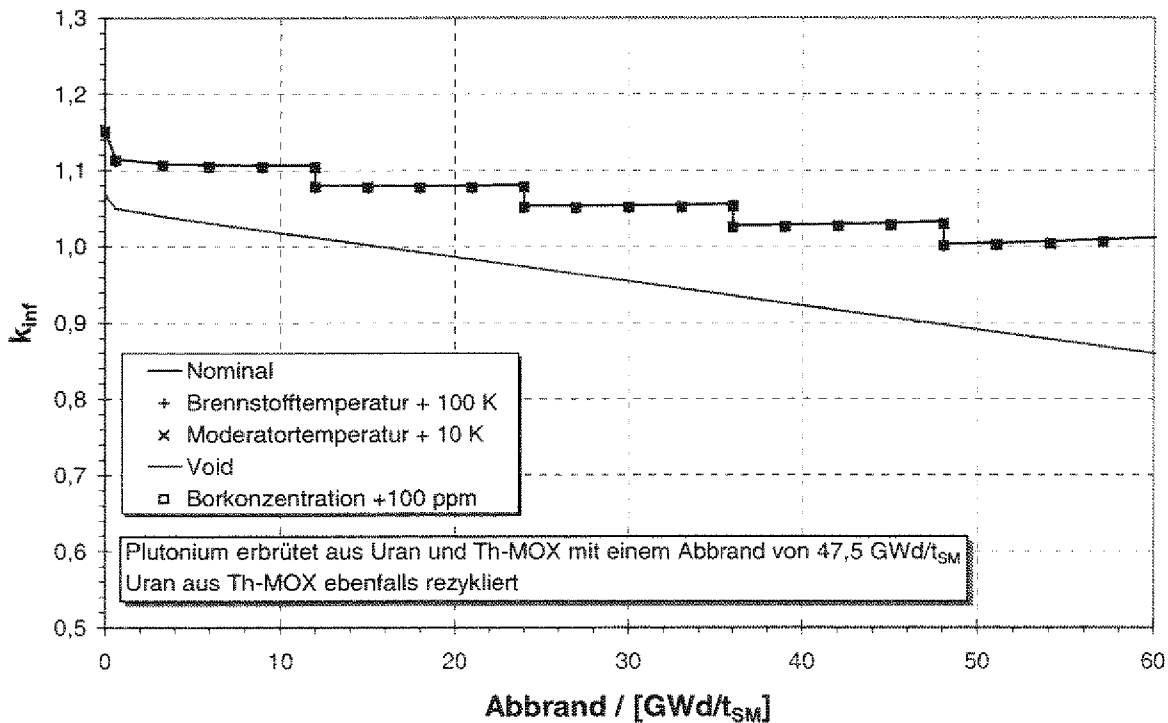


Abb. D-35: Verlauf der k-Werte bei Th-MOX Brennstoff (Plutonium und Uran von Th-MOX rezykliert) der zweiten Rezyklierung mit einem Entladeabbrand von 60 GWd/t<sub>SM</sub>.

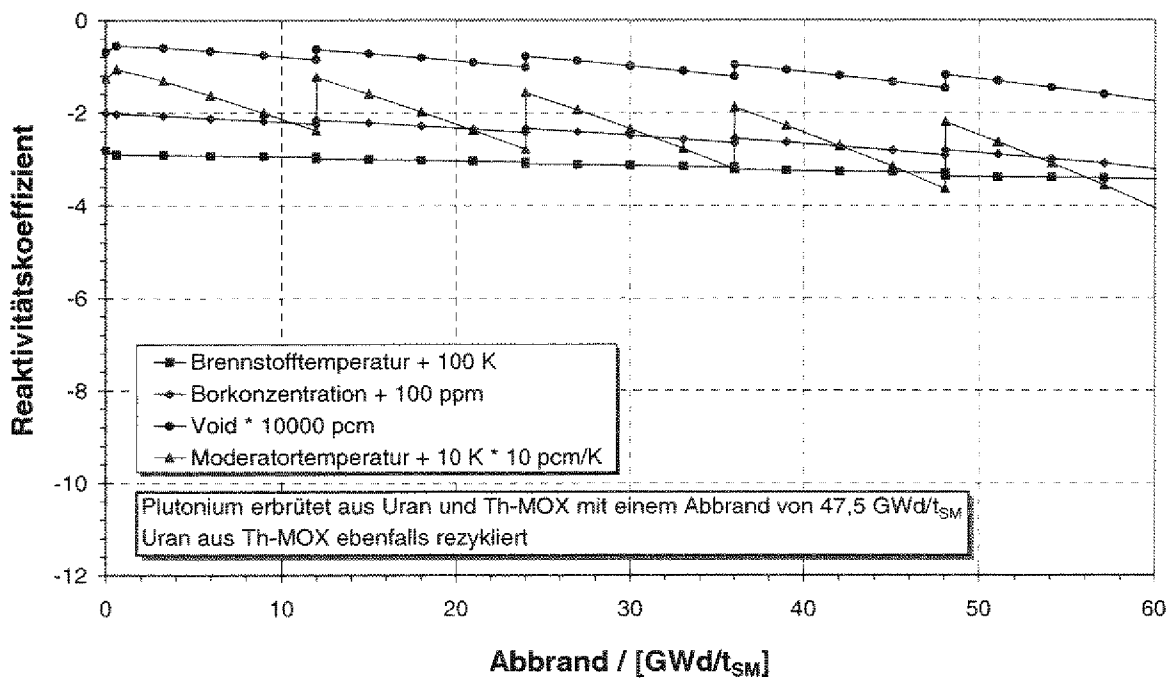


Abb. D-36: Reaktivitätskoeffizienten des Th-MOX Brennstoffes der zweiten Re-zyklierung (Plutonium und Uran von Th-MOX rezykliert) mit einem Entladeabbrand von 60 GWd/t<sub>SM</sub> in pcm/K für Brennstofftemperatur, in 1/10 pcm/K für Moderatorwertigkeit, in 1/10000 pcm für den Void-Koeffizienten und pcm/ppm Bor für die Borwirksamkeit.

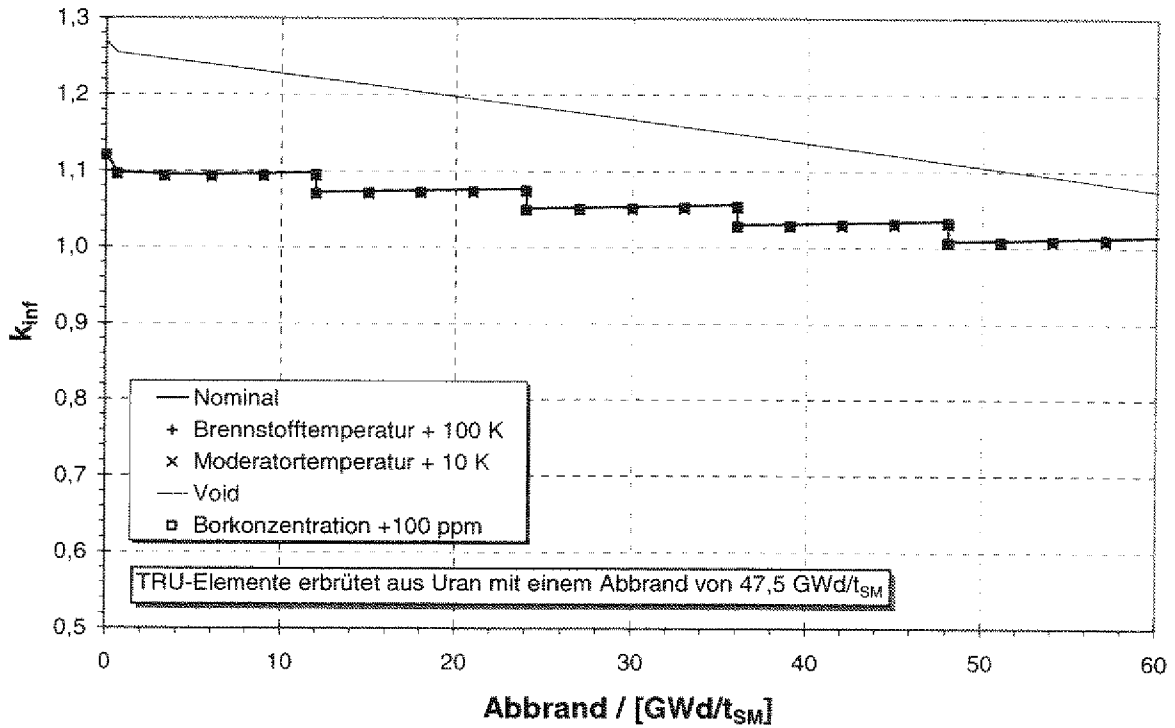


Abb. D-37: Verlauf der k-Werte bei U-TRU-MOX mit einem Entladeabbrand von 60 GWd/t<sub>SM</sub> und einer auf 49 erhöhten Zahl an Leerstäben.

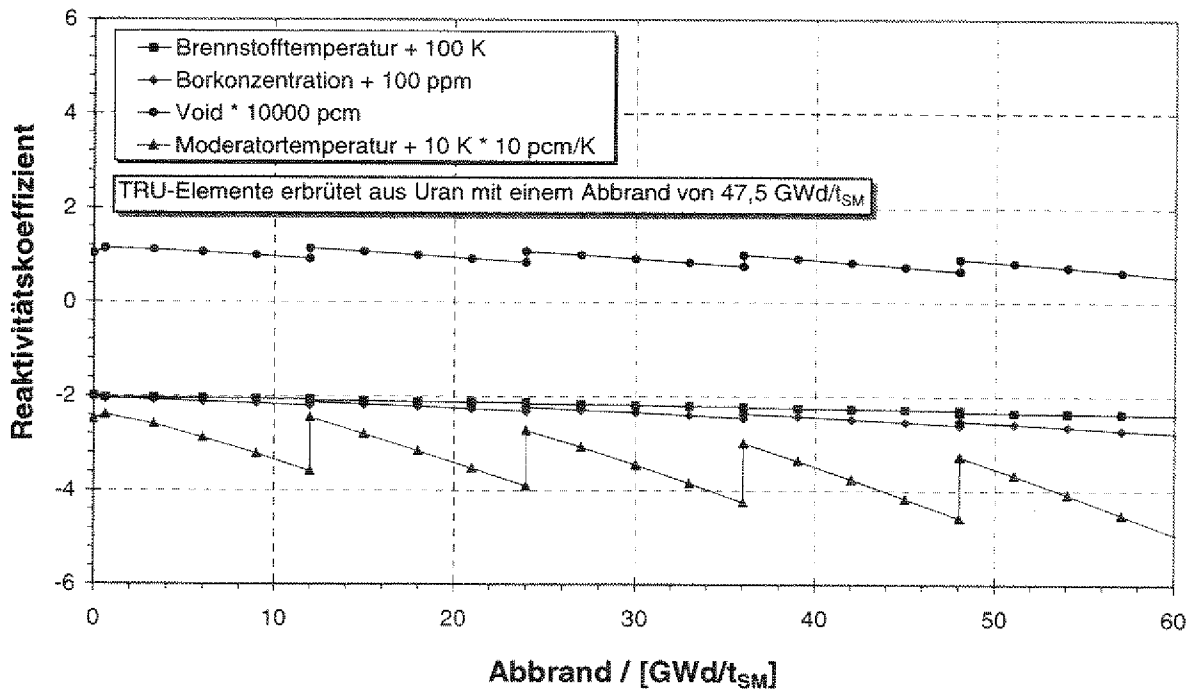


Abb. D-38: Reaktivitätskoeffizienten des U-TRU-MOX Brennstoffs mit einem Entladeabbrand von 60 GWd/t<sub>SM</sub> und 49 Leerstäben in pcm/K für Brennstofftemperatur, in 1/10 pcm/K für Moderatortemperatur, in 1/10000 pcm für den Void-Koeffizienten und pcm/ppm Bor für die Borwirksamkeit.

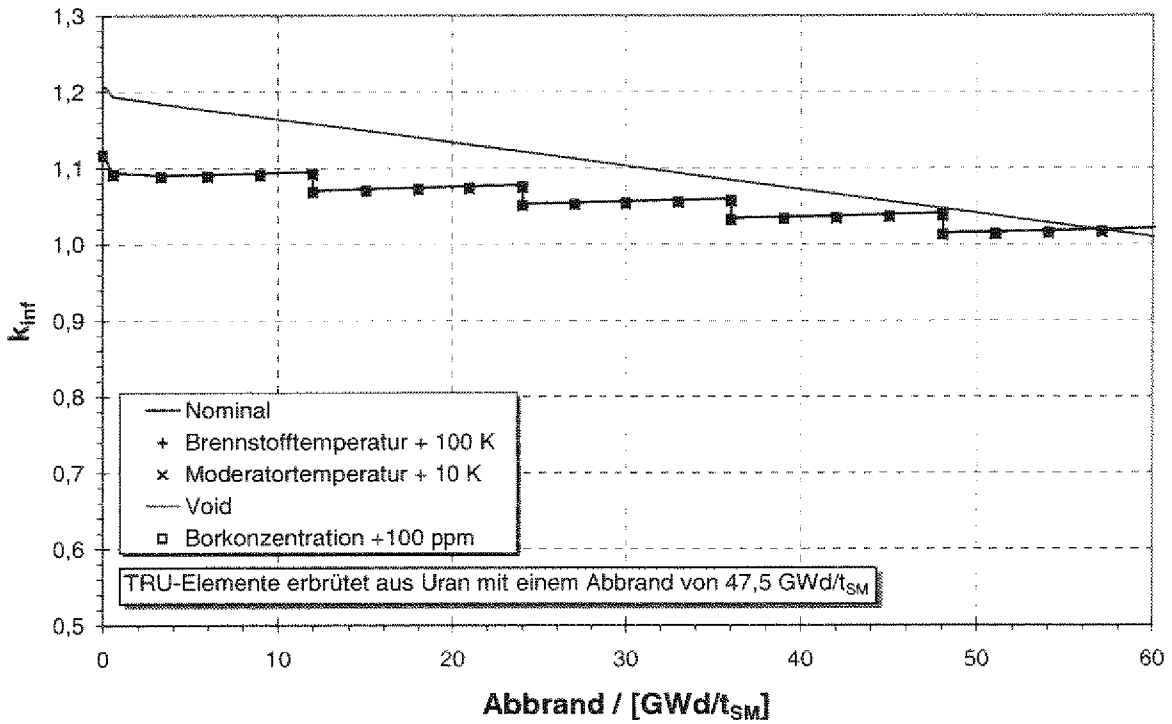


Abb. D-39: Verlauf der k-Werte bei Th-TRU-MOX mit einem Entladeabbrand von 60 GWd/t<sub>SM</sub> und einer auf 49 erhöhten Zahl an Leerstäben.

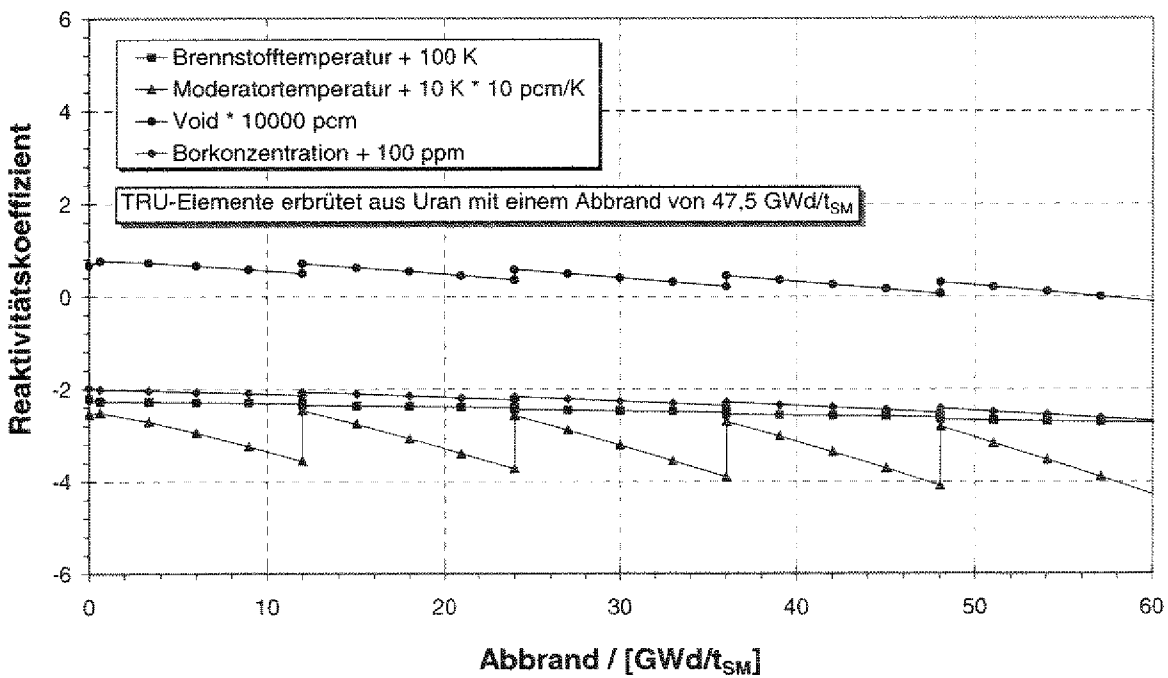
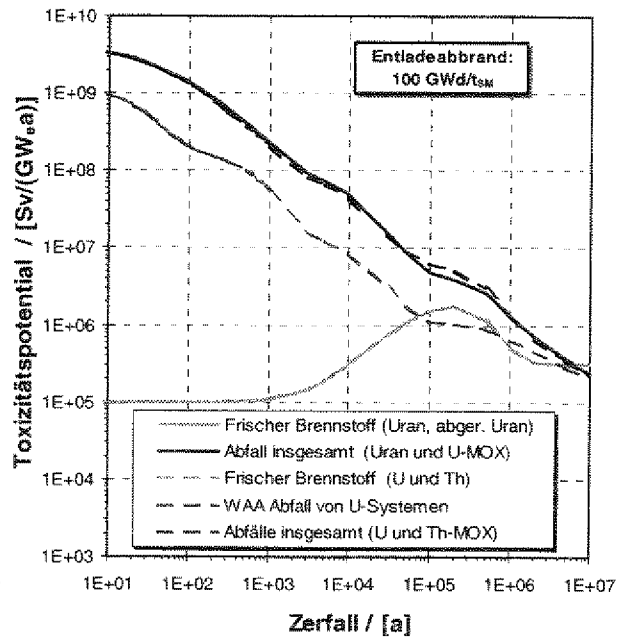
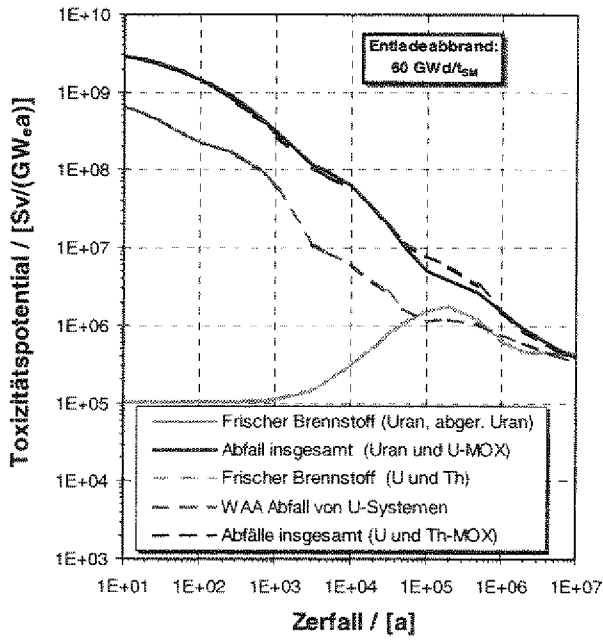


Abb. D-40: Reaktivitätskoeffizienten des Th-TRU-MOX Brennstoffs mit einem Entladeabbrand von 60 GWd/t<sub>SM</sub> und 49 Leerstäben in pcm/K für Brennstofftemperatur, in 1/10 pcm/K für Moderatortemperatur, in 1/10000 pcm für den Void-Koeffizienten und pcm/ppm Bor für die Borwirksamkeit.



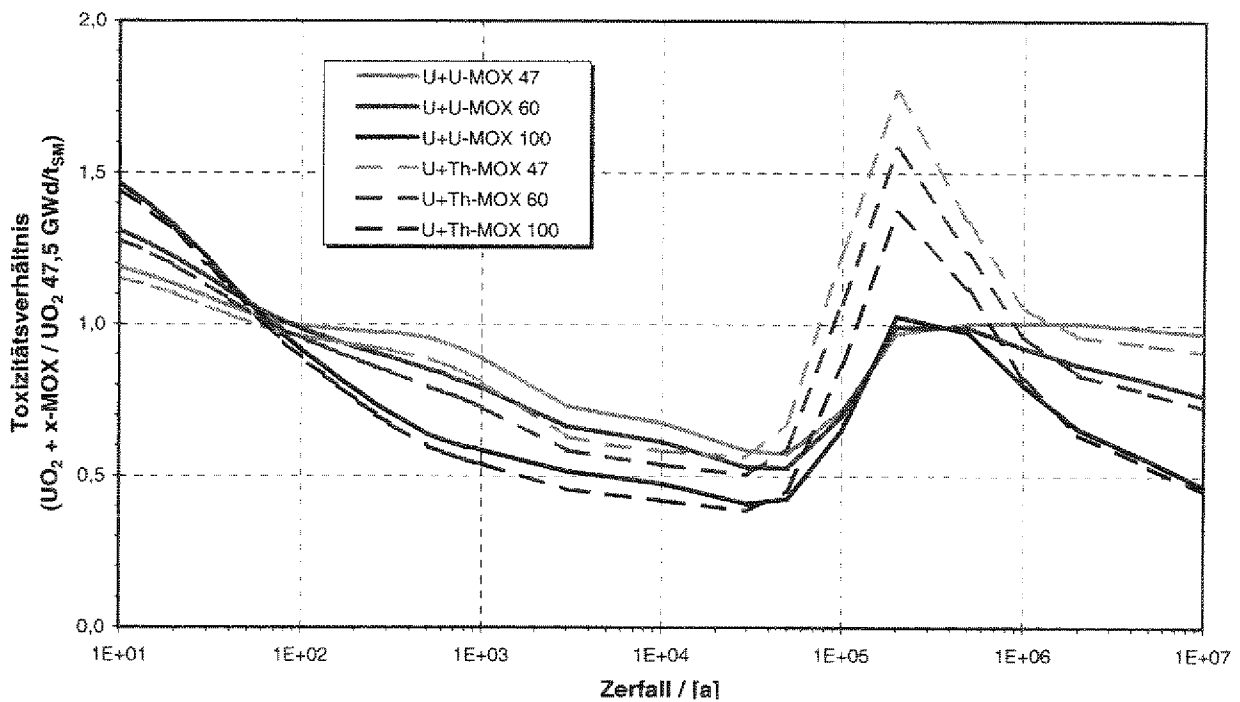
## Anhang E – Toxizitätspotentiale

In diesem Abschnitt des Anhangs, werden ergänzend zu Kapitel 8 noch die Toxizitätsverläufe der Schwermetalle der untersuchten Brennstoffe mit höheren Entladeabbränden als Funktion der Zeit präsentiert, sowie deren Toxizitätsverhältnisse in Bezug auf den Referenz Uranbrennstoff mit 47,5 GWd/t<sub>SM</sub> Entladeabbrand. So werden in **Abb. E-1** und **Abb. E-2** analog zu **Abb. 8-6** die Toxizitätsverläufe aller Massenströme des zweistufigen Brennstoffkreislaufs für die Entladeabbrände von 60 GWd/t<sub>SM</sub> respektive 100 GWd/t<sub>SM</sub> gezeigt. Dabei werden die Verläufe für den U-MOX als auch für den Th-MOX Brennstoff dargestellt. Man erkennt, daß die Toxizitäten – bedingt durch die Normierung auf die in elektrische Arbeit umgewandelte Kernenergie – qualitativ identisch mit denen des zweistufigen Brennstoffzyklus und einem Entladeabbrand von 47,5 GWd/t<sub>SM</sub> sind. Durch die starke Dominanz der Transuranelemente an der Toxizität sind auch die Unterschiede zwischen U-MOX und Th-MOX Brennstoffen von untergeordneter Bedeutung, da die TRU Inventare der abgebrannten MOX Brennstoffe in der gleichen Größenordnung liegen (vgl. Kapitel 6). Um die quantitativen Unterschiede aufzuzeigen, die zwischen den Brennstoffen liegen, präsentiert die **Abb. E-3** die Verhältnisse der auf gewandelte Energie normierten Toxizitäten des zweistufigen Brennstoffkreislaufes zu der ebenfalls energienormierten Toxizität des Uranbrennstoffs mit einem Entladeabbrand von 47,5 GWd/t<sub>SM</sub>. Man erkennt auch hier einen Anstieg der Toxizität nach ca. 200000 Jahren, welcher durch den Zerfall der Nuklide <sup>242</sup>Pu bei U-MOX und bei Th-MOX zusätzlich durch den Zerfall des <sup>233</sup>U begründet werden kann, da diese beiden Nukliden in diesem Zeitintervall zerfallen. Generell unterscheiden sich die Brennstoffe hinsichtlich ihrer Toxizität in Abhängigkeit von der Zerfallszeit nur um einen Faktor von zwei nach oben oder unten. Deshalb führt die alleinige Rezyklierung von Plutonium in U-MOX oder Th-MOX Brennelementen zu keiner Verkürzung der erforderlichen Endlagerzeiten.



**Abb. E-1:** Toxizitätspotentiale aller Massenströme des zweistufigen Brennstoffzyklus mit einem Entladeabbrand von 60 GWd/t<sub>SM</sub>.

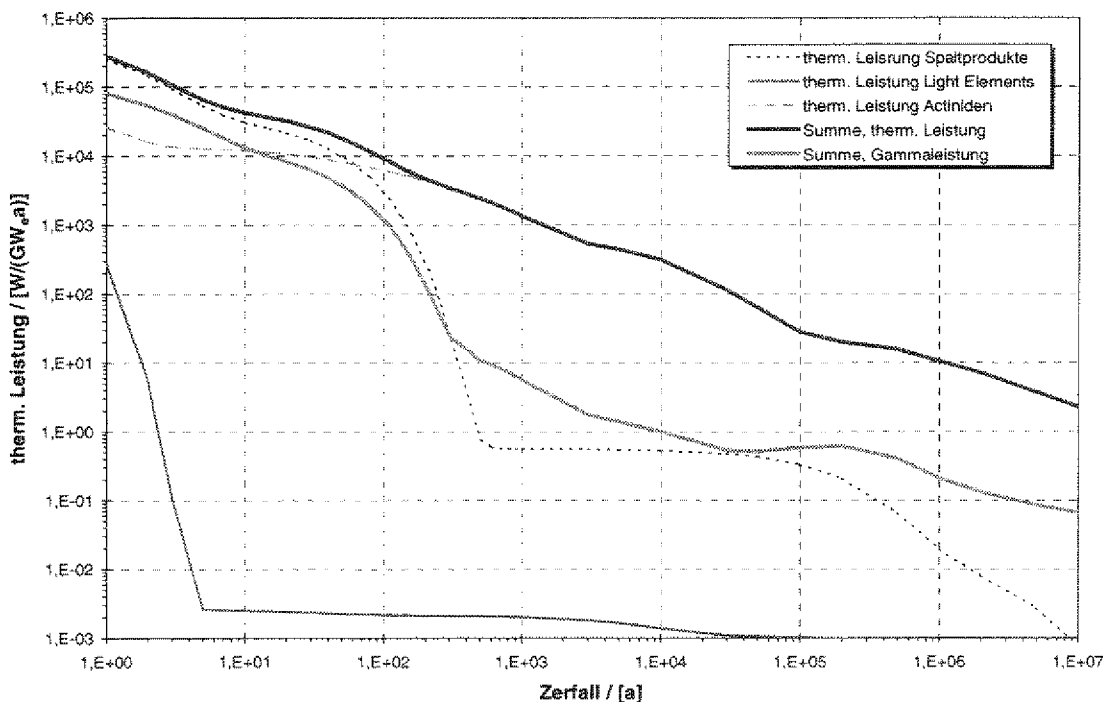
**Abb. E-2:** Toxizitätspotentiale aller Massenströme des zweistufigen Brennstoffzyklus mit einem Entladeabbrand von 100 GWd/t<sub>SM</sub>.



**Abb. E-3:** Toxizitätspotentiale der zweistufigen Brennstoffkreisläufe bezogen auf den mit 47,5 GWd/t<sub>SM</sub> abgebrannten Referenzuranbrennstoff.

## Anhang F – Wärmefreisetzung der Abfälle

In diesem Abschnitt des Anhangs werden für die wichtigsten Brennstoffe bzw. WAA Abfälle die Nachzerfallswärmeleistungen in Ergänzung zu Kapitel 9 gezeigt. Dabei sind alle thermischen Leistungen auf die Masse an Schwermetall bezogen, die erforderlich gewesen ist, um ein GW<sub>a</sub> im Druckwasserreaktor in elektrische Arbeit zu wandeln. In den **Abb. F-1** bis **Abb. F-8** ist die thermische Gesamtleistung in die Komponenten „Strukturmaterialien“, „Actiniden“ und „Spaltprodukte“ aufgeteilt. Zusätzlich ist die Gammaleistung eingetragen. Durch die Normierung auf die jeweils gleiche gewandelte Arbeit, sind die Unterschiede in den Nachzerfallsleistungen gering.



**Abb. F-1:** Abnahme der Nachzerfallswärmeleistung des Uranbrennstoffs mit 60 GWd/t<sub>SM</sub> Entladeabbrand.

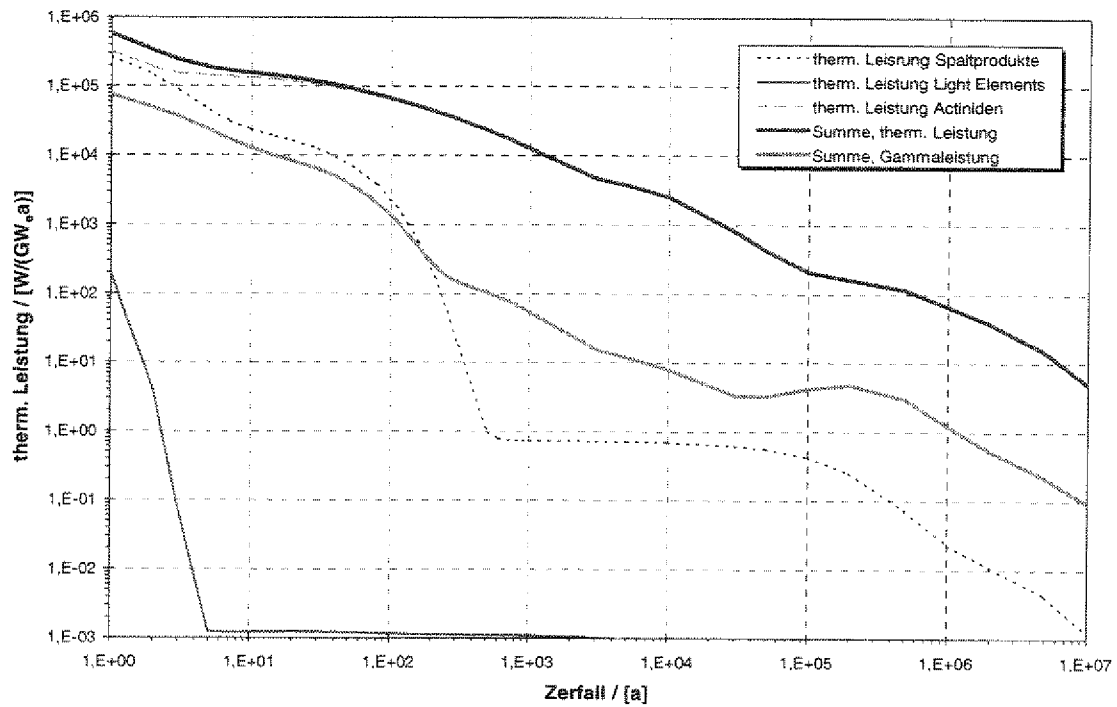


Abb. F-2: Abnahme der Nachzerfallswärmeproduktion des U-MOX Brennstoffs mit  $60 \text{ GWd}/t_{\text{SM}}$  Entladeabbrand.

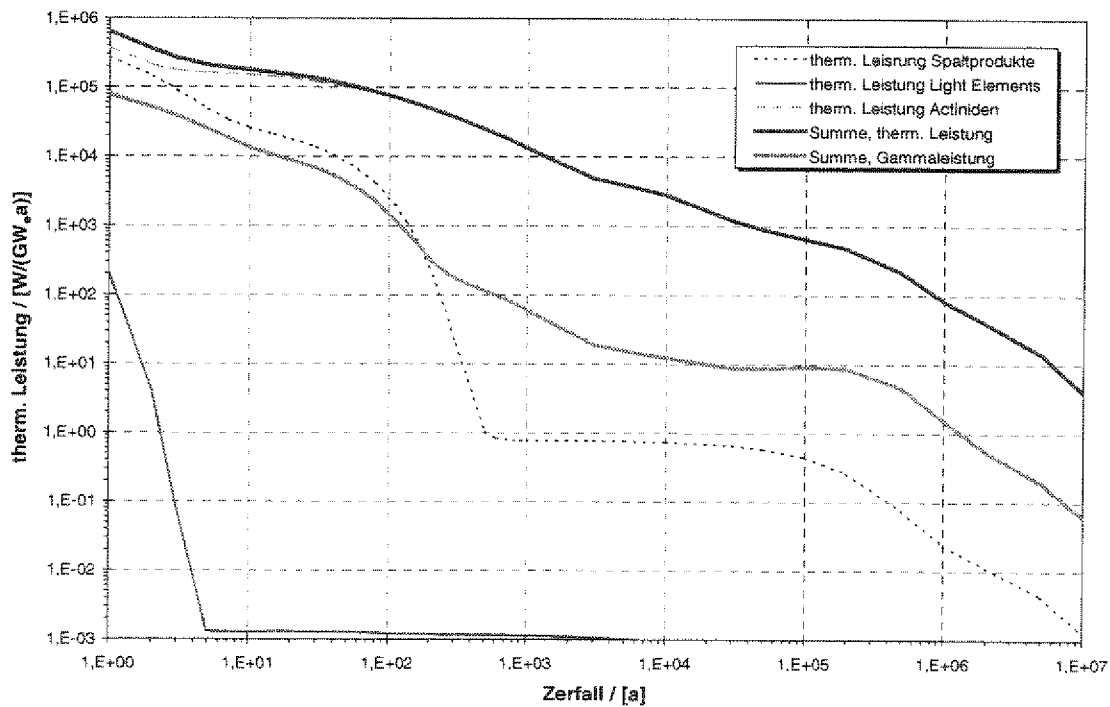


Abb. F-3: Abnahme der Nachzerfallswärmeproduktion des Th-MOX Brennstoffs mit  $60 \text{ GWd}/t_{\text{SM}}$  Entladeabbrand.

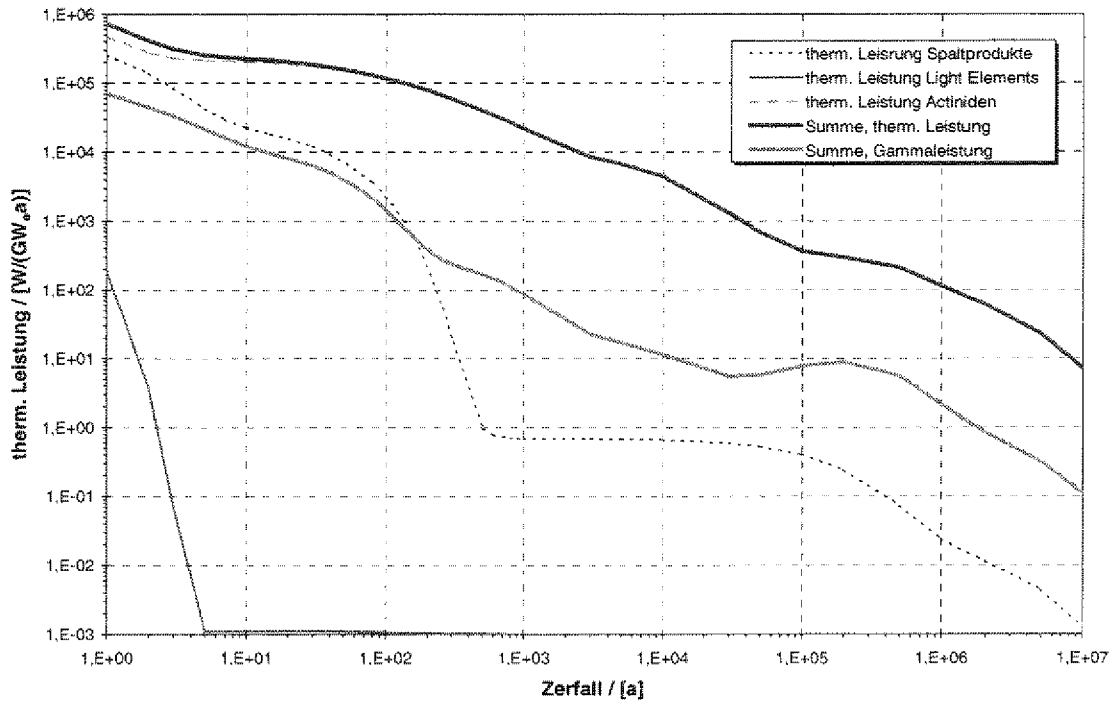


Abb. F-4: Abnahme der Nachzerfallswärmeproduktion des U-MOX Brennstoffs (zweite Rezyklierung) mit  $60 \text{ GWd}/t_{SM}$  Entladeabbrand.

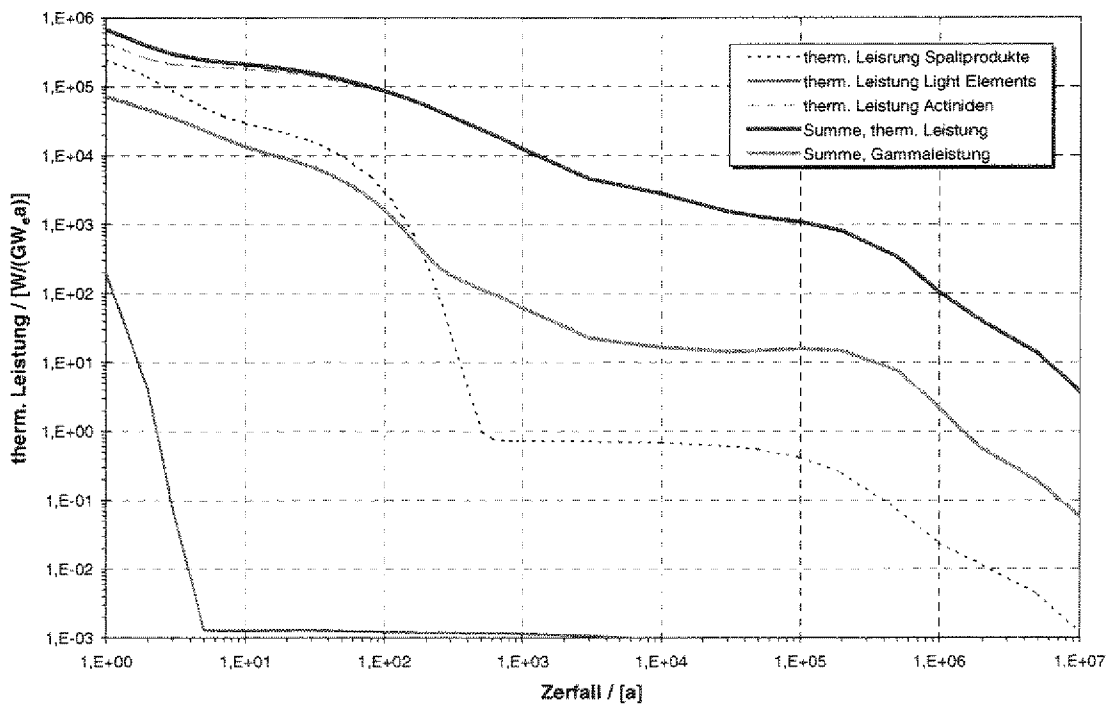


Abb. F-5: Abnahme der Nachzerfallswärmeproduktion des Th-MOX Brennstoffs (zweite Rezyklierung) mit  $60 \text{ GWd}/t_{SM}$  Entladeabbrand.

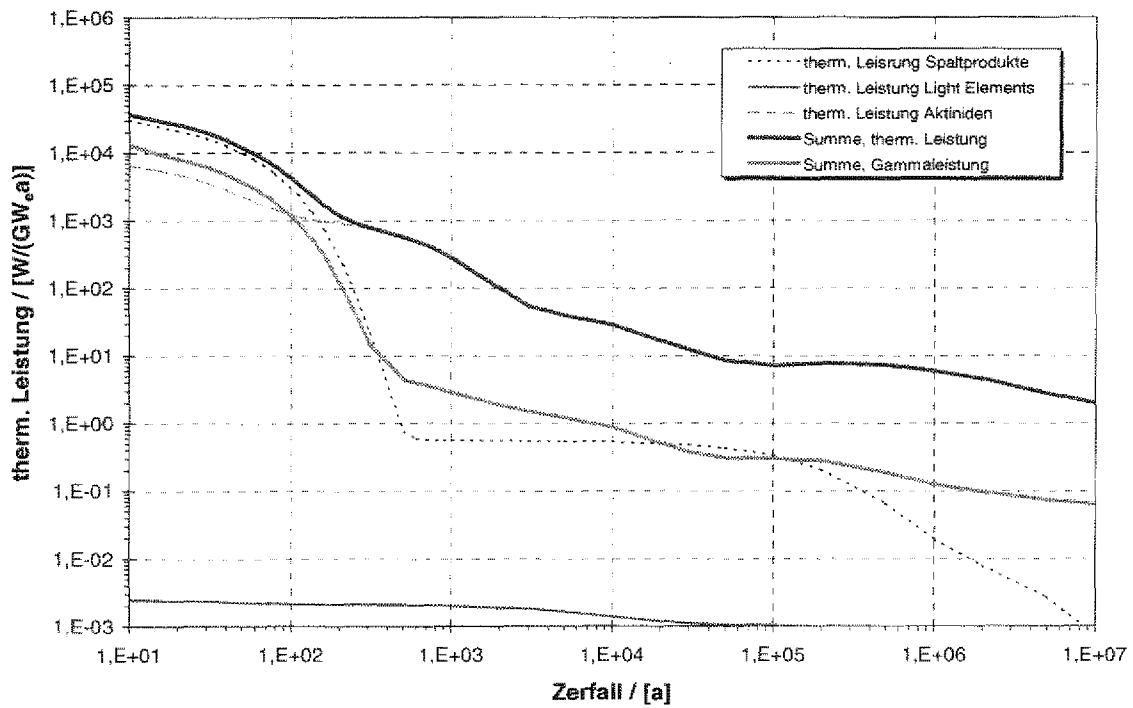


Abb. F-6: Abnahme der Nachzerfallswärmeleistung der WAA Abfälle bei der Aufarbeitung von Uranbrennstoff mit 60 GWd/t<sub>SM</sub> Entladeabbrand.

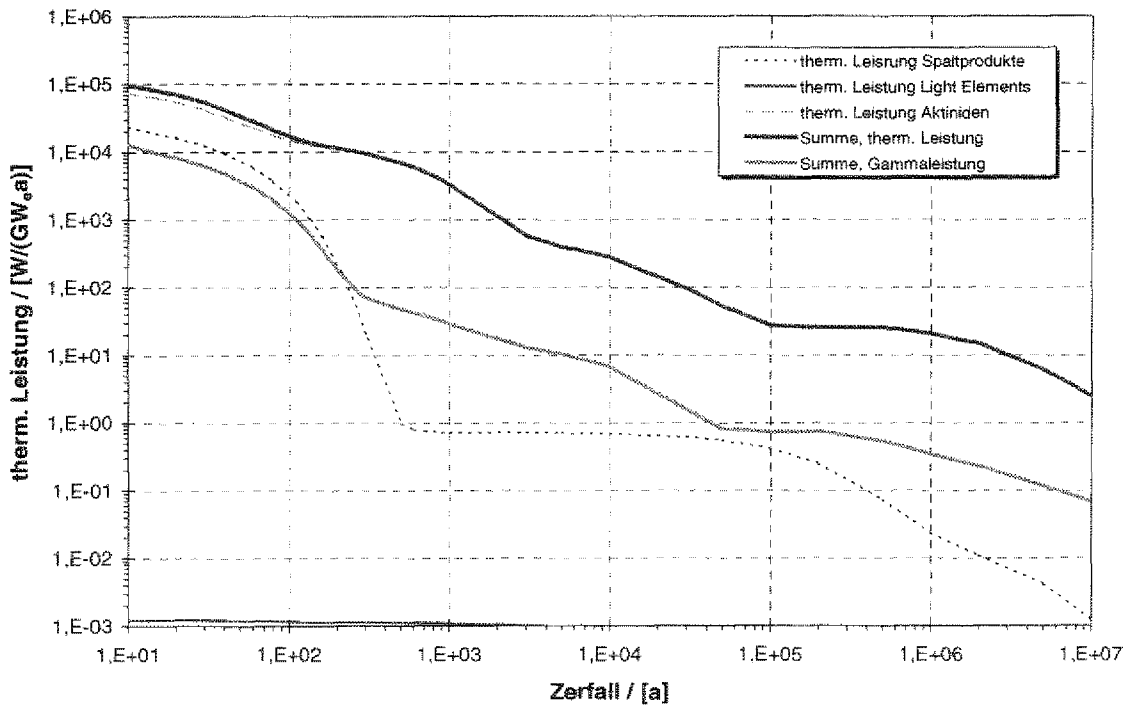


Abb. F-7: Abnahme der Nachzerfallswärmeleistung der WAA Abfälle bei der Aufarbeitung von U-MOX Brennstoff mit 60 GWd/t<sub>SM</sub> Entladeabbrand.

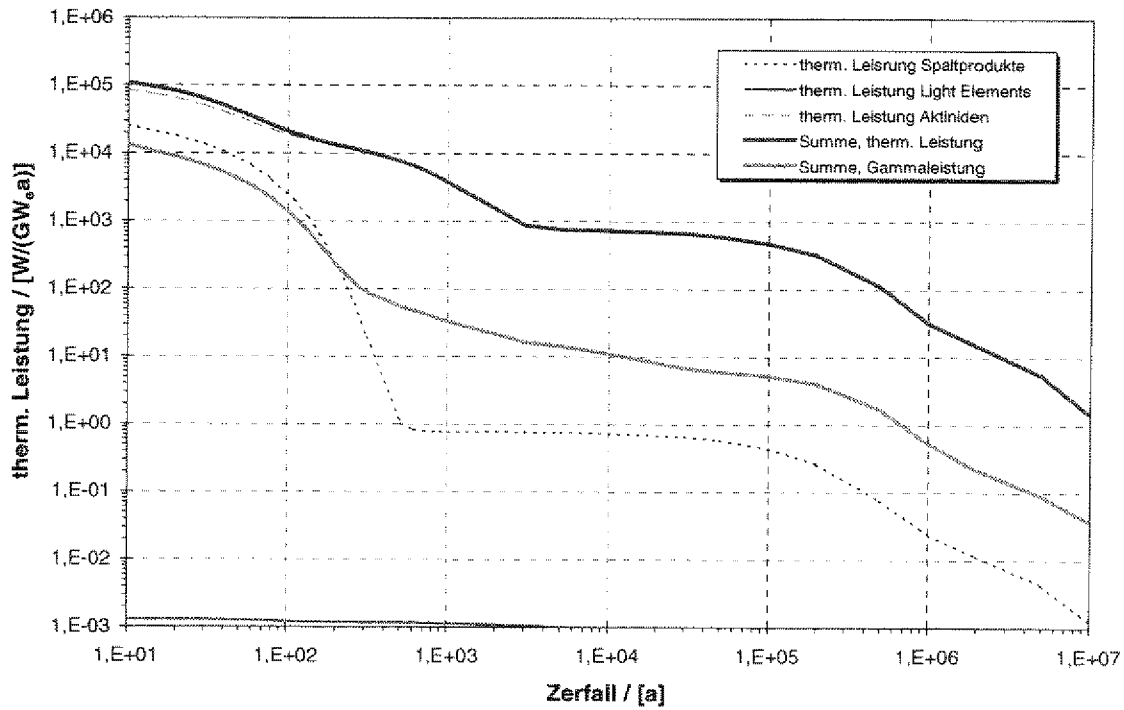
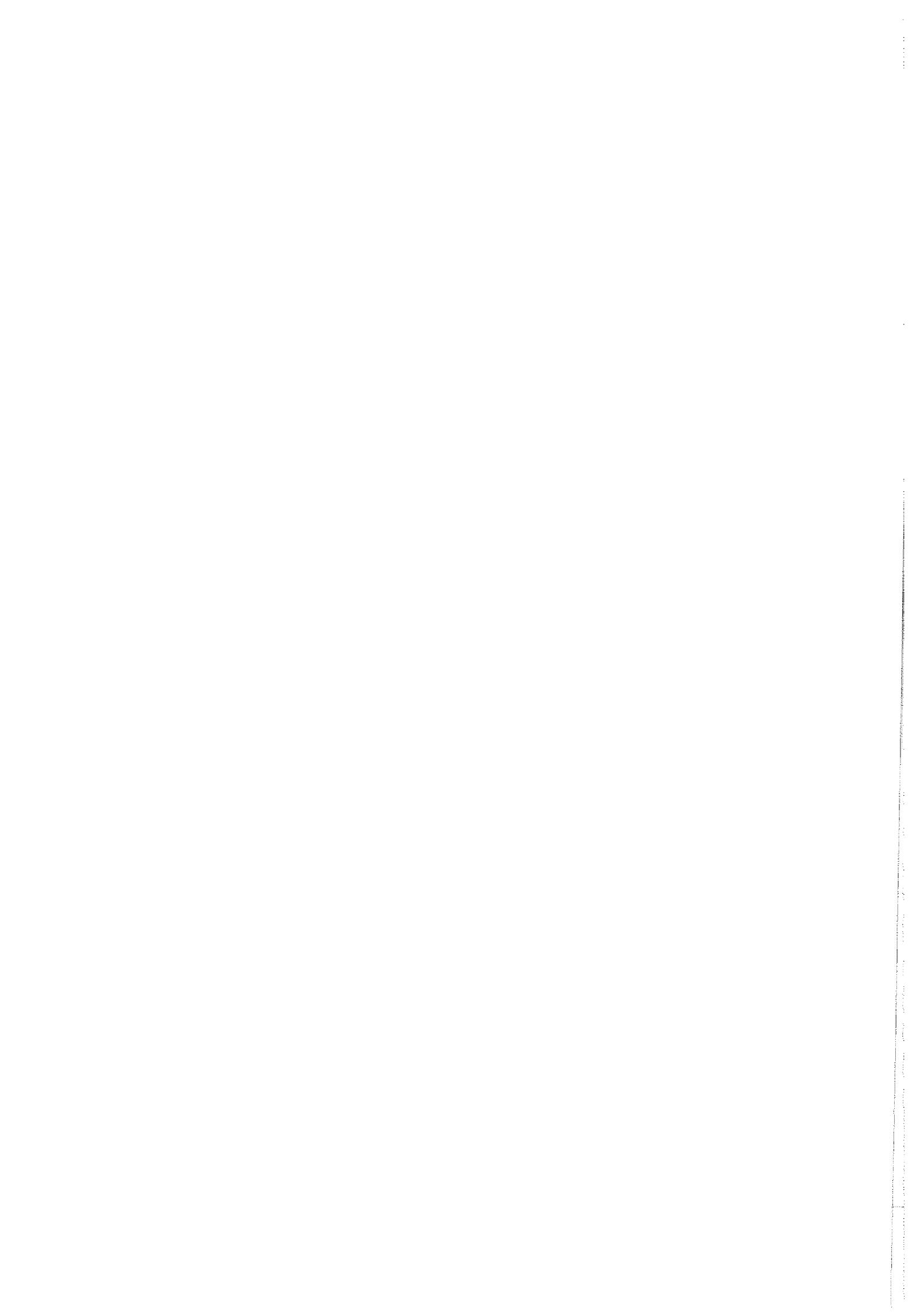


Abb. F-8: Abnahme der Nachzerfallswärmeleistung der WAA Abfälle bei der Aufarbeitung von Th-MOX Brennstoff mit  $60 \text{ GWd}/t_{SM}$  Entladeabbrand.

.....



Forschungszentrum Jülich



Jüli-3740  
Februar 2000  
ISSN 0944-2952