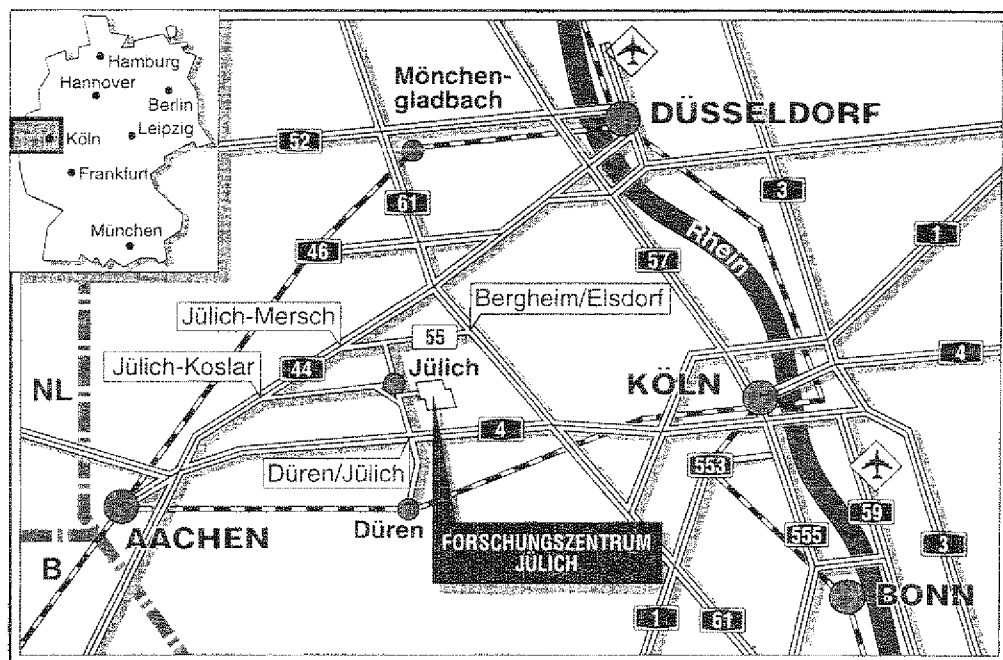


*Institut für Sicherheitsforschung
und Reaktortechnik*

**Aspekte des Einsatzes von Systemen
zur Transmutation radioaktiver Stoffe
– Neutronik, Technik, Sicherheitsverhalten –**

Frank Lypsch



Berichte des Forschungszentrums Jülich ; 3181

ISSN 0944-2952

Institut für Sicherheitsforschung und Reaktortechnik JÜl-3181

D 82 (Diss. RWTH Aachen)

Zu beziehen durch: Forschungszentrum Jülich GmbH · Zentralbibliothek

D-52425 Jülich · Bundesrepublik Deutschland

Telefon: 02461/61-61 02 · Telefax: 02461/61-61 03 · Telex: 833 556-70 kfa d

**Aspekte des Einsatzes von Systemen
zur Transmutation radioaktiver Stoffe
– Neutronik, Technik, Sicherheitsverhalten –**

Frank Lypsch

Vorwort

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

Meinen besonderen Dank richte ich an Herrn Dr.-Ing. P. W. Phlippen und Prof. Dr.-Ing. K. Kugeler für die interessante Aufgabenstellung und die stete Diskussionsbereitschaft. Herrn Dr.-Ing. P. W. Phlippen, Privatdozent an der RWTH Aachen, danke ich darüber hinaus für die Übernahme des Referates.

Herrn Prof. Dr.-Ing. K. Kugeler, Inhaber des Lehrstuhls für Reaktorsicherheit und -technik an der RWTH Aachen, danke ich für seine hilfreichen Anregungen sowie für die Übernahme des Korreferates.

Herrn Dr. rer. nat. D. Filges danke ich für sein Interesse an der Arbeit und für die wohlwollende Übernahme des Korreferates.

Für seine kritische Stellungnahme und die Hilfe bei der übersichtlichen Darstellung der Ergebnisse dieser Arbeit möchte ich mich bei Herrn Dr.-Ing. J. Roes bedanken. Herrn Dr. R. N. Hill von der Reactor Analysis Division des Argonne National Laboratory gebührt mein besonderer Dank für seine Unterstützung und die häufigen Diskussionen zum Sicherheitsverhalten von kritischen und unterkritischen Systemen.

Bei allen meinen Kolleginnen und Kollegen des Instituts für Sicherheitsforschung und Reaktortechnik des Forschungszentrums Jülich bedanke ich mich für die gute Zusammenarbeit und die unzähligen Hinweise und Anregungen, die den Verlauf der Arbeit sicherlich mitbestimmt haben. Stellvertretend für alle möchte ich die Gelegenheit nutzen, um meinem langjährigen Zimmerkollegen Herrn Dipl.-Phys. P. Lizana für die häufigen fachbezogenen Gespräche zu danken.

Specific Aspects of Systems for Transmuting Radioactive Waste - Neutronics, Technics, Safety Behaviour -

by
Frank Lypsch

Abstract

Theoretically, nuclear facilities can be envisaged which transmute toxic nuclear isotopes, typically the spent fuel from PWR's, into isotopes with a considerably lower long-term toxicity potential. The way to attain that goal is to fission long-lived actinides yielding short-lived fission products while specific toxic and very mobile fission products are transmuted by neutron capture. Suitable nuclear facilities can be critical reactors or subcritical systems. The latter are driven by an external neutron source being provided by high energy protons spalling especially heavy atoms within a so-called target (spallation process).

In the past most of the work concentrated on the physical aspect i. e. the neutronics of certain favoured systems. The fluid fuel subcritical systems contrived by Los Alamos National Laboratories (ATW) are a good example for that phenomenon. Questions concerning the technical feasibility or the safety of the proposed facilities are only dealt with as an side-issue. Moreover, the advantages and drawbacks of certain transmutation schemes with their specific interrelation to partitioning has not been sufficiently assessed.

The aim of this study is to close that gap starting with a review of the incentives for transmuting radioactive materials. Special attention is payed to the significance of toxicity potentials and the losses in the fuel cycle. Different nuclear facilities are compared with regard to their potential for incinerating nuclear waste. The neutronics of a typical fluid fuel system is investigated on the basis of the Los Alamos ATW concept. Another recent development, the Integral Fast Reactor, serves as the reference system for a study on differences in the safety behaviour of critical and subcritical systems. As expected, the subcritical system has certain advantages but is not automatically safer than a similar critical system. It seems to be more noteworthy that subcritical systems have a further nuclear degree of freedom which helps in transmuting actinides as well as fission products.

A system using liquid lead as both a coolant and a carrier of the actinides has been contrived and investigated. External cooling loops as well as internal cooling forms seem to be technically feasible. Transmutation with this kind of facilities seems to be promising, since no unsurmountable technical problems are to be expected.

Aspekte des Einsatzes von Systemen zur Transmutation radioaktiver Stoffe - Neutronik, Technik, Sicherheitsverhalten -

von
Frank Lypsch

Kurzfassung

Theoretisch sind kerntechnische Anlagen denkbar, welche toxische radioaktive Isotope, beispielsweise aus den abgebrannten Brennelementen eines DWR, in solche mit einem deutlich geringerem Langzeitgefährdungspotential verwandeln. Actiniden können gespalten werden, während toxische bzw. im Endlager mobile Spaltprodukte über eine Neutroneneinfangreaktion transmutiert werden. Geeignete kerntechnische Transmutationssysteme können kritisch oder unterkritisch ausgelegt werden. Bei einem unterkritischen System sorgt eine externe Neutronenquelle, die durch Spallation von vorzugsweise schweren Kernen im Target mit Hochenergieprotonen bereitgestellt wird, für die zeitliche Konstanz der Neutronenflüsse.

In der Vergangenheit wurde hauptsächlich die Neutronik von verschiedenen Konzepten diskutiert, wobei die Vor- und Nachteile der Transmutation mit ihren Auswirkungen und Anforderungen an die Wiederaufarbeitung nicht ausreichend bewertet wurde. Als Beispiel hierfür mögen etwa die unterkritischen Systeme mit flüssigem Kernbrennstoff des Los Alamos National Laboratory (ATW) dienen. Inwieweit solche Konzepte technisch realisierbar sind und wie das Sicherheitsverhalten dieser Systeme auch unter hypothetischen Störfallbedingungen zu bewerten ist, wurde nicht zufriedenstellend beantwortet.

In dieser Arbeit werden in einem ersten Schritt die Gründe für die Transmutation und die Anforderungen an die Trenngüte in der Wiederaufarbeitung erarbeitet. Dieses geschieht auf der Basis des Gefährdungspotentials der betrachteten Abfälle. Die Eignung verschiedener kerntechnischer Anlagen für die Transmutation - betrachtet werden unterkritische und kritische Systeme - wird vergleichend bewertet. Detaillierte neutronische Untersuchungen werden auf der Basis des ATW-Konzeptes von Los Alamos durchgeführt. Der Integral Fast Reactor dient als Referenzsystem für einen grundsätzlichen Vergleich der Sicherheitseigenschaften von kritischen und unterkritischen Systemen. Wie erwartet, sind unterkritische Systeme nicht automatisch sicherer. Wichtiger scheint zu sein, daß man in unterkritischen Systemen einen zusätzlichen neutronischen Freiheitsgrad gewinnt, um sowohl Spaltprodukte als auch Actiniden zu transmutieren.

Ein System mit flüssigem Blei als Kühlmittel und Trägermaterial der Actiniden wurde ausgelegt und hinsichtlich seiner technischen Durchführbarkeit bewertet. Dieses schloß Anlagenvariationen bzgl. interner und externer Kühlungsformen ein. Zusammenfassend läßt sich feststellen, daß die Transmutation in Anlagen dieser Art vielversprechend erscheint und keine unüberwindbaren technischen Probleme ausgemacht werden können.

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
2	Einführung in die Entsorgungsproblematik	5
2.1	Wiederaufarbeitung im nuklearen Brennstoffkreislauf	5
2.1.1	Heutige Möglichkeiten und Grenzen	5
2.1.2	Innovative Verfahren	8
2.2	Endlagerung	11
2.3	Transmutation im nuklearen Brennstoffkreislauf	17
3	Anlagen zur Transmutation	25
3.1	Anforderungen an Transmutationssysteme	25
3.2	Kritische Systeme	28
3.2.1	Leichtwasser- und Schwerwasserreaktoren	28
3.2.2	Natriumgekühlte konvertierende Reaktoren	31
3.2.3	Kritische Reaktoren im Vergleich	35
3.3	Unterkritische Systeme	38
3.3.1	Protonenbeschleuniger	42
3.3.2	Spallationstarget	44
3.3.3	Protonenfenster	45
3.3.4	Blanketgestaltung flüssiger Systeme	47
3.3.4.1	Leichtes und schweres Wasser	51
3.3.4.2	Salzschmelzen auf Fluorid- und Chloridbasis	54
3.3.4.3	Flüssigmetalle	56
4	Neutronik und Technik eines unterkritischen thermischen Systems	59
4.1	Entwicklung des Simulationsmodells	61
4.1.1	Target	61
4.1.2	Einheitszelle	62
4.1.3	Anordnung von Target und Blanket	63
4.2	Rechnungen zur Neutronik	64
4.2.1	Prinzipielle Zusammenhänge	64
4.2.2	Rechnungen zur Einheitszelle	67
4.2.3	Rechnungen zum Gesamtsystem	70
4.3	Diskussion der Ergebnisse	74
5	Tendenzen im Sicherheitsverhalten unterkritischer Systeme	77
5.1	Auslegung der unterkritischen Anlage	77
5.2	Stationäres Verhalten von Reaktor und Hybridanlage	80
5.3	Dynamik von Reaktor und Hybridanlage	82
5.3.1	Grundlagen einer mathematischen Beschreibung	82
5.3.2	Kritikalitätsstörfälle	85
5.3.3	Störungen der Wärmeabfuhr	88
5.3.3.1	Verlust der Wärmesenke im Sekundärkreis	89
5.3.3.2	Ausfall der Primärkühlmittelpumpen	91
5.4	Schlußfolgerungen	93

6	Transmutation in graphitmoderierten Bleischmelzen	95
6.1	Eigenschaften der Schmelze	96
6.1.1	Flüssiges Blei als Kühlmittel	96
6.1.2	Actiniden in flüssigem Blei	99
6.2	Mögliche Moderatoren	101
6.2.1	Wasser	101
6.2.2	Graphit	102
6.3	Strukturmaterialien	106
6.4	Gestaltung des Primärkreises	110
6.4.1	Externe Kühlung	110
6.4.1.1	Die modifizierte Einheitszelle	110
6.4.1.2	Auslegung des Primärkreises	111
6.4.1.3	Konstruktive Ausführung	114
6.4.2	Interne Kühlung mit Zwangskonvektion	116
6.4.3	Interne Kühlung mit Naturkonvektion	118
6.4.3.1	Temperaturverteilung in einer ruhenden Flüssigkeitssäule	119
6.4.3.2	Vereinfachte Modellierung der Naturkonvektionsvorgänge	120
6.4.3.3	Konstruktive Ausführung	128
6.5	Zusammenfassende Bewertung und offene Fragen	129
7	Zusammenfassung und Ausblick	131
8	Literaturverzeichnis	135
8.1	Literatur zu Kapitel 1	135
8.2	Literatur zu Kapitel 2	136
8.3	Literatur zu Kapitel 3	138
8.4	Literatur zu Kapitel 4	142
8.5	Literatur zu Kapitel 5	143
8.6	Literatur zu Kapitel 6	144
8.7	Literatur zum Anhang	148
Anhang		151
A	Kurzbeschreibung der verwendeten Programme	151
A.1	HETC - ein Hochenergietransportcode	151
A.2	XSDRN und DIF3D zur Neutronenflußberechnung	153
A.3	ORIGEN und REBUS zur Abbrandberechnung	155
B	Gefährdungspotential radioaktiver Abfälle	157
B.1	Zusammensetzung radioaktiver Abfälle aus Reaktoren	157
B.2	Bestimmung der Gefährdungspotentiale nach den ICRP-Richtlinien	159
C	Flüssiges Blei als Wärmeträger	161
C.1	Grundsätzliche Zusammenhänge	161
C.2	Stoffdaten für flüssiges Blei	162
C.3	Datenblätter zu den untersuchten Varianten der externen Kühlung	163
C.4	Datenblätter zur internen Kühlung mit Zwangskonvektion	168
D	Formelzeichen und Abkürzungen	169

1 Einleitung

Der Club of Rome konstatiert in seinem jüngsten Bericht [1.1], daß die Menschheit an der Schwelle zu einer globalen Revolution steht. Die zu erwartenden weltweiten Umbrüche sind gekennzeichnet durch Spannungen zwischen armen und reichen Ländern, einer steigenden Bedrohung menschlicher Lebensräume und einer immer schneller fortschreitenden technischen und wirtschaftlichen Entwicklung. Eine zentrale Bedeutung kommt dabei einer Ursachenkette, bestehend aus einer Bevölkerungsexplosion in den südlichen Ländern, dem weltweit wachsenden Energiebedarf und den durch verstärkte Nutzung fossiler Energieträger zu erwartenden CO_2 -Freisetzungen zu. Diese könnten nach der Meinung der Mehrheit der Klimatologen zu einer globalen Erwärmung und Klimaverschiebung mit katastrophalen Auswirkungen führen [1.2]. Einen Eindruck von der globalen Dimension einer umweltverträglichen Sicherung der Energieversorgung sollen die in Abb. 1.1 dargestellten Energieprognosen des World Energy Council (WEC) geben, die 1992 auf der Basis eines Bevölkerungsanstiegs von heute 5,3 Milliarden bis 2010 auf etwa 7,2 Milliarden und bis 2020 auf 8 Milliarden erstellt wurden.

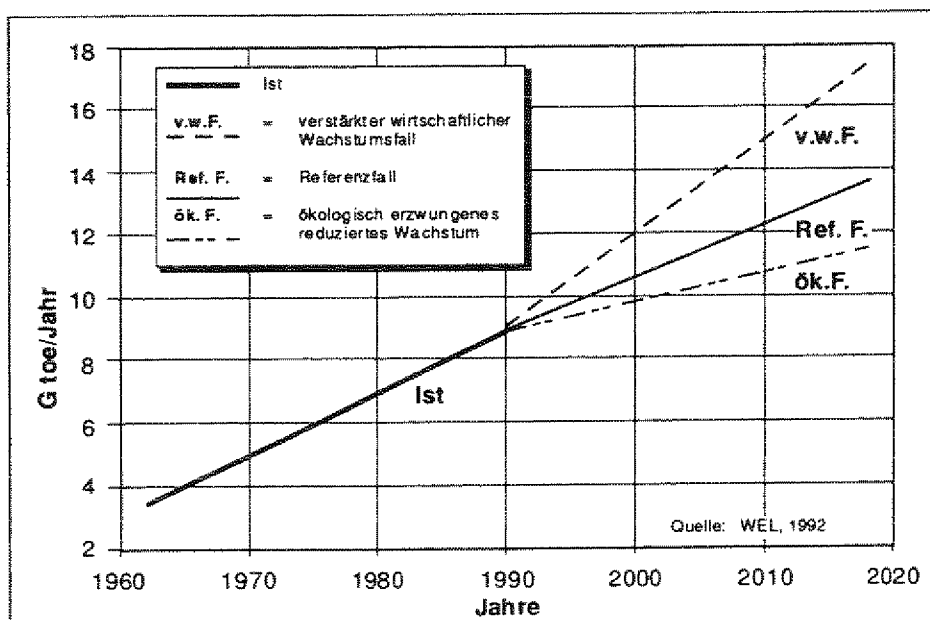


Abb. 1.1: Historie und Projektionen des Weltenergiebedarfes [1.3]

Eine Abwendung dieser katastrophalen Auswirkungen kann nur durch die konzentrierte Fortentwicklung rationeller Energienutzungsformen und durch die Förderung CO_2 -freier

Energieträger, wie Solarenergie aber auch Kernenergie¹, geschehen. Das unterschiedliche Potential dieser Möglichkeiten hinsichtlich der CO₂-Minderung wird in [1.4] diskutiert.

Die Bedeutung der heutigen Kernenergienutzung und die von ihr ausgehenden Risiken werden in der Bevölkerung unterschiedlich beurteilt, obwohl wissenschaftlich nachgewiesen werden konnte, daß die verantwortliche Nutzung der Kernenergie gemäß geltenden Regeln und Sicherheitsvorschriften nur unwesentlich, und im Vergleich zum Straßenverkehr nur marginal, zum Mortalitätsrisiko des einzelnen Menschen beiträgt [1.5]. Auf der anderen Seite jedoch läßt sich leicht nachvollziehen, daß eine zukünftig verstärkte Nutzung der Kernenergie im Sinne einer aus Klimaschutzgründen wünschenswerten Substitution fossiler Energieträger auch ein größeres Gesamtrisiko zur Folge hätte. Dieses gilt insbesondere, wenn man den gesamten nuklearen Brennstoffkreislauf bis zum Endlager betrachtet und Risiken durch die Proliferation spaltbarer Materialien einbezieht.

Unabhängig von der subjektiven Beurteilung der dargestellten Problematik ergibt sich die Verpflichtung, den nuklearen Brennstoffkreislauf mit allen Unwägbarkeiten so vollständig wie möglich zu charakterisieren, um die Basis für einen Vergleich der Risiken und für notwendige politische Entscheidungen zu schaffen. Desweiteren gilt grundsätzlich das Prinzip der Minimierung des Gefährdungspotentials gemäß dem bestmöglichen Stand von Wissenschaft und Technik, sofern dieses nicht durch existentielle ökonomische Sachverhalte eingeschränkt ist. Obige Überlegungen führten im Bereich der kerntechnischen Anlagen zu der erweiterten Forderung, daß diese katastrophenfrei sein müssen [1.6]. Eine Übertragung dieses Gedankenguts auf das Ende des Brennstoffkreislaufs, die Endlagerung, bedeutet, daß die Risiken der Endlagerung nicht nur vernachlässigbar, sondern so gering wie es der derzeitige technische Standard ermöglicht, sein sollten. Als Ziel läßt sich formulieren, daß zu keinem Zeitpunkt, auch nicht nach mehreren 100.000 Jahren, Störfallszenarien im Endlager möglich sein dürfen, die zu einer unzulässig hohen Dosisbelastung der Bevölkerung führen würden.

Eine Arbeit, die einen Beitrag zu diesem Problemkreis leisten will, beginnt naturgemäß mit einer Charakterisierung der Verhältnisse im Endlager. Dieses soll direkt im Anschluß an diese Einleitung geschehen. Hierdurch lassen sich Schwachstellen des heutigen Brennstoffkreislaufs auf der Basis wissenschaftlicher Erkenntnisse sachlich analysieren. Diese Vorgehensweise führt zur Aufdeckung von Verbesserungsansätzen in dem Sinne, welche Nuklide mit welcher Reinheit dargestellt werden müßten, um in einem modifizierten Brennstoffkreislauf rezykliert zu werden. Die Mengenreduktion toxischer radioaktiver Stoffe während der Rezyklierung - im folgenden auch als Transmutation bezeichnet - beruht dabei im wesentlichen auf den gleichen Prinzipien wie die ursprüngliche Nutzung der Kernbrennstoffe. Toxische langlebige Spaltprodukte werden durch Neutroneneinfänge in biologisch verträglichere Stoffe umgewandelt; die Transmutation von Actiniden geschieht nach einer von der konkreten Ausbildung der kerntechnischen Anlage (Neutronenspektrum) abhängigen Anzahl von Neutroneneinfängen durch Kernspaltung.

¹Zur Rolle der Kernenergie in einer zukünftigen Energieversorgung schreibt der Club of Rome [1.1]: "Wir schlagen schweren Herzens vor, auch die Option auf die Kernspaltung offenzuhalten, da diese vermutlich weniger gefährlich ist als die Verbrennung von Öl und Kohle".

Neben herkömmlichen schnellen und thermischen Reaktoren bieten sich unterkritische Anlagen für die Transmutation von Actiniden und Spaltprodukten an. Die externen Quellneutronen werden dabei durch eine Wechselwirkung hochenergetischer geladener Teilchen (Protonen, Deuteronen etc.) mit schweren Atomkernen wie etwa Blei bereitgestellt, was auch als Spallationsreaktion bezeichnet wird. Die Nutzung des Spallationsprozesses zum Brüten von Spaltmaterial aber auch zur Transmutation von Spaltprodukten wurde bereits ab den 60er Jahren, beispielsweise in den Arbeiten von *Steinberg* [1.7, 1.8] diskutiert. Einen erneuten Auftrieb und weltweite Aufmerksamkeit erhielten die Diskussionen zur Transmutation durch die Arbeiten von *Bowman et al.* [1.9, 1.10] vom Los Alamos National Laboratory (LANL). Die vorgeschlagenen unterkritischen Systeme sollen Energie aus flüssigen Kernbrennstoffen (Lösungen, Suspensionen) mit neuen Sicherheitsqualitäten der Anlage und ohne den Aufbau langlebiger Restprodukte bereitstellen. Im Rahmen dieser Arbeit soll in einem weiteren Kapitel das so aufgebaute Spannungsfeld zwischen mit hohen Erfahrungswerten versehenen und beständig verbesserten kritischen Reaktoren und innovativen unterkritischen Anlagen dargestellt werden. Besonderes Augenmerk wird dabei auf die technische Realisierbarkeit, die Änderung der Sicherheitseigenschaften und den resultierenden Nutzen, in Form von Transmutationsraten, gelegt.

Spezielle Anlagen wie der unterkritische schwerwassermodierte Suspensionsreaktor des LANL und eine schnelle unterkritische Anlage mit metallischen Brennstäben auf der Basis des vom Argonne National Laboratory entwickelten Integral Fast Reactor (IFR) werden zu systemtheoretischen Studien herangezogen. Ziel ist es dabei zum einen, aufgrund eigener neutronischer und thermohydraulischer Rechnungen, das Optimierungspotential und die Defizite dieser technisch konträren Systeme aufzuzeigen. Zum anderen läßt sich am Beispiel des IFR das transiente Verhalten unterkritischer Anlagen unter Störfallbedingungen beschreiben.

Die in diesen Vergleichen gewonnenen Erkenntnisse führen zur Formulierung verschiedener Konstruktionsprinzipien, die in die Auslegung einer unterkritischen Transmutationsanlage eingebracht werden. Wesentliche Merkmale dieses von einer Arbeitsgruppe der KFA-Jülich entwickelten Vorschlags sind die weitgehende Nutzung thermischer Neutronenspektren und die Verwendung von flüssigem Blei als Kühlmittel und Trägersubstanz der Actiniden. Der aktuelle Stand der Entwicklung von Protonenfenster und Spallationstarget ist in der unter [1.11] aufgeführten Arbeit dokumentiert, während systematische Studien zur Neutronik in [1.12] ausführlich dargestellt werden.

2 Einführung in die Entsorgungsproblematik

Die friedliche Nutzung der Kernenergie verlangt eine sichere Entsorgung der abgebrannten Brennelemente, verbunden mit einer Spaltstoffkontrolle, die die Proliferation von waffenfähigem Material effektiv verhindert. Die Erfüllung beider oben aufgestellter Forderungen ist eng mit dem favorisierten von Nation zu Nation unterschiedlichen Brennstoffzyklus verbunden. Prinzipiell unterscheidet man mit Hinblick auf die deutsche Problematik die direkte Endlagerung und die Wiederaufarbeitung, aber daneben existieren noch eine Reihe anderer Möglichkeiten und Zwischenstufen, welche in einem ersten Abschnitt dargestellt werden sollen. Endprodukt aller Brennstoffzyklen sind leicht-, mittel- und hochradioaktive Abfälle. Die folgende Diskussion konzentriert sich hauptsächlich auf letztere, da diese wesentlich die von einem Endlager ausgehenden Risiken bestimmen.

Für die Endlagerformationen Granit und Salz soll die praktizierte Vorgehensweise einer Sicherheitsanalyse mit ihren wesentlichen Ergebnissen dargestellt werden. Analogien werden, soweit bekannt, für die Endlager Yucca Mountain (USA, Tuff) und Gorleben (Deutschland, Salzdom) gezogen. Nachteile bzw. nicht untersuchte Störfallpfade bilden einen möglichen Grund für die Forderung nach einem modifizierten Brennstoffzyklus auf der Basis der Transmutation.

Im Zuge dieser noch näher zu beschreibenden Rezyklierung der Actiniden und einiger Spaltprodukte wird das Ziel verfolgt, die Toxizität des Abfalls durch physikalische Umwandlungen zu reduzieren. Die Vorteile aber auch Grenzen dieser Vorgehensweise sollen in einem dritten und letzten Abschnitt diskutiert werden.

2.1 Wiederaufarbeitung im nuklearen Brennstoffkreislauf

2.1.1 Heutige Möglichkeiten und Grenzen

Weltweit werden etwa $340 \text{ GW}_{\text{el}}$ von Kernreaktoren bereitgestellt, was in einem Jahr zu etwa 9.000 t Schwermetall (SM) in Form abgebrannter Brennelemente führt [2.1]. Etwa zur Hälfte wird dieser Abfall nach einer Zwischenlagerung von einigen Jahrzehnten und Abklingen der Aktivität der Spaltprodukte direkt in geeigneten Behältern konditioniert werden. Danach kann der Abfall dem Endlager zugeführt werden, was man als direkte Endlagerung bezeichnet. Diese Verfahrensweise wird von den USA, Kanada, Schweden und Spanien verfolgt und auch in Deutschland aus ökonomischen Gründen (niedriger Uranpreis) und wegen fehlender eigener Kapazitäten zur Rezyklierung positiv beurteilt. Dieser Weg ist sicherlich derjenige, der Anforderungen an die chemische Prozeßtechnik drastisch einschränkt, da die entsprechenden Anlagen entfallen. Es soll auch nicht unerwähnt bleiben, daß damit ebenfalls ein Ort möglicher Freisetzung von Radioaktivität und eine stetig zu kontrollierende mögliche Quelle waffenfähigen Plutoniums praktisch entfällt.

Ebendieses Plutonium sollte durch die Konzeption von Wiederaufarbeitungsanlagen (WAA) im Sinne einer Schonung der Uranressourcen weitergenutzt werden. Das Funktionsschema einer WAA lässt sich anhand von Abb. 2.1 erklären. Nach einer mechanischen Trennung der abgebrannten Brennelemente (Head - End) wird der Brennstoff in Salpetersäure aufgelöst. Die darauffolgende großtechnische Trennung der Fraktionen Uran, Plutonium von den Spaltprodukten, die in diesem Schema die eigentlichen Spaltprodukte (FP) und die Minor Actinides (MA) umfassen, wird weltweit nach dem PUREX-Verfahren vorgenommen. Kernstück ist hierbei die Verwendung des organischen Extraktionsmittels Tributylphosphat (TBP) zur Separation von Uran und Plutonium von den Spaltprodukten.

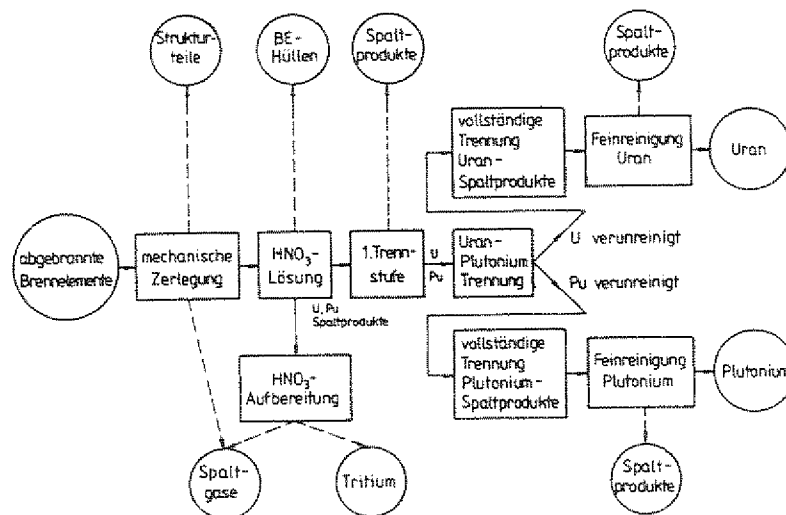


Abb. 2.1: Schema zum Verfahrensablauf bei der wässrigen Wiederaufarbeitung [2.2]

Eine mengenmäßige Betrachtung der einzelnen Fraktionen, wie sie aus dem Jahresbetrieb eines typischen Druckwasserreaktors und der nachfolgenden Wiederaufarbeitung der Abfälle entstehen, gibt Abb. 2.2. Neben der Abtrennung von Plutonium und Uran, ist besonders die immense Volumenreduktion der hochaktiven Abfälle ($HAW > 10^4 \text{ Ci/m}^3$) zu beachten. Die 5 m^3 HAW enthalten weniger als 1 % U und Pu, die im Reaktor erzeugten Spaltprodukte und den mengenmäßig kleinen Rest der aufgebauten höheren Transurane wie Americium und Curium (siehe hierzu auch Anhang B.1). Der HAW wird im Endlager aufgrund von Toxizität und Aktivität (Wärmeentwicklung) gesondert eingelagert. Für mittel- und leichtaktive Abfälle (MAW und LAW) kommen bedeutend schwächere Auflagen zur Anwendung, obwohl auch hier Transurangehalte von 1-2 % vorhanden sein können.

Die weltweite Kapazität an WAA beträgt einige 1000 t SM/a. La Hague (Frankreich) kann etwa 1200 t SM/a (in Zukunft weitere 1600 t SM/a [2.1]) wiederaufarbeiten. Eine Wiederaufarbeitung wird momentan mengenmäßig etwa für die Hälfte der Abfälle in Frankreich, England und Japan angestrebt. Aufgrund fehlender Kapazitäten und, da nicht alle der OECD angeschlossenen Länder wiederaufarbeiten, hat sich innerhalb der OECD-Länder ein Überhang von 84.000 t SM angesammelt (1992). Man erwartet bis zum Jahr 2000 ein weiteres Anwachsen auf etwa 200.000 t SM [2.1].

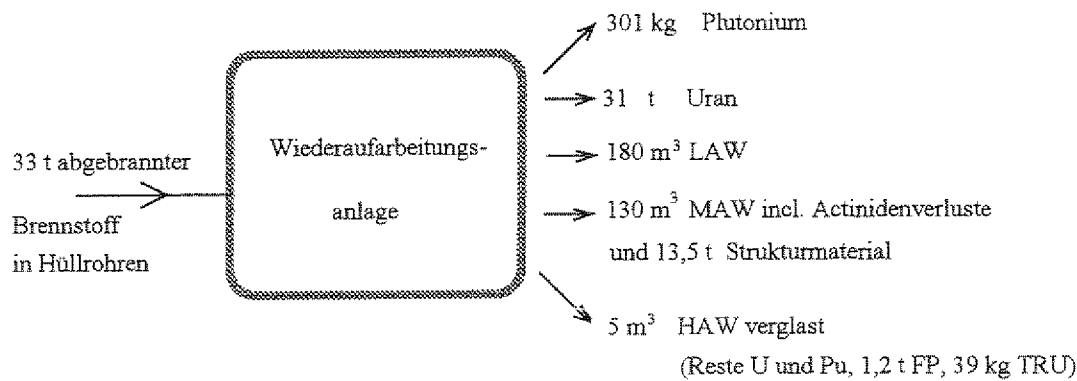


Abb. 2.2: Jährliche Betriebabfälle eines 1300 MW_{el} - Druckwasserreaktors (ca. 80 % Auslastung) und entsprechende in der WAA erzeugte Fraktionen [2.2 u. Anhang B.1]

Insgesamt wurden aus kommerziellen Reaktoren bis 1990 weltweit etwa 115.000 t SM entladen, die ihrerseits 650 t Pu enthalten. Zum Vergleich sei an dieser Stelle erwähnt, daß die Kapazitäten eines typischen Endlagers (Beispiel Gorleben) auf etwa 9000 m³ HAW, entsprechend ursprünglichen 78.000 t SM [2.3], begrenzt sind. Zusätzlich ist zu berücksichtigen, daß sich das Gesamtsplattstoffinventar durch die Ergebnisse der Abrüstungsverhandlungen und entsprechende Verlagerungen des Zuständigkeitsbereichs in zivile Institutionen erhöht. Insgesamt ging man 1990 von einem Inventar an Waffenplutonium¹ in den USA von 97 ± 8 t und in der ehemaligen UDSSR von 125 ± 25 t aus. England und Frankreich werden zusammen auf etwa 14 t Pu veranschlagt. Waffenuran² ist nach vergleichenden Schätzungen in den USA zu etwa 500 t vorhanden, in der früheren UDSSR zu 500-700 t. Man darf aufgrund des Abbaus der militärisch gebundenen nuklearen Inventare erwarten, daß gerade die Freisetzen an Waffenuran und hochangereichertem Uran, welches etwa in Schiffsreaktoren eingesetzt wird, zu einem konstant niedrigen Niveau der Uranpreise in den nächsten Jahren beitragen werden [2.9].

Wie bereits angesprochen, können die Uran und Plutonium-Fractionen aus der WAA weiter in Kernkraftwerken genutzt werden, wobei heutzutage nur die einmalige Pu-Rückführung praktiziert wird. Dieses setzt zuvor die Herstellung von Mischoxid-Brennelementen (MOX typischerweise 3,1 % Pu Rest U) voraus. Eine Diskussion des Einsatzes von MOX-Brennelementen in LWR wird in Kapitel 3 vorgenommen. Die Rückführung des Urans in LWR erfordert aufgrund des reduzierten U-235 Gehaltes eine erneute Anreicherung. Sie wird aber aufgrund niedriger Uran-Preise im Augenblick nicht durchgeführt.

Alternativ zu thermischen Reaktoren ist der Einsatz von schnellen Reaktoren (SBR) möglich. Aber auch hier entstehen, insbesondere bei mehrfacher Rezyklierung, aus dem Aufbau kurzlebiger α -Strahler Handhabungsprobleme bei der Herstellung der Brennelemente. Bei Verwendung von wässrigen Aufbereitungsverfahren ist genauso wie beim Einsatz von LWR-Brennstoffen verstärkt mit Radiolyseerscheinungen zu rechnen, die die organischen

¹Waffenplutonium enthält im allgemeinen weniger als 7% Pu-240. Der Anteil an Pu-239 beträgt somit mindestens 93%.

²Waffenuran besteht zu mehr als 90% aus U-235.

Extraktionsmittel zersetzen. Schnelle Reaktoren können weiteres Pu aus den abgetrennten U-Fractionen der WAA oder auch aus abgereichertem Uran erbrüten. Ebenfalls besteht die Möglichkeit in konvertierenden Systemen hauptsächlich Pu zu spalten. In der Literatur wird je nach politischer Überzeugung des jeweiligen Autors, ökonomischer Bewertung der verschiedenen kerntechnischen Anlagen, dem geschätzten weltweiten Energiebedarf und der geschätzten Reichweite der Uranvorräte eine höchst unterschiedliche Anzahl von thermischen und schnellen Reaktoren gefordert.

2.1.2 Innovative Verfahren

Im Produktstrom der WAA kann man sich auch eine weitere Aufspaltung der Transurane vorstellen. Während die Abtrennung des Np auch durch eine Erweiterung des PUREX-Prozesses in heutigen Anlagen mit Einschränkungen möglich ist, erfolgt bei der Separation der Am-Cm Fraktion auch die ungewünschte Koextraktion der Lanthaniden. Am und Cm müssen deshalb in nachgeschalteten Prozessen, deren Funktionsfähigkeit allerdings bis heute nur im Labormaßstab nachgewiesen wurde, gesondert extrahiert werden. Eine Übersicht über Verfahren auf der Basis von PUREX-ähnlichen Prozessen und modifizierten Brennstoffkreisläufen findet sich in [2.1] und [2.5]. Eine Studie verschiedener **wässriger Extraktionsverfahren**, die zu dem Ergebnis kommt, daß Dekontaminationsfaktoren³ von 10^3 für Pu, Am und Cm und 10 für Np ein vernünftiges Ziel darstellen, wurde vom JRC-Ispra durchgeführt [2.6].

Wegen der Unvollkommenheit dieser Ansätze scheint die Erforschung prinzipiell anderer Verfahren, die direkt mit möglichst wenigen Verfahrensschritten und hohen Dekontaminationsfaktoren die Transurane und ausgewählte Spaltprodukte wirksam vom mengenmäßig großen Rest der wenig toxischen Spaltprodukte abtrennen, geboten zu sein. Aus diesem Grund werden beispielsweise innerhalb des Forschungszentrums Jülich Flüssig-Fest Extraktionsverfahren auf der Basis der Chromatographie untersucht. Als problematisch ist bei diesem Verfahren die Strahlenbeständigkeit der festen Einzelkomponenten anzusehen [2.7].

Neben wässrigen Aufbereitungsverfahren könnten ebenfalls **pyrometallurgische Prozesse** zum Einsatz kommen, die auf der Anwendung elektrolytischer Abscheideverfahren in Salz-Metallschmelzen beruhen. Ein Beispiel hierfür ist das vom Argonne National Laboratory (ANL) untersuchte Konzept des Integral Fast Reactor (IFR). Dieses Konzept sieht einen geschlossenen Brennstoffkreislauf für schnelle natriumgekühlte Reaktoren mit metallischem Brennstoff, im allgemeinen U-Pu-Zr Legierungen mit Pu-Anteilen bis zu 30% und Zr-Anteilen von etwa 10 Gew-%, vor (siehe auch Kapitel 3 und 5). Das Kernstück des Prozesses, die elektrolytische Aufspaltung des abgebrannten Brennstoffes (Electrorefining), ist in Abb. 2.3 illustriert.

³Der Dekontaminationsfaktor ist als Verhältnis der Aktivitäten (Massen) eines spezifischen Nuklids nach der Entnahme aus dem Reaktor zu der Aktivität im endzulagernden Gebinde nach der Wiederaufarbeitung definiert. Die oben angegebenen Zahlenwerte entsprechen für Pu also Verlusten von 0,1 %.

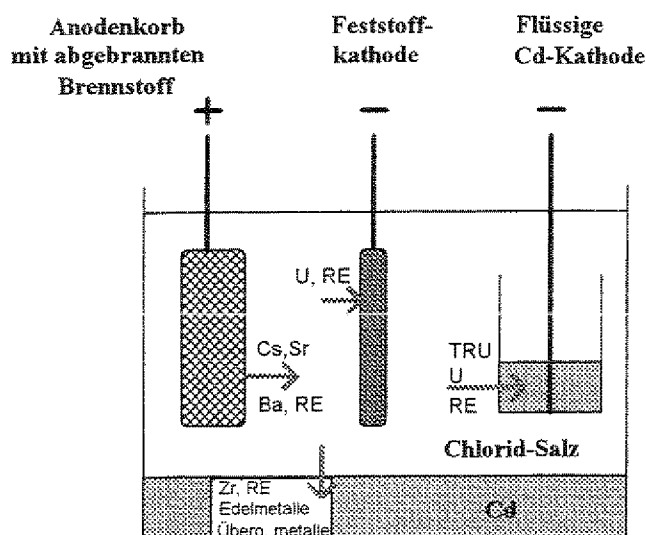


Abb. 2.3: Elektrolytische Trennung (Electrorefining) von U, TRU und den Spaltprodukten (RE = Seltene Erden) als Kernstück der pyrometallurgischen Wiederaufarbeitung beim IFR-Zyklus [2.8]

Wesentliche Eigenschaften pyrometallurgischer Verfahren sind:

- Reduktion der Abklingzeiten aufgrund fehlender Radiolyse,
- kleinere spezifische Bauvolumina mit entsprechenden Vorteilen für die Abschirmung,
- gleichzeitige Handhabung größerer Massen, da kritische Massen aufgrund des fehlenden Moderators bedeutend größer sind,
- ferngesteuerte Handhabung aufgrund des höheren Strahlenpegels, was die Proliferation von spaltbaren Materialien aber auch die Zugänglichkeit für Wartungsarbeiten erschwert.

Zudem wird beim IFR bewußt auf eine Trennung des Pu vom Rest der Transurane (TRU) verzichtet. Ebenfalls ist die Dekontamination von den seltenen Erden (RE) nur unvollständig, wodurch die Gefahr besteht, daß sich nach mehrfachen Rezyklierungen die metallurgischen und thermodynamischen Eigenschaften der Brennelemente ändern. Die Problematik der seltenen Erden wird generell von *Baetsle* [2.1] als Nachteil des IFR empfunden. Auf der anderen Seite allerdings zeichnet sich der IFR-Prozeß durch eine einfache Prozeßführung aus, da abgesehen von nachgeschalteten thermischen Ausdampfverfahren für mitgeführte Salz- und Cadmium-Reste (Cathode Processing) nur ein Prozeßschritt notwendig ist, um an den Kathoden die für eine erneute Brennelementherstellung notwendigen Fraktionen (U, TRU) bereitzustellen.

Ein vereinfachtes Flußdiagramm, das auch die grundsätzliche Möglichkeit der Transmutation von LWR-Abfällen einschließt, ist in Abb. 2.4 wiedergegeben. Bei dieser Prozeßführung glaubt man, 99,9 % der Transurane aus dem LWR-Abfall abtrennen zu können. Verluste im daran gekoppelten IFR-Zyklus werden, unter Einbeziehung zusätzlicher Prozeßschritte zur mehrfachen Reinigung des Salzes von Transuranen, mit 0,1 - 0,5 % angegeben.

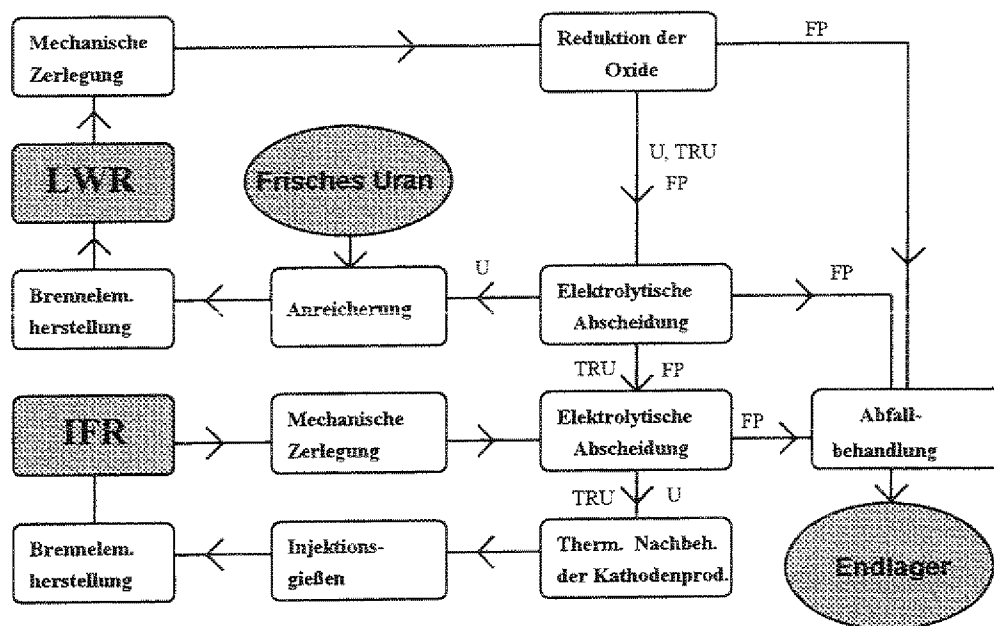


Abb. 2.4: Gemeinsamer pyrometallurgischer Brennstoffkreislauf bei Betrieb von LWR's mit oxidischem Brennstoff und IFR's mit metallischem Brennstoff (nach [2.8])

Somit sind die zum Endlager transportierten Spaltprodukte im wesentlichen frei von Actiniden. Eine großtechnische Demonstration des IFR-Zyklus steht genauso wie die Einbeziehung anderer Brennstoffsorten in einen pyrometallurgischen Kreislauf noch aus [2.8].

An dieser Stelle sei ebenfalls an das Potential **trockener Aufbereitungsverfahren** erinnert, an denen verstärkt Kanada und Südkorea interessiert sind. Diese Verfahren gehen auf eine Entwicklung von Atomics International in den 60er Jahren zurück und wurden unter dem Namen AIROX (Atoms International Reduction Oxidation Process) bekannt. Die Separation von flüchtigen Spaltprodukten, Hüllmaterialien und Brennstoffbestandteilen findet hierbei statt durch Ausnutzung pyrochemischer Reaktionen bei Temperaturen zwischen 400 bis 600 °C. Durch Zufuhr von O_2 reagiert das UO_2 in den Brennstofftabletten zu U_3O_8 , vorausgesetzt die Hüllrohre sind zuvor perforiert worden. Durch die Änderung der chemischen Struktur vergrößert sich das Volumen, und das granuliert Oxid läßt sich rein darstellen. Nach einer Reduktion mit H_2 könnten mit ferngesteuerten Manipulatoren erneut Brennstäbe hergestellt werden. Es gelingt im allgemeinen nur die Abtrennung flüchtiger Spaltprodukte (Kr, Xe, I und Tritium) und halbflüchtiger Spaltprodukte (Cs und Ru). Wegen des Restgehaltes an U-235 ist der Brennstoff direkt in Schwerwasserreaktoren vom Typ CANDU einsetzbar. Bei entsprechender Zumischung von Spaltstoffen ist ebenfalls die Rezyklierung in LWR möglich. Da die höheren Actiniden und ein Großteil der Spaltprodukte im Brennstoff verbleiben, ist die Anzahl der Rezyklierungen stark begrenzt. Auf der anderen Seite werden aber keine toxischen Chemikalien eingesetzt, und das Proliferationsrisiko ist bedeutend geringer als beim PUREX-Verfahren, da Pu in keiner Stufe in reiner Form vorliegt [2.9].

2.2 Endlagerung

Das Ende des Brennstoffkreislaufes wird durch das Endlager gebildet, das alle Abfallformen aufnimmt. Es gilt die radioaktiven Produkte bis zu ihrem Zerfall auf unbedenkliche Konzentrationen möglichst vollständig von der Biosphäre fernzuhalten. Dieses Schutzziel kann für die kurzen Zeiträume der Zwischenlagerung bereits heute zuverlässig durch die Trockenlagerung in CASTOR-Behältern realisiert werden. Weitgehende Einigkeit besteht ebenfalls darin, daß allein durch technische Barrieren das Schutzziel auf etwa 1000 Jahre ausgedehnt werden kann, was durch Untersuchungen zur Langzeitkorrosion verschiedener Abfallbehälterwerkstoffe belegt ist [2.10, 2.11, 2.12].

Aufgrund der Langlebigkeit und Toxizität einiger Isotope muß das Endlager weitere Rückhaltemechanismen bereitstellen, die die Schutzfunktion für mehrere hunderttausend Jahre wahrnehmen. Am weitesten untersucht und auch in der konkreten Planung sind dabei Bergwerkskonzepte, bei denen je nach geologischen Bedingungen radioaktive Abfälle in verschiedenen Gesteinsformationen in 200 bis 1000 m Tiefe eingelagert werden sollen. Als geeignete **Gesteine** werden heute hauptsächlich Granit, Tuff, Steinsalz und Ton angesehen.

Granit gehört genauso wie Tuff zu den Gesteinen magmatischen Ursprungs. Granit ist chemisch sehr stabil, in Wasser nur sehr schwer löslich und mechanisch sehr standfest. Der geringen Wasserdurchlässigkeit im Gestein steht die erhöhte Wasserführung in Klüften gegenüber. Die relative Rauigkeit des Gesteins sorgt ebenfalls für eine hohe Sorption der Radionuklide. Dieses hohe Sorptionsvermögen wird nur noch von Tuff übertroffen, dem Wirtsgestein für das nationale Endlager der USA in den Yucca Mountains. Wasserdampfdiffusion ist in Granit und Tuff ein wichtiger Stofftransportprozeß, da auch oberhalb wasserführender Schichten Wasser mit bis zu 20 Vol %-Anteilen (Tuff) eingelagert sein kann [2.13].

Wasseranteile in Steinsalz werden demgegenüber typischerweise mit weniger als 1 Gew.-% angegeben. Quelle hierfür ist neben Laugeneinschlüssen das Carnallitmineral, das Wasser bei erhöhten Temperaturen freisetzt. Aufgrund von Radiolyseprozessen und der Bildung von Salzsäure kann dieses Wasser in der Nähe von Abfallbehältern äußerst korrosiv sein. Das Sorptionsvermögen von Steinsalz (Gorleben, Deutschland) ist äußerst gering. Zum Ausgleich ist im Salz allerdings die Permeabilität für Gase sehr klein und aufgrund der Plastizität, die mit hohen Temperaturen ansteigt, schließen sich Risse selbsttätig.

Diese Kurzbeschreibung zeigt, daß jedes der Gesteine für die Endlagerung wichtige typische Vorteile aufweist, die aber auch lokal im Extremfall von Nachteilen überschattet werden können. Dementsprechend gibt es kein Idealgestein, und die Endlagerfähigkeit kann nur an konkreten Standorten untersucht und festgestellt werden.

Eine Einschätzung der Gefährdung, die von der Endlagerung hochaktiven Abfalls ausgeht, wurde in der Vergangenheit oft durch deterministische Ansätze vorgenommen. Die **Simulation** umfaßt dabei, ausgehend von einem unterstellten Auslösemechanismus, die formelmäßige Beurteilung der Rückhaltewirkungen (Stofftransport) des Abfallgebundes und der geologischen Formation Endlager mit allen Spaltstoffbarrieren (Abb. 2.5) bis zur Wechsel-

wirkung mit dem Menschen. Zeiträume von einigen 100.000 Jahren sind aufgrund der Langzeittoxizität der Abfälle zu berücksichtigen.

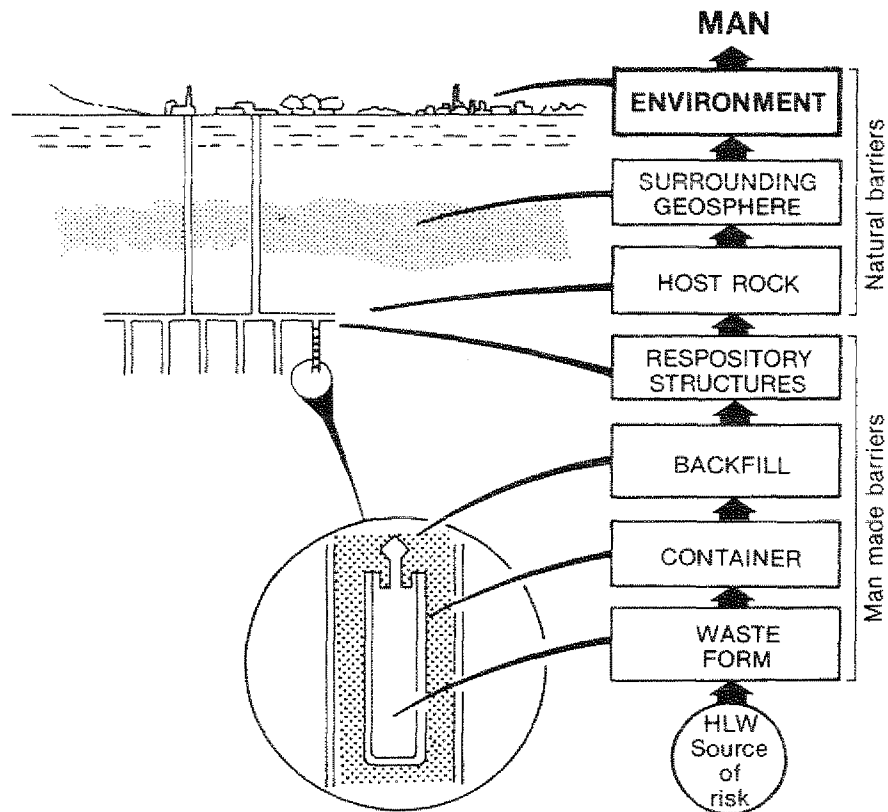


Abb. 2.5: Das Multibarrierenkonzept in einem Endlager zum sicheren Einschluss des hochaktiven Abfalls (High-Level Waste, HLW) [2.3]

Je nachdem ob der schädliche Stoff als Trinkwasser, mit der Atemluft oder als Nahrung aufgenommen wird, sind, unter dem zusätzlichen Gesichtspunkt verschiedener biologischer Verweilzeiten der einzelnen Elemente im menschlichen Körper, höchst unterschiedliche Gesundheitsbeeinträchtigungen zu erwarten. Dieses bedeutet, daß die komplette Biosphäre, einschließlich der Ernährungsgewohnheiten der Menschen gemäß einem durchschnittlichen jährlichen Speiseplan modelliert wird. Die aufgenommenen Aktivitäten je Nuklid [Bq] lassen sich in eine personenbezogene Gesamtdosis [Sv] umrechnen und mit wissenschaftlich begründbaren Grenzwerten (siehe Anhang B) oder der Dosis aufgrund der natürlichen Hintergrundstrahlung von etwa 1 mSv/a vergleichen.

Aufgrund von übertägigen Standorterkundungen, Probebohrungen und dem damit gewonnenen Datenmaterial läßt sich die prinzipielle Standortsicherheit verschiedener Endlagerformationen durch umfangreiche Simulationen feststellen. Als Beispiel soll die von der europäischen Gemeinschaft unter dem Namen *PAGIS* durchgeführte Studie skizziert werden [2.3]. Haupteingangsgröße der Studie ist dabei der hochaktive Abfall von LWR-Brennelementen, aufgearbeitet nach dem PUREX-Prozeß und nach einer Zwischenlagerung von 30 Jahren. Der Abfall ist verglast und nach dem AVM-Verfahren in Stahlbehälter eingeschlossen. Die daraus errechneten in der Umgebung des Endlagers auftretenden Aktivitäten

wurden gemäß den Empfehlungen der International Commission on Radiological Protection in eine Dosis konvertiert. Verwendung fanden dabei die Empfehlungen Nr. 30 aus dem Jahre 1980 und eine im Laufe der Studie publizierte Neubewertung der Transurane (siehe hierzu auch Anhang B.2). *PAGIS* faßt vergleichend einen Großteil des akkumulierten Wissens um die Endlagerung radioaktiver Abfälle an potentiellen Standorten innerhalb von Europa zusammen und beschreibt u. a. eine Salz- und eine Granitformation. Sicherheitsuntersuchungen sind in diesem Rahmen zu den möglichen Standorten Gorleben und Auriat (Frankreich) für verschiedene Störfallszenarien dokumentiert.

Sinnvollerweise nimmt man die folgende Unterscheidung vor:

- Bei dem Normalszenarium werden heute erkennbare Trends bzgl. der Geologie fortgeschrieben und die Interaktionen zwischen Abfallmatrix, Strukturmaterialien und Endlagerformation berechnet.
- Abweichende Szenarien können in mit einer gewissen Wahrscheinlichkeit behafteten veränderten klimatischen Bedingungen (Eiszeiten), geänderten Wasserströmungen (im Extremfall Wassereintritt) etc. bestehen. Prinzipiell unerheblich ist es dabei, ob diese Szenarien durch menschliche Eingriffe (Beispiel: Brunnenbohrung nahe einem Endlager) ausgelöst werden.
- Die dritte Klasse umfaßt die explosiven Szenarien, wie Vulkanismus, Meteoriteneinschläge, tektonische Verschiebungen oder Klimaveränderungen (Gletscher) mit einer so großen Amplitude, daß die direkte Freisetzung von Radionukliden in die Biosphäre möglich wird. Für die in der *PAGIS*-Studie untersuchten potentiellen Standorte wurde die Wahrscheinlichkeit solcher Ereignisse zu weniger als $10^{-7}/a$ bestimmt und deshalb nicht weiter verfolgt.

Ergänzend dienen Parametervariationen dazu, den Einfluß einzelner Faktoren (Materialwerte des Wirtsgesteins, Löslichkeit einzelner Elemente etc.) innerhalb einer Endlagerkonzeption auf das zuvor berechnete Ergebnis zu ermitteln.

Der **Salzstock** in Gorleben soll in Zukunft den Abfällen deutscher Kernkraftwerke als Endlager dienen. Er entstand vor etwa 200 Millionen Jahren und hob sich in der nachfolgenden Zeit bei gleichzeitiger Subrosion von Salz um 0,02 mm/a. Extrapoliert man bei der Untersuchung des Normalszenariums das Verhalten des Salzstocks nach der Einlagerung in die Zukunft, so wird sich als erstes der Raum um das Endlager selbsttätig dicht schließen aufgrund der Plastizität des Salzes. Da Steinsalz der hier zugrundegelegten Qualität für Gase und Wasser undurchdringlich ist, können auch im Rahmen des Normalszenariums keine Abfälle in Lösung gehen und an die Oberfläche transportiert werden. Unterstellt man einen Anstieg des Salzstocks von 0,033 mm/a (wahrscheinlicher 0,01 mm/a), verbunden mit entsprechenden Subrosionserscheinungen, so beträgt die maximale Personendosis bei Annahme eines Salzgehaltes im Trinkwasser von 31 mg/l nach 15 Millionen Jahren 10^{-6} Sv/a.

Dieses Szenarium tritt in der Sicherheitsbewertung zurück gegenüber dem massiven, frühzeitigen Wassereintritt in das Bergwerk. Dieser mit Wahrscheinlichkeiten von größenordnungsmäßig 10^{-6} versehene Störfall postuliert zum einen unentdeckte Laugeneinschlüsse nahe den Eckbohrlöchern und zum anderen den unbegrenzten Wassereintritt über eine

Wasserader. Dieser Wassereinbruch wird direkt nach dem ordnungsgemäßen Schließen des Endlagers hypothetisch unterstellt. Die maximale errechnete Dosis von 10^{-5} Sv/a tritt nach ca. 20.000 Jahren auf und ist wesentlich auf Cs-135 zurückzuführen (Abb. 2.6).

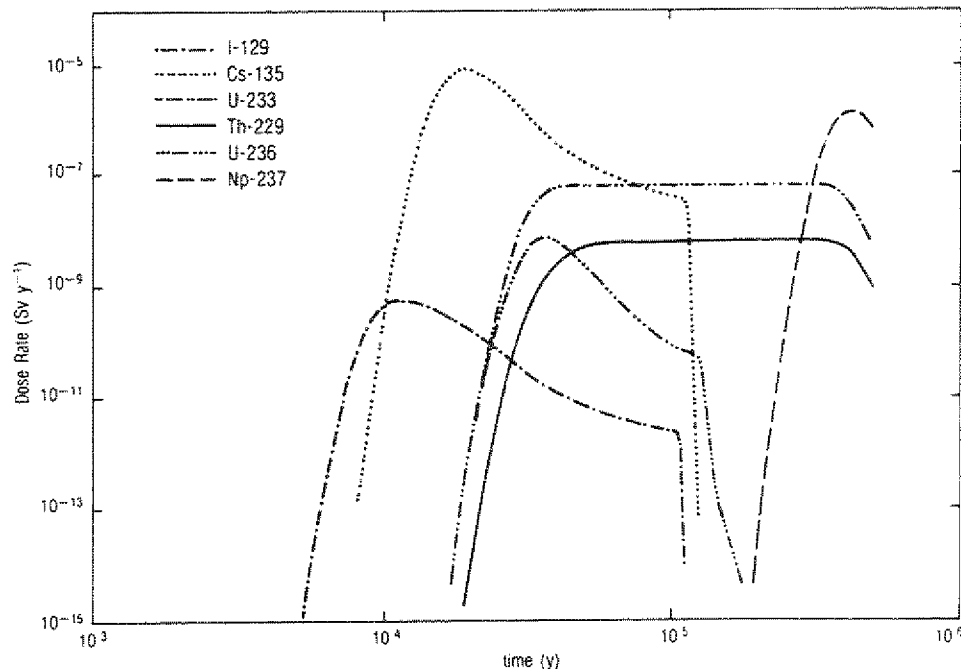


Abb. 2.6: Errechnete Personendosis mit dem Anteil der wesentlichen Nuklide aufgrund eines frühzeitigen Wassereinbruchs für das Endlager Gorleben⁴ [2.3]

Aus der Vielzahl der vorstellbaren Störfälle, die zurückzuführen sind auf zukünftiges menschliches Fehlverhalten, wird exemplarisch der folgende Ablauf unterstellt. 1000 Jahre nach Einrichten des Endlagers wird Wasser injiziert, um Hohlräume für die Lagerung von Öl oder ähnlichem zu schaffen. 50 Jahre später, nach Ende der Nutzung dieses Zwischenlagers, gelangt Lauge in den freigewordenen Hohlraum. Diese Lauge wird HAW-Behälter korrodieren und später durch die natürliche Konvergenz des Salzes hinausgedrückt werden. Die berechnete maximale Dosis von $3 \cdot 10^{-5}$ Sv/a wird in diesem Fall nach 700.000 a erreicht und ist zurückzuführen auf Np-237.

Granit wird, wie oben erläutert, ebenfalls als geeignetes Wirtsgestein angesehen. Sofern die Anzahl der natürlich vorhandenen Risse hinreichend klein ist, ist die mittlere Permeabilität für Wasser äußerst gering. Innerhalb des Normalszenariums ist anzunehmen, daß Teile des Abfalls in das Grundwasser übertreten. Aufgrund der Schichtdicke des über dem Endlager liegenden Gesteins (ca. 1000 m) ist mit Freisetzungen jedoch erst nach 100.000 Jahren zu rechnen. Die von den einzelnen Nukliden verursachten Dosen stellen sich gemäß Abb. 2.7 dar.

⁴ Für Gorleben wurde gemäß der in Deutschland zu erwartenden Verhältnisse I-129 in das Inventar aufgenommen. Nach Baetsle entlassen die WAA in England und Frankreich I-129 unter kontrollierten Bedingungen in die Weltmeere. Dieses Vorgehen wird bei den heutigen geringen Wiederaufarbeitungskapazitäten als vertretbar erachtet [1.1].

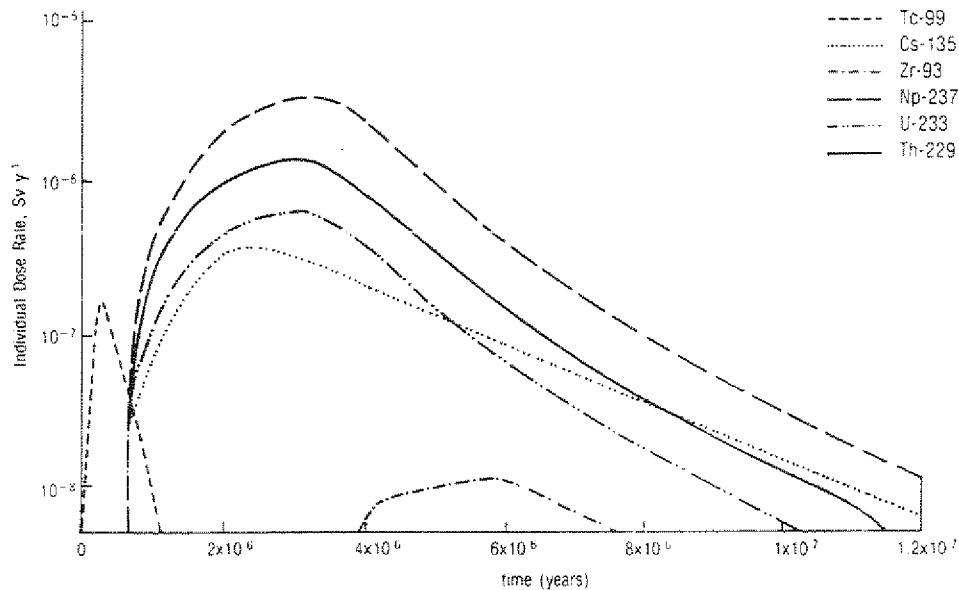


Abb. 2.7: Errechnete Personendosis mit dem Anteil der wesentlichen Nuklide beim störungsfreien Betrieb eines Endlagers (Normalszenarium) in der Granitformation bei Auriat [2.3]

Die Ergebnisse der oben angeführten Simulationen machen neben bestimmten Spaltprodukten die zentrale Bedeutung der $4n+1$ -Zerfallsreihe deutlich, da Np-237 mit seinen Zerfallsprodukten U-233 und Th-229 einen wesentlichen Anteil an der Personendosis hat. Np-237 wiederum entsteht aufgrund seiner langen Halbwertszeit von $2 \cdot 10^6$ Jahren während der Einlagerung zunächst aus den relativ kurzlebigen Am-241 (432 a) und Pu-241 (14,4a) und sinkt in seiner Konzentration erst nach 10^6 Jahren (siehe auch Kap. 2.3).

Im Vergleich zum Salz schätzt man in *PAGIS* die Unsicherheiten für die Granitformation als relativ groß ein, da Risse mit erhöhter Wasserführung die Rückhaltewirkungen verschlechtern können. Querrisse haben einen größeren Einfluß als vertikale Risse und können das Austreten von Radioaktivität zeitlich um eine Größenordnung vorverlagern. Man nimmt jedoch an, diese im Vorfeld zu detektieren. Menschliche Eingriffe können für Bergleute zu Dosen von 16 mSv/a führen, was sich jedoch immer noch im Rahmen der natürlichen Hintergrundstrahlung des Granits bewegt. Ebenfalls liegt diese Dosis unterhalb der nach [2.15] während des Arbeitslebens zulässigen jährlichen Dosis für Arbeiter von 20 mSv. Aufgrund der allgemein niedrigen Strahlendosen kommt man auch hier zu dem Ergebnis, daß Granitformationen ebenfalls als Endlager geeignet sind.

Diese Aussage ist jedoch nicht zu verwechseln mit einer abschließenden Eignungsaussage. Letztere basiert auf einer untertägigen Erkundung, die den Grad der Homogenität und die genaue Zusammensetzung des Wirtsgesteins offenlegt. Auf der Basis neuer Erkenntnisse und der eventuell anderen Zusammensetzung des Abfalls mit zugehöriger Matrix bzw. Behälter sind entsprechend neue Simulationsrechnungen zu erstellen, die durchaus von den oben vorgestellten Rechnungen abweichen können. Als Beispiel sei etwa eine in direktem Vergleich zu Abb. 2.6 zu sehende Simulation zum Wassereinbruch in Gorleben angeführt

[2.14], die maximale Dosen von 10^{-4} Sv/a errechnet, wobei Np-237 und Tc-99 dominant sind.

Die Extrapolation in Zeiträume, die die Menschheitsgeschichte bei weitem übersteigen, ist grundsätzlich als problematisch anzusehen, da hohe Unsicherheiten im explizit zu modellierenden chemischen, physikalischen, geologischen und nicht zuletzt menschlichen Verhalten bestehen. Als Abhilfe schlägt *Merz* vor [2.16], quantitative Ergebnisse in Form von Freisetzungsraten nur bis zu 10^4 Jahren zu erstellen. Diese sollen durch rein qualitative Analysen bis zu 10^6 Jahren ergänzt werden. Eine solche Vorgehensweise setzt aber voraus, daß die verbleibende Toxizität des Abfalls jenseits von 10^4 Jahren im wesentlichen der natürlicher Strahlenquellen bzw. dem Gefährdungspotential des ursprünglich eingesetzten Brennstoffs entspricht (siehe auch Kapitel 2.3). Ebenfalls impliziert man durch die Benutzung der in den ICRP-Richtlinien aufgeführten Dosiskonvertierungsfaktoren, daß die Empfindlichkeit des menschlichen Organismus auf radioaktive Strahlung sich auch in ferner Zukunft nicht nennenswert ändert.

Kritik wird inzwischen an den Sicherheitsberechnungen zu dem in den Vereinigten Staaten geplanten Endlager in **Tuff** in den Yucca Mountains laut. So kritisiert beispielsweise *Michaels* [2.17], daß die jüngsten in [2.18] veröffentlichten Studien folgende Mechanismen nicht berücksichtigen:

- Die wässrige Korrosion der Abfallbehälter bei Temperaturen über 100 °C wird vernachlässigt.
- Die Kolloidbildung⁵, die die Mobilität der Radionuklide, insbesondere der Actiniden, vergrößern könnte, wird nicht rechnerisch erfaßt.

Eine Einordnung der Kolloidbildung in die Gesamtproblematik des Stofftransports wird von *Kim* vorgenommen [2.19]. Dieser bezeichnet die Fragestellung, welche Rolle die natürlichen **Kolloide** als Transportträger für die Radionuklide spielen, „als noch weitgehend ungeklärt“ und ergänzt, daß zur Unterscheidung von mobilen und nicht mobilen Kolloiden „standort-spezifische Untersuchungen im Bereich des Endlagers notwendig sind“. Der Vollständigkeit halber sei angeführt, daß Kolloidbildung und Anlagerung an natürlich vorhandene Kolloide auch in der PAGIS-Studie [2.3] nicht berücksichtigt wurden.

Mit einer gewissen Berechtigung läßt sich ebenfalls der Umfang der in *PAGIS* durchgeführten Simulationen als nicht ausreichend bezeichnen:

- Explosive Szenarien, die die Rückhaltewirkung des Endlagers umgehen (Meteoriteneinschlag, Vulkanismus etc.), werden wegen geringer Eintrittswahrscheinlichkeit nicht berücksichtigt. Diese Forderung wird aber von *Forsberg* erhoben, der aufgrund früherer Studien deren Beitrag zum Gesamtrisiko, allerdings ohne Angabe eines Referenzendlagers, mit 1 % beziffert [2.21]. Wahrscheinlichkeitsangaben für Vulkanausbrüche im Endlager reichen von $3 \cdot 10^{-7}/a$ bis zu $1 \cdot 10^{-11}/a$ [2.17].

⁵Kolloide sind Partikeln in der Größe von 10 bis 100 nm. Eine Abgrenzung von den Begriffen Lösung und Suspension findet sich in Abschnitt 3.3.4

- Weitergehende menschliche Eingriffe, beispielsweise zukünftiger Bergbau mit dem Ziel der Plutoniumgewinnung, werden nicht unterstellt.

Zu den letzten beiden Punkten sind einige Anmerkungen notwendig. So ist zu betonen, daß auch in solch unwahrscheinlichen Fällen die Folgen immer noch geringer sind, als würde man sich auf kein Endlager einigen und die Abfälle oberirdisch lagern. Auf der anderen Seite läßt sich aber auch argumentieren, daß, wenn schon nicht beinahe erwartungsgemäß der Beitrag solcher unwahrscheinlicher Vorgänge zuverlässig zu quantifizieren ist, der Quellterm weitestgehend reduziert werden sollte. Dieses ließe auf eine Transmutation der Actiniden hinaus. Was man hierunter versteht und was die speziellen Vorteile der Transmutation sind, soll im nächsten Abschnitt behandelt werden.

2.3 Transmutation im nuklearen Brennstoffkreislauf

Der Begriff Transmutation ist in der Kerntechnik gleichbedeutend mit der physikalischen Umwandlung toxischer Isotope des radioaktiven Abfalls in weniger toxische. Der Grad der Toxizität einzelner Nuklide hängt beim Menschen von der Art der Aufnahme ab, ob Ingestion oder Inhalation, und er kann gemäß den jeweils neuesten Empfehlungen der International Commission on Radiological Protection (ICRP) als applizierte effektive Dosis quantifiziert werden. Anhang B.2 gibt einen Überblick über die historische Entwicklung und unterschiedliche Bewertung wichtiger Nuklide.

Die so ermittelten Toxizitätsäquivalente erlauben die Charakterisierung radioaktiver Abfälle, ohne durch umfangreiche Rechnungen zuvor die Sorption der verschiedenen Nuklide im Endlager zu berücksichtigen. Somit resultieren auf der Basis der Ingestion bzw. Inhalation Zahlenwerte, die das mögliche **Gefährdungspotential** wiedergeben. Diese Gefährdungspotentiale erlauben eine rasche, wenn auch naturgemäß unvollständige Einschätzung des Nutzens der Transmutation. Umfassende Aussagen lassen sich ausschließlich durch komplette Simulationen der verschiedenen Störfallszenarien im Endlager gewinnen, mit dem Unterschied, daß nun der transmutierte Abfall mit den darin enthaltenen Reststoffen und nicht der HAW aus der Aufbereitung des LWR-Brennstoffs in der WAA die Haupteingangsgröße bildet.

Da in der Endlagerdiskussion der Wassereintrich und die mit Wasser transportierten Aktivitäten dominieren, wird vielfach das Gefährdungspotential unter der pessimistischen Annahme der vollständigen Löslichkeit aller betrachteten Elemente durch diejenige **Menge Wasser** ausgedrückt, die notwendig ist, um eine bestimmte Menge radioaktiver Substanzen auf ein für einen Menschen ungefährliches Maß zu verdünnen. Für die Abfälle der direkten Endlagerung eines deutschen DWR mit 3,5 % U-235, der aufgrund der Verwendung von logarithmischen Maßstäben durchaus auch als charakteristisch für den gesamten Uran-Brennstoffkreislauf angesehen werden kann, ergibt sich gemäß Abb. 2.8 folgender zeitlicher Verlauf.

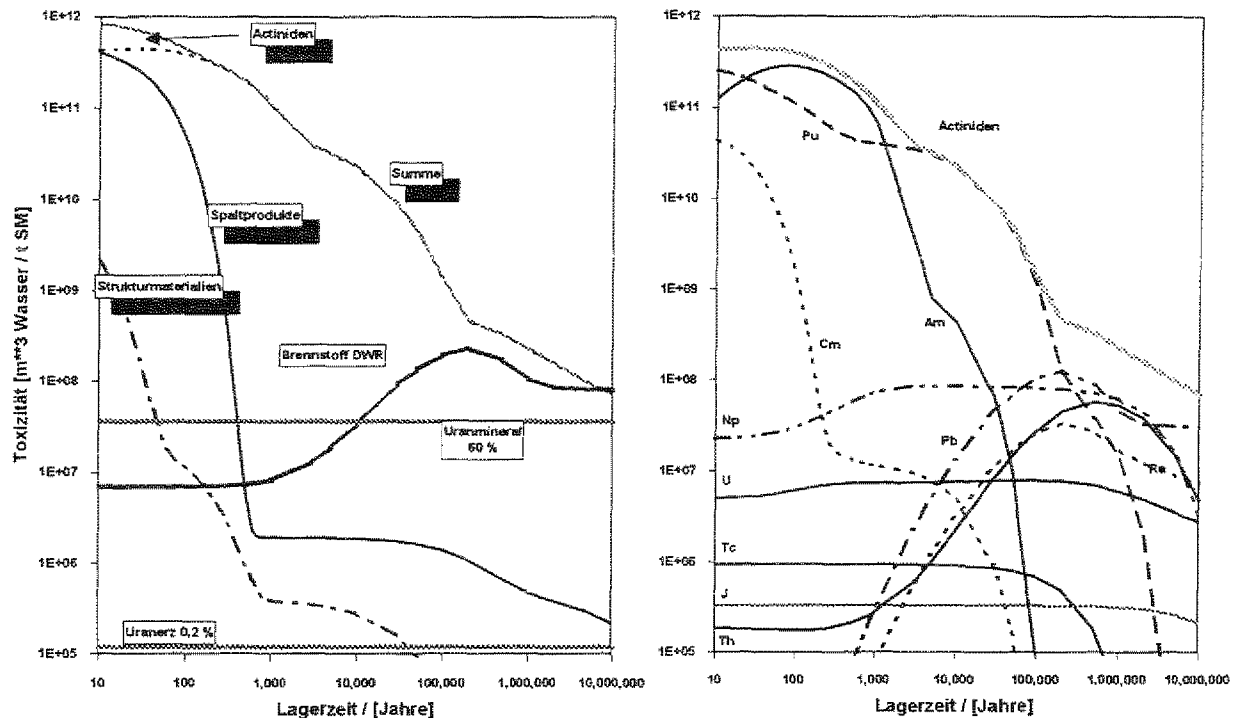


Abb. 2.8: Gefährdungspotential bei direkter Endlagerung, Abbrand DWR: 35 GWd / t SM

- a: Vergleich der Hauptfraktionen mit verschiedenen Referenzwerten jeweils 1 t
- Uranerz (0,2 %) in natürlichem Gleichgewicht mit seinen Zerfallsprodukten
 - angereichertes im Reaktor eingesetztes Uranmetall mit Anstieg der Toxizität durch die Zerfallsprodukte
 - Uranmineral (Pechblende 60 %) mit seinen Zerfallsprodukten im Gleichgewicht
- b: Anteil einzelner ausgewählter Elemente mit Summenkurve der Actiniden

Auffällig ist die Dominanz der Actiniden über den gesamten Zeitbereich, die sich im wesentlichen aus der Aufwertung der TRU nach ICRP-61 [2.15] im Gegensatz zur ICRP-30 (Teile 1 bis 3) einstellt (siehe hierzu auch Anhang B.2). Np-237 dagegen wurde stark abgewertet. Bei der elementweisen Betrachtung stellt man fest, daß die Toxizität die ersten 20 Jahre von Pu bestimmt wird, danach von Am und ab 1000 Jahre wieder vom Pu. Das in den Simulationsrechnungen zur Endlagersicherheit so wichtige Np-237 dominiert erst nach 500.000 a mit etwa $5 \cdot 10^7 \text{ m}^3$ Wasser. Wählt man das natürlich vorkommende Mineral Pechblende als zu unterschreitendes Vergleichsniveau für das Gefährdungspotential des Abfalls, so folgt aus Abb. 2.8, daß die Sicherheit der Verwahrung im Endlager für mehr als 10^7 Jahre quantitativ nachgewiesen werden muß. Auf die damit verbundene Problematik wurde in Abschnitt 2.2 eingegangen. Eine Reduktion des Nachweises der Endlagersicherheit auf die von Merz vorgeschlagenen und als ein **Ziel der Transmutation** zu sehenden 10^4 Jahre erfordert eine Reduktion der Toxizität der Actiniden um mehr als 2 Größenordnungen. Die ebenfalls sehr mobilen Elemente Jod und Tc bewegen sich im Bereich der Uranerzvorkommen mit 0,2 % Uran-Gehalt.

Durch die Benutzung der momentan neuesten Empfehlungen nach ICRP-61 wird, wie oben schon ausgeführt, innerhalb von 10^7 Jahren kein denkbare Vergleichsniveau wie etwa das des Uranminerals Pechblende oder gar das von Uranerz unterschritten. Dieses gilt ebenfalls, falls man die in den Reaktor eingesetzte Menge an angereichertem Uran zugrunde legt, die zu diesem Zweck allerdings auch das zusammen mit dem U-235 überproportional angereicherte U-234 enthalten muß. Hierbei handelt es sich ja um die bei der Brennelementherstellung der Natur zuvor entnommene Menge an Radiotoxizität, weshalb dieser Vergleichsmaßstab am ehesten die Folgen der Nutzung der Kernenergie deutlich macht. Die Angabe eines geeigneten Vergleichsniveaus ist aber darüberhinaus an sich problematisch, da selbst Uranerz nur bei Verbleib in der Lagerstätte keine negativen Auswirkungen auf den Menschen hat (Aufbau von Ra-226 und über gasförmiges Rn von Pb-210).

Für die in diesem Vergleich relativ niedrig bewerteten Spaltprodukte läßt sich feststellen, daß allein aus dem aus einer Tonne Uranbrennstoff erzeugten Jod mit einem ausgewiesenen Gefährdungspotential von $2 \cdot 10^5 \text{ m}^3$ Wasser nach 10 Millionen Jahren Lagerzeit immerhin noch 250.000 Menschen eine nach der deutschen Strahlenschutzverordnung maximal zulässige Jahresdosis von $3 \cdot 10^{-4} \text{ Sv/a}$ inkorporieren könnten [2.20]. Dieses erscheint insofern bedenklich als Jod eines der mobilsten Elemente im radioaktiven Abfall darstellt. Somit ist quasi als Umkehrschluß ein Endlager wahrscheinlich als Mobilitätsbarriere auch bei Reduktion der Toxizität unter jedes der angegebenen Vergleichsniveaus notwendig. Allerdings kann ein Sicherheitsnachweis sich dann auf mehr qualitative Vergleiche der einzulagernden Stoffmatrix und Uranmineralien in einer Erzlagerstätte beschränken. Unterschreitet man das gewählte Vergleichsniveau innerhalb von größenordnungsmäßig 1000 Jahren, so lassen sich alle Schutzfunktionen durch **technische Barrieren** in Form von geeigneten Behältern garantieren, was die Aufgaben der Gesteinsformationen des Endlagers als zusätzliche Barrieren mit allen Unwägbarkeiten weitgehend eliminiert. Dieses stellt das idealisierte Fernziel der Transmutation dar. Die Verwendung einer auslaugresistenten Matrix ist als Ergänzung zu den Behältern zu sehen und insbesondere dann angezeigt, wenn einzelne Elemente, beispielsweise wegen zu geringer Wirkungsquerschnitte, einer Transmutation nur schwer zugänglich sind.

Die Güte jeder Transmutationsbestrebung ist direkt an die Abtrennverluste in der WAA gekoppelt. Abb. 2.9 stellt mit Kurve a heute technisch erreichbare Abtrennraten für U und Pu zukünftig maximal möglichen gegenüber. Die zukünftig möglichen Varianten schließen die Abtrennung von Np und der höheren Actiniden von den Spaltprodukten ein. Es stellt sich die Frage, welche Abtrennraten sinnvoll sind. Offensichtlich unterscheidet sich das Gefährdungspotential des HAW (Kurve a) nur geringfügig vom Gefährdungspotential der in den Brennelementen bei einer direkten Endlagerung enthaltenen Actiniden. Der Vergleich von Kurvenverlauf b und d zeigt, daß offensichtlich Restgehalte von bis zu etwa 0,1 % an Actiniden eine sinnvolle Dekontamination darstellen, da der Toxizitätsverlauf von Kurve d im logarithmischen Maßstab nicht wesentlich höher als der von Kurve b ist. Weiterhin läßt sich damit auch das etwas bescheidenere Ziel der Reduktion der Gefährdungspotentiale in weniger als 10.000 Jahren unter das Vergleichsniveau der Pechblende verwirklichen. Berücksichtigt man zusätzlich, daß das über Am-241 und Pu-241 aufgebaute Np-237 und nicht das primär vorhandene Np-237 das Langzeitrisko bestimmt, so wären ebenfalls höhere Restge-

halte an Np im Bereich von einigen Prozent im endzulagernden Gebinde vertretbar. Diese Schlußfolgerung deckt sich mit den in Kap. 2.1 als vernünftig ausgewiesenen Trennfaktoren [2.6].

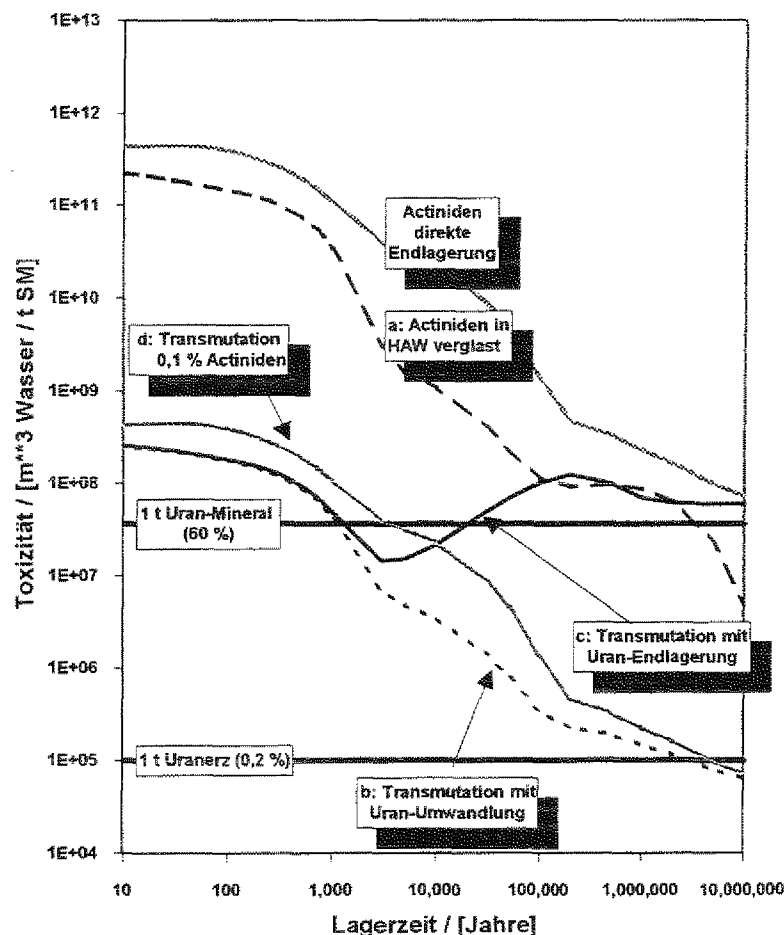


Abb. 2.9:
Zeitverlauf der Toxizität der Actiniden beim DWR; unterschiedliche Abtrennraten und Abtrennverfahren wurden unterstellt

Verluste in [%]:

- a : HAW heutiger Standard
0,5 Pu, 0,5 U
- b : Transmutation
0,01 Pu, 0,05 Np,
0,1 U,
0,1 höhere Actiniden
- c : Transmutation
mit Uran-Endlagerung
wie b aber 100 % U
- d : Transmutation
0,1 alle Actiniden

Ein weiterer Diskussionspunkt für die Festlegung sinnvoller Abtrennraten ergibt sich aus der Tatsache, daß die meisten im Moment diskutierten Anlagen zur Transmutation ausschließlich die Transurane diskutieren und keine Rezyklierung der Uran-Fraktion planen. Sofern dieses Ziel nicht verfolgt wird, läßt sich die Toxizität der Abfälle rein aufgrund der Mengenbetrachtung der Uran-Fraktionen und dem nicht annähernd vollständigen Abbrand von U-234 im Reaktor nicht wesentlich unter die Toxizität der ursprünglich eingesetzten Tonne an angereichertem Uran bringen.

Belastungsfähig sind Betrachtungen dieser Art jedoch erst, wenn weitere Abtrennverluste aus dem Transmutationsschema eingerechnet werden. Vorstellbare zusätzliche Abfallströme entstehen aus der begrenzten Nutzung der Transmutationsanlage mit allen ihren Strukturmaterialien und den Verlusten einer weiteren Wiederaufarbeitung, die bei einer nicht vollständigen Umwandlung der Abfälle der direkten Endlagerung in einem Schritt erforderlich wird.

Wie in der Diskussion um die Sicherheit eines Endlagers in Kapitel 2.2 deutlich wurde, existieren neben dem Wassereintruch auch andere wenn auch bedeutend unwahrscheinlichere

Störfälle. Für sämtliche explosiven Szenarien ist deshalb ein Toxizitätsäquivalent, ausgedrückt durch die **Verdünnung in Luft**, entscheidend. Auch hier dominieren wiederum die Actiniden (Abb. 2.10), und zwar in einem weitaus größeren Maß als bei der Wasserverdünnung. Dementsprechend kann eine Transmutation der Actiniden auch die Folgen hypothetischer explosiver Szenarien deutlich begrenzen.

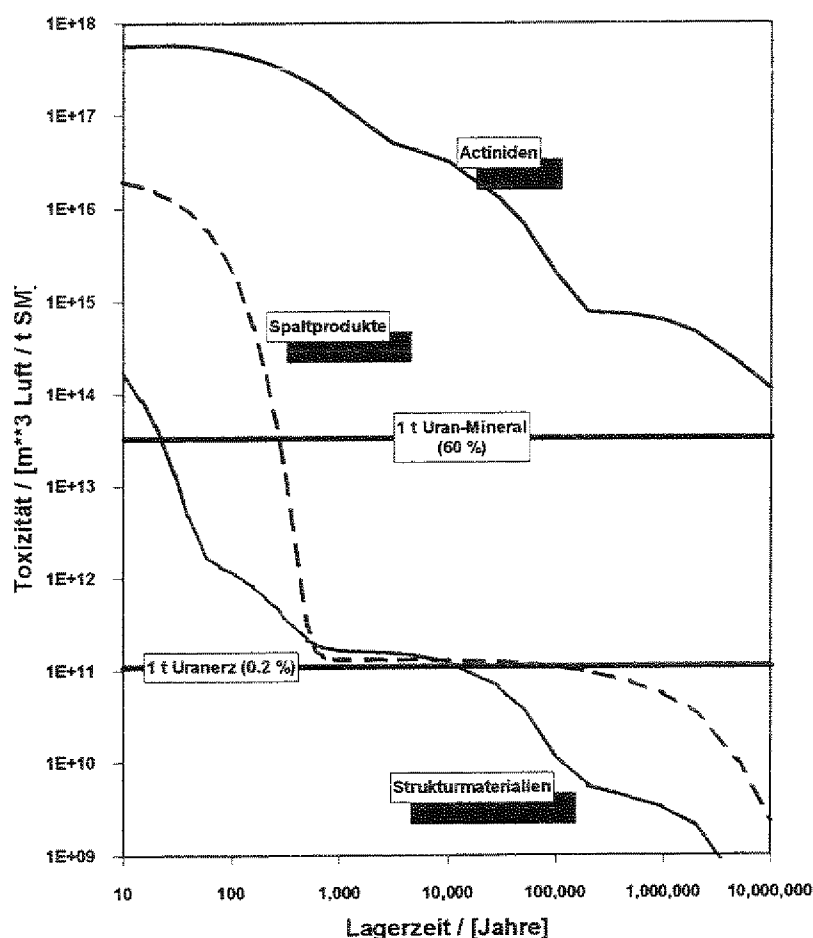


Abb. 2.10:
Zeitverlauf der Toxizität
beim DWR und
direkter Endlagerung.
Maßstab ist die
Verdünnung in Luft

In der amerikanischen Literatur ist noch ein weiterer von der Environmental Protection Agency (EPA) aufgestellter Vergleichsmaßstab bekannt. Dieser Maßstab berücksichtigt drei Hauptpfade, die Aufnahme von Radioaktivität über die Atemluft, über den Boden (ebenfalls vorstellbar aus Erdaushüben) und über das Grundwasser. Für jeden Pfad, seinerseits unterteilt in weitere Unterpfade, wird die Maximalmenge kalkuliert, die von einem bestimmten Nuklid freigesetzt werden darf, so daß 1000 vorzeitig Tote über einen Zeitraum von 10.000 Jahren auftreten. Dieses Vorgehen ist prinzipiell analog zu der Berechnung der personenbezogenen Dosis nach Ermittlung der Aktivitäten der aus einem Endlager austretenden Nuklide (Kap. 2.2). Rechnungen mit **EPA-Werten** wurden von Croff durchgeführt [2.24] mit grundsätzlich ähnlichen Ergebnissen wie bei der Wasserverdünnung. Auch hier läßt sich nur durch Transmutation in Verbindung mit einer Endlagerung das von der EPA festgelegte Vergleichsniveau erreichen.

Neben den Toxizitätsindices ist die **Nachwärme** des Abfalls für die Sicherheit des Endlagers äußerst wichtig. Es zeigt sich, daß die Actiniden schon relativ frühzeitig, und zwar nach etwa 60 Jahren, die Wärmeentwicklung bestimmen (Abb. 2.11). Somit wird eine Transmutation der Actiniden über die Senkung der Temperaturen und die Reduktion der α -Aktivität zu niedrigeren Materialschädigungen der umgebenden Matrix und geringeren Langzeitkorrosionsraten führen.

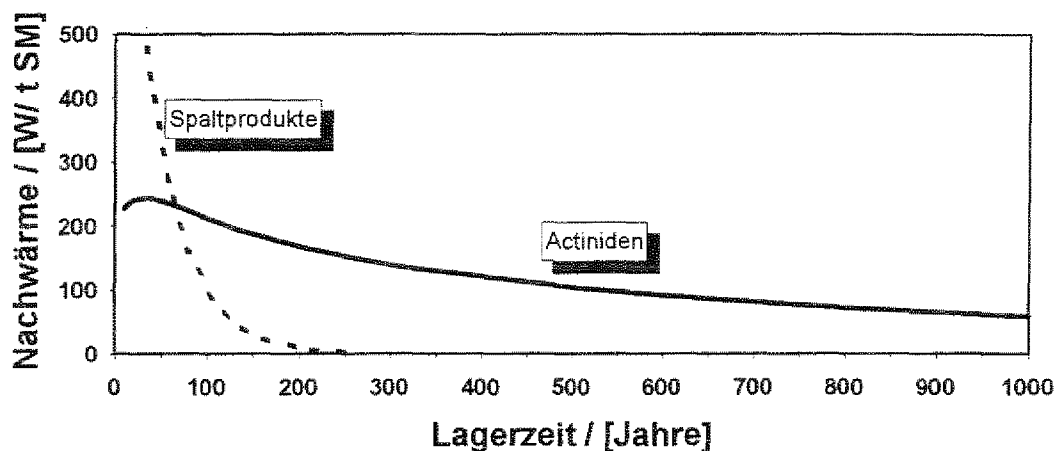


Abb. 2.11: Zeitverlauf der Wärmeentwicklung der LWR-Abfälle bei direkter Endlagerung, Abbrandrechnung DWR nach Anhang B.1

Positive Auswirkungen sind ebenfalls auf die sich im Wirtsgestein einstellenden thermischen Spannungen zu erwarten. So werden in Granit, bei 30 Jahren Zwischenlagerung des HAW, die Maximaltemperaturen nach weiteren 10 Jahren erreicht, beim Salz dagegen aufgrund der deutlich besseren Wärmeleitfähigkeit nach etwa 100 Jahren. Somit wäre bei einer der Transmutation nachgeschalteten Zwischenlagerung von etwa 50 Jahren eine bedeutende Vereinfachung bzgl. des notwendigen Berechnungsaufwandes und eine erhöhte Zuverlässigkeit der Ergebnisse bei nahezu allen Störfallszenarien im Endlager zu erwarten. Will man zusätzlich die Zwischenlagerungszeiten minimieren, so ist eine Abtrennung und möglicherweise separate Nutzung der Elemente Sr und Cs ratsam, da Sr-90 und Cs-137 zusammen mit ihren Folgeprodukten Y-90 und Ba-137m 10 Jahre nach der Entnahme des Brennstoffs aus dem Reaktor die Nachwärmefreisetzung zu mehr als 90 % bestimmen. Alternativ bedeutet die Entnahme dieser Elemente aber auch die Möglichkeit einer höheren Schwermetallaufnahme des Endlagers.

Aufgrund der verschiedenen Möglichkeiten, die Gefährlichkeit des radioaktiven Abfalls zu beschreiben, ist es äußerst schwierig **Präferenzen der Transmutation** festzulegen. Grundsätzlich sind Toxizität und Mobilität der einzelnen Nuklide ergänzend zu betrachten. Die Liste der Kandidaten für eine Transmutation scheint bis jetzt offen zu sein. Ein wesentlicher Faktor hierfür ist, daß die Mobilität einzelner Elemente von den konkreten Verhältnissen im Endlager abhängig ist. Je nach geologischer Formation, dem Korrosionsverlauf der Abfallmatrix und der Freisetzungszeit treten unterschiedliche Nuklide bei der Berücksichtigung des Wasserpfades in den Vordergrund (siehe Abb. 2.6, Abb. 2.7). In den meisten Rechnungen haben jedoch Np-237 mit den zugehörigen Zerfallsprodukten und die mobilen Spalt-

produkte Tc-99 und J-129 [2.14] einen wesentlichen Anteil an der freigesetzten Gesamtdosis.

Aber auch andere Nuklide, wie die Uran-Isotope und deren Folgeprodukte, weitere Spaltprodukte und aktivierte Bestandteile der Strukturmaterialien sind von Bedeutung, und es ist durchaus vorstellbar, daß sich in der hohen Anzahl zu berücksichtigender Elemente Grenzen der Transmutation verbergen. Weitere Grenzen sind durch den für einige Nuklide erheblich höheren technischen Aufwand gegeben. So bestimmt Cs-135 das vom Element Cs ausgehende Langzeitrisiko. Allerdings würde die direkte Bestrahlung von Cs zu weiteren Aufbauten aus dem stabilen, im LWR-Abfall in etwa $2^{1/2}$ -fach höher konzentrierten, Cs-133 führen. Keine Frage scheint es dagegen aufgrund der Dominanz in nahezu jedem Vergleichsmaßstab (Wasser, Luft, Wärmeentwicklung) zu sein, daß eine Transmutationskampagne die Actiniden adressieren muß. Hiervon lassen sich auch weitere positive Auswirkungen auf den Anfang des nuklearen Brennstoffkreislaufes erwarten, da der Aufwand für die Uranerzgewinnung und primäre Anreicherung gemäß der vollständigeren Brennstoffnutzung reduziert wird.

Die oben aufgeführten Argumente in Verbindung mit den Schwierigkeiten der Charakterisierung geeigneter Endlagerformationen sollten Grund genug dafür sein, andere Entsorgungswege unter Einbindung der Transmutation wissenschaftlich zu analysieren. Nach einem ausführlichen Vergleich der Risiken und der ökonomischen Anreize läßt sich dann die Basis für eine politische Entscheidung schaffen. Risiken einer breit angelegten Transmutation liegen beispielsweise aufgrund der zu schaffenden Wiederaufarbeitungskapazitäten in erhöhten Strahlenexpositionen der die Kernenergie nutzenden Generationen. Ein weiterer wesentlicher Teil des somit zumindest modifizierten nuklearen Brennstoffkreislaufs sind diejenigen kerntechnischen Anlagen, die die Brennstoffe weiterverwerten. Diese sollen in dem folgenden Kapitel beschrieben werden.

In diesem Zusammenhang ist zu erwähnen, daß *Croff*, der 1980 in [2.23] zu dem Ergebnis kam, daß keine zwingenden Gründe für die Transmutation existieren, insbesondere mit Hinblick auf die Probleme des geplanten Endlagers in den Yucca Mountains nun Anreize in dieser Alternative sieht und seine damalige Einschätzung 1990 in [2.24] korrigierte.

3 Anlagen zur Transmutation

Transmutation von Actiniden und Spaltprodukten läßt sich in verschiedenen Anlagen durchführen. In diesem Kapitel sollen diesbezüglich einige wesentliche Charakteristika herausgearbeitet werden. Gegenstand soll dabei - mit Rücksicht auf die notwendige Begrenzung der Darstellung - nicht so sehr die Vermittlung einer kompletten Übersicht der weltweiten Vorschläge zur Transmutation als vielmehr eine Diskussion möglichst relevanter Neuerungen und deren Abgrenzung von herkömmlicher mit hohen Erfahrungswerten behafteten Kernreaktoren sein. Eine umfassende Übersicht weltweiter Aktivitäten und Vorschläge vermitteln [3.1] und [3.2]. Es sei darauf hingewiesen, daß in der vorliegenden Arbeit ausschließlich die Transmutation von Spaltprodukten und Actiniden durch Neutroneneinfangreaktionen und Spaltung diskutiert werden sollen. Direkte Wechselwirkungsmöglichkeiten der Protonen werden nicht näher erörtert.

3.1 Anforderungen an Transmutationssysteme

Der Konzeption eines Transmutationssystems muß die Aufstellung von Bewertungsfaktoren vorausgehen. Dieses ist ein äußerst schwieriges und umfangreiches Unternehmen, da an dieser Stelle neutronenphysikalische, technische, ökologische und auch ökonomische Aspekte zu berücksichtigen sind.

Aufgrund der Zielformulierung, die Abfälle anderer Reaktoren (hauptsächlich LWR) möglichst vollständig zu transmutieren, ergibt sich als primäres Kriterium die Effektivität der Umwandlung toxischer in nicht toxische Isotope. Zur Überprüfung dieses Kriteriums ist ein **Kontrollraum** zu wählen, der die Transmutationsanlage mit der zugehörigen Aufbereitung¹ einschließt. Alle Stoffströme, die über die Systemgrenzen treten, inclusive der Aufbereitungsverluste und der Abfälle aus der späteren Entsorgung der Anlage sind zu bilanzieren. Eine Wichtung der Massen über die in Kapitel 2 diskutierten Gefährdungspotentiale (Wasserverdünnung oder ähnliches) ist sinnvoll und kann durch den Vergleich der Zeitabhängigkeit der Gefährdungspotentiale ergänzt werden. Die zu bilanzierenden Stoffströme werden wesentlich von dem in der Anlage für $t \rightarrow \infty$ zu erwartenden Nuklidvektor (Gleichgewicht) beeinflusst. Im Einzelfall wird zu klären sein, für welchen Zeitraum und mit welcher Anzahl von Rezyklierungen die Mengen technisch (Beispiel: Begrenzung der Wiederaufarbeitung durch hohe Aktivitäten der Pu-238 Aufbauten) und neutronenphysikalisch sinnvoll (Beispiel: Absinken des Eigenwertes durch Aufbau von absorbierenden Nukliden) zu handhaben sind.

¹Mit Aufbereitung ist an dieser Stelle nicht die herkömmliche WAA zur Auftrennung des LWR-Wastes gemeint. Vielmehr wird jede Transmutationsanlage weitere Aufbereitungseinrichtungen benötigen, um das nicht vollständig transmutierte Material von den Spaltprodukten zu trennen.

Sämtliche Massen sollten im Sinne einer Gesamtbetrachtung des somit neu geschaffenen Teils des nuklearen Brennstoffkreislaufes auf die insgesamt pro kg eingesetztes Schwermetall erzeugte elektrische Leistung normiert werden. Diese addiert sich aus dem Abbrand bzw. der Leistung des Systems, dessen Abfälle transmutiert werden sollen (meist LWR), und dem Abbrand in der Transmutationsanlage. Die elektrische Leistung wird gewählt, da sie bei der heutigen Form der Kernenergienutzung den eigentlichen Nutzen darstellt. Zukünftig könnten eventuell allgemeinere exergetische Betrachtungen sinnvoll sein. Setzt man in einer ersten Näherung die Uranfraktionen als umweltneutral an, so läßt sich ein Umwandlungswirkungsgrad

$$\eta_G = \frac{\sum TRU_{\text{Brennstoffzyklus Transmutationsanlage}}}{\sum TRU_{\text{LWR}}} \quad (\text{Gl. 3.1})$$

abschätzen. Der Zähler enthält dabei die aufgrund der Bilanzierung des Transmutationsystems in das Endlager zu verbringenden Transurane, während der Nenner die Transurane aus dem einfachen Durchlauf durch einen Leichtwasserreaktor (LWR bei direkter Endlagerung) enthält. In Gl. 3.1 kann man in der einfachsten Form wegen ähnlicher Gefährdungspotentiale der TRU die spezifischen Massen [kg/MW_{el}] zueinander in Beziehung setzen. Beispiele zur Anwendung von Gl. 3.1 finden sich in Kap. 3.2.1 und Kap. 3.2.2.

In der Literatur [3.1] wurde bis jetzt ein solcher Ansatz nicht verfolgt. Stattdessen werden Gütefaktoren verwendet, die historisch gewachsen sind. So wird beispielsweise die transmutierte Masse von MA (Minor Actinides) von der NEA gemäß der folgenden Beziehung

$$\Delta m = \frac{MA_{\text{BOEC}} - MA_{\text{EOEC}}}{t_z \cdot P_{\text{th}}} \quad (\text{Gl. 3.2})$$

Δm	bezogene Massendifferenz
P_{th}	thermische Leistung
t_z	Zyklusdauer
MA	Masse an Minor Actinides zu Beginn (BOEC) und gegen Ende eines Gleichgewichtszyklus (EOEC)

normiert, um die Effektivität der Umwandlung zu beurteilen. An dieser Stelle scheint es bedenklich, daß Pu, obwohl gemäß Kapitel 2 von ähnlicher Toxizität wie andere Transurane, nicht in die Berechnung eingeht [3.3]. Betrachtet man nun die Änderung der Transuranmenge (TRU) oder stellvertretend gar die Änderung der Toxizitäten der TRU, so ergibt sich ein Maß für die Geschwindigkeit der Umwandlung. Eine nuklidweise Bilanzierung erlaubt Aussagen, welche Elemente abgebaut und welche aufgebaut werden. Bei der Verwendung dieses Gütefaktors ist jedoch zu beachten, daß die **maximale globale Umwandlungsrate** an Transuranen über die Spaltenergie mit der thermischen Leistung verknüpft ist und ungefähr 1 g/(MW_{th}d) (bei unterstellten 214 MeV/Spaltung) beträgt². Heutige für die Pu-Um-

²Die Energie pro Spaltung setzt sich aus der (n,f)-Reaktion und aus wärmetönenden (n,γ)-Reaktionen zusammen. Nach DIN 25485 beträgt der thermisch nutzbare Teil der Pu-239 Spaltung 211,2 MeV, der der Pu-241 Spaltung 213,7 MeV. Da in unterkritischen Anlage der Anteil der (n,γ)-Reaktionen höher ist, steigt

wandlung konfigurierte Reaktoren weisen nur deswegen deutlich niedrigere Umwandlungsraten auf, weil ein gewisser Anteil von Transuranen beständig neu aus dem U-238 aufgebaut wird.

Zur Kennzeichnung der Umwandlungsrate findet sich ebenfalls oft die Angabe, welche **Anzahl von DWR's** ihren Abfall in die entsprechende Transmutationsanlage schicken können. Auch diese Zahl läßt sich direkt aus der in Anhang B.2 aufgeführten TRU-Menge des DWR-Abfalls angeben. Diese beträgt ca. 340 kg TRU/Jahr bei einer thermischen Leistung des betrachteten DWR von 4000 MW_{th} und einer Auslastung von 80 %. Somit werden 0,29 g/(MW_{th}d) TRU produziert. Rein aufgrund der Actinidenbilanz erfordern also - der Zahlenwert folgt als Kehrwert aus dem Produktionsterm - 3,4 DWR's etwa eine Transmutationsanlage gleicher thermischer Leistung, die ihrerseits 1 g/(MW_{th}d) TRU umsetzt.

Bezüglich der Transmutation von Spaltprodukten, die in reaktorähnlichen Anlagen durch den Einfang eines oder mehrerer Neutronen erfolgt, ist zu beachten, daß die notwendigen Neutronen in Form von Überschußreaktivität bereitzustellen sind. Hier entschärfen unterkritische Anlagen die ansonsten zwingende Kritikalitätsbedingung. Für die praktische Konstruktion einer Anlage zur zusätzlichen Spaltprodukttransmutation ist darüber hinaus entscheidend, wie groß die Menge einzubringender Spaltprodukte sein muß, um eine bestimmte Umwandlungsrate zu erreichen. Dieses läuft letztlich auf eine Optimierung der Querschnitte, des Flusses und eine Minimierung des Inventars hinaus.

Das **Inventar**, insbesondere das Schwermetallinventar, ist ein zusätzlicher Indikator für eine kerntechnische Anlage. Der Grund hierfür ist neben Sicherheitsüberlegungen, daß das in den Transmutationsanlagen gebundene Inventar wesentlich bestimmt, in welcher Zeit und auf welches Niveau das weltweite Plutonium- und Uraninventar (siehe hierzu die Mengenangaben in Kapitel 2.1) abgebaut werden kann. Unter Berücksichtigung der maximalen Umsatzrate von 1 g/(MW_{th}d), folgt allerdings der Beitrag zur weltweiten Stromversorgung. Dieser muß dem Bedarf angepaßt sein. In diesem Zusammenhang ist ein von *Pigford* [3.4] eingeführter Inventarfaktor zu erwähnen, der das zeitabhängige TRU-Inventar bei weiterer LWR-Nutzung zu dem zeitabhängigen TRU-Inventar verschiedener Transmutationssysteme bei additiver Berücksichtigung der Aufbereitungsverluste in Beziehung setzt. Dieser eigentlich sinnvolle Weg sollte durch eine Einbeziehung des bis heute akkumulierten Inventars ergänzt werden, was in der Notation von *Pigford* nicht geschieht. Grundsätzlich problematisch ist - und dies ist negativ zu vermerken - die Gleichbehandlung von Aufbereitungsverlusten, die einen Teil des Gefährdungspotentials der Actiniden im Endlager ausmachen, mit dem in dem Brennstoff von kerntechnischen Anlagen gebundenen Inventar. Die Aufbereitungsverluste sind nur dann an das Inventar der Anlage geknüpft, wenn man gleiche Abbrände und ähnliche chemische Prozeßtechnik voraussetzen darf. Formelmäßig wird in [3.1] ein inventarabhängiger Faktor folgendermaßen gebildet:

$$\eta_I = \frac{MA_{\text{BOEC}} - MA_{\text{BOEC}}}{t_Z \cdot MA_{\text{BOEC}}} \quad (\text{Gl. 3.3})$$

auch die Energie pro Spaltung. Genauere Angaben lassen sich einer Abbrandrechnung der jeweiligen Zelle entnehmen.

Die Sinnhaftigkeit dieser und ähnlicher Größen, sofern man die MA unter Einbeziehung des Plutoniums durch die TRU ersetzt, darf bezweifelt werden. Befürworter schneller Reaktoren, die im allgemeinen über ein hohes Inventar verfügen, führen auch dementsprechend mit Hinblick auf die Proliferationsgefahr an, daß diese Reaktorlinie die Vorräte abgebrannter Brennelemente oder auch von waffenfähigem Material in externen Lagern sofort nachhaltig durch die Einbindung in den besser zu kontrollierenden Brennstoffkreislauf minimiert [3.5]. Zur Abschätzung der oben diskutierten, teilweise gegensätzlichen Vorstellungen soll im Rahmen der in den folgenden Abschnitten vorzustellenden Transmutationsanlagen lediglich das im Uranbrennstoffkreislauf stationär notwendige in allen Anlagen gebundene Inventar ermittelt werden. Grundlage wird eine Fortschreibung der heutigen Energieerzeugung aus Kernreaktoren von weltweit 340 GW_{e1} in die Zukunft sein. Weiterhin wird, sofern die entsprechenden Daten verfügbar sind, im Rahmen einer Gesamtbilanz der Stoffströme über die Systemgrenzen des Transmutationssystems (Gl. 3.1) getrennt auf die Aufbereitungsverluste eingegangen.

Eine weitere zentrale Fragestellung der Transmutation besteht in der Einschätzung der **Sicherheitseigenschaften** der gewählten Anlage. Diese entziehen sich im allgemeinen einer pauschalen Bewertung und sind im Einzelfall genauestens zu untersuchen. Anmerkungen und ein Beispiel hierzu finden sich in Kapitel 5, in dem ein unterkritisches und ein kritisches natriumgekühltes System bezüglich ihrer Sicherheitseigenschaften verglichen werden. Der Sicherheitsbetrachtung vorgeschaltet bleibt grundsätzlich der Nachweis einer **technischen Realisierbarkeit**. Hierzu sind insbesondere für unterkritische Anlagen umfangreiche Experimente notwendig.

Alle oben aufgezählten Kriterien sind mehrfach untereinander verknüpft und zusätzlich an ökonomische Randbedingungen gebunden. Deshalb können im Rahmen dieser Arbeit nur ausgewählte Aspekte der verschiedenen weltweit vorgestellten Konzepte behandelt werden. Eine Unterteilung wurde vorgenommen in Reaktoren, die allenfalls modifiziert werden müssen, und unterkritische, speziell für eine Transmutationskampagne, neu zu konstruierende Anlagen.

3.2 Kritische Systeme

3.2.1 Leichtwasser- und Schwerwasserreaktoren

Die Transmutation in Leicht- und Schwerwasserreaktoren ist hauptsächlich wegen der enormen technischen Erfahrung und der möglichst weitgehenden Kapitalnutzung interessant. Das eingeschränkte Ziel ist hierbei deshalb oft ausschließlich die bessere Ausnutzung des ursprünglich eingesetzten Urans durch die Rezyklierung des Plutoniums.

Die prinzipiell einfachste Form der Rezyklierung besteht jedoch in dem Einsatz des abgebrannten LWR-Brennstoffs in schwerwassermoderierten CANDU-Reaktoren, da letzere wegen geringerer parasitärer Absorptionen im schweren Wasser keine zusätzliche Anreicherung erfordern. Zur Herstellung der Brennelemente für die CANDU-Reaktoren läßt sich vorteilhaft der AIROX-Prozeß anwenden (siehe auch Kap. 2). Kanada und Korea sind an

einer solchen Rezyklierung interessiert. Eine Abfallreduktion um mehr als 30 % scheint erreichbar [3.6], was allerdings deutlich hinter den in Kapitel 2 aufgestellten Forderungen zur Reduktion der Gefährdungspotentiale zurückbleibt.

Die Anzahl der Rezyklierungen durch den Einsatz von Uran-Plutonium Mischoxid (**MOX**) Brennelementen im LWR begrenzt sich durch die Tatsache, daß nur Pu-239 und Pu-241 thermisch spaltbar sind. Aufgrund der durch Absorptionen im Brennstoff aufgebauten, nicht spaltbaren Actiniden steigt die notwendige Anreicherung von Rezyklierung zu Rezyklierung. Bei einem Abbrand von 50.000 MWd/t SM gibt beispielsweise *Kessler* eine Anreicherung mit 4,5 % spaltbarem Pu nach dem ersten Rezyklierungsschritt, aber 7,3 % nach dem 7. Schritt an. Wegen des zunehmenden Anteils an Pu-238 und der somit steigenden Aktivität sind jedoch maximal 4 Rezyklierungen möglich, bedingt durch Probleme bei der Brennelementfertigung [3.7]. Der ökologische Nutzen ist ohne Nachrechnung als zweifelhaft einzustufen, wenn man die Resttoxizität des abgetrennten HAW (Kapitel 2) betrachtet. Die Auswirkungen auf die Reaktordynamik werden von den Herstellern (*Siemens-KWU*) für die einfache Pu-Rezyklierung als positiv beurteilt [3.8]. Diese Schlußfolgerungen sind aber, da sich Doppler-Koeffizient, Spektralverteilung, Anzahl der verzögerten Neutronen und Überschußreaktivität nicht eindeutig in der gleichen Richtung verändern, sicherlich nicht ohne weiteres auf die mehrfache Rezyklierung mit Gesamtplutoniumanteilen von mehr als 10 % zu übertragen. Einer mehrfachen Rezyklierung steht ebenfalls die Radiolyse der wässrigen Extraktionsmittel in der WAA entgegen. Weiterhin ist mit zunehmender Dauer der Zwischenlagerung der in der WAA abgetrennten Pu-Fraktion der Aufbau von Am-241 aus dem Pu-241 zu bedenken. Dadurch verschärfen sich die Probleme der Brennelementfertigung [3.9], die nur durch kostenintensive Gegenmaßnahmen beherrscht werden können. Wegen des niedrigen Uranpreises ist die Pu-Rezyklierung heute ökonomisch uninteressant.

Gleiches gilt für die **Uranrezyklierung** in Leichtwasserreaktoren, da es zum erneuten Einsatz im Reaktor aufgrund des reduzierten U-235 Gehaltes erneut angereichert werden muß. Die Anzahl der theoretisch denkbaren Rezyklierungen ist auch hier durch die Veränderung des Nuklidvektors begrenzt. Der Aufbau von U-232 als γ -Strahler führt zunehmend zu Handling-Problemen, während U-236 als Neutronenabsorber zunehmend die Neutronenökonomie beeinträchtigt. Der durch die Anreicherung steigende Anteil von U-234 bestimmt aufgrund der im Vergleich zum U-238 um 4 Größenordnungen kleineren Halbwertszeit ($T_{1/2} = 2,46 \cdot 10^5$ Jahre) das Langzeitrisiko und die Toxizität gemäß der Uran-Radium Zerfallsreihe. Dieses führt letztlich auch dazu, das Endlagerrisiko der Uranfraktionen zu diskutieren [3.10].

Bessere Reduktionen der Resttoxizitäten lassen sich erreichen bei einer kompletten **Transuranrezyklierung**. Hierbei werden alle Transurane entweder zusätzlich homogen beigegeben oder heterogen in Form eigener Brennelemente mitrezykliert. Entsprechende Vorschläge der *CEA* finden sich in [3.1]. Sofern jedoch nicht zumindest Am und Np mitrezykliert und die nicht rückholbaren Cm-Verluste begrenzt werden, bleibt ein solcher Ansatz naturgemäß weit hinter den in Kap. 2 gestellten Forderungen zurück. Wegen des Versuchs, die Actiniden komplett in einem LWR zu rezyklieren - als Referenzsystem wurde der AP-600 mit 600 MW_{el} gewählt -, soll in folgendem die Studie von *Lancaster* [3.11] mit ihren wichtigsten Ergebnissen wiedergegeben werden. Bei einem unterstellten Abbrand von

64.000 MWd/t SM wurde unter Verwendung flußgewichteter abbrandabhängiger Querschnitte das Abbrandverhalten des Reaktors über 10 Zyklen, entsprechend 80 Jahren, verfolgt. Die U-238 Fraktion wurde dabei ausschließlich mit Transuranen aus abgebrannten LWR-Brennelementen (33.000 MWd/t SM) angereichert. Nach jedem Zyklus wurden die Spaltprodukte für den folgenden Zyklus vollständig entfernt.

Ein wichtiges Resultat besteht darin, daß der Reaktivitätshub Δk zwischen Beginn und Ende eines Zyklus von 11 nile auf 2,6 nile nach mehr als 80 Jahren sinkt. Somit reduziert sich das Potential von Reaktivitätsstörfällen. Die Veränderung des Nuklidvektors zwischen dem 1. und dem 10. Zyklus ist für den abgebrannten Brennstoff in Abb. 3.1 dargestellt.

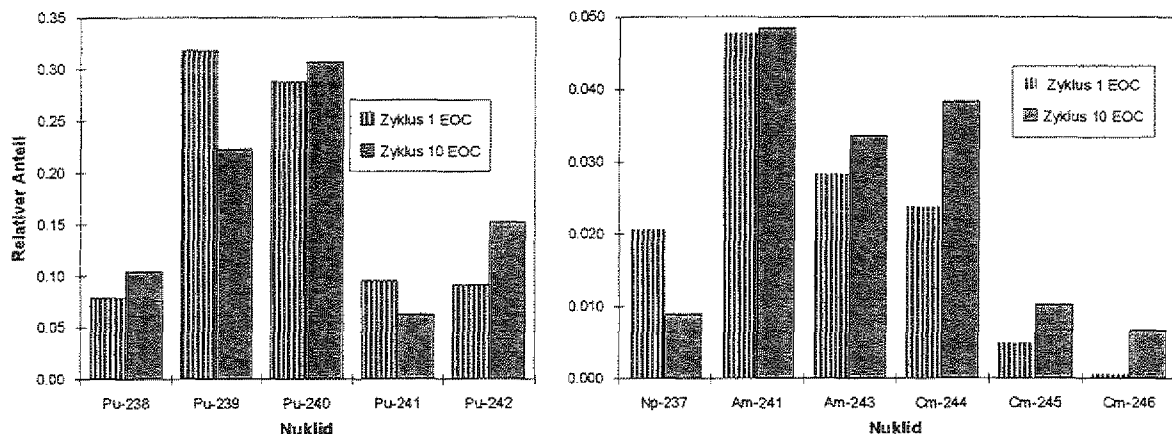


Abb. 3.1: Veränderung des Nuklidvektors im LWR nach 80 a (AP-600 nach [3.11]),
Bezugswert der relativen Anteile = Gesamttransuranmenge EOC 1. Zyklus 5,2 t,
10. Zyklus 14,3 t (mU-238 57 t $\rightarrow$ 47 t nach dem 10. Zyklus)

Es zeigt sich, daß ein starker Aufbau zu höheren Cm-Isotopen und in Elemente noch höherer Ordnungszahl stattfindet. Die im Reaktor gebundene Transuranmenge nimmt von 5,2 t auf 14,3 t zu. Auch nach 80 Jahren ist noch kein Gleichgewicht festzustellen. In dem gesamten Zeitraum werden 31,2 t Pu und 4 t MA, entsprechend 440 kg/a, zugespeist. Diese Menge ist der jährlichen Entlademenge von 1,3 DWR mit 1300 MW_{el} äquivalent (siehe Anhang B). Der gestiegene Abbrand läßt sich in Form einer gestiegenen Leistung für den ursprünglich eingesetzten U-Brennstoff ausdrücken. Diese erhöht sich von 1300 MW_{el} auf 1762 MW_{el}. Ohne die unvermeidlichen Aufarbeitungsverluste und ohne die Toxizität der eingesetzten Uranmengen zu werten, würde eine Entscheidung, das gesamte Inventar nach 80 a als Abfall endzulagern, die Transuranmengen analog zu Gl. 3.1 auf etwa:

$$\eta_G = \frac{14,3 \text{ t}}{31,2 \text{ t} + 4 \text{ t}} \cdot \frac{1,3 \cdot 1300 \text{ MW}}{(600 + 1,3 \cdot 1300) \text{ MW}} \cdot 100 = 30\% \quad (\text{Gl. 3.4})$$

reduziert haben. Eine solcher Weg wäre aufgrund von Problemen der Brennelementherstellung (Aufbau höherer Nuklide wie Cm) oder wegen der nur unzureichenden Möglichkeiten, die Spaltprodukte zu entfernen (Am-Cm Lanthanidentrennung), durchaus denkbar. Die zur

Charakterisierung der Transmutation wichtige Umwandlungsrate der Transurane berechnet sich aus den umgesetzten 21 t und der Leistung von ca. 1800 MW_{th} des AP-600 zu 0,4 g/(MW_{th}d) bei 100 % Auslastung. Dieser deutlich von 1 g/(MW_{th}d) abweichende Wert resultiert aus sekundären Aufbauten aus dem U-238 der Brennelemente.

Die hier dargestellten Rechnungen lassen die Schlußfolgerung zu, daß eine wesentliche Reduktion der Toxizitäten im LWR an die Technik der Brennelementherstellung bei vielfacher Rezyklierung geknüpft ist. Zur Gesamteinschätzung des Nutzens sind längere Rechenzeiten bis zum Gleichgewicht bzw. nähere Informationen zur Verfahrenstechnik der vielfachen Rezyklierung inklusive der in den Aufbereitungseinrichtungen auftretenden Verluste notwendig. Selbst eine 10-fache Rezyklierung ist an dieser Stelle nicht ausreichend und bleibt weit hinter der in Kapitel 2 formulierten Zielvorstellung einer Reduktion der Actinidenabfälle der direkten Endlagerung auf weniger als 0,1 % zurück.

3.2.2 Natriumgekühlte konvertierende Reaktoren

Wesentliche Eigenschaft natriumgekühlter Reaktoren ist das schnelle Neutronenspektrum. Da sich im Bereich ab etwa 0,5 MeV das Verhältnis von Spaltquerschnitt σ_f zu Absorptionsquerschnitt σ_a bei allen Actiniden zunehmend zu 1 hin verschiebt, werden nahezu alle Actiniden direkt gespalten. Schnelle Reaktoren verwenden zumeist **oxidischen Brennstoff**. Als logische Form der Aufbereitung bietet sich wie beim LWR das großtechnisch etablierte PUREX-Verfahren an. Zur Vermeidung von Aufbauten höherer Actiniden aus dem U-238 des Brennstoffs sollte auf dieses weitgehend verzichtet werden. Gleichzeitig ist jedoch zu bedenken, daß U-238 über die Dopplerverbreiterung der Resonanzen die Größe des prompten negativen Brennstoffkoeffizienten bestimmt. Brennstoffe mit einem höheren Actinidenanteil verfügen über veränderte thermodynamische Eigenschaften, wie Schmelzpunkt und Wärmeleitfähigkeit. In der experimentellen Erprobung befinden sich deshalb heute Brennstoffe mit maximal 50 % an Transuranen und einem Restgehalt von etwa 50 % U-238. Ersatzstoffe zur Einbindung der TRU, also inerte Matrices ohne U-238 Zumischungen, bilden einen weiteren Forschungsschwerpunkt. Die Transmutation in schnellen Reaktoren mit oxidischem Brennstoff wird in Frankreich favorisiert. Der Reaktor SUPERPHENIX soll dabei in der Zukunft der technischen Erprobung neuer Brennstoffsorten dienen [3.12].

Neben oxidischen Brennstoffen sind **metallische Brennstoffe** (U-Pu-10Zr Legierung) hauptsächlich im Versuchsreaktor EBR-2 des Argonne National Laboratory getestet worden. Ein schneller Pool-Reaktor mit dem Namen PRISM, entwickelt von General Electric, bildet in den USA das Referenzprojekt eines zukünftigen Flüssigmetallreaktors. Für das Reaktorprinzip (metallischer Brennstoff + pyrometallurgische Aufbereitung) ist die Bezeichnung Integral Fast Reactor (IFR) üblich. Der Reaktor wird ebenfalls oft als Advanced Liquid Metal Reactor (ALMR) bezeichnet. In [3.13] findet sich eine umfassende Beschreibung des Reaktors. Der zugehörige pyrometallurgische Brennstoffkreislauf wurde in Kap. 2 erläutert.

Umfangreiche Sicherheitsanalysen konnten zeigen, daß die Systemantworten dieses Typs auf das Spektrum der möglichen Störfälle günstiger als bei vergleichbaren Reaktoren mit oxidischem Brennstoff ausfällt. So bestehen sowohl bei einem Verlust der Wärmesenke

(LOHS) als auch bei einem Ausfall der Kühlmittelpumpen (LOF) große Temperaturreerven bis zum Verdampfen von Natrium oder Schmelzen von einzelnen Brennstäben. Die hier beschriebene Systemantwort des Reaktors ist selbsttätig, da Kontrollstäbe nicht verfahren werden müssen. Umfangreiche Versuche am Versuchsreaktor EBR-2 bilden die experimentelle Absicherung für dieses Verhalten. Ebenfalls toleriert der Reaktor das irrtümliche Verfahren eines Kontrollstabes, ohne daß es zu Beschädigungen des Cores kommt. Die Gesamtleistung des PRISM-Reaktors ist derartig begrenzt, daß das Volumen des Natriumpools ausreicht, um den bei Ausfall der aktiven Nachwärmeabfuhr entstehenden Temperaturpeak auf technisch beherrschbare Werte zu begrenzen. Vom Na-Pool wird die Wärme im allgemeinen durch freie Konvektion an der äußeren Behälterwandung auf die umgebende Luft übertragen. Ebenfalls prinzipiell vorstellbare Störfälle mit Eintrittswahrscheinlichkeiten von weniger als $10^{-6}/a$, bei denen mit einem partiellen Schmelzen der Brennelemente zu rechnen ist, sind in Kap. 5 in Zusammenhang mit der vorgenommenen Sicherheitsanalyse von kritischen und unterkritischen Systemen beschrieben.

Verglichen mit oxidischem Brennstoff führt das Fehlen des Sauerstoffs in metallischen Brennstoffen zu einem härteren Spektrum. Dieses begünstigt die direkte Spaltung der Actiniden. Aus diesem Grund, und auch, um eine gewisse Konstanz innerhalb der Arbeit zu gewährleisten, sollen Studien zu dieser Reaktorlinie im folgenden stellvertretend für das Transmutationspotential schneller Systeme angeführt werden. Eine umfangreiche vor kurzem durchgeführte Untersuchung zu den Möglichkeiten, Waffenplutonium und LWR-Transurane zum Brennstoffkreislauf des IFR zuzuspeisen, ist in [3.14] dokumentiert. Die zugrundeliegenden verschiedenen Corekonfigurationen führen alle zu einer Leistung von 840 MW_{th} . Konventionelle Konverter sind innerhalb des IFR-Konzeptes möglich bis zu einer minimalen Konversionsrate³ C von 0,5. Der Grund für diese Begrenzung besteht darin, daß experimentelle Daten nur bis zu einem maximalen TRU-Anteil von 30 % im Brennstoff existieren. Im Unterschied zu den üblichen Reaktorauslegungen für ein C von 1 verzichtet man bei der Auslegung als Konverter auf die Brutzonen mit reinen U-Zr Legierungen. Das H/D-Verhältnis wird deutlich verkleinert, was die axiale Leckage erhöht und die sekundären Uran-Absorptionen reduziert (siehe Abb. 3.2 a und b). Ebenfalls verringert sich die Kühlmittelmenge. Somit steht der für das Sicherheitsverhalten negativ zu sehenden erhöhten Überschußreaktivität des Konverters (ca. Faktor 5) eine Verringerung des Void-Einflusses (Faktor 3), also der in Störfällen durch Verdampfen des Kühlmittels Natrium möglichen Reaktivitätssteigerungen, gegenüber. Ähnlich umfangreiche Sicherheitsanalysen wie für die im vorigen Abschnitt beschriebenen Referenzsysteme mit einem C von 1 wurden jedoch für die konventionellen Konverter nicht ausgeführt. Eine Parametervariation des Void-Einflusses findet sich aber etwa in [3.15], und in Kap. 5 sind die Ergebnisse von Störfallsimulationen für verschiedene H/D-Verhältnisse wiedergegeben.

³ Die Konversionsrate C drückt das Verhältnis neu erzeugter Spaltstoffkerne zu den verbrauchten Spaltstoffkernen aus. Es gilt: $C = \text{Neutronenausbeute} - 1 - \text{Neutronenverluste}$

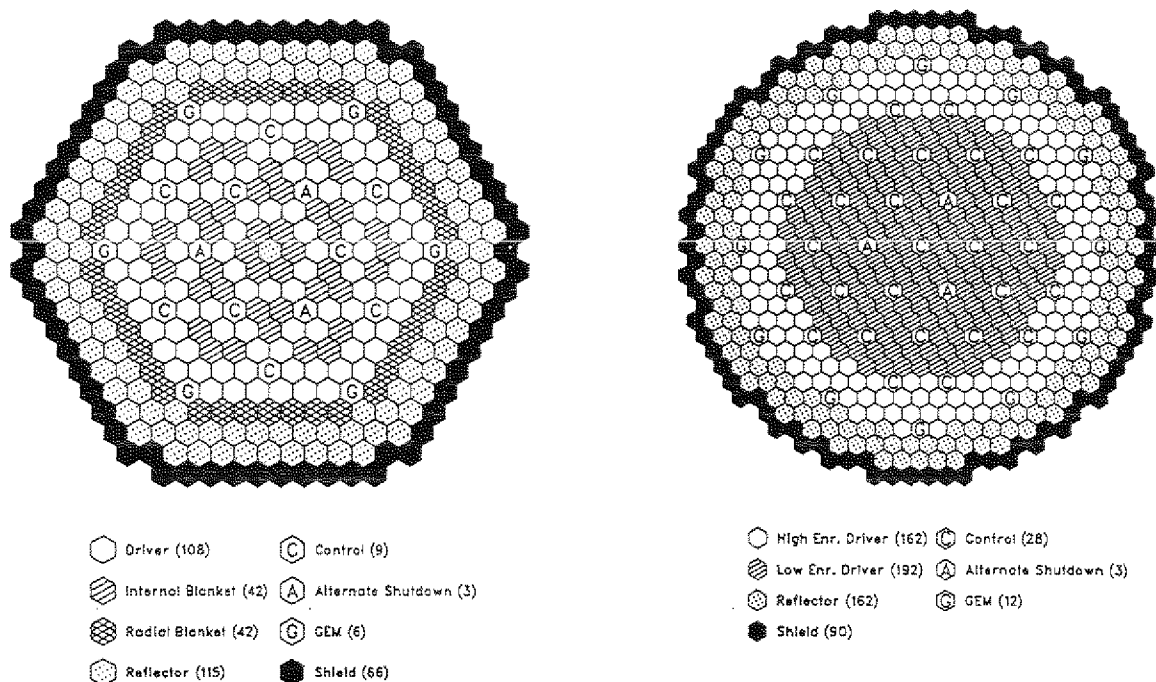


Abb. 3.2: a: Heterogenes IFR-Core mit $C \approx 1$ (Dimensionen: $H = 107$ cm, $D = 358$ cm) [3.14]
 b: Homogenes modifiziertes IFR-Core mit $C \approx 0,5$ bei einer alleinigen Bespeisung mit LWR-Transuranen (Dimensionen: $H = 46$ cm, $D = 444$ cm) [3.14]

Hafnium kann bei metallischen Brennstoffen das U-238 ersetzen, da es einen negativen Dopplerkoeffizienten aufweist. Somit sind theoretisch Umwandlungsraten von $1 \text{ g}/(\text{MW}_{\text{thd}})$ denkbar. Hf agiert im stationären Betrieb als Absorber, weshalb zur Aufrechterhaltung der Kritikalitätsbedingung ein höheres Pu-Inventar notwendig ist. Hierdurch bleibt der absolute Reaktivitätsverlust mit 3,2 nile nahe bei dem des konventionellen Konverters. Das fehlende U-238 führt jedoch zusätzlich zu einer verringerten Anzahl verzögerter Neutronen β , so daß der auf β bezogene Reaktivitätsverlust [β] um etwa 50 % höher als beim konventionellen Konverter ausfällt. Zusätzlich erhöht sich der in Störfällen mögliche positive Reaktivitäts-eintrag durch das Verdampfen des Natriums (Void) von 3 β auf 19 β . Aus sicherheitstechnischen Überlegungen heraus könnten deshalb Coreauslegungen mit dem Ersatzstoff Hafnium prohibitiv sein.

Innerhalb des pyrometallurgischen Brennstoffkreislaufs lassen sich die Actiniden nahezu vollständig im Reaktor rezyklieren. Abb. 3.3 zeigt für die externe Zuspeisung von Waffenplutonium und LWR-Transuranen in einen konventionellen Konverter die im Gleichgewicht jeweils am Ende eines Zyklus zu erwartenden Nuklidvektoren. Ebenfalls wird als eine dritte Variante zum Vergleich der TRU-Hf-Zr Brennstoff angeführt. Grundsätzlich ist die frühzeitige Einstellung eines Gleichgewichts an dieser Stelle mit einer generellen Eignung des IFR gleichzusetzen, auch höhere Transurane (H-TRU) zu transmutieren. Dieses schließt auch Curium (Cm) ein, da es innerhalb des IFR-Konzeptes vollständig rezykliert wird [3.16]. Im allgemeinen, je nach Zeit der Zwischenlagerung, wird während der ersten Reaktorzyklen bis zu 30 Jahren Cm aufgebaut und erst danach effektiv transmutiert [3.17].

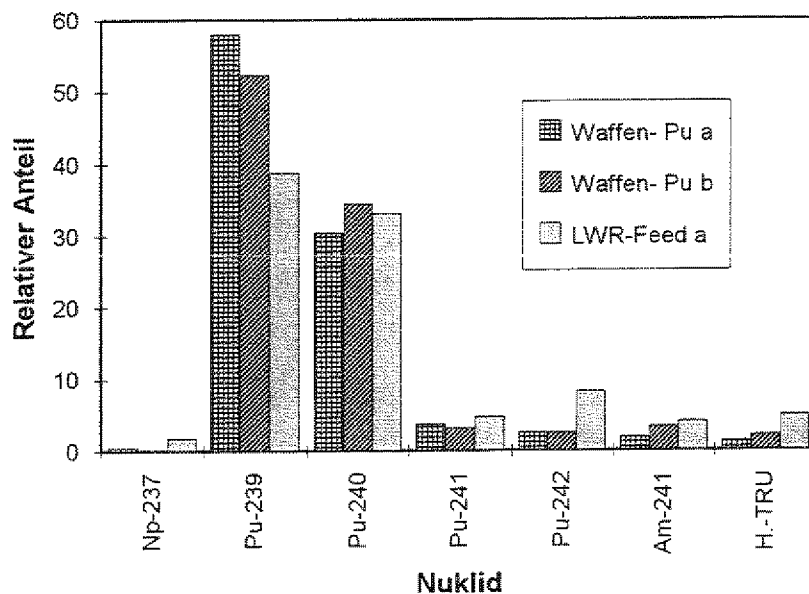


Abb. 3.3: Nuklidvektoren gegen Ende des Zyklus in einem modifizierten IFR-Core
a: konventionelle Konverter mit Zuspeisung von Waffen-Plutonium bzw. LWR-TRU,
b: Brennelemente aus Hf-Zr-TRU Legierungen mit Zuspeisung von Waffen-Plutonium

Für die Zuspeisung von Transuranen aus dem abgebrannten LWR-Brennstoff in den konventionellen Konverter gemäß [3.14] sollen analog zur Diskussion in Kap. 3.1 die bei diesem Szenarium letztlich endzulagernden Actinidenmengen der direkten Endlagerung gegenübergestellt werden. Zwischen der Erstbeladung und dem Gleichgewichtszustand steigt das im Core gebundene TRU-Inventars nur geringfügig von 3,79 t auf 4,28 t. Es werden im Gleichgewicht jährlich 124 kg TRU zugespeist. Da jährlich aus einem typischen DWR etwa 340 kg/a entladen werden (Anhang B.1), wären in einem stationären Uranbrennstoffkreislauf 2,74 konventionelle Konverter zur weiteren Verwertung der DWR-Transurane notwendig. 543 kg/a TRU werden im pyrometallurgischen Brennstoffkreislauf mit Verlusten von wenigstens 0,1 % rezykliert (siehe auch Kap. 2). Bei der primären Abtrennung der TRU aus dem DWR-Abfall sind weitere 0,1 %, entsprechend 0,124 kg, additiv zu berücksichtigen. Die Normierung auf den bei einem thermischen Wirkungsgrad des IFR von 38 % und einer thermischen Leistung von 840 MW_{th} gesteigerten Nutzen von 2174 MW_{el} liefert analog zu Gl. 3.1 eine Reduktion auf

$$\eta_G = \frac{(0,543 + 0,124) \cdot 2,74}{340} \cdot \frac{1300}{1300 + 2,74 \cdot 840 \cdot 0,38} \cdot 100 = 0,32 \% \quad (\text{Gl. 3.5})$$

der Transuranmengen bei einer direkten Endlagerung. Dieses bedeutet eine weitgehende Annäherung an das in Kap. 2 formulierte Ziel einer Reduktion auf ein Niveau von wenigstens 0,1 %.

Will man - und dieses mag als illustrierendes Beispiel gesehen werden - die weltweit verfügbaren 340 GW_{el} durch den so beschriebenen Brennstoffzyklus stationär bereitstellen, so läßt

sich aus dem **TRU-Inventar** des IFR von 4,28 t am Ende eines Zyklus auch das weltweit notwendige in den Anlagen gebundene TRU-Inventar I abschätzen. Dieses beträgt bei nach oben gerundet 160 notwendigen Einheiten mit jeweils 2174 MW_{el} :

$$I = 160 \cdot (0,34 \text{ t} + 2,74 \cdot 4,28 \text{ t}) \cong 1930 \text{ t TRU} \quad (\text{Gl. 3.6})$$

Somit erniedrigt sich bei dieser Option nicht das weltweite TRU-Inventar (siehe Kap. 2), sondern es verdoppelt sich überschlägig.

Gemäß Kap. 2 sollten ein umfassendes Transmutationskonzept ebenfalls **Spaltprodukte** umwandeln. Diese lassen sich innerhalb schneller Reaktoren nur äußerst schlecht transmutieren, da die Inventare wegen der kleinen Wirkungsquerschnitte sehr hoch sein müssen. Deshalb werden die Neutronen in der unmittelbaren Umgebung der Spaltprodukte thermalisiert (thermische Inseln), um etwa epithermische Resonanzen auszunutzen. Trotz vielversprechender Ansätze ist der Kenntnisstand hier jedoch noch unzureichend, und die generelle Machbarkeit wird angezweifelt. Überlegungen zur Transmutation von radioaktivem Jod als Natriumjodid und Tc-99 in metallischer Form in einer durch Hydride moderierten Zone eines schnellen ALMR sind in [3.18] dokumentiert. Ausgehend von einem Hochkonverter mit $C \approx 1,1$ werden Jod und Tc in jeweils 12 Brennstäben eingebracht. Die Rechnungen haben zum Ergebnis, daß 11 kg/a Tc-99 bei gleichzeitiger Produktion von 5,4 kg/a und 6,6 kg/a Jod bei Produktion von 1,7 kg/a umgesetzt werden. Der Konversionsfaktor sinkt durch die Einbindung der Spaltprodukte auf 0,8, und der Reaktivitätsverlust zwischen BOEC und EOEC steigt auf ca. 6 \$. Diese Rechnung ist jedoch nur als Konzeptstudie zu sehen, da die Hochtemperatureigenschaften von Jodverbindungen und deren Wechselwirkungen mit Hüllmaterialien als im wesentlichen unbekannt einzustufen sind. Technetium ist in dieser Beziehung einfacher zu handhaben. Weiterhin ist bei den Hydriden mit einer Zersetzung bei höheren Temperaturen zu rechnen. Gesamtkonzepte schneller Reaktoren, die sowohl Spaltprodukte als auch Actiniden transmutieren und auf technische Machbarkeit überprüft sind, existieren derzeit nicht, was wohl auch darin begründet ist, daß die pyrometallurgische Wiederaufarbeitung im IFR-Kreislauf eine Trennung der Spaltprodukte nicht vorsieht bzw. zuläßt.

3.2.3 Kritische Systeme im Vergleich

Die Verwendung von Wasser als Moderator bedingt, daß sich thermische Neutronenspektren mit einem Maximum von typischerweise $< 0,1 \text{ eV}$ ausbilden. In diesem Energiebereich haben nur U-235, Pu-239, Pu-241, Am-242, Am-244, Cm-243 und Cm-245 relativ hohe Spaltquerschnitte von einigen 100 barn (siehe Anhang). Für alle anderen Isotope ist $\sigma_C \gg \sigma_F$ und selbst für Pu-239 gilt bei 0,025 eV, daß das Verhältnis von parasitärer Absorption zu Spaltung etwa 37 % beträgt. Demgegenüber betragen die Spaltquerschnitte in schnellen Neutronenspektren maximal einige barn, allerdings bei relativ gleichmäßiger Verteilung auf alle Nuklide.

Zwei Schlußfolgerungen lassen sich daraus direkt ableiten. Zum einen ist das **Spaltstoffinventar** thermischer Reaktoren aufgrund der bedeutend höheren Spaltquerschnitte geringer

als das schneller Reaktoren. Wie die Rechnungen zu thermischen Reaktoren allerdings zeigen, schwindet dieser Vorteil mit zunehmender Nutzung des thermischen Reaktors als Transmutationsanlage und kehrt sich sogar um, da sich zunehmend nicht spaltbare Transurane aufbauen. So beträgt das Transuran-Inventar in dem von *Lancaster* beschriebenen AP-600 nach 80 Jahren 7,9 t TRU/GW_{th} (1800 MW_{th} und 14,3 t TRU). Der von *Hill* berechnete IFR-Reaktor (konventioneller Konverter) mit LWR-Feed weist dagegen im Gleichgewicht TRU-Gehalte von 5,1 t TRU/GW_{th} (840 MW_{th} und 4,28 t TRU) auf. Der geringe Unterschied an dieser Stelle beruht auf dem um Größenordnungen höheren Fluß und den geringeren sekundären Aufbauten an nicht spaltbaren Actiniden im schnellen Reaktor. Somit werden sich in einem geschlossenen Brennstoffkreislauf mit kompletter Rezyklisierung der Transurane bei Verwendung von Anlagen mit schnellen Spektren nicht notwendigerweise höhere Transuranverluste einstellen. Dieses gilt umso mehr, da der Abbrand schneller Systeme wegen der weitgehenden Unempfindlichkeit gegenüber dem Aufbau von Spaltprodukten höher gewählt werden kann.

Die zweite Schlußfolgerung, die sich aus der Betrachtung der Querschnitte ergibt, bezieht sich auf das sich einstellende **Gleichgewicht**. Wegen der bedeutend gleichmäßigeren Verteilung der Spaltquerschnitte auf alle Isotope in schnellen Neutronenspektren und wegen eines höheren Anteils von Spaltquerschnitt zu parasitärer Absorption wird sich das Gleichgewicht des Nuklidvektors schneller als in thermischen Reaktoren einstellen. Ebenfalls ist das sich ausbildende Schwergewicht des Gleichgewichtsvektors im schnellen System nicht so weit von dem des Speisevektors entfernt. Dieses läßt sich zwar nur tendenziell an den Nuklidvektoren von AP-600 und IFR ablesen (siehe Abb. 3.1 und Abb. 3.3); es ist jedoch zu bedenken, daß das thermische System noch nicht im Gleichgewicht ist.

Wegen der Unzulänglichkeit der Rechenprogramme und dem in den Simulationen zum AP-600 vorgenommenen Zeitabbruch der Betrachtungen nach 80 Jahren bleibt die Frage nach der Form des sich ausbildenden Gleichgewichtes in thermischen Reaktoren und den Folgen für die Kritikalitätsbedingung zunächst unbeantwortet. Grundsätzliche Überlegungen hierzu wurden aber von *Salvatores et al.* vorgenommen [3.19]. Grundlage ist, daß auch für das sich ausbildende Gleichgewicht eine Neutronenbilanz der Form:

$$Q_{Ext} - D_{Fuel} \geq (L + CM) + D_A \quad (\text{Gl. 3.7})$$

Q_{Ext}	evtl. vorhandene externe Neutronenquelle
D_{Fuel}	Neutronenverbrauch des Brennstoffs (negative Werte = Neutronenproduktion)
D_A	Neutronenverbrauch des zu transmutierenden Nuklids A
L	Leckage
CM	Parasitäre Neutroneneinfänge in Strukturen und FP

erfüllt sein muß.

Von daher kommt der Ermittlung des Neutronenverbrauchs D , welcher sämtliche Kernreaktionen (Einfang, Spaltung etc.) unter Berücksichtigung aller relevanten Aufbauketten umfaßt, eine zentrale Bedeutung zu. D ergibt sich in allgemeiner Schreibweise für jedes Nuklid A zu :

$$D_A = \sum_{A1_i} P_{A \rightarrow A1_i} \cdot \left\{ R_{A1_i} + \sum_{A2_j} P_{A1 \rightarrow A2_j} \cdot \left[R_{A2_j} + \dots \right] \right\} \quad (\text{Gl. 3.8})$$

wobei durch P die Wahrscheinlichkeiten einer bestimmten Kernreaktion und durch R die zugehörigen Neutronenverluste zum Ausdruck kommen. P ist direkt aus der Normierung der Querschnitte der jeweiligen Reaktion auf den totalen Querschnitt abzuleiten. Negative Werte von D bedeuten, daß die Transmutation des Nuklids A bei Betrachtung aller Folgeprodukte keine Neutronen verbraucht, sondern Neutronen bereitstellt. Dieses setzt einen hohen Anteil von Spaltreaktionen ($R = 1 - \nu$, mit ν = Anzahl der Spaltneutronen) voraus.

Nach dem oben beschriebenen Muster wurde der Neutronenverbrauch D in Abhängigkeit vom Neutronenfluß für die Transmutation der wichtigsten Transurane in einem LWR-Spektrum, einem thermischen Spektrum mit 0,025 eV und zwei schnellen Spektren für oxidische und metallische Brennstoffe untersucht. In den beiden schnellen Spektren - Vorteile zeichneten sich erwartungsgemäß bei der Verwendung von metallischen Brennstoffen oder der Substitution des Natriums durch Blei ab - sind die D -Werte für sämtliche Transurane negativ, so daß die Neutronenbilanz die Transmutation nicht einschränkt. Dieses gilt nicht für das idealisierte thermische Spektrum und noch weniger für das LWR-Spektrum. Eine Wichtung der D -Werte mit den typischen Anteilen der aus einem LWR entladenen Transurane zeigt, daß in thermischen Systemen ein eklatanter Neutronenmangel herrscht. Dieser sinkt bei Erhöhung der Flüsse. In einem idealisierten thermischen Spektrum bei 0,025 eV wirken die TRU bei einem Fluß von 10^{16} n/cm²/s als Neutronenproduzenten, allerdings in einem deutlich geringerem Maße als in typischen schnellen Systemen. Eine ausgeprägte Abhängigkeit vom Fluß zeigt sich beispielsweise beim Np-237 (mögliche Kernreaktionen gemäß der Nuklidtafel im Anhang A), da hohe Neutronenflüsse zu einer erhöhten direkten Spaltrate im aufgebauten Np-238 führen. Der Zerfall in das Pu-238 und die nachfolgende Spaltung im Pu-239, die ja erst nach einem Verbrauch von 2 Neutronen erfolgen kann, wird zunehmend unbedeutend. Es muß an dieser Stelle einschränkend darauf hingewiesen werden, daß der D -Wert keinesfalls für alle Nuklide konstant mit dem Fluß steigt, was der obige einfache Zusammenhang vermuten läßt. Stattdessen zeigen einige Nuklide ausgeprägte Maxima, allerdings meist bei technisch ohnehin nicht relevanten Neutronenflüssen von mehr als 10^{16} n/cm²/s.

Aus den oben dargestellten theoretisch begründeten Ergebnissen läßt sich ableiten, daß der Betrieb eines LWR mit alleiniger Zuspeisung von TRU aus anderen LWR im Gleichgewicht aus rein neutronischen Überlegungen nicht möglich sein wird. Man wird also separat neutronenerzeugenden Brennstoff in Form einer höheren Anreicherung von beispielsweise U-235 zusetzen müssen, was zur Folge hat, daß die resultierenden Transmutationsraten deutlich geringer als 1 g/(MW_{th}d) ausfallen. Für einen schnellen Reaktor wie den ALMR gelten keine direkten Einschränkungen der Neutronenbilanz. Indirekt reduziert sich jedoch die maximale Umwandlungsrate, wenn man nicht auf U-238 verzichten kann. Da weiterhin die Sicherheitsphilosophie schneller Reaktoren darin besteht, den Void-Einfluß des Natriums durch den Bau flacher Reaktoren mit hoher Neutronenleckage zu begrenzen, ist auch zu bezweifeln, ob eben diese Neutronen für eine Spaltprodukttransmutation nutzbar ge-

macht werden könnten. In beiden Fällen (thermische und schnelle Systeme) ließe sich jedoch die Bedeutung der Neutronenbilanz (Gl. 3.7) durch die Verwendung von externen Quellneutronen entschärfen. Dieses führt letztlich zu der Notwendigkeit, das Potential unterkritischer Anlagen mit externer Neutronenquelle zu untersuchen. Die Ergebnisse von *Salvatores* machen ebenfalls deutlich, daß die Transmutation in thermischen Anlagen umso besser wird, je thermischer das Spektrum ist und je höher der Fluß sein wird. Hier ist auf eine wichtige Beschränkung der Studie hinzuweisen, die darin besteht, daß, sobald die Transurane mit ihren Aufbauten einen gewissen Anteil in einem Reaktor erreicht haben, sich ebenfalls das Neutronenspektrum verschieben wird. Von daher wird in thermischen Systemen die Frage zu beantworten sein, inwieweit man das Spektrum im Gleichgewicht thermalisieren kann, und ob nicht durch die kluge Ausnutzung von Resonanzen für die Transmutation insgesamt günstigere Bedingungen als in einem LWR-Spektrum geschaffen werden können. Umfangreiche Untersuchungen hierzu werden von *Lizana* [3.3] vorgenommen; eine neutronische und technische Beurteilung der mit einem thermischen Spektrum arbeitenden ATW-Transmutationsanlage des LANL findet sich in Kapitel 4.

3.3 Unterkritische Systeme

Unterkritische Systeme sind Anlagen, bei denen die Konstanz des Neutronenflusses durch externe Quellneutronen garantiert wird. Diese Neutronen werden durch Zersplinterung schwerer Atomkerne in einem Target produziert. Die Zersplinterung wird durch den Beschuß mit Hochenergieteilchen ausgelöst und als **Spallation**⁴ bezeichnet. Abb. 3.4 illustriert die ablaufenden Prozesse. Die hochenergetischen Primärteilchen (Protonen, Deuteronen etc. von einigen 100 MeV) dringen in den Kern ein und lösen eine intranukleare Kaskade aus. Der hochangeregte Kern gibt dabei seine Energie durch Abdampfen von Nukleonen ab. Bei den Nukleonen handelt es sich bevorzugt um Neutronen, sofern es sich um schwerere Kerne handelt. Die Wahrscheinlichkeit der Spaltung eines Kerns steigt mit der Massenzahl des angeregten Kerns. Die hochenergetischen abgedampften Teilchen können genauso wie die Primärteilchen auch weitere ähnliche Kernreaktionen in anderen Kernen auslösen. Dieses wird als internukleare Kaskade bezeichnet.

Alle geladenen Teilchen verlieren ihre Energie quasi am Entstehungsort. Nur die Neutralteilchen (Neutronen, γ -Quanten) haben eine wesentlich größere Reichweite. Eine Zusammenstellung der zur Simulation benutzten Programme und deren Kopplung gibt Anhang A wieder. Eine umfassende Darstellung moderner Nieder- und Hochenergie Monte-Carlo Teilchentransport-Simulationsverfahren enthält [3.21].

⁴ Der Ausdruck Spallation ergibt sich aus der Eindeutschung des englischen *spall*, womit Stein- und Erzsplinter bezeichnet werden, bzw. der Vorgang des Zerbröckelns und Absplitters

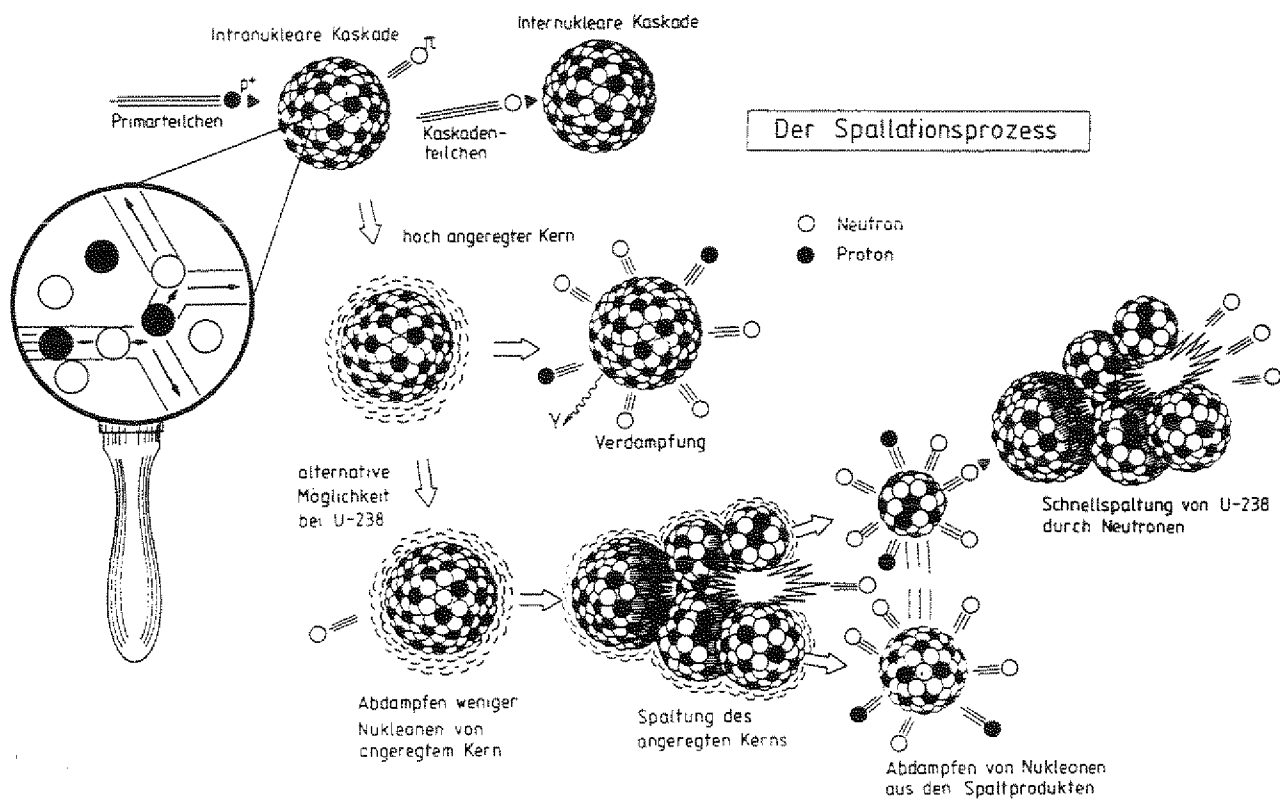


Abb. 3.4: Der Spallations-Prozeß in schematischer Darstellung [3.20]

Die Einbringung von spaltbaren Transuranen in eine unterkritische Anlage führt zu sekundären Niederenergiespaltungen. Die primären Spallationsneutronen $\dot{Q}$ werden gemäß

$$\begin{aligned}
 N &= \dot{Q} \cdot (1 + k^1 + k^2 + \dots + k^n) \\
 &= \dot{Q} \cdot \frac{1}{1 - k} \quad \text{für } n \rightarrow \infty
 \end{aligned}
 \quad (\text{Gl. 3.9})$$

multipliziert. Der Multiplikationsfaktor k sollte für eine exakte Darstellung in einer Transportrechnung unter Einschluß der Neutronenquelle ermittelt werden, um veränderte Leckagen und Flußprofile aufgrund der Wechselwirkung des Protonenstrahls mit Target und Blanket zu erfassen. Mit der Spaltenergie E_F und den bei einer Spaltung freigesetzten Neutronen ν folgt eine Beziehung für die thermische Leistung der Anlage:

$$P_{th} = I \cdot Y \cdot \frac{k}{(1-k)} \cdot E_F \quad (\text{Gl. 3.10})$$

P_{th}	thermische Leistung der Anlage, $[P] = \text{MW}$
I	Stromstärke des Protonenstrahls, $[I] = \text{A}$
Y	Anzahl der erzeugten Neutronen je auftreffendem Proton (das Neutronenyield ist vom Targetmaterial und der Energie des auftreffenden Protons abhängig)
E_F	nuklidabhängige Spaltenergie $\cong 210 \text{ MeV}$ $[E] = \text{MeV}$
ν	nuklidabhängige Anzahl von Spaltneutronen, $\cong 3$

Sobald das Neutronenyield Y aus Überschlagsformeln oder einer Monte-Carlo Hochenergie-transportrechnung bekannt ist, läßt sich somit eine Energiebilanz der Anlage aufstellen. In diese Energiebilanz geht als wesentlicher Verlustfaktor der Energieverbrauch des Protonenbeschleunigers ein, der durch seine Stromstärke, die Beschleunigungsspannung der Protonen und den Wirkungsgrad der Umwandlung elektrischer Energie in Strahlleistung bestimmt ist. Durch Erweiterung von Gl. 3.10 folgt für eine positive Energiebilanz oder auch Nettoenergieerzeugung eine Bedingung für den Mindestmultiplikationsfaktor zu:

$$k \geq \frac{1}{1 + \frac{\eta_{el} \cdot \eta_C \cdot Y \cdot E_F}{\nu \cdot U_B}} \quad (\text{Gl. 3.11})$$

η_{el}	elektrischer Wirkungsgrad (gewählt zu 0,3)
η_C	Konversionsfaktor elektrische Leistg. $\rightarrow$ Strahlleistg. (gewählt zu 0,5)
U_B	Beschleunigerspannung (gewählt zu 1600 MeV)
Y	$f(U_B, \text{Target})$, Neutronenyield in Blei $\approx 40 \text{ n/p}$

Bei Verwendung der oben angegebenen, im Vorgriff auf die späteren Abschnitte verwendeten Zahlenwerte sind Multiplikationsfaktoren k größer als 0,79 nötig. *Takahashi*, der Betrachtungen dieser Art zum ersten Mal durchführte, gibt nach einem Vergleich internationaler Konzepte einen Mindestwert für k von 0,75 an [3.22]. Die Notwendigkeit einer Nettoenergieerzeugung folgt aus dem sich aus den Umwandlungsraten und TRU-Produktionsraten ergebenden Verhältnis notwendiger Transmutationsanlagen zu LWR's von ca. 1:3 (siehe Kapitel 3.1). Deshalb sollte die Transmutation ein **energieerzeugender** Prozeß mit ausreichend hohen Multiplikationsfaktoren sein.

Die Konzeption einer unterkritischen Anlage kann im wesentlichen zwei Grundprinzipien folgen. Die erste Möglichkeit besteht in der räumlichen Trennung von Spallationstarget als Neutronenquelle und einem umgebenden neutronenmultiplizierenden Blanket, das die Transurane enthält. Alternativ dazu ist es möglich, keine explizite Grenze zwischen Target und Blanket vorzusehen (Abb. 3.5). Vergleicht man die in **a** und **b** illustrierten Ansätze, so wird man zunächst intuitiv Prinzip **b** den Vorzug geben. Die zu erwartenden Belastungen des zur Abgrenzung des Beschleunigervakuums vorgesehenen Protonenfensters sind wegen der vorherigen Spreizung des Protonenstrahls geringer, und es entfällt auch die physikalisch in Form einer ersten Wand zu schaffende Grenze zwischen Target und Blanket. Ebenfalls

wird Möglichkeit **b** über eine homogenere Flußverteilung verfügen, sofern der Flußabfall in Variante **a** nicht über Zonen unterschiedlicher Anreicherung bzw. einen unterschiedlichen Moderationsgrad ausgeglichen wird. Prominente Vorschläge für Alternative **b** sind etwa das von *Furukawa* vorgeschlagene Fluoridsalzschmelzenkonzept [3.23], in dem die Actiniden (hier Th) direkt gelöst sind und gleichzeitig als Spallationstarget fungieren. Ein weiterer Vertreter ist der vom ISR untersuchte heliumgekühlte Thoriumbrüter, der Thoriumhohlkugeln als Target und Blanket verwendet [3.24].

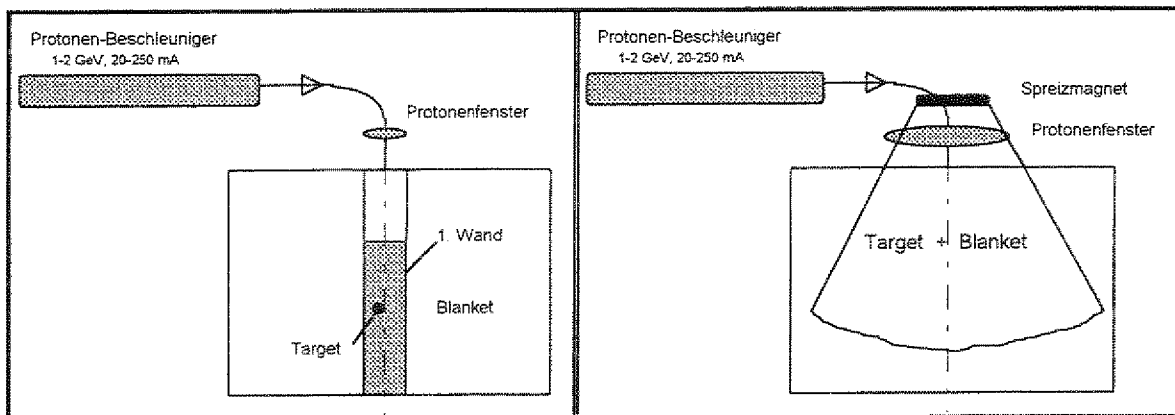


Abb. 3.5: Möglicher Aufbau und Anordnung von Target und Blanket in unterkritischen Anlagen
a: heterogener Aufbau mit Trennung von Target und Blanket
b: homogener gleichmäßig vom Protonenstrahl erfaßter Bereich ohne Trennwände

Nachteilig an Variante **b** ist, daß die Existenz spezieller Spektralzonen für die Vernichtung bestimmter Spaltprodukte oder Actiniden nur schwer vorstellbar ist, da eben hierfür der Blanketaufbau Heterogenitäten aufweisen muß. Eventuelle Abgrenzungen innerhalb des Blankets würden in diesem Fall direkt vom Protonenstrahl getroffen. Gleichzeitig wird das Protonenfenster wegen der Auffächerung des Protonenstrahls aus Kontrollgründen des Strahls direkt über der unterkritischen Anlage anzuordnen sein. Dort ist es gegen den Druck des Kühlmittels (He, Salzschmelze etc.), gegen die thermische Belastung durch Strahlung von den heißen darunterliegenden Strukturen, gegen die zusätzliche Strahlenbelastung durch rückstreuende Neutronen und auf Gasdichtigkeit auszulegen. Das Protonenfenster in Variante **a** dagegen kann nahezu beliebig entlang des Protonenstrahls verschoben werden. Im Grenzfall bietet sich sogar die Möglichkeit, das Fenster vor der 90°-Umlenkung anzuordnen. Die Lebensdauer und Stabilität dieses Fensters wird nur von den durchtretenden Protonen bestimmt. Weiterhin muß bei entsprechender Targetwahl das Fenster nicht gasdicht ausgelegt werden, da nur die Spallationsprodukte und die Verdampfungsraten des Targetmaterials zu berücksichtigen sind. Für alle unter der Variante **b** zu subsummierenden Konzepte sind dagegen auch die entstehenden Spaltprodukte zu immobilisieren, die aus einer bedeutend größeren freien Oberfläche freigesetzt werden können. Die Untersuchungen in dieser Arbeit beschränken sich daher auf Variante **a**.

Das Blanket kann die Transurane in flüssiger Form oder festen Brennelementen enthalten. Im wesentlichen werden im folgenden flüssige Blankets diskutiert, da hier der kontinuierliche Abzug der Spaltprodukte, und somit die Begrenzung des Reaktivitätshubs und der

Nachwärme möglich scheint. Eine ausführlichere Diskussion der Vor- und Nachteile von flüssigen Brennstoffen erfolgt in Kap. 3.3.4.

3.3.1 Protonenbeschleuniger

Die Idee, Spallationsprozesse für die Transmutation radioaktiver Abfallstoffe zu benutzen, läßt sich bis in die 60er Jahre zurückverfolgen. Die Realisierung eines solchen Konzepts verlangt die Konstruktion kostengünstiger und technisch zuverlässiger Beschleuniger. Dieses wurde in der Vergangenheit immer als Hemmnis gesehen, so daß Beschleuniger geringer Leistungen nur in der Grundlagenforschung Eingang fanden. Eine Übersicht verschiedener bis heute gebauter Beschleuniger gibt *Lengeler* [3.25].

Tab. 3.1: Auswahl von Protonenbeschleunigern mit Betriebserfahrung

Labor Beschleuniger	Energie / MeV	Spitzenstrom / mA	Duty -Faktor	Anwendung
Chalk River RFQ1	~ 1	67	100 %	Test für Th-Brüter
CERN Linac2	50	50-150	$4 \cdot 10^{-4}$	Injektor
LANL	800	~ 10	10 %	Mesonenexperiment

Vergleicht man die Leistungsdaten der Beschleuniger, insbesondere die des einzigen jemals gebauten Hochenergie-Linearbeschleunigers (LINAC), mit den in Abb. 3.5 für den Beschleuniger aus dem Vergleich internationaler Konzepte herausgeschriebenen Energie- und Spitzenstromdaten (1-2 GeV, 20-250 mA), so lassen allein diese Zahlen den enormen Entwicklungsbedarf erahnen. Dieses gilt umso mehr, da es sich um Durchschnittsströme kontinuierlich arbeitender (CW) und nicht gepulster Beschleuniger handelt. Der sogenannte Duty-Faktor beträgt 100 %. Aufgrund der erheblichen Fortschritte in der Beschleunigertechnik sind jedoch eine Vielzahl von Konzeptstudien bekannt, die den Anforderungen einer Transmutationsanlage nahe kommen. Als Beispiel seien etwa die Arbeiten zu einer Spallationsneutronenquelle im Forschungszentrum Jülich genannt, die von einem Protonenbeschleuniger von 1100 MeV bei 100 mA Spitzenstrom und einem Duty Faktor von 5 % ausgingen [3.20]. Ein Extrem aus jüngster Zeit stellen Arbeiten in Los Alamos zu einem Beschleuniger für die Tritiumproduktion dar, der Protonen bei einer Stromstärke von 250 mA (CW) auf Energien von 1600 MeV beschleunigen soll [3.26].

Nach [3.25] verlangt die Konstruktion von LINAC's für die Transmutation neben deutlich höheren Anforderungen an Injektion, Beschleunigung, Strahlenoptik und Sicherheit insbesondere Beschleuniger mit einer hohen **Energienutzung** und geringen **Strahlverlusten**. Die Strahlverluste entscheiden über den Grad der Aktivierung der die Beschleunigerröhre umgebenden Strukturmaterialien und somit über deren Zugänglichkeit für Wartungsarbeiten. Eine Extrapolation auf Stromstärken von 250 mA führt nach *Lengeler* auf die Forderung von relativen Strahlverlusten unterhalb von 10^{-6} , was die vom LANL bekannten Werte um zwei Größenordnungen unterbieten würde.

Die möglichst gute Energienutzung ist in zweifacher Hinsicht von Bedeutung. Zum einen gilt es, die entstehende Abwärme zu minimieren und die Strukturen sicher zu kühlen. Zum

anderen verlangt die Forderung, Transmutation als andere Form der Energieerzeugung durchzuführen begreifen, hohe Konversionsfaktoren für die Umwandlung elektrischer Leistung in Strahlleistung (siehe hierzu Gl. 3.10). Dieses scheint insbesondere durch die Verwendung supraleitender Kavitäten möglich zu werden. So gilt für den Konversionsfaktor (Wirkungsgrad) normalleitender Kavitäten:

$$\eta_C = \eta_{RF} \cdot \frac{I \cdot U_B}{I \cdot U_B + U_B^2 / R_{sh}} \quad (\text{Gl. 3.12})$$

und für supraleitende Kavitäten:

$$\eta_C = \frac{I \cdot U_B}{\frac{I \cdot U_B}{\eta_{RF}} + \frac{U_B^2}{\eta_{Cryo} R_{sh} + P_{St}}} \quad (\text{Gl. 3.13})$$

I	durchschnittliche Stromstärke
U_B	Beschleunigungsspannung in der Kavität (normalleitend gewählt zu: 1,5 MV/m, supraleitend: 5 MV/m)
R_{Sh}	Shuntimpedanz (supraleitend: $52 \cdot 10^{10} \Omega$, normalleitend: $52 \cdot 10^6 \Omega$)
P_{St}	Statische Verluste des Kryostaten (geschätzt ≤ 10 W/m)
η_{Cryo}	geschätzt 1/300
η_{RF}	Effizienz der Umwandlung in Hochenergieleistung (geschätzt 60 %)

Mit den unter Verwendung der obigen Formeln in [3.25] angegebenen ersten Erfahrungswerten für normalleitende und supraleitende Kavitäten errechnen sich für einen Strom von 3 mA Konversionsfaktoren von 5,7 % bzw. 35 %. Wählt man die für die Mehrheit der internationalen Vorschläge ausreichende und auch innerhalb des Forschungszentrums Jülich als in Linearbeschleunigern für erreichbar gehaltene Stromstärke von 40 mA [3.27], so ergeben sich für supraleitende Kavitäten Wirkungsgrade von etwa 57 %. Weitere Wirkungsgradsteigerungen sind durch Erhöhung der Stromstärke und Reduktion der Spannung pro Kavität möglich, was allerdings zu größeren Baulängen des Beschleunigers führen würde. Unter Einrechnung der im Niederenergiebereich (< 50 MeV) bedeutend kleineren Wirkungsgrade scheint also für supraleitende Beschleuniger im Rahmen erster Abschätzungen bei Stromstärken ab ca. 30 mA die Annahme eines Konversionsfaktors von 50 % gerechtfertigt zu sein.

Im Forschungszentrum Jülich wurde mit Hinblick auf die Transmutation ein supraleitender Protonenbeschleuniger mit einer Gesamtleistung von 40 MW bei 1500 MeV konzeptionell ausgelegt [3.28]. Dieser kontinuierlich arbeitende Beschleuniger (CW) zeichnet sich durch einen Gesamtwirkungsgrad von 47 % aus. Durch den hohen Beschleunigungsgradienten von 9 MV/m baut der Beschleuniger mit einer Gesamtlänge von 330 m relativ kompakt. Die Investitionskosten werden zu $300 \cdot 10^6$ DM angegeben, was bedeutet, daß der Beschleuniger sicherlich nicht die Kosten der Gesamtanlage von mehreren 10^9 DM dominieren wird.

Neben Linearbeschleunigern denkt man auch mit Hinblick auf die für kerntechnische Anlagen wichtige Reduktion der Baulänge an den Einsatz von Zyklotronen für die Transmuta-

tion [3.22]. Referenzanlage hierfür ist das Zyklotron des Paul Scherrer Instituts das bei Stromstärken von 1-2 mA (CW) Protonen auf 590 MeV beschleunigt. Man ist jedoch bei der Wahl der Stromstärke bedeutend eingeschränkter als beim LINAC, obwohl man schon 1981 bei einer Neukonzeption des PSI-Beschleunigers Stromstärken von 5-10 mA für möglich hielt [3.20].

3.3.2 Spallationstarget

Je nach dem vorliegenden Aggregatzustand kann man zwischen Feststoff- und Flüssigtargt unterscheiden. Wegen möglichst großer Neutronenproduktionsraten Y pro einfallendem Proton werden allgemein schwere Elemente bevorzugt. Es gilt folgender im Protonenenergiebereich zwischen 0,2 und 1,5 GeV empirisch ermittelter linearer Zusammenhang :

$$Y = 0,1 \cdot (A + 20) \cdot (U_B - 0,120). \quad (\text{Gl. 3.14})$$

Y Neutronenanzahl je Proton
 A Massenzahl des Targetmaterials
 U_B Energie des Beschleunigers [U] = GeV

Die oben angegebenen Konstanten sind geometrieabhängig und beziehen sich auf ein Target aus nicht spaltbaren Materialien von 10 cm Durchmesser und 60 cm Länge [3.20]. Bei den für eine Vielzahl von internationalen Vorschlägen typischen 1600 MeV läßt sich damit für ein Bleitarget ein Neutronenyield von 34 n/p errechnen. Für praktische Rechnungen kommt jedoch ein Hochenergiecode, wie beispielsweise HETC (siehe Anhang), mit bedeutend größerer Genauigkeit zum Einsatz.

Blei wird aufgrund seines niedrigen Schmelzpunktes von 327 °C im allgemeinen in **flüssiger** Form vorliegen. Durch Zusätze von Mg oder Bi, die Eutektika mit Schmelzpunkten von 250 °C respektive 125 °C bilden, lassen sich der Schmelzpunkt und somit die Anforderungen an eine Zusatzheizung verringern. Insbesondere aber die Zulegierung von Bi kann zu Nachteilen in Form von erhöhten Korrosionsraten bzw. der Produktion nicht erwünschter Aufbau nuklide wie Po-210 und Bi-210m führen. Prominentester Vertreter der **Feststofftargetmaterialien** ist Wolfram, das sich durch einen extrem hohen Schmelzpunkt von ca. 3300 °C auszeichnet. Der aktuelle Stand der Diskussionen zum Vergleich von Feststofftarget oder Flüssigtargt und der notwendigen Materialwahl ist in [3.29] und [3.30] wiedergegeben.

An dieser Stelle sollen nur zwei grundsätzliche Unterschiede herausgegriffen werden. Bei einem Flüssigtargt läßt sich die entstehende Spallationswärme, größenordnungsmäßig etwa 50 % der Strahlleistung, direkt durch ein Umpumpen und die Kühlung in einem externen Wärmetauscher abführen. Diese Wärme muß bei einem Feststofftarget durch ein sekundäres Kühlmittel abgeführt werden. Dieses beeinträchtigt zum einen die Neutronenproduktion, aber zum anderen werden auch maßgenau eingepaßte Konstruktionswerkstoffe hohen Protonen- und Neutronenflüssen ausgesetzt, was zu hohen Materialschädigungsraten führen kann. Die im Target erzeugten Spallationsneutronen verfügen über ein hartes Spektrum, das sich vom Spaltspektrum nur durch eine Verlagerung des Schwerpunktes zu etwas höheren

Energien und eine geringe Zahl von Neutronen mit Energien bis zur Energie des einfallenden Protons unterscheidet. Verbunden mit dem zusätzlich bei fast allen Konzepten zu erwartenden radialen Abfall der Neutronenflüsse über die gesamte Anordnung, werden insbesondere in einem Feststofftarget mit der Vielzahl von notwendigen Strömungskanälen deutlich geringere Standzeiten als im Blanket der Anlage zu erwarten sein. Der zweite wesentliche Unterschied bezieht sich auf die vertikale Verteilung der Neutronenproduktionsrate. Diese gehorcht im wesentlichen vom Eintritt her gesehen einer Exponentialfunktion, und sie ist in einem Flüssigmetalltarget nur über die Beschleunigungsspannung der einfallenden Protonen beeinflussbar. Höhere Energien führen zu größeren Reichweiten im beschossenen Material. In einem Feststofftarget dagegen, das aus wärmetechnischen und neutronischen Gründen aus parallelen Scheiben veränderlicher Dicke aufgebaut sein kann (siehe auch Kap. 4), läßt sich die Neutronenproduktion axial vergleichmäßigen. Eine Vielzahl der international vorgeschlagenen Transmutationskonzepte arbeiten auf der Basis eines flüssigen Bleitargets. Dieses wurde auch von einer Arbeitsgruppe der KFA-Jülich favorisiert und in [3.29] näher ausgelegt.

Es sollen an dieser Stelle noch einige Bemerkungen zur Optimierung der Beschleunigerenergie bzw. Stromstärke gemacht werden. Zunächst einmal läßt sich aus Gl. 3.14 feststellen, daß bei gegebener Strahlleistung die Neutronenproduktion in einem weiten Energiebereich konstant bleiben wird. Neuere Messungen zeigen allerdings, daß ab etwa 2 GeV die Kurve einen zunehmend degressiven Verlauf annimmt, so daß dieser Wert nicht zu überschreiten wäre. Der Vorteil hoher Beschleunigungsspannungen liegt vielmehr in der tendenziell geringeren deponierten spezifischen Wärmeleistung. Für technische Auslegungen macht sich ebenfalls die Tatsache positiv bemerkbar, daß die Reichweite der Protonen mit der Protonenenergie ansteigt. Sie beträgt in einem Bleitarget bei Protonen mit einer Energie von 1000 MeV etwa 50 cm, bei 1600 MeV dagegen über 100 cm [3.20]. Somit wird bei hohen Beschleunigungsspannungen und angepaßter Stromstärke zur konstanten Neutronenproduktion die im Target deponierte Wärmedichte geringer ausfallen. Weitere Vorteile ergeben sich für die Konstruktion des Protonenfensters, da die Materialschädigung von Strukturen feststehender Dicke bei Halbierung des Stroms und Verdopplung der Spannung tendenziell sinkt. Eine Optimierung wird deshalb all die hier für Target und Fenster aufgezählten Aspekte mit den für die Konstruktion von Beschleunigern geltenden Gesetzmäßigkeiten vergleichen müssen. So wird man aus Gründen der Maximierung des Wirkungsgrades, insbesondere bei normalleitenden Beschleunigern und eingeschränkter Beschleunigerlänge, eher zu hohen Stromstärken und geringen Spannungen neigen (siehe Kap. 3.3.1).

3.3.3 Protonenfenster

Die Auslegung eines Protonenfensters ist eng mit der Wahl des Spallationstargets verknüpft, da das Protonenfenster die Barriere zum Vakuum des Beschleunigers bildet. Der Gasdruck sollte möglichst gering sein, um Streuungen der Protonen und somit sekundäre Aktivierungen der Beschleunigerstrukturen zu minimieren.

Bei Verwendung von Blei als Flüssigmetalltarget stellt sich aufgrund des niedrigen Dampfdrucks und den entsprechend niedrigen Verdampfungsraten die Frage, ob ein Protonen-

fenster überhaupt notwendig für die Funktionalität der Anlage ist. Da am *CERN* hervorragende Erfolge, in Form von hohen Druckgradienten, mit der Methode des *differentiellen Pumpens* erzielt wurden, stellt ein Protonenfenster "nur" eine wichtige zusätzliche Sicherheitsbarriere dar, die das Vakuum des Beschleunigers bewahrt [3.31].

Von daher muß ein Protonenfenster über einem Bleitarget auch nicht absolut gasdicht sein, sondern nur den freien Querschnitt möglichst weitgehend verkleinern. *Jansen* diskutiert dementsprechend in seiner Arbeit ein sich drehendes Fenster, das aus einer Vielzahl von HIPSIC-Rotorblättern besteht. Die Drehachse ist so gewählt, daß jeweils nur 1 Rotorblatt vom Protonenstrahl getroffen wird. Außerhalb des Strahls können sich die einzelnen Rotorblätter durch Strahlungskühlung wieder abkühlen. Die für Hochtemperaturanwendungen geeignete Keramik hat eine Dicke von 2 mm und wird kurzzeitig mit einer Leistung von $36,7 \text{ kW}_{\text{th}}$ ($\approx 0,1 \%$ der Strahlleistung eines Protonenstrahl von 1,6 GeV und 25 mA) beaufschlagt. Dabei heizt es sich auf $630 \text{ }^\circ\text{C}$ auf. Die rechnerisch ermittelte Lebensdauer soll unter Einrechnung der Strahlenschädigung etwa 1 Jahr betragen. Eine andere vorgeschlagene Lösung sieht ein feststehendes strahlungsgeköhltes, gasdichtes Folien-Fenster aus einem CVD-Diamanten vor. Das Fenster hat eine Dicke von $50 \text{ }\mu\text{m}$ und heizt sich aufgrund einer deponierten Leistung von $0,9 \text{ kW}_{\text{th}}$ auf ca. $800 \text{ }^\circ\text{C}$ auf. Alle oben beschriebenen Auslegungen beziehen sich auf einen Protonenstrahl von 1600 MeV und 25 mA (Gauss-Verteilung des Strahls mit $\sigma = 3 \text{ cm}$) und sind in [3.29] detailliert dargestellt.

Gegenüber flüssigkeitsgekühlten Protonenfenstern, die erst ein Feststofftarget möglich machen, haben die oben vorgestellten Versionen einen entscheidenden sicherheitstechnischen Vorteil, der darin besteht, daß ein schlagartiges Versagen des Fensters nicht zur Verteilung des Kühlmittels bzw. kontaminierter Targetdämpfe im Beschleunigervakuum führt. Eine kurze Abschätzung soll einen Eindruck von der Größe der bei flüssigen Bleimetall-Targets zu beherrschenden Massenströme geben. Der in das Beschleunigervakuum diffundierende Massenstrom wird im Normalbetrieb von der Verdampfungsrate des Bleis dominiert und läßt sich nach [3.32] zu

$$E = 0,585 \cdot p \cdot \sqrt{\frac{M}{T}} \quad (\text{Gl. 3.15})$$

E Verdampfungsrate, $[E] = \text{kg/m}^2/\text{s}$

T Temperatur, $[T] = \text{K}$

p Dampfdruck, $[p] = \text{torr}$

M Molekulargewicht $[M] = \text{kg/kmol}$

berechnen. Für ein von Los Alamos vorgeschlagenes Flüssigmetall-Target ($\varnothing 500 \text{ mm}$) errechnet sich für Blei bei 900 K und einer vereinfacht als kreisförmig angesetzten Oberfläche ein Massenstrom von 200 g/h , der von den Vakuumpumpen abgesaugt werden muß. Eine zugehörige HETC-Rechnung bei einer Protonenenergie von 900 MeV führt demgegenüber bei einem Strom von 100 mA auf eine im Target produzierte He-Menge von $0,04 \text{ g/h}$. Der Anteil an Tritium, Deuterium und He-3 ist nochmals um Größenordnungen kleiner.

3.3.4 Blanketgestaltung flüssiger Systeme

Die konstruktive Gestaltung des Blankets einer unterkritischen Anlage ist sicherlich besonders wichtig, da hier die zu transmutierenden Actiniden und gegebenenfalls Spaltprodukte eingebracht werden. Im Blanket wird die Leistung freigesetzt, die wiedergewonnen werden muß, sofern die Transmutation Nettoenergie bereitstellen soll. Genauso wie beim Target erhebt sich die Frage, ob der Brennstoff (Transurane) in fester oder flüssiger Form eingebracht werden soll.

Reaktoren mit flüssigen Brennstoffen sind heute nicht mehr in Betrieb, obwohl sie in den Anfängen der Reaktortechnik stark diskutiert und experimentell erforscht wurden. Einen Einblick in die Möglichkeiten bei der Konstruktion des Cores gibt Abb. 3.6.

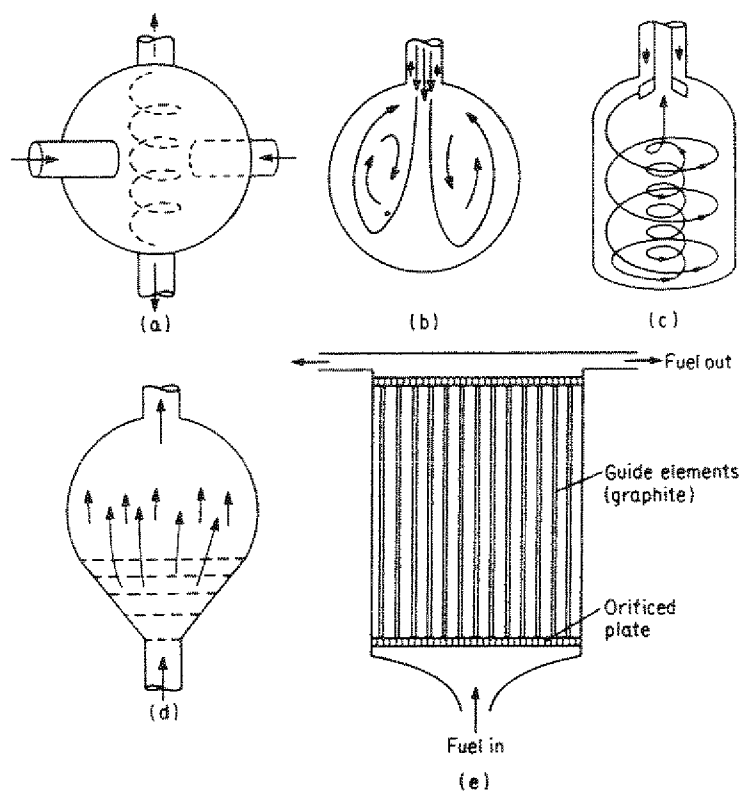


Abb. 3.6: Strömungsformen kerntechnischer Anlagen mit flüssigen Brennstoffen in Abhängigkeit vom Coredesign [3.34] a, b und c verschiedene Wirbelformen, d und e direkte Durchströmung des Cores

Während die Möglichkeiten a bis c verschiedene Wirbelformen, die durch eine Variation der Anströmung entstehen, zeigen, erfolgt in den Varianten d und e eine vertikale Durchströmung des Cores. Die mit den Indices a bis c bezeichneten Wirbelformen begünstigen disperse Systeme. Die Anzahl der möglichen Materialkombinationen in thermischen Systemen wird bei den Varianten a bis d dadurch eingeschränkt, daß das Trägerfluid gleichzeitig Moderator sein muß. Alternative e dagegen erlaubt bei Verwendung eines festen Moderators (beispielsweise Graphit) eine weitaus größere Zahl von Trägerfluiden für die Actiniden.

Die Vorteile flüssiger Systeme lassen sich wie folgt in Anlehnung an [3.33] diskutieren:

- Wegen der homogenen Natur des Brennstoffs existieren im allgemeinen keine Barrieren für die Wärmeübertragung. Daraus läßt sich ableiten, daß dieser Typ von Reaktor **hohe Leistungsdichten** und hohe thermische Wirkungsgrade ermöglicht.
- Flüssige Reaktoren verfügen im allgemeinen über eine **bessere Neutronenökonomie**, da in einem größeren Maße auf Strukturmaterialien verzichtet werden kann. Ebenfalls ist der Abbrand nicht durch den Aufbau von gasförmigen Spaltprodukten begrenzt. Prinzipiell besteht die Möglichkeit, Gifte kontinuierlich zu entfernen. Gerade dieser Punkt scheint mit Hinblick auf den höheren Neutronenverbrauch D in thermischen Systemen (siehe auch Kap. 3.2.3) besonders wichtig zu sein.
- Weitreichende Konsequenzen ergeben sich auch für das Sicherheitsverhalten, da eine **Überschußreaktivität** zur Kompensation des Abbrands nicht benötigt wird, wodurch sich das Potential für Kritikalitätsstörfälle stark reduziert.
- Weiterhin läßt sich der Brennstoff **kontinuierlich** entfernen und hinzuzufügen. Hierzu muß der Reaktor nicht abgeschaltet werden.
- Die **Regelung** der nuklearen Leistung kann in flüssigen Systemen oft auf Kontrollstäbe verzichten, da die Volumenausdehnung der Flüssigkeit zu einem stark negativen Temperaturkoeffizienten führt.

Alle diese Vorteile sind nicht allgemeingültig, sondern müssen an möglichst detaillierten Betrachtungen für die verschiedenen möglichen Trägermaterialien der Actiniden nachgewiesen, quantifiziert und relativiert werden. Dieses soll in den folgenden Abschnitten geschehen. Generell lassen sich aber auch genauso verallgemeinernd Nachteile, beziehungsweise zusätzliche Problemfelder von Anlagen mit flüssigem Brennstoff identifizieren:

- Ein flüssiger Brennstoff kann nur als Lösung oder Suspension existieren. Beide Möglichkeiten weisen auf zusätzliche **Korrosions- bzw. Erosionsprobleme** hin, da die Lösung sich oft nur in sauren Umgebungen (Wasser) aufrechterhalten läßt und grobkörnige Partikeln in Verbindung mit hohen Strömungsgeschwindigkeiten zu direktem Materialabtrag bzw. zum Aufbrechen von Schutzschichten führen.
- Da Korrosionsprobleme sich meist bei hohen Neutronenflüssen verstärken, wird hierin wiederum ein die Leistungsdichte begrenzender Faktor zu finden sein.
- Die überwiegende Mehrheit der untersuchten flüssigen Systeme sieht eine externe Kühlung des flüssigen Brennstoffs außerhalb des Cores vor. Diese Kühlungsform beeinträchtigt die Neutronenökonomie, da ein Großteil der verzögerten Neutronen außerhalb freigesetzt wird. Weiterhin vergrößert sich das zu handhabende Inventar. Die Auslegung einer Abschirmung wird zunehmend schwieriger, und alle Strukturmaterialien im gesamten Primärkreislauf werden stark **aktiviert**.
- Das Sicherheitsverhalten flüssiger Reaktoren ist nach anderen Gesichtspunkten zu beurteilen als dasjenige von Reaktoren mit festen Brennelementen. Grund hierfür ist neben dem Verlust (bzw. in bestimmten Störfällen Gewinn) an verzögerten Neutronen, die direktere Beeinflussung der Reaktordynamik durch andere Komponenten im Primär-

kreislauf. Die leichtere kontinuierliche Befüllung während des Reaktorbetriebs bietet ein größeres Potential für Fehlchargen (Reaktivitätsstörfälle).

- Bei flüssigen homogen verteilten Brennstoffen steigt der Anteil **gasförmiger Radiolyseprodukte** aus dem Trägermedium. Dieses ist beispielsweise vom Wasser bekannt, das sich wegen der frei beweglichen Kernbruchstücke radiolytisch zersetzt. Somit resultiert ein Potential für Wasserstoffexplosionen.

Vor der Beantwortung all dieser oben kurz gestreiften Probleme steht jedoch die Frage nach der chemischen Stabilität der Lösung bzw. Suspension und deren grundsätzlicher Eignung für den Einsatz in einer kerntechnischen Anlage. Das Trägermaterial der Actiniden bzw. Spaltprodukte sollte neutronisch weitgehend durchlässig sein und einer möglichst geringen Strahlenschädigung unterliegen. Weiterhin sollte die Verteilung der Actiniden im Trägermaterial auch unter Störfallbedingungen möglichst homogen bleiben, um lokale Leistungsspitzen zu vermeiden. Einen Überblick verschiedener flüssiger und gasförmiger Kernbrennstoffe vermittelt [3.35].

Grundsätzlich werden die Eigenschaften der flüssigen Brennstoffe von den Eigenschaften der Reinformen beeinflusst. Tab. 3.2 gibt einen Überblick.

Tab. 3.2: Eigenschaften verschiedener Actiniden [3.36]

	Th	Pa	U	Np	Pu	Am	Cm
Relative Atommasse	232,0381	231,0359	238,0289	237,0482	244	243	247
Dichte / (g/cm ³)	11,724	15,7	18,97	20,48	19,737	13,671	13,51
Schmelzpunkt / °C	1755	1568	1132	639	639,5	1173	1350
Siedepunkt / °C	4800	4200	3900	3900	3200	2600	-
Normalpotential (ln-HClO ₄) M/M ³⁺ (V)	keine Angaben	keine Angaben	-1,789	-1,856	-2,031	-2,320	-2,31

Das betragsmäßig hohe negative Normalpotential der Actiniden, welches von der Größenordnung her dem Magnesium entspricht, bedeutet, daß die höheren Actiniden sehr reaktiv sind. So brennt Pu bei einem Gehalt von 5 % O₂ selbsttätig, und es reagiert, wenn auch langsam, mit Wasser schon bei Zimmertemperatur. Thorium wird von siedendem Wasser in größeren Stücken herausgelöst. Aus dieser kurzen Übersicht folgt, daß die Actiniden keinesfalls in reiner Form in dem Trägerfluid verteilt werden können. Deshalb ist die Kenntnis möglicher Verbindungen äußerst wichtig. Diese sind wegen des komplexen Aufbaus der Elektronenschalen äußerst vielfältig. So sind für die Actiniden Wertigkeiten von 2 bis 8 möglich, wobei die beständigste Wertigkeit beim Th 4, beim Pa 5, beim U 6, beim Np 5, beim Pu 4 und beim Am und Cm 3 ist. Zusätzlich kompliziert werden die chemischen Verhältnisse durch den hohen Anteil ionisierender Teilchen und die hieraus resultierende Radiolyse.

Die Verteilung der Actiniden in der Trägersubstanz kann als Lösung, Dispersion bzw. Suspension erfolgen. Nach [3.37] kann man die folgende Unterteilung vornehmen:

- **Wirkliche Lösungen** bestehen aus gelösten Partikeln mit Durchmessern von ca. 0.1 nm was in der Größenordnung der freien Moleküle ist. Es resultiert eine physikalisch homogene Flüssigkeit.
- **Kolloide Lösungen** (Schwebstoffe) sind Partikeln mit Durchmessern zwischen 10 und 100 nm. Kolloide Lösungen in Wasser sind klar und nur bezüglich einiger Eigenschaften inhomogen (Tyndall Effekt). Die Teilchen laufen im allgemeinen durch einen Papierfilter aber nicht durch eine Membran.
- **Dispersionen** bilden sich mit weiter zunehmenden Teilchendurchmesser. Es sind mindestens zwei Phasen vorhanden und es erfolgt eine meßbare Absetzbewegung im Schwerfeld (Sedimentation). Das disperse System wird im allgemeinen als **Suspension** bezeichnet, wenn feste und flüssige Phase parallel existieren.

Da die wirkliche Lösung im Molekularbereich stattfindet, sind hier die zwischenmolekularen Kräfte des Lösungsmittels durch solche des aufzulösenden Stoffes zu ersetzen. Aus dieser Überlegung leitet sich die Merkregel ab, daß sich gutes Lösungsverhalten bei ähnlichen Substanzen aufgrund ähnlicher zwischenmolekularer Kräfte einstellt. Aufgrund der Begrenzung der Löslichkeit läßt sich bei höheren Konzentrationen die Bildung von Suspensionen nicht vermeiden. Diese Mischphasen sind reaktiv, da sie genauso wie das Reinmetall als pyrophor gelten. Daneben existieren aber auch nichtreaktive Suspensionen, beispielsweise aus ionischen Verbindungen der Actiniden mit Sauerstoff.

Entscheidend für das Verhalten einer Suspension ist deren **Sedimentationsneigung**. Dieses gilt insbesondere, wenn man Störfallabläufe unterstellt, die aus einem Komplett- oder Teilausfall der Umwälzpumpen resultieren. Die Sedimentationsgeschwindigkeit läßt sich für laminare Strömungsverhältnisse vereinfacht wie folgt ausdrücken:

$$v = (\rho_p - \rho_f) \cdot \frac{g \cdot D^2}{18 \cdot \eta_f} \quad (\text{Gl. 3.16})$$

v	stationäre Sinkgeschwindigkeit
ρ_p	Dichte der Partikeln
ρ_f	Dichte des Trägerfluids
D	Durchmesser der Partikeln
η_f	dynamische Viskosität des Fluids
g	Erdbeschleunigung (9,81 m/s ²)

Somit sind Kombinationen von Trägerfluid und Actinidenverbindung mit ähnlichen Dichten und Trägerfluide mit hohen Viskositäten vorzuziehen. In einem horizontalen Rohr ist die Sedimentation stark von dem sich ausbildenden Geschwindigkeitsprofil abhängig. Laminare Profile führen wegen der fehlenden vertikalen Geschwindigkeitskomponenten zu ähnlichen Sinkgeschwindigkeiten wie in einer stehenden Flüssigkeitssäule. Aber auch bei turbulenten Strömungen kann in horizontalen Rohren eine Verringerung des Rohrdurchmessers durch fortgesetzte Sedimentationen beobachtet werden. Dieses begründet sich darin, daß die vertikalen Geschwindigkeitskomponenten in unmittelbarer Nähe der Wand stark abnehmen, so daß sich hier Ablagerungen bilden, die zunehmend in das Rohr hineinwachsen können. In [3.39] wird ausgeführt, daß sich die Dicke dieser Übergangszone mit zunehmender Ge-

schwindigkeit des Hauptstroms reduziert und mit der kinematischen Viskosität des Trägerfluids steigt. Es ist zu erwarten, daß aufgrund dieses Zusammenhangs kleine Partikel eine höhere Tendenz haben, Verstopfungen hervorzurufen als grobkörnigere.

Die **Viskosität** ist in Newton'schen Fluiden eine Konstante, die die Proportionalität zwischen dem Gradienten der Fluidgeschwindigkeit und der resultierenden Schubspannung im Fluid beschreibt (Flüssigkeitsreibung). Für stark verdünnte Suspensionen und kugelförmige Partikeln gilt die Einsteinsche Beziehung in der Form

$$\eta_D = \eta_F \cdot (1 + 2,5 \cdot \varphi), \quad (\text{Gl. 3.17})$$

die die Abweichung der Viskosität des dispersen Systems η_D von der des reinen Fluids η_F in Abhängigkeit von dem Volumenanteil der Partikeln φ zum Ausdruck bringt. Diese Gleichung ist jedoch beschränkt in ihrer Gültigkeit, da für andere Partikelformen und höhere Konzentrationen eine Vielzahl von anderen Beziehungen in Gebrauch ist. Weiterhin beobachtet man mit steigenden Partikelkonzentrationen einen Übergang vom Newton'schen Verhalten zu plastischem oder pseudoplastischem Verhalten. Es läßt sich jedoch kein allgemeingültiger Umschlagspunkt angeben. Suspensionen kugelförmiger Partikeln können bis zu einem Volumenanteil von 20-30 % Newton'sches Verhalten zeigen, während bei Tonpartikeln in Wasser schon ab 2 % plastisches Verhalten beobachtet wird. In plastischen Fluiden ist die Viskosität keine Konstante mehr, sondern von Fluidgeschwindigkeit bzw. Schubspannung abhängig [3.38].

Neben der Viskosität werden sich mit zunehmendem Volumenanteil der Partikeln auch alle anderen Stoffeigenschaften ändern. Herausgegriffen sei an dieser Stelle noch die Abhängigkeit des **Druckverlusts** von der Geschwindigkeit. Grundsätzlich verfügen Suspensionen über höhere Druckverluste als das reine Trägerfluid. Mit sinkender Geschwindigkeit wird die Suspension zunehmend asymmetrisch, und es kommt zu Sedimentationen. Dieses führt dazu, daß der Druckverlust der Suspension nicht in dem Maße mit der Geschwindigkeit sinkt wie der des reinen Fluids. Stattdessen zeigt sich bei geringen Strömungsgeschwindigkeiten ein ausgeprägtes Minimum. Sinkt die Geschwindigkeit noch weiter, so resultieren bei einem deutlichen Anstieg der Druckverluste Verstopfungen.

Von wesentlicher Bedeutung werden weiterhin Anziehungs- (van-der-Waalsschen Kräfte) und Abstoßungskräfte (z. B. elektrostatische Kräfte) zwischen den einzelnen Teilchen sein, die die **Agglomerationsneigung** der Partikeln bestimmen. Die van-der-Waalsschen Kräfte steigen mit der Verkleinerung der Partikeln entsprechend der größeren Gesamtoberfläche. Die Beantwortung der Frage, inwieweit es gelingt eine chemisch stabile Lösung zu erzeugen und die Actiniden homogen verteilt zu halten, ist essentiell für den stabilen Betrieb eines Suspensionsreaktors.

3.3.4.1 Leichtes und schweres Wasser

Die ersten Reaktoren mit flüssigem Brennstoff, im allgemeinen fand Uran Verwendung, arbeiteten auf der Basis von leichtem und schwerem Wasser. Hauptsächlich wurden Lösungen von Urancarbonaten, Chromaten, Phosphaten, Fluoriden, Nitraten und Sulfaten unter-

sucht. In [3.39] werden die Sulfate als erfolgversprechendste Verbindung ausgewiesen wegen besserer thermischer Stabilität, Strahlungsbeständigkeit, geringeren Absorptionsquerschnitten und nicht zuletzt wegen der geringeren Korrosivität. Das Uran-Kation liegt dabei in der Form UO_2^{++} (6-wertiges Uran) vor. Das Phasendiagramm des Systems $\text{UO}_2\text{SO}_4\text{-H}_2\text{O}$ ist in Abb. 3.7 wiedergegeben.

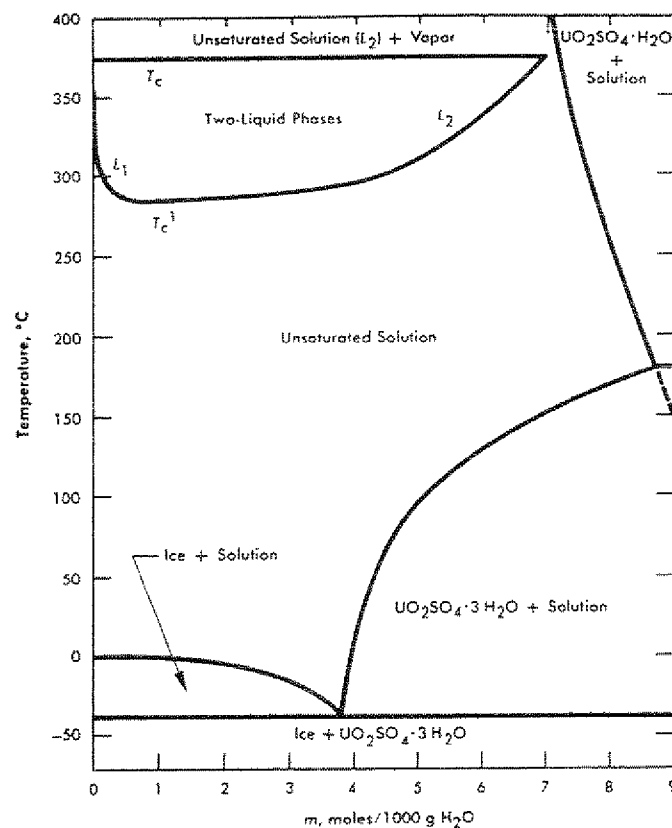


Abb. 3.7: Phasendiagramm des Systems $\text{UO}_2\text{SO}_4\text{-H}_2\text{O}$ für kritische Drücke [3.39]

Es zeigt sich, daß die stöchiometrische Lösung nur bis zu Temperaturen von etwa 280 °C stabil ist. Bei höheren Temperaturen führt die Hydrolyse des UO_2 -Kations zum Auftreten einer Mischungslücke und einer zweiten flüssigen Phase mit höheren Uran-Konzentrationen. Die Löslichkeitsgrenze in schwerem Wasser liegt etwa 10 K niedriger. Eine Möglichkeit, höhere Temperaturen zu erreichen, besteht in der Erhöhung des Säureanteils mit entsprechenden negativen Folgen für die Standzeit der umgebenden Konstruktionsmaterialien.

Am ORNL war der Versuchsreaktor HRE-2 mit einer Sulfatlösung in schwerem Wasser bei Austrittstemperaturen von bis zu 300 °C bei einem Druck von 138 bar von Dezember 1957 bis 1961 in Betrieb. Der Reaktor verfügte über eine Leistungsdichte von 17 MW/m³ und es kam das in Abb. 3.6d dargestellte Konstruktionsprinzip zur Anwendung. Der leichtwassermoderierte Vorgänger HRE-1 wurde nach Abb. 3.6a gestaltet. Cu diente zur direkten katalytischen Rekombination der Radiolysegase. Wesentliches Merkmal des HRE-2 war, daß der Reaktor ohne Kontrollstäbe betrieben wurde. Die Reaktivitätskontrolle erfolgte über Änderungen der Brennstoffkonzentration und über den hohen negativen Temperaturkoeffi-

zienten. Versuchsreaktoren mit Phosphatverbindungen und entsprechend hohen Zugaben von Phosphorsäure scheiterten aufgrund von Materialproblemen schon nach einigen Stunden.

Wegen der geringen Löslichkeit von Th wurden der Einsatz ThO_2 -Suspensionen in separaten Brutzonen vorgeschlagen. Dieses machte entsprechende experimentelle Untersuchungen notwendig für Konzentrationen von mehr als 100 g/l H_2O . Weiteres umfangreiches Datenmaterial zu dem Verhalten von Suspensionsreaktoren wurde in Holland gewonnen [3.40]. Die experimentellen Untersuchungen schlossen zwischen 1974 und 1977 den Betrieb eines Versuchsreaktors mit einer Leistung von 1 MW_{th} und einer Leistungsdichte von 50 MW/m³ ein. Bei dem Reaktor handelte es sich im wesentlichen um ein vertikal von unten durchströmtes homogenes Gefäß, das bei Drücken von 60 bar die Suspension auf ca. 260 °C aufheizte. Die verwendete Suspension (22,5 % $^{235}\text{UO}_2$, 75 % ThO_2) wies Partikelgrößen von 5 µm und Konzentrationen bis zu 400 g/l auf. Der kleine Durchmesser der nach dem Sol-Gel Verfahren hergestellten Partikeln führte dazu, daß die Spaltprodukte sich größtenteils im Wasser wiederfanden und somit effektiv vom Brennstoff getrennt werden konnten. Da auf der anderen Seite die Spaltprodukte einen Großteil ihrer kinetischen Energie im Wasser verloren, wurden etwa 0,6 l/MJ elementarer Sauerstoff im Reaktor produziert⁵, der extern rekombiniert werden mußte. Untersuchungen am ITEP in Moskau kommen zu dem Ergebnis, daß zur vollständigen Rekombination der **Radiolysegase** die maximale Leistungsdichte in Schwerwassersuspensionen bei 250 °C 100 MW/m³ und bei 300 °C 260 MW/m³ nicht überschreiten darf. Für Lösungen wird bei 300 °C ein Wert von 130 MW/m³ angegeben [3.41].

Zur Begrenzung der **Erosion** metallischer Kontaktflächen durch die Suspension wurden in dem Versuchsreaktor der KEMA die Strömungsgeschwindigkeiten auf 5 m/s begrenzt. Da handelsübliche Pumpen schon nach 120 h versagten, wurden die Konstruktionen modifiziert. Im Reaktor war schließlich eine Pumpe 5100 h ohne störungsbedingte Ausfälle im Einsatz. Die chemische Stabilität der Suspension bzw. die Vermeidung von Aufflockungen wurde durch die Einstellung eines basischen pH-Wertes zwischen 9 und 12 erreicht. Trotzdem wurden, ähnlich wie bei einigen Lösungsreaktoren, nicht beabsichtigte und nicht eindeutig zu erklärende Schwankungen der Reaktivität beobachtet, die auf das komplizierte chemische Verhalten zurückgeführt werden. Insgesamt werden die Erfahrungen mit dem Testreaktor von den Autoren sehr positiv beurteilt, wobei insbesondere der hohe negative Temperaturkoeffizient angeführt wird [3.40].

Suspensionen von Oxidpartikeln in schwerem Wasser wurden zunächst auch am LANL favorisiert. Eigene neutronische Berechnungen zu diesem Konzept und eine Abschätzung der technischen und sicherheitstechnischen Vor- und Nachteile finden sich in Kapitel 4.

⁵In Uranylsulfatlösungen (HRE-1) wurde eine Wassergasmenge von 4,72 l/MJ ermittelt. In einem typischen Siedewasserreaktor dagegen, wo im allgemeinen keine Maßnahmen zur Rekombination vorgenommen werden, ist etwa mit $2,8 \cdot 10^{-2}$ l/MJ zu rechnen.

3.3.4.2 Salzschnelzen auf Fluorid- und Chloridbasis

Grundlegende Arbeiten zur Entwicklung von Salzschnelzen für den Einsatz in einem Kernreaktor wurde am Oak Ridge National Laboratory (ORNL) geleistet [3.42]. Der Brennstoff besteht in diesem Fall aus einer Kombination von UF_4 bzw. ThF_4 , die in einem Fluoridge-misch auf der Basis von Li-7 und Be gelöst wird. Die genaue Zusammensetzung richtet sich zum einen nach dem Zweck - bei Vorhandensein eines externen Brutkreislaufs fehlt Th in den energiereuerzeugenden Zonen - zum anderen wird man versuchen, einen niedrigen Schnelzpunkt und eine niedrige Viskosität einzustellen. Das LiF-BeF₂ Phasendiagramm hat ein Eutektikum bei 360 °C und 50 Vol-%. Da BeF₂ hochviskos ist, wurden jedoch höhere Li-Konzentrationen (ca 60-70 %) bevorzugt. Gemäß den Schwankungen des Schnelzpunktes variieren die Eintrittstemperaturen in das graphitmoderierte Core, das ähnlich Abb. 3.6e gestaltet wird. Sie erreichen beispielsweise in einem geplanten Brutreaktor-Design Werte von 560 °C. Die Austrittstemperatur wird in verschiedenen Auslegungen zu etwa 700 °C angegeben. Nach Auskopplung der Wärme in einen mit NaBF₄ arbeitenden Zwischenkreislauf sollen Wirkungsgrade von 45 % erreicht werden.

Ein Testreaktor (Molten Salt Reactor Experiment, MSRE) mit einer Leistung von 8 MW_{th} wurde von 1965 bis 1968 am ORNL betrieben. Im Versuchsbetrieb machten sich die positiven Eigenschaften der Fluoridschnelze, wie eine chemische Stabilität bei hohen Neutronenflüssen, das Fehlen von heftigen Reaktionen mit Wasser oder Luft, der niedrige Dampfdruck von weniger als 0,1 mm Hg bei 650 °C und die nur geringe Dimensionsänderung beim Phasenübergang (Entwicklung von speziellen Einfrierventilen) vorteilhaft bemerkbar. Ein kontinuierliche Entfernen von Xe und Kr wurde mit einer Reduktion der Xe-Vergiftung um einen Faktor 6 demonstriert. Die Abtrennung weiterer Spaltprodukte ist jedoch nicht in großem Maßstab erprobt worden, ebensowenig wie das kontinuierliche Entfernen von Pa-233 mit Hilfe von Wismut bei Brutprozessen.

Technische Probleme dieses Reaktors lagen zum einen in der Korrosion metallischer Strukturen, zum anderen in dem notwendigerweise weitgehenden direkten Kontakt der Schnelze mit dem moderierenden Graphit. Aufgrund der hohen Temperaturen ist nur die Nickelbasislegierung Hastelloy N gegenüber der Salzschnelze beständig. Hohe thermische Flüsse führten aber zur Bildung von He-Blasen und zur Versprödung. Zusätzlich wurde in den Nachuntersuchungen interkristalline Korrosion, induziert durch mit der Salzschnelze transportierte Spaltprodukte (insbesondere Te), am Hastelloy N festgestellt. Durch nachfolgende Verbesserungen der Legierung glaubt man jedoch, diese Probleme heute beherrschen zu können [3.43 und 3.44].

Im Graphit sammelten sich, insbesondere in den Graphitporen, Neutronengiften wie Xe an. Durch mannigfaltige Beschichtungen lassen sich die Poren an den Kontaktflächen weitgehend verschließen; ein absoluter Abschluß wird sich jedoch nicht erreichen lassen. Trotz dieser Probleme kann das MSR-Konzept des ORNL für sich beanspruchen, das erfolgversprechendste Konzept eines Reaktors mit flüssigen Brennstoffen zu repräsentieren.

Die positiven Erfahrungen mit diesem Reaktortyp, verbunden mit der Tatsache, daß schon in den 70er Jahren am ORNL der Vorschlag gemacht wurde, Konverter durch die Einbindung von Pu-Fluoriden in die Schnelze zu konzipieren, kann sicherlich als Begründung für

das Interesse des LANL an Salzschnmelzenreaktoren dienen. So präsentierte das LANL jüngst eine Transmutationsanlage, die Pu-Fluoride als Brennstoff und Hastelloy-N als Behältermaterial vorsehen [3.45]. Der untersuchte Pu-Konverter ist in Abb. 3.8 abgebildet.

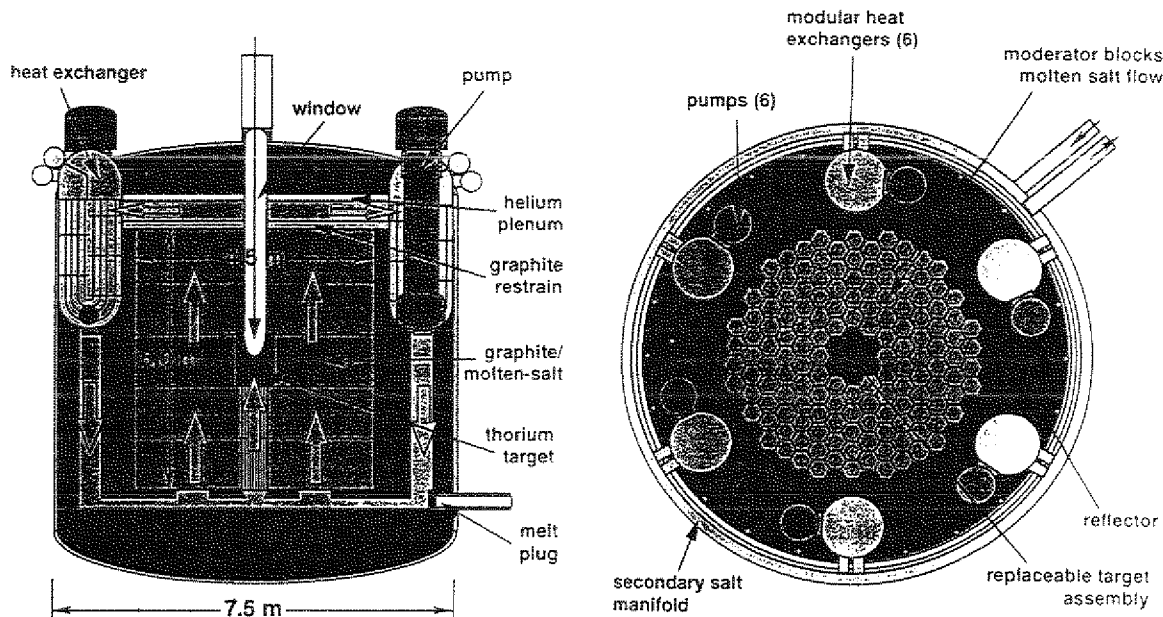


Abb. 3.8: Prinzipskizze der MSR-Anlage des LANL zur Transmutation von Pu [3.45]
links Vertikalschnitt, rechts Draufsicht

Neben dem graphitmoderierten Salzschnmelzencore ist der Primärkreis mit seinen 6 Wärmetauschern und Pumpen abgebildet. Die Wärmetauscher sind miteinander gekoppelt und geben ihre Energie an einen gemeinsamen Sekundärkreislauf ab. Die Leistungsdichte in der Salzschnmelze wird zu 100 MW/m^3 , und die mittlere Leistungsdichte wird zu 6 MW/m^3 angegeben, was sich im Rahmen heute ausgeführter amerikanischer HTR-Konzepte bewegt. Dementsprechend wurden auch die von General Atomic für den amerikanischen MHTGR entwickelten Graphitblöcke verwendet. Für dieses Design ist der Einsatz eines Th-Targets vorgesehen, das ebenfalls durch die Salzschnmelze gekühlt wird. Protonen von 800 MeV erzeugen etwa 19 n/p. Die Gesamtleistung der Anlage wird zu $500 \text{ MW}_{\text{th}}$ angegeben.

Neben den Fluoriden sind auch Salzschnmelzen auf der Basis der Chloride denkbar. Aufgrund der hohen Molmassen, des dementsprechend geringen Moderationsgrades und der gegenüber dem Fluor mehr als 2 Größenordnungen höheren Wirkungsquerschnitte im thermischen Bereich bieten sich Chloride bevorzugt für schnelle Systeme an. Die gewählte chemische Form ist beispielsweise NaCl-PuCl oder PbCl-PuCl . Im allgemeinen hat man mit diesen Systemen relativ wenig experimentelle Erfahrung, wenn man davon absieht, daß die elektrolytische Trennung als Kernstück des vom ANL entwickelten pyrometallurgischen Prozesses in einer Chlorsalzschnmelze stattfindet.

3.3.4.3 Flüssigmetalle

Neben Wasser und Salzschnmelzen kommen Flüssigmetalle als Trägermaterialien von Actiniden im Blanket einer Transmutationsanlage in Betracht. Dieses gilt vor allem wegen der exzellenten Strahlenbeständigkeit. Eine Vorauswahl ergibt sich aus dem Schmelzpunkt des Reinstoffs bzw. dem geeigneter Legierungen. Ein weiteres Kriterium ist ein geringer makroskopischer Querschnitt, der bestimmt, inwieweit sich das Trägermaterial für Neutronen transparent verhält. Tab. 3.3 soll eine erste Übersicht vermitteln.

Tab. 3.3: Vergleich möglicher Trägermaterialien anhand ihrer thermischen (0,0253 eV) Absorptionsquerschnitte

Element	σ_A / barn	M_m	ρ_{Norm} / (g/cm ³)	Σ_A / (1/cm)	T_s / K	$\sigma_{(n,2n)}$ bei 14 MeV / barn
Bi	0,033	209	9,8	$9,3 \cdot 10^{-4}$	544	2,0
Pb	0,17	207	11,3	$5,6 \cdot 10^{-3}$	600	1,5
Mg	0,063	24	1,7	$2,7 \cdot 10^{-3}$	923	0,2
Sn	0,63	119	5,8	$1,8 \cdot 10^{-2}$	505	1,0
Na	0,53	23	0,97	$1,4 \cdot 10^{-2}$	371	0,028
Al	0,23	27	2,7	$1,4 \cdot 10^{-2}$	933	0,00017

Trotz der vereinfachenden Annahmen - die angegebenen Dichten beziehen sich auf den Feststoff - zeichnen sich aufgrund der geringen makroskopischen Absorptionsquerschnitte Vorteile bei Bi und Pb bzw. deren Legierungen in thermischen Systemen ab. Hinzu kommt noch die zusätzliche Neutronenproduktion durch den schnellen Anteil des Spektrums über den Mechanismus einer (n,2n)-Reaktion. Diese erreicht schon ab ca. 10 MeV für Pb und Bi beachtliche Werte. Die Schwellenenergie für die leichten Elemente Na und Al liegt mit 13 MeV bzw. 16 MeV bedeutend höher. Infolgedessen muß sich die Auswahl flüssiger Metalle für thermische Systeme auf die beiden oberen Elemente der Tabelle konzentrieren.

Einen Vergleich der Löslichkeiten von Uran in verschiedenen Flüssigmetallen und deren Legierungen gibt Tab. 3.4. Anhand dieser Übersicht zeigt sich das herausragende Lösungsverhalten von Wismut (Bi) für U. Noch bessere Lösungseigenschaften ergeben sich für Pu. Die Löslichkeit des Pb für Uran dagegen liegt um mehr als eine Größenordnung unterhalb der des Bi. Mit Hinblick auf die TRU sind für Pb keine experimentell abgesicherten Informationen verfügbar.

Wegen der relativ hohen Löslichkeiten und der Strahlenbeständigkeit der Reinforme wurden U-Pu-Bi Reaktoren am Brookhaven National Laboratory (BNL) experimentell untersucht. Genauso wie beim MSR sollten externe Wärmetauscher verwendet werden. Ein Flußdiagramm, das einen der sechs parallelen Kreisläufe darstellt, verdeutlicht den komplexen Aufbau des Gesamtsystems (Abb. 3.9). Abzweigungen zur Kontrolle der Brennstoffzusammensetzung (Aufbereitung) und zu einem Ablaßtank für Notfälle wurden vorgesehen. Bei den hier gegebenen Prozeßparametern sind etwa 72 % des Schwermetallinventars außerhalb des Reaktorcores im Primärkreis. Die Schmelze heizt sich in dem graphitmoderierten Reaktor mit einer Leistung von 480 MW_{th} von 450 °C auf 550 °C auf. Die relativ

geringe Temperaturspreize begründet sich bei der Austrittstemperatur durch die Temperaturabhängigkeit der Korrosion und bzgl. der Eintrittstemperatur durch die notwendigerweise vorzunehmende Begrenzung von Ausfällungen. Wismut ist sehr korrosiv gegenüber metallischen Strukturen. Deshalb wurden Mg und Zr zur Inhibierung der Oberflächen zugesetzt.

Tab. 3.4: Löslichkeit von Uran [at-%] in Flüssigmetallen [3.47]

Metall Legierung	900 °C	850 °C	800 °C	750 °C	700 °C	650 °C	600 °C	550 °C	500 °C
Al	4,2	3,7	3,3	2,8	2,3	1,7			
Al62-Mg38				0,29	0,21	0,17			
Al28-Mg72					0,02	0,016			
Al94,7-Si5,3	1,4	0,9	0,5	0,3	0,2	0,2			
Al61-Ag39	1,5	1,2	1,0	0,8	0,6	0,5	0,4		
Al88-Zn12			3,0	2,8	2,2	1,8	1,4		
Al70-Zn30			3,1	2,7	2,3	1,9	1,3		
Al47-Zn53						1,4	1,1	0,7	
Zn									0,32
Bi	12,3	9,3	7,1	5,3	4,2	3,1	2,2	1,6	0,9
Bi98,9-Al1,1		6,9							
Bi46-Sn54	3,1	2,2	1,2	0,8	0,4	0,2	0,07	0,06	0,04
Sn		0,2		0,03					
Bi78-Na22			2,3	1,6	1,2	1,0	0,9		
Bi68-Na32				1,7	1,2	0,9	0,6	0,4	0,2
Sb	1,5	0,9	0,4	0,3	0,2	0,1			
Pb	0,52				0,05				0,02
In	0,51	0,34	0,22	0,12	0,07	0,05	0,04		
Tl	0,13		0,10						
Ga					< 0,09				

Obwohl die Strahlenbeständigkeit nicht als Problem zu sehen ist, ist der Aufbau von Aktivierungsprodukten sorgfältig zu verfolgen. Kurzlebige Produkte bestimmen die Möglichkeit der Wartung der Teilkomponenten. Langlebige Aufbauten dagegen bilden einen Teil der Abfälle aus dem Betrieb der Anlage. Dieser Punkt scheint für Anlagen zur Transmutation besonders wichtig zu sein. In diesem Zusammenhang spricht der Aufbau von langlebigem Bi-210m ($T_{1/2} = 3,0 \cdot 10^6$ a) gegen Bi als Trägermaterial in Transmutationsanlagen mit thermischen Neutronenspektren.

Eine kurze Abschätzung soll dieses verdeutlichen. So beträgt der Querschnitt für die Bildung von Bi-210 ($T_{1/2} = 5,013$ d) bei 0,0253 eV 0,019 barn. In einem weiteren Schritt kann sich hieraus sich Po-210 ($T_{1/2} = 138,39$ d) aufbauen. Aufgrund der kurzen Halbwertszeiten beeinflusst die Poloniumproduktion - Po-210 zerfällt in das stabile Pb-206 - jedoch nur den unmittelbaren Betrieb. An dieser Stelle läßt sich sicherlich argumentieren, daß der Einfluß des Po-210 hinter dem der anderen Spaltprodukte zurücksteht. Mit einem Querschnitt von 0,014 barn verläuft die Bildung des metastabilen Bi-210m mit größenordnungsmäßig gleicher Geschwindigkeit. Letzteres geht über die Bildung von Bi-211 ($\sigma = 0,054$ barn) in das stabile Pb-207 über. Im stationären Fall folgt also aus:

$$\frac{dN_{Bi-210m}}{dt} = \sigma_{Bi-209} \cdot \Phi \cdot N_{Bi-209} - \sigma_{Bi-210m} \cdot \Phi \cdot N_{Bi-210m} \quad (\text{Gl. 3.18})$$

daß etwa ein Viertel des gesamten Kühlmittels langlebige Aktivierungsprodukte bildet.

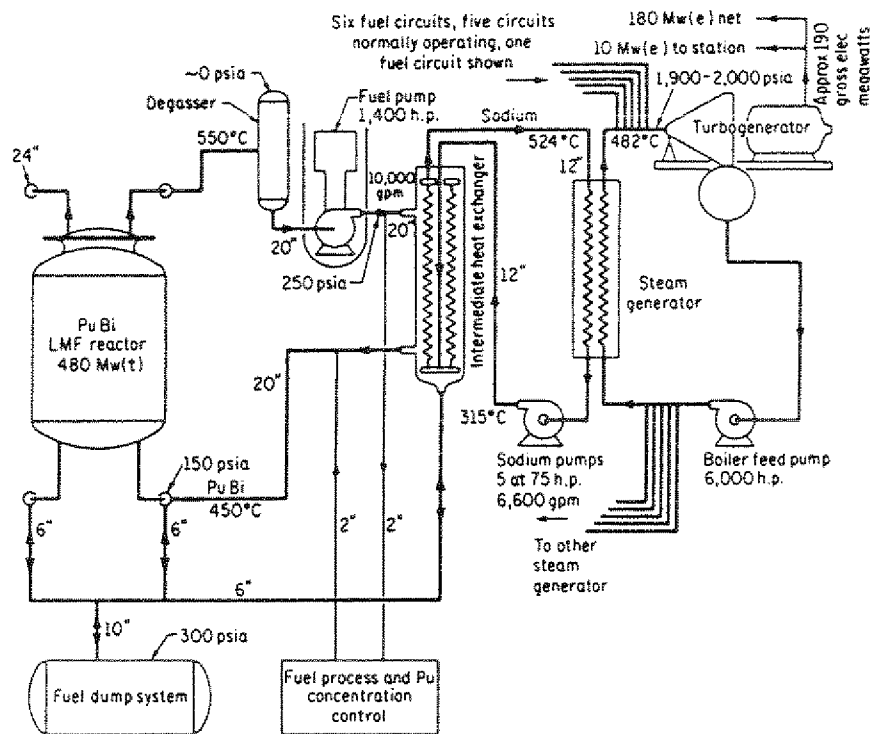


Abb. 3.9: Anlagenschaubild eines U-Pu-Bi Reaktors [3.34]

Auch natürliches Blei, das aus den Isotopen 204, 206, 207 und 208 besteht, bildet langlebige Nuklide. Das mit einer Häufigkeit von 50 % vorhandene Pb-208 geht mit einem Wirkungsquerschnitt von 0,000487 barn in Pb-209 über. Da Pb-209 mit 3,253 h in stabiles Bi-209 zerfällt, ist dieser Pfad unbedeutend. Wichtiger erscheint das zu 1,4 % vorhandene Pb-204, das mit 0,661 barn das extrem langlebige Pb-205 bildet ($T_{1/2} = 1,5 \cdot 10^7$ a). Wegen des relativ geringen Volumenanteils von Pb-204 werden die Langzeitaktivierungen des Bleis jedoch kleiner als die des Wismuts sein.

Da Blei ähnlich gute Wärmeübertragungseigenschaften wie Wismut besitzt, stellt sich die Frage nach der Möglichkeit, Flüssigmetallreaktoren auf der Basis von Blei zu betreiben. Positive Erfahrungen mit Versuchskreisläufen sind durchaus aus der Fusionsforschung zur Durchführbarkeit von Pb-Li Blankets vorhanden [3.48]. Ab Kapitel 6 sollen die technischen Randbedingungen einer solchen Transmutationsanlage besprochen werden.

4 Neutronik und Technik eines unterkritischen thermischen Systems

Seit ca. 1991 stellen *Bowman et al.* auf verschiedenen Fachtagungen die Arbeit des Los Alamos National Laboratory (LANL) zur Transmutation von Actiniden und Spaltprodukten in sich von herkömmlichen Kernreaktoren deutlich unterscheidenden Systemen vor [4.1, 4.2]. Wesentlicher Unterschied zu allen bisher gemachten Vorschlägen ist, daß die Anlagen thermische Neutronenspektren nutzen, flüssige Brennstoffe verwenden und unterkritisch sind (siehe hierzu auch Kap. 3). Weitere Kennzeichen dieser Systeme sind:

- Protonenbeschleuniger mit Spannungen von 1,6 GeV und Strömen bis zu 250 mA,
- eine Erzeugung von Spallationsneutronen mit diesen Protonen im zentralen Target,
- hohe thermische Flüsse bis zu 10^{16} n/cm²/s im umgebenden Blanket
- und niedrige Schwermetallinventare.

Als Brennstoff werden Lösungen bzw. Suspensionen der Transurane in Wasser und graphit-moderierte Salzschnmelzen diskutiert. Eine Transmutationsanlage des LANL auf der Basis einer Fluoridsalzschnmelze wurde in Kap. 3.3.4.2 vorgestellt. Im folgenden sollen die schwerwassermodierten Suspensionssysteme diskutiert werden (Abb. 4.1).

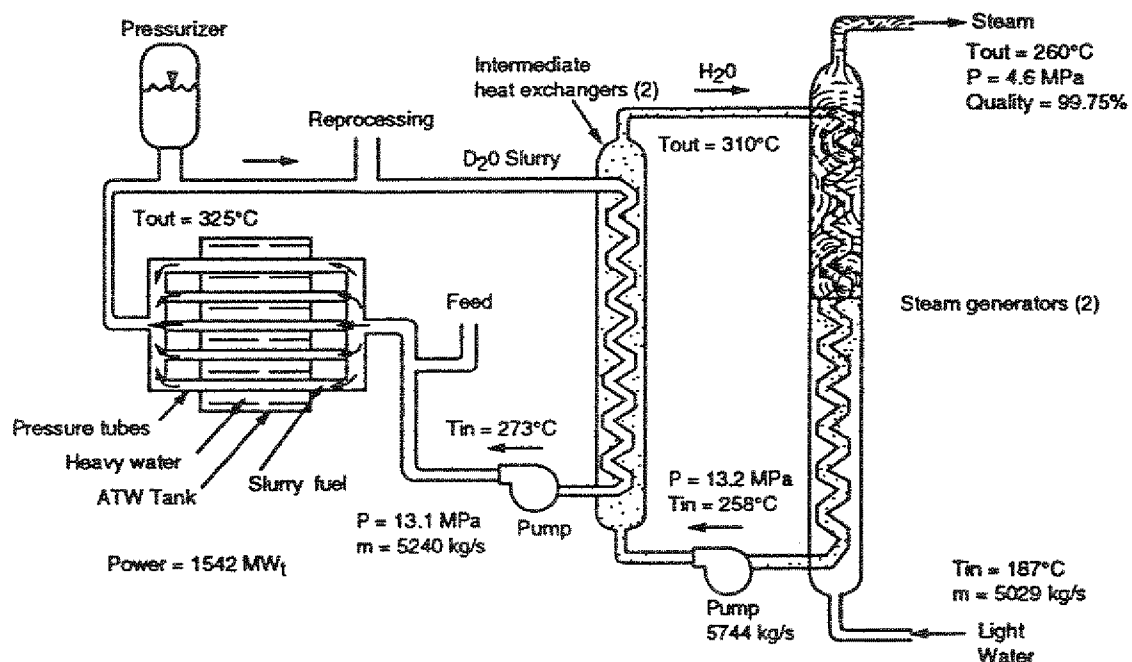


Abb. 4.1: Primärkreis und Zwischenkreislauf des schwerwassermodierten unterkritischen LANL-Systems mit den wesentlichen technischen Daten [4.4]

Die aus Actinidenoxiden aufgebaute Suspension wird durch horizontalliegende Rohre gepumpt und heizt sich dabei von 273 °C auf 325 °C auf. Die hohe Aktivität des flüssigen Brennstoffs macht die Verwendung eines Zwischenkreislaufs notwendig. Eine Moderation der Neutronen erfolgt zwischen den Druckrohren, da ein mit schwerem Wasser gefüllter Tank (Calandria) die gesamte Rohranordnung umschließt. Somit besteht eine direkte Verwandtschaft zu den kanadischen CANDU-Reaktoren. Erste Veröffentlichungen zu dieser Anlage finden sich in [4.3] und [4.4] (März 1992). Die Anlage wurde nachfolgend modifiziert und 1993 mit geänderter Leistungsdichte und Beladung erneut vorgestellt [4.5, 4.6]. Die folgenden Ausführungen beziehen sich jedoch, sofern nicht anderweitig gekennzeichnet, auf die erste Anordnung.

Diese soll 625 kg/a an Actiniden, entsprechend einer Jahresentladung von etwa 1,9 amerikanischen Druckwasserreaktoren, transmutieren. Der Speisevektor entspricht dabei der in Anhang B.1 für einen amerikanischen DWR gegebenen Zusammensetzung. Weiterhin sollen die Spaltprodukte Tc-99 und J-129 umgewandelt werden. Im Text finden sich allerdings nur zur Technetium-Umwandlung nähere Angaben. Dieses soll im Wasser als Li_7TcO_4 gelöst werden. Ein Protonenstrom von 62,5 mA mit Protonenenergien von 1600 MeV sorgt bei einem Multiplikationsfaktor k_{eff} von 0,95 für Neutronenflüsse von $1\text{--}2 \cdot 10^{15} \text{ n/cm}^2/\text{s}$. Die thermische Leistung in der abgebildeten Anlage beträgt 1542 MW_{th}. Es sollen drei weitere Einheiten parallel aufgebaut werden, so daß insgesamt ein großer Linearbeschleuniger einen Protonenstrom von 250 mA bei 1,6 GeV bereitstellen muß. Die Actinidenkonzentration der umgepumpten Suspension soll 75 g/l betragen, woraus ein Inventar von 325 kg errechnet wurde. Es sei an dieser Stelle angemerkt, daß ein solcher Zahlenwert bedeutend kleiner ist als bei allen in Kap. 3 besprochenen Anordnungen. Insofern ist besonders das Inventar kritisch zu hinterfragen.

Ein Ziel des folgenden Kapitels ist es aufzuzeigen, inwieweit eine solche Anlage unter dem Gesichtspunkt der Neutronik mit den oben angegebenen charakteristischen Daten funktionieren kann. Als gegeben für die neutronenphysikalischen Rechnungen werden dabei die Gesamtspeiserate (aus der jährlichen Transmutationsrate) und die Parameter des Protonenstroms angenommen. Der Rest der Eingabedaten ergibt sich unter Zuhilfenahme sinnvoller Annahmen. Diese Annahmen sind erforderlich, da sich die Angaben zur Anlage in zwei separat gehaltenen Beiträgen befinden, in denen gleichzeitig Variations- und Optimierungsmöglichkeiten erläutert werden [4.3 u. 4.4]. Da somit letztlich nur tendenzielle Aussagen bezüglich Leistung, Inventar, Gleichgewichtskonzentration und Flußverteilung möglich sind, sollen die Ergebnisse durch Parametervariationen gestützt werden.

Ein zweiter Schwerpunkt der Betrachtungen stellt die Einschätzung der zu lösenden technischen und sicherheitstechnischen Probleme bei der Gestaltung des Primärkreises dar. Für die Erstellung eines differenzierten Bildes soll die in Kap. 3 gegebene Übersicht verschiedener Flüssigreaktoren mit den vom LANL publizierten Eigenschaften der schwerwassermoderierten Suspensionsanlage verglichen werden.

Zur rechnerischen Vereinfachung wurden die vom LANL vorgeschlagenen quadratischen aus Stäben zusammengesetzten Einheiten, auf die ein Protonenstrahl mit einem Rechteckprofil treffen soll, in dem Simulationsmodell durch flächengleiche kreisförmige Scheiben ersetzt. Entsprechend wird für die Intensität des Protonenstrahls eine kreisförmige Gauß-Verteilung angesetzt.

4.1.2 Einheitszelle

Die Inhomogenität des Blankets durch den steten Wechsel zwischen actinidenführendem Rohr und Moderator, läßt sich durch die eindimensionale neutronische Analyse der Einheitszelle (Transportrechnung mit XSDRN) homogenisieren. Diese Betrachtung setzt voraus, daß alle Rohre die gleichen Abmessungen haben und in festem Abstand (Pitch) zueinander angeordnet sind. Aus dem Zentralabstand der Rohre läßt sich dann bei gegebener Anordnung (Dreiecksform, quadratisches Gitter etc.) direkt der zu einem Rohr gehörende Volumenanteil des Moderators ableiten.

Die Einheitszelle des LANL-Konzeptes ist in Abb. 4.3 abgebildet. Der Zentralabstand der Rohre untereinander beträgt 23,8 cm. Der entsprechende Volumenanteil des Moderators beträgt 75 %, der des aktiven Bereichs (actinidenführende Suspension) 16 %. Zur Führung der Actinidensuspension in schwerem Wasser bei einem Druck von ca. 130 bar wurde wegen der erhöhten Warmfestigkeit ein Doppelrohr aus einer Zirkon-Legierung mit einigen % Niob vorgesehen. Die Doppelrohrkonstruktion wirkt als Isolation zum drucklosen, kalten Schwerwasser des umgebenden Moderators.

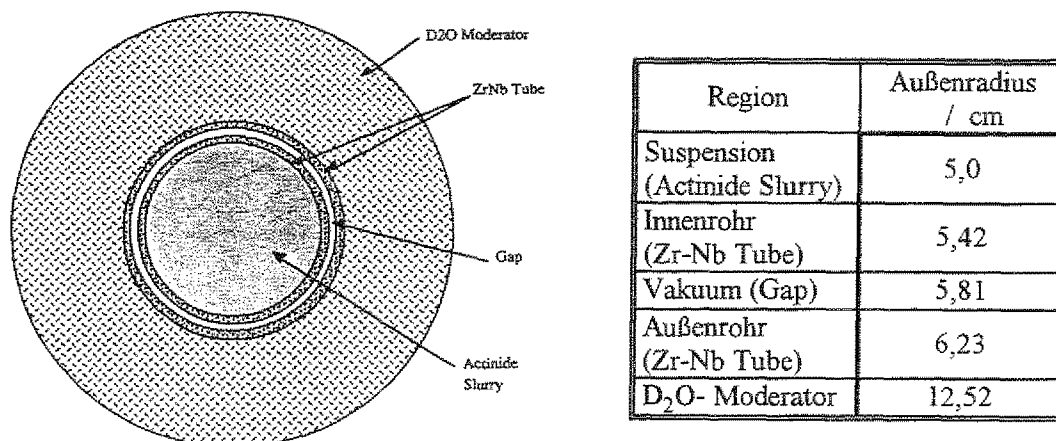


Abb. 4.3: Einheitszelle des schwerwassermoderierten unterkritischen LANL-Systems [4.4]

Das Blanket besteht insgesamt aus 250 Einheitszellen mit einer Rohrhöhe von 2,50 m. Im Blanket ist ein Schwermetallinventar von 325 kg gebunden. Für die Abbrandrechnungen wird die Gesamtspeiserate von 625 kg/a auf alle 250 Rohre verteilt. Unter Verwendung einer mittleren Molmasse von 239 g/mol ergibt sich eine Speiserate pro Rohr von $3,31 \cdot 10^{-7}$ mol/s.

Es läßt sich an dieser Stelle feststellen, daß die Anlage die angegebenen Umsatzraten nur bei einer Verfügbarkeit von 100 % leisten kann. So errechnet sich aus der maximalen Um-

wandlungsrate (siehe auch Kapitel 3.1) von $1 \text{ g}/(\text{MW}_{\text{th}}\text{d})$ eine thermische Leistung von $1712 \text{ MW}_{\text{th}}$, die mit den vom LANL angegebenen $1542 \text{ MW}_{\text{th}}$ zu vergleichen ist. Auf die Gründe für diese Differenz wird unter anderem in folgendem näher eingegangen.

4.1.3 Anordnung von Target und Blanket

Der resultierende Gesamtaufbau von Target und Blanket im Simulationsmodell ist in den Abbildungen Abb. 4.4 und Abb. 4.5 dargestellt.

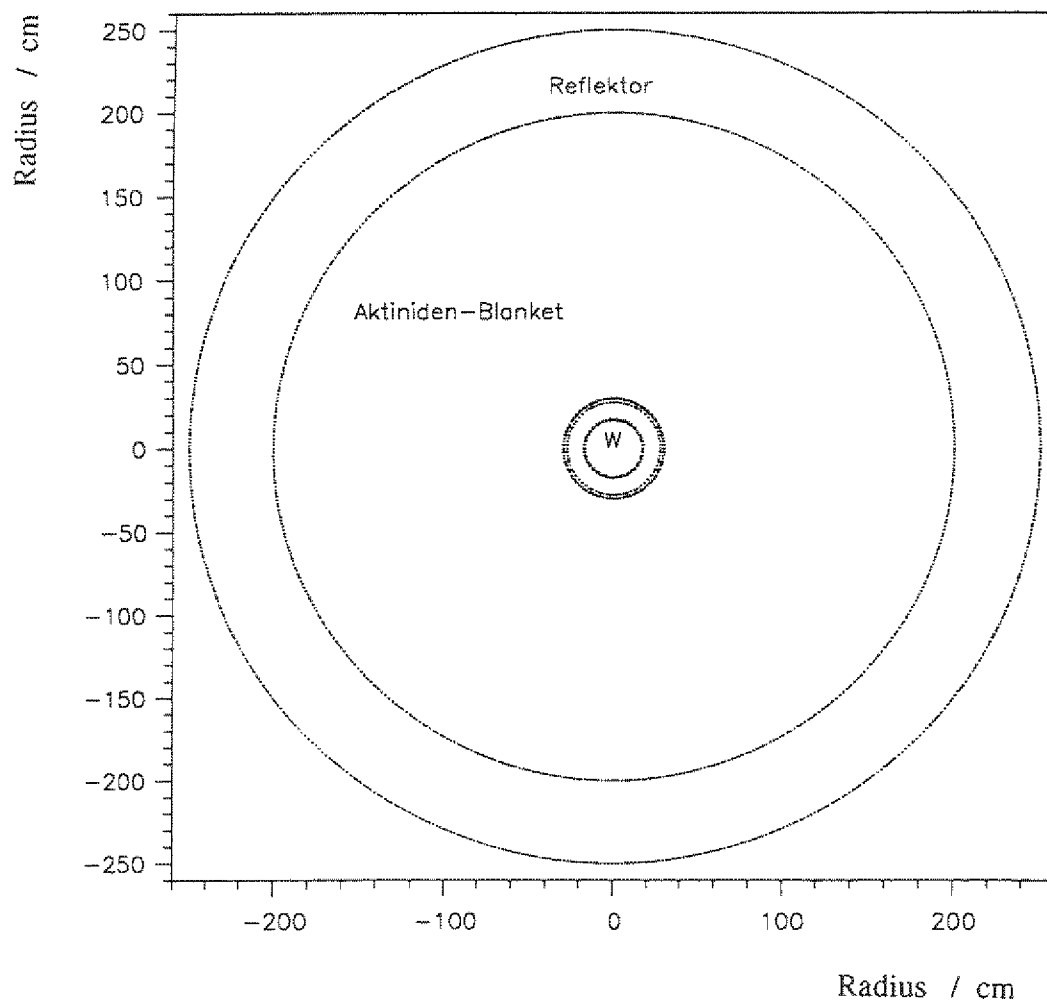


Abb. 4.4: Radialschnitt durch das nachgebildete HETC-Rechenmodell der Gesamtanordnung

Das zentrale Wolfram-Target mit einem Durchmesser von ca. 34 cm ist von einer ca. 10 cm dicken Pb-Schicht umgeben. In dieser Pb-Schicht sollen zusätzliche Neutronen durch Hochenergiereaktionen des Bleis (z. B. $n,2n$ -Reaktion) bereitgestellt werden. An das Blei schließt sich eine 2 cm breite 1-molare Tc-99 Lösung zur Spaltprodukttransmutation an. Das aktive Blanket erstreckt sich bis zu einem Radius von etwa 2 m und ist von einem 50 cm breiten Reflektor umgeben. Da in den Rohren zusätzlich zur Suspension Tc mit einer Konzentration von 0,15 mol/l geführt wird, ergibt sich ein Tc-Inventar im Blanket von etwa 82 kg.

Abb. 4.5 zeigt die axialen Inhomogenitäten, die ausschließlich auf den im Target über einer Länge von 250 cm verteilten Wolframscheiben beruhen.

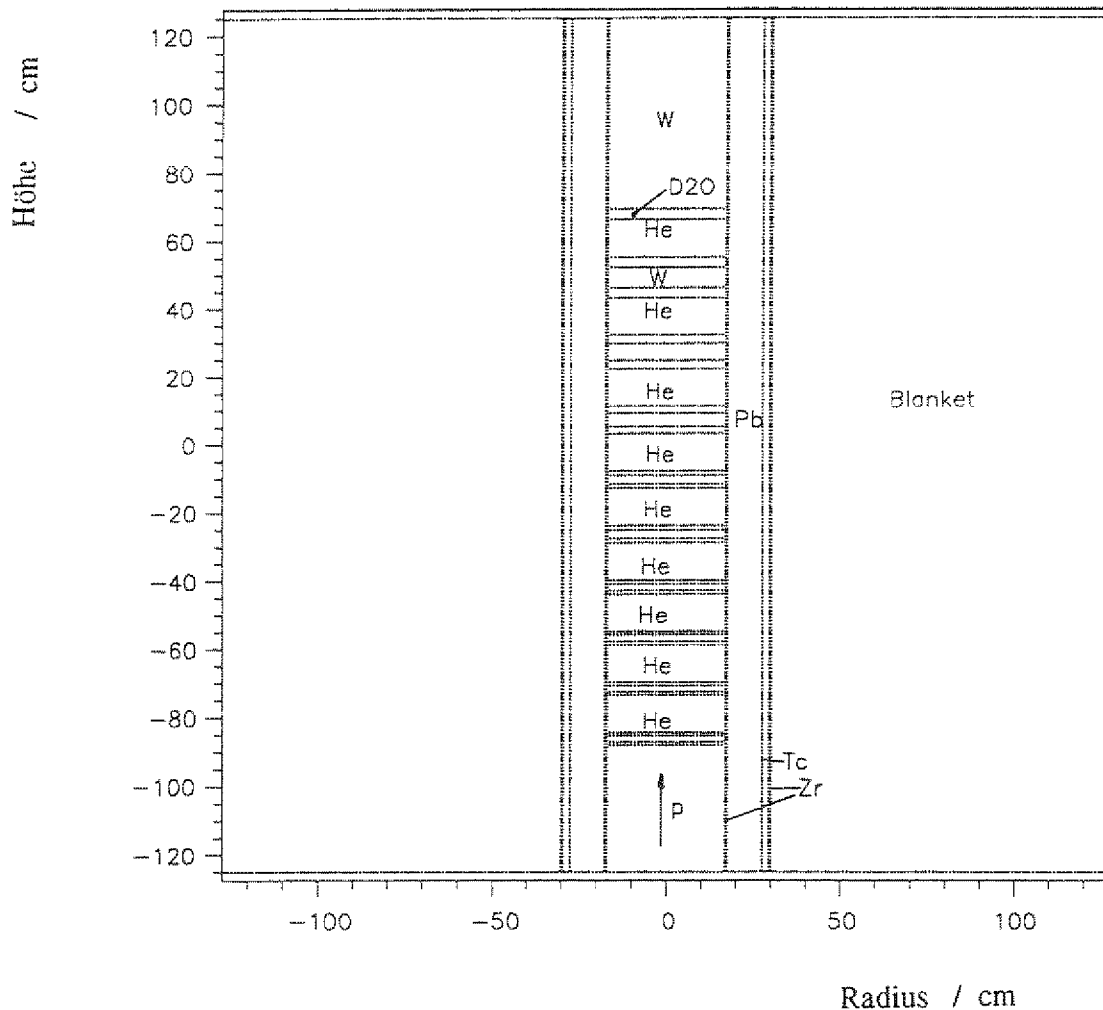


Abb. 4.5: Axialschnitt durch das HETC-Rechenmodell der Gesamtanordnung

4.2 Rechnungen zur Neutronik

4.2.1 Prinzipielle Zusammenhänge

Der in den Abbrandberechnungen zu ermittelnde Gleichgewichtsvektor $\vec{N}$, der sich aus den molaren Konzentrationen der Actiniden zusammensetzt, läßt sich mit Programmen wie ORIGEN (siehe Anhang B.1) aus den Eingruppenquerschnitten und den Zerfallskonstanten berechnen. Hierzu ist folgende Gleichung zu lösen:

$$\frac{d\vec{N}}{dt} = \vec{A} \cdot \vec{N} + \vec{R} \quad (\text{Gl. 4.1})$$

Ist man dagegen nur am Gleichgewicht interessiert, so darf man den zeitabhängigen Term auf der linken Seite zu Null setzen. Die einzige Lösung ist nur noch von der Speiserate abhängig. Dieses gilt unabhängig von den Ausgangskonzentrationen, sofern diese vernünftig gewählt werden. Sie läßt sich direkt ermitteln und hat die Form:

$$-\overline{A}^{-1} \cdot \dot{\vec{R}} = \vec{N} \quad (\text{Gl. 4.2})$$

Somit bieten sich in Abweichung von der expliziten Modellierung des zeitabhängigen Abbrandverhaltens gemäß Gl. 4.1 zwei weitere Möglichkeiten an, das Gleichgewicht zu berechnen. Zum einen läßt sich Gl. 4.2 direkt programmieren und lösen. Iterativ müssen allerdings gemäß dem geänderten Spektrum des Gleichgewichts die verwendeten Eingruppenquerschnitte mit der errechneten Nuklidzusammensetzung abgeglichen werden. Dieses kann durch Neutronentransportrechnungen der berechneten Geometrie geschehen. Bei obiger Form der Lösung ist insbesondere zu beachten, daß die Matrix nach höheren Isotopen hin nicht zu sehr begrenzt wird, da ansonsten wichtige Produktionsterme keine Berücksichtigung finden.

Da das durch Lösung von Gl. 4.1 ermittelte Gleichgewicht sich nicht von dem von Gl. 4.2 unterscheidet, lassen sich ebenfalls Programme wie ORIGEN zur Ermittlung der Gleichgewichtskonzentration benutzen. In diesem Fall ist neben der Überprüfung der relevanten Aufbauketten die Formulierung eines geeigneten Zeitabbruchkriteriums angezeigt, um den Rechenaufwand zu begrenzen. In der folgenden Untersuchung kommt das letztgenannte Verfahren zur Anwendung.

Schreibt man die Speiserate als Produkt aus einem Einheitsvektor und einem skalaren Molenstrom $\dot{R}$, so erhält man:

$$-\overline{A}^{-1} \cdot \vec{e} \cdot \dot{R} = \vec{N} = \vec{n}_e \cdot C. \quad (\text{Gl. 4.3})$$

Bei konstanter Matrix $\overline{A}$, also vernachlässigbaren Änderungen im Neutronenspektrum, ist die Gleichgewichtskonzentration bzw. die Molmenge C direkt proportional zur Speiserate $\dot{R}$. Im Gleichgewicht wiederum ist die Speiserate direkt über die Spaltrate mit der thermischen Leistung verknüpft (siehe auch Kapitel 3.1).

$\overline{A}$ läßt sich in eine Zerfallsmatrix $\overline{A}_\lambda$, eine Wirkungsquerschnittmatrix $\overline{A}_\sigma$ und einen transponierten Flußvektor $\vec{\Phi}^T$ zerlegen, dessen Länge der Anzahl der zu berechnenden Elemente entspricht und der auf allen Positionen den in der Anordnung herrschenden Neutronenfluß Φ enthält:

$$\vec{N} = -\left(\overline{A}_\lambda + \vec{\Phi}^T \cdot \overline{A}_\sigma\right)^{-1} \cdot \vec{e} \cdot \dot{R} \quad , \quad \vec{\Phi}^T = (\Phi, \Phi, \dots, \Phi). \quad (\text{Gl. 4.4})$$

Gl. 4.4 verdeutlicht eine wesentliche Eigenschaft der Hochflußsysteme: Hohe Flüsse ziehen niedrige Gleichgewichtskonzentrationen nach sich, da mit steigendem Fluß die Zerfallsterme an Bedeutung verlieren. Dieses ist neben dem geringeren Neutronenverbrauch D (siehe hierzu auch Kapitel 3.2.3) der eigentliche Vorteil von Hochflußsystemen, der sich auch in verschiedenen Abbrandberechnungen bestätigt.

Für ein System mit festen Brennstäben oder flüssigen Brennstoffen bei stehender Flüssigkeitssäule wird der Nuklid Aufbau vollständig durch die Gleichungen 4.1 und 4.2 charakterisiert. Für ein flüssiges System mit externer Kühlung sind die Gleichungen jedoch neu zu bewerten. Abb. 4.6 zeigt den Weg eines Volumenelementes mit dem zugehörigen Molenvektor $\vec{X}$ während eines Umlaufs. Da ausschließlich die Actiniden betrachtet werden, enthält Abb. 4.6 nur einen Speisepunkt für die Actiniden. Der aufgrund der Massenerhaltung notwendige Abzug der Spaltprodukte ist nicht eingezeichnet.

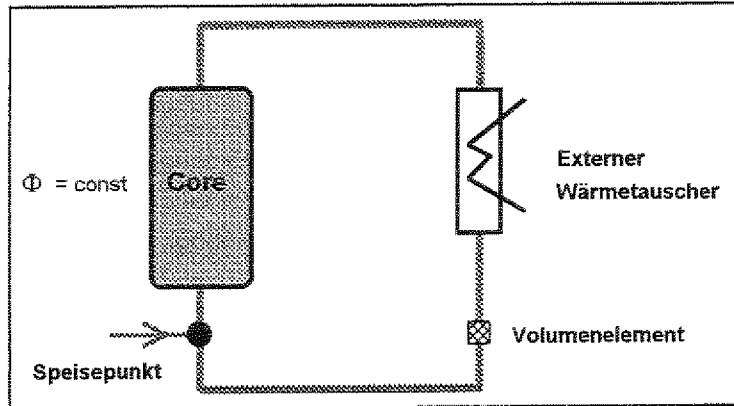


Abb. 4.6: Weg eines Volumenelementes im Primärkreis bei externer Kühlung

Das umlaufende Volumenelement ist nur innerhalb des Cores dem Fluß Φ ausgesetzt. Außerhalb, auf dem Weg zum Wärmetauscher und zum Speisepunkt, verschiebt nur der natürliche Zerfall die Konzentrationen. Am Speisepunkt wird eine sprunghafte Änderung der Konzentration vorgenommen, entsprechend einer einfachen Addition. Den Konzentrationsverlauf in einem Volumenelement kann man je nach Anordnung des Mischungspunktes durch zwei oder drei Differentialgleichungen beschreiben, wobei nur eine davon den Fluß Φ enthält.

Verlagert man gedanklich den Speisepunkt direkt vor den Reaktor, so lassen sich für ein Volumenelement und einen Umlauf, für den die Zeit t_G benötigt wird, die folgenden Gleichungen aufstellen. Die erste Gleichung beschreibt dabei die Änderung des Molenvektors $\vec{X}$ in dem Blanket der unterkritischen Anlage (Zeitdauer t_{Core}), während die zweite Gleichung die Veränderungen aufgrund des natürlichen Zerfalls in Wärmetauscher und Rohrleitung abbildet

$$\begin{aligned} \int_0^{t_{Core}} \frac{d\vec{X}}{dt} \cdot dt &= \int_0^{t_{Core}} (\vec{A}_\lambda + \vec{\Phi}^T \cdot \vec{A}_\sigma) \cdot \vec{X} \, dt, \\ \int_{t_{Core}}^{t_G} \frac{d\vec{X}}{dt} \cdot dt &= \int_{t_{Core}}^{t_G} \vec{A}_\lambda \cdot \vec{X} \, dt \end{aligned} \quad (Gl. 4.5)$$

Unter Einbeziehung der auf das betrachtete Teilvolumen ΔV bezogenen Speiserate $\vec{R}$ gilt für einen Umlauf des Volumenelementes im Gleichgewicht:

$$\int_0^{t_G} \frac{d\bar{X}}{dt} \cdot dt = \int_0^{t_G} \bar{A}_\lambda \cdot \bar{X} \cdot dt + \int_0^{t_{Core}} \bar{\Phi}^T \cdot \bar{A}_\sigma \cdot \bar{X} \cdot dt + \frac{\Delta V}{V} \cdot \dot{\bar{R}} \cdot t_{Core} = 0 \quad (\text{Gl. 4.6})$$

Dadurch, daß die Zerfallszeiten der Actiniden mit Ausnahme des Am-244m (26 Minuten) zumindest im Tagesbereich liegen, wird sich $\bar{X}$, sobald sich ein Gleichgewicht eingestellt hat, während des Umlaufs von einigen Sekunden nur sehr geringfügig verändern. Somit gilt für jedes der Volumenelemente mit hinreichender Genauigkeit:

$$0 \cong \bar{A}_\lambda \cdot \bar{X} \cdot t_G + \bar{\Phi}^T \cdot \bar{A}_\sigma \cdot \bar{X} \cdot t_{Core} + \frac{\Delta V}{V} \cdot \dot{\bar{R}} \cdot t_G \quad (\text{Gl. 4.7})$$

Dividiert man diese Gleichung durch die Umlaufzeit t_G und multipliziert man danach mit der insgesamt vorhandenen Anzahl von Volumenelementen im Primärkreis, so wird aus $\bar{X}$ der zu ermittelnde Gleichgewichtsvektor $\bar{N}$, und es resultiert von der Form her Gl. 4.4. Einziger Unterschied ist, daß für die Berechnung des Gleichgewichtes bei Verwendung der in den Gesamtkreislauf eingespeisten Speiserate ein durch das Verhältnis t_{Core}/t_G **reduzierter Fluß** einzusetzen ist. Dieses Verfahren findet sich in der Literatur beispielsweise zur Beurteilung der Effektivität thermischer Thoriumbrüter mit in Wasser dispergiertem Brutstoff [4.7] und wird auch vom LANL angewendet [4.6]. In den folgendenen Abbrandrechnungen wird sowohl der reduzierte Fluß unter Einbeziehung des Kreislaufinventars als auch der im Core vorherrschende Neutronenfluß benutzt, was dem Modell einer stehenden Flüssigkeitssäule entspricht, bei der der flüssige Brennstoff das Core nicht verläßt und intern gekühlt wird. Die Notwendigkeit für die gleichzeitige Verwendung beider Ansätze folgt daraus, daß in [4.3] und [4.4] keine Angaben zum Zeitverhältnis t_{Core}/t_G gemacht werden.

Zur Ermittlung der Gleichgewichtsbeladung müssen ORIGIN, XSDRN und NITAWL zum Abgleichen der Spektren und Eingruppenquerschnitte mehrfach iteriert werden. Für die Ermittlung der Gleichgewichtskonzentrationen wird die Bildung von metastabilem Am-244m aus Am-243 zugelassen. Dieses scheint zur Untersuchung der vom LANL vorgeschlagenen Hochflußsysteme angezeigt, da das metastabile Am-244 bei ähnlicher Spaltrate vorherrschend aus dem Am-243 entsteht und eine um einen Faktor 20 niedrigere Halbwertszeit hat als der Grundzustand. Somit wird der Aufbau zum Cm-244 nicht tendenziell durch zu hohe Spaltraten im Am-244 unterschätzt (siehe auch Nuklidtafel in Anhang A.3).

Die ORIGIN-Rechnungen zur Gleichgewichtsbeladung wurden sowohl mit den aus den Daten der Einheitszelle resultierenden Eingruppenquerschnitten als auch aus einer Betrachtung der Gesamtanordnung ermittelt. Der Grund hierfür ist zum einen, daß die Reflektoren das Neutronenspektrum thermalisieren, zum anderen, daß sich das harte Spektrum der Spaltungsneutronen mit dem Spektrum im homogenisierten Blanket überlagert.

4.2.2 Rechnungen zur Einheitszelle

Eigenwertbestimmungen der Zelle sind in verschiedenen Variationen bei konstanten Nuklidkonzentrationen durchgeführt worden. Der Nuklidvektor läßt sich aus den vom LANL angegebenen relativen Konzentrationen zum Gleichgewicht bei der geforderten Gesamtbe-

ladung von 75 g/l ableiten. Die Rechnungen mit einem reinen Actinidenmix sind durch den Zusatz einer 0,15 molaren Tc-Lösung ergänzt worden. Weiterhin sind axiale Leckagen durch eine Bucklingkorrektur für eine Höhe von 250 cm berücksichtigt worden. Erhöhte Leckagen durch den Leerraum im Doppelrohr können durch eine Void-Streaming Korrektur in der 1-dimensionalen Zellrechnung näherungsweise erfaßt werden. Da oberhalb der Rohre, genauso wie radial nach außen, zur Verringerung der Leckageverluste Reflektoren vorzusehen sind, wird als sinnvolle Geometrie eine Rechnung mit alleiniger Bucklingkorrektur für eine vergrößerte Höhe von 350 cm gewählt. Es errechnet sich ein k_{∞} von 1,19 und ein k_{eff} von 1,17, was dem vom LANL angegebenen k_{∞} von 1,158 nahe kommt.

Tab. 4.2: : Übersicht über die durchgeführten Zellrechnungen

	75 g/l TRU	Tc 0,15 molar	250 cm Bucklg.	250 cm Bucklg. + Void	350 cm Bucklg.
k_{∞}	1,26	1,19	1,19	1,19	1,19
k_{eff}	-	-	1,14	1,10	1,17

Die in Spalte 6 (Tab. 4.2) angeführte Zellrechnung und die daraus resultierenden Eingruppenquerschnitte bilden die Grundlage für die erste ORIGEN-Rechnung mit einem thermischen Fluß von $1 \cdot 10^{15}$ n/cm²/s (Tab. 4.3 1. Spalte). Das zeitliche Abbruchkriterium der Rechnungen wurde so bestimmt, daß sich selbst Cm-246 innerhalb der letzten simulierten 100 Tage nur noch im Promillebereich ändern soll. Hierzu sind durchweg bei allen 3 folgenden Iterationen 6800 Tage, entsprechend 19 nahezu Jahren, simuliert worden. Mit der erhaltenen Gleichgewichtskonzentration wird jeweils eine erneute Zellrechnung und eine anschließende Abbrandrechnung durchgeführt. Wie an den ORIGEN-Flußfaktoren Therm, Res und Fast zu sehen ist - eine Erläuterung dieser den thermischen Anteil, den Resonanzanteil und den schnellen Anteil des Neutronenspektrums beschreibenden Werte findet sich in Anhang A.2 - konvergiert das Verfahren auch hinsichtlich des Spektrums. Der Multiplikationsfaktor der Zelle k_{eff} sinkt gegenüber der ersten Rechnung durch den sich aufgrund der Rechnung einstellenden zusätzlichen Aufbau von Absorbern. Die Summe der in Tab. 4.3 nicht explizit aufgeführten höheren TRU beträgt in der Simulationszeit von 6800 Tagen 0,02 mol.

Zur Überprüfung des oben formulierten etwas willkürlichen anmutenden Zeitabbruchkriteriums sollen im folgenden die Werte der 3. Iteration näher betrachtet werden. Es zeigt sich, daß die Gesamtkonzentration konstant bleibt ($\Delta x < 0,05$ mol), obwohl innerhalb des letzten Zeitschritts von 100 Tagen 2,86 mol zugeführt werden. Die Cm-247 und Cm-248 Konzentrationen steigen allerdings weiter an. Es stellt sich deshalb die Frage, inwiefern man von einem Gleichgewicht sprechen darf.

Aus der nicht mehr sich verändernden konstanten Cm-244 Menge von 5,38 mol und dem zugehörigen kondensierten Eingruppeneinfangquerschnitt σ_c von ca. 11 barn läßt sich errechnen, daß etwa 18 % des zugespeisten LWR-Brennstoffs zu noch höheren Cm-Isotopen aufgebaut werden. Ca. 39 %, respektive 40 % werden als Pu-239 bzw. Pu-241 gespalten. Die oben angesprochenen 18 % werden durch das hohe Verhältnis von Eingruppenspaltsquerschnitt zu Absorptionsquerschnitt ($\sigma_f = 1120$ barn, $\sigma_a = 1310$ barn) im Cm-245 auf ca. 2,6 % reduziert.

Tab. 4.3: Molkonzentrationen der Nuklide bei der stehenden Suspension, thermischer Fluß $1 \cdot 10^{15}$ n/cm²/s, Simulationszeit 6800 d

k_{eff}	1,17	1,048	1,008	1,002
Therm	0,5309	0,5479	0,5470	0,5464
Res	0,0324	0,0294	0,0296	0,0298
Fast	0,0766	0,0701	0,0708	0,0711

Nuklid	Start / mol	1.Iteration / mol	2.Iteration / mol	3.Iteration / mol	0,11-m Tc / mol
Np-237	1,36E-1	1,36E-1	1,36E-1	1,37E-1	1,36E-1
Np-238	2,98E-3	2,96E-3	2,96E-3	2,96E-3	2,96E-3
Np-239	9,38E-5	9,59E-5	9,58E-5	9,57E-5	9,59E-5
Pu-238	8,16E-2	7,88E-2	7,90E-2	7,91E-2	7,89E-2
Pu-239	2,50E-1	2,43E-1	2,43E-1	2,44E-1	2,43E-1
Pu-240	5,88E-1	6,03E-1	6,08E-1	6,09E-1	6,09E-1
Pu-241	2,01E-1	1,97E-1	1,97E-1	1,98E-1	1,97E-1
Pu-242	2,73	3,24	3,36	3,38	3,38
Pu-243	1,60E-3	1,61E-3	1,61E-3	1,61E-3	1,61E-3
Pu-244	1,77E-2	1,87E-2	1,86E-2	1,86E-2	1,87E-2
Am-241	4,21E-2	4,15E-2	4,16E-2	4,16E-2	4,16E-2
Am-242m	5,35E-4	5,19E-4	5,20E-4	5,20E-4	5,19E-4
Am-242	8,86E-4	8,79E-4	8,79E-4	8,80E-4	8,79E-4
Am-243	8,08E-1	8,81E-1	8,91E-1	8,91E-1	8,92E-1
Am-244	1,76E-4	1,76E-4	1,76E-4	1,76E-4	1,76E-4
Am-244m	1,46E-4	1,46E-4	1,46E-4	1,46E-4	1,46E-4
Am-245	8,07E-7	7,97E-7	7,95E-7	7,95E-7	7,95E-7
Cm-242	1,37E-1	1,36E-1	1,36E-1	1,36E-1	1,36E-1
Cm-243	4,11E-3	3,98E-3	3,99E-3	3,99E-3	3,98E-3
Cm-244	4,21	5,19	5,36	5,38	5,39
Cm-245	4,79E-2	4,53E-2	4,51E-2	4,51E-2	4,50E-2
Cm-246	1,95	2,08	2,06	2,06	2,06
Cm-247	4,85E-2	4,40E-2	4,33E-2	4,33E-2	4,34E-2
Cm-248	2,88E-1	2,61E-1	2,55E-1	2,55E-1	2,56E-1
Σ	11,546	13,206	13,484	13,528	13,537
Konzentr. [g/l]	143,12	163,70	167,14	167,68	167,79

Betrachtet man die weitere Kette bis zu den Bk-Isotopen, so sind nur vom Cm-248 hohe Nuklidkonzentrationen wegen des relativ geringen Eingruppenabsorptionsquerschnitts von 7 barn zu erwarten. Rein rechnerisch leitet sich unter Einschluß bzw. Vernachlässigung der Cm-247-Querschnitte ($\sigma_f = 97$ barn, $\sigma_a = 145$ barn) eine Cm-248 Molmenge von 1,2 bzw. 0,33 mol ab. Diese Abschätzung läßt erwarten, daß sich die nach der dritten Iteration berechnete Konzentration für Simulationszeiten $t \rightarrow \infty$ maximal auf einen Wert von etwa 180 g/l erhöhen kann. Aufgrund der zugrundeliegenden konservativen Annahmen schließt dieser Zahlenwert sicherlich alle anderen höheren Nuklide wegen der bedeutend höheren Querschnitte der Berkelium und Californium-Isotope ein (siehe hierzu beispielsweise Karlsruher Nuklidtafel [4.8]).

Es sei an dieser Stelle daran erinnert, daß dieses Ergebnis mit der Betrachtungsweise einer stehenden Flüssigkeitssäule gewonnen wurde. In dieser Form wurden die in [4.3] und [4.4] veröffentlichten Rechnungen auch vom LANL durchgeführt. Weiterhin verbirgt sich hier auch der Idealfall einer internen Kühlung. Zellrechnungen zur Simulation der externen Kühlung werden deshalb ergänzend für einen effektiven Fluß von $2,5 \cdot 10^{14}$ n/cm²/s durchgeführt. Dieses scheint mit Hinblick auf die Erfahrungen mit Bi-Lösungen - diese verbrachten 72 % der Umlaufzeit außerhalb des Cores (Kap. 3.3.2.3) - durchaus angezeigt. Es stellt sich hierbei nach nunmehr 13.800 d ein spektral- und konzentrationsmäßiges Gleichgewicht von 132 g/l Actiniden ein. Die zeitliche Verlängerung der Rechnung bis zum Erreichen des Gleichgewichts wird wesentlich durch das ca. vierfach höhere absolute Flüssigkeitsinventar bestimmt.

4.2.3 Rechnungen zum Gesamtsystem

Die Rechnungen zum Gesamtsystem beginnen auf der einen Seite mit der Homogenisierung des Blankets durch die Rechnungen zur Einheitszelle. Als Eingangsgrößen lassen sich deshalb die in Tab. 4.3 dargestellten Rechnungen verwenden. Es wurden die Ergebnisse der stehenden Flüssigkeitssäule nach der 3. Iteration eingesetzt. Auf der anderen Seite bilden in einem unterkritischen System die externen Quellneutronen mit ihrer räumlichen Verteilung einen weiteren Startpunkt. Dieser läßt sich durch das Programm HETC zufriedenstellend modellieren (siehe Anhang A.1).

Das von HETC verwendete Geometriemodell entspricht den Abbildungen 4.4 und 4.5. Die Modellierung des Blankets enthält den Wert der homogenisierten Actiniden- und Tc-Konzentration, mit dem einzigen Unterschied, daß die Actinidenmischung im Blanket durch ein Nuklid, nämlich Pu-242, ersetzt wurde.

Insgesamt berechnet HETC ca. 45 Neutronen pro einfallendem Proton. Die Aufteilung der Neutronenproduktionsrate auf die einzelnen Medien folgt aus der untenstehenden Tabelle.

Tab. 4.4: Zonen der Gesamtanlage mit den Neutronenproduktionsraten

Medium	Wolfram	D ₂ O	Zr-Wände	Blei	Tc-1molar	Blanket	Reflektor
n/p	29,85	0,85	0,64	9,95	0,23	3,40	0,09

In den Transportcode XSDRN werden von diesen Neutronen nur etwa 36 eingekoppelt, da nur sie eine Energie kleiner als 15 MeV haben und ihre weiteren Reaktionen innerhalb von HETC nicht weiter berücksichtigt werden können.

Bei der ersten Gesamtrechnung handelt es sich um eine Eigenwertbestimmung der Gesamtanordnung. Diese Rechnung berücksichtigt noch nicht die Quellneutronen. Ziel ist es, eventuell notwendige Korrekturen des Eigenwerts vorzunehmen. Zur Aufrechterhaltung eines Multiplikationsfaktors von 0,95 ist eine Verringerung der Tc-99 Konzentration auf 0,11 mol/l nötig. Die Flußverläufe in der Gesamtanordnung sind in Abb. 4.7 wiedergegeben, während Spalte 6 in Tab. 4.3 Auswirkungen auf das Gleichgewicht beschreibt. Es zeigt sich, daß durch die 2 cm breite Tc-Zone bei einem Radius von 28 cm und die parasitäre Absorption des Wolframs die Flüsse in Targetnähe um nahezu eine Größenordnung sinken.

Die Gesamtrechnung unter Einbindung der Quellneutronen ist demgegenüber durch einen radial nach außen abfallenden Fluß gekennzeichnet. Der in Abb. 4.8 abgebildete Flußverlauf ist dabei durch eine einfache weitere Iteration entstanden. Dieses bedeutet zunächst eine Berechnung der Gesamtanordnung unter Einschluß der Quellneutronen und einer Kondensation der Querschnitte im Blanketbereich. Durch die Reflektorwirkung ist das Spektrum bedeutend thermischer als in der Zelle ($\text{Therm} = 0,772$). Deshalb ist die Abbrandrechnung mit ORIGIN erneut durchgeführt worden.

Da in dem sich neu einstellenden Gleichgewicht der Pu-242 Anteil bedeutend geringer ausfällt (Abb. 4.9), sinkt die Gesamtzahl der Absorptionen, und k_{eff} steigt. Deshalb sind zur Einstellung des Eigenwerts der Anlage von 0,95 0,15 mol/l Tc und ein Neutronengift zur Kompensation von weiteren 3 nile zuzugeben. Als Gift ist Bor einer so geringen Konzentration gewählt worden, daß das Spektrum nur unwesentlich beeinflusst wird.

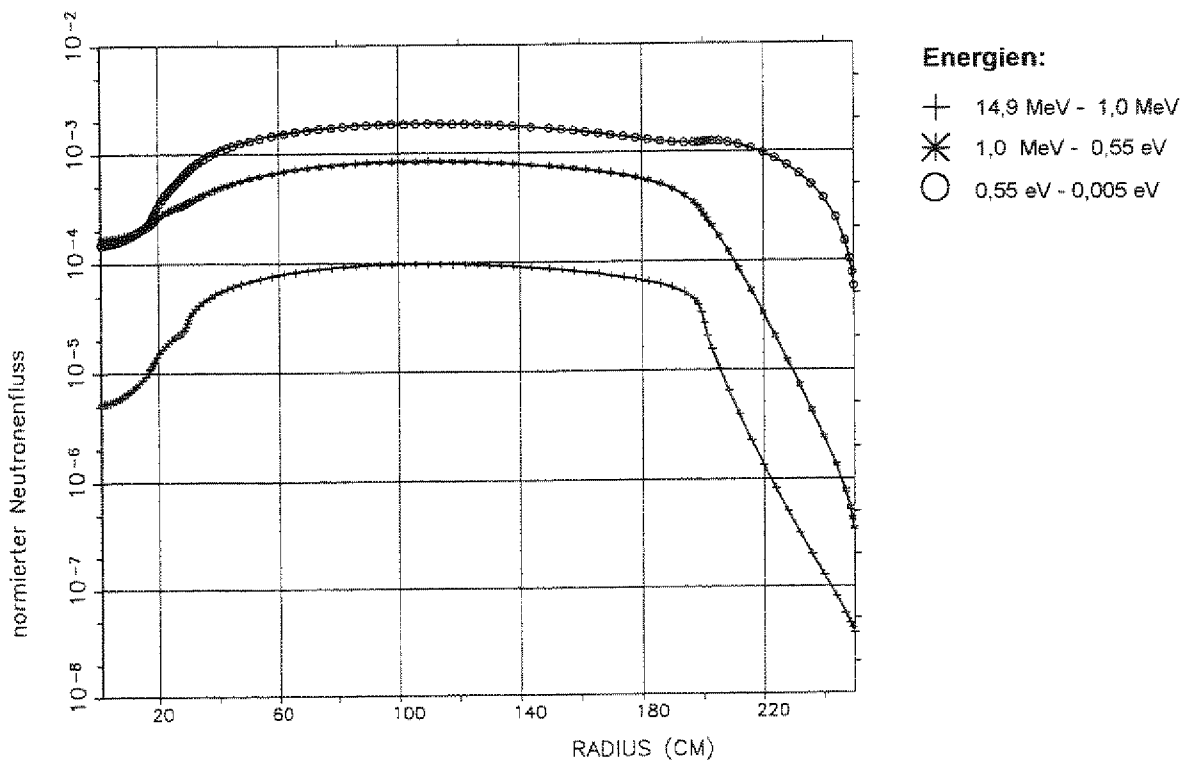


Abb. 4.7: Flußverteilung in der Gesamtanordnung für ein k_{eff} von 0,95 ohne externe Quelle

Der mittlere thermische Fluß in der Blanketzone beträgt $1,02 \cdot 10^{15} \text{ n/cm}^2/\text{s}$, so daß diese Angaben gut mit den vom LANL gemachten Angaben und den in der Abbrandrechnung verwendeten Werten übereinstimmen. Allerdings sinkt durch die Einbindung der Quellneutronen in einen stark neutronenabsorbierenden Bereich der Multiplikationsfaktor¹ der Gesamtanordnung. Der Grund ist in der gegenüber der Eigenwertrechnung stärkeren Wichtung

¹Die Existenz zweier Multiplikationsfaktoren ist aus dem Anfahrverhalten eines Reaktors wohlbekannt. Eine zentral angeordnete Neutronenquelle bedeutet jedoch hier eine stärkere Wichtung neutronenproduzierender Zonen geringer Leckage, so daß beim Reaktor der Multiplikationsfaktor durch die Quelle größer wird.

der targetnahen stark absorbierenden Zonen zu suchen, was in dem unterschiedlichen Flußverlauf von Abb. 4.7 und Abb. 4.8 zum Ausdruck kommt.

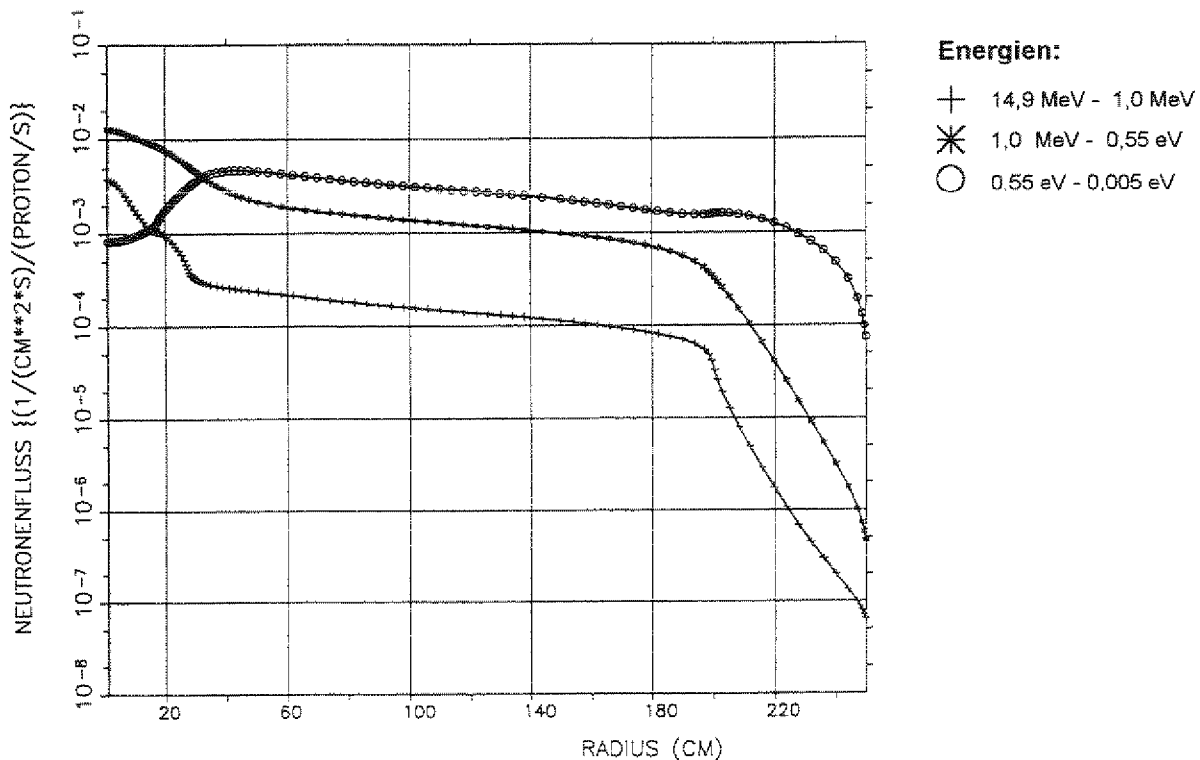


Abb. 4.8: Flußverteilung bei Berücksichtigung der Spallationsneutronenquelle und einen Multiplikationsfaktor k von 0,916, Umrechnung der Flüsse durch den Protonenstrom von $62,5 \text{ mA} = 3,9 \cdot 10^{17} \text{ Protonen/s}$

Der für die Gesamtneutronenzahl und Gesamtenergieerzeugung entscheidende Multiplikationsfaktor beträgt 0,916. Wendet man Gl. 3.8 auf das System an, so berechnet sich mit diesem Ergebnis die thermische Leistung zu:

$$P_{th} = 62,5 \cdot 10^{-3} \text{ A} \cdot 36 \frac{n}{p} \cdot \frac{0,916}{(1 - 0,916) \cdot 3 \frac{n}{\text{Spaltg}}} \cdot 210 \text{ MeV} = 1717 \text{ MW}_{th} \quad (\text{Gl. 4.8})$$

Aus dem ORIGEN-Lauf zur Einheitszelle der stehenden Flüssigkeitssäule und dem dort angegebenen Wert für die Leistungsproduktion ergibt sich nach Multiplikation mit den vorhandenen 250 Zellen eine thermische Leistung von 1730 MW_{th} , also ein nur geringfügig höherer Wert. Dieser Wert entspricht auch hinreichend genau der in Kap. 4.1.2 aus der maximalen globalen Umwandlungsrate von $1 \text{ g}/(\text{MW}_{th} \cdot \text{d})$ errechneten Leistung von 1712 MW_{th} . Die Übereinstimmung der Leistung an dieser Stelle bedeutet auch, daß das System sich im Gleichgewicht befindet.

Der Gleichgewichtsvektor für die Zelle mit einer stehenden Suspension **a**, für die Zelle mit dem umlaufenden Modell eines reduzierten Flusses **b** und für die Zelle mit den kondensierten Querschnitten der Gesamtanordnung **c** ist in Abb. 4.9 dargestellt.

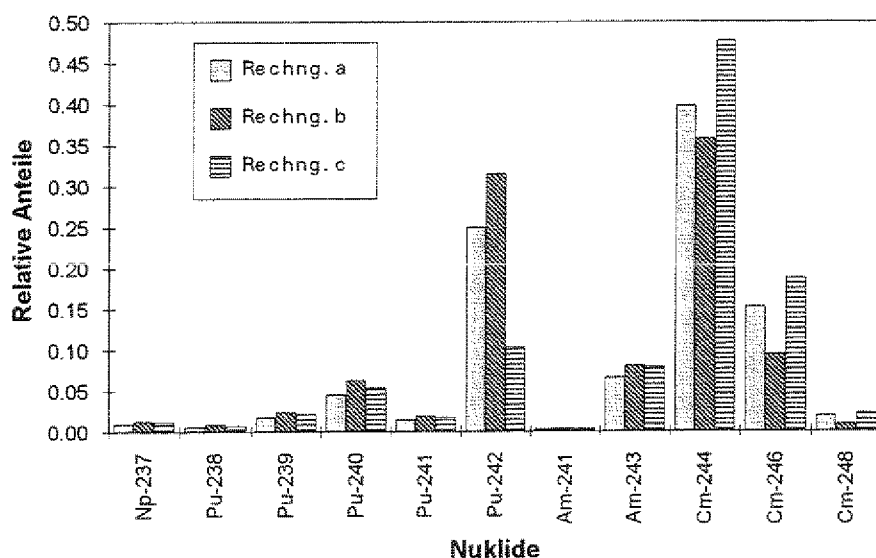


Abb. 4.9: Relative Gleichgewichtskonzentrationen bei der Nachrechnung des LANL-Systems
 a: stehende Flüssigkeitssäule, thermischer Fluß $1 \cdot 10^{15}$ n/cm²/s, Konzentration: 168 g/l
 b: Modellierung unter Einbeziehung des Gesamtkreislaufs, reduzierter Fluß $2,5 \cdot 10^{14}$ n/cm²/s gemäß einem Zeitverhältnis von $t_{\text{Core}}/t_G = 1/4$, Konzentration: 132 g/l
 c: wie a; Aktualisierung der Querschnitte aus Gesamtrechnung, Konzentration: 140 g/l

Bezüglich der Interpretation der Graphik sei zunächst auf die unterschiedlichen Gesamtkonzentrationen, die als Bezugswert für die relativen Konzentrationen genommen wurden, hingewiesen. So wurde in den Rechnungen unter Einbeziehung des Gesamtkreislaufinventars **b** eine Konzentration von 132 g/l ermittelt, während mit dem Modell der stehenden Flüssigkeitssäule **a** als Grenzfall einer internen Kühlung 168 g/l errechnet wurden. Die absolute Np-237 Konzentration ist jedoch identisch gemäß der in der unterschiedlichen Modellbildung vorgenommenen mit dem gleichen Faktor gegenläufigen Veränderung des Flusses und der betrachteten Volumina. Da bei dem geringeren gemäß dem Zeitverhältnis von $t_{\text{Core}}/t_G = 1/4$ reduzierten Fluß von $2,5 \cdot 10^{14}$ n/cm²/s das Np-238 eine höhere Zerfallsrate aufweist, fallen die unter **b** ausgewiesenen Anteile des Pu-238 höher aus. Absolut gesehen ergibt die Modellierung unter Einbeziehung des Gesamtkreislaufs eine Pu-238 Menge von 0,1 mol gegenüber 0,08 mol bei der stehenden Flüssigkeitssäule. Die Unterschiede der höheren Pu-Isotope beruhen dagegen weitestgehend auf dem unterschiedlichen Bezugswert, da der Zerfall des Pu-241 zum Am-241 aufgrund der relativ hohen Halbwertszeit von ca. 14 Jahren für die Gleichgewichtskonzentrationen nahezu unbedeutend ist. Deshalb betragen die absoluten Pu-242 Mengen in Rechnung **a** und **b** 3,38 bzw. 3,37 mol. Pu-242 zerfällt über Pu-243 direkt in Am-243. Diesen Pfad nehmen immerhin 20 % der Pu-Isotope mit relativen Atommassen ≥ 240 , da der kondensierte Eingruppenspaltquerschnitt von Pu-241 672 barn bei einem Absorptionsquerschnitt 894 barn beträgt. Das zugespeiste Am-241 zerfällt bei Flüssen nahe 10^{14} n/cm²/s nahezu vollständig über Am-242 und Cm-242 in Pu-238. Da damit auch eine Quelle für den Aufbau zu höheren Cm-Isotopen entfällt, muß die Cm-244 und Cm-246 Konzentration bei den geringeren Flüssen unter Berücksichtigung des Ge-

samtkreislaufinventars geringer ausfallen. Diese Feststellung deckt sich mit der von *Abrahams* für graphitmoderierte Salzschnmelzenreaktoren konstatierten Flußabhängigkeit des Curium-Aufbaus. So führt er einen Cm-244 Anteil von mehr als 35 % bei einem Fluß von 10^{15} n/cm²/s und von nahezu 40 % bei einem Fluß von 10^{16} n/cm²/s an [4.9]. Anhang A.3 enthält eine Isotopentafel mit den Wirkungsquerschnitten bei 0,0253 eV zum Vergleich.

Der Unterschied zwischen der Variante a und der Variante c folgt aus der Thermalisierung des Spektrums bei der Gesamtanordnung. Resonanzen von Pu-242 führen zu einem höheren Einfangquerschnitt und dazu, daß die Aufbauten von diesem Isotop geringer ausfallen. Da letztlich über Am-243 und Am-244 alle höheren Pu-Isotope in Cm-244 übergehen, bleibt die absolute Konzentration mit 5,38 mol bzw. 5,41 mol nahezu konstant. Relativ jedoch ergibt sich ein Unterschied von nahezu 10 % der Cm-244 Konzentration.

Im Gegensatz zu den Angaben des LANL (325 kg) berechnet sich auf der Basis der Konzentrationen bei Unterstellung einer stehenden Flüssigkeitssäule aus den Varianten a und c ein Wert von 825 kg bzw. 687 kg Actiniden. Dieses scheint jedoch eine optimistische Annahme zu sein, da sich unter Einbeziehung des Kreislaufinventars der realistischere Wert von ca. 2,6 t ableiten läßt.

4.3 Diskussion der Ergebnisse

Die durchgeführten Rechnungen zeigen, daß eine Transmutation in der beschriebenen Anlage durchaus physikalisch möglich ist. Es muß allerdings einschränkend darauf hingewiesen werden, daß die Anlage nur ca. 80 kg Tc-99 und Bor zur Kompensation einer **Reaktivität** von 3 nile enthält. Dieses bedeutet, daß die angeschlossene Wiederaufarbeitungsanlage zur kontinuierlichen Reinigung der Suspension von Spaltprodukten hohe Dekontaminationsfaktoren realisieren muß, um die Spaltproduktvergiftung ausreichend klein zu halten. Weiterhin erscheint die Transmutation von Jod bzw. anderen Spaltprodukten im Gleichgewicht nicht mehr vorstellbar.

Abhilfe läßt sich erreichen, wenn man die parasitären Absorptionen in den Strukturmaterialien verringert und die Speiserate erhöht. Weiterhin läßt sich die Anlage durch die Annäherung an ein H/D-Verhältnis von 1 neutronenökonomischer gestalten. Genau dieser Ansatz wurde durch eine Reduktion Anzahl der Rohre in der vom LANL modifizierten Anlage [4.5] verfolgt. Das Ergebnis ist allerdings, daß sich die Konzentration auf 500 g/l erhöht. Ebenfalls steigt proportional die Leistungsdichte im Brennstoff auf 700 MW/m³. Eine weitere Änderung der modifizierten Version besteht im Aufbau einer separaten Zone zur Tc-Transmutation vor dem Reflektor.

Die in [4.4] und [4.5] errechneten Gleichgewichtskonzentrationen sind in Abb. 4.10 dargestellt. Es fällt auf, daß die Rechnungen zur modifizierten Version (LANL2) der in Kap. 4.2 vorgestellten Nachrechnung insbesondere mit Hinblick auf den Aufbau der höheren Cm-Isotope bedeutend näher kommen. Trotz dieser weitgehenden Übereinstimmung können Rechnungen dieser Art jedoch nur einen ersten Eindruck vom sich ausbildenden Gleichgewicht geben. So werden sich die offensichtlich wichtigen Resonanzerscheinungen nur dann zuverlässig beschreiben lassen, wenn man das Blanket in Spektralzonen mit unterschiedlichen

Flüssen gemäß dem Flußabfall unterteilt. Weiterhin läßt sich die Zeit bis zum Eintreten eines Quasi-Gleichgewichtszustandes nur durch die explizite zeitabhängige Modellierung unter Einschluß der Beladung und Wahrung der Kritikalitätsbedingung ermitteln (siehe hierzu auch [4.10]).

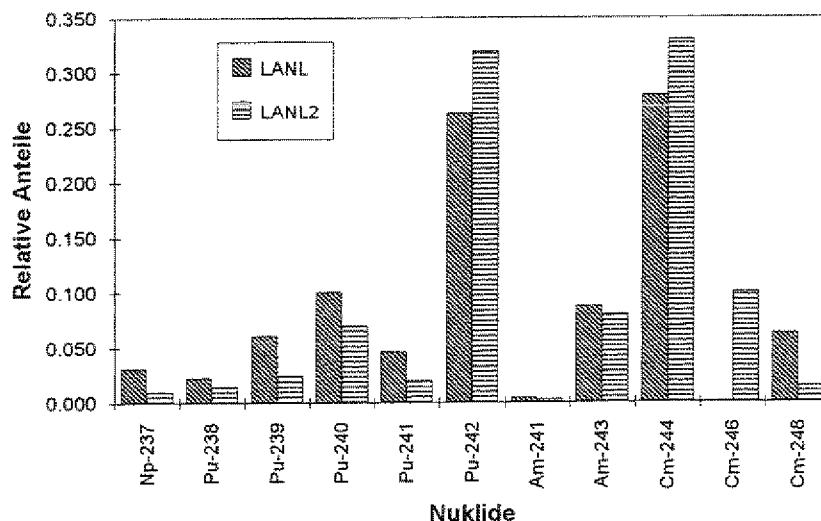


Abb. 4.10: Gleichgewichtskonzentration der vom LANL konzipierten Anlagen
 LANL: Anlage aus [4.3 u. 4.4], Konzentration: 75 g/l
 LANL2: modifizierte Anlage, abgelesen aus [4.5], Konzentration: 500 g/l

Verschiedentlich wird diskutiert, die Suspension außerhalb der Anlage zwischenzulagern und dadurch dem Curium-Aufbau entgegenzuwirken. Um diese Maßnahme zu beurteilen, sind die Aufbauketten zum Cm-244 zu betrachten. Man stellt fest, daß nur ein verschwindend geringer Teil des Cm-244 ($< 1\%$ bei 10^{15} n/cm²/s) aus dem Cm-242 ($T_{1/2}=162,8$ d) aufgebaut wird. Dementsprechend ist für die Begrenzung der Konzentration das Verhältnis der Zerfallsrate des Cm-244 zu dem weiterem Aufbau in das Isotop Cm-245 entscheidend. Die Abzweigung eines Teilstroms und externe Zwischenlagerung eines Teils der Suspension wird analog zur Reduktion des effektiven Flusses eine Anhebung der Zerfallsrate nach sich ziehen. Bei einem Fluß von 10^{15} n/cm²/s zerfallen allerdings im hier errechneten Gleichgewicht nur 10 % des Cm-244 in das Pu-240. Bei niedrigeren Flüssen wird diese Maßnahme also interessanter. Nachteilig ist allerdings, daß sich das Gesamtinventar durch die Zwischenlagerung weiter erhöhen wird.

Das **Actinideninventar** im Core wird in der modifizierten Anlage zu 1,3 t angegeben. Bei dieser Rechnung wurde eine Umlaufzeit unterstellt, die doppelt so hoch ist wie die im Core verbrachte Zeit. Diese optimistische Annahme bedeutet, daß das Gesamtinventar 2,6 t beträgt, was recht genau dem hier berechneten Wert nach dem dynamischen Modell entspricht. Bezogen auf die Leistung ergibt sich also ein Wert von 1,5 t/GW_{th}, womit sich nur noch um einen Faktor 3 niedrigere Inventarwerte als bei einem schnellen Reaktor ergeben (siehe hierzu Kap. 3.2.3). Trotzdem ist der Einsatz solcher unterkritischen Anlagen mit einem thermischen Wirkungsgrad von 30 % zur Reduktion des weltweiten TRU-Inventars im Uranbrennstoffkreislauf stationär möglich. Da aufgrund der Umwandlungsrate von 1 g/(MW_{th}/d) das Verhältnis von DWR's zu Transmutationsanlagen 3,4:1 beträgt (siehe

hierzu Kap. 3.1), folgt für das weltweite TRU-Inventar² in einem stationären Uranbrennstoffkreislauf bei einer weltweit nuklear bereitgestellten Leistung 340 GW_{el}

$$I = \frac{340 \text{ GW}_{el}}{4,4 \cdot 1,3 \text{ GW}_{el}} \cdot \left(0,34 t \cdot 3,4 + 1,5 \frac{t}{\text{GW}_{th}} \cdot \frac{1,3}{0,3} \right) = 455 t. \quad (\text{Gl. 4.9})$$

Es soll jedoch noch einmal betont werden, daß der in Wirklichkeit erreichbare Wert stark von der Form der Kühlung (extern / intern) bzw. dem Verhältnis t_{Core}/t_G (siehe Kap. 4.2.1) und der restlichen Prozeßführung, inclusive aller Zwischenlager, abhängig ist. Ebenfalls wurden in obiger Abschätzung keine Kapazitätsreserven unterstellt.

Der **technische** Entwicklungsstand von Anlagen dieser Art ist sicherlich noch weit von einer Detailkonstruktion entfernt. So sind zur Wärmeabfuhr in der modifizierten Version aufgrund der erhöhten Leistungsdichte Strömungsgeschwindigkeiten der Suspension von 10 m/s zu realisieren. Zur Vermeidung von Erosionserscheinungen haben demgegenüber die in Kap. 3.3.2.1 beschriebenen Versuche der holländischen KEMA maximale Geschwindigkeiten von 5 m/s empfohlen. Erosionserscheinungen verhindern auch, daß man die Erfahrungen der CANDU-Reaktoren direkt auf diese Anlage übertragen kann. So werden gänzlich anders gestaltete Pumpen und Wärmetauscher erforderlich sein. Die Existenz des Zwischenkreislaufs wird entgegen der vom LANL gemachten Angaben zu einer Reduktion der Wirkungsgrade im Vergleich zum CANDU-Reaktor führen. Ein wesentliches Problem flüssiger Reaktoren liegt in der Produktion von Radiolysegasen. In diesem Zusammenhang ist an die Untersuchungen des ITEP zu erinnern, die für oxidische Suspensionen bei Temperaturen von 300 °C maximale Leistungsdichten von 260 MW/m³ fordern, um die entstehenden Gase direkt rekombinieren zu können. Die in der modifizierten Version auftretende Leistungsdichte von 700 MW/m³ überschreitet diesen Wert bei weitem.

Weiterhin unvorteilhaft ist die Dynamik des Nuklidaufbaus, da ein Gleichgewicht erst nach einigen Jahrzehnten erreicht wird. Dieses bedeutet, über die Nutzungsdauer gesehen, verglichen mit der Erstbeladung ein Sinken der Reaktivität, eine Abnahme der notwendigen Kontrollgifte oder der Spaltprodukttransmutation und eine deutliche Zunahme der Konzentrationen. Dieses kann zu Handhabungsproblemen führen, die nur schwierig durch den Betrieb von Forschungsreaktoren zu ermitteln sind. Da insbesondere die höheren Cm-Isotope experimentell nur schwer zugänglich sind (Wirkungsquerschnitte), sind sämtliche dargestellten Ergebnisse zur Neutronik mit hohen Unsicherheiten behaftet.

Vielleicht das größte prinzipielle Problem der Anlage ist in der **Sicherheit** zu sehen. So neigt jede Suspension zur Sedimentation. Diese könnten zu Reaktivitätsschwankungen oder aufgrund der produzierten Wärme bei Agglomeration zu lokalen Überhitzungen führen. In Zusammenhang mit Anlagendrücken von 130 bar verbirgt sich hierin erhebliches Potential für die Freisetzung von Aktivitäten.

²Für die in Kap. 3.3.4.2 beschriebene graphitmoderierte Salzschmelzenanlage gibt das LANL eine mögliche Reduktion des weltweiten TRU-Inventars auf 500 t an.

5 Tendenzen im Sicherheitsverhalten unterkritischer Systeme

Das Sicherheitsverhalten eines Reaktors läßt sich im allgemeinen nur durch eine umfassende Sicherheitsanalyse erfassen, die die Neutronik und die Wärmeübertragung bzw. die Wärmeabfuhr modelliert. Voraussetzung einer solchen Arbeit sind genaue Angaben über sämtliche Komponenten des Primär- und Sekundärkreises und natürlich ein explizites Coredesign. Die weltweit bisher vorgestellten Konzepte für die Transmutation radioaktiver Reststoffe erfüllen diese Bedingungen nicht. Sie sind vielmehr äußerst unterschiedlich und ständigen Änderungen unterworfen. Vielen von ihnen gemeinsam ist jedoch, daß es sich um unterkritische Hybridanlagen handelt, die über die in einem Target induzierte Spallationsreaktion mit externen Neutronen versorgt werden. Ziel dieses Kapitels ist es, die Implikationen von Multiplikationsfaktoren $k < 1$ zu untersuchen. Dieses soll in Form eines Vergleichs zwischen einem kritischen Core - als Referenzreaktor wurde ein 900 MW_{th} IFR-Core (Integral Fast Reactor) mit einer Konversionsrate C von 1 gewählt - und einer möglichst ähnlichen unterkritischen Anlage geschehen. Im Idealfall würde der einzige Unterschied in der Abweichung des Multiplikationsfaktors bestehen.

Aussagen über die stationären Zustände werden mit den Programmen DIF3D [5.1] zur Neutronenflußverteilung und REBUS [5.2] zur Beschreibung der Nuklidvektoren im Gleichgewichtszyklus gewonnen (siehe Anhang A). Die im Rahmen einer Sicherheitsbetrachtung ermittelten Transienten werden mit einer vereinfachten Version des SASSYS-Systems [5.3] berechnet. Dieses Programm löst die punktkinetischen Gleichungen und modelliert Temperatur- und Leistungstransienten in Primär- und Sekundärkreislauf.

5.1 Auslegung der unterkritischen Anlage

Die Konzeption einer unterkritischen Anlage beginnt mit der Auswahl des Protonen-Targets. Hier ist das schon in Kap. 4 vorgestellte Wolfram-Target verwendet worden, mit der einzigen Ausnahme, daß die Schwerwasserkühlung des Wolframs durch eine Na-Kühlung aufgrund des hier zu erwartenden schnellen Spektrums ersetzt wurde. Als Nebeneffekt stellt sich eine um im Mittel 10 % erhöhte Neutronenausbeute ein, wobei der größte Anstieg in der direkt das Target umgebenden Blei-Multiplikationszone zu verzeichnen ist.

Da mit dem Target im wesentlichen auch die Höhe des umgebenden Blankets bestimmt ist, konzentriert sich die Arbeit zur Vorauswahl eines geeigneten Blankets auf eine Variation der Radien, der Anreicherung und des Brennstoffanteils. Nebenbedingung ist ein mit einer Vielzahl von Vorschlägen zur Transmutation übereinstimmender Eigenwert von 0,95. Dieser garantiert Protonenströme zwischen 30 und 70 mA, was sich im Rahmen internationaler Konzeptvorschläge bewegt (siehe hierzu Kap. 3).

Da das Blanket die Technik der IFR-Cores übernehmen soll, werden:

- reaktorähnliche Brennelemente,
- Natrium als Kühlmittel,
- HT-9 als Hüllwerkstoff mit einer Fluenzgrenze von $4 \cdot 10^{23} \text{ n/cm}^2$,
- und metallischer Brennstoff mit konventioneller Anreicherung ($\leq 30 \% \text{ TRU}$, ca. $10 \% \text{ Zr}$, Rest U) und einem maximalen Abbrand von 150 GWd/t SM

verwendet. Eine räumliche Vorstellung von Target und Blanket vermittelt Abb. 5.1.

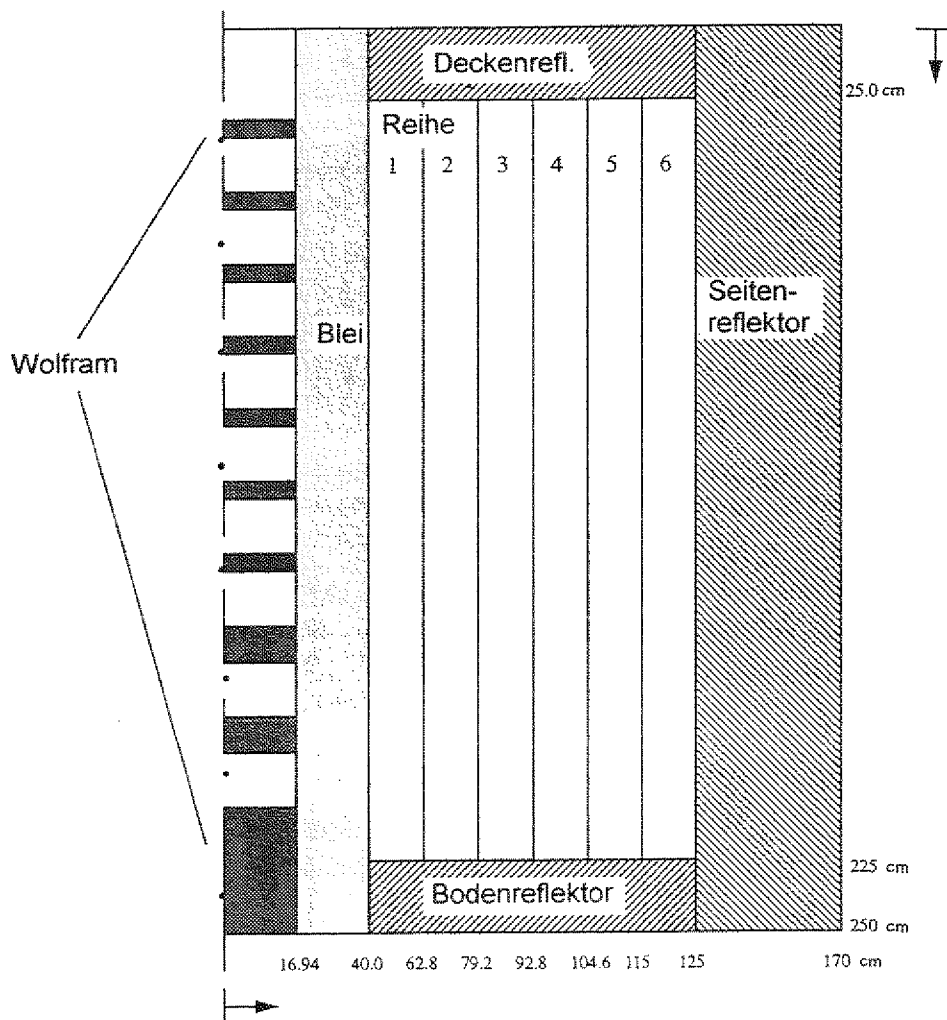


Abb. 5.1: Axialschnitt durch die unterkritische Hybridanlage

Das Blanket selbst ist in zwei Zonen mit unterschiedlichem Brennstoffvolumenanteil aber gleicher Anreicherung unterteilt, um den unvermeidlichen radialen Flußabfall zu dämpfen. Die Zykluslänge beträgt 290 Tage, entsprechend 1 Jahr bei 80 % Vollast. Da die Leistungsproduktion ebenfalls radial nach außen abfällt - die Leistungsdichte in der dem Target nächstgelegenen Zone beträgt 450 MW/m^3 - wird zur Vergleichmäßigung des Abbrands die Verweilzeit der Brennelemente von innen nach außen angehoben. Der Brennstoff in den

targetnahen Zonen bleibt 3 Zyklen im Blanket, während die Verweilzeit der Brennelemente nahe des Reflektors 6 Zyklen beträgt.

Mit einem aktiven Coredurchmesser von 250 cm stellt sich ebenfalls die neutronenökonomischste Auslegung durch ein H/D von 1 ein. Größere Durchmesser scheinen nicht realistisch, um die Unterschiede zwischen targetnahen Zonen und reflektornahen, deren Leistungsabfuhr sich ja ohne Wirkungsgradverluste nur durch unterschiedliche Strömungsgeschwindigkeiten realisieren läßt, nicht zu groß werden zu lassen. Ein H/D-Verhältnis von 1 ist in heutigen IFR-Auslegungen unüblich, da der Void-Effekt des Natriums von vornherein durch eine größere Leakage begrenzt werden soll. Hier bietet sich damit aber gleichzeitig die Chance, die Auswirkung positiver Gesamttemperaturkoeffizienten in unterkritischen Anlagen zu studieren. Im Rahmen der Sicherheitsbetrachtungen kann später der positive Temperaturkoeffizient des Natriums parametrisiert werden, da modifizierte Auslegungen mit kleineren Targethöhen (flüssiges Bleitarget) und dementsprechend H/D-Verhältnissen von größenordnungsmäßig 0,5 eine bedeutend kleinere positive Rückkopplung des Natriums aufweisen würden.

Um gegenüber dem kritischen Core den Eigenwert zu reduzieren, wird der Brennstoffanteil abgesenkt. Dieses bedeutet zum einen eine weitere Anhebung der Natriumvolumina im Core, zum anderen aber auch bei gleichem Zentralabstand der Brennstäbe kleinere Brennstabdurchmesser. Zur Vermeidung von unrealistischen Durchmessern ist diese Maßnahme mit einer gleichzeitigen Senkung der Anreicherung zu koppeln. Dieses führt durch den hohen Uran-Gehalt in den Brennelementen zu Konversionsfaktoren nahe 1. Eine weitere Folge des reduzierten Eigenwertes ist das deutlich geringere TRU-Inventar. Dieses sinkt auf einen Wert von 2,1 t TRU/GW_{th}, was etwa 60 % des Inventars der vergleichbaren kritischen Anlage ($C = 1$) ist. Obwohl eine solche Entwicklung prinzipiell vorteilhaft ist (siehe Kap. 3), ist der bei ähnlichen Zielabbränden zwischen BOEC und EOEC steigende Reaktivitätsverlust negativ zu vermerken. Die wichtigsten Daten von Core und Sekundärsystem sind in Tab. 5.1 und 5.2 zusammengefaßt.

Tab. 5.1: Brennelementdaten für die Zonen des unterkritischen Systems im Vergleich zum IFR-Core

	Inneres Blanket	Äußeres Blanket	Kritisches Core
Höhe / cm	200,0	200,0	96,5
Brennstab-Durchmesser / cm	0,508	0,546	0,724
Brennstab-Pitch / cm	0,838	0,846	0,854
Anzahl der Brennstäbe pro BE	271	271	271
TRU/SM Anreicherung / %	20,5	20,5	24,6
Brennstoff / Vol.-%	20,0	23,0	38,5
Strukturmaterialien / Vol.-%	25,3	25,3	25,6
Kühlmittel / Vol.-%	54,7	51,7	35,9

Tab. 5.2: Thermodynamische Daten des unterkritischen Systems

Allgemeine Daten		Daten für die targetnächste Reihe (Kanal 1)	
Thermische Leistung / MW	1950	Leistungsdichte / (MW/m ³)	450
Protonenenergie / MeV	1600	T _{Aus} / K	815
Beschleunigerstrom / mA	39		
Schwermetallinventar / t	20	T _{Brennstoff} / K	836
T _{Ein} Blanket / K	630	T _{Hüllrohr} / K	755
T _{Aus} Blanket / K	792	T _{Kühlmittel} / K	723
T _{Dampf} / K	611		

5.2 Stationäres Verhalten von Reaktor und Hybridanlage

Die radialen Flußverläufe der unterkritischen Hybridanlage und des kritischen Cores unterscheiden sich sehr (siehe Abb. 5.2). Während der Gesamtfluß im aktiven Core des Reaktors nahezu konstant bleibt, sinkt er im Blanket der unterkritischen Anlage um etwa eine Größenordnung. Ebenfalls nimmt das Flußniveau zwischen BOEC und EOEC deutlich ab, da der Eigenwert während eines Zyklus von 0,95 auf 0,93 sinkt. Somit verringert sich die Leistung von 1950 MW_{th} auf 1300 MW_{th}. Da die aufzubringende Eigenleistung für den Beschleuniger bei Annahme eines Konversionsfaktors η_C von 0,5 mit 125 MW_{el} konstant bleibt, sinkt

$$\eta_G = \frac{\eta_{el} \cdot P_{th} - \frac{P_B}{\eta_C}}{P_{th}} = \frac{\eta_{el} \cdot C \cdot \frac{k}{1-k} \cdot P_B - \frac{P_B}{\eta_C}}{C \cdot \frac{k}{1-k} \cdot P_B} \quad (\text{Gl. 5.1})$$

$$= \eta_{el} - \frac{1-k}{C \cdot k \cdot \eta_C} ,$$

η_{el}	Wirkungsgrad für die Umwandlung in elektrische Energie
P_{th}	thermische Leistung der Anlage nach Gl. 3.10
η_C	Wirkungsgrad für die Umwandlung elektrischer Energie in Strahlleistung
P_B	Strahlleistung
C	Proportionalitätsfaktor siehe Gl. 3.10
k	Multiplikationsfaktor der unterkritischen Anlage

das ein Maß für die Gesamteffizienz des Prozesses bildet von 0,24 auf 0,20, wenn man η_{el} mit 0,3 konservativ ansetzt. Bei so großen thermischen Leistungsschwankungen wird allerdings ein optimaler Betrieb der Komponenten des Primär- und Sekundärkreises nur während einer kurzen Zeitspanne möglich sein, da zur Aufrechterhaltung der Temperaturniveaus die durchgesetzten Massenströme stark variiert werden müssen.

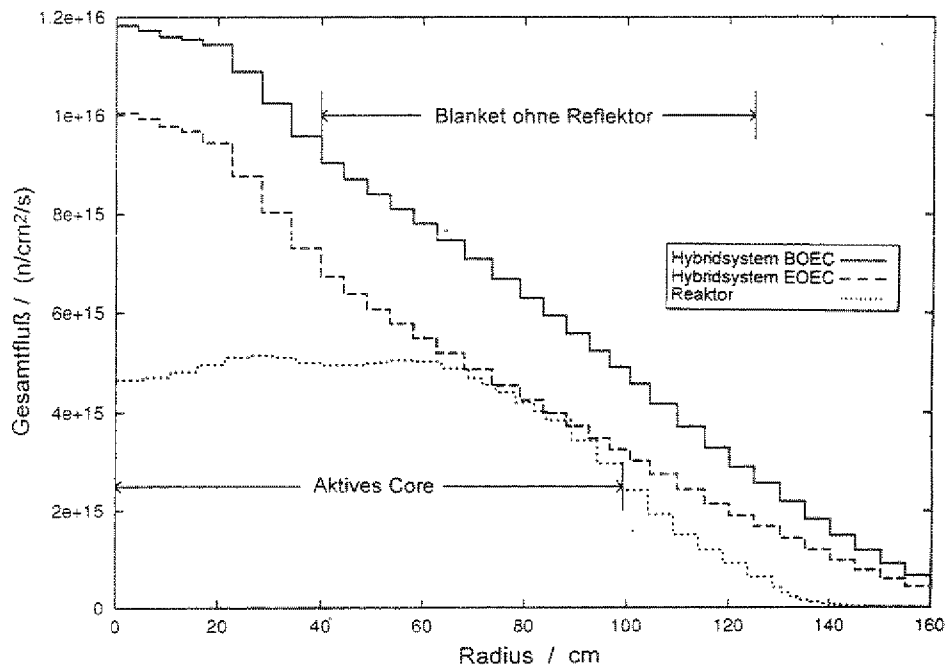


Abb. 5.2: Radiale Flußverteilung in der Hybridanlage zu Beginn (BOEC) und gegen Ende des Gleichgewichtszyklus (EOEC) im Vergleich zum typischen IFR-Reaktorcore

Grundsätzlich sind an dieser Stelle zwei Gegenmaßnahmen denkbar:

- abbrennbare Gifte und / oder das Verfahren von Kontrollstäben halten den Eigenwert während eines Zyklus konstant oder
- der Beschleunigerstrom wird mit zunehmendem Abbrand angehoben.

Vorteil der ersten Maßnahme ist, daß keine Verluste im Wirkungsgrad auftreten. Unter Umständen sind aber sicherheitstechnisch nicht zu akzeptierende Reaktivitäten in Kontrollstäben zu binden. Die zweite Maßnahme dagegen hält im Gegensatz zu dem hier berechneten Fall die thermische Leistung und somit alle Parameter in Primär- und Sekundärkreis konstant. Da η_{el} somit durch kluge Wahl der Betriebsparameter der Einzelkomponenten optimiert werden kann, bietet sich hierdurch auch die Möglichkeit höhere Gesamtwirkungsgrade η_G einzustellen, sofern η_C einigermaßen konstant bleibt und Protonenbeschleuniger, Fenster und Target diese Adaption des Stromes zulassen. Ein derartig langsames Hochfahren des Stromes ist seitens des Beschleunigers unproblematisch; jedoch stellt sich die Frage nach der Veränderung des Konversionsfaktors η_C . Für das hier untersuchte System wäre während eines Zyklus eine Anhebung des Stromes um 50 % von 39 mA auf etwa 60 mA nötig.

Die axiale Flußverteilung nach Abb. 5.3 weist aus, daß die Neutronenproduktion im Wolfram-Target etwas einseitig nach oben hin verschoben ist, da das Flußmaximum bei einer Höhe von weniger als 125 cm befindet. Die ausgewiesenen Schwankungen im Neutronenfluß lassen sich auf den heterogenen Aufbau des Targets bzw. den Wechsel von Wolframscheibe, Natriumkühlung und dazwischenliegendes Vakuum zurückführen.

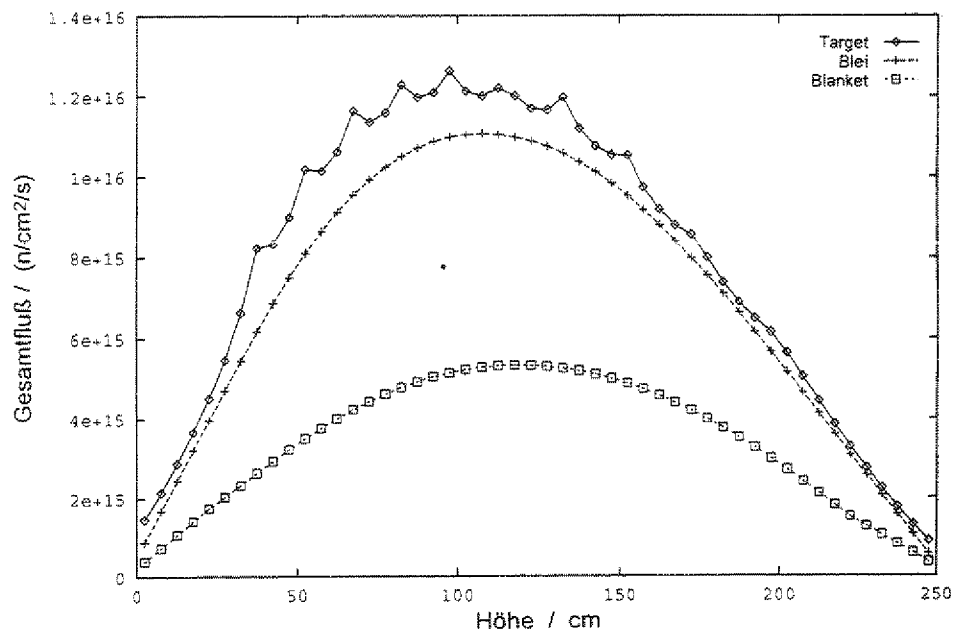


Abb. 5.3: Axiale Flußverteilung in der Hybridanlage zu Beginn des Gleichgewichtszyklus (BOEC)

Das Neutronenspektrum der unterkritischen Anordnung zeigt sich erwartungsgemäß als typisches Spektrum eines schnellen Reaktors mit einem Maximum bei etwa 300 keV. Das Maximum der Quellspektren ist demgegenüber mit etwa 1 MeV etwas nach oben verschoben bei deutlich ausgeprägtem Hochenergieanteil.

5.3 Dynamik von Reaktor und Hybridanlage

5.3.1 Grundlagen einer mathematischen Beschreibung

Die Kinetik eines Reaktors kann umfassend durch punktkinetische Gleichungen beschrieben werden. Die unterkritische Anlage stellt keine Sonderform dar, denn sie ist in der Anfahrcharakteristik des kritischen Reaktors quasi enthalten, wenn man an die Verwendung einer Neutronenquelle zur Inbetriebnahme denkt.

Punktkinetische Gleichungen treten in unterschiedlichsten Formen auf. In ihrer umfangreichsten Form beschreiben sie die Kinetik des Reaktors ebenso vollständig wie die zeitabhängige Transportgleichung, da anstelle von Leistungsänderungen (der Zielgröße der üblichen Vereinfachungen) die Änderung gewichteter Integrale der Konzentrationen $C(t)$ und der Neutronenanzahlen $T(t)$ gemäß

$$T(t) = \int_{\text{Anlage}} dV \int_0^{\infty} dE W(r, E) \cdot \frac{1}{v(E)} \cdot \Phi(r, E, t) \quad (\text{Gl. 5.2})$$

$W(r, E)$	anzupassende Gewichtsfunktion
$\Phi(r, E, t)$	Neutronenfluß
$v(E)$	Geschwindigkeit

betrachtet wird. Der Fluß Φ und seine Amplitude T sind über die Formfunktion S

$$S(r, E, t) = \frac{\Phi(r, E, t)}{T(t)} \quad (\text{Gl. 5.3})$$

verknüpft. Unter Verwendung der obigen Definitionen lassen sich sowohl aus der zeitabhängigen Diffusionsgleichung aber auch aus der Transportgleichung die sogenannten punktkinetischen Gleichungen:

$$\begin{aligned} \frac{dT(t)}{dt} &= \frac{\rho - \bar{\beta}}{\Lambda} \cdot T(t) + \sum_{i=1}^I \lambda_i \cdot C_i(t) + \dot{Q}(t) \\ \frac{dC_i(t)}{dt} &= \frac{\beta_i}{\Lambda} \cdot T(t) - \lambda_i \cdot C_i(t) \quad (i = 1, 2, \dots, I) \end{aligned} \quad (\text{Gl. 5.4})$$

ρ	Reaktivität
$\bar{\beta}$	effektiver Anteil verzögerter Neutronen
Λ	prompte Neutronenlebensdauer
$\dot{Q}$	gewichtetes Integral der externen Quellneutronen

herleiten [5.4].

Es scheint hilfreich vor der Anwendung und numerischen Lösung obiger Gleichungen in Kopplung mit zeitabhängigen Wärmetransportgleichungen die Lösung vereinfachter Fälle analytisch zu untersuchen. Durch Umformen von Gl. 5.4 folgt, daß für $\rho < 0$ alle Transienten gegen eine stationäre Lösung

$$T(t \rightarrow \infty) = -\frac{\Lambda}{\rho} \cdot \dot{Q} \quad (\text{Gl. 5.5})$$

streben. Somit ist das neue Gleichgewicht bei konstanter Quelle nur von den Änderungen der Reaktivität ρ abhängig. Vernachlässigt man den Einfluß verzögerter Neutronen, so stellt sich nach einem Reaktivitätssprung von ρ_1 auf ρ_2 das neue Gleichgewicht nach Durchlaufen einer Exponentialfunktion ein, deren Zeitkonstante durch die prompte Neutronenlebensdauer bestimmt wird:

$$T(t) = \left(\frac{\Lambda}{\rho_2} - \frac{\Lambda}{\rho_1} \right) \cdot \dot{Q} \cdot e^{\left(\frac{\rho_2}{\Lambda} t \right)} - \frac{\Lambda}{\rho_2} \cdot \dot{Q} \quad (\text{Gl. 5.6})$$

In der Existenz eines neuen Gleichgewichts zeigt sich ein zum kritischen Reaktor fundamental unterschiedliches Verhalten.

Für viele Anwendungen, insbesondere wenn man nur an qualitativen Ergebnissen interessiert ist, kann man in Gl. 5.4 $T(t)$ durch den Fluß ϕ oder die Leistungsdichte P ersetzen. Diese Näherung ist allerdings nur dann vernünftig, wenn die Flußform sich während der untersuchten Transiente nur unwesentlich ändert. Unmittelbare Folge ist, daß die Reaktivität in einfacher Form vom Multiplikationsfaktor k abhängt, und man erhält:

$$\rho = \frac{k-1}{k} \quad \text{mit} \quad k = \frac{\text{Produktionsrate}}{\text{Absorptionsrate} + \text{Leckage}} \quad (\text{Gl. 5.7})$$

Wie schon in Kap. 3 und 4 ausgeführt, folgt der Multiplikationsfaktor k aus einer Neutronenflußrechnung unter Einschluß der Quellneutronen. Dieser Wert unterscheidet sich in dem hier untersuchten schnellen System mit 0,943 nur geringfügig von dem Eigenwert der Kritikalitätsberechnung ohne Quelle von 0,95.

Durch Variationen der Kühlmitteldichte, der radialen und axialen Dimensionen lassen sich die zugehörigen Reaktivitätskoeffizienten ermitteln. Gleichzeitig kann man feststellen, daß für die in den Kapiteln 5.1 und 5.2 beschriebene unterkritische Hybridanlage und die hier zu untersuchenden Transienten die Korrelation zwischen Multiplikationsfaktor und Fluß bzw. Leistung in ausreichender Weise gegeben ist. Tab. 5.3 bringt zum Ausdruck, daß erwartungsgemäß die ermittelten Reaktivitätskoeffizienten im wesentlichen dem Referenzreaktor ähneln. Einzige Ausnahme ist der stark positive Kühlmittelkoeffizient des Natriums.

Tab. 5.3: Reaktivitätskoeffizienten der unterkritischen Anlage und des Reaktors

	Hybridanlage	Reaktor
Anteil verzögerter Neutronen	$3,31 \cdot 10^{-3}$	$3,53 \cdot 10^{-3}$
Prompte Neutronenlebensdauer / s	$9,05 \cdot 10^{-7}$	$2,49 \cdot 10^{-7}$
Axiale Ausdehnung / (cents/K)	-0,095	-0,11
Radiale Ausdehnung / (cents/K)	-0,22	-0,22
Dopplerkoeffizient / (cents/K)	-0,099 ^a	-0,099
Kühlmittelkoeffizient / (cents/K)	+0,58	+0,18

^avom kritischen Core übernommen

Sämtliche Transienten werden aufgrund der Begrenzung der verwendeten vereinfachten Programmversion maximal bis zum Verdampfen des Natriums simuliert. Die Dampfblasenbildung erfolgt bei einer Druckentlastung bei 1250 K und ohne Druckentlastung bei ca. 1340 K. Ein vollständiges Verdampfen des Natriums zu 100 % führt zu überkritischen Zuständen; bei 90 % stellt sich immerhin ein Multiplikationsfaktor von 0,9968 ein. Ebenfalls außerhalb der Betrachtung bleiben Schmelzprozesse der Brennelemente, die bei ca. 1360 K einsetzen.

5.3.2 Kritikalitätsstörfälle

Kritikalitätsstörfälle (TOP) sind in schnellen Reaktoren von besonderem Interesse. Der Grund hierfür ist im Vergleich zu thermischen Systemen, daß aufgrund des schnelleren Spektrums und der höheren Anreicherung die negative Doppler-Rückkopplung und somit der prompte Anteil eines negativen Temperaturkoeffizienten bedeutend kleiner ausfällt. Dieses gilt insbesondere für Reaktoren, die metallischen Brennstoff verwenden, da Ausdehnungseffekte des Brennstoffs aufgrund der Trägheit der Massen leicht verzögert einsetzen. Gleichzeitig bedeutet der positive Kühlmittelkoeffizient, daß schnelle Reaktoren nicht in ihrer kritischsten Anordnung betrieben werden. Prompt überkritische Zustände mit $\Delta\rho > 1 \$$ sind in schnellen Reaktoren besonders gefährlich, da die kleinere prompte Neutronenlebensdauer in diesem Fall zu sehr kurzen Reaktorperioden und somit extremen Leistungssteigerungen führt.

Größte Reaktivitätssteigerungen sind in schnellen Reaktoren zu erwarten, wenn man hypothetisch annimmt, daß sämtliches Kühlmittel verdampft und zusätzlich durch Gravitationseinflüsse die obere Hälfte des Cores in die untere Hälfte fällt. Analysen dieser Art, die eine obere Grenze für die explosive Energiefreisetzung geben, gehen auf die grundlegende Arbeit von *Bethe* und *Tait* [5.5] zurück, die gezeigt hat, daß die freigesetzte Energie mit dem Volumen des Reaktors und der zugeführten Reaktivitätsrate steigt. Setzt man typischerweise eine Reaktivitätszufuhr von 50 $\$/s$ an, so ergibt sich für einen Reaktor von 1000 MW_{el} eine Sprengkraft von größenordnungsmäßig 5 t TNT. Spätere genauere Analysen unter zusätzlicher Berücksichtigung einer im allgemeinen negativen Doppler-Rückkopplung zeigten jedoch, daß obiger Wert sich bei geeigneter Reaktorauslegung um mehr als eine Größenordnung nach unten reduziert [5.6]. Wegen der Schwere der Folgen bleibt es aber Aufgabe der Sicherheitsanalysen nachzuweisen, daß Leistungsexkursionen dieser Art mit explosionsartigen Energiefreisetzungen nicht auftreten können und selbsttätig ausgeschlossen sind.

Kritikalitätsstörfälle können verschiedene Ursachen haben. Eine davon ist das irrtümliche Verfahren von Kontrollstäben. Für den IFR hat jeder der Stäbe etwa eine Wertigkeit von etwa 0,1 $\$$. Die gesamte Überschußreaktivität steigt mit sinkendem Konversionsgrad und kann 10-20 $\$$ betragen (siehe auch Kap. 3). Als hypothetischer Störfall mit Eintrittswahrscheinlichkeiten von weniger als $10^{-6}/a$ wird das fehlerhafte Verfahren sämtlicher Kontrollstäbe betrachtet. Durch Auswahl geeigneter Motoren und durch die Tatsache, daß die Gesamtanlage im wesentlichen drucklos ist, ist die Reaktivitätszufuhr auf 0,05 $\$/s$ beschränkt [5.7]. Für Störfälle dieser Art konnte rechnerisch nachgewiesen werden, daß zwar nun im Gegensatz zu dem irrtümlichen Verfahren eines Kontrollstabes (bis zu 0,4 $\$$) Teile des Cores schmelzen, es aber zu keinen Leistungsexkursionen kommt. Die Spannbreite der untersuchten Reaktoren umfaßt in [5.8] 4 heterogene IFR-Kernauslegungen mit 900 MW_{th} und H/D Verhältnissen von 0,5 bis 0,06 mit im Natrium über den Voidkoeffizienten gebundenen Reaktivitäten von 5,4 $\$$ bis -2,2 $\$$ und Überschußreaktivitäten von 0,45 $\$$ bis 12,36 $\$$. Die Gründe für die oben beschriebene relativ gutmütige Systemantwort liegen wesentlich in der Eigenschaft des Brennstoffs begründet, bei noch intakter Hülle innen aufzuschmelzen und sich aufgrund des im Corebereich höheren Drucks der Spaltgase axial auszudehnen (schnell wirkende aber nicht prompte negative Rückkopplung). Bei einem später einsetzen-

den Versagen der Hülle ist der Brennstoff aufgrund des niedrigen Temperaturunterschieds mit dem Kühlmittel Natrium kompatibel. Mit sekundären chemischen Reaktionen ist nicht zu rechnen. Der geschmolzene Brennstoff kann somit aus dem Core ausgetragen werden, so daß die eingangs angesprochenen Kompaktierungen mit katastrophalen Folgen ausbleiben. Diese Eigenschaften des metallischen Brennstoffs konnten im wesentlichen experimentell verifiziert werden [5.9, 5.10].

Aufgrund der Wertigkeit eines Kontrollstabes und wegen der Begrenzung der vereinfachten Programmversion, die ein Sieden des Natriums nicht mehr expliziert modelliert, ist es für den hier beabsichtigten Vergleich zwischen unterkritischer Anlage und Reaktor sinnvoll, die Gesamtreaktivitätszufuhr auf größenordnungsmäßig 1 \$ zu beschränken. Sie wird gleichmäßig verteilt auf einen Zeitraum von 50 s zugeführt, so daß ein teilweises Schmelzen der Brennelemente unterbleibt. Trotzdem sind diese Werte aber charakteristisch für die Störfallanalyse kritischer Reaktoren mit metallischem Brennstoff.

Ein Vergleich der Leistungstransienten (Abb. 5.4) zeigt, daß es im unterkritischen System zu einer Leistungsüberhöhung von weniger als 10 % kommt, während im kritischen System kurzzeitig das $2\frac{1}{2}$ -fache der Nennleistung erreicht wird. Dieses unterschiedliche Verhalten läßt sich direkt auf die Existenz einer stationären Lösung der punktkinetischen Gleichungen im unterkritischen Fall zurückführen.

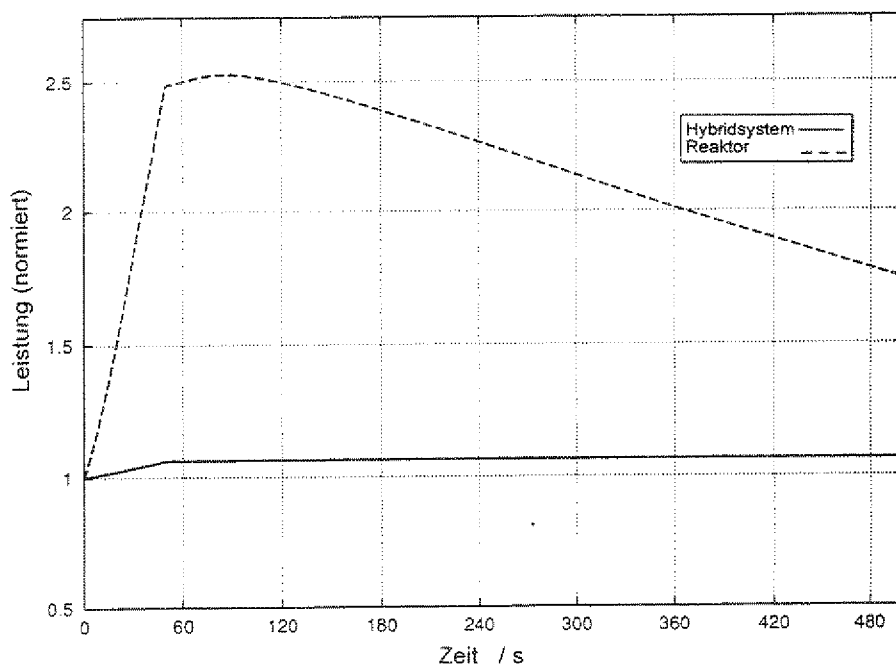


Abb. 5.4: Vergleich der Leistungstransienten von unterkritischer Anlage und Reaktor bei Zufügen von 1 \$ gleichmäßig verteilt über 50 s; eine sekundärseitige Abfuhr der produzierten Energie wird unterstellt

Dementsprechend gering fallen auch im unterkritischen System die Temperaturerhöhungen aus. Sie stabilisieren sich auf einem um etwa 20 K höheren Niveau im Vergleich zu den ursprünglichen Betriebstemperaturen (siehe Abb. 5.5).

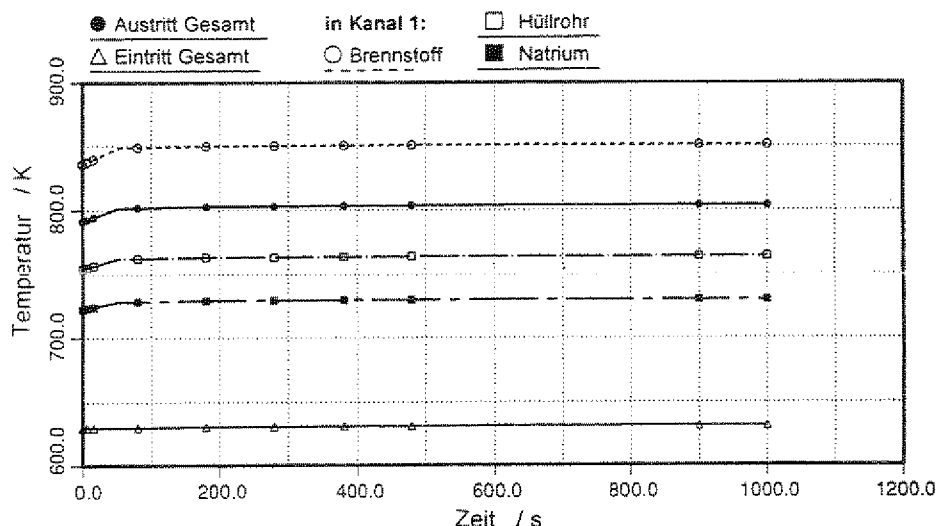


Abb. 5.5: Temperaturen in dem thermisch am höchsten belasteten Strömungskanal der unterkritischen Anlage nach Zufügen von 1 \$ gleichmäßig verteilt über 50 s; eine sekundärseitige Abfuhr der produzierten Wärme wird unterstellt

Da die punktkinetischen Gleichungen für unterkritische Anlagen sich direkt zum späteren Gleichgewicht auflösen lassen (siehe Kap. 5.3.2), ist dieses auch in der Praxis von der Geschwindigkeit der Reaktivitätszufuhr weitgehend unabhängig. Erwähnenswert ist, daß bei den oben gerechneten Transienten der **Gesamttemperaturkoeffizient der unterkritischen Anlage positiv** ist. Dieses beeinflusst jedoch den Störfallverlauf im Gegensatz zu einem vergleichbaren Reaktor, bei dem der negative Temperaturkoeffizient essentiell für die nukleare Stabilität der Anlage ist, nur unerheblich.

Voraussetzung für das sich einstellende Temperaturgleichgewicht ist, daß der Sekundärkreislauf in der Lage ist, die gestiegene thermische Leistung abzuführen. Andernfalls werden sich bei einem positiven Gesamttemperaturkoeffizienten der unterkritischen Anlage die Temperaturen nicht stabilisieren. Für einen IFR ausgelegte Sekundärkreisläufe können etwa bis zu 120 % der Nominalleistung über längere Zeiträume abführen. Höhere thermische Leistungen, und hierzu braucht die Anlage nicht überkritisch zu sein, würden zum Turbinenschnellschluß und zum zusätzlichen Ausfall der sekundären Wärmesenke führen.

Die Systemantwort für den Fall, daß der Sekundärkreis trotz erhöhten Leistungsangebotes nur die Nominalleistung abführt, ist in Abb. 5.6 dargestellt. Zu diesem Zweck wird der ursprünglich positive Reaktivitätsbeitrag des Natriums zu Null gesetzt, so daß insgesamt ein **negativer Temperaturkoeffizient** resultiert. Es zeigt sich, daß noch nach 1000 s sämtliche Temperaturen im Primärkreis ansteigen, da ein Mißverhältnis zwischen produzierter und abgeführter Leistung besteht. Ein Gleichgewicht wird sich erst auf bedeutend höherem Temperaturniveau einstellen. Gemäß einer überschlägigen Abschätzung mit dem gesamten Temperaturkoeffizienten ohne den Natriumanteil braucht man zum Ausgleich von 1 \$ etwa einen Temperaturanstieg von 250 K.

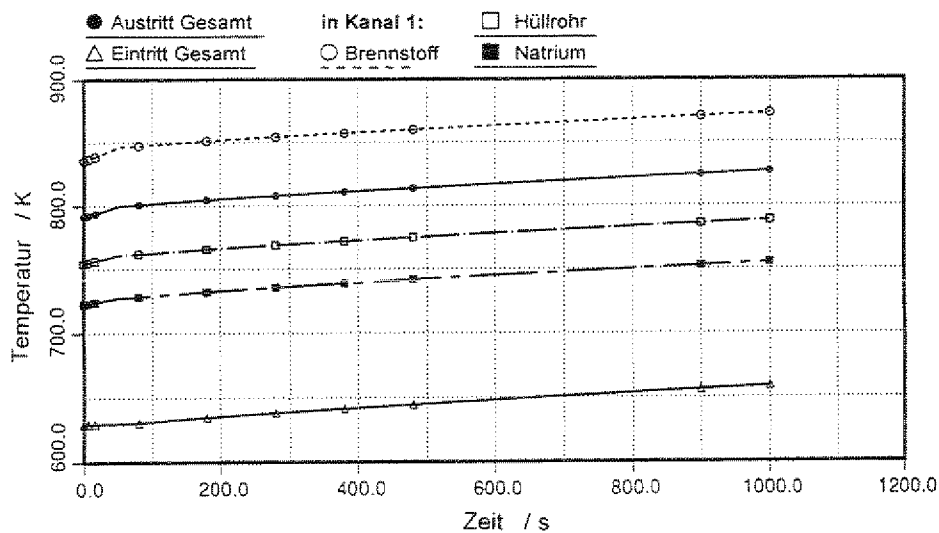


Abb. 5.6: Zufuhr von 1 \$ gleichmäßig verteilt über einen Zeitraum von 50 s in die unterkritische Anlage; der Natriumkoeffizient wurde zu 0 \$/K gesetzt, so daß der Gesamttemperaturkoeffizient (siehe Tab. 5.3) negativ wird; sekundärseitig wird nur die Nominalleistung abgeführt.

In der Literatur wird ebenfalls diskutiert, das Sicherheitsverhalten von schnellen natriumgekühlten für die Transmutation ausgelegten Systemen dadurch zu verbessern, daß die Systeme nur leicht unterkritisch sind - typischerweise spricht man über Multiplikationsfaktoren k von 0,99. In diesem Zusammenhang ist die unter [5.11] aufgeführte Studie zu nennen, die das Sicherheitsverhalten ebensolcher Systeme mit kritischen Reaktoren vergleicht. Das Ergebnis der vorgenommenen Simulationen, die sich auf Kritikalitätsstörfälle beschränken, ist, daß bei extremen Störfällen (Zugabe von 247 \$/s über 15 ms) im unterkritischen System bedeutend weniger Energie freigesetzt wird als im kritischen. Allerdings weisen die unterkritischen Systeme - die Rechnung wurde nach etwa 0,02 Sekunden abgebrochen - Leistungsüberhöhungen von einem Mehrfachen der Nennleistung auf, der durch Abschalten des Beschleunigers - also einer aktiven Maßnahme - begegnet wird. Ohne eine Wertung solcher Hybridanlagen hier vorzunehmen, macht dieses Ergebnis deutlich, daß für eine Sicherheitsbetrachtung Störungen der Wärmeabfuhr, sei es durch Ausfall der Pumpen des Primärkreises oder durch Ausfall der Wärmesenke im Sekundärkreislauf zu diskutieren sind. Dieses soll im folgenden zunächst unter der Annahme geschehen, daß es für unbestimmte Zeit nicht gelingt, den Beschleuniger abzuschalten.

5.3.3 Störungen der Wärmeabfuhr

Störungen der Wärmeabfuhr können auf Ausfälle in Primär- oder Sekundärkreislauf zurückzuführen sein. Die Gründe hierfür sind äußerst vielfältig, aber im Rahmen dieser Arbeit, die ja nur das Gefährdungspotential dieser Störfälle aufzeigen will, von sekundärem Interesse. Trotzdem soll auf einen wesentlichen Unterschied hingewiesen werden. Während Störfallursachen für den Ausfall der Wärmesenke (LOHS) sowohl in überhöhten Leistungsproduktionen im Core (vorhergehender Kritikalitätsstörfall) aber auch im Ausfall einer Vielzahl von Komponenten des Sekundärkreislaufs zu finden sind, erfordert der Totalausfall

des Primärkreislaufs als Verlust des Kühlmittelmassenstroms durch das Core (LOF) den gleichzeitigen Ausfall aller Primärkühlmittelpumpen. Die mit Abstand wahrscheinlichste, aber nicht alleinige, Ursache hierfür ist die Unterbrechung der Stromversorgung zu den Pumpen aufgrund eines Totalausfalls des äußeren Netzes nach vorher erfolgten inneren Netzausfall. In diesem Fall würde ein vom äußeren Netz mit Strom versorgter Beschleuniger - dieses wird aus Anfahrgründen erforderlich sein - keine Quellneutronen mehr bereitstellen, bevor sich der Massenstrom im Core wegen der zu unterstellenden Trägheit der Pumpen merklich reduziert.

Die Systemantwort unterkritischer Anlagen bei eingeschaltetem Beschleuniger auf Störungen der Wärmeabfuhr ist grundsätzlich schlechter als die von kritischen Systemen. Der Grund hierfür liegt darin, daß der Temperaturkoeffizient, sofern er negativ ist, zwar die Möglichkeit hat, im Verlauf des Störfalls die Leistungsproduktion auf ein niedrigeres Niveau zu drosseln, aber die Leistung größenordnungsmäßig konstant bleibt und keinesfalls gegen Null geht. Diese Tendenz ist umso ausgeprägter je unterkritischer das System ist, da gleichzeitig die Wirkung eines negativen Temperaturkoeffizienten sinkt. Selbst kleine Leistungen können jedoch zu katastrophalen Störfällen führen, falls die Wärmeabfuhr nicht gesichert ist. Dieses ist aus der Behandlung von Kühlmittelverluststörfällen beim LWR und der nachfolgenden Problematik der Nachwärmeabfuhr hinlänglich bekannt.

5.3.3.1 Verlust der Wärmesenke im Sekundärkreis

Das Verhalten des hier untersuchten unterkritischen Systems im Vergleich zum kritischen Referenzsystem bei Ausfällen der Wärmesenke (LOHS) ist auf den folgenden drei Abbildungen dargestellt. Aufgrund des großen positiven Kühlmittelkoeffizienten gemäß Abb. 5.7 steigt die Leistung exponentiell mit fortschreitendem Störfallverlauf (Abb. 5.8).

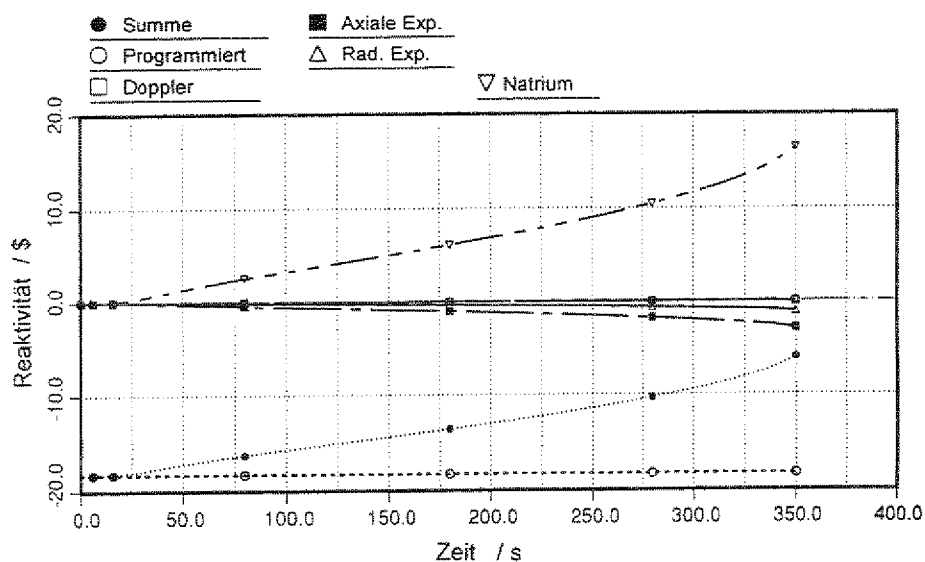


Abb. 5.7: Reaktivitätsbeiträge für die unterkritische Hybridanlage bei Ausfall der Wärmeabfuhr im Sekundärkreislauf (LOHS); für $t = 0$ beträgt der Multiplikationsfaktor k 0,943 entsprechend einer programmierten Reaktivität ρ von -18,3 \$

Das Natrium im Primärkreislauf erreicht in weniger als 350 s bei etwa 3-facher Nennleistung Siedetemperatur (Abb. 5.8). An dieser Stelle werden alle Rechnungen abgebrochen, es ist jedoch zuletzt auch aufgrund des nun einsetzenden positiven Voideinflusses mit einem partiellen Schmelzen der Brennelemente zu rechnen. Für schnelle natriumgekühlte Systeme denkbare negative Temperaturkoeffizienten lassen sich über ein zu Nullsetzen des positiven Natriumeinflusses simulieren. Die gestrichelten Kurven in Abb. 5.8 und Abb. 5.9 zeigen den berechneten Störfallverlauf. In diesem Fall erreicht Natrium seine Verdampfungstemperatur nach etwa 1000 s.

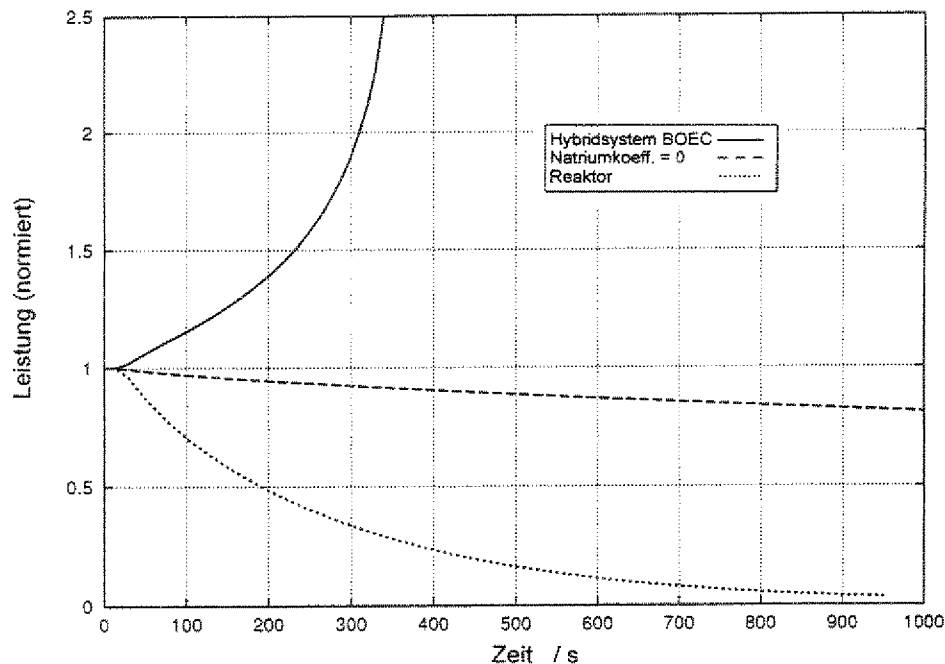


Abb. 5.8: Leistungstransienten der Hybridanlage für den Beginn des Gleichgewichtszyklus (BOEC) (positiver Gesamttemperaturkoeffizient) und bei einem Natriumkoeffizienten von 0 \$/K im Vergleich zum IFR-Core; ein Ausfall der sekundärseitigen Wärmeabfuhr (LOHS) wird unterstellt.

Der zum Vergleich eingezeichnete kritische Reaktor zeigt ein bedeutend gutmütigeres Verhalten. Gemäß der ähnlichen negativen Temperaturkoeffizienten (siehe Tab. 5.3) wird das System aufgrund der höheren Temperaturen unterkritisch und die Leistung reduziert sich auf das Nachwärmeniveau.

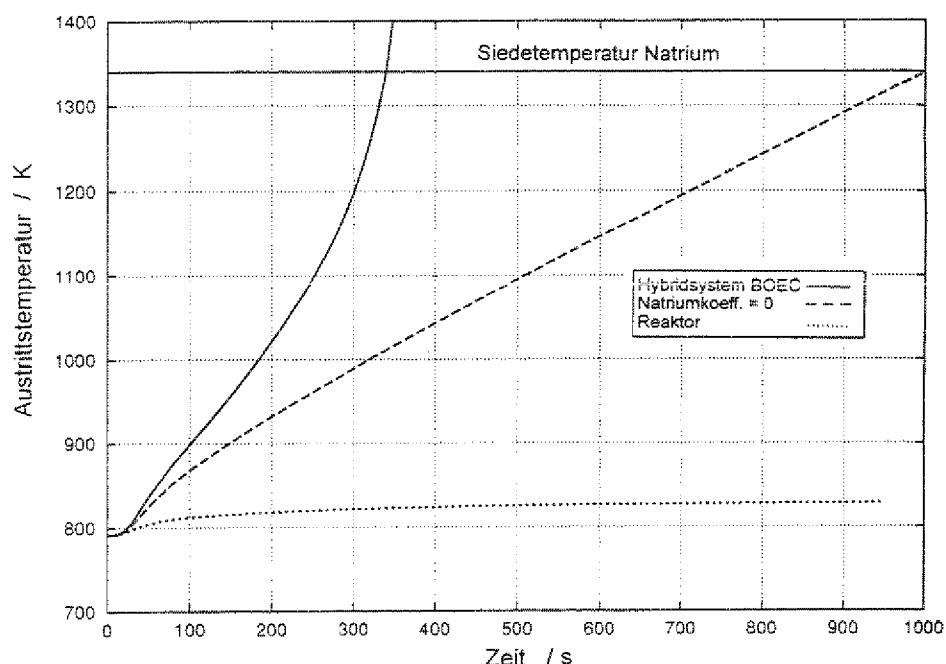


Abb. 5.9: Temperaturtransienten der Hybridanlage für den Beginn des Gleichgewichtszyklus (BOEC) (positiver Gesamttemperaturkoeffizient) und bei einem Natriumkoeffizienten von 0 $^{\circ}\text{C}/\text{K}$ im Vergleich zum IFR-Core; ein Ausfall der sekundärseitigen Wärmeabfuhr (LOHS) wird unterstellt.

5.3.3.2 Ausfall der Primärkühlmittelpumpen

Der Ausfall der Primärkühlmittelpumpen führt zu einer näherungsweise exponentiellen Reduktion der Kühlmittelströme durch das Core (LOF). Im allgemeinen darf man annehmen, daß die trägen Massen der Pumpen und des Kühlmittels noch einige Zeit für einen Massendurchsatz durch das Core sorgen. Für die hier vorgenommenen Simulationen wird eine Halbierung der Massenströme alle 6 s angesetzt. Ein Vergleich der Temperaturtransienten für zwei verschiedene Hybridsysteme und das IFR-Core ist in Abb. 5.10 dargestellt.

Es zeigt sich, daß es in beiden unterkritischen Systemen (dem explizit ausgelegten und dem gestrichelt gezeichneten mit einem negativen Temperaturkoeffizienten) in weniger als 20 s zum Sieden des Natriums im Primärkreis kommt. Die im Vergleich zum Verlust der Wärmesenke bedeutend steileren Transienten erklären sich aus der geringeren Masse der wärmespeichernden Medien, die sich natürlich auch entsprechend schneller aufheizen. Im Regelfall wird zu erwarten sein, wie schon oben ausgeführt, daß der Beschleuniger entweder selbsttätig oder durch entsprechende Regelvorrichtungen abgeschaltet wird. Der entsprechende Temperaturverlauf, für den Fall, daß der Beschleuniger gleichzeitig mit den Pumpen vom Netz geht, ist ebenfalls in Abb. 5.10 dargestellt.

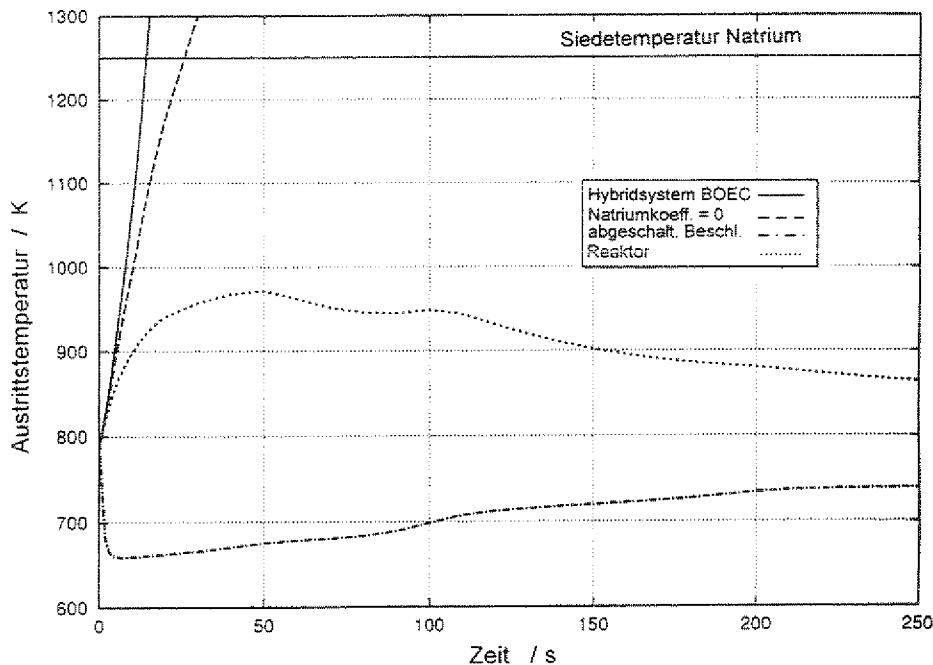


Abb. 5.10: Temperaturtransienten der Hybridanlage für den Beginn des Gleichgewichtszyklus (BOEC) (positiver Gesamttemperaturkoeffizient), bei einem Natriumkoeffizienten von 0 $^{\circ}\text{C}/\text{K}$ und bei Abschalten des Beschleunigers im Vergleich zum IFR-Core; ein Ausfall der Primärkühlmittelpumpen (LOF) wird unterstellt.

Erwartungsgemäß reduziert sich in diesem Fall die produzierte Leistung innerhalb kürzester Zeit auf das Nachwärmeniveau. Die Nachwärmeleistung ist auch für den erneuten Anstieg der Temperaturen verantwortlich, die sich letztlich nur bei ausreichend kleinen Leistungen (Reaktor mit $900 \text{ MW}_{\text{th}}$) selbsttätig abführen läßt. Dieses geschieht über Naturkonvektionsströmungen im Natriumpool und über freie Konvektion an der Außenwandung des Systems.

Abb. 5.10 macht auch deutlich, daß das kritische System sich selbsttätig aufgrund des negativen Temperaturkoeffizienten abschaltet. Da zum Verdampfen des Natriums ein Sicherheitsabstand von etwa 300 K verbleibt, sind Beschädigungen des Cores ausgeschlossen. Dieser günstige Störfallverlauf ist hauptsächlich auf die hohe Wärmeleitfähigkeit metallischer Brennstoffe zurückzuführen, welche zu niedrigen Brennstofftemperaturen und damit zu einer geringen Reaktivitätsbindung durch den Dopplereffekt führt. Bei Abnahme der Brennstofftemperaturen während des Störfallverlaufes aufgrund der Reduktion der Leistung kann somit der Dopplereffekt nicht stark positiv gegensteuern. Dementsprechend gelten für oxidische Brennstoffe¹, die deutlich höhere mittlere Brennstofftemperaturen aufweisen, ungünstigere Verläufe.

¹Oxidische Brennstoffe haben eine 2-3 fach höhere negative Doppler-Rückkopplung. Dieses ist in Kritikalitätsstörfällen solange vorteilhaft, bis es zum Schmelzen des Brennstoffs kommt. Danach sind bei oxidischen Brennstoffen Blockagen und entsprechend reduzierte Kühlmittelmassenströme durch das Core zu erwarten. Letztlich können zwei Störfälle kombiniert auftreten, nämlich ein Kritikalitätsstörfall (TOP) und ein folgender Verlust der Durchströmung des Cores (LOF) aufgrund von Blockagen

Gemäß [5.8] sind IFR-Cores verschiedener Geometrien sogar dazu in der Lage beim plötzlichen Aussetzen der Pumpen (Halbierung des Kühlmitteldurchsatzes innerhalb von 0,25 s) Leistungsexkursionen zu vermeiden. Die rechnerisch ermittelten und teilweise experimentell bestätigten Folgen sind primär ein Aufschmelzen des Brennstoffs bei noch intakten Brennstoffhüllen verbunden mit einer starken axialen Ausdehnung im Inneren des Brennstabs. Ebenfalls kommt es zu einem partiellen Versagen und Schmelzen der Brennstäbe. Wie schon in Kap. 5.3.2 analog für den Kritikalitätsstörfall ausgeführt, kann der Brennstoff aber von dem mit dem Brennstoff kompatiblen Natrium aus dem Core ausgetragen werden.

5.4 Schlußfolgerungen

Für das hier unterstellte unterkritische schnelle System wurde gezeigt, daß es nicht das gesamte Spektrum der Störfälle besser beherrscht als der kritische Reaktor. Grundsätzliche Vorteile sind bei Kritikalitätsstörfällen auszumachen; bei verschiedenen Störungen der Wärmeabfuhr weist allerdings der Reaktor das günstigere Verhalten auf. Diese Schlußfolgerung läßt sich sicherlich auch auf andere unterkritische Systeme insoweit übertragen, als daß bei Sicherheitsanalysen den Störungen der Wärmeabfuhr erhöhte Aufmerksamkeit zu schenken sein wird. Die Parameter, die in die kinetischen Gleichungen eingehen, können jedoch stark von dem hier untersuchten schnellen System abweichen. Die größten Unterschiede sind bei thermischen extern gekühlten Systemen mit flüssigem Brennstoff zu erwarten, da bei Ausfall der Pumpen des Primärkreises sogar die Mutterkernkonzentrationen als Quelle verzögerter Neutronen nicht mehr konstant sind, sondern steigen.

Das unterkritische System ist dem Reaktor weitestgehend angepaßt worden, um den Vergleich so konsistent wie möglich zu führen. Ein für die Transmutation optimiertes schnelles unterkritisches System sollte jedoch einige Veränderungen aufweisen. An erster Stelle ist die Einstellung eines negativen Temperaturkoeffizienten zu nennen. Dieser ändert zwar nicht den prinzipiellen Ausgang der verschiedenen Störfälle zur Wärmeabfuhr, doch er verschafft Zeit, um die notwendigen aktiven Maßnahmen wie etwa das Abschalten des Beschleunigers zu initialisieren und ein Schmelzen des Kerns zu verhindern. Die konstruktive Maßnahme hierzu wäre die Reduktion des H/D-Verhältnisses auf etwa 0,5, was den positiven Temperaturkoeffizienten des Natriums stark reduziert. Ein entsprechend geändertes Targetdesign würde in dem Austausch des Wolfram-Targets durch ein Bleitarget bei Beibehaltung der 1600 MeV-Protonen bestehen. Noch geringere Höhen müßten mit einer Senkung der Protonenenergie kombiniert werden, um die durch Spallation produzierten Neutronen weiterhin möglichst vollständig zu nutzen.

Die Wirkung des negativen Temperaturkoeffizienten sinkt mit zunehmendem Abstand von der Kritikalitätsbedingung. Hier ist abzuwägen, inwieweit sich der Multiplikationsfaktor k in Richtung 1 steigern läßt. Negativ zu vermerken ist, daß damit gleichzeitig das Risiko bei unbeabsichtigten Kritikalitätszugaben ansteigt. Diese können Kernschmelzen zur Folge haben, selbst wenn das System die ganze Zeit unterkritisch bleibt.

Im Rahmen der Sicherheitsanforderungen an eine unterkritische Anlage ist von höchster Wichtigkeit, daß unterkritische Systeme durch 2 k -Werte gekennzeichnet sind. Der Eigen-

wert, als Ergebnis einer k_{eff} -Rechnung gibt den Abstand zur Kritikalitätsbedingung. Hiermit lassen sich unter Einbeziehung der neutronischen Unsicherheiten Vorschriften für das Handling der Spaltstoffe im Wartungsbetrieb oder vor der Inbetriebnahme entwickeln. Der Multiplikationsfaktor k , als Ergebnis einer Fixed-Source Rechnung, dagegen bestimmt wie effektiv die Kombination aus Target und Blanket die aus der Spallationsreaktion zur Verfügung gestellten Neutronen nutzt. Dieser Faktor ist deshalb auch für Leistungsänderungen und Sicherheitsanalysen heranzuziehen. Genauere Aussagen können nur noch durch Berücksichtigung der flußgewichteten Reaktivität ρ , beispielsweise im Rahmen einer verallgemeinerten Punktkinetik, gewonnen werden.

Man muß weiterhin feststellen, daß natriumgekühlte Systeme ob unterkritisch oder kritisch **nicht katastrophenfrei** sind, da die oben durchgeführte Sicherheitsanalyse - die in diesem Umfang wohl aber mit erhöhtem Rechenaufwand weltweit für schnelle Systeme durchgeführt wird - sich in keinsten Weise mit der chemischen Stabilität der Anordnung auseinandersetzt. Sicherlich ist es bis heute glücklicherweise geltende Erfahrungstatsache, daß Probleme mit dem Kühlmittel Natrium und dessen Neigung zu exothermen Reaktionen ausschließlich den Sekundärkreislauf betroffen haben. Grundsätzlich existiert jedoch das Problem der Dichtigkeit der doppelten Behälterwandung des Pools. In Zusammenhang mit der an der Poolwandung zur passiven Nachwärmeabfuhr entlangströmenden Luft (freie Konvektion beim PRISM-Design) könnten durch externe Explosionen induzierte Undichtigkeiten zu größeren Bränden und zu großen Reaktivitätszugaben führen [5.12].

In diesem Zusammenhang ist die grundsätzliche Frage zu stellen, ob nicht die geänderte Aufgabenstellung an schnelle Reaktoren - nämlich die der Transmutation - auch zu einer neuen Reaktorlinie mit nicht brennbaren Kühlmitteln und möglichst negativen Kühlmittelkoeffizienten führen sollte. Als möglicher Kandidat würde sich hierfür Blei bzw. dessen Legierungen anbieten. Als positiv einzustufende Konzeptüberlegungen wurden hierzu sowohl am ANL [5.7] als auch in Rußland gemacht [5.13]. Durch die Verwendung von Blei als Kühlmittel in Verbindung mit einer unterkritischen Anordnung würden sich weitere Freiheitsgrade im Design ergeben, die auch der als zusätzlich anzusehenden Aufgabe einer Spaltprodukttransmutation gerecht werden könnten.

6 Transmutation in graphitmoderierten Bleischmelzen

Die Transmutation langlebiger Actiniden unter Nutzung thermischer Neutronenflüsse ist in verschiedenen Anordnungen denkbar. Hier soll alternativ zu den in den vorherigen Kapiteln vorgestellten Anlagen ein Konzept präsentiert werden, das auf einem unterkritischen graphitmoderierten Bleiblancket basiert. Flüssiges Blei wird in der Doppelfunktion als Trägermaterial für die Actiniden und Wärmeträger eingesetzt. Die in Abb. 6.1 dargestellte Referenzanordnung sieht vor, die flüssige Bleischmelze, in der die Actiniden gelöst sind, durch in Dreiecksform senkrecht angeordnete Zirkaloy-Rohre des Blankets zu pumpen. Nach einer geeigneten Zusammenführung der Rohre jeweils am oberen und unteren Ende wird die Schmelze in externen Wärmeaustauschern gekühlt.

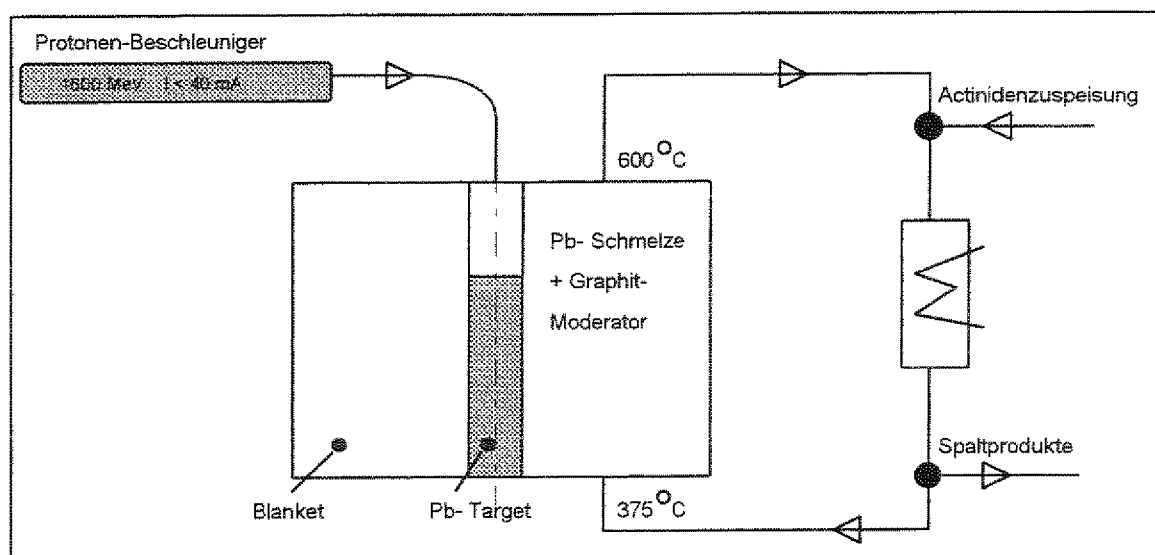


Abb. 6.1: Referenzanordnung einer unterkritischen Transmutationsanlage mit externer Kühlung auf der Basis einer Blei-Actiniden Suspension

Abb. 6.2 zeigt die einzelnen Regionen der zugehörigen Einheitszelle. Das Zirkaloy-Rohr ist aus Sicherheitsgründen analog zu dem in Kap. 4 beschriebenen LANL-Suspensionsreaktor als Doppelrohr konzipiert. Graphit umgibt die Rohre und wirkt als Moderator.

Erste neutronische Berechnungen von *Lizana* hatten zum Ergebnis [6.1], daß bei einem Protonenstrom von 25 mA und einer Beladung der Schmelze mit Actiniden von 0,5 Gew-%, entsprechend 50 g/l, thermische Flüsse von $4 \cdot 10^{14}$ n/cm²/s möglich sind. Durch Absenkung der schnellen Flußanteile und Anhebung der Beladung auf bis zu 2 Gew-% kann, wie neuere Rechnungen zeigen, eine Mindestlebensdauer der Strukturmaterialien und des Graphitmoderators im gesamten Blanket von 4 Jahren erreicht werden. Der Abstand von Eigenwert und Multiplikationsfaktor (siehe Kap. 4 und 5) fällt durch die Verwendung eines Bleitargets be-

deutend geringer als in anderen thermischen Systemen aus. Da außerdem Blei höhere Neutronenproduktionsraten als Wolfram aufweist, wird jedes auftreffende Proton energetisch besser genutzt. Dementsprechend reduziert sich der Energieverbrauch des Beschleunigers. Weiterhin ermöglichen Austrittstemperaturen von bis zu 600 °C Wirkungsgrade η_{el} von größenordnungsmäßig 40 % bei nahezu drucklosem Betrieb, was aus Sicherheitsgründen vorteilhaft ist. Der Gesamtwirkungsgrad η_G unter Abzug des Eigenverbrauchs des Beschleunigers beträgt bei diesem Design bis zu 30 % (siehe hierzu auch Gl. 5.1).

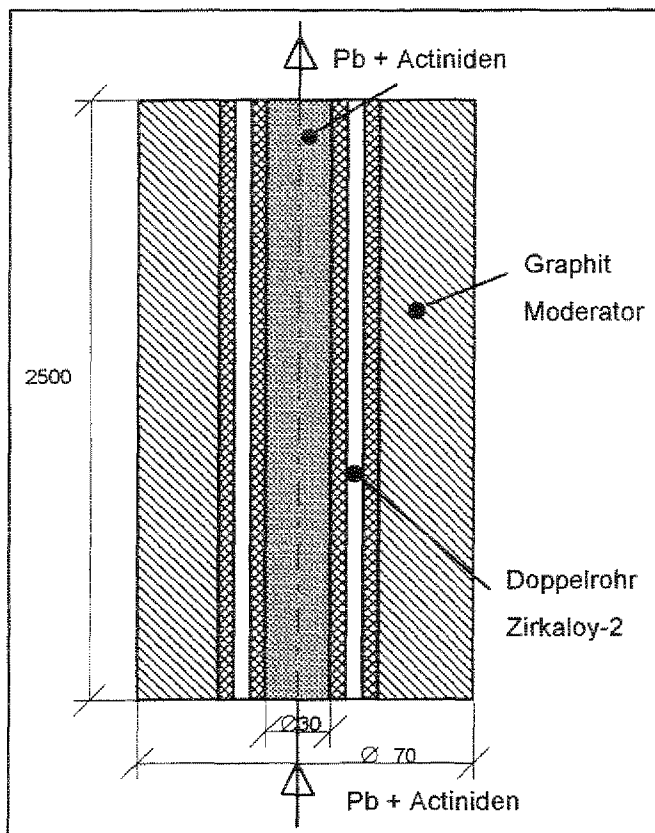


Abb. 6.2: Einheitszelle mit 3 mm Zr und 3 mm Vakuum

Vorteile weist hier genauso wie bei Wartung und Abschirmung eine interne Kühlung auf. Hierbei erfolgt der erste Wärmeübergang im Core, so daß nur noch das spaltproduktfreie Kühlmittel in den Wärmetauschern zu kühlen ist.

6.1 Eigenschaften der Schmelze

6.1.1 Flüssiges Blei als Kühlmittel

Flüssiges Blei verfügt über einen vergleichsweise hohen Schmelzpunkt von 327 °C, dessen Druckabhängigkeit mit +7,8 K/kbar vernachlässigbar ist [6.2]. Der Phasenübergang flüssig→fest zieht im Gegensatz zum Wismut eine für technische Systeme günstige Volumenreduktion nach sich. Trotzdem muß auch im Stillstandsbetrieb das Blei von Primär- und

Während *Lizana* in seiner Arbeit neutronische Optimierungen inklusive der Spaltprodukttransmutation untersucht, sollen im folgenden hauptsächlich technische Fragestellungen angesprochen werden. Hierzu fällt ergänzend zu der in Kap. 3 vorgenommenen generellen Darstellung von Lösungen und Suspensionen zunächst die Charakterisierung der Schmelze. Die Konstruktion geeigneter Behältnisse (Rohre etc.) verlangt im Rahmen der Auswahl der Strukturmaterialien die Quantifizierung der Korrosionsabträge. Zentrale Bedeutung kommt der Wärmeabfuhr aus dem Core zu, die über das sich ausbildende Temperaturprofil alle genannten Punkte beeinflusst. Weiterhin ist an die in dem Kap. 4 dargestellte Problematik zu erinnern, daß abhängig von der Art der Kühlung Anlagen gleicher Leistung und Konversionsrate völlig unterschiedliche Inventare haben können.

Sekundärkreis über eine Zusatzheizung in flüssigem Zustand gehalten werden können. Hier sind aufgrund der höheren Schmelztemperatur sicherlich höhere Isolationsverluste als in einem natriumgekühlten System mit einem Schmelzpunkt von $T_s = 98\text{ °C}$, das in folgendem zur technologischen Bewertung flüssigen Bleis vergleichend herangezogen werden soll, zu erwarten. Die Betriebstemperaturen sind jedoch in beiden Systemen ähnlich.

Anhand der in Tab. 6.1 aus Anhang C und [6.4] niedergeschriebenen Stoffwerte läßt sich ablesen, daß das Produkt aus Wärmekapazität c und Dichte ρ in Blei um den Faktor 1,4 höher ist. Somit reagiert das Bleisystem träger auf Wärmeverluste. Formelmäßig begründet sich diese Feststellung aus dem Zusammenhang

Tab. 6.1: Stoffwerte von Natrium und Blei

für $T = 500\text{ °C}$	Blei	Natrium
$\rho / (\text{kg/m}^3)$	10.480	832
$\lambda / (\text{W/m/K})$	18,6	67,3
$c / (\text{J/kg/K})$	145	1260

$$\dot{q}''' \cdot V - k \cdot \pi \cdot d \cdot l \cdot (T_{\text{Blei}} - T_U) = \rho \cdot c \cdot V \cdot \frac{dT_{\text{Blei}}}{dt} \quad (\text{Gl. 6.1})$$

- k Wärmedurchgangskoeffizient
- V Volumen
- l Höhe des betrachteten Volumens
- T Temperatur

Sollte in der Flüssigkeitssäule der konvektive Wärmetransport ausfallen (LOF), so folgt aus Gl. 6.1 eine flachere Temperaturtransiente bei der Verwendung von Blei als Kühlmittel. Hinzu kommt der sehr hohe **Siedepunkt** von 1743 °C bei Normaldruck, der den Zeitpunkt bis zur Bildung von reaktivitätsverändernden Dampfblasen hinausschieben wird.

Für die Pumpfähigkeit gilt genauso aufgrund des höheren Produktes von Dichte und Wärmekapazität, daß bei gegebener Temperaturspreize ΔT geringere Geschwindigkeiten ($\approx 70\%$ der von Natrium) notwendig sind, um eine bestimmte Wärmemenge

$$\dot{Q} = \rho \cdot v \cdot A \cdot c \cdot \Delta T \quad (\text{Gl. 6.2})$$

bei gleicher Querschnittsfläche A aus dem Core zu transportieren. Dieser Vorteil beruht allerdings auf der mehr als 10-fach höheren Dichte des Bleis was sich beim Druckverlust Δp

$$\Delta p = K \cdot \frac{\rho}{2} \cdot v^2 \quad (\text{Gl. 6.3})$$

in einen Nachteil umkehrt. Hält man K vereinfacht konstant - die geringere Geschwindigkeit des Bleis wird durch seine ebenfalls geringere kinematische Viskosität bezüglich der Reynoldszahl kompensiert - so errechnet sich im Bleisystem ein Druckverlust, der etwa um einen Faktor 6 höher ist. Dieser Wert reduziert sich gemäß der geringeren Geschwindigkeit auf ca. 4 bezüglich der **Pumpleistung** P , da hierfür gilt:

$$P = \dot{V} \cdot \Delta p = v \cdot A \cdot \Delta p \quad (\text{Gl. 6.4})$$

Für die Konstruktion bedeutet dieses, daß der strömungsgerechten Kreislaufführung besonderes Augenmerk zu schenken ist, um Druckverluste, Pumpleistung und Systemdruck zu begrenzen.

Verglichen mit einem ähnlichen natriumgekühlten System werden zusätzlich sowohl in den Rohren des Wärmetauschers als auch bei den verschiedenen Formen der internen Wärmeabfuhr aus dem Core in den Strukturmaterialien höhere Temperaturen zu erwarten sein. Der Grund hierfür ist in den tendenziell niedrigeren Wärmeübergangszahlen α des Bleis zu suchen, die für Flüssigmetalle im allgemeinen aus einer Beziehung des Typs:

$$Nu = \frac{\alpha \cdot D_{eff}}{\lambda} \approx K_1 + K_2 \cdot (Re \cdot Pr)^{K_3} = K_1 + K_2 \cdot \left(\frac{v \cdot D_{eff} \cdot \rho \cdot c}{\lambda} \right)^{K_3} \quad (\text{Gl. 6.5})$$

λ	Wärmeleitfähigkeit
D_{eff}	effektiver Durchmesser, allgemein $4 \cdot A/U$
K_1	Konstante je nach Anordnung ≥ 5
K_2	Konstante je nach Anordnung $0,0155 \dots 0,025$
K_3	Konstante $\cong 0,8$

folgen (siehe Anhang C). Für den Abtransport einer gewissen Wärmemenge bei gegebener Temperaturspreize ΔT benötigt man in einem bleigekühlten System eine geringere Geschwindigkeit aufgrund des um den Faktor 1,4 höheren Produktes aus Wärmekapazität c und Dichte ρ (Gl. 6.2). Dieses führt zu gleichen Zahlenwerte im natriumgekühlten und bleigekühlten System, wenn man den Zähler des 2. Summanden von Gl. 6.5 betrachtet. Nach Multiplikation mit der im natriumgekühlten System bedeutend höheren Wärmeleitfähigkeit (Faktor 3,7) zur Ermittlung der Wärmeübergangszahl α wird im natriumgekühlten System ein um ca. 30 % höherer Zahlenwert aus der Veränderung des zweiten Summanden resultieren. Der abgeänderte 1. Summand dagegen besteht in beiden Systemen aus einem Produkt von Konstante K_1 und der Wärmeleitfähigkeit, so daß sich hier die Unterschiede der Wärmeleitfähigkeiten ungedämpft auswirken werden. Zunehmende Geschwindigkeiten verlagern das Gewicht auf den zweiten Summanden, was zu einer gewissen Angleichung der Wärmeübergangszahlen und somit der Wandtemperaturen führt.

Die Festlegung der Geschwindigkeit ist nicht nur an die temperatur- und geschwindigkeitsabhängigen Korrosionserscheinungen geknüpft, sondern auch an die abzuführenden **Rohrhalterkräfte**. Drucktransienten, die beispielsweise durch sich plötzlich schließende Ventile ausgelöst werden, werden aufgrund der höheren Dichte des Bleis zu höheren Belastungen an den Halterungen führen. Gleiches läßt sich für den stationären Fall feststellen, da sämtliche Umlenkkkräfte, direkt ableitbar aus dem Impulssatz, der Dichte proportional sind.

Zusammenfassend kann man konstatieren, daß vom thermohydraulischen und mechanischen Verhalten her Bleikreisläufe im Normalbetrieb eine aufwendigere Konstruktion als Natriumkreisläufe erfordern. Viele sicherheitstechnische Aspekte dürften sich jedoch bei Verwendung von Blei als Kühlmittel günstiger darstellen, da Bleidämpfe zwar giftig sind, Blei aber nicht zu starken exothermen chemischen Reaktionen neigt und erst bei deutlich höheren Temperaturen siedet.

6.1.2 Actiniden in flüssigem Blei

Die Schmelze wird primär durch die Form der Verteilung der Actiniden im flüssigen Blei charakterisiert. Wie in Kap. 3.3.4 ausgeführt, sind sowohl direkte Lösungen als auch Suspensionen denkbar. Da experimentell ermittelte Löslichkeitskurven für Transurane in Blei nicht vorliegen, soll an dieser Stelle das dem Plutonium direkt benachbarte Uran herangezogen werden, um zumindest eine Größenordnung der Löslichkeit abzuschätzen.

Es zeigt sich, daß bei einer Eintrittstemperatur von ca. 400 °C die Löslichkeit weniger als 10^{-3} at-% beträgt. Damit liegt man mehr als 2 Größenordnungen unterhalb den von Lizana für die Einheitszelle für notwendig gehaltenen Konzentrationswerten der Actiniden. Für Plutonium wird die Löslichkeit zwar vermutlich größer sein, da aus vergleichenden Messungen von Pu und U in Wismut bekannt ist, daß bei ähnlichem Temperaturverhalten die Löslichkeit von Pu etwa doppelt so hoch wie die des Urans ist. Trotzdem lassen sich aber nur durch eine Suspension ausreichend hohe Konzentrationen an Transuranen in Blei einstellen.

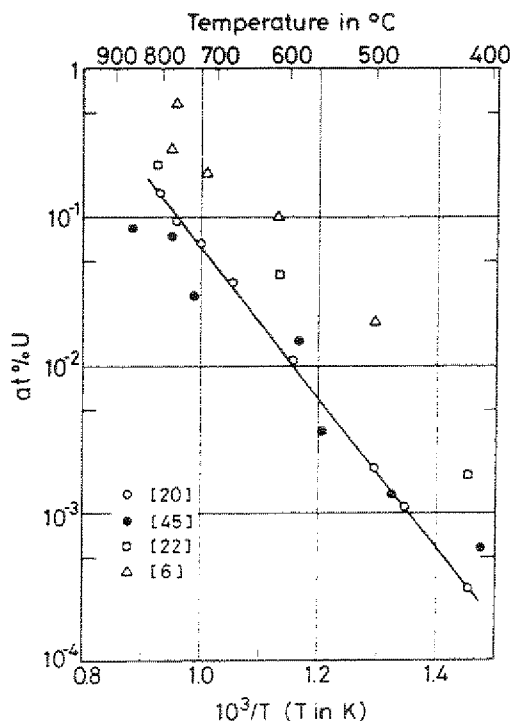


Abb. 6.3: Löslichkeit von Uran in Blei [6.3]

Actiniden mit Wismut bzw. Blei chemisch instabil gegenüber O_2 ist. Um die Gefahr von Bränden zu begrenzen, wird also das umgebende Gasvolumen zu inertisieren sein. Wegen der chemischen Ähnlichkeit von Wismut und Blei ist die Übertragbarkeit dieser Ergebnisse sicherlich als gegeben anzusehen.

Aus ionischen Verbindungen lassen sich gegenüber der Schmelze und gegenüber dem Behältermaterial inerte Suspensionen herstellen (Oxide, Carbide etc.). Die chemische Stabilität der Verbindung in der Schmelze läßt sich anhand der Veränderung der freien Enthalpien für ty-

Die prinzipiell einfachste Möglichkeit, eine Suspension herzustellen, läßt sich den Phasendiagrammen für die Systeme U-Pb bzw. Pu-Pb entnehmen. Höhere Actinidenanteile als bei einer direkten Lösung werden durch die gleichzeitige Existenz der flüssigen Bleiphase und der festen Bleiverbindung $U-Pb_3$, respektive $Pu-Pb_3$ möglich [6.5]. Für die in Kap. 3.3.4.3 beschriebenen Reaktoren mit flüssigem Wismut als Trägermittel der Actiniden wurde analog für den Übergang zum Th-Brennstoffkreislauf aufgrund der geringen Löslichkeit von Thorium an die Verwendung von Partikeln aus $Th-Bi_2$ gedacht [6.6]. Im Versuchsbetrieb wurden Beladungen bis zu 10 Gew.-% umgepumpt. Als nachteilig machte sich jedoch bemerkbar, daß gemäß dem Phasendiagramm sich die Menge der festen Phase mit der Temperatur ändert. Kleinere Teilchen der festen Phase zeigten die Tendenz zu verschwinden, während größere Partikeln zunehmend wuchsen. Letztlich negativ ist auch, daß die gebildete Bleiverbindung der

pische Reaktionen zur Reduktion der Oxide oder Carbide nachweisen. Tab. 6.2 weist aus, daß aufgrund der positiven Differenz der freien Energien ΔG das umgebende Blei Oxide der Actiniden nicht reduzieren kann, und beide betrachteten Reaktionen nur von rechts nach links ablaufen. Untersucht man auf die gleiche Art mögliche Reaktionen des Urans bzw. Plutoniums in der Bleischmelze zu PbO_2 , so ergeben sich aufgrund des ähnlichen chemischen Potentials bei 298 K von -304.988 J/mol ähnliche positive Differenzen der freien Energien.

Tab. 6.2: Betrachtung der Veränderung der freien Energien für Reduktionsreaktionen der Oxide von Plutonium und Uran in flüssigem Blei [6.7]

Reaktion: $\text{UO}_2 + 2 \text{Pb} \rightarrow \text{U} + 2 \text{PbO}$	μ_{UO_2} / (J/mol)	μ_{Pb} / (J/mol)	μ_{U} / (J/mol)	μ_{PbO} / (J/mol)	ΔG / J
T = 298 K	-1.107.960	-19.315	-14.994	-239.530	652.536
T = 1000 K	-1.199.645	-82.397	-66.785	-312.100	673.454
Reaktion: $\text{PuO}_2 + 2 \text{Pb} \rightarrow \text{Pu} + 2 \text{PbO}$	μ_{PuO_2} / (J/mol)	μ_{Pb} / (J/mol)	μ_{Pu} / (J/mol)	μ_{PbO} / (J/mol)	ΔG / J
T = 298 K	-1.075.548	-19.315	-15.343	-239.530	619.775
T = 1000 K	-1.162.323	-82.397	-76.383	-312.100	626.534

Ein weiterer Vorteil inerter Systeme ist die konstante Größe der Partikeln während des Betriebs. Nachteilig ist die oft fehlende Benetzbarkeit der Partikeln - die weiter oben angesprochenen ThBi_2 -Partikeln wurden in Wismut sehr gut benetzt - , was zu einer raschen Entmischung führen kann. Am BNL wurden ebenfalls ThO_2 -Partikeln in Wismut untersucht. Aufgrund der zunächst fehlenden Benetzbarkeit wurde Zirkonium zugesetzt, wodurch sich die Lösung stabilisieren ließ. Am KAPL wurde das Verhalten von UO_2 -Partikeln charakterisiert. Die Benetzung durch Wismut ließ sich hier durch Zugabe von Titan verbessern [6.6]. Eine direkte Übertragbarkeit dieser Versuchsergebnisse auf Blei und die hier gemäß dem zunehmenden Abbrand sich verändernde TRU-Mischung ist vermutlich nicht gegeben. Hier werden geeignete experimentelle Untersuchungen für flüssiges Blei notwendig sein [6.8 und 6.9].

Die Frage nach der Wahl der ionischen Verbindung wird zusätzlich durch die angestrebte Größe der Teilchen kompliziert. Mit Hinblick auf die Experimente der *KEMA* mit Actiniden-suspensionen in Wasser (Kap. 3.3.4.1) scheint es sinnvoll zu sein, Oxidpartikeln von ca. 5 μm Durchmesser einzusetzen. Die Spaltprodukte würden dann erst in der Bleischmelze abgebremst. Dort zeigen sie aufgrund des Dichteunterschiedes die Neigung aufzuschwimmen, was eine Abtrennung begünstigt.

Verglichen mit der Wassersuspension werden außerdem die Sedimentationsgeschwindigkeiten der Oxidpartikeln in Blei bedeutend geringer ausfallen. Nach Gl. 3.16 resultiert dieses aus dem geringen Dichteunterschied und der um mehr als eine Größenordnung höheren Viskosität von flüssigem Blei (für $p = 200 \text{ bar}$ und $T = 300 \text{ }^\circ\text{C}$ $\eta_{\text{H}_2\text{O}} \cong 9 \cdot 10^{-5} \text{ Pas}$; für Normaldruck und $T = 450 \text{ }^\circ\text{C}$ $\eta_{\text{Blei}} \cong 2 \cdot 10^{-3} \text{ Pas}$). Bezüglich der Nachteile kleiner Partikeln sei auf die in Kap. 3 gemachten Aussagen verwiesen.

6.2 Mögliche Moderatoren

Grundsätzlich eignen sich für den hier verfolgten Zweck einer Transmutation von Actiniden mit hohen thermischen Flußanteilen feste und flüssige Moderatoren. Bei den festen Moderatoren ist an Beryllium und Graphit zu denken, bei den flüssigen hauptsächlich an schweres Wasser wegen der geringen Absorption. Bei Beryllium reizt zusätzlich die ab ca. 2,5 MeV einsetzende (n,2n)-Reaktion, deren Wirkungsquerschnitt bei ca. 0,5 barn liegt. Beryllium wird in der Targetauslegung von [6.10] in Granulatform als umschließende Region des Bleitargets und Grenze zum Blanket eingesetzt. Wegen der besseren Verarbeitbarkeit und höheren Verfügbarkeit sollen jedoch in folgendem alternativ nur Graphit und Wasser diskutiert werden. Graphit wird in der in Abb. 6.1 dargestellten Referenzanordnung bevorzugt, da es sich gegenüber Blei chemisch inert verhält.

6.2.1 Wasser

Da Wasser bei Kontakt mit einer Schmelze schlagartig verdampft, was ggfs. zu untolerierbaren Drucktransienten für die Gesamtanordnung im Falle eines Versagens führen würde, ist die Bleischmelze durch Doppelrohre vom Wasser zu trennen. Die Doppelrohranordnung sorgt gleichzeitig für die notwendige thermische Isolation. Strahlungsverluste lassen sich bei einer mittleren Rohrwandtemperatur T_1 des inneren Rohres ($d_1 = 30$ mm, $l = 2500$ mm) von 450 °C und einer Temperatur T_2 des Mantelrohres ($d_2 = 40$ mm, $l = 2500$ mm) von weniger als 100 °C durch:

$$\dot{Q} = C_{12} \cdot \sigma \cdot \pi \cdot d_1 \cdot l \cdot (T_1^4 - T_2^4) \quad \text{mit } C_{12} = \frac{1}{\frac{1}{\varepsilon_1} + \left(\frac{1}{\varepsilon_2} - 1\right) \cdot \frac{A_1}{A_2}} \quad (\text{Gl. 6.6})$$

- ε Emissionszahl (für Niob und polierte Stähle $\cong 0,2$)
- σ Stefan-Boltzmann Konstante $5,6703 \cdot 10^{-8} \text{ W/m}^2/\text{K}^4$
- C_{12} Strahlungsaustauschzahl für koaxiale Rohre der Flächen A_i

rechnerisch ermitteln [6.11]. Die innerhalb des Rohres produzierte Leistung beträgt bei einer Leistungsdichte von 170 MW/m^3 - dieses entspricht neueren neutronischen Auslegungen - 300 kW. Die nach Gl. 6.6 abgestrahlte Verlustleistung beträgt demgegenüber 0,33 kW, also etwa 0,1 %. Bedeutender sind jedoch Aufheizungen des Wassers durch die Moderation der Neutronen und durch Abbremsung der sekundären γ -Strahlung. In Vorgriff auf Kap. 6.2.2 können diese größenordnungsmäßig zu etwa 5 % angegeben werden. Wegen der niedrigen Temperatur und Exergie des drucklos zu betreibenden, extern gekühlten flüssigen Moderators mindert sich hierdurch der Gesamtwirkungsgrad der Anlage.

Wasser, insbesondere schweres Wasser, hat aber auch erhebliche Vorteile. So lassen sich neutronisch gesehen thermischere Spektren einstellen. Aufgrund des intensiven Neutronenflusses wird das Wasser durch Tritiumproduktion aktiviert. Letzteres stellt jedoch kein unüberwindbares Problem dar, wenn man an die Betriebserfahrung mit der Tritiumabtrennung

bei den CANDU-Reaktoren denkt. Dadurch reduzieren sich die sekundären Abfallströme und das Wasser läßt sich zeitlich unbegrenzt als Moderator verwenden.

6.2.2 Graphit

Die Auslegung des Cores, insbesondere für die in Abb. 6.1 dargestellte externe Kühlung, ließe sich bedeutend vereinfachen, wenn man auf die umgebenden Rohre verzichten könnte. Die Grundlage einer solchen Überlegung ist, daß Blei Graphit weder korrodiert noch benetzt. Das Eindringen der flüssigen Schmelze in die Poren ist abhängig vom Druck p und unterliegt dem Zusammenhang [6.12]

$$p \geq - \frac{2 \cdot \sigma \cdot \cos \vartheta}{r} \quad (\text{Gl. 6.7})$$

- σ Oberflächenspannung (0,400 N/m für Blei [6.13])
 ϑ Benetzungswinkel (130 ° für Blei [6.13])
 r Porenradius

Mit dieser Formel läßt sich aus bekannten Verläufen der Porengrößenverteilung verschiedener Graphitsorten (Abb. 6.4) das gefüllte Porenvolumen berechnen.

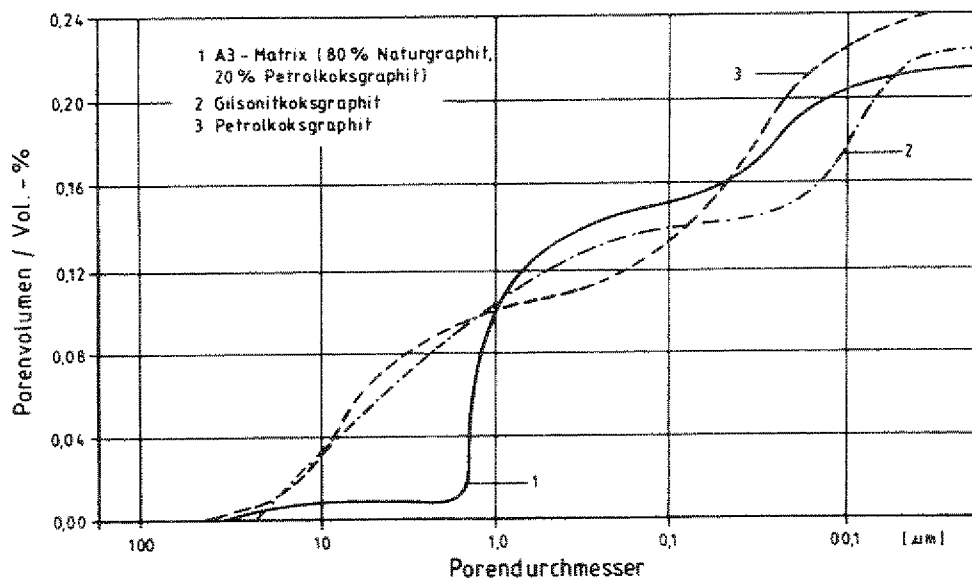


Abb. 6.4: Porengrößenverteilung nach der Quecksilberporosimetrie für verschiedene Graphite. Auf der Abzisse ist der Durchmesser der Poren und auf der Ordinate der jeweilige Volumenanteil im Graphit aufgetragen, wenn Porendurchmesser bis hinunter zu dem Abzissenwert einbezogen werden [6.12].

Will man etwa für die hier betrachtete Anlage bei dem in Abb. 6.4 dargestellten Gilsonitkokso-graphit, einem typischen Reflektorgraphit, eine Füllung des offenen Porenvolumens von 10 % tolerieren, so ist dieses gleichbedeutend mit dem Eindringen der Schmelze in alle offenen Poren mit einem Radius von mehr als $r = 0,5 \mu\text{m}$. Der zugehörige nach Gl. 6.7 berechnete Druck beträgt 10 bar. Diese Beziehung gilt allerdings nur für eine chemisch reine Blei-

schmelze. Schon gelöster Sauerstoff ändert das Benetzungsverhalten, nicht zu reden von ebenfalls in der Schmelze gelösten Spaltprodukten oder Zusätzen zur Verbesserung des Benetzungsverhaltens von Blei für Actinidenoxidpartikeln. Die Spaltprodukte können sich bevorzugt an dem Graphit anlagern und die Neutronik nachhaltig beeinflussen.

Während des Einsatzes in einer kerntechnischen Anlage wird sich auch die Größe der Poren entsprechend der Volumenveränderung des Graphits aufgrund von Neutronenbestrahlung ändern. Eine Abhilfe könnte in der Beschichtung des Elektrographits mit SiC oder PyC bestehen. Eine weitere Möglichkeit zur Zurückhaltung der Schmelze besteht in der Imprägnierung des Graphits.

Alle diese Maßnahmen resultieren aber in einem inhomogenen Material, dessen Strahlenschädigung ungleich schwerer zu quantifizieren ist. Für einen typischen Reflektorgraphit läßt sich die durch Bestrahlung induzierte Größenänderung gemäß Abb. 6.5 darstellen.

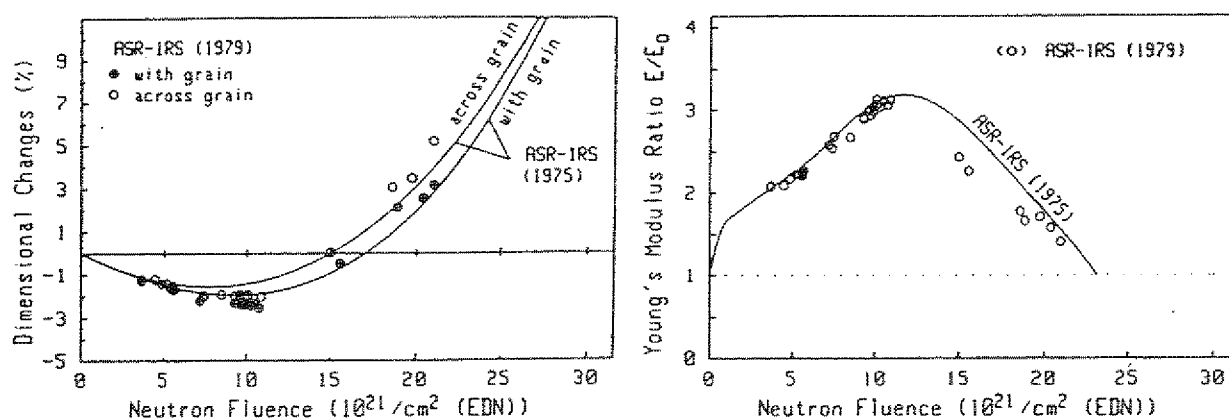


Abb. 6.5: Bestrahlungsverhalten von ASR-IRS bei 500°C [6.15], links Größenänderung, rechts Elastizitätsmodul Fluenz in EDN, $\text{EDN} \cdot 1,52 \equiv \text{Fluenz} \geq 0,18 \text{ MeV}$

Postuliert man typischerweise einen Einsatz in der kerntechnischen Anlage bis zum Beginn des verstärkten Wachsens bei einem akkumulierten schnellen Fluß ($E > 0,18 \text{ MeV}$) von $2,28 \cdot 10^{22} \text{ n/cm}^2$ (Nulldurchgang im Diagramm), so läßt sich eine Lebensdauer von 4 Jahren nur erreichen, wenn der schnelle Fluß im Mittel $1,8 \cdot 10^{14} \text{ n/cm}^2/\text{s}$ nicht überschreitet. Diese Zahl mag als erster Richtwert gelten, obwohl nach heutigem Kenntnisstand auch Graphite mit einer um etwa 20 % vergrößerten Lebensdauer herstellbar sind [6.14 u. 6.15]. Genauere Betrachtungen erfordern die Kenntnis der Temperaturverteilung, da das Wachstum umso früher einsetzt je höher die Temperaturen sind (siehe hierzu auch [6.12]).

Die Temperaturverteilung ist natürlich eng an die Wärmeproduktion im Graphit geknüpft. Hauptursache hierfür ist, daß ein Teil der Spaltenergie nicht im Blei sondern im Graphit durch Moderation der schnellen Primärneutronen und durch Absorption von γ -Strahlen deponiert wird. Die γ -Strahlen werden prompt aus dem Spaltprozeß, verzögert aus den Spaltprodukten und daneben aus n - γ Prozessen freigesetzt. Für die in Abb. 6.2 dargestellte Einheitszelle wird die im Graphit deponierte Energie berechnet. Die durchschnittliche Beladung der Zelle, inclusive der aufgebauten Spaltprodukte, sind einer Zellrechnung von Lizana entnommen worden [6.1].

Die Aufheizung durch die Neutronen läßt sich direkt aus der eindimensionalen Transportrechnung als Differenz aus den in die Graphitzone ein- und austretenden Neutronenströmen ermitteln (XSDRN-Rechnung siehe Anhang A). Ein Wert von 2,5 % der Spaltenergie entspricht dabei erwartungsgemäß der während einer Spaltung an die Neutronen abgegebenen Energie von 5 MeV.

Der Einfluß der Gamma-Strahlen läßt sich aus einer ähnlichen Bilanzierung abschätzen. Es wurden drei Verfahren ergänzend verwendet. Eine eindimensionale n- γ -Transportrechnung führt zu einer Quantifizierung des Einflusses der prompten γ -Quanten und der sekundär erzeugten n- γ Prozesse. Der zu 1,25 % der Spaltenergie ermittelte Wert stellt jedoch eine untere Abschätzung dar, da für die zu hohen Anteilen im Nuklidvektor vorhandenen Am- und Cm-Isotope keine entsprechenden Wirkungsquerschnitte angegeben und benutzt werden. Da ein Ergebnis einer Abbrandrechnung mit ORIGEN (Anhang A) neben den erzeugten Spaltprodukten deren γ -Strahlung, diskretisiert nach den Energiegruppen, darstellt, wurde dieses als Ausgangspunkt für eine Fixed-Source Rechnung mit XSDRN verwendet. Hieraus folgt ein zusätzlicher Anteil von 0,2 % der Spaltenergie. Aus der Summierung aller drei Faktoren ergibt sich, daß mindestens 4 % der Spaltenergie im Graphit deponiert werden.

Der additive Einfluß der Cm- und Am-Isotope läßt sich durch eine separate Fixed-Source Rechnung mit prompten Gammas aus der Spaltung und verzögerten Gammas aus den Spaltprodukten durchführen. Für die prompten Gammas werden dabei nach [6.16] die ca. 7 bei der Spaltung erzeugten γ -Quanten mit der dort angegebenen Energieverteilung angesetzt. Es errechnet sich ein Wert von 0,8 %. Subtrahiert man hiervon den Anteil der Spaltprodukte, so folgt der Anteil der prompten γ -Quanten zu etwa 0,6 %. Aus der mengenmäßigen Zusammensetzung der Transurane läßt sich der Anteil der im Graphit deponierten Spaltenergie nun nach oben hin eingrenzen, wenn man den n- γ Anteil verdoppelt. Abweichend von den ursprünglich ermittelten 1,25 % erhält man daraus einen Wert von 1,9 % der Spaltenergie. Eine erneute Addition führt nun als obere Grenze zu etwa 4,6 % der Spaltenergie. Diese nicht unerhebliche Wärmemenge ist aus dem Graphit abzuführen.

In folgendem soll durch ein einfaches Rechenmodell die im Graphit sich einstellende Temperaturdifferenz abgeschätzt werden. Setzt man eine Kühlung des Graphits ausschließlich über die innere den Doppelrohren zugewandte Seite voraus ($r_i \approx 20$ mm), so läßt sich am Außenradius ($r_a = 35$ mm) eine adiabate Randbedingung aufstellen. Allgemein gilt

$$\frac{1}{r} \cdot \frac{d}{dr} \left(\lambda \cdot r \cdot \frac{dT}{dr} \right) = -\dot{q}''' \quad \text{mit} \quad \frac{dT}{dr} (r = r_a) = 0 \quad (\text{Gl. 6.8})$$

Als Lösung der unbestimmten Differentialgleichung ergibt sich

$$\frac{dT}{dr} = \frac{-\dot{q}''' \cdot r}{2 \cdot \lambda} + \frac{\dot{q}''' \cdot r_a^2}{2 \cdot \lambda} \cdot \frac{1}{r} \quad (\text{Gl. 6.9})$$

Eine nochmalige Integration zwischen den Grenzen r_a und r_i hat dann

$$\Delta T = -\frac{\dot{q}''' \cdot (r_a^2 - r_i^2)}{4 \cdot \lambda} + \frac{\dot{q}''' \cdot r_a^2}{2 \cdot \lambda} \cdot \ln\left(\frac{r_a}{r_i}\right) \quad (\text{Gl. 6.10})$$

ΔT maximale Temperaturdifferenz im Graphit

λ Wärmeleitfähigkeit (hier 15 W/m/K für bestrahlten Graphit)

$\dot{q}'''$ Wärmequellichte im Graphit

zum Ergebnis. Bei einer Leistungsdichte im Brennstoff von 170 MW/m³ folgt bei den angegebenen Geometrieverhältnissen und aus der Annahme einer Absorption von 4,6 % der Spaltenergie eine Wärmequellichte im Graphit von 2,1 MW/m³. Hieraus resultiert eine maximale Temperaturdifferenz im Graphit von weniger als 20 K.

Sollte der Graphit sich in direktem Kontakt mit der Actinidenschmelze befinden (kein Zwischenrohr), so sind Risse und Spalten im Graphit sorgfältigst zu vermeiden. In diesem Fall nämlich würde durch das Eindringen der Schmelze eine ca. 100-fach höhere Wärmedichte lokal im Graphit freigesetzt, was auch zu 100-mal höheren Temperaturdifferenzen und deutlich verringerten Standzeiten mit verfrühtem Wachsen des Graphits führen würde.

Aufgrund des Temperaturgradienten ΔT wird der Graphit proportional zum linearen Wärmeausdehnungskoeffizienten α wachsen. Sofern der Graphitmoderator aus coaxialen um die Zr-Rohre angeordneten Rohren besteht, wird die Wärmeausdehnung analog zu den Verhältnissen im Hüllrohr eines Leichtwasserreaktors behindert. Die sich relativ zur neutralen Faser an den heißen Stellen maximal aufbauenden Druck- und an den kälteren Stellen aufbauenden Zugspannungen lassen sich nach [6.17] zu:

$$\sigma = \frac{\alpha \cdot E}{2 \cdot (1 - \nu)} \cdot \Delta T \quad (\text{Gl. 6.11})$$

α Wärmeausdehnungskoeffizient ($4,4 \cdot 10^{-6}/\text{K}$)

E Elastizitätsmodul (unbestrahlt $\approx 10 \text{ kN/mm}^2$)

ν Querkontraktionszahl ($\approx 0,25$)

abschätzen. Für ein ΔT von 20 K folgt mit diesem einfachen Modell eine maximale Zugspannung von 0,6 N/mm². Da sich der Elastizitätsmodul durch Bestrahlung mit bis zu $1,5 \cdot 10^{22}$ EDN in etwa verdreifacht (Abb. 6.5), wird das gleiche auch für die Wärmespannung gelten. Auch dieser Wert liegt aber weit unterhalb der Zugfestigkeit des Graphits von etwa 18 N/mm². Für etwaige Einschlüsse der Schmelze im Graphit gilt diese Feststellung wiederum nicht. Hier ist etwa im Bereich der Fügspalte der Graphitkörper oder im Bereich der Poren eine komplexere Modellierung des Eindringens der Schmelze und der resultierenden Wärmespannungen angezeigt. Dieses Problem soll aber in folgendem umgangen werden, indem ein direkter Kontakt der Blei-Actinidensuspension mit dem Graphit durch mindestens ein metallisches Zwischenrohr vermieden wird.

In Abschnitt 6.4 wird die Wärmeabfuhr aus dem Core näher diskutiert. An dieser Stelle sei jedoch im Vorgriff ausgeführt, daß die Wahl von Graphit im Gegensatz zu der Verwendung

eines Wassermoderators gestattet, die gesamte im Core entstehende Wärme auf einem hohen Temperaturniveau zur Erzeugung von elektrischer Energie auszukoppeln.

6.3 Strukturmaterialien

Die Strukturmaterialien im Primärkreis der Anlage lassen sich sinnvoll nach denjenigen im Core und denen außerhalb untergliedern, da letztere keinem intensiven Neutronenfluß ausgesetzt sind. Die Auswahl eines geeigneten Rohrwerkstoffs im Core muß:

- die Veränderung der mechanischen Eigenschaften wie Festigkeit und Bruchdehnung,
- die Formstabilität (Volumenänderung durch strahleninduziertes Kriechen),
- die Veränderung der thermischen Eigenschaften (Abnahme der Wärmeleitfähigkeit),
- die Langzeitaktivierung als Quelle späterer Betriebsabfälle,
- und die parasitäre Absorption

gemäß den zu erwartenden Flußverhältnissen und der thermischen und mechanischen Belastung berücksichtigen. Bei Verwendung eines thermischen Neutronenspektrums schränkt insbesondere der letzte Punkt die Anzahl möglicher Wandmaterialien stark ein. Tab. 6.3 gibt eine Übersicht verschiedener möglicher Strukturmaterialien mit ihren Absorptionsquerschnitten bei 0,0253 eV.

Tab. 6.3: Mikroskopische und makroskopische Absorptionsquerschnitte verschiedener Wandmaterialien bei 0,0253 eV [6.18]

Element	σ_A / barn	M_m	ρ_{Norm} / (g/cm ³)	Σ_A / (1/cm)	T_s / K
Zr	0,185	91,22	6,5	0,007938	1850
Nb	1,15	92,9	8,57	0,063878	2773
Mo	2,65	95,94	10,7	0,17798	2893
Fe	2,55	55,85	7,87	0,216388	1808
BeO	0,0947	25	2,86	0,000652	2520
MgO	0,0633	40	3,58	0,00341	2780
ZrO ₂	0,1885	123	5,35	0,00486	2620
Al ₂ O ₃	0,4608	102	3,79	0,0103	2020
SiC	0,1634	40	2,8	0,0069	2200

Es zeigt sich, daß nur die Keramiken ähnlich niedrige makroskopische Absorptionsquerschnitte wie Zirkonium haben. Zellrechnungen für die Einheitszelle gemäß Abb. 6.2 haben dementsprechend zum Ergebnis, daß der Austausch des insgesamt 3 mm dicken Zr-Doppelrohrs der Referenzanordnung durch 0,5 mm Niob, den Eigenwert von 1,02 auf 0,93 absenkt. 0,4 mm Molybdän führen gar zu einem Eigenwert von 0,78. Somit schränkt sich die Materialauswahl der Basiswerkstoffe im Core auf Zirkonium, Niob und verschiedene Keramiken ein.

Die Eigenschaften von Zirkonium sind aus dem Einsatz vielfältiger Legierungen (hauptsächlich Zirkaloy $\equiv$ Zr mit ca. 1,5 % Sn als Hauptlegierungselement) in Leichtwasserreaktoren wohlbekannt. Umfassende Informationen können beispielsweise [6.19] oder [6.20] entnommen werden. Bei allen anderen Materialien stellt sich jedoch zunächst die Frage, ob Rohre der geforderten Spezifikationen überhaupt herstellbar sind. Dieses ist bezüglich der Keramiken zu bezweifeln, da beispielsweise nach [6.21] nur SiC-Rohre mit einer Länge von maximal 80 cm bei der als sehr dünn empfundenen Wandstärke von 3 mm und einer auf Innen- und Außendurchmesser anzuwendenden Toleranz von ± 1 % lieferbar sind. Niob dagegen ist bei einem Durchmesser von 30 mm bis zu einer Mindestwandstärke von ca. 0,6 mm in Reaktorqualität verfügbar [6.22].

Bezüglich der Verschlechterung der mechanischen Eigenschaften durch **Strahlenschädigung** ist zu konstatieren, daß verschiedene Niob-Legierungen bis zu einer akkumulierten Fluenz von $3,7 \cdot 10^{22} \text{ n/cm}^2$ ($E > 0,1 \text{ MeV}$) bestrahlt wurden. Obwohl sich beim Niob und verstärkt beim Nb-1% Zr eine Abnahme der Bruchdehnung zeigt, bleibt der Werkstoff für den Einsatz im Reaktor hinreichend duktil [6.23]. Von Keramiken ist demgegenüber bekannt, daß sie schon im unbestrahlten Zustand spröde sind; die vorliegenden Bestrahlungsdaten sind sehr unvollständig.

Vorteile weisen die Keramiken jedoch bezüglich der **Langzeitaktivierung** auf. In [6.24] und [6.25] ist eine Untersuchung zu dem in Kap. 4 vorgestellten Suspensionsreaktor des LANL (modifizierte Anordnung) dokumentiert. Wie sich herausstellt, wird in langen Zeiträumen die Aktivität von Target und Blanket dominiert von den 3,3 mm starken Doppelrohren aus Zr-2,5% Nb. Bezüglich des Zirkons ist der Aufbau von Zr-93 ($T_{1/2} = 1,5 \cdot 10^6$ Jahre) und mit Hinblick auf das Niob der von Nb-94 ($T_{1/2} = 2 \cdot 10^4$ Jahre) wichtig. Alternativ werden deshalb andere Metallwerkstoffe (Al, Ti) aber auch C-C Verbundwerkstoffe und Rohre aus SiC untersucht. Die Wandstärken sind gemäß den Werkstoffkennwerten und dem zu erwartenden Innendruck zu 0,075 cm bzw. 0,55 cm angesetzt worden. Es stellt sich heraus, daß der C-C Werkstoff nach 10^4 Jahren eine um 4 Größenordnungen geringere Aktivität als die Rohre aus Zr-2,5% Nb aufweist. Ähnliches gilt für SiC. Die Ergebnisse dieser Arbeit lassen sich sicherlich auch auf die hier diskutierte Pb-Suspensionsanlage übertragen, zumal die ausgewiesenen Wandstärken bei den hier diskutierten Konzepten neutronisch keine Beschränkungen erwarten lassen.

Die Dicke des Rohrwerkstoffs wird neben der Neutronik und der Festigkeitsmechanik von den Zugaben für den Korrosionsabtrag bestimmt. Die **Korrosionsneigung** ist sicherlich auch für die Materialien des Primärkreises außerhalb des Cores das wichtigste Auswahlkriterium. Die Ergebnisse verschiedener zumeist statischer Versuche gegenüber der stehenden Bleischmelze sind in Tab. 6.4 in Ergänzung zu den in [6.27] aufgeführten Daten der Korrosionseigenschaften verschiedener Metalle zusammengetragen. Auch hier schneiden die meisten Keramiken hervorragend ab. Ebenfalls sehr gute Korrosionseigenschaften zeichnen die hochschmelzenden aber bei hohen Temperaturen mit dem Lufsauerstoff reagierenden Edelmetalle Tantal, Niob und Molybdän aus. Die preislich günstigeren Stähle scheinen nach dieser Übersicht um mehr als einen Faktor 10 höhere Abtragraten aufzuweisen.

Tab. 6.4: Korrosionsbeständigkeit verschiedener Materialien gegenüber Blei, 1 mil = 25,4 µm; das zumeist gewählte Vergleichsmetall Bi ist dem Pb ähnlich, im allgemeinen aber korrosiver

Werkstoff	Vergleichsmetall	Pb	Bemerkungen
Croloy 2-1/4		593 °C 10 mil/a, Löslichkeit von Fe 1 ppm bei 500 °C	aber Passivierung durch Oxidschicht möglich bei Cr-Gehalten > 18% [6.26]
410 stainl. steel		655 °C 13 mil/a	
430 stainl. steel		1000 °C 27 mil/a Penetration	Andere Stahlsorten haben einen Abtrag von 100 bis 393 mil/a.
Ni-Legierungen, austenitische Stähle	erstere gegenüber Na: < 1 mil/a	nicht geeignet wegen hoher Löslichkeit der Ni- Atome in Pb	
REFEL-SiC KT-SiC	Bi: 600 °C 0.8 mm/a	beständig bei 600 °C Testdauer 20 h	Der Rest-Si Anteil reagiert mit vielen Metallen, die Verbindung SiC ist jedoch stabil [6.28 und 6.30].
SiC		beständig bei 815 °C Testdauer 100 h	siehe auch [6.28]
Al ₂ O ₃	Bi: 1400 °C beständig	beständig 1100 °C	Der Werkstoff wird als Behältermaterial eingesetzt [6.30].
BeO		beständig 800 °C	[6.30]
ZrO ₂	Bi: 1000 °C Dauer: 167 h		Der Werkstoff wird als Behältermaterial eingesetzt [6.30].
C	Bi: 850 °C beständig	beständig 800 °C Korrosion bei ca. 1000 °C	Graphit ist sehr widerstandsfähig gegenüber Benetzung, aber Carbidbildung und Porosität sind zu beachten [6.30].
Ta	Bi: 1800 °C 1000 h beständig; 488 °C, 8 fps < 0,01 mil/a	1000 °C < 0.08 mil/a Penetration	
Nb	Bi: bis 550 °C	1000 °C 0,1 mil/month 760 °C 5280 h beständig bei ΔT = 222 °C 450 °C 0,5 µm/a	[6.29,6.31]
Mo	Bi: bis 1427 °C; kein Angriff bei 1000 °C 100 h	1200 °C	Die Zugabe von O ₂ -Spuren führt zum Aufbau einer PbMoO ₄ Schutzschicht.
Zr		T > 816 °C in Reinform nicht beständig, bei 1000 °C 410 mil/a Penetration, Löslichkeit 12 ppm aus Extrapolation auf 500 °C	Zr kann zusammen mit Mg zur Passivierung von Stählen in Pb, Bi-Schmelzen verwendet werden. Eine Passivierung der Zr-Oberfläche durch Oxidbildung scheint möglich bis T = 600 °C [6.26].

Eine nochmals deutlich reduzierte Korrosionsbeständigkeit in flüssigem Blei weist Zirkonium auf. Hier ist jedoch auf zwei Entwicklungsmöglichkeiten hinzuweisen, die zumindest den Einsatz von Zirkon als Basiswerkstoff erlauben könnten. So lassen sich in Siedewasserreaktoren durch das Aufbringen eines weichen Zr-Innenliners auf das Zirkaloy Spannungsrißkorrosionserscheinungen ausgelöst durch Spaltprodukte und plötzliche Leistungsänderungen vermeiden. Die Herstellung dieses Verbundes mit unterschiedlichen Materialeigenschaften erfolgt durch die gemeinsame **Extrusion** zweier zuvor genau eingepaßter Rohre. Der

Liner kann dabei ebenfalls aus Zr-Nb oder Zr-Fe, bei geringen Anteilen der Fremdelemente und Dicken von etwa 0,1 mm bestehen [6.32]. Das Verfahren der Koextrusion ist ebenfalls aus der Herstellung technischer Supraleiter bekannt. Dort werden so unterschiedliche Metalle wie Nb-Ti Drähte in einer Cu-Matrix oder Nb₃Sn in der Cu-Sn-Matrix bei im Zentrum angeordneten Stabilisierungskupfer, welches durch eine Ta-Barriere von der Cu-Sn-Matrix getrennt ist, bei Stärken unterhalb von 0,1 mm miteinander kombiniert [6.33]. Somit scheint also im Gegensatz zu einer Beschichtung - die Möglichkeiten ein 2,50 m langes Rohr bei einem Innendurchmesser von 30 mm innen zu beschichten werden allgemein als gering eingeschätzt - durch die Koextrusion die Kombination von Zr als Basiswerkstoff mit einer korrosionsbeständigeren Legierung technisch möglich.

Eine weitere bedenkenswerte Möglichkeit besteht in der **Passivierung** der Zr-Oberfläche durch in der flüssigen Bleischmelze, beispielsweise als PbO eingebrachten Sauerstoff. Dieses wird bei den Stählen von [6.37] für bleigekühlte schnelle Reaktoren gefordert. Nach [6.26] läßt sich das Verfahren wahrscheinlich auch auf Zirkonium übertragen, so daß ein Einsatz bis 600 °C möglich wird. Die erfolgreiche Anwendung dieses Verfahrens hätte jedoch zur Voraussetzung, daß die Bleioxide das Verhalten der Suspension nicht negativ beeinflussen.

Tab. 6.4 gibt nur in statischen Korrosionstests gemessene Abtragsraten wieder, die noch dazu in vielen Fällen (Metalle) aus vor einigen Jahrzehnten durchgeführten Experimenten stammen. Strömt die Schmelze dagegen, so erhöhen sich die Korrosionsraten. Ebenfalls steigen die Abtragsraten mit der Temperaturspreize im Kreislauf, da das im heißen Teil gelöste Material in kalten Bereichen wieder ausfallen kann, was dort zu Verstopfungen führt. Für den martensitischen Stahl (Werkstoff Nr. 1.4914) gibt es neuere Korrosionsmessungen gegenüber der Legierung Pb-17Li aus der Fusionsforschung. So wurde bei 550 °C, einer Geschwindigkeit von 0,3 m/s und Temperaturspreizen bis 250 K ein Abtrag von 0,37 mm/a gemessen. Nach Aussage der Autoren steigt jedoch bei dieser Geschwindigkeit der Abtrag noch linear mit der Geschwindigkeit. Da sich im kalten Teil Verstopfungen eingestellt haben, wird der Gesamtabtrag für die Auslegung eines flüssigen Fusionsbrutblankets als zu hoch empfunden [6.34].

Demgegenüber konnten für Niob in verschiedenen Naturkonvektionskreisläufen mit reinem Blei bis zu 700 °C bei einer Temperaturspreize von 152 K keine signifikanten Korrosionsercheinungen festgestellt werden [6.35]. An dieser Stelle sind sicherlich weitere Experimente erforderlich, um die einzelnen Materialien weiter gegeneinander abzugrenzen und die bestmögliche Materialkombination für den Primärkreis zu bestimmen. Ein Zirkonium-Basiswerkstoff bei Wandstärken von 3 mm bzw. die Nb-1%Zr-Legierung mit einer Stärke von etwa 0,5 mm scheinen nach derzeitigem Kenntnisstand einen geeigneten Rohrwerkstoff für das Core zu markieren. Für den Rest des Primärkreises bieten sich bei den hier angestrebten Temperaturen eine Vielzahl von Materialien an. Die Auswahl ist sicherlich auch durch die Gesamtgestaltung des Primärkreises bedingt, der in verschiedenen Ausführungen im nächsten Abschnitt beschrieben werden soll.

6.4 Gestaltung des Primärkreises

Eine anschauliche Vorstellung von der Funktionsweise einer unterkritischen Anlage mit einem flüssigen Brennstoff auf der Basis einer Actinidensuspension in Blei läßt sich nur gewinnen, wenn man versucht, die Komponenten für den Primärkreis zu dimensionieren und relativ zueinander anzuordnen. Primäre Komponente ist das graphitmodierte Blanket, welches extern oder intern gekühlt werden kann. Im folgenden sollen sowohl die externe Kühlung als auch für zwei Spielarten der internen Kühlung der Wärmetransport und eine mögliche konstruktive Gestaltung näher besprochen werden.

6.4.1 Externe Kühlung

6.4.1.1 Die modifizierte Einheitszelle

Ein von Abb. 6.2 geringfügig abweichender Vorschlag für die Gestaltung der Einheitszelle des Blankets ist in Abb. 6.6 dargestellt.

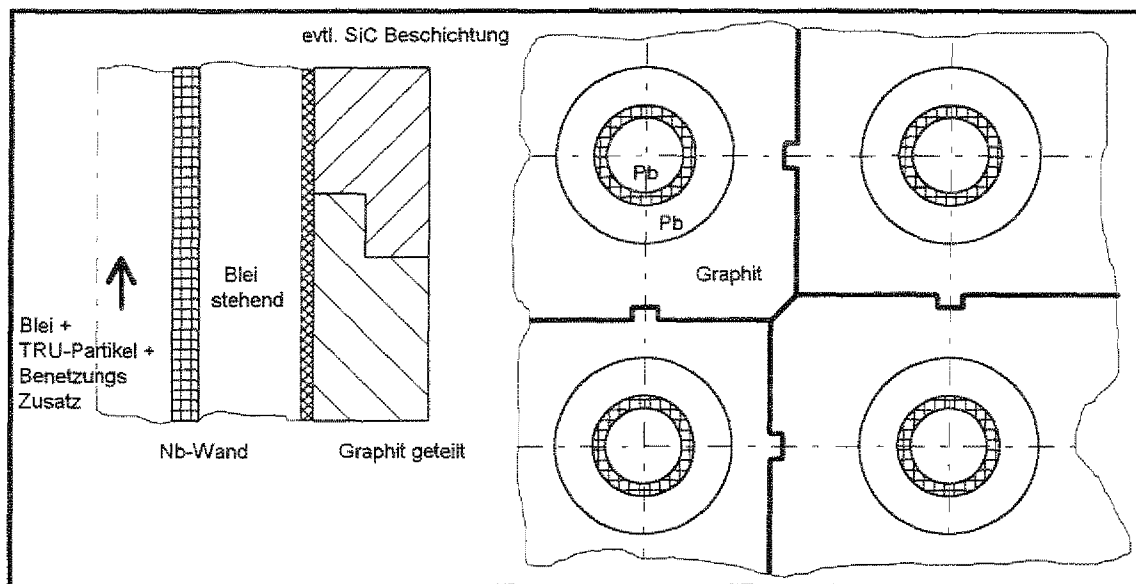


Abb. 6.6: Aufbau einer modifizierten Einheitszelle zur Reduktion der Graphittemperaturen
links: Axialschnitt, rechts: Draufsicht

Wesentlicher Unterschied ist, daß das Doppelrohr durch nur ein Rohr, das aus Zirkon oder Niob bestehen kann, ersetzt wird. Die Füllung des Spaltes mit reinem Blei bietet eine effektive Möglichkeit, die im Graphit deponierte Wärmemenge auf die zentral geführte Bleisuspension durch reine Wärmeleitung zu übertragen. Um axiale Wärmespannungen bzw. Spannungen aufgrund der örtlichen Volumenänderung des Graphits abzubauen, sollte der Graphit über die Höhe von 2,5 m mehrfach geteilt werden. Die in Abb. 6.6 gezeigte "Brick-and-Tile" Anordnung lehnt sich dabei an die gasgeköhlten AGR-Reaktoren an. Das Blei im Spalt steht unter einem geringfügig höheren Druck als die Bleisuspension im Rohr. Hier-

durch lassen sich sowohl die Spannungen im Rohr als auch bei möglichen Leckagen die Kontamination benachbarter Strukturen minimieren.

Da die Wärmeleitfähigkeit des Bleis genauso wie die des Rohrwerkstoffs eher höher als die des Graphits ist, stellt Gl. 6.10 mit einem λ von 15 W/m/K ($r_i = 15$ mm, $r_a = 35$ mm) eine konservative Abschätzung der Maximaltemperaturen im Graphit dar. Diese beträgt hiernach bei einer Austrittstemperatur der Suspension von 600 °C etwa 640 °C. Unterstellt man weiterhin eine Eintrittstemperatur von 375 °C, so folgt bei einer Leistungsdichte von 170 MW/m³ nach Gl. 6.2 eine Geschwindigkeit in den Rohren von 1,24 m/s (Verwendung der Stoffwerte nach Anhang C für $T = 488$ °C). Diese Parameter entsprechen größenordnungsmäßig einem aus Rußland stammenden Konzeptvorschlag für einen bleigekühlten schnellen Reaktor mit $T_{Ein} = 440$ °C, $T_{Aus} = 560$ °C und $v_{max} = 1,8$ m/s. Die Maximaltemperatur der Hüllrohre wird in diesem Fall zu 650 °C angegeben [6.36 u. 6.37].

6.4.1.2 Auslegung des Primärkreises

Die Gesamtanordnung des Primärkreises wird, abgesehen vom Core, wesentlich durch die Kreislaufrichtung der Bleisuspension bestimmt. Für die hier vorzunehmende Grobauslegung wird analog zu dem Molten-Salt Konzept des LANL (Kap. 3.3.4.2) eine Anzahl von 6 externen Wärmetauschern vorgeschlagen, die möglichst nahe neben dem Core fixiert werden sollen. Dieses führt zu einer weitgehend kompakten Bauweise mit dem Ziel der Minimierung des Gesamtinventars. Die hochaktive Suspension ist zur Vermeidung von Toträumen mit möglichst wenigen Umlenkungen zu führen. Im Rohrwärmetauscher wird die Suspension innerhalb der vertikalen Rohre geführt. Das umgebende Medium des Sekundärkreises leistet damit direkt einen Beitrag zur Abschirmung.

Die Wärmetauscher werden als einfache Gegenstromwärmetauscher berechnet, wobei die in Anhang C.1 aufgeführten Nusselt-Beziehungen zur Anwendung kommen. Insbesondere für den Außenraum stellt dieses jedoch eine Idealisierung dar, da zumindest der Abstand der Rohre untereinander durch Abstandshalter zu fixieren ist. Dadurch wird die Anströmung gestört, bzw. Querströmung und Längsströmung entlang der Rohre werden sich abwechseln. Eine experimentelle Erfassung der Wärmeübergangszahlen an einem verkleinerten Modell des Wärmetauschers mit dem Kühlmittel Blei wird deshalb für eine genaue Auslegung notwendig sein.

Die Wärmeübertragung in einem Wärmetauscher folgt allgemein der Beziehung

$$\dot{Q} = k \cdot A_A \cdot \Delta T_{Log} = k \cdot A_A \cdot \frac{\Delta T_{Gro\beta} - \Delta T_{Klein}}{\ln\left(\frac{\Delta T_{Gro\beta}}{\Delta T_{Klein}}\right)} \quad (\text{Gl. 6.12})$$

k	Wärmedurchgangskoeffizient
A_A	Mantelfläche sämtlicher Rohre
ΔT_i	Temperaturdifferenzen von Sekundär- und Primärmedium an Aus- oder Eintritt eines der Medien

Je größer also die logarithmische Temperaturdifferenz wird, umso kleiner kann man bei konstanter Übertragerleistung die Wärmeübertragungsflächen dimensionieren. Da die Eintrittstemperatur in das Core mit 375 °C nur etwa 50 K über dem Schmelzpunkt des Bleis liegt, soll das Eutektikum Pb83-Mg17 wegen seines erniedrigten Schmelzpunktes von 248,7 °C als Sekundärmedium gewählt werden. Nach [6.26] kann eine geringe chemische Aktivität des Magnesiums erwartet werden, so daß die Korrosionseigenschaften der Legierung ähnlich denen des reinen Bleis sein sollten. Entsprechende Versuche hierzu stehen jedoch momentan noch aus. Durch die Temperaturvorgabe im Sekundärkreis von $T_{Ein} = 300$ °C und $T_{Aus} = 550$ °C bleiben somit sowohl Primär- als auch Sekundärmedium 50 K über dem Schmelzpunkt, und es sind konventionelle Dampfzustände mit Wirkungsgraden bis zu 40 % möglich.

Weiterhin werden für die Auslegung des Wärmetauschers übliche Innendurchmesser der Rohre von 15 mm bei Wandstärken von 1,5 mm angenommen. Die Geschwindigkeit im übrigen Primärkreis soll gegenüber dem Core auf 2 m/s gesteigert werden, wobei in den Wärmetauschern 1,5 m/s angesetzt wird. Der Grund hierfür besteht darin, daß das Inventar minimiert werden soll, indem der im Core verbrachte Zeitanteil maximiert wird. Die im Anhang C in Tabellenform für Variante a (Geschwindigkeiten außerhalb des Cores: 2 m/s in den Rohren, 1,5 m/s im Wärmetauscher) und Variante b (Geschwindigkeit außerhalb des Cores: 1,3 m/s) gegebenen Systemparameter verdeutlichen dieses. Alle Stoffdaten sind für die Mitteltemperatur im jeweiligen Kreislauf angesetzt worden. Die Viskosität des Bleis wird allerdings nach der Einstein'schen Formel (Gl. 3.16) gemäß einer Beladung von 1 % korrigiert. Viskosität und Dichte der Pb-Mg Legierung im Sekundärkreislauf werden nach [6.38] auf etwa 90 % der Werte von reinem Blei reduziert.

Für Variante a und b resultieren daraus Wärmedurchgangskoeffizienten k von 6800 bzw. 6443 W/m²/K. Bekanntlich berechnet sich k zu

$$k = \frac{1}{\frac{1}{\alpha_P} \cdot \frac{d_A}{d_i} + \frac{d_A}{2 \cdot \lambda_w} \cdot \ln\left(\frac{d_A}{d_i}\right) + \frac{1}{\alpha_S}} \quad (\text{Gl. 6.13})$$

$\alpha_{P/S}$ Wärmeübergangszahl auf Primär- und Sekundärseite
 $d_{a/i}$ Außen- und Innendurchmesser
 λ_w Wärmeleitfähigkeit des Wandmaterials

Die kleineren Werte von Variante b sind in den geringeren Geschwindigkeiten und Reynoldszahlen begründet. Weiterhin zeigt sich, daß der Kehrwert des zweiten Summanden mit 30.000 W/m²/K deutlich größer ist als die Wärmeübergangszahlen an Primär und Sekundärseite (ca 19.000 W/m²/K). Aus Sicherheitsgründen könnten also Doppelrohre mit einer Sperrflüssigkeit erwogen werden, ohne die Wärmeübertragung wesentlich zu verschlechtern.

Die Höhe H des Wärmetauschers läßt sich aus

$$T_{PEin} - T_{SAus} = (T_{PAus} - T_{SEin}) \cdot e^{\left\{ k \cdot \pi \cdot d_A \cdot \left[\frac{1}{(\dot{m} \cdot c)_P} - \frac{1}{(\dot{m} \cdot c)_S} \right] \cdot H \right\}} \quad (\text{Gl. 6.14})$$

T_{Pi}	Primärkreistemperaturen an Ein- und Austritt
T_{Si}	Sekundärkreistemperaturen an Ein- und Austritt
c	Wärmekapazität
$\dot{m}$	Massenstrom von Primär- und Sekundärmedium

zu 3,84 m bzw. 3,51 m ermitteln. Beide Höhen übertreffen deutlich das Core. Variante **b** baut kleiner, da der durch ein Rohr gepumpte Enthalpiestrom aufgrund der geringeren Geschwindigkeit ebenfalls geringer ausfällt. Die Gesamtanzahl der Rohre beträgt für Variante **a** 15.500 und für Variante **b** 17.884, da kleinere Wärmedurchgangskoeffizienten k bei gleicher zu übertragender Leistung eine vergrößerte Wärmeübertragungsfläche A_A erforderlich machen.

Für die Berechnung des Verhältnisses der im Core verbrachten Zeit t_{Core} zu der Gesamtzeit für einen Umlauf t_G wird zusätzlich zu den Höhen von Wärmetauscher und Core die Summe aus Ein- und Auslauf in das Core zu 2 m angenommen. Diese Werte werden genauso wie der errechnete Durchmesser des Wärmetauschers und der einfache Radius des Cores durch die vorherrschende Geschwindigkeit dividiert und dann zu einer Gesamtzeit t_G addiert. Einen weiteren Beitrag zu der außerhalb des Cores verbrachten Zeit liefert die Differenz der Höhen von Wärmetauscher und Core. Mit diesem Modell errechnet sich t_{Core}/t_G bzw. das Verhältnis der **Inventare** I_{Core}/I_G für Variante **a** zu 0,29 und für Variante **b** zu 0,23. Das vom LANL für verschiedene Anordnungen postulierte Verhältnis von 0,5 (siehe Kap. 4) scheint also nicht erreichbar.

Die Berechnung des Druckverlustes unter Einbeziehung von Core, Wärmetauscher und einem Zuschlag von 1 bar für weitere Umlenkungen führt auf einen Gesamtdruckabfall von 2,5 bar. Setzt man einen Pumpenwirkungsgrad von 80 % an, so folgt, daß nur 0,24 % der erzeugten elektrischen Leistung als Eigenbedarf für die Primärkreispumpe abzuziehen sind. Da der Pumpenwirkungsgrad in diesem Fall von relativ geringer Bedeutung ist, sollte man ebenfalls erwägen, aus Sicherheitsgründen elektromagnetische **Pumpen** ($\eta \approx 10\%$ [6.26]) einzusetzen, da hier die Gefahr von Undichtigkeiten bedeutend geringer ist. Da keine drehenden Teile in Kontakt mit der Schmelze sind, bietet es sich an, die Pumpe im heißen Bereich direkt hinter dem Austritt aus dem Core anzuordnen. Hierdurch wird der Arbeitsdruck im Core - dieser sollte nach den obigen Rechnungen zwischen 5 und 10 bar betragen - um die Druckverluste von ca. 2 bar verkleinert. Der Zahlenwerte der kompletten Berechnung sind in Tabellenform in Anhang C.3 übersichtlich dargestellt.

6.4.1.3 Konstruktive Ausführung

Eine an die Primärkreisauslegung von Variante a angepaßte mögliche konstruktive Ausführung zeigt Abb. 6.7. Die Anlage ist im Vertikalschnitt dargestellt mit zweien der 6 vorgesehenen externen Wärmetauscher.

Die Suspension wird von oben nach unten durch das Core gepumpt. Diese Strömungsrichtung ist keinesfalls zwingend vorgeschrieben, obwohl daraus gewisse Unterschiede der Gesamteigenschaften folgen. Ausschlaggebend für die Wahl der Strömungsrichtung sind in diesem Fall die in Kap. 5 diskutierten Störungen der Wärmeabfuhr bei eingeschaltetem Beschleuniger. Hierunter fallen der Ausfall der Wärmeabfuhr im Sekundärkreis (LOHS) und das gleichzeitige Versagen aller Primärkühlmittelpumpen (LOF). Der letztgenannte Störfall ist sicherlich durch die hier vorgesehene Anzahl von 18 Pumpen extrem unwahrscheinlich, jedoch prinzipiell nicht auszuschließen. Durch die Trägheit des gepumpten Bleis wird der Bleimassenstrom durch das Core jedoch nicht schlagartig auf Null sinken. Stattdessen wird eine einer Exponentialfunktion folgende Reduktion des Massenstroms bei konstanter nuklearer Leistungsproduktion eine Anhebung der Austrittstemperaturen zur Folge haben. Somit ist es vorstellbar, einen passiven Abschaltmechanismus durch eine möglichst nahe am Coreaustritt angeordneten Schmelzsicherung zu realisieren. Die höheren Temperaturen werden zu einem Durchschmelzen der Sicherung und einer gravitationsbedingten Entleerung des Cores in einen unterhalb angeordneten Tank führen. Da der Wärmetauscheraustritt auf einer Höhe mit dem Coreeintritt liegt, erfolgt die Entleerung des Cores mit maximal möglicher Geschwindigkeit. Der gleiche Mechanismus läßt sich auch für den Ausfall der Wärmesenke (LOHS) nutzen, zumal der Temperaturanstieg der Primärkreisaustrittstemperatur langsamer erfolgen wird bei gleichzeitig störungsfreien Betrieb des Primärkreises. Da sich die Geschwindigkeit des Bleis im Primärkreis nicht ändert, bleiben die vorteilhaften Wärmeübertragungseigenschaften für eine frühzeitige Auslösung der Sicherung erhalten. Die vorgestellte passive Form der Coreentleerung hat zusätzlich das Potential bei geeigneter Auslegung, die Nachwärmeproblematik zufriedenstellend zu lösen.

Eine Durchströmung des Cores entgegen der Richtung der Schwerkraft könnte dagegen bei einem Ausfall der Pumpen und einer funktionsfähigen Wärmeabfuhr im Sekundärkreis für einen Naturumlauf der Suspension im Primärkreis sorgen. Die Strömungsgeschwindigkeit ließe sich steigern, wenn die Wärmezufuhr deutlich unterhalb der Wärmeabfuhr erfolgen würde. Dieses hätte hochliegende Wärmetauscher und eine weniger kompakte Bauweise mit den bekannten Nachteilen für das Inventar zur Folge.

Welche Bauweise für die externe Kühlung einer Bleisuspension vorzuziehen ist, muß an dieser Stelle offen bleiben. Eine Entscheidung kann sicherlich nur aufgrund einer sorgfältigen Abwägung sämtlicher sicherheitsrelevanter Fragen getroffen werden. Die für kerntechnische Anlagen ungewöhnliche Form der Anordnung von externen Wärmetauschern inclusive der notwendigen Verbindungsrohre läßt jedoch gravierende Betriebsprobleme im Normalbetrieb erwarten, da die Dichtigkeit im gesamten Primärkreis zu gewährleisten ist. Von daher sollen in den folgenden Abschnitten Formen der internen Kühlung diskutiert werden, bei der die Spaltwärme der Suspension im Core auf ein nicht kontaminiertes Kühlmittel übertragen wird.

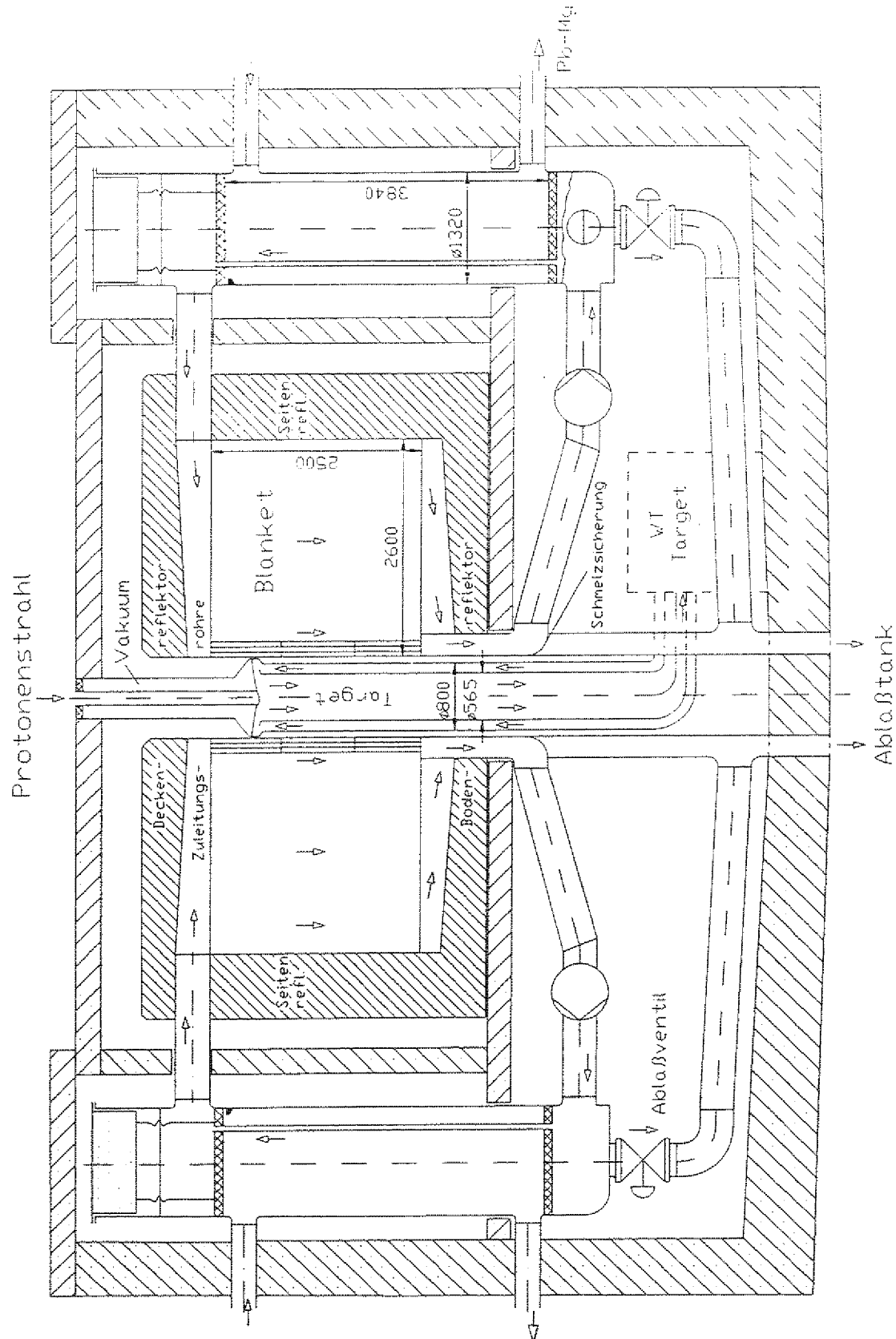


Abb. 6.7: Anordnung von Target, Blanket und Wärmetauscher für die unterkritische Transmutationsanlage mit einer Actinidensuspension in flüssigem Blei als Kernbrennstoff

6.4.2 Interne Kühlung mit Zwangskonvektion

Die einfachste Form, einen entscheidenden Nachteil der externen Kühlung, nämlich den des für die Transmutation ungünstigen Verhältnisses von t_{Core}/t_G , zu reduzieren, besteht in einer internen Kühlung mit Zwangskonvektion. Dieses bedeutet, daß nur die Pumpen außerhalb des Cores angeordnet werden. Sie erzeugen eine Geschwindigkeit, die gerade groß genug ist, um eine turbulente Strömung in den Rohren aufrechtzuerhalten. Abb. 6.8 zeigt das von oben nach unten durchströmte Niob-Rohr, das im Gegenstrom von reinem Blei gekühlt wird. Dieses Blei heizt sich vom unteren Sammelbecken nach oben hin von 375 °C auf etwa 550 °C auf. Hiermit sind wiederum konventionelle Dampfzustände möglich, da ein Zwischenkreislauf entfallen darf.

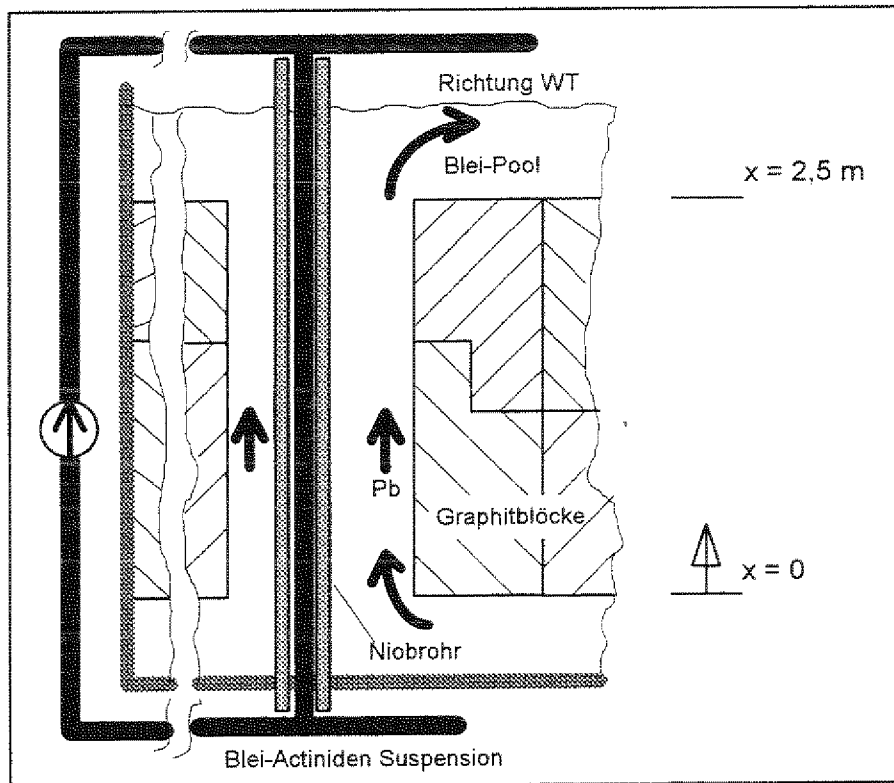


Abb. 6.8: Anordnung des Einzelrohres im Gesamtsystem bei interner Kühlung der Actinidensuspension durch Zwangskonvektion mit externen Pumpen

Die sich einstellenden Temperaturen lassen sich leicht aus der Bilanzierung der Strömungskanäle im Core berechnen. Das zentrale Niob-Rohr mit einer Dicke t von 1 mm und einem Durchmesser von 30 mm wird von der Suspension mit einer Geschwindigkeit von 1 m/s durchströmt. Die spaltproduktfreie Bleischmelze im Ringspalt (Spaltbreite $s = 6$ mm) strömt mit einer Geschwindigkeit von 1,56 m/s aufwärts.

Die Ermittlung des Wärmedurchgangskoeffizienten erfolgt analog zu Kap. 6.4.1 mit den in Anhang C dargestellten Beziehungen. Alle Einzelergebnisse sind in Anhang C.4 in Tabellenform festgehalten. Sowohl im Zentrum als auch im Ringspalt ist die Strömung mit einer Reynolds-Zahl von $2,14 \cdot 10^5$ bzw. $1,1 \cdot 10^5$ turbulent. Die Wärmeübertragungszahlen sind im

Außenraum mit $17.444 \text{ W/m}^2/\text{K}$ geringfügig höher als im Innenraum. Somit könnte die Größe des Ringspaltes noch vergrößert werden, sollte dieses aus Fertigungsgründen bzw. Dimensionsänderungen durch Strahlenschädigung nötig werden. So führt die Anhebung des Innendurchmessers der Graphitblöcke von 44 mm auf 48 mm zu einer Abnahme des Wärmedurchgangskoeffizienten k von $5829 \text{ W/m}^2/\text{K}$ auf $5200 \text{ W/m}^2/\text{K}$.

Für die Modellierung wird eine über der Höhe von 2,5 m konstante Wärmequellendichte vorausgesetzt (siehe Abb. 6.8). Die Wärmeproduktion aus der Nachwärme außerhalb des Cores soll in einem ersten Ansatz vernachlässigt werden. Als Randbedingung folgt daraus für die Temperaturen des Primärmediums (im Zentralrohr geführte Suspension), daß $T_P(0) = T_P(2,5 \text{ m})$ ist. Es läßt sich analog zum Gegenstromwärmetauscher ansetzen:

$$-(\dot{m} \cdot c)_P \cdot \frac{dT_P}{dx} = \dot{q}''' \cdot \pi \cdot \frac{d_i^2}{4} - k \cdot U_A \cdot (T_P - T_S) \quad (\text{I})$$

$$(\dot{m} \cdot c)_S \cdot \frac{dT_S}{dx} = k \cdot U_A \cdot (T_P - T_S) \quad (\text{II})$$

$$\frac{d(T_P - T_S)}{dx} = \left[\frac{1}{(\dot{m} \cdot c)_P} - \frac{1}{(\dot{m} \cdot c)_S} \right] \cdot k \cdot U_A \cdot (T_P - T_S) - \frac{\dot{q}''' \cdot \pi \cdot d_i^2}{4 \cdot (\dot{m} \cdot c)_P} \quad (\text{I-II}) \quad (\text{Gl. 6.15})$$

Die sich aus homogener und partikulärer Lösung zusammensetzende Funktion hat die Form

$$T_P - T_S = K \cdot e^{(A \cdot x)} + \frac{B}{A} \quad \text{mit}$$

$$A = \left[\frac{1}{(\dot{m} \cdot c)_P} - \frac{1}{(\dot{m} \cdot c)_S} \right] \cdot k \cdot U_A \quad \text{und} \quad (\text{Gl. 6.16})$$

$$B = \frac{\dot{q}''' \cdot \pi \cdot d_i^2}{4 \cdot (\dot{m} \cdot c)_P}$$

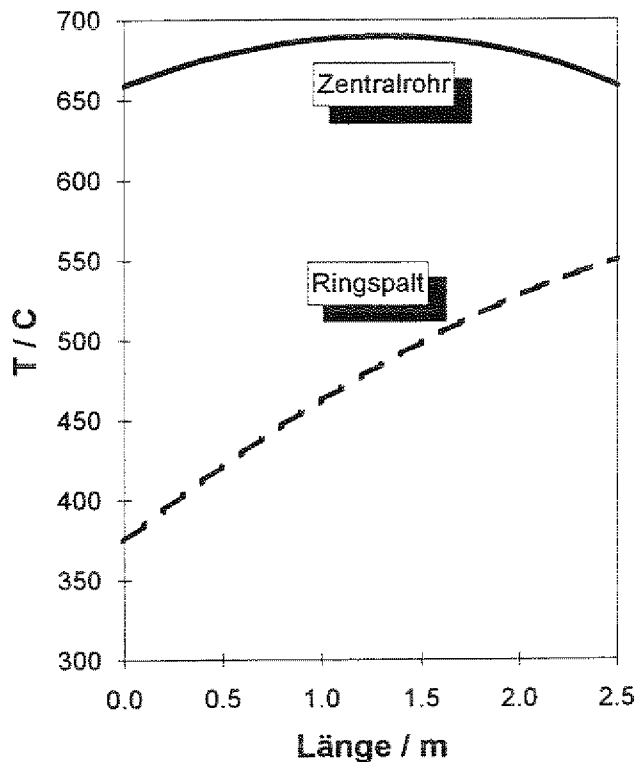
K folgt daraus, daß für $x = 0$ die Temperaturdifferenz an der gleichen Stelle die Funktion identisch lösen muß. Für $x = 2,5 \text{ m}$ kann man Gl. 6.16 dann nach $T_P(0) = T_P(2,5 \text{ m})$ auflösen. Setzt man die so erhaltene Gleichung für die Temperaturdifferenz in Gleichung I bzw. II ein, so folgt durch einfache Integration

$$T_P(x) = \frac{k \cdot U_A}{(\dot{m} \cdot c)_P \cdot A} \left(T_P(0) - T_S(0) - \frac{B}{A} \right) \cdot (e^{(A \cdot x)} - 1) +$$

$$\left(\frac{k \cdot U_A \cdot B}{(\dot{m} \cdot c)_P \cdot A} - B \right) \cdot x + T_P(0) \quad (\text{Gl. 6.17})$$

$$T_S(x) = \frac{k \cdot U_A}{(\dot{m} \cdot c)_S \cdot A} \left(T_P(0) - T_S(0) - \frac{B}{A} \right) \cdot (e^{(A \cdot x)} - 1) + \frac{k \cdot U_A \cdot B}{(\dot{m} \cdot c)_S \cdot A} \cdot x + T_S(0)$$

Die mit diesem Modell errechneten Temperaturen sind in Abb. 6.9 beispielhaft dargestellt. Bei mäßigen Geschwindigkeiten von 1 m/s werden im zentralen Kreislauf an keiner Stelle 700 °C überschritten. Bei diesen Werten sind an der Niob-Innenwand nach Kap. 6.3 noch keine Korrosionserscheinungen zu erwarten, zumal im Kreislauf eine äußerst niedrige Temperaturdifferenz von weniger als 50 K herrscht.



Auslegungsdaten:

$$\dot{q}''' = 170 \text{ MW} / \text{m}^3$$

$$v_p = 1 \text{ m} / \text{s}$$

$$v_s = 1,56 \text{ m} / \text{s}$$

$$d_i = 30 \text{ mm}$$

$$t = 1 \text{ mm}$$

$$s = 6 \text{ mm}$$

Abb. 6.9: Temperaturverlauf bei interner Kühlung der Actinidsuspension unter Zwangskonvektion; Primärmedium = Suspension im Zentralrohr, Sekundärmedium = Blei

Mit der hier berechneten Anordnung wird sich jedoch t_{Core}/t_G nur auf maximal 0,5 steigern lassen. Prinzipiell muß zwar die Schließung des Kreises nicht durch eine externe Aufwärtsströmung erfolgen, sondern kann wiederum im Blanket, diesmal im Gleichstrom mit dem reinen Kühlmittel, erfolgen. Es ist allerdings abzusehen, daß die Realisierung einer solchen Anordnung eine Vielzahl von Pumpen und eine sehr komplizierte Kreislaufführung erfordern würde.

6.4.3 Interne Kühlung mit Naturkonvektion

Die Kreislaufführung ließe sich bedeutend vereinfachen, wenn es gelänge, die Suspension die ganze Zeit im Core zu halten. Randbedingung hierbei ist jedoch, daß ausreichende Strömungsgeschwindigkeiten herrschen, um ein Absinken der Suspension zu verhindern. Gleichzeitig sollte die Wärme effektiv aus dem Core abgeführt werden. Beide Forderungen können nur durch Naturkonvektionsvorgänge erfüllt werden, da der Betrieb von Pumpen im

Core aufgrund der Strahlenbelastung nicht möglich erscheint. Die produzierte Wärme läßt sich jedoch ebenfalls über reine Wärmeleitung abführen, wie die folgende Betrachtung zeigen soll.

6.4.3.1 Temperaturverteilung in einer ruhenden Flüssigkeitssäule

Der Grenzfall einer reinen Wärmeleitung läßt sich auf einfache Weise analytisch lösen. Der Einfluß der axialen Flußverteilung auf die lineare Stabileistung $q'(z)$ folgt gemäß

$$q'(z) = q(0) \cdot \cos\left(\frac{\pi \cdot z}{H^*}\right) \quad (\text{Gl. 6.18})$$

H^* stellt einen die aktuelle Höhe des Cores H von hier 2,5 m übersteigenden Wert dar, der die Reflektorwirkung bzw. den endlichen Fluß vor dem Reflektor berücksichtigen soll. Insbesondere für graphitmoderierte Systeme stellt eine Cosinusfunktion jedoch eine sehr grobe Näherung dar, da es in der Umgebung des Reflektors durch die hier bessere Moderation zu einer Flußüberhöhung kommt.

Da der axiale Wärmetransport im flüssigen Brennstab bei reiner Wärmeleitung ohne Konvektionsvorgänge ($v_{\text{Axial}} = 0$) vernachlässigbar ist, läßt sich für die Temperaturen des Kühlmittels direkt anschreiben

$$q'(z) \cdot dz = \dot{m} \cdot c \cdot dT \quad (\text{Gl. 6.19})$$

Die Kühlmitteltemperaturen folgen daraus durch einfache Integration zwischen $-H/2$ und $+H/2$. Die Hüllwandtemperaturen ergeben sich in einem nächsten Schritt aus der in Anhang C für überströmte Rohre im Ringspalt angegebenen Nusselt-Beziehung und den daraus direkt abzuleitenden Wärmeübergangszahlen α . Der weitere radiale Temperaturverlauf und insbesondere die Zentraltemperatur folgt aus Integration von Gl. 6.8. Eine explizite Lösung der obigen Gleichungen für den Brennstab eines Leichtwasserreaktors kann [6.39] entnommen werden.

Für eine Leistungsdichte von 170 MW/m^3 , eine verlängerte Höhe H^* von 273 cm und der Eintrittstemperatur von $375 \text{ }^\circ\text{C}$ sind alle drei oben diskutierten Temperaturverläufe in Abb. 6.10 dargestellt. Man sieht, daß sich die Hüllrohrtemperatur - die Wand wird nicht explizit modelliert - aufgrund der für Flüssigmetalle hohen Wärmeübergangszahlen eng an den Verlauf der Kühlmitteltemperatur anschmiegt. Die Suspension im Zentralrohr hat bei einem Radius von 1,5 cm und einer radialen Gleichverteilung der Leistungsdichte im Zentrum eine Temperatur von maximal $1050 \text{ }^\circ\text{C}$, so daß die Gefahr des Verdampfens von Blei nicht besteht.

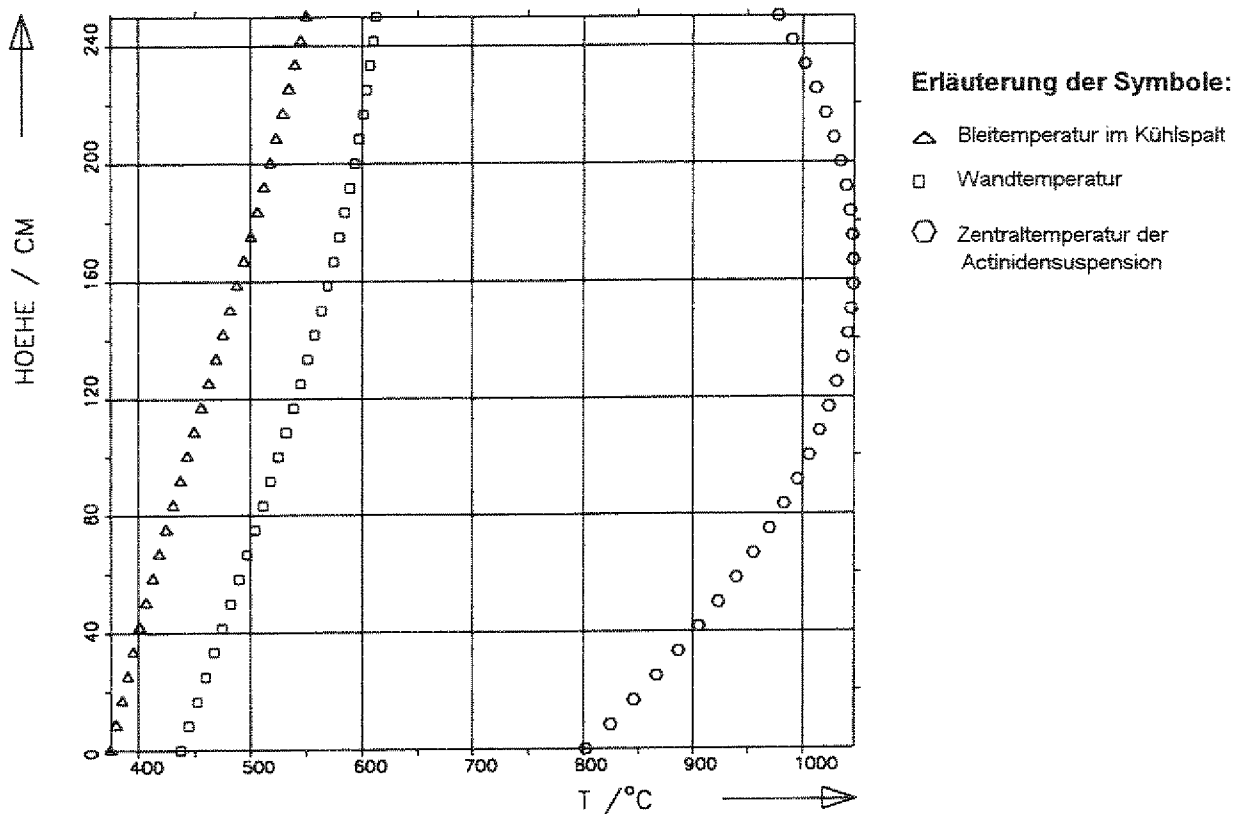


Abb. 6.10: Temperaturverlauf einer als stehend angenommenen Flüssigkeitssäule für $\dot{q}''' = 170 \text{ MW} / \text{m}^3$, $d_i = 30 \text{ mm}$, $v = 1,56 \text{ m/s}$, Spaltbreite $s = 6 \text{ mm}$

6.4.3.2 Vereinfachte Modellierung der Naturkonvektionsvorgänge

Die in Abb. 6.10 dargestellten Temperaturdifferenzen von der Mitte zum Rand hin werden in der Praxis durch Naturkonvektionsvorgänge bedeutend abgeschwächt. Antriebskraft hierfür ist der aus den Temperaturunterschieden folgende Dichteunterschied zwischen dem Zentrum und den wandnahen Bereichen, der dazu führen wird, daß das Fluid (eventuell Suspension) gemäß Abb. 6.11 in der Mitte aufsteigt, während es an der gekühlten Wand wieder zurückfließt. Da das Temperaturniveau insbesondere im vereinfachten Fall einer konstanten Längenleistung bei reiner Wärmeleitung nach oben hin linear ansteigen würde, ist die Auf- bzw. Abwärtsbewegung auch an keiner Stelle behindert. In ihrer einfachsten Form - und dieses mag an dieser Stelle postuliert sein und ist ggfs. nachzuweisen - besteht die Strömung aus einer Naturkonvektionszelle.

Entscheidend für die mathematische Beschreibung ist, daß das Verhältnis aus Durchmesser zu Höhe deutlich kleiner als 1 ist (hier: $h = 250 \text{ cm}$, $d = 3 \text{ cm}$). Unter dieser Bedingung lassen sich Randeffekte, die die Umkehrung der Strömung am oberen und unteren Ende beschreiben, zugunsten einer eindimensionalen Betrachtungsweise vernachlässigen. Es wird im folgenden eine ausgebildete Strömung in z -Richtung postuliert ($w = w(r)$), bei der Kompression bzw. Expansion ebenso wie Dissipation keine Rolle spielen. Der hier vertretene Ansatz

ist bei der Behandlung von Naturkonvektionsvorgängen durchaus üblich und ist beispielsweise in [6.40] näher begründet.

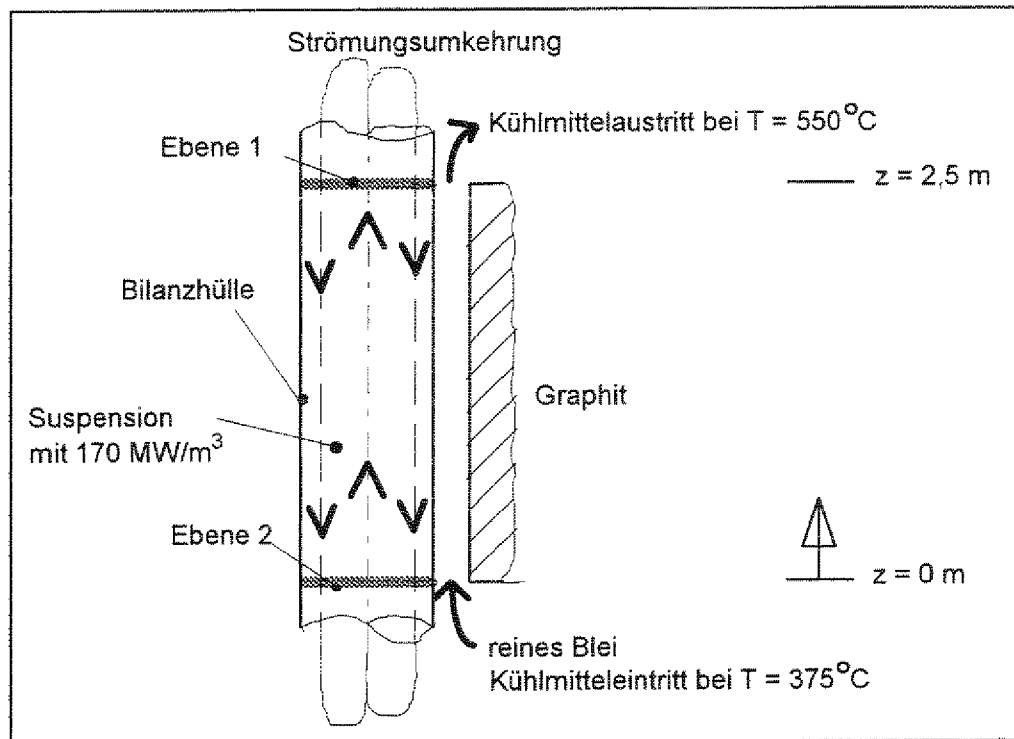


Abb. 6.11: Postulierter Strömungsverlauf in der Einheitszelle aufgrund von Naturkonvektionsvorgängen

Die eindimensionale Betrachtungsweise bedingt, daß sich die allgemeine Impulsgleichung auf eine Komponente in z -Richtung reduziert (siehe z. B. [6.41]). Die linke Seite darf um den zeitabhängigen Term und den Konvektionsterm gekürzt werden, da sich das Geschwindigkeitsprofil stationär gerechnet wird und sich axial nicht ändert. Es gilt:

$$0 = -\rho \cdot g - \frac{\partial p}{\partial z} + \frac{1}{r} \cdot \frac{\partial}{\partial r} \left[\eta \cdot r \cdot \frac{\partial w}{\partial r} \right] \quad (\text{Gl. 6.20})$$

- ρ Dichte
- p Druck
- g Erdbeschleunigung ($9,81 \text{ m/s}^2$)
- η dynamische Viskosität
- r Radius
- w Geschwindigkeitskomponente in z -Richtung $f(r)$

In dieser Gleichung muß p eine lineare Funktion von z sein, um obige Gleichung mathematisch zu lösen. Allgemein läßt sich ansetzen

$$p(z) = p^*(z) + \underbrace{(p_o - \rho_o \cdot g \cdot z)}_{\text{Hydrostatischer Druck}} \quad (\text{Gl. 6.21})$$

Durch Variation des Druckdifferentials läßt sich die Massenerhaltung erfüllen, da der abströmende Massenstrom dem aufströmenden entsprechen muß. Die Energieerhaltung läßt sich vereinfacht durch folgende Beziehung zum Ausdruck bringen:

$$\rho \cdot c \cdot w \cdot \frac{\partial T}{\partial z} = \dot{q}''' + \frac{1}{r} \cdot \frac{\partial}{\partial r} \left[\lambda \cdot r \cdot \frac{\partial T}{\partial r} \right], \quad (\text{Gl. 6.22})$$

w	Geschwindigkeitskomponente in z-Richtung $f(r)$
T	Temperatur $f(r)$
c	Wärmekapazität
λ	Wärmeleitfähigkeit
$\dot{q}'''$	Wärmedichte

in der der Gradient der Temperatur nach z als Konstante zu behandeln ist. Diese Einschränkung folgt mathematisch gesehen aus den bis jetzt getroffenen Vereinfachungen in Gl. 6.20 und Gl. 6.22 und wird in [6.40] für ein kartesisches Koordinatensystem hergeleitet. Anschaulich gesprochen kommt hierin jedoch nur zum Ausdruck, daß der axiale Gradient der Temperatur an der Wand demjenigen im Zentrum entspricht, was ja auch schon in den Eingangsbemerkungen angesprochen wurde.

Bei der Behandlung von Naturkonvektionsvorgängen darf man in dem aus Gl. 6.20 und Gl. 6.22 gebildeten Gleichungssystem die Änderung der Stoffdaten bis auf die Änderung der Dichte in der Impulsgleichung nach Gl. 6.20 vernachlässigen. Dieses bezeichnet man als Boussinesq-Overbeck Approximation und setzt für die Temperaturabhängigkeit der Dichte linear an

$$\rho = \rho_o \cdot (1 - \beta \cdot (T - T_o)) \quad (\text{Gl. 6.23})$$

Die Linearisierung der Dichtefunktion bedingt für flüssiges Blei einen vernachlässigbaren Fehler, wenn man die ähnliche Stoffdatenfunktion im Anhang mit dem Ansatz nach Gl. 6.23 vergleicht.

Da aufgrund der hohen Leistungsdichten auch der Fall turbulenter Strömungen untersucht werden soll, müssen wegen der Abhängigkeit der turbulenten Wärmeleitfähigkeit und Viskosität vom lokalen Geschwindigkeitsgradienten diese Stoffwerte diskretisiert werden. Temperaturabhängigkeiten werden in diesem Rahmen direkt mitberücksichtigt. Aus Gl. 6.20 und Gl. 6.22 folgt somit das Gleichungssystem

$$\begin{aligned} \frac{1}{R} \cdot \frac{d}{dR} \left[\eta \cdot R \cdot \frac{dW}{dR} \right] &= - \frac{1000 \cdot \eta(T_w)}{64} \cdot \Phi + \frac{\partial p^*}{\partial z} \cdot C \\ \frac{1}{R} \cdot \frac{d}{dR} \left[\lambda \cdot R \cdot \frac{d\Phi}{dR} \right] &= \rho \cdot c \cdot \frac{4 \cdot \lambda(T_w)}{1000 \cdot \rho(T_w) \cdot c(T_w)} \cdot N_I \cdot W - 4 \cdot \lambda(T_w) \end{aligned} \quad (\text{Gl. 6.24})$$

mit den normierten Variablen für Radius, Geschwindigkeit und Temperatur

$$R = \frac{r}{d} \cdot 2, \quad W = \frac{w(r) \cdot d}{v \cdot N_{II}} \cdot 1000, \quad \Phi = \frac{T(r) - T_W}{\Theta_{konv}}$$

und den dimensionslosen Kennzahlen bei der Bezugstemperatur - hier wird die Wandtemperatur T_W gewählt -

$$N_I = \frac{\frac{\partial T}{\partial z} \cdot \beta \cdot g \cdot d^4 \cdot \rho \cdot c}{\lambda \cdot v}, \quad N_{II} = \frac{\dot{q}''' \cdot \beta \cdot g \cdot d^5}{\lambda \cdot v^2}, \quad \Theta_{konv} = \frac{\dot{q}''' \cdot d^2}{16 \cdot \lambda}$$

Die numerische Behandlung obiger Gleichungen erfordert eine Diskretisierung. Unterteilt man den Rohrradius in n äquidistante Maschen mit dem Abstand ΔR so ergibt sich

$$\frac{\eta_{R_2} \cdot R_2 \cdot \frac{W_{i+1} - W_i}{\Delta R} - \eta_{R_1} \cdot R_1 \cdot \frac{W_i - W_{i-1}}{\Delta R}}{\Delta R \cdot R_i} = -1000/64 \cdot \Phi_i \cdot \eta(T_W) + \bar{C}$$

$$\frac{\lambda_{R_2} \cdot R_2 \cdot \frac{\Phi_{i+1} - \Phi_i}{\Delta R} - \lambda_{R_1} \cdot R_1 \cdot \frac{\Phi_i - \Phi_{i-1}}{\Delta R}}{\Delta R \cdot R_i} = \frac{4 \cdot \lambda(T_W) \cdot N_I \cdot \rho_i \cdot c_i}{1000 \cdot \rho(T_W) \cdot c(T_W)} \cdot W_i - 4 \cdot \lambda(T_W)$$
(Gl. 6.25)

$$R_2 = (i + 0,5) \cdot \Delta R$$

mit

$$R_1 = (i - 0,5) \cdot \Delta R$$

$$R_i = i \cdot \Delta R$$

Diese Gleichung führt zu einer nicht symmetrischen Matrix, bei der nur die Hauptdiagonale und jeweils zwei Nebendiagonalen besetzt sind. Als Randbedingung ergibt sich sowohl für die dimensionslosen Geschwindigkeiten als auch für die Temperaturen, daß diese am Rand zu Null werden. Das Gleiche gilt für die jeweiligen Gradienten in der Rohrmitte.

In dem besonders einfachen Fall konstanter Stoffwerte (Boussinesq-Overbeck Approximation) erhält man die Lösung des Temperatur- und Geschwindigkeitsfeldes nach einer Überführung der Matrix in Dreiecksform und durch konsekutive Auflösung des resultierenden Gleichungssystems. Dieser vereinfachte Fall bietet für laminare Strömungen den Vorteil, daß die dimensionslosen Temperaturen und Geschwindigkeiten nur von der dimensionslosen Größe N_I abhängig sind. Somit lassen sich alle Lösungen in zwei Abbildungen für das Geschwindigkeits- und Temperaturprofil (Abb. 6.13 und Abb. 6.12) zusammenfassend darstellen. Die hier für ein Rohr errechneten Werte entsprechen größenordnungsmäßig den in [6.42] für parallele Platten im kartesischen Koordinatensystem angegebenen Temperatur- und Geschwindigkeitsprofilen. Die im wesentlichen ähnliche Analyse für Plattensysteme wurde in [6.43] experimentell für kleine Leistungsdichten, die mehrere Größenordnungen unterhalb den hier auftretenden liegen, validiert.

Die Temperaturfunktionen nach Abb. 6.12 weisen eine Besonderheit auf. Ihr Gradient entspricht am äußeren Rand dem Fall der reinen Wärmeleitung ohne Konvektionsströmungen. Somit wird die gesamte in einem Kontrollraum (siehe hierzu Abb. 6.11) produzierte Wärme

über die Rohrwände abgeführt, und das Geschwindigkeitsprofil beeinflusst nicht die Wärmebilanz. Formelmäßig läßt sich dieser Sachverhalt durch Bilanzierung der konvektiven Enthalpieströme H über die Ebenen 1 und 2 in Abb. 6.11 verstehen. Da die Massenerhaltung im betrachteten Kontrollvolumen gegeben sein muß, folgt, wenn man vereinfacht konstante Stoffwerte unterstellt:

$$\begin{aligned}\Delta H &= \rho \cdot c \cdot 2 \cdot \pi \int_0^{d/2} r \cdot v(r) \cdot [T_1(r) - T_2(r)] dr \\ &= c \cdot \frac{dT}{dz} \cdot z \cdot \underbrace{\rho \cdot 2 \cdot \pi \cdot \int_0^{d/2} r \cdot v(r) dr}_{\text{Massenerhaltung} = 0} = 0\end{aligned}\quad (\text{Gl. 6.26})$$

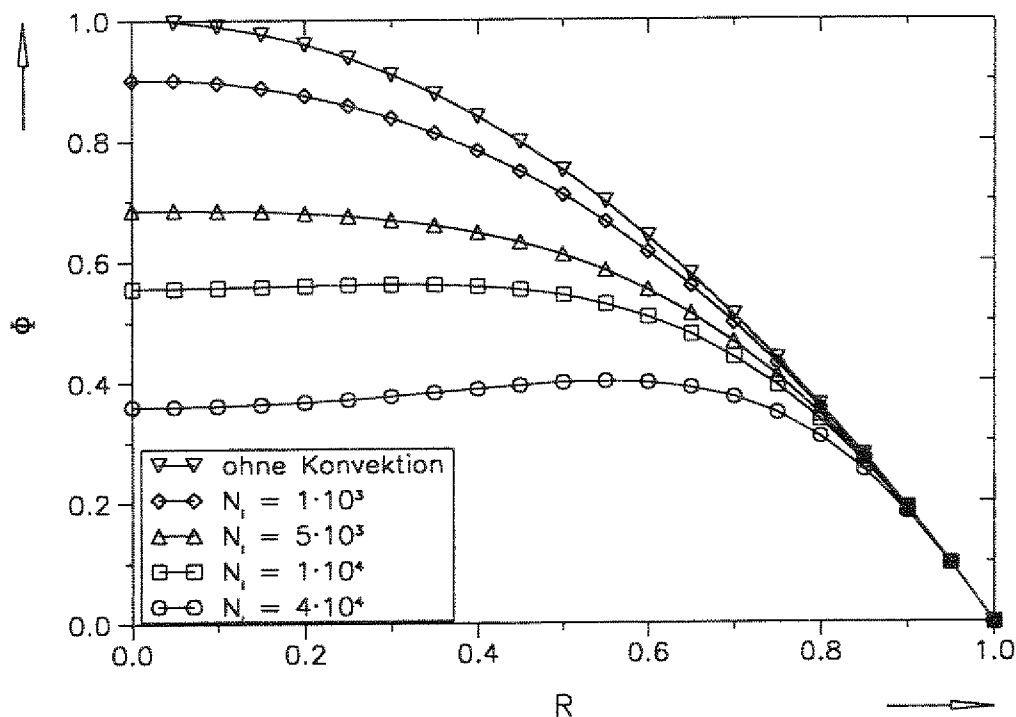


Abb. 6.12: Dimensionslose Temperaturprofile in Abhängigkeit von N_1 und dem Radius R für die Naturkonvektionszelle nach Abb. 6.11

Trotz der Tatsache, daß somit in der Summe über die Ebenen 1 und 2 keine Wärme konvektiv transportiert wird, stellt sich jedoch die Frage nach der Bedeutung der Randbereiche oberhalb und unterhalb des angedeuteten Kontrollraums für die Wärmebilanz. Setzt man etwa in Ebene 1 im Zentrum eine Aufwärtsströmung mit einer mittleren Geschwindigkeit von 1 m/s bei einer typischen Dichte von 10.000 kg/m^3 ($\approx 3,5 \text{ kg/s}$ mit $d = 3 \text{ cm}$), einer Wärmekapazität von 140 J/kg/K und einer mittleren Temperaturdifferenz zwischen Auf- und Abwärtsströmung von 200 K an, so muß in der nicht berücksichtigten oberhalb des Kontrollraumes liegenden Querströmung eine Energie von nahezu 100 kW abgeführt und unterhalb von Ebene 1 zugeführt werden. Dieser Wert ist zu vergleichen mit den in der Flüssigkeitssäule bei einer Leistungsdichte von 170 MW/m^3 und einer Höhe von 2,5 m erzeugten 300 kW. Umgekehrt läßt sich an dieser Stelle aber auch direkt folgern, daß bei

Geschwindigkeiten von einigen cm/s die Gesamtenergiebilanz auch bei expliziter Berücksichtigung der Randzonen nur geringfügig beeinflusst wird.

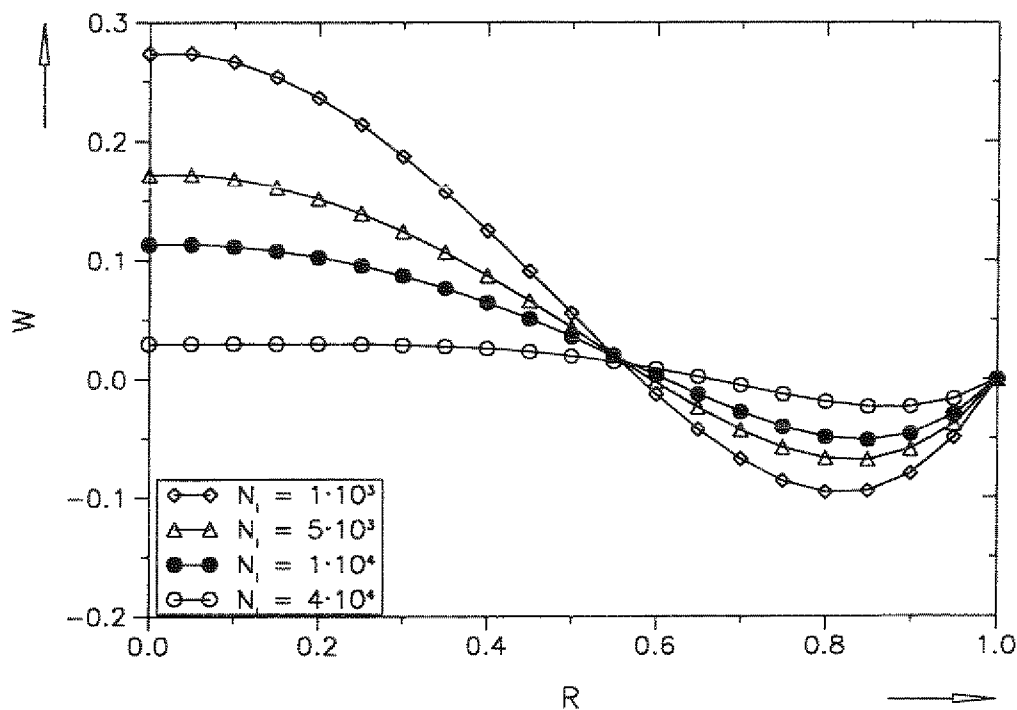


Abb. 6.13: Dimensionsloses Geschwindigkeitsprofil in Abhängigkeit von N_I und dem Radius R für die Naturkonvektionszelle nach Abb. 6.11

Für die hier betrachtete Zelle errechnet sich bei einer Eintrittstemperatur von 375 °C und einer Austrittstemperatur von 550 °C des Kühlmittels ein Temperaturgradient von 70 K/m. Der Volumenausdehnungskoeffizient β beträgt für flüssiges Blei in dem betrachteten Temperaturbereich bei ca. 600 °C etwa $1,1 \cdot 10^{-4} \text{ 1/K}$ so daß sich eine dimensionslose Kennzahl N_I von $3 \cdot 10^4$ errechnet. Dieses entspricht nahezu dem flachsten Geschwindigkeitsprofil in Abb. 6.13. Absolut gesehen folgt aus einer dimensionslosen Kennzahl N_{II} von $8,8 \cdot 10^9$ und einer dimensionslosen Geschwindigkeit von ca. 0,05 im Zentrum eine dimensionsbehaftete Geschwindigkeit von größenordnungsmäßig 2 m/s. Diese hohen Geschwindigkeiten lassen gemäß der Überlegung im vorherigen Abschnitt zum einen Zweifel an der eindimensionalen Modellierung aufkommen (Energiebilanz). Zum anderen sind turbulente Strömungsverhältnisse zu erwarten, so daß das oben beschriebene Strömungsmodell erweitert werden muß. Die dargestellte Lösung bleibt jedoch von Bedeutung für den Fall, daß die Anlage nuklear abgeschaltet wird und nur noch die Nachwärme die nukleare Wärmequelle bildet. Bei 1 % Nachwärmeleistung - die kontinuierliche Reinigung der Schmelze von den Spaltprodukten wird zu einer reduzierten Nachwärmeleistung führen - sind Geschwindigkeiten von etwa 2 cm/s im Zentrum zu erwarten. Hierbei könnte die Strömung durchaus noch laminar sein.

Die Aufstellung eines auf die Anordnung und spezifische Problemstellung abgestimmten Turbulenzmodells ist mit erheblichem Aufwand verbunden. Da sich in der Literatur kein unmittelbar zutreffendes Modell findet, soll die Turbulenz im folgenden vereinfacht über

eine effektive Zähigkeit η_{eff} und einer effektive Wärmeleitfähigkeit λ_{eff} in der Energie- und Impulsgleichung berücksichtigt werden [6.44 und 6.45]. Diese Größen werden anstelle der laminaren Größen auf der linken Seite von Gl. 6.25 verwendet. Die Form und der Lösungsalgorithmus des Gleichungssystems sind von dieser Änderung unberührt.

Die effektiven Größen folgen sowohl für Wärmeleitfähigkeit als auch Zähigkeit aus einer einfachen Addition von turbulenten und laminaren Anteil. Die turbulente Zähigkeit folgt gemäß dem Prandtl'schen Mischungswegansatz durch Auflösung von:

$$\tau_{\text{Turb}} = \eta_{\text{Turb}} \cdot \frac{\partial w}{\partial r} = \rho \cdot l_m^2 \cdot \left| \frac{\partial w}{\partial r} \right| \cdot \frac{\partial w}{\partial r} \quad (\text{Gl. 6.27})$$

In dieser Gleichung läßt sich nach [6.45] die Mischungslänge l_m , die am Rand aufgrund der laminaren Grenzschicht gegen Null strebt, durch die van Driest'sche Dämpfungsfunktion ausdrücken:

$$l_m = 0,4 \cdot (R - r) \cdot \left(1 - e^{-\left[\frac{(R - r) \cdot \sqrt{\tau_w \cdot \rho}}{26 \cdot \eta_{\text{Lam}}} \right]} \right) \quad (\text{Gl. 6.28})$$

τ_w	Schubspannung an der Wand aus dem dortigen Geschwindigkeitsgradienten
R	Radius des Rohres
r	Radius des betrachteten Volumens im Inneren des Rohres

Turbulente Zähigkeit und turbulente Wärmeleitfähigkeit werden bei Gasen und Wasser mit gutem Erfolg über die laminare Prandtl-Zahl Pr_{lam} gemäß

$$\lambda_{\text{Turb}} = \frac{c}{Pr} \cdot \eta_{\text{Turb}} \quad (\text{Gl. 6.29})$$

verknüpft. Da flüssiges Blei jedoch im Gegensatz zu den zuvor genannten Medien nicht über Prandtl-Zahlen von größenordnungsmäßig 1 sondern von etwa 10^{-2} verfügt, bedeutet die Umrechnung mit $Pr=1$ eine konservative Abschätzung der effektiven Wärmeleitfähigkeit. Beide Vorgehensweisen sind in den nachfolgenden Rechnungen bei Wandtemperaturen von 600 °C - diese sind nach Abb. 6.10 im oberen Drittel des Rohres zu erwarten - angewendet worden. Da die Ergebnisse über die Schubspannung τ_w an der Wand stark vom dortigen Geschwindigkeitsgradienten abhängen, wurde durchweg eine äußerst feine Diskretisierung von 1000 radialen Maschen gewählt.

Abb. 6.14 zeigt die auf die jeweilige maximale Geschwindigkeit normierten Geschwindigkeitsprofile für die laminare Strömung und die mit unterschiedlichen effektiven Wärmeleitfähigkeiten berechneten turbulenten Strömungen. Die laminare Strömung erreicht ihr be-

tragsmäßiges Maximum im Zentrum mit 2,09 m/s. Der Maximalwert der turbulenten Strömung dagegen befindet sich nahe der Wand in der Abwärtsströmung. Das starke Absinken der Geschwindigkeiten am Rand beruht auf den dort sinkenden Zähigkeiten durch die Existenz einer laminaren Grenzschicht. Die turbulente Zähigkeit übertrifft die laminare Zähigkeit im Rohr um bis zu zwei Größenordnungen. Sieht man die Aufwärtsströmung in der Mitte als eine Rohrströmung an, so läßt sich hier eine flächengewichtete mittlere Strömungsgeschwindigkeit und auch eine Reynoldszahl bilden. Letztere beträgt in Fall a nahezu 1000 und in Fall b 3200.

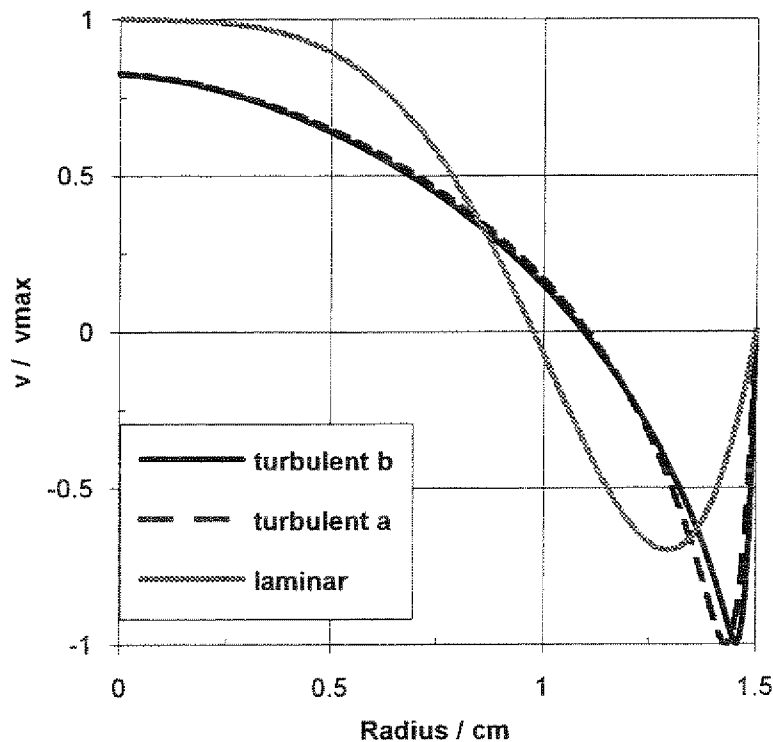


Abb. 6.14: Vergleich der radialen Geschwindigkeitsverteilung für den turbulenten und laminaren Ansatz; Leistungsdichte 170 MW/m^3 , aufgeprägter Temperaturgradient 70 K/m ,
a: $Pr = Pr_{lam}$ mit $v_{max} = -1,99 \text{ cm/s}$; b: $Pr = 1$ mit $v_{max} = -5,63 \text{ cm/s}$;
laminar: $v_{max} = 2,09 \text{ m/s}$

Die hier berechneten Geschwindigkeiten sind mit der Sedimentationsgeschwindigkeit der Suspension zu vergleichen. Setzt man hierzu konservativ Teilchendurchmesser von $10 \mu\text{m}$ bei einem Dichteunterschied zwischen Suspension (beispielsweise Oxide) und flüssigem Blei von 2 g/cm^3 bei einer Viskosität (laminar $1,6 \cdot 10^{-3} \text{ Pas}$) an, so ergibt sich nach Gl. 3.16 eine Sinkgeschwindigkeit von $0,07 \text{ mm/s}$, die mehr als 2 Größenordnungen unterhalb der aufgrund der Naturkonvektion zu erwartenden Geschwindigkeiten liegt.

Abb. 6.15 stellt die resultierenden Temperaturprofile dar. Es zeigt sich, daß die Temperaturdifferenzen von 450 K im Fall der reinen Wärmeleitung um mehr als die Hälfte nämlich 200 K sowohl nach dem Rechenmodell der laminaren als auch der turbulenten Strömung

sinken. Verwendet man für Pr die laminare Prandtl-Zahl (Modell a), so sinkt die Temperaturdifferenz sogar auf nahezu 50 K.

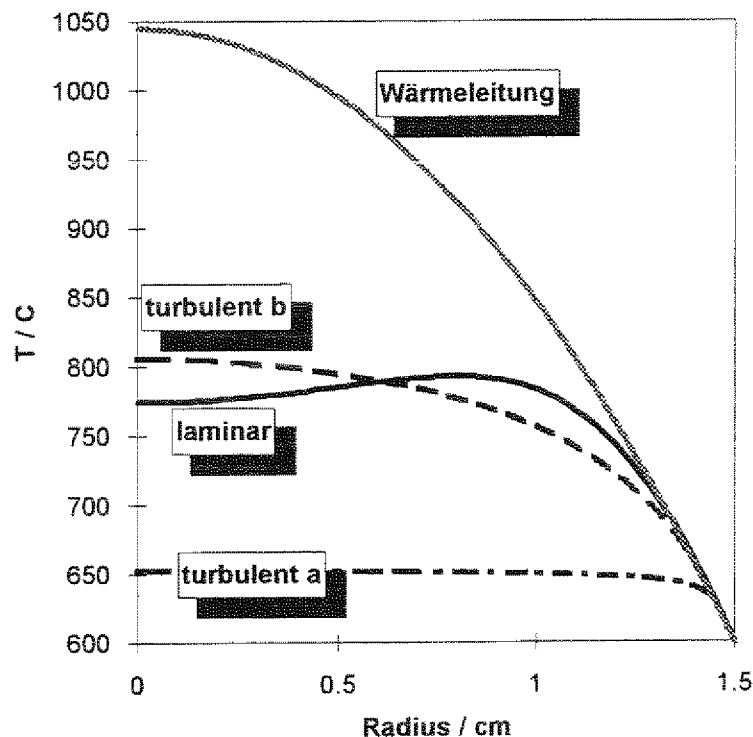


Abb. 6.15: radiale Temperaturverteilung für den turbulenten und laminaren Ansatz; Leistungsdichte 170 MW/m^3 , aufgeprägter Temperaturgradient 70 K/m ,
a: $Pr = Pr_{lam}$ mit $v_{max} = -1,99 \text{ cm/s}$
b: $Pr_{turb} = 1$ mit $v_{max} = -5,63 \text{ cm/s}$
laminar: $v_{max} = +2,09 \text{ m/s}$

6.4.3.3 Konstruktive Ausführung

Die konstruktive Ausführung kann sich an der internen Kühlung mit Naturkonvektion orientieren. Die Möglichkeit eine Naturkonvektionszelle aufzubauen, minimiert das Inventar der Gesamtanordnung, da extern, abgesehen von Tanks für die Aufbereitung keine Suspension umzupumpen oder zu kühlen ist. Den prinzipiellen Aufbau einer Anlage mit Naturkonvektionszellen kann man sich etwa gemäß Abb. 6.16 vorstellen.

Jede Naturkonvektionszelle ist zwar mit einem Vorratstank über entsprechende Rohrleitungen nach oben hin verbunden; diese sind aber im Normalbetrieb evakuiert bzw. mit Helium unter Normaldruck gefüllt. Es ist ebenfalls sinnvoll, die Rohrleitungen zum Abblatstank hin im Normalbetrieb mit Helium, diesmal allerdings unter einem Druck von einigen bar, zu füllen. Der Druck sollte ausreichend bemessen sein, um beispielsweise ein schwebekörperähnliches Gebilde und die darüber sich befindende Bleiflüssigkeitssäule ($2,5 \text{ m} \Rightarrow p \geq 2,5 \text{ bar}$) zu tragen. Im Falle einer Schnellabschaltung sinkt der Heliumdruck, der Schwebekörper bewegt sich in eine tieferliegende Position und gibt über einen jetzt frei werdenden Bypass den

Weg für die Suspension zum Abfallbehälter hin frei. Anstelle des Schwebekörpers sind ebenfalls verschiedene Klappenformen denkbar.

Es kann weiterhin sinnvoll sein, Helium während des Betriebs durch die Flüssigkeitssäule hindurchperlen zu lassen. Hierdurch ließe sich zum einen für eine zusätzliche Durchmischung und somit für die Homogenität der Suspension sorgen. Weiterhin bietet aber Helium auch das Potential, das Spaltprodukt Xenon aus der Bleisuspension zu entfernen. Entsprechende qualitative und quantitative Analysen unter Einbeziehung der Reaktivitätskoeffizienten wurden von *Lizana* in [6.1] vorgenommen.

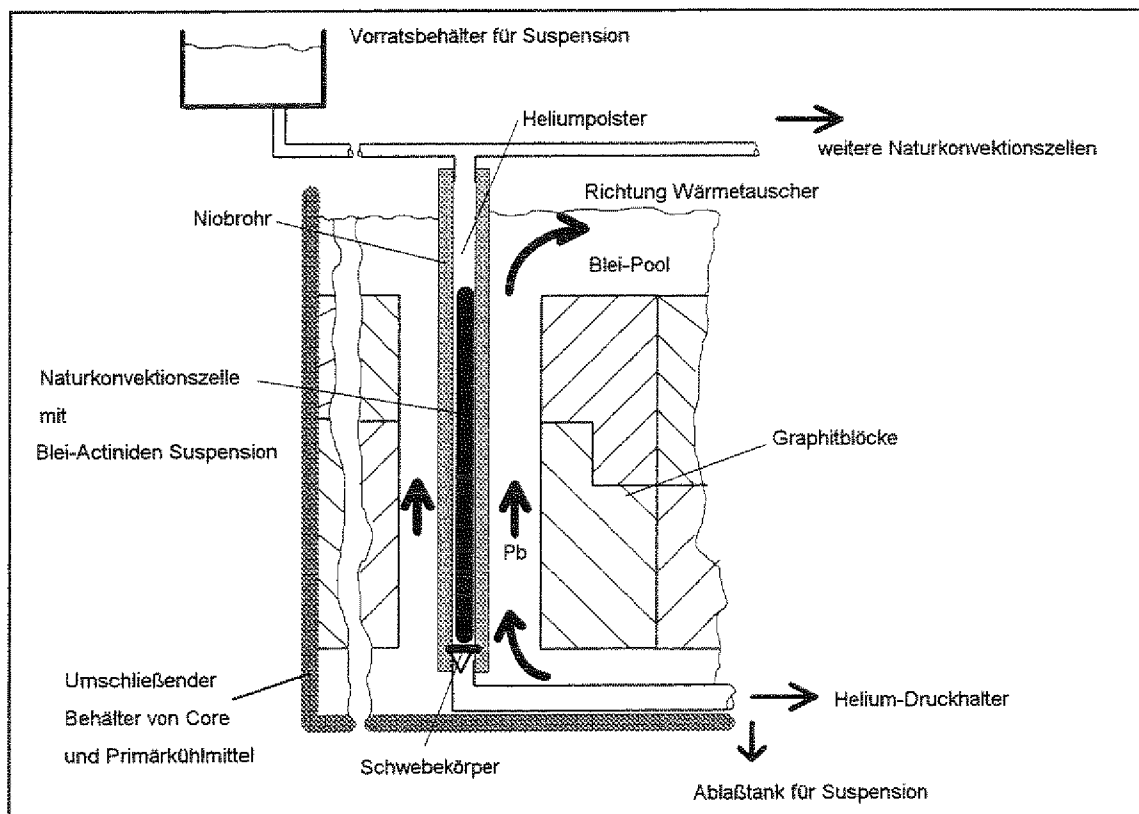


Abb. 6.16: Prinzipieller Aufbau eines Blankets mit Naturkonvektionszellen

6.5 Zusammenfassende Bewertung und offene Fragen

Kerntechnische unterkritische Anlagen mit flüssigem Brennstoff werden eine gänzlich andere Anlagentechnik als heutige Kernreaktoren benötigen. Dieses gilt insbesondere für das hier beschriebene Konzept auf der Basis einer Blei-Actiniden Suspension, bei dem das grundsätzliche chemische Verhalten der Suspension zuvor zu klären ist. Läßt man diesen Punkt bei der Betrachtung außen vor, so konnte jedoch gezeigt werden, daß für sämtliche technische Fragestellungen vielversprechende Lösungsansätze vorliegen. Insbesondere stellt flüssiges Blei ein neutronenphysikalisch hervorragendes, nicht brennbares und gut zu handha-

bendes metallisches Kühlmittel dar, dessen vorteilhafter Gebrauch an vielen Stellen in der Kerntechnik vorstellbar ist.

Für die hier beschriebene unterkritische Suspensionsanlage sind sowohl die externe als auch die interne **Kühlungsform** grundsätzlich konzipierbar auf der Basis einer weitgehend passiven Sicherheitstechnik. Aus Gründen der Minimierung des Schwermetallinventars und der störungsfreien Handhabung im Betrieb wird man prinzipiell zur internen Kühlung mit Naturkonvektion neigen. Hier werden jedoch detaillierte Untersuchungen ergänzt durch experimentelle Untersuchungen notwendig, um die Wirksamkeit der Naturkonvektionsvorgänge zuverlässig zu beschreiben.

Experimentelle Analysen werden ebenfalls zur genauen Quantifizierung der **Korrosionsvorgänge** nötig sein. Die im Blanket als Rohrwerkstoff vorgeschlagenen Materialien Zirkon bzw. Niob sind zwar grundsätzlich mit flüssigem Blei kompatibel; jedoch wird das erstere bei den angestrebten Temperaturen Schutzschichten beispielsweise auf oxidischer Basis benötigen. Niobrohre dagegen sind in der Wandstärke auf Werte deutlich unterhalb von 1 mm zu begrenzen, um die parasitären Absorptionen einzuschränken. Für sämtliche Komponenten außerhalb des Blankets sind hochschmelzende Metalle wie Niob, Tantal und Molybdän aber auch keramische Werkstoffe gut geeignet.

Das **chemische Verhalten** der Suspension war nicht Gegenstand dieser Arbeit und wird nach heutigem Kenntnisstand vom Transuraninstitut in Karlsruhe als weitgehend unbekannt eingestuft. Hier sind Fragen wie die einer geeigneten chemischen Zusammensetzung der Partikeln ebenso wie Form und Größe derselben zu klären unter besonderer Berücksichtigung der Agglomerationsneigung und des Sedimentationsverhaltens. Weiterhin sehen die neutronischen Auslegungen eine quasikontinuierliche Abtrennung der Spaltprodukte vor. Die Entwicklung geeigneter Abtrennvorrichtungen und -verfahren wird vor dem Hintergrund einer weitgehenden Minimierung der Schwermetallverluste durchzuführen sein.

Zusammenfassend läßt sich insbesondere mit Hinblick auf die Arbeiten von *Lizana* [6.1] konstatieren, daß die Transmutation in Anlagen dieser Art trotz der aufgezeigten Problemfelder vielversprechend erscheint. Aus heutiger Sicht lassen sich trotz des enormen Entwicklungsbedarfs keine unüberwindbaren technischen Probleme ausmachen.

7 Zusammenfassung und Ausblick

Das wachsende Umweltbewußtsein zwingt in zunehmenden Maße Techniken zu entwickeln, die nicht nur betriebs- und volkswirtschaftlichen sondern auch umweltbezogenen Gesichtspunkten gerecht werden. Die Kerntechnik kann sicherlich für sich beanspruchen sowohl bei den Edukten als auch Produkten Vorreiter einer umfangreichen Prüfung der Umweltrisiken zu sein. Bei insgesamt sehr geringen Stoffströmen entsteht das klimarelevante CO_2 an keiner Stelle in dem gegenüber anderen Technologien vom Mortalitätsrisiko her gesehen bedeutend sichereren nuklearen Brennstoffkreislauf, und ein technischer Einschluß der Spaltprodukte im Endlager ist auch gegenüber Salzlaugen für Zeiträume bis zu etwa 1000 Jahren möglich.

Für Zeiträume von mehr als 1000 Jahren wird der Einschluß radioaktiver Spaltprodukte im Endlager durch verschiedene geologische Mobilitätsbarrieren gewährleistet. Die Modellierung des Transports von radioaktiven Spaltprodukten unter verschiedenen Störfallannahmen zeigt übereinstimmend, daß auch unter besonders ungünstigen Störfallannahmen keine unzulässig hohen Dosisbelastungen in der Umgebung des Endlagers auftreten werden. Die Aussagefähigkeit der Simulationen ist jedoch bei Zeitprojektionen jenseits von 10.000 Jahren zunehmend anfechtbar. Dieses gilt insbesondere deshalb, da das Gefährdungspotential des abgebrannten Brennstoffs erst nach etwa 10.000.000 Jahren auf das des ursprünglich eingesetzten einer Uranmine entnommenen Brennstoffs abklingt. Da das Langzeitgefährdungspotential wesentlich durch den mengenmäßig geringen Teil der Actiniden und einiger Spaltprodukte bestimmt wird, sind Verfahren zu untersuchen, die diese Elemente transmutieren und in biologisch verträglichere Stoffe umwandeln. Idealerweise erreicht die Summe der Abfälle aus einer Transmutationsanlage schon nach etwa 1000 Jahren das Gefährdungspotential des eingesetzten Brennstoffs. Hierzu müssen die in den abgebrannten Brennelementen enthaltenen Transurane in einem ersten Schritt in der Wiederaufarbeitungsanlage auf weniger als 0,1 % reduziert werden. Ein weiterer Vorteil dieser Strategie wäre, daß eine weitgehende Transmutation der Actiniden auch die Langzeitwärmeentwicklung verringert. Letztere bestimmt die absolute Menge der einzulagernden Stoffe, das festigkeitsmechanische Verhalten der geologischen Formationen und die Korrosion der Behälter.

Prinzipiell können alle kerntechnischen Anlagen, also auch Leichtwasserreaktoren und schnelle natriumgekühlte Reaktoren, zur Transmutation herangezogen werden. Eine Übersicht auf der Basis der Bilanzierung der in das Transmutationssystem ein- und austretenden Stoffströme zeigt jedoch, daß der LWR weit hinter einer Reduktion auf 0,1 % zurückbleibt. Die Transuranmengen in den Brennelementen akkumulieren sich stark mit zunehmender Betriebsdauer. Demgegenüber kommen schnelle Reaktoren mit metallischem Brennstoff (IFR) dem formulierten Transmutationsziel nahe. Sekundäre Aufbauten aus dem U-238 verzögern jedoch hier die Umwandlungsrate. Verzichtet man dagegen auf das U-238 beispielsweise durch den Ersatzstoff Hafnium, so erreicht man zwar die maximal mögliche Umwandlungs-

rate von $1 \text{ g}/(\text{MW}_{\text{th}}\text{d})$; jedoch sind negative Auswirkungen auf das Gesamtsicherheitsverhalten zu erwarten.

Ein alternativer Weg, sowohl maximale Umwandlungsraten als auch zufriedenstellende Sicherheitseigenschaften bereitzustellen, könnte in der Entwicklung von unterkritischen spaltungsgetriebenen Anlagen mit flüssigem Brennstoff bestehen. Flüssiger Brennstoff erlaubt die quasikontinuierliche Reinigung von Spaltprodukten, was einen Reaktivitätsgewinn aber auch einen Sicherheitsgewinn in bezug auf die maximale Nachwärmeproduktion bedeutet. In Anlehnung an die internationalen Vorschläge zur Transmutation und die bereits in den Anfängen der Kerntechnik angedachten Reaktoren werden in Kap. 3 verschiedene Brennstoffformen diskutiert. Ebenfalls wird der technische Entwicklungsbedarf von Protonenbeschleuniger, Fenster, Target und Blanket zusammenfassend dargestellt. Eine Gesamtbeurteilung kommt zu dem Ergebnis, daß die Anforderungen an den Beschleuniger nicht, wie vielfach behauptet, einer Entwicklung solcher Anlagen entgegensteht. Insbesondere produzieren die hier diskutierten unterkritischen Anlagen bei einem Mindestmultiplikationsfaktor von ca. 0,8 elektrische Energie, wenn auch zu einem höheren Preis als heutige Kernreaktoren.

Ein Konzept zur Transmutation, das in den letzten Jahren große Beachtung gefunden hat, ist die unterkritische Suspensionsanlage des Los Alamos National Laboratory. In der wässrigen Suspension wird dort mit Hilfe von schwerem Wasser ein thermisches Spektrum eingestellt. Die Nachrechnung dieser vorgeschlagenen Anlage zeigt zwar, daß prinzipiell mit thermischen Flüssen bei Protonenströmen von 65 mA 625 kg/a an Actiniden vernichtet werden können. Es stellen sich jedoch Transuraninventare ein, die mit bis zu $2,6 \text{ t}$ unter Einbeziehung der externen Kühlung der Suspension ($1,5 \text{ t TRU}/\text{GW}_{\text{th}}$) deutlich oberhalb der angegebenen 325 kg liegen. Ein weiterer wesentlicher Nachteil ist die Tendenz zum Aufbau von höheren Cm-Isotopen, die sich erst bei Konzentrationen von ca. 50% dem Gleichgewicht annähert. Dieses Gleichgewicht wird erst nach mehreren Jahrzehnten erreicht, was die Nutzungsdauer einer solchen Anlage übersteigen kann. Weiterhin sinkt stetig während dieser Zeit der Multiplikationsfaktor, so daß im Gleichgewicht die simultane Transmutation von Actiniden und den Spaltprodukten Tc-99 und J-129 nicht mehr möglich scheint¹. Die durchgeführten Rechnungen machen deutlich, daß wesentlich für das Gesamtverhalten der Anlage die Form der Kühlung ist. Eine externe Kühlung wird gegenüber internen Kühlungsformen zu bedeutend höheren Inventaren führen.

Historisch gesehen werden gegenüber thermischen Systemen oft schnelle Reaktoren zur Transmutation vorgezogen. Ein Beispiel hierfür ist der Integral Fast Reactor (IFR), ein natriumgekühlter schneller Reaktor mit metallischem Brennstoff. Dieser Reaktor wurde für einen Vergleich der Sicherheitseigenschaften von unterkritischen Systemen zu kritischen Systemen herangezogen. Wie erwartet, zeigt das unterkritische System - zum besseren Vergleich ebenfalls ausgestattet mit natriumgekühlten Brennelementen aus metallischem

¹Die hohe Beladung und daraus resultierende technisch-sicherheitstechnische Problemstellungen haben zur Aufgabe dieses Konzeptes zugunsten des in Kap. 3 dargestellten mit Fluoridsalzschnmelzen betriebenen integrierten Konzeptes geführt.

Brennstoff - bei Kritikalitätsstörfällen ein bedeutend gutmütigeres Verhalten. Man muß jedoch feststellen, daß Ausfälle der Wärmeabfuhr in dem unterkritischen System zu höheren Temperaturen und zum Schmelzen einzelner Brennelemente führen, sofern man pessimistisch annimmt, daß es nicht gelingt, den Beschleuniger innerhalb von Sekunden nach Störfalleintritt abzuschalten. Somit wird bei allen Sicherheitsbetrachtungen unterkritischer Systeme dem möglichen Ausfall der Wärmeabfuhr verstärkte Aufmerksamkeit zu schenken sein. Unterkritische Systeme bieten zwar sicherheitstechnische Vorteile, sind aber nicht prinzipiell sicherer als Reaktoren.

Ein wesentliches Ergebnis der vorliegenden Arbeit ist, daß die Einsatzmöglichkeiten von flüssigem Blei in der Kerntechnik nur unzureichend untersucht sind. Blei hat einerseits das Potential von Natrium, bei geringem Druck hohe Wärmemengen aus Hochflußsystemen zu transportieren, andererseits sind aber keine exothermen Reaktionen mit Wasser zu erwarten. Diesen positiven Eigenschaften stehen ausschließlich technologisch beherrschbare Nachteile gegenüber, wie die höheren Rohrhalterkräfte, der etwas schlechtere Wärmeübergang und die höheren Korrosionsabtragsraten gegenüber natriumgekühlten Systemen. Geht man noch einen Schritt weiter, so läßt sich ebenfalls daran denken, eine Blei-Actiniden Suspension als Grundlage für ein System mit flüssigem Brennstoff einzusetzen. Ein thermisches, graphitmoderiertes unterkritisches System wird in Kap. 6 dieser Arbeit vorgestellt und hinsichtlich seiner technischen Realisierbarkeit beurteilt. Größter Unsicherheitsfaktor ist das chemische Verhalten der Suspension. Hier sind grundlegende Experimente notwendig um die chemische Form, die optimale Größe der Partikeln und die Stabilität der Suspension zu klären. Gleiches gilt für die Korrosionserscheinungen, obwohl die hochschmelzenden Metalle und viele Keramiken gegenüber Blei hervorragende Korrosionseigenschaften aufweisen.

Mit Hinblick auf die äußerst wichtige Art der Kühlung werden drei Vorschläge, nämlich eine externe Kühlung, eine interne Kühlung mit Zwangskonvektion und eine Kühlung mit Naturkonvektion rechnerisch behandelt und konstruktiv vorgestellt. Die externe Kühlung verfügt über ein ca. dreifach höheres Inventar als die interne Kühlung mit Naturkonvektion. Trotz der kompakten Anordnung sind gravierende Abschirmungs- und Wartungsprobleme zu erwarten. Dieses gilt nicht für die interne Kühlung mit Naturkonvektion, da quasi der einzige Unterschied zum Reaktor darin besteht, daß Brennstäbe mit flüssigem Inhalt und nicht festen Verbindungen Verwendung finden. Da Blei außerdem nicht brennt, kann voraussichtlich auf einen Zwischenkreislauf verzichtet werden, so daß bei Austrittstemperaturen von 550 °C Wirkungsgrade von ca. 40 % möglich werden. Bei allen Formen der internen Kühlung sind jedoch die Wandstärken der Strukturmaterialien zum einen durch den möglichst guten Wärmeübergang eingeschränkt, während zum anderen die grundsätzlich höheren Temperaturen für verstärkte Korrosionsabträge sorgen werden.

Zusammenfassend läßt sich feststellen, daß Anlagen mit flüssigem Brennstoff sicherlich eine interessante und bedenkenswerte Alternative zu Reaktoren mit festem Brennstoff, gerade mit Hinblick auf die Transmutation darstellen. Der Einsatz eines Beschleunigers bietet eine zusätzlichen neutronenphysikalischen Freiheitsgrad zur Optimierung kerntechnischer Anlagen. Eine detaillierte Konstruktion wird jedoch noch umfangreiche experimentelle Arbeiten erforderlich machen.

8 Literaturverzeichnis

8.5 Literatur zu Kapitel 1

- [1.1] NN:
Die Globale Revolution Club of Rome - Bericht 1991
Autorisierte Übersetzung für den dtsh. Sprachraum des Originaltitels:
The First Global Revolution
Spiegel-Verlag Rudolf Augstein
SPIEGEL SPEZIAL, 2/1991
- [1.2] C. D. Schönwiese:
*Weltweite anthropogene Klimaänderungen:
Fakten, Unsicherheiten und offene Fragen*
in: *Energiemix mit Kernenergie*
VDI-Bericht 1076
Tagung Aachen (Februar 1994)
- [1.3] J. Kupitz, I. Weisbrodt:
Aspekte der weltweiten Nutzung der Kernenergie
in: *Fortschritte in der Energietechnik*
ed: K. Kugeler, H. Neis, G. Ballensiefen
Monographien des Forschungszentrums Jülich, Bd. 8, S. 181-191
Jülich (1993)
- [1.4] A. Voß:
Klimaverträgliche Energieversorgung - Wege aus der Gefahr
in: *Fortschritte in der Energietechnik*
ed: K. Kugeler, H. Neis, G. Ballensiefen
Monographien des Forschungszentrums Jülich, Bd. 8, S. 53-64
Jülich (1993)
- [1.5] U. S. Nuclear Regulatory Commission:
Reactor Safety Study
WASH-1400 (NUREG 75/104), Appendix 6 (1975)
- [1.6] K. Kugeler:
Hat Kernenergie Zukunft?
Neue Sicherheitsanforderungen und neue Lösungen
in: *Fortschritte in der Energietechnik*
ed: K. Kugeler, H. Neis, G. Ballensiefen
Monographien des Forschungszentrums Jülich, Bd. 8, S. 209-218
Jülich (1993)
- [1.7] M. Steinberg, G. Wotzak, B. Manowitz:
Neutron Burning of Long-Lived Fission Products for Waste Disposal
Brookhaven National Laboratory
BNL-8558
Upton, NY, U. S. A. (1958)

- [1.8] M. Steinberg:
Accelerator Spallation Reactors for Breeding Fissile Fuel and Transmuting Fission Products
in: *Nuclear Technologies in a Sustainable Energy System*, S. 203-224
ed: G. S. Bauer, A. McDonald
Springer Verlag, Berlin (1983)
- [1.9] C. D. Bowman, E. D. Arthur et al.:
Nuclear Energy Generation and Waste Transmutation using an Accelerator-Driven Intense Thermal Neutron Source
Los Alamos National Laboratory
Nucl. Inst. Meth. **A320**, 336 (1992)
- [1.10] C. D. Bowman, E. D. Arthur, S. Schriber et al:
Proceedings zum Specialist's Meeting on Accelerator Driven Transmutation Technology and other Applications
Stockholm (1991)
- [1.11] C. Jansen:
Protonenfenster und Flüssigmetalltarget für eine beschleunigergetriebene Transmutationsanlage
Dissertation RWTH Aachen, in Vorbereitung
- [1.12] P. Lizana:
Dissertation RWTH Aachen, in Vorbereitung

8.6 Literatur zu Kapitel 2

- [2.1] L. H. Baetsle:
Role and Influence of Partitioning and Transmutation on the Management of Nuclear Waste Streams
NEA/P&T Report No. 3
OECD-NDC Report (1992)
- [2.2] K. Kugeler, P. W. Philippen:
Energietechnik
Springer-Verlag, Berlin ² (1992)
- [2.3] Commission of the European Communities:
PAGIS- Performance Assessment of Geological Isolation Systems for Radioactive Waste
Report EUR 11775 EN
Brüssel (1988)
- [2.4] D. Albright, F. Berkhout, W. Walker:
World Inventory of Plutonium and Highly Enriched Uranium 1992
Stockholm Int. Peace Research Inst., Oxford University Press 1993
- [2.5] S. E. Binney et al:
CURE: Clean Use of Reactor Energy
Report WHC-EP-0268
Hanford Corp. (1990)
- [2.6] F. Mannone, H. Dworschak:
Chemical Separation of Actinides from High Activity Liquid Wastes
Report S.A./1.07.03.84.02
Joint Research Centre Ispra Establishment (1984)

- [2.7] R. Odoj:
Abtrennchemie langlebiger Nuklide für die Transmutation
Forschungszentrum Jülich
Vortrag im Doktorandenseminar des ISR (7. November 1994)
- [2.8] J. J. Laidler, J. E. Battles, W. E. Miller, E. C. Gay:
Development of IFR Pyroprocessing Technology
Argonne Nat. Lab.
in: Proceedings of the Internat. Conf. and Techn. Exposition GLOBAL 93
American Nuclear Society, Vol. 2, S. 1061-1065
Seattle, Washington (12. -17. September 1993)
- [2.9] H. Feinroth, Jerry Guon, Debu Majmudar:
An Overview of the AIROX Process and its Potential for Nuclear Fuel Recycle
in: Proceedings of the Internat. Conf. and Techn. Exposition GLOBAL 93
American Nuclear Society, Vol. 2, S. 705-708
Seattle, Washington (12. -17. September 1993)
- [2.10] E. Smailos et al:
Untersuchungen zur Eignung keramischer Behälter als Korrosionsschutz für hochradioaktive Abfallprodukte bei der Endlagerung in Steinsalzformationen
KfK 4244
Kernforschungszentrum Karlsruhe (1987)
- [2.11] W. Schwarzkopf et al:
In-Situ Corrosion Studies on Selected High-Level Waste Packaging Materials under Simulated Disposal Conditions in Rock Salt Formations
KfK 4324
Kernforschungszentrum Karlsruhe (1988)
- [2.12] W. Schwarzkopf et al:
In-Situ Corrosion Studies on Cast Steel for a High-Level Waste Packaging in a Rock Salt Repository
Materials Research Society Symp. Proc. 127 (1989), S. 411 ff
- [2.13] W. Bechthold, K. D. Closs, U. Knapp, R. Papp:
Direct Disposal of Spent Nuclear Fuel
Report EUR 11268 EN
Kernforschungszentrum Karlsruhe (1987)
- [2.14] E. Warnecke, K. Ermisch:
The planned GORLEBEN repository- present status, new data provided by the utilities on wastes produced, and future directions-
in: *Safety of the Nuclear Fuel Cycle*
ed: Ebert K., Ammon R.
VCH Verlag, Weinheim (1989)
- [2.15] International Commission on Radiological Protection:
Annual Limits on Intake of Radionuclides by Workers Based on the 1990 Recommendations
ICRP Publikation 61,
Annals of the ICRP, Vol. 21, No. 4 (1991)
- [2.16] E. Merz :
Long-term safety assessment for the disposal of nuclear waste
in: *Safety of the Nuclear Fuel Cycle*
ed: Ebert K., Ammon R.
VCH Verlag, Weinheim (1989)
- [2.17] G. E. Michaels:
Potential Benefits of Accelerator-Based Transmutation to the U.S. High-Level Waste Repository
presented at the Int. Conf. on Accelerator-Driven Transmutation Technologies and Applications
Las Vegas, Nevada (25.-29. Juli 1994)

- [2.18] M. Wilson et al:
Total-System Performance Assessment for Yucca Mountain- SNL Second Iteration (TSPA-1993)
Report: SAND93-2675
Sandia National Laboratories (April 1994)
- [2.19] J.-I. Kim, R. Klenze:
Das chemische Verhalten der Transuranelemente und die Barrierefunktion in natürlichen Aquifersystemen
KFA-Nachr. Jahrg. 25 4/93, S. 207-218
- [2.20] *Verordnung über den Schutz vor Schäden durch ionisierende Strahlen.*
Strahlenschutzverordnung- StrlSchV vom 30. Juni 1989, BGBl. I S. 1321
- [2.21] C. W. Forsberg:
Health and Environmental Risk-Related Impacts of Actinide Burning on High-Level Waste Disposal
ORNL-1822
Oak Ridge Nat. Lab. (1992)
- [2.22] K. Ewen, I. Lucks, D. Wendorff:
Die neue Strahlenschutzverordnung - Praxiskommentar
WEKA-Fachverlage Kissing (1990)
- [2.23] A. G. Croff, J. Blomeke, B. C. Finney:
Actinide Partitioning-Transmutation Program Final Report, Overall Assessment
ORNL-5566
Oak Ridge Nat. Lab. (1980)
- [2.24] A. G. Croff, C. W. Forsberg, S. B. Ludwig:
A Reexamination of the Incentives for Actinide Burning
Trans. Am. Nucl. Soc. 62 (1990)

8.7 Literatur zu Kapitel 3

- [3.1] S. Matsuura, P. A. Landeyro, K. Abrahams, H. Gruppelaar, D. H. Rief, J. P. Grouiller, C. Artiori, H. Yoshida, S. Itakura:
Overview of Physics Aspects of Different Transmutation Concepts
Report: NEA/NSC/DOC (94) 11
OECD (1994)
- [3.2] Ed. American Nuclear Society:
Proceedings of the International Conference and Technical Exposition GLOBAL 93
ANS Order No. 700185
Seattle, Washington (12-17. September 1993)
- [3.3] P. Lizana:
Dissertation in Vorbereitung
RWTH Aachen
- [3.4] T. H. Pigford, J. S. Choi:
Inventory Reduction Factors for Actinide-Burning Liquid-Metal Reactors
Trans. Am. Nucl. Soc. 64, S. 123-125 (1991)
- [3.5] W. H. Hannum, D. C. Wade:
Incorporation of Excess Weapons Material into the IFR Fuel Cycle
Argonne Nat. Lab.
in: *Proceedings of the Internat. Conf. and Techn. Exposition GLOBAL 93*
American Nuclear Society, Vol 2, S. 812-816
Seattle, Washington (12. - 17. September 1993)

- [3.6] J. S. Lee, H. Keil et al.:
Research and Development Program of KAERI for DUPIC
(Direct Use of Spent PWR Fuel in CANDU Reactors)
 in Proceedings of the Internat. Conf. and Techn. Exposition GLOBAL 93
 American Nuclear Society, Vol. 2 S. 733-739
 Seattle, Washington (12.-17. September 1993)
- [3.7] G. Kessler, D. Faude, H. Wiese:
Direct Disposal versus Multiple Recycling of Plutonium
 Kernforschungszentrum Karlsruhe
 in Proceedings of the Internat. Conf. and Techn. Exposition GLOBAL 93
 American Nuclear Society, Vol. 1, S. 275-282
 Seattle, Washington (12. -17. September 1993)
- [3.8] G. A. Sofer, D. A. Nauman, J. Krellmann:
Swords to Plowshares: Recycling Weapons-Origin Uranium
and Plutonium in Light Water Reactors
 in Proceedings of the Internat. Conf. and Techn. Exposition GLOBAL 93
 American Nuclear Society, Vol. 2, S. 807-811
 Seattle, Washington (12. -17. September 1993)
- [3.9] D. Albright, F. Berkhout, W. Walker:
World Inventory of Plutonium and Highly Enriched Uranium 1992
 Stockholm Int. Peace Research Inst., Oxford University Press (1993)
- [3.10] G. E. Michaels, S. B. Ludwig:
Fuel Cycle Integration Issues Associated with P/T Technology
 Report: CONF-920307--40
 Tucson, Arizona (1992)
- [3.11] D. Lancaster:
Actinide Burning in a Standard Pressurized Water Reactor
 Pennsylvania State University
 in Proceedings of the Internat. Conf. and Techn. Exposition GLOBAL 93
 American Nuclear Society, S. 609-614
 Seattle, Washington (12. -17. September 1993)
- [3.12] M. Salvatores, C. Prunier, Y. Guerin, A. Zaetta, I. Slessarev:
The SPIN Program at CEA, Transmutation Aspects
 Centre d'Etudes de CADARACHE
 in Proceedings of the Internat. Conf. and Techn. Exposition GLOBAL 93, p. 548 ff
 Seattle, Washington (12. -17. September 1993)
- [3.13] D. C. Wade, Y. I. Chang:
The Integral Fast Reactor Concept:
Physics of Operation and Safety
 Argonne National Laboratory
 Nucl. Sci. Eng. 100, S. 507-524 (1988)
- [3.14] R. N. Hill, D. C. Wade, J. R. Liaw, E. K. Fujita:
Physics Studies of Weapons Plutonium Disposition in the IFR Closed Fuel Cycle
 presented at the 1994 Topical Meeting on Advances in Reactor Physics
 Knoxville, Tennessee (1994)
 erweiterte Fassung in Nucl. Sci. Eng. (1995)
- [3.15] H. S. Khalil, R. N. Hill:
Evaluation of Liquid-Metal Reactor Design Options for Reduction of Sodium Void Worth
 Nucl. Sci. Eng. 109, S. 221-226 (1991)
- [3.16] R. N. Hill:
Persönliches Gespräch
 Argonne National Laboratory (Juli 1994)

- [3.17] C. L. Cockey, T. Wu, A. J. Lipps, R.N. Hill:
Higher Actinide Transmutations in the ALMR
in Proceedings of the Internat. Conf. and Techn. Exposition GLOBAL 93
American Nuclear Society, Vol. 1, S. 123-130
Seattle, Washington (12. -17. September 1993)
- [3.18] S. E. Binney et al:
Report WHC-EP-0268
CURE: Clean Use of Reactor Energy
Hanford Corp. (1990)
- [3.19] M. Salvatores, I. Slessarev, M. Uematsu:
A Global Physics Approach to Transmutation of Radioactive Nuclei
Nucl. Science & Eng. **116**, 1-18 (1994)
- [3.20] Hrsg: G. S. Bauer, H. Sebening, J. E. Vetter, H. Willax
SNQ, Realisierungsstudie zur Spallations-Neutronenquelle
Teil 1: Wissenschaftliche Motivation und Beschreibung der Anlage
Forschungszentrum Jülich
Jül-Spez-113 (Juni 1981)
- [3.21] D. Filges:
*Moderne Monte Carlo Teilchentransport-Simulationsverfahren für
sicherheitstechnische Anwendungen und Fragestellungen in der
Beschleunigertechnik und in der Raumfahrt*
Jül-2609
Forschungszentrum Jülich (April 1992)
- [3.22] H. Takahashi, H. Rief:
Concepts of Accelerator Based Transmutation Systems
Vortrag: Specialist's Meeting on Accelerator-Based Transmutation
Paul Scherrer Institut, Schweiz (24.-26. März 1992)
- [3.23] K. Furukawa et al. :
*Plutonium (TRU) Transmutation and U-233 Production by
Single-Fluid Type Accelerator Molten-Salt Breeder (AMSB)*
presented at the Int. Conf. on Accelerator-Driven Transmutation Technologies and Applications
Las Vegas, Nevada (25.-29. Juli 1994)
- [3.24] T. Schilling:
*Neutronenphysikalische und Thermohydraulische Untersuchungen zur
Spaltstoffproduktion mit Spallationsreaktionen*
Dissertation RWTH Aachen (1985)
- [3.25] H. Lengeler:
Nuclear Waste Transmutation using High-Intensity Proton Linear Accelerators
Report: CERN AT/93 DI,
Genf, Schweiz (Januar 1993)
- [3.26] G. P. Lawrence, R. A. Jameson, S. O. Schriber:
*Accelerator Technology for Los Alamos Nuclear-Waste
Transmutation and Energy-Production Concepts*
Report: LA-UR-91-2797
Los Alamos National Laboratory (Juni 1991)
- [3.27] S. Martin:
Persönliches Gespräch
IKP, Forschungszentrum Jülich (1994)
- [3.28] S. Martin, R. Maier, P. F. Meads, J. Delayen, H. Heinrichs, H. Piel,
A. Schempp, E. Zaplatin, K. Ziegler :
*Conceptual Designs of Superconducting Systems for the
Next Generation High Intensity Accelerators*

Presented at the 1994 Int. Conf. Charged Particle Accelerators
Protvino, Rußland, Oktober 1994

- [3.29] C. Jansen:
Protonenfenster und Flüssigmetalltarget für eine beschleunigergetriebene Transmutationsanlage
Dissertation in Vorbereitung
RWTH Aachen
- [3.30] G. Russell et. al.:
Introduction to Spallation Target Requirements
presented at the Int. Conf. on Accelerator-Driven Transmutation Technologies and Applications
Las Vegas, Nevada (25.-29 Juli 1994)
- [3.31] P. W. Phlippen:
Persönliche Information
Forschungszentrum Jülich (1994)
- [3.32] P. Grassmann:
Physikalische Grundlagen der Chemie-Ingenieur-Technik
Kapitel 3, S. 217 ff.
Frankfurt (1961)
- [3.33] J. A. Lane, H. G. MacPherson, F. Maslan:
Fluid Fuel Reactors
Addison Wesley Pub. Company
Massachusetts, USA (1958)
- [3.34] M. M. El-Wakil:
Nuclear Energy Conversion
American Nuclear Society, Illinois, USA (1978)
- [3.35] NN:
Gmelin's Handbuch der Anorganischen Chemie:
Uran Technologie, Verwendung
Erg. Bd A3, S. 243-258
Springer-Verlag, Berlin⁸ (1981)
- [3.36] A. Hollemann, N. Wiberg:
Lehrbuch der anorganischen Chemie
Walter de Gruyter, Berlin (1985)
- [3.37] *Ullmann's Encyclopedia of Industrial Chemistry*
Schlagwort: Solvents, Vol. A 24
VCH-Verlag, Weinheim (1987)
- [3.38] NN:
Slurry Flow Technology
in: *Encyclopedia of Fluid Mechanics*, Vol. 5
ed: I. Cheremisinoff, P. Nicholas
ISBN 0-87201-517-3
Gulf Publishing Company, Houston, USA (1986)
- [3.39] J. A. Lane, H. G. MacPherson, F. Maslan:
Fluid Fuel Reactors
Part I, Aqueous Homogenous Reactors, S. 85 ff
Addison Wesley Pub. Company
Massachusetts, USA (1958)
- [3.40] *Final report on the aqueous homogeneous suspension reactor project*
KEMA Scientific & Technical Reports 5 (1), S. 1-48 (1987)
- [3.41] V. Kazaritsky:
An Overview of Russian Experience and Capabilities for Development of ATW/ABC Systems

presented at the Int. Conf. on Accelerator-Driven Transmutation Technologies and Applications
Las Vegas, Nevada (25.-29 Juli 1994)

- [3.42] NN:
Molten Salt Reactors
Nucl. Appl. & Tech., **8**, S. 105-219 (1970)
- [3.43] Uri Gat:
Persönliches Gespräch
Seattle, Washington (September 1993)
- [3.44] H. G. MacPherson:
The Molten Salt Reactor Adventure
Nucl. Sci. Eng. **90**, S. 374-380 (1985)
- [3.45] *The Los Alamos Accelerator Based Conversion Concept
for Plutonium Disposition (ABC)*
JASON Review, La Jolla, CA (Januar 1994)
- [3.46] Y. Kato, H. Katsuta et. al:
Accelerator Molten Salt Target System for Transmutation of Long Lived Nuclides
Proceedings zum Specialist's Meeting on Accelerator-Based Transmutation
Paul Scherrer Institut, Schweiz (24.-26. März 1992)
- [3.47] NN:
Reactor Handbook Engineering
United States Atomic Energy Commission
McGraw-Hill Comp., New York (1955)
- [3.48] H. U. Borgstedt:
Persönliche Information anlässlich der Besichtigung der Pb-Kreisläufe in der KfK
Karlsruhe (14. April 1993)

8.8 Literatur zu Kapitel 4

- [4.1] C. D. Bowman, E. D. Arthur, S. Schriber et al:
*Proceedings zum Specialist's Meeting on Accelerator Driven
Transmutation Technology and other Applications*
Stockholm (1991)
- [4.2] C. D. Bowman, E. D. Arthur et al. :
*Nuclear Energy Generation and Waste Transmutation using an
Accelerator-Driven Intense Thermal Neutron Source*
Los Alamos National Laboratory
Nucl. Inst. Meth. **A320**, 336 (1992)
- [4.3] J. R. Ireland:
Overview of Los Alamos Concepts for Accelerator Transmutation of Nuclear Waste (ATW)
Proceedings zum Specialist's Meeting on Accelerator-Based Transmutation
Paul Scherrer Institut, Schweiz (24.-26. März 1992)
- [4.4] J. R. Ireland, M. W. Cappiello:
Target/Blanket Conceptual Design for the Los Alamos ATW Concept
Report: LA-UR-92-46
Proceedings zum Specialist's Meeting on Accelerator-Based Transmutation
Paul Scherrer Institut, Schweiz (24.-26. März 1992)

- [4.5] W. C. Sailor, C. A. Beard:
Neutronics Analysis for an Accelerator-Based Nuclear Waste Transmuter
in Proceedings of the Internat. Conf. and Techn. Exposition GLOBAL 93
American Nuclear Society, Vol. 1, S. 369-376
Seattle, Washington (12. -17. September 1993)
- [4.6] J. W. Davidson, M. E. Battat:
Neutronics-Processing Interface Analyses for the Accelerator Transmutation of Waste (ATW) Aqueous-Based Blanket System
in Proceedings of the Internat. Conf. and Techn. Exposition GLOBAL 93
American Nuclear Society, Vol. 1, S. 387-396
Seattle, Washington (12. -17. September 1993)
- [4.7] NN:
Reactor Handbook Engineering
Chapter 4, S. 514
United States Atomic Energy Commission
McGraw-Hill Comp., New York (1955)
- [4.8] W. Seelmann-Eggebert, G. Pfennig, H. Münzel, H. Klewe-Nebenius:
Nuklidkarte
Kernforschungszentrum Karlsruhe⁵ (1981)
- [4.9] K. Abrahams, W. M. P. Franken et al:
Specific Contributions of the Dutch Programme "RAS" Towards Accelerator-Based Transmutation
ECN, Petten, Niederlande (1994)
- [4.10] P. Lizana:
Dissertation RWTH Aachen, in Vorbereitung

8.9 Literatur zu Kapitel 5

- [5.1] K. L. Derstine:
DIF3D: A Code to Solve One-, Two, and Three-Dimensional Finite Difference Diffusion Theory Problems
ANL-82-64
Argonne Nat. Lab. (1984)
- [5.2] B. J. Toppel:
A User's Guide to the REBUS-3 Fuel Cycle Analysis Capability
ANL-83-2
Argonne Nat. Lab. (1983)
- [5.3] J. E. Cahalan, A. M. Tentner, E. M. Morris:
Advanced LMR Safety Analysis Capabilities in the SASSYS-1 and SAS4A Computer Codes
presented at the Intern. Meeting on Advanced Reactor Safety
Pittsburgh, United States (1994)
- [5.4] Allan F. Henry:
Nuclear Reactor Analysis
Massachusetts Inst. of Tech. (1975)
- [5.5] H. A. Bethe, J. A. Tait:
An Estimate of the Order of Magnitude of the Explosion When the Core of A Fast Reactor Collapses
UKAE-RHM (56) 113 (1956)
- [5.6] E. E. Lewis:
Nuclear Power Reactor Safety
John Wiley & Sons (1977)

- [5.7] R. N. Hill, R. A. Wigeland:
Persönliches Gespräch
Argonne National Laboratory (Juli 1994)
- [5.8] R. A. Wigeland, R. B. Turski, P. A. Pizzica:
*Tradeoff of Sodium Void Worth and Burnup Reactivity Swing:
Impacts on Balanced Safety Position in Metallic-Fueled Cores*
presented at the Topical Meeting on Sodium-Cooled Fast Reactor Safety
Obninsk, Rußland (Oktober 1994)
- [5.9] T. H. Bauer et al:
Behavior of Modern Metallic Fuel in TREAT Transient Overpower Tests
Nucl. Technol., **92**, p. 325-352 (1990)
- [5.10] G. L. Hoffman, L. C. Walters:
Metallic Fast Reactor Fuels
in: *Nuclear Materials Bd. 10 a*
ed: B. R. T. Frost
in der Reihe: *Materials Science and Technology*
VCH-Verlag, Weinheim (1994)
- [5.11] H. Rief, H. Takahashi:
Safety and Control of Accelerator-Driven Subcritical Systems
presented at the Int. Conf. on Accelerator-Driven Transmutation Technologies and Applications
Las Vegas, Nevada (25.-29 Juli 1994)
- [5.12] P. -W. Philippen:
Technische Konzepte für Anlagen zur passiv sicheren Kernenergienutzung
Habilitationsschrift, Aachen (1991)
- [5.13] P. N. Alekseev:
Improvement of the Safety Potential for the Lead Reactors
Proc. Int. Conf. Design and Safety of Next Generation Nuclear Power Reactors
(25-29. Oktober 1992)

8.10 Literatur zu Kapitel 6

- [6.1] P. Lizana:
Dissertation RWTH Aachen, in Vorbereitung
- [6.2] NN:
Gmelin's Handbuch der Anorganischen Chemie
Blei, Teil B1
Springer-Verlag, Berlin⁸ (1972)
- [6.3] NN:
Gmelin's Handbuch der Anorganischen Chemie
Alloys of Uranium, Suppl. Vol. B2,
Springer-Verlag, Berlin⁸ (1989)
- [6.4] H. J. Bomelburg, C. R. F. Smith:
Physical Properties
in : *Sodium-NaK Engineering Handbook*
ed: O. J. Foust
Vol. 1, Kap. 1
Gordon and Breach, Science Publishers, INC. (1971)

- [6.5] B. Th. Massalski:
Binary Alloy Phase Diagrams
American Society of Metals
Ohio (1986)
- [6.6] J. A. Lane, H. G. MacPherson, F. Maslan:
Fluid Fuel Reactors
Part III, Liquid-Metal Fuel Reactors, S. 703 ff
Addison Wesley Pub. Company
Massachusetts, USA (1958)
- [6.7] O. Knacke, O. Kubaschewski, K. Hesselmann:
Thermochemical Properties of Inorganic Substances
Springer Verlag (1991)
- [6.8] H. Heimbach:
Persönliche Information
Forschungszentrum Jülich (Februar 1994)
- [6.9] J. Van Geel, J. Fuger, H. J. Matzke et al. :
*Persönliches Gespräch zu möglichen Eigenschaften einer
Blei-Actiniden Suspension*
Transuran-Institut Karlsruhe (4. Mai 1994)
- [6.10] C. Jansen:
Protonenfenster und Flüssigmetalltarget für eine beschleunigergetriebene Transmutationsanlage
Dissertation RWTH Aachen, in Vorbereitung
- [6.11] D. Vortmeyer:
Strahlung technischer Oberflächen,
VDI-Wärmeatlas⁶ (1991), Abschnitt Ka
- [6.12] W. Delle, K. Koizlik, H. Nickel:
Graphitische Werkstoffe für den einsatz in Kernreaktoren,
Teil 2: Polykristalliner Graphit und Brennelementmatrix,
Karl Thiemig AG, München (1983)
- [6.13] H. A. Behr:
*Transport von Helium und flüssigem Blei durch die Wände stranggepreßter
Graphitrohre eines Helium-Blei Wärmetauschers*
Dissertation, RWTH Aachen (1974)
- [6.14] G. Haag, D. Mindermann:
Bestrahlungsverhalten von Reaktorgraphit - Neuere Ergebnisse
Juel-Conf-50 (1985)
- [6.15] G. Haag, D. Mindermann, G. Wilmelmi, H. Persicke, W. Ulsamer:
Development of Reactor Graphite,
Journal Nucl. Mat. 171 (1990), S. 41-48
- [6.16] D. Smidt:
Reaktortechnik, Band 2, Kap. 13
G. Braun Verlag, Karlsruhe² (1974)
- [6.17] D. Smidt:
Reaktortechnik, Band 1, Kap. 5
G. Braun Verlag, Karlsruhe² (1974)
- [6.18] W. Seelmann-Eggebert, G. Pfennig, H. Münzel, H. Klewe-Nebenius:
Nuklidkarte
Kernforschungszentrum Karlsruhe⁵ (1981)

- [6.19] NN:
Prospektmaterial der Fa. VDM-Zirkonium GmbH, Duisburg
- [6.20] C. Lemaignan, A. T. Motta:
Zirconium Alloys in Nuclear Applications
in: *Materials Science and Technology*, Vol. 10 B, Kap. 1, S. 1-51
ed: B. R. T. Frost
VCH-Verlag, Weinheim (1994)
- [6.21] Fa. Elektroschmelzwerk Kempten GmbH:
Persönliche Information (Januar 1994)
- [6.22] NN:
Prospektmaterial und persönliche Information der Fa. Plansee GmbH zu den Eigenschaften und Lieferbedingungen von Niob (1994)
- [6.23] F. W. Wiffen:
The Tensile Properties of Fast Reactor Neutron Irradiated BCC Metals and Alloys
in: *Proc. Int. Conf. on Defects and Defect Clusters in BCC Metals and Their Alloys*, S. 176-197
Maryland (1973)
- [6.24] J. A. Bezdecny, D. L. Hendersson, William C. Sailor:
Induced Structural Radioactivity Inventory Analysis of the Base Case Aqueous ATW Reactor Concept
in *Proceedings of the Internat. Conf. and Techn. Exposition GLOBAL 93*
American Nuclear Society, Vol. 2, S. 754-759
Seattle, Washington (12. -17. September 1993)
- [6.25] J. A. Bezdecny, K. M. Vance, D. L. Hendersson:
Preliminary Analysis of the Induced Structural Radioactivity Inventory of the Base Case Aqueous ATW Reactor Concept
University of Wisconsin-Madison (1994)
Entwurf zur Veröffentlichung in *Nucl. Sci. Eng.* eingereicht
- [6.26] H. U. Borgstedt:
Persönliche Information anlässlich der Besichtigung der Pb-Kreisläufe in der KfK
Karlsruhe (14. April 1993)
- [6.27] B. E. Berry:
Corrosion in Nuclear Applications
John Wiley and Sons Inc., New York (1971)
- [6.28] NN:
Gmelin's Handbuch der Anorganischen Chemie
Si Suppl. Vol B2
Weinheim (1984)
- [6.29] R. Kieffer, H. Braun:
Vanadin, Niob, Tantal
Springer Verlag (1963)
- [6.30] A. L. Lay:
Corrosion Resistance of Technical Ceramics
Her Majesty's Stationary Office, London (1983)
- [6.31] H. U. Borgstedt, U. Politis:
Primärbericht: Bleiwismutkorrosion von Werkstoffen für das Target der Spallationsneutronenquelle,
Kernforschungszentrum Karlsruhe (1979)

- [6.32] F. Garzaroli, E. Steinberg:
Weiterentwicklung der Hüllrohr- und Strukturwerkstoffe für Siedewasserreaktor-Brennelemente,
Siemens-KWU
Brennelement-Report, S. 19 - 23 (März 1993)
- [6.33] E. Hornbogen, H. Warlimont:
Metallkunde
Springer-Verlage, Berlin² (1991)
- [6.34] H. U. Borgstedt et al.:
Corrosion Testing of Steel X 18 CrMoVNb 12 1 in a Pb-17Li Pumped Loop
Journ. Nucl. Mat. **155-157** (1988) S. 728-731
- [6.35] I. Ali-Khan:
Corrosion of Steels and Refractory Metals in Liquid Lead
in: *Material Behavior and Physical Chemistry in Liquid Metal Systems*
Ed: H. U. Borgstedt
Plenum Press, New York (1982)
- [6.36] C. Rubbia:
Status Report on the Energy Amplifier (S. 5810-5811)
CERN (6. Dezember 1994)
- [6.37] P. N. Alekseev et. al.:
Improvement of the Safety Potential for the Lead Reactors
Proc. Int. Conf. Design and Safety of Next Generation Nuclear Power Reactors
(25-29. Oktober 1992)
- [6.38] NN:
Gmelin's Handbuch der Anorganischen Chemie
Blei Teil C 3
Weinheim⁸ (1970)
- [6.39] A. Ziegler:
Lehrbuch der Reaktortechnik Bd. 2, Kap. 16
Springer Verlag, Berlin (1984)
- [6.40] J. Unger:
Konvektionsströmungen
Teubner-Studienbücher: Mechanik
Stuttgart (1988)
- [6.41] R. Byron Bird, W. E. Stewart, E. N. Lightfoot:
Transport Phenomena
University of Wisconsin
John Wiley & Sons, New York (1960)
- [6.42] D. C. Hamilton, H. F. Poppendiek, R. F. Redmond, L. D. Palmer:
Free Convection in Fluids having a Volume Heat Source
ORNL-1769
Oak Ridge National Laboratory, USA (1954)
- [6.43] D. C. Hamilton, F. E. Lynch:
Free Convection Theory and Experiment in Fluids having a Volume Heat Source
ORNL-1888
Oak Ridge National Laboratory, USA (1955)
- [6.44] D. Hänel:
Persönliche Information
U-GH Duisburg (Februar 1995)

- [6.45] D. Hänel:
Vorlesungsumdruck
Strömungen mit Reibung - eine Einführung in die Mechanik reibungsbehafteter Fluide
 U-GH Duisburg (SS 1994)

8.11 Literatur zum Anhang

- [1] D. Filges:
Moderne Monte-Carlo Teilchentransport-Simulationsverfahren für sicherheitstechnische Fragestellungen in der Beschleunigertechnik und in der Raumfahrt
 Habilitationsschrift, Juel-2609
 Forschungszentrum Jülich (April 1992)
- [2] P. Cloth, D. Filges, et al:
HERMES - A Monte Carlo Program System for Beam-Materials Interaction Studies
 Juel-2203
 Forschungszentrum Jülich (Mai 1988)
- [3] D. Filges et al:
OECD Thick Target Benchmark - Lead and Tungsten
 Report: NEA Data Bank
 NSC / DOC (95) 2
- [4] D. Filges:
Persönliche Information (Februar 1995)
- [5] K. L. Derstine:
DIF3D: A Code to Solve One-, Two, and Three-Dimensional Finite Difference Diffusion Theory Problems
 ANL-82-64
 Argonne Nat. Lab. (1984)
- [6] N. M. Greene, L. M. Petrie:
XSDRNPM-S: A One-Dimensional Discrete-Ordinates Code for Transport Analysis
 in: *SCALE-4. A Modular Code System for Performing Standardized Computer Analyses for Licensing Evaluation*
 RSIC Computer Code Collection, CCC-545 (1989)
- [7] NN:
DOT IV.2 Two Dimensional Discrete Ordinates Radiation Transport Code System
 Oak Ridge National Laboratory
 RSIC Computer Code Collection, CCC-320 (1979)
- [8] A. Ziegler:
Lehrbuch der Reaktortechnik
Band 1 Reaktorteorie
 Springer Verlag, Berlin (1983)
- [9] W. A. Coleman, R. G. Alsmiller jr:
Thermal-Neutron Flux Generation by High Energy Protons
 Nucl. Sci. Eng. **34**, S. 104-113 (1968)
- [10] O. W. Hermann, R. M. Westfall:
ORIGEN-S - SCALE System Module to calculate Fuel Depletion, Actinide Transmutation, Fission Product Buildup and Decay, and Associated Radiation Source Terms
 in: *SCALE-4. A Modular Code System for Performing Standardized Computer Analyses for Licensing Evaluation*
 RSIC Computer Code Collection, CCC-545 (1989)

- [11] *SCALE-4. A Modular Code System for Performing Standardized Computer Analyses for Licensing Evaluation*
RSIC Computer Code Collection, CCC-545 (1989)
- [12] O. W. Hermann:
SAS2(H): A Coupled One-Dimensional Depletion and Shielding Analysis Code,
in: *SCALE-4. A Modular Code System for Performing Standardized Computer Analyses for Licensing Evaluation*
RSIC Computer Code Collection, CCC-545 (1989)
- [13] B. J. Toppel:
A User's Guide to the REBUS-3 Fuel Cycle Analysis Capability
ANL-83-2
Argonne Nat. Lab. (1983)
- [14] J. Hoover, G. K. Leaf, D. A. Meneley, P. M. Walker:
The Fuel Cycle Analysis System, REBUS
Nucl. Sci. Eng.: **45**, 52-65 (1971)
- [15] Lederer et al:
Table of Isotopes
in: *Assessment Studies on Nuclear Transmutation of By-Product Actinides*
E. Schmidt, E. Zamorani, W. Hage, S. Guardini
S. A. /1.05.03.83.13
ISPRA (1984)
- [16] U. Fischer, H. W. Wiese:
Verbesserte konsistente Berechnung des nuklearen Inventars abgebrannter DWR-Brennstoffe auf der Basis von Zell-Abbrand Verfahren mit KORIGEN
KfK 3222
Kernforschungszentrum Karlsruhe (Dezember 1981)
- [17] P. W. Phlippen:
Persönliche Mitteilung
Forschungszentrum Jülich (Dezember 1994)
- [18] S. E. Binney et al:
CURE: Clean Use of Reactor Energy
Report WHC-EP-0268
Hanford Corp. (1990)
- [19] *Annual Limits on Intake of Radionuclides by Workers Based on the 1990 Recommendations*
ICRP-Publication 61, Annals of the ICRP **22**, No. 4, 1991
- [20] H. Kiefer, W. Koelzer:
Strahlen und Strahlenschutz
Springer-Verlag, Berlin (1992)
- [21] *1990 Recommendations of the International Commission on Radiological Protection*
ICRP-Publication 60, Annals of the ICRP **21** (1-3), 1991
- [22] *Limits for the Intake of Radionuclides by Workers*
ICRP-Publication 30 Part 1, Annals of the ICRP **2**, (3/4), 1979
- [23] *Limits for the Intake of Radionuclides by Workers*
ICRP-Publication 30 Part 2, Annals of the ICRP **4**, (3/4), 1980
- [24] *Limits for the Intake of Radionuclides by Workers*
ICRP-Publication 30 Part 3, Annals of the ICRP **6**, (2/3), 1981
- [25] *Verordnung über den Schutz vor Schäden durch ionisierende Strahlen,*
Strahlenschutzverordnung- StrlSchV vom 30. Juni 1989, BGBl. I S. 1321

- [26] *Limits for the Intake of Radionuclides by Workers*
ICRP-Publication 30 Part 4, An Addendum, Annals of the ICRP 19, (4), 1988
- [27] Office of the Federal Register National Archives and Records Service:
Code of Federal Regulations Title 10, Part 20 Standards for Protection against Radiation
10 CFR 20, Washington U.S.A. (1971)
- [28] M. M. El-Wakil:
Nuclear Heat Transport
International Textbook Company
Scranton, USA (1971)
- [29] O. E. Dwyer:
Liquid-Metal Heat Transfer
Sodium-NaK Engineering Handbook
ed: O. J. Foust
Vol. 2, Kap. 2
Gordon and Breach, Science Publishers, INC. (1971)
- [30] W. Hofmann:
Lead and Lead Alloys
Duisburg (1970)
- [31] irgendwat zur Wärmekapaz.
- [32] Y. S. Touloukian:
Thermal Conductivity
in: *Thermophysical Properties of Matter*
New York (1972)
- [33] W. Blanke:
Thermophysikalische Stoffdaten
Springer-Verlag, Berlin (1989)

A Kurzbeschreibung der verwendeten Programme

A.1 HETC - ein Hochenergietransportcode

HETC modelliert die für die Berechnung einer unterkritischen Anlage wichtige Spallationsreaktion, die zur Freisetzung von externen Quellneutronen führt. Ausgangspunkt der Berechnungen ist dabei das auf das Target auftreffende Primärteilchen (Proton), welches bei den hier untersuchten Konzepten Energien von mehr als 1 GeV aufweist.

HETC arbeitet nach der Monte-Carlo Methode, so daß das Primärteilchen mit allen seinen induzierten atomaren Prozessen und den sekundär erzeugten Tochterteilchen bis zu einer Cut-Off Energie von beispielsweise 15 MeV verfolgt wird. Der Umfang der von HETC modellierten atomaren Prozesse ist in dem in Abb. 1 angeführten Schema vereinfacht dargestellt.

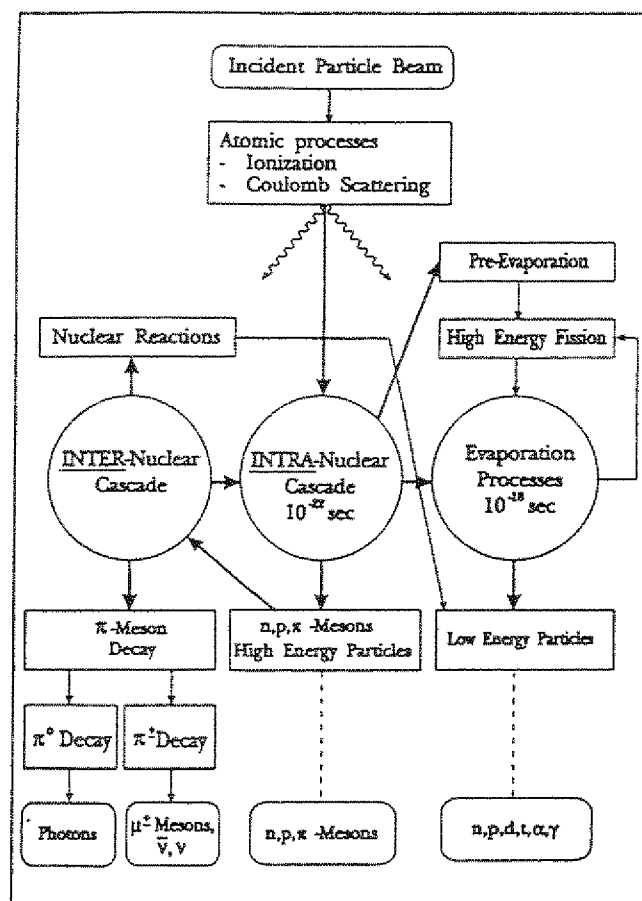


Abb. 1: Schematische Darstellung der von einem Proton ausgelösten Reaktionen [1]

Bevor ein Proton in den Kern eines Targetatoms eindringt, sind die Einflüsse von Ionisation und Coulomb-Streuung auf die Bahn des Primärteilchens zu erfassen. Das eigentliche Auftreffen auf den Kern löst eine **INTRA**-Nukleare Kaskade aus, die die Spallation, also das Aufbrechen des Kerns in verschiedenste Hoch- und Niederenergieteilchen, zur Folge haben kann. Darüber hinaus kann es mit gewisser Wahrscheinlichkeit zur Hochenergiespaltung

kommen. Alle sekundär erzeugten Hochenergieteilchen können in weitere Kerne eintreten. Für diesen übergeordneten Vorgang ist die Bezeichnung **INTER-Nukleare Kaskade** in Gebrauch.

Der beschriebene Berechnungsumfang läßt sich nur in zeitlich zufriedenstellendem Rahmen numerisch durchführen, falls einige wesentliche Vereinfachungen vorgenommen werden (Abb. 2).

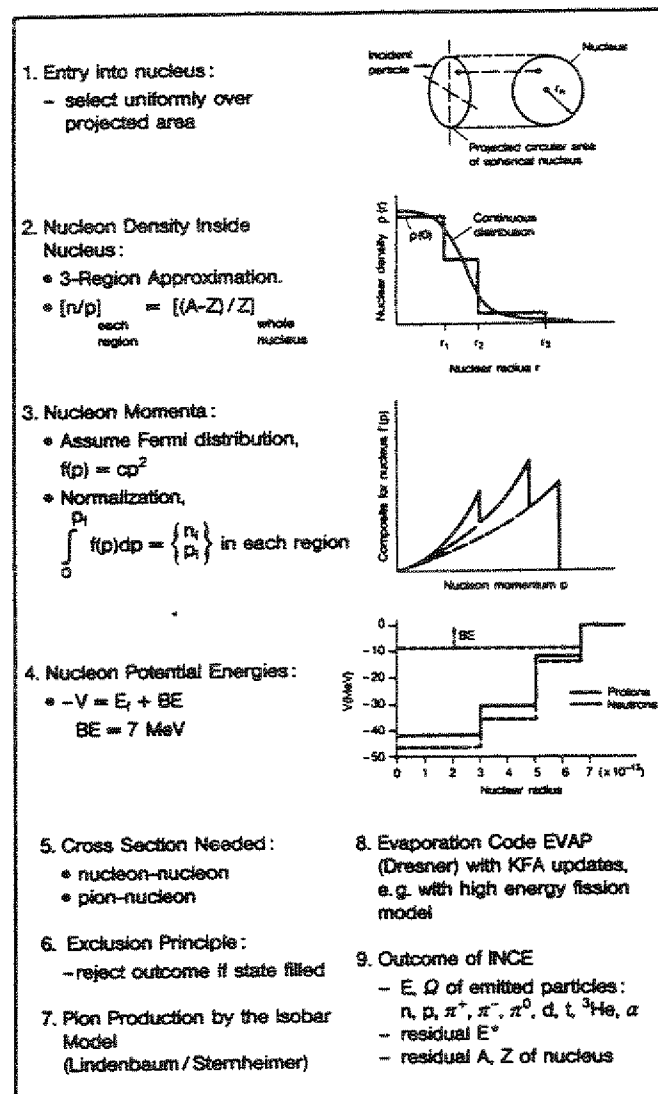


Abb. 2: Basisannahmen im Intra-Nuklearen Kaskaden Modell von HETC [1]

Insbesondere Unterpunkt 5 verdient nähere Erläuterung. HETC verwendet ausschließlich Nukleon-Nukleon Wirkungsquerschnitte, die experimentell zufriedenstellend bekannt sind. Dadurch wird die Anzahl der benötigten Daten stark verringert. Dieses Modell beschreibt das Verhalten von Hochenergieteilchen für Energien von einigen 100 MeV sehr gut, da die de-Broglie Wellenlänge des stoßenden Teilchens kürzer ist als der Abstand der Nukleonen innerhalb des Korns (ca. 10^{-13} cm). Als Konsequenz ist die Zeit der Wechselwirkung zwi-

schen auftreffendem Proton und einem Nukleon bedeutend kürzer als Stöße der Nukleonen untereinander.

Alle Teilchen, die innerhalb von HETC nicht weiterverfolgt werden, werden auf einer speziellen Datei (Submission File) abgelegt. Von dort können andere Programme (beispielsweise zum Neutralteilchentransport) die erzeugten Teilchen auslesen und selbständig weiterverfolgen. Innerhalb des Forschungszentrums Jülich wurde für diese Zwecke HETC als HETC-KFA2 in das Programmsystem HERMES eingebunden, das im Niederenergiebereich ausschließlich Monte-Carlo Methoden verwendet [2]. In der vorliegenden Arbeit jedoch wird HETC-KFA2 als selbständiges Programm benutzt und stattdessen an die in Abschnitt A.2 beschriebenen deterministischen Rechenverfahren für den Neutralteilchentransport im Niederenergiebereich gekoppelt.

HETC wurde in der Vergangenheit vielfach benutzt, um Kalorimeter in der Hochenergiephysik auszulegen, Abschirmungen von Beschleunigern zu bemessen (COSY, KFA) und verschiedene Spallationsneutronenquellen (z. B. SINQ am Paul Scherrer Institut, Schweiz) zu berechnen. In jüngster Zeit wurde von der NEA eine Benchmark-Rechnung für Dünn- und Dicktargets in Auftrag gegeben, die zum Ziel hatte, die verschiedenen international verwendeten Hochenergiecodes miteinander und ggfs. mit zuvor nicht bekannten Meßergebnissen zu vergleichen. Die Auswertung der für die Auslegung von Target und Blanket wichtigen Dicktargetrechnungen - hier wurden keine Experimente zum Vergleich herangezogen - wurde in der KFA zusammengestellt und ist in [3] dokumentiert. Gemäß [4] darf man aufgrund der Vielzahl von bekannten Anwendungen und Experimenten sowohl bezüglich der Neutronenproduktion als auch bezüglich der Wärmeproduktion in Target und Blanket davon ausgehen, daß die mit HETC-KFA2 errechneten Werte im hier interessierenden Energiebereich bis 2 GeV eine Ungenauigkeit von weniger als $\pm 10\%$ aufweisen.

A.2 XSDRN, DIF3D und DOT zur Neutronenflußberechnung

Die genannten Programme verwenden deterministische Lösungsverfahren zur Berechnung der Neutronenflußverteilung. Sie lassen sich sowohl zu Kritikalitätsberechnungen als auch zu den hier wichtigen Fixed-Source Rechnungen heranziehen. Grundsätzlich wird das betrachtete Reaktorvolumen in Teilvolumina (Maschen) eingeteilt, innerhalb derer man räumliche Änderungen vernachlässigen darf. Für jedes der Teilvolumina und jede betrachtete Neutronengruppe wird eine Neutronenbilanz aufgestellt, die zum einen Quellen in Form von externen Neutronenquellen (hier Spallationsneutronen aus HETC $\equiv$ Fixed Source), Auf- oder Abwärtsstreuungen aus benachbarten Neutronengruppen und Neutronen aus Kernreaktionen (hauptsächlich Spaltung) berücksichtigt. Den Quellen werden Senken in Form von über die Systemgrenzen ein- und austretenden Neutronenströmen, Absorptionen und Streuverlusten in andere Neutronengruppen gegenübergestellt, unter der einschränkenden Bedingung, daß die Anzahl der Neutronen zeitlich konstant ist.

Eine solche Bilanz läßt sich in ihrer einfachsten Form im Rahmen der Diffusionstheorie aufstellen, was bedeutet, daß jede Richtung der an einem Kern gestreuten Neutronen gleichberechtigt ist. Das vom ANL für Neutronenflußberechnungen in schnellen Reaktoren verwendete dreidimensionale Programm DIF3D verwendet diese Methode [5].

Mit den im Forschungszentrum Jülich verfügbaren Programmen XSDRN [6] und DOT [7] kann die Winkelabhängigkeit von Fluß, Streuterm und Quellterm explizit durch Lösung der Boltzmann-Gleichung berücksichtigt werden. Zum Einsatz kommt die P_N -Methode, die entsprechende winkelabhängige Terme durch die Aufstellung von Legendre Polynomen bereitstellt. Die Entwicklung der Polynome wird nach dem N . Term abgebrochen, wobei die P_0 -Näherung als Grenzfall der Diffusionstheorie entspricht. Ein Vergleich der verschiedenen Methoden und deren Anwendungsfälle kann [8] entnommen werden.

XSDRN und DOT werden zur Berechnung der Neutronenflußverteilung der unterkritischen Transmutationsanlage, die mit einer Bleisuspension arbeitet, verwendet. Das eindimensionale Programm XSDRN wird zur Abbildung der Einheitszelle und zu ersten überschlägigen Berechnungen der Gesamtanlage benutzt, während die axiale Flußverteilung in einer zweidimensionalen DOT-Rechnung ermittelt wird. Ausschließlich mit XSDRN dagegen sind die in Kap. 4 beschriebenen Rechnungen zu dem Suspensionsreaktor des LANL durchgeführt worden. Die Rechnungen zu dem in Kap. 5 dargestellten unterkritischen schnellen natriumgekühlten System entstanden durch die Kombination von HETC und DIF3D.

Die Genauigkeit der Kopplung von deterministischen Programmen an HETC-KFA2 ist durch eine Vergleichsrechnung bestätigt worden. Zu diesem Zweck wurde das von *Fraser* in den 60er Jahren zum ING-Target durchgeführte Experiment (Abb. 3) rechnerisch abgebildet [9].

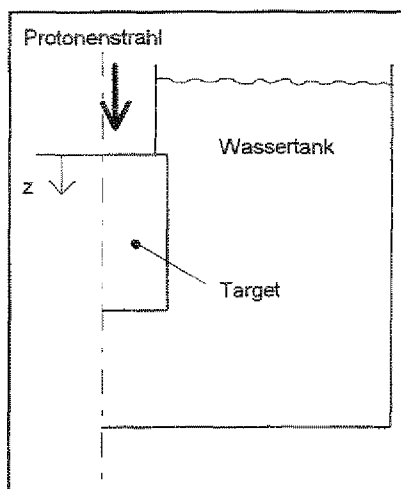


Abb. 3: Versuchsanordnung zum ING-Target ; Target:
 $\varnothing$ 100 mm, $l = 600$ mm, Wasser
 tank : $\varnothing$ 1900 mm, $l = 1800$ mm

Die Versuchsanordnung bestand aus einem blockförmigen Bleitarget in einem Wassertank, das mit Protonen einer Energie von 900 MeV beschossen wurde. Ein Vergleich der im Wasser meßtechnisch ermittelten Neutronenflüsse und der mit HETC und DOT errechneten Flußverläufe gibt Abb. 4. Die Abweichung zwischen Meß- und Rechenergebnissen sind offensichtlich sehr klein. Ebenfalls eine gute Übereinstimmung zeigt ein Vergleich der mit den Programmen MORSE (Monte-Carlo Neutralteilchentransport im HERMES-System) und DOT gerechneten Ergebnisse.

Sämtliche vom ISR durchgeführten Neutronentransportrechnungen zur Transmutation wurden mit einer speziell geschaffenen 123-Gruppen Master Library mit 30 thermischen Grup-

pen durchgeführt. Diese wurde aus neuesten Daten im ENDF-5 (ENDF/B-V Band) bzw. ENDF-6 Format (JEF-2.2 Band) generiert.

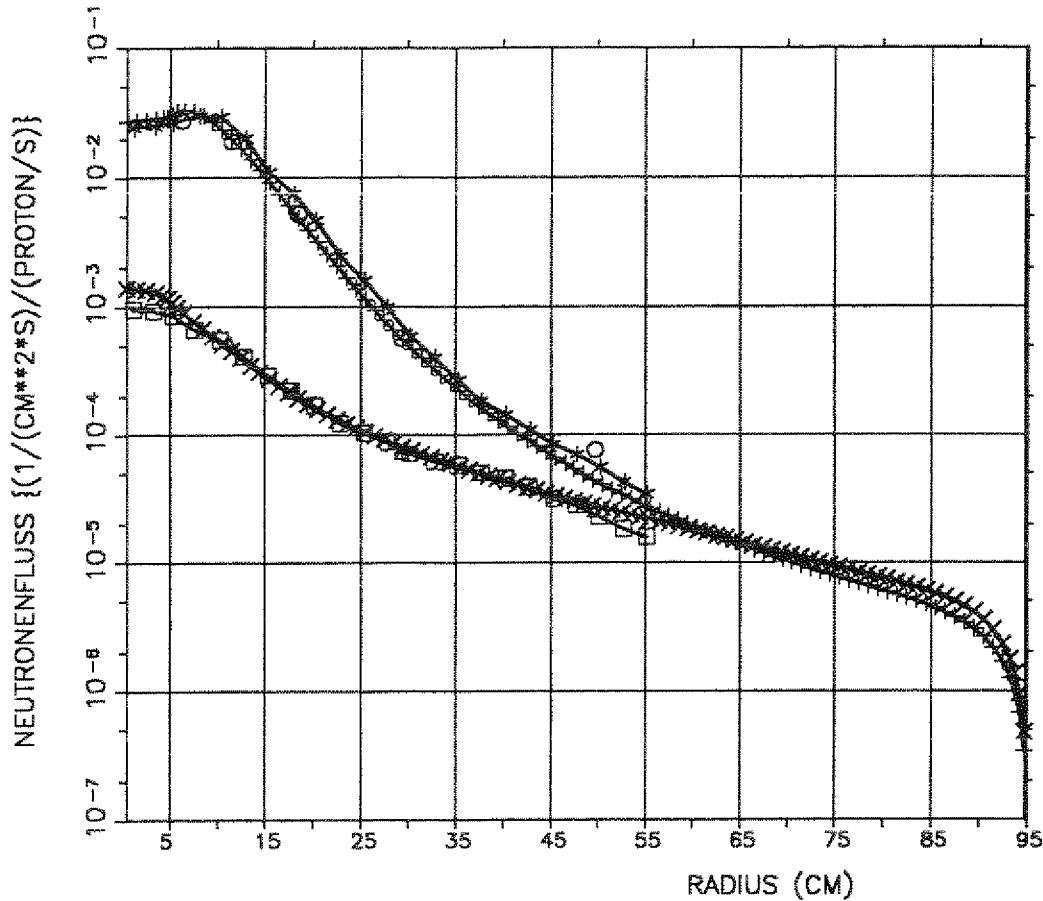


Abb. 4: Vergleich gemessener [9] und errechneter radialer Flußverläufe für die $z = 11$ cm und $z = 61$ cm; Kreuze: DOT-Rechnungen, Kreise und Dreiecke: Meßergebnisse von Fraser, Quadrate: ältere Simulationen

A.3 ORIGIN, SAS2(H) und REBUS zur Abbrandberechnung

ORIGIN [10] und REBUS [2] können komplette Brennstoffzyklen analysieren, was den eigentlichen Reaktor und die verfahrenstechnischen Prozesse einer Wiederaufarbeitung (WAA) einschließt. Kernstück dabei ist die Bestimmung des zeittransienten Verhaltens des Nuklidvektors N in einem Reaktor mit dem thermischen Neutronenfluß Φ . Zu diesem Zweck ist für jedes Nuklid N_i die folgende Bilanz aufzustellen:

$$\frac{dN_i}{dt} = \sum_j \gamma_{ji} \cdot \sigma_{F,j} \cdot N_j \cdot \Phi + \sigma_{C,i-1} \cdot N_{i-1} \cdot \Phi + \sum_k \lambda_{ki} \cdot N_k - (\sigma_{C,i} + \sigma_{F,i}) \cdot N_i \cdot \Phi - \lambda_i \cdot N_i \quad (\text{Gl. 1})$$

In dieser Gleichung wird die Bildung des Nuklids i durch Spaltprozesse (Index F), n - γ Reaktionen (Index C) und Zerfallsprozesse aus k anderen Nukliden mit der Zerfallskonstante

λ_K zugelassen. Parasitäre Absorptionen und Spaltungen von N_i sowie Zerfallsprozesse bilden die Senke. Auf diese Art entsteht ein homogenes Gleichungssystem, das in ORIGEN durch Reihenentwicklung gelöst wird. Besonders zu beachten ist, daß für jedes Nuklid nur eine Gleichung existiert. Somit müssen sämtliche Wirkungsquerschnitte in Kombination mit dem im Programm verwendeten Fluß Φ die mittleren Verhältnisse (Reaktionsraten) im Reaktor widerspiegeln. Die in Abb. 5 angeführte Isotopentafel der, insbesondere für die Transmutation wichtigen, Actiniden verdeutlicht die Komplexizität des aufzustellenden homogenen Gleichungssystems. Dieses wird inhomogen, sofern zusätzlich eine Speiserate ergänzt wird. Letzteres ist in Systemen mit flüssigen Brennstoffen und kontinuierlicher Zuspaltung notwendig.

ORIGEN ist für die korrekte Beschreibung des Abbrandverhaltens in einem Reaktor an andere Programme zu koppeln. Diese Programme müssen die Flußverhältnisse in den zu berechnenden Zonen bestimmen und ORIGEN den Zugriff auf die resultierenden in Gl. 1 benutzten Eingruppenquerschnitte ermöglichen. Eine solche Kopplung wird in dem hier benutzten Programmsystem SCALE 4.0 [11] durch die Benutzung der Programme NITAWL (Resonanzrechnung), XSDRN (Neutronentransportrechnung) und COUPLE ermöglicht. COUPLE bildet aus den in XSDRN auf 3 Gruppen kondensierten Wirkungsquerschnitten mit Hilfe der Faktoren THERM, RES und FAST bei Konservierung der Reaktionsraten einen auf einen thermischen Fluß bezogenen Eingruppenquerschnitt. THERM gibt dabei den Beitrag eines auf 1 barn normierten typischen $1/v$ -Absorbers für thermische Neutronen bis 0,5 eV in dem vorhandenen Spektrum an. RES und FAST bilden ein Maß für das Verhältnis von Neutronen im Resonanzbereich bzw. schnellen Neutronen zu thermischen Neutronen.

Durch die oben beschriebene Kopplung entstanden die in Kapitel 4 zum LANL-Suspensionsreaktor durchgeführten Rechnungen. Neben der Benutzung der Einzelmodule existiert innerhalb von SCALE 4.0 auch das Programm SAS2(H) [12], das die oben beschriebenen Module benutzt, aber in seiner Funktionalität auf kritische Reaktoren mit herkömmlichen Brennelementen im unendlichen Gitter beschränkt ist. SAS2(H) ermöglicht es, die Wirkungsquerschnitte während einer Abbrandberechnung dem geänderten Nuklidvektor anzupassen.

Das vom ANL benutzte Programm REBUS [13 u. 14] geht noch eine Stufe weiter, da es sich um ein auf schnelle Reaktoren zugeschnittenes Reaktorauslegungsprogramm handelt. Dieses bedeutet, daß in REBUS alle Optionen des mehrdimensionalen Diffusionsprogramms DIF3D vorhanden sind, so daß Flußverhältnisse und kondensierte Wirkungsquerschnitte fortlaufend aktualisiert werden können. REBUS löst Gl. 1 für mehrere Zonen gleichzeitig, so daß genaue Aussagen zum Verhalten einzelner Brennelemente möglich sind. Daraus resultieren Angaben für Be- bzw. Umladung einzelner Brennelemente im Reaktor.

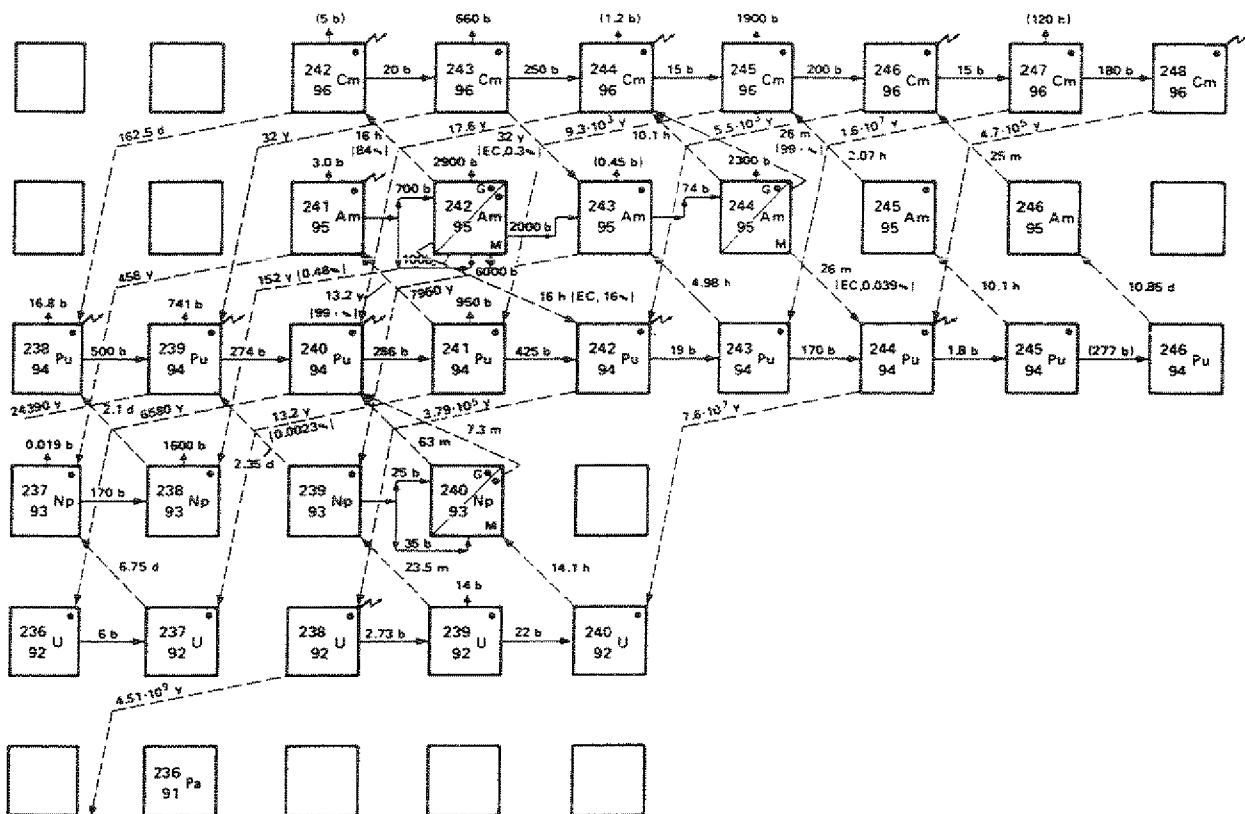


Abb. 5: Isotopentafel der Actiniden mit ihren thermischen Querschnitten σ_{Fi} und σ_{Ci} (0,0253 eV) sowie den möglichen Zerfallswegen [15]

B Gefährdungspotential radioaktiver Abfälle

B.1 Zusammensetzung radioaktiver Abfälle aus Reaktoren

Die Zusammensetzung der aus einem Reaktor entladenen Abfälle wird maßgeblich vom eingesetzten Brennstoff und vom Abbrand bestimmt. Für Druckwasserreaktoren verschiedener Bauart ist wegen der langen Betriebsdauer der Nuklidvektor relativ gut aus Messungen bekannt. Variationen in der Beladung oder geänderte Brennstoffzyklen lassen sich aber am besten programmtechnisch abschätzen. Im allgemeinen muß hierfür der gesamte Reaktorzyklus in einer mehrdimensionalen Abbildung des Reaktors simuliert werden. Die Simulation schließt die sorgfältige Nachbildung sämtlicher Betriebsparameter während des betrachteten Zyklus ein. Dieses bedeutet, daß die Einstellung der richtigen Fluß- und Leistungsverteilung, das Fuel-Management und die Erfüllung der Kritikalitätsbedingung unter Einbeziehung der in Kontrollgiften gebundenen Reaktivitäten unabdingbare Voraussetzungen für die Abbrandrechnung sind.

Daneben existiert die Möglichkeit eindimensionale Programme zu verwenden, die mit typischen Mittelwerten des im Reaktor eingesetzten Brennstoffs operieren. Diese Vorgehens-

weise wurde für die Berechnungen zum DWR durch die Verwendung des SAS2(H)-Programms aus dem SCALE4 Programmpaket [12] verfolgt. Dieses Programm koppelt im wesentlichen die zuvor beschriebenen Programme XSDRN und ORIGEN in der in Kap. A.2 beschriebenen Weise. Der komplette Zyklus eines Brennelements im Reaktor wird wesentlich durch die Kritikalitätsbedingung und den zeitlichen Verlauf der Borkonzentration im Moderator beeinflusst. Unterschiedliche Vorgehensweisen bei der Modellbildung wurden von der KfK untersucht und mit gutem Erfolg mit den existierenden Meßwerten verglichen [16]. Tab. 1 zeigt die von der KFA für einen DWR vom Typ Biblis ermittelten Werte für den Transuran-Vektor [17] im Vergleich zu den KfK-Werten und den Werten eines amerikanischen DWR [18]. Die Neuberechnung war erforderlich, da der Nuklidvektor abgebrannter Brennelemente in der Literatur meist nur unvollständig angegeben wird und insbesondere das für das Toxizitätspotential der Uran-Fraktion wichtige und bei der Brennstoffherstellung überproportional angereicherte U-234 oft keine Berücksichtigung findet. Die hier für den DWR errechneten Zahlenwerte fügen sich mit ausreichender Genauigkeit in den auch von anderen Stellen für unterschiedliche Leichtwasserreaktoren berechneten TRU-Vektor (TRU = Transurane) ein.

Tab. 1: Vergleich der relativen TRU-Anteile für Druckwasserreaktoren

Quelle	Amerikanischer	KfK	KFA
Reaktor	DWR	DWR	DWR
Lagerung	10 a	7 a	10 a
Abbrand/ Anreicherung	33 MWd/kg 3,2 %	36 MWd/kg 3,4 %	35 MWd/kg 3,5 %
Np-237	0,04491	0,04628	0,04329
Pu-238	0,01398	0,01533	0,01428
Pu-239	0,51479	0,52642	0,53182
Pu-240	0,23719	0,22534	0,22086
Pu-241	0,07848	0,08602	0,08110
Pu-242	0,04807	0,05096	0,04664
Am-241	0,05134	0,03778	0,05230
Am-242m	0,00007	0,00004	0,00008
Am-243	0,00925	0,00944	0,00797
Cm-243	0,00003	0,00003	0,00002
Cm-244	0,00180	0,00225	0,00157
Cm-245	0,00010	0,00010	0,00009
g TRU/kg	9,80	10,69	10,46

Zusätzlich zu den Actiniden werden je kg eingesetzten Brennstoffs 36 g Spaltprodukte erzeugt. Die vielfach diskutierten Spaltprodukte Tc-99 und J-129 werden nur zu 0,847 g bzw. 0,188 g je kg eingesetzten Brennstoffs aufgebaut.

Mit diesen Informationen läßt sich eine Mengenbilanz für die jährlichen Abfälle eines DWR ableiten. Dieser DWR erzeugt bei einem Wirkungsgrad η von 33 % eine Leistung von 1300 MW_{el}. Unterstellt man eine Verfügbarkeit des Reaktors von ca. 7000 Vollaststunden, entsprechend etwa 80 % Auslastung, so sind jährlich 32,8 t SM zu entladen. Diese 32,8 t

enthalten 1,18 t Spaltprodukte (FP). Weiterhin sind 343 kg TRU aufgebaut worden, die zu 89,5 %, entsprechend 307 kg, aus Pu bestehen. Diese Daten wurden in Abb. 2.2 unter zusätzlicher Berücksichtigung der Pu und U-Verluste von ca. 1 % im MAW und 1 % im HAW zugrunde gelegt.

B.2 Bestimmung der Gefährdungspotentiale nach den ICRP-Richtlinien

Basis zur Berechnung des Gefährdungspotentials radiotoxischer Stoffe ist im allgemeinen die Aufnahme einzelner Isotope über den Ingestionspfad (Nahrungsaufnahme) oder den Inhalationspfad (Atmung). Die Konzentrationen werden in Form von maximal jährlich zu inkorporierenden Aktivitäten [Bq] als sogenannte ALI-Werte (Annual Limit of Intake) angegeben. Die momentan aktuellen Werte, die im wesentlichen auf einer Auswertung der Krebssterblichkeitsdaten der Überlebenden von Hiroshima und Nagasaki bis 1985 und der Anwendung eines neuen Dosimetriesystems basieren, finden sich in der ICRP-61 [19]. Eine gute allgemeinverständliche Übersicht der historischen Entwicklung wird in [20] gegeben.

Vielfach wurden und werden noch die im Code of Federal Regulations (10-CFR 20) [27] aus dem Jahre 1971 festgelegten Aktivitätskonzentrationen verwendet, die auf einer zulässigen Ganzkörperdosis von 5 mSv für die Bevölkerung beruhen. Die ICRP-Publikation 30 [22,23,24] aus dem Jahre 1981 gibt basierend auf einer Dosis von 50 mSv pro Jahr Grenzwerte der Jahresaktivitätsaufnahme relevanter Nuklide für beruflich strahlenexponierte Personen an. Hierin findet eine Neubewertung der Actinidenelemente ihren Niederschlag, die zu einer Verschärfung der Grenzwerte gegenüber der CFR um rund eine Größenordnung führt. Bei den Spaltprodukten sind für die mittelfristige Betrachtung die Verschiebungen der Bewertungen von Sr-90 und Cs-137 hervorzuheben, die durch die Anhebung des Sr-90-Grenzwertes nunmehr annähernd gleichwertig auf einem Niveau liegen. Für die Langzeitbetrachtung ist auch die um den Faktor 10 niedrigere Bewertung des I-129 hervorzuheben. Tab. 2 gibt für die bedeutendsten Spaltprodukte und Actiniden einen Überblick über die historische Entwicklung der ALI-Werte für den Ingestionspfad; zum Vergleich sind die ALI-Werte mit der jeweils zugrundeliegenden Referenzjahresdosis umgerechnet auf Bq/Sv; für die Umrechnung der CFR-Konzentrationen wird darüberhinaus eine Wasseraufnahme von $1 \text{ m}^3/\text{a}$ unterstellt.

Neue Erkenntnisse über den Metabolismus der Transuranelemente führten im Jahre 1988 zu einer teilweisen Revision der in ICRP-30 genannten ALIs [26]. Der Grenzwert für Np-237 wurde um den Faktor 7 angehoben, während Pu um ca. eine Größenordnung reduziert und Am sowie Cm ungefähr halbiert wurden. Die ALIs der ICRP-30 fanden Eingang in die derzeit gültige Strahlenschutzverordnung der BRD aus dem Jahre 1989 [25].

Im Jahre 1990 erließ die ICRP in der Publikation 60 [21] aktualisierte Empfehlungen, in denen neben einer Reduktion der zulässigen Strahlendosen für beruflich strahlenexponierte Personen (20 mSv/a gemittelt über 5 Jahre aber maximal 50 mSv in jedem einzelnen Jahr) und für die Bevölkerung (1 mSv/a) eine geänderte Gewichtung von Organen und Geweben des menschlichen Körpers zur Bildung der effektiven Dosis eingeht. Der hier verwendete schon in ICRP-30 als Bezugsgröße der ALIs benutzte Begriff einer effektiven Dosis bedeutet dabei, daß ein Zahlenwert geschaffen wurde, der sich aus der Summe aller bezüglich ei-

ner stochastischen Strahlenwirkung relevanten und daher mit entsprechenden Wichtungsfaktoren bezüglich Mortalität versehenen mittleren Organ- bzw. Gewebedosen zusammensetzt. Obige Begrenzung genügt nach ICRP um deterministische Wirkungen in den Körpergeweben und Organen auszuschließen, ausgenommen der Augenlinsen und der Haut. Für diese Organe wurden eigene Teilkörperdosisgrenzwerte festgelegt.

Tab. 2: Vergleichende Zusammenstellung der je Sv durch Ingestion aufzunehmenden Aktivität wichtiger Radionuklide zur Bewertung des Gefährdungspotentials radioaktiver Abfälle. Es wird jeweils der schärfste Grenzwert, entsprechend einer unbekannten chemischen Verbindung verwendet.

Verordnung		ICRP-61 [19]	ICRP-30 [22,23,24]	ICRP-30 [26]	10 CFR 20 [27]	StrlSchV [25]
Jahr		1991	1980	Part 4 1988	1971	1989
Nuklid	Halbwertszeit	/ (Bq/Sv)	/ (Bq/Sv)	/ (Bq/Sv)	/ (Bq/Sv)	/ (Bq/Sv)
Sr-90	28,5 a	3,0E+7	2,0E+7	-	2,2E+6	6,0E+6
Cs-135	2E+6 a	5,0E+8	6,0E+8	-	7,4E+8	-
Cs-137	30,17 a	5,0E+7	8,0E+7	-	1,5E+8	8,0E+7
Tc-99	2,1E+5 a	1,5E+9	2,0E+9	-	1,5E+9	8,0E+8
I-129	1,57E+7 a	1,0E+7	4,0E+6	-	4,4E+5	2,0E+6
Pb-210	22,3 a	1,0E+6	4,0E+5	-	7,4E+5	2,0E+5
Po-210	138,38 d	4,5E+6	2,0E+6	-	5,2E+6	6,0E+5
Ra-226	1600 a	4,5E+6	1,4E+6	-	2,2E+5	8,0E+5
Pa-231	3,28E+4 a	5,0E+5	1,4E+5	-	6,7E+6	8,0E+4
U-233	1,59E+5 a	3,5E+7	8,0E+6	-	2,2E+8	6,0E+6
U-234	2,45E+5 a	3,5E+7	8,0E+6	-	2,2E+8	6,0E+6
U-235	7,04E+8 a	3,5E+7	1,0E+7	-	2,2E+8	6,0E+6
U-236	2,342E+8 a	3,5E+7	1,0E+7	-	2,2E+8	-
U-238	4,47E+9 a	4,0E+7	1,0E+7	-	3,0E+8	6,0E+6
Np-237	2,14E+6 a	1,5E+6	6,0E+4	4,0E+5	2,2E+7	2,0E+5
Pu-238	87,74 a	2,0E+6	6,0E+6	6,0E+5	3,7E+7	4,0E+5
Pu-239	2,41E+4 a	2,0E+6	4,0E+6	6,0E+5	3,7E+7	4,0E+5
Pu-240	6550 a	2,0E+6	4,0E+6	6,0E+5	3,7E+7	4,0E+5
Pu-241	14,4 a	1,0E+8	2,0E+8	2,0E+7	1,5E+9	1,8E+7
Pu-242	3,76E+5 a	2,0E+6	6,0E+6	6,0E+5	3,7E+7	-
Am-241	432,6 a	1,5E+6	1,0E+6	6,0E+5	3,0E+7	4,0E+5
Am-243	7370 a	1,5E+6	1,0E+6	6,0E+5	3,0E+7	-
Cm-243	28,5 a	2,5E+6	1,4E+6	8,0E+5	3,7E+7	4,0E+5
Cm-244	18,11 a	3,0E+6	1,8E+6	1,0E+6	5,2E+7	6,0E+5

Für alle in der Arbeit dargestellten Gefährdungspotentiale wurden der jährliche Trinkwasserverbrauch ($0,8 \text{ m}^3/\text{a}$), die jährliche Atemrate und die maximale effektive Dosis für die Bevölkerung ($0,3 \text{ mSv}$) von der derzeit gültigen StrlSchV übernommen. Die Toxizitätsäquivalente der StrlSchV wurden, soweit vorhanden, durch die neuen Werte der ICRP-61 aus dem Jahr 1991 ersetzt. Letztere enthält die derzeit neuesten ALI-Werte auf der Basis der Empfehlungen der ICRP-60.

C Flüssiges Blei als Wärmeträger

C.1 Grundsätzliche Zusammenhänge

Die Wärmeübertragungseigenschaften eines Fluids sind wesentlich durch die Prandtl-Zahl bestimmt. Diese Zahl ist für Flüssigmetalle um 2 bis 3 Größenordnungen kleiner als für Wasser, so daß hier grundsätzlich andere Beziehungen für die Wärmeübertragung zur Anwendung kommen. So läßt sich bei turbulenter Durchströmung eines Rohrs in Flüssigmetallen ein bedeutend geringerer Temperaturgradient in Wandnähe als beispielsweise bei Wasser beobachten. Nahe der Wand baut sich typischerweise eine laminare Grenzschicht auf, in der vertikale Geschwindigkeitskomponenten und ein entsprechender konvektiver Wärmetransport gegen Null gehen. Wegen der höheren Wärmeleitfähigkeit der Flüssigmetalle, der die turbulenten Anteile überschatten kann, reduziert die Grenzschicht hier in geringerem Maße die effektive Wärmeleitfähigkeit.

Aus der Analogie von Wärme- und Strömungsprofil konnte *Martinelli* den Wärmetransport in Flüssigmetallen analytisch beschreiben. Für die Durchströmung von Rohren präsentierte *Lyon* basierend auf der Arbeit von *Martinelli* für einen konstanten Wärmestrom die Beziehung

$$Nu = 7 + 0,025 \cdot (Pe)^{0,8} \quad \text{mit} \quad Pe = Re \cdot Pr \quad . \quad (\text{Gl. 2})$$

Pe	Peclet-Zahl
Re	Reynolds-Zahl
Pr	Prandtl-Zahl

Obige Gleichung wurde durch Variation der Konstanten an eine Vielzahl von experimentellen Ergebnissen und verfeinerten theoretischen Modellen angepaßt [28]. In dieser Arbeit sollen die aufgrund neuerer Auswertungen in Tab. 3 aufgeführten Zusammenhänge benutzt werden.

Es ist zu beachten, daß die umseitig aufgeführten Gleichungen hauptsächlich für Natrium gelten. Schwere Metalle wie Wismut und Blei unterscheiden sich grundsätzlich dahingehend, daß sie metallische Oberflächen oft nicht oder nur unvollständig durch die Bildung eines dünnen Oxidfilms benetzen. Nach [29] lassen sich aber die Nachteile daraus leicht umgehen, sofern die Schmelze entsprechend frei von eingeschlossenen Gasen gehalten wird.

Tab. 3: Gleichungen zur Bestimmung der Wärmeübertragungskoeffizienten nach [29];
die angegebenen Nusselt-Zahlen sind auf den effektiven Durchmesser als Quotient
aus dem 4-fachen der durchströmten Fläche und der benetzter Umfangslinie zu beziehen

Anwendungsfall	Gleichung
Durchströmtes Rohr	$Nu = 5 + 0,025 \cdot (Re \cdot Pr)^{0,8}$ (Gl. 3)
Kreisringspalt (r_1, r_2) mit Wärmeübergang von der inneren Wand	$Nu = \alpha + 0,022 \cdot (\psi \cdot Pe)^\gamma$ mit $\alpha = 4,82 + 0,697 \cdot \frac{r_2}{r_1}$, ψ Korrekturfaktor (Gl. 4) $\gamma = 0,758 \cdot \left(\frac{r_2}{r_1}\right)^{0,053}$
längs koaxial überströmtes Rohrbündel für $P/D > 1,35$ P = Zentralrohrabstand D = Rohrdurchmesser	$Nu = 6,66 + 3,126 \cdot \left(\frac{P}{D}\right) + 1,184 \cdot \left(\frac{P}{D}\right)^2 + 0,0155 \cdot (\psi \cdot Pe)^{0,8}$ (Gl. 5)

C.2 Stoffdaten für flüssiges Blei

Die im folgenden aufgeführten Stoffgesetze gelten bei Anwendung des SI-Einheitensystems. Temperaturen sind in Kelvin einzusetzen.

Dichte gültig für $600,6 \text{ K} < T < 1123,15 \text{ K}$ [30]:

$$\rho = \left(11,381 - 1,1653 \cdot 10^{-3} \cdot T\right) \cdot 1000 \quad (\text{Gl. 6})$$

$$\rho \quad \text{Dichte, } [\rho] = \frac{\text{kg}}{\text{m}^3}$$

$$T \quad \text{Temperatur}$$

Wärmekapazität gültig für $600,6 \text{ K} < T < 1200 \text{ K}$ [31]:

$$c = 156,82 - 1,482 \cdot 10^{-2} \cdot T \quad (\text{Gl. 7})$$

$$c \quad \text{Wärmekapazität, } [c] = \frac{\text{J}}{\text{kg} \cdot \text{K}}$$

$$T \quad \text{Temperatur}$$

Wärmeleitfähigkeit gültig für $600,6 \text{ K} < T < 1000 \text{ K}$ [32]:

$$\lambda = 34,407 - \frac{1,52929 \cdot 10^4}{T} + \frac{2,366625 \cdot 10^6}{T^2} \quad (\text{Gl. 8})$$

$$\lambda \quad \text{Wärmeleitfähigkeit, } [\lambda] = \frac{\text{W}}{\text{m} \cdot \text{K}}$$

$$T \quad \text{Temperatur}$$

Dynamische Viskosität gültig für $623,15 < T < 1173,15$ K [33]:

$$\eta = \frac{10^{\left(-0,2935 + \frac{430,93}{T}\right)}}{1000} \quad (\text{Gl. 9})$$

η dynamische Viskosität, $[\eta] = \text{Pa} \cdot \text{s}$
 T Temperatur

C.3 Datenblätter zu den untersuchten Varianten der externen Kühlung

In Kap. 6.4.1.2 ist die Auslegung des Primärkreises für die Varianten **a** und **b** beschrieben, die sich nur hinsichtlich der Strömungsgeschwindigkeiten im Primärkreis außerhalb des Cores unterscheiden. Die mit dem Tabellenkalkulationsprogramm EXCEL ermittelten Daten sind im folgenden geschlossen dargestellt. Das Verhältnis von Zentralabstand (Pitch P) zu Durchmesser D im Wärmetauscher wurde auf Werte größer als 1,35 festgelegt, so daß Gl. 5 für die Bestimmung der Nusselt-Zahlen für überströmte Rohrbündel angewendet werden darf. Die Zielgröße I_{Core}/I_G folgt aus der Division der im Core verbrachten Zeit $l_{\text{Core}}/v_{\text{Core}}$ zur Gesamtumlaufzeit $\sum l_i/v_i$.

Variante a:

Leistung thermisch / MW	1410
v_p im WT / (m/s)	1,5
$v_{\text{Bögen}}$ / (m/s)	2,0
D_{Core} / m	6,3
Leistungsdichte / (MW/m ³)	170

Geometrische Daten des Einzelrohres

D_i / mm	s / mm	D_a / mm	Pitch / mm	D_{hvdR} / mm
15	1,5	18	24,48	18,7105653
P/D_a	1,36			
A_I / m ²	0,000176715			
A_A / m ²	0,000264514			
A_{rohr} / m ²	0,000077754			

T_{PEin} / C	600		ΔT_{log}	61,66
T_{PAus} / C	375		$\Delta T(I)$	50
T_{SEin} / C	300		$\Delta T(0)$	75
T_{SAus} / C	550			

Daten	Primärkreislauf		Sekundärkreislauf	
Temperaturspreize / K	225			250
Mittlere Temperatur / K	760,65			698
Stoffdaten nach Kap. C.2				
λ / (W/m/K)	18,39			17,35
ρ / (kg/m ³)	10494,61			9616,53
η / Pas	1,89E-03			1,91E-03
c / (J/kg/K)	145,55			146,48
m_p/m_s	1,12		v_s / (m/s)	0,98
Ähnlichkeitszahlen				
Re	1,25E+05			9,22E+04
Pr	1,49E-02			1,61E-02
Pe	1,87E+03			1,49E+03
			$\psi = f(Re)$	0,83
Nusselt-Zahlen	15			21
Alpha-Zahlen / (W/m ² /K)	18828			19821

Rohrwand

Lambda (Wand) / (W/m/K)	50
Rohralpha / (W/m ² /K)	30471

Ergebnisse:

k / (W/m ² /K)	6802
A_A / m ²	3367
l_{Rohr} / m	3,84
Rohranzahl n_G	15500

Daten jedes der 6 erforderlichen Wärmetauscher

n_{WT}	A_q / m ²	D_{WT} / m	H_{WT} / m
2583	1,34	1,31	3,84

Wirkungsgrad ε jedes Wärmetauschers

m_p / (kg/s)	m_s / (kg/s)	$\mu < 1$!	κ	ε
43116,99	38559,31	0,90	4,05	0,83

Druckverlust im Wärmetauscher

Rohrrauigkeit k / mm (Stahlrohre neu)	0,1
D/k	150
Reibungswert $f(Re)$	0,04
Δp / Pa	1,21E+05

Druckverlust im Core

D_i / mm	l_{Core} / m	v_{Core} / m/s	Δp / Pa	Re
30	2,5	1,24	2,67E+04	2,06E+05

Δp_{Rest} / Pa	1,00E+05
Δp_G / Pa	2,48E+05
V_{Strom} / (m ³ /s)	4,11
P_{Pumpe} / MW	1,02
P_{elP}/P_{elGes} / %	0,24

Rohrbögen im restlichen Primärkreis
Gesamtdruckverlust

Wirkg. Grad 80 %

Inventar

l_{Core} / v_{Core}	$l_{Bögen}/v_{Bögen}$	H_{Wt} / v_{Wt}	t_{Core}/t_G	l_{Core}/l_G
2,02	2,56	2,56	0,28	0,28

Variante b:

Leistung thermisch / MW	1410
v_p im WT / (m/s)	1,3
$v_{Bögen}$ / (m/s)	1,3
D_{Core} / m	6,3
Leistungsdichte / (MW/m ³)	170

Geometrische Daten des Einzelrohres

D_i / mm	s / mm	D_a / mm	Pitch / mm	D_{hydr} / mm
15	1,5	18	24,48	18,7105653
P/D_a	1,36			
A_I / m ²	0,000176715			
A_A / m ²	0,000264514			
A_{rohr} / m ²	0,000077754			

T_{PEin} / °C	600	ΔT_{log}	61,66
T_{PAus} / °C	375	$\Delta T(l)$	50
T_{SEin} / °C	300	$\Delta T(0)$	75
T_{SAus} / °C	550		

Daten	Primärkreislauf		Sekundärkreislauf	
Temperaturspreize / K	225			250
Mittlere Temperatur / K	760,65			698
Stoffdaten nach Kap. C.2				
λ / (W/m/K)	18,39			17,35
ρ / kg/m ³	10494,61			9616,53
η / Pas	1,89E-03			1,91E-03
c / (J/kg/K)	145,55			146,48
m_p/m_s	1,12		v_s / (m/s)	0,85
Ähnlichkeitszahlen				
Re	1,08E+05			7,99E+04
Pr	1,49E-02			1,61E-02
Pe	1,62E+03			1,29E+03
			$\psi = f(Re)$	0,76
Nusselt-Zahlen	14			20
Alpha-Zahlen / (W/m ² /K)	17454			18641

Rohrwand

Lambda (Wand) / (W/m/K)	50
Rohralpha / (W/m ² /K)	30471

Ergebnisse:

k / (W/m ² /K)	6443
A_A / m ²	3554
l_{Rohr} / m	3,51
Rohranzahl n_G	17884

Daten jedes der 6 erforderlichen Wärmetauscher

n_{WT}	A_g / m ²	D_{WT} / m	H_{WT} / m
2981	1,55	1,40	3,51

Wirkungsgrad ε jedes Wärmetauschers

m_p / (kg/s)	m_s / (kg/s)	$\mu < 1$!	κ	ε
43116,99	38559,31	0,90	4,05	0,83

Druckverlust im Wärmetauscher

Rohrrauhigkeit k / mm (Stahlrohre neu)	0,1
D/k	150
Reibungswert $f(Re)$	0,04
Δp / Pa	8,31E+04

Druckverlust im Core

D_i / mm	l_{Core} / m	v_{Core} / m/s	Δp / Pa	Re
30	2,5	1,24	2,67E+04	2,06E+05

Δp_{Rest} / Pa	1,00E+05
Δp_G / Pa	2,10E+05
V_{Strom} / (m ³ /s)	4,11
P_{Pumpe} / MW	0,86
P_{elP}/P_{elGes} / %	0,20

Rohrbögen im restlichen Primärkreis

Gesamtdruckverlust

Wirkg. Grad 80 %

Inventar

l_{Core} / v_{Core}	$l_{Bögen}/v_{Bögen}$	H_{Wt} / v_{Wt}	t_{Core}/t_G	l_{Core}/l_G
2,02	4,26	2,70	0,22	0,22

C.4 Datenblätter zur internen Kühlung mit Zwangskonvektion

Die folgende Datenzusammenstellung enthält die mit dem Tabellenkalkulationsprogramm EXCEL ermittelten Werte für die interne Kühlung mit Zwangskonvektion gemäß Kap. 6.4.2. Die Rechnungen modellieren ein 2,5 m langes Rohr mit 1 mm Wandstärke und einem Innendurchmesser von 15 mm, das durch ein koaxiales Rohr mit einem Innendurchmesser von 22 mm gekühlt wird. Die abzuführende Leistungsdichte beträgt 170 MW/m^3 . In Abb. 6.9 wurde das berechnete Temperaturprofil für den Ringspalt und das Zentralrohr aufgetragen.

	Primär- seite		Sekundär- seite
$v_p / (\text{m/s})$	1	v_s	1,56
T / K	931		735,65
$D_{\text{hydr}} / \text{mm}$	30		12
Stoffdaten			
$\lambda / (\text{W/m/K})$	20,71		17,99
$\rho / \text{kg/m}^3$	10296,11		10523,75
η / Pas	1,44E-03		1,93E-03
$c / (\text{J/kg/K})$	143,02		145,92
Ähnlichkeitszahlen			
Re	2,14E+05		1,02E+05
Pr	9,97E-03		1,56E-02
Pe	2,13E+03		1,60E+03
		$\psi = f(\text{Re})$	0,83
Nusseltbeziehungen			
		α	5,778375
		γ	0,770902135
Nusselt nach Gl. 3	17	nach Gl. 4	11
$\alpha_{\text{Rohr}} / (\text{W/m}^2/\text{K})$	11399		17091
$\lambda_{\text{Rohr}} / (\text{W/m/K})$	50		
$\alpha_{\text{Rohr}} / (\text{W/m}^2/\text{K})$	48421		
Ergebnisse			
$k / (\text{W/m}^2/\text{K})$	5789		
$m / (\text{kg/s})$	7		11,76

Parameter zur analytischen Lösung des Temperaturprofils

A	B	$T_p(0) / \text{K}$	D1	D2
0,220093244	115	934,142037	0,559115582	0,339022338

D Formelzeichen und Abkürzungen

Formelzeichen

	Erläuterung	Einheit		Erläuterung	Einheit
A	Atommasse	-	p	Druck	Pa, torr
A	Fläche	m ²	P	Leistung	W
c	Wärmekapazität	J/kg/K	Pe	Peclet-Zahl	-
C	Konversionsrate	-	P	Wahrscheinlichkeit	-
C	Strahlungsaustauschzahl	-	Pr	Prandtl-Zahl	-
CM	parasitäre Neutroneneinfänge	-	Q	extern. Quellneutronen	
D	Durchmesser	mm, cm, m	r	Radius	m
D	Neutronenverbrauch	-	R	dimensionsl. Radius	-
E	Energie	MeV, J	R	Neutronenverluste	-
E	Verdampfungsrate	kg/m ² /s	R	Impedanz	Ω
E	Elastizitätsmodul	N/m ²	$\vec{R}$	Speiseratenvektor	mol/s
g	Erdbeschleunigung	m/s ²	Re	Reynoldszahl	-
G	innere Energie	J	s	Spaltbreite	mm
H	Enthalpie	J	S	Formfunktion	-
H	Höhe	mm, cm, m	t	Zeit	s, h, d
I	Stromstärke	A	T	Temperatur	K, °C
k	Multiplikationsfaktor		v	Geschwindigkeit	m/s
k	Wärmedurchgangskoeffizient	W/m ² /K	U	Umfang	m
K	Konstante	versch.	U	Spannung	V
l	Länge	m	V	Volumen	m ³ /s
L	Leckageneutronen	-	w	Geschwindigkeit	m/s
m	Masse	kg	W	dimensionslose Geschwindigkeit	-
$\dot{m}$	Massenstrom	kg/s	W	Gewichtsfunktion	-
M	Molekulargewicht	kg/mol, g/mol	x	Laufindex	m
N	Kernzahldichte	1/cm ³	$\vec{X}$	Vektor der Kernzahldichten	
N	Zählindex	-	Y	Yield (Neutronenprod.)	-
Nu	Nusseltzahl	-	z	Laufindex	m

Griechische Formelzeichen

	Erläuterung	Einheit
α	Wärmeübergangszahl	$\text{W/m}^2/\text{K}$
α	Wärmeausdehnungskoeffizient	$1/\text{K}$
β	Anteil verzögerter Neutronen	-
β	Volumenausdehnungskoeffizient	-
Δ	Differenz	-
ε	Emissionszahl	-
Φ	Neutronenfluß	$\text{n/cm}^2/\text{s}$
Φ	dimensionslose Temperatur	-
η	Wirkungsgrad	-
η	dynamische Viskosität	Pa s
φ	Volumenanteil	-
ϑ	Winkel	Grad
λ	Wärmeleitfähigkeit	W/m/K
λ	Zerfallsrate	$1/\text{s}$
Λ	prompte Neutronenlebensdauer	s
μ	chemisches Potential	J/mol
ν	Spaltneutronenanzahl	-
ν	Querkontraktionszahl	-
π	Kreiszahl	-
ρ	Dichte	kg/m^3
ρ	Reaktivität	-
σ	mikroskopischer Querschnitt	barn
σ	Stefan-Boltzmannkonstante	$\text{W/m}^2/\text{K}^4$
σ	Spannung	N/m^2
Σ	makroskopischer Querschnitt	$1/\text{cm}$
Σ	Summe	-
τ	Schubspannung	N/m^2

Indices

	Erläuterung		Erläuterung
a	Absorption	I	Inventar
A	Außen	i	innen
Aus	Austritt	Log	Logarithmisch
B	Beschleuniger	max	maximal
c	(n, γ)-Reaktion (capture)	Norm	Normzustand
C	Konversion	P	Primär
Cryo	Kryostat = Kältemaschine	P	Partikel
D	Dispersion	Rf	Hochfrequenz (Radiofrequency)
e	Einheit	S	Sekundär
Ein	Eintritt	S	Schmelzpunkt
eff	effektiv	St	statisch
el	elektrisch	turb	turbulent
f	Fission, Spaltung	th	thermisch
F	Fluid	U	Umgebung
F	Spaltung	W	Wand
G	Gesamt	Z	Zyklus

Abkürzungen

	Erläuterung
a	Jahr
Am	Americium
ANL	Argonne National Laboratory (Forschungszentrum Zweigeteilt: West in Idaho, East in Illinois, USA)
ALI	maximale jährliche berufsbedingte Aktivitätsaufnahme eines radioaktiven Nuklids (Annual Limit of Intake)
ALMR	Bezeichnung in den USA für schnelle natriumgekühlte Reaktoren mit metallischem Brennstoff (Advanced Liquid Metal Reactor)
AVM	Atelier de Vitrification Marcoule
BE	Brennelement
Bi	Wismut
BNL	Brookhaven National Laboratory, Forschungszentrum USA

	Erläuterung
BOC	Beginn eines Zyklus
BOEC	Beginn des Gleichgewichtszyklus (Beginning of Equilibrium Cycle)
CANDU	kanadischer schwerwassermoderierter Druckwasserreaktor
CEA	Commissariat a l'Energie Atomique
Cm	Curium
CW	Bezeichnung für Beschleuniger die weitgehend kontinuierlich und nicht gepulst ihre Teilchen freisetzen (Continuous Wave)
d	Tage (day)
DWR	Druckwasserreaktor
EBR-2	Experimental Breeder Reactor, Standort Idaho ANL-West
EOC	Ende eines Zyklus
EOEC	Ende des Gleichgewichtszyklus (End of Equilibrium Cycle)
FP	Spaltprodukte (fission products)
HAW	Radioaktiver Abfall hoher Aktivität
HETC	High Energy Transport Code (siehe Beschreibung im Anhang)
Hf	Hafnium
HRE	Homogenous Reactor Experiment
HTR	Hochtemperaturreaktor
HTGR	amerik. Bezeichnung für einen HTR (High Temperature Gas-Cooled Reactor)
ICRP	International Commission on Radiological Protection
IFR	ALMR mit integriertem pyrometallurgischen Brennstoffkreislauf (Integral Fast Reactor)
ISR	Institut für Sicherheitsforschung und Reaktortechnik am Forschungszentrum Jülich
ITEP	Institute for Theoretical and Experimental Physics, Moskau
JAERI	Japan Atomic Energy Research Institute
KAPL	Knolls Atomic Power Laboratory, Forschungszentrum USA
LANL	Los Alamos National Laboratory, Forschungszentrum USA
LAW	Radioaktiver Abfall niedriger Aktivität
LINAC	Linearbeschleuniger (Linear Accelerator)
LOF	Verlust des Primärkühlmittelstroms durch das Core (Loss of Flow)
LOHS	Verlust der Wärmesenke (Loss of Heat Sink)
LWR	Leichtwasserreaktor
MA	Minor Actinides, im allgemeinen Np, Am, Cm

	Erläuterung
MAW	Radioaktiver Abfall mittlerer Aktivität
MOX	Mischoxid im allgemeinen U-Pu Mischung
MSR	Salzschmelzenreaktor (Molten Salt Reactor)
MSRE	Fluoridschmelzenreaktor des ORNL (Molten Salt Reactor Experiment)
n	Neutron
NEA	Nuclear Energy Agency
Np	Neptunium
OECD	Organization for Economic Cooperation and Development
ORNL	Oak Ridge National Laboratory, Forschungszentrum USA
p	Proton
Pa	Protactinium
Pb	Blei
PRISM	Power Reactor Inherently Safe Module
PSI	Paul Scherrer Institut, Schweiz
Pu	Plutonium
PUREX	Plutonium-Uranium Separation by Extraction
RE	Seltene Erden (Rare Earths)
SBR	Sammelbezeichnung für Reaktoren mit schnellen Neutronenspektren, ursprünglich Schneller Brutreaktor im europäischen Sprachgebrauch aber auch aufgrund der historischen Entwicklung als Bezeichnung für Konverter üblich
SM	Schwermetall
StrlSchV	Strahlenschutzverordnung
Th	Thorium
TOP	Kritikalitätsstörfall (Transient overpower)
TRU	Transurane
U	Uran
WAA	Wiederaufarbeitungsanlage

Jül-3181
Januar 1996
ISSN 0944-2952